无周期光学超晶格中耦合三次谐波转换效率的提高

张丽娟1 赵丽明2*

¹晋中学院信息技术与工程学院,山西晋中 030600 ²首都师范大学物理系,北京 100048

摘要 利用非线性共轭梯度算法(NCG)设计了无周期光学超晶格(NOS),在该结构中实现了高转换效率的耦合三次谐波(CTHG)。相对于传统的模拟退火算法(SA)所设计的非周期光学超晶格(AOS),无论单波长还是多波长的CTHG,利用 NCG 算法所设计的 NOS 结构可以得到更高的转换效率。这是因为在无周期光学超晶格结构中每层 畴的宽度的选取是任意的,通过 NCG 算法对每层畴宽度进行优化,可以达到更好的准相位匹配(QPM)。计算了转换效率随光波传播距离的变化情况,结果表明转换效率随光波传播距离的增加而增大,这说明每层畴对转换效率 的贡献是积极的,所设计的样品达到了准相位匹配。

关键词 非线性光学;耦合三次谐波;高转换效率;非线性共轭梯度算法;无周期光学超晶格;准相位匹配
 中图分类号 O437 文献标识码 A
 doi: 10.3788/LOP53.091901

Enhancement of the Coupled Third Harmonic Conversion Efficiency in Non-Periodic Optical Superlattice

Zhang Lijuan¹ Zhao Liming²

¹ School of Information Technology and Engineering, Jinzhong University, Jinzhong, Shanxi 030600, China ² Department of Physics, Capital Normal University, Beijing 100048, China

Abstract The high conversion efficiency of coupled third harmonic generation (CTHG) is achieved in the nonperiodic optical superlattice (NOS) which is devised by the nonlinear conjugate-gradient (NCG) method. For either the single wavelength case or the multiple wavelengths case, the conversion efficiency of CTHG is higher in the NOS structure than that in the aperiodic optical supperlattice (AOS) which is devised by the traditional simulated annealing method. Since the thickness of each domain is arbitrary and further optimization can be done by using NCG method, it is easier to achieve the optimal quasi-phase matching (QPM) in the NOS structure. The variation of conversion efficiency as a function of the optical wave propagating distance is calculated, and the results show that the conversion efficiency increases with the increase of the optical wave propagating distance, which indicates that the contribution of every domain on CTHG process is positive, and that the optical QPM can be achieved in the NOS structure.

Key words nonlinear optics; coupled third harmonic; high conversion efficiency; nonlinear conjugate-gradient method; non-periodic optical superlattice; quasi-phase matching

OCIS codes 190.2620, 190.4410, 190.4400

1 引 言

二阶非线性光学效应如倍频、和频、差频和光参量振荡等^[16]一直是非线性光学的研究热点。1961年, Franken等^[7]利用红宝石激光器照射石英晶体,首次证实了二次谐波的产生,从而开创了二阶非线性光学理 论及非线性材料的新领域。利用材料的二阶非线性系数可以实现频率转换等二阶非线性过程,非线性材料

收稿日期: 2016-05-09; 收到修改稿日期: 2016-05-13; 网络出版日期: 2016-08-26

基金项目:国家自然科学基金(11004139)、北京市自然科学基金(1102012)、山西省"131"领军人才工程项目

作者简介: 张丽娟(1984—),女,硕士,讲师,主要从事凝聚态物理和非线性光学方面的研究。E-mail: adl3085@163.com * **通信联系人。**E-mail: me_zlm@sohu.com

中的频率转换效应可以拓宽激光的频率范围,实现激光在工程技术等领域的应用。三倍频是一种获得短波 长光源的常见方法,然而基波和谐波在材料中的传播速度不一致,导致相位失配,大大降低了谐波的转换效 率^[8]。1962年,Armstrong等^[9-10]提出了准相位匹配(QPM)的概念,非线性频率转换效应的增强可以通过 周期性改变晶体的自发极化符号实现。目前,QPM技术广泛应用于各种光学超晶格材料中,包括准周期光 学超晶格(QOS)^[11]、非周期光学超晶格(AOS)^[12-13]和无周期光学超晶格(NOS)^[14]。随着准相位匹配技术 的发展和成熟,不仅可以利用晶体的最大非线性系数进行频率转换,而且在晶体透明区域内可以对相互作用 的耦合波实现相位匹配^[15]。高效稳定的三倍频谐波转换一直是研究人员追求的目标^[16],他们为此进行了 大量的理论研究及相关的实验研究。1997年,Zhu等^[17-18]在一块准周期结构的钽酸锂晶体上实验了三倍 频;1999年,Gu等^[12]利用模拟退火(SA)算法设计了AOS样品,并得到了较高且大致相等的多波长耦合三 次谐波(CTHG)。然而,传统的 SA 算法中假设每层畴的厚度为一定值,通过调制畴的极化方向来得到最大 的转换效率,这其实可以形成一些极化方向相反、每一层厚度为该定值整数倍的非周期超晶格结构。然而, 最佳的准相位匹配对畴的厚度并没有任何要求,这种方式不能实现最佳的准相位匹配。光学超晶格结构的 设计可运用多种算法来实现,利用非线性共轭梯度算法(NCG)设计的 NOS 结构可大大提高二次谐波的转 换效率^[19]。本文借鉴文献[19]的算法实现 NOS 结构中 CTHG 转换效率的大幅提高,并与传统的 SA 算法 作比较,为非线性光学材料中 CTHG 转换效率的提高提供了理论指导。

2 基本原理

2.1 耦合三次谐波的转换效率

为研究由一对正负极化方向相反的铁电畴构成的一维光学超晶格,假设超晶格由 N 层铁电畴组成,光的传播方向为 z 轴,畴的自发极化方向沿 y 轴的正向或反向,单层畴的宽度为 Δx ,材料总长度为 L,即 L = $N \cdot \Delta x$,CTHG 过程应包含倍频与和频两个非线性过程,其耦合波方程为

$$\frac{\mathrm{d}E_1}{\mathrm{d}z} = \frac{\mathrm{i}\omega d_{33}}{n_1 c} d(z) \left[E_1^* \cdot E_2 \cdot \exp(\mathrm{i}\Delta k_1 \cdot z) + E_2^* \cdot E_3 \cdot \exp(\mathrm{i}\Delta k_2 \cdot z) \right], \tag{1}$$

$$\frac{\mathrm{d}E_2}{\mathrm{d}z} = \frac{\mathrm{i}2\omega d_{33}}{n_2 c} d(z) [E_1^2 \cdot \exp(-\mathrm{i}\Delta k_1 \cdot z) + E_1^* \cdot E_3 \cdot \exp(\mathrm{i}\Delta k_2 \cdot z)], \qquad (2)$$

$$\frac{\mathrm{d}E_3}{\mathrm{d}z} = \frac{\mathrm{i}3\omega d_{33}}{n_3 c} d(z) E_1 \cdot E_2 \cdot \exp(-\mathrm{i}\Delta k_2 \cdot z), \qquad (3)$$

式中 ω 是基频波频率, d_{33} 是材料的最大非线性系数, E_1 、 E_2 、 E_3 分别为基频波(FW)、倍频波(SHW)和三次 谐波(THW)的电场, n_1 、 n_2 、 n_3 分别为FW、SHW 和 THW 在非线性材料中的折射率,c为光速, $k_1 = \frac{\omega}{c}n_1$ 、 $k_2 = \frac{\omega}{c}n_2$ 、 $k_3 = \frac{\omega}{c}n_3$ 分别为FW、SHW 和 THW 对应的波数, $\Delta k_1 = k_2 - 2k_1$ 、 $\Delta k_2 = k_3 - k_2 - k_1$ 分别为相位 失配量,d(z)是为描述二阶非线性光学系数的空间结构而引入的归一化函数,二阶非线性系数为正时, d(z) = 1,极化方向朝上,二阶非线性系数为负时,d(z) = -1,极化方向朝下。在小信号近似下,CTHG 的 转换效率为^[12]

$$\eta = \frac{144\pi^4 |d_{33}|^4 I_{\omega}^2 L^4}{c^2 \varepsilon_0^2 \lambda^4 n_1^3 n_2^2 n_3} \cdot (d_{\text{reff}}^{\text{CTHG}})^2, \qquad (4)$$

式中 I_{a} 为基波强度, ϵ_{0} 为真空介电常数, λ 为基波波长, d_{reff}^{CTHG} 为晶体的有效非线性系数^[12],其表达式为

$$d_{\text{reff}}^{\text{CTHG}} = \frac{2}{L^2} \left| \int_0^L dz \cdot \exp(-i\Delta k_2 z) \cdot d(z) \times \int_0^z dx \cdot \exp(-i\Delta k_1 x) \cdot d(x) \right|_{\circ}$$
(5)

由(5)式可知,影响 CTHG 转换效率的因素有两个:一个是每层畴的宽度,另一个是每层畴的自发极化方向。 传统的 SA 算法中,晶体在光波传播方向被均匀分割成相等长度的单元畴,畴宽度为相干长度或是相干长度 的整数倍,对每个单元畴的自发极化方向进行优化组合,可得到为满足多重准相位匹配过程所需要的多个倒 格矢,从而提高谐波的转换效率。SA 算法设计的 AOS 结构中周期结构虽然消失了,但构造时畴宽度却是受 限制的;而 NOS 结构中每层畴的宽度是任意的。可以利用 NCG 算法对每层畴宽度进行优化,从而提高谐

波的转换效率。

2.2 非线性共轭梯度算法

非线性共轭梯度(NCG)算法已有五十多年的历史,它最早是1952年由 Hestenes 等^[20]在求解非线性方 程组时提出,并于1964年由 Fletcher 等^[21]推广到非线性优化领域。随后,很多著名优化专家对 NCG 算法 进行了深入研究,取得了非常优秀的成果。这里采用 NCG 算法设计一种无序的非线性结构,设目标 函数为^[19]

$$E = \sum_{\alpha=1}^{N_{\alpha}} \omega_{\alpha} |1 - \eta_{\alpha}|^{2} + \beta \sum_{\alpha=1,\beta=1}^{N_{\alpha}} \sum_{\alpha\neq\beta}^{N_{\alpha}} |\eta_{\alpha} - \eta_{\beta}|^{2}, \qquad (6)$$

式中 N_a 为入射的基频波数目, ω_a 和 β 为需要调节的参数, η 为谐波的转换效率。设计方法如下:1)保持相 邻畴区域的自发极化方向是相反的,即每层畴区域的自发极化方向是正负交替的;2)保证每层畴的宽度初始 值是一样的,用 t_n 来表示;3)找到一组宽度变量 $T(t_1,t_2,\dots,t_n)$ 使得目标函数最小。在 NCG 算法中宽度变 量 T 可以表示为

$$T^{(k+1)} = T^{(k)} + \tau^{(k)} d^{(k)}, \qquad (7)$$

式中 T^(k)是在第 k 次迭代中畴的宽度, τ^(k)是迭代步长因子, d^(k)是搜索方向, 且

$$d^{(k)} = -\nabla E[T^{(k)}] + \gamma^{(k-1)}d^{(k-1)}, \quad k = 1, 2, 3, \cdots,$$
(8)

式中 $\nabla E[T^{(k)}]$ 是目标函数 E 对宽度变量 T 的梯度, $\gamma^{(k-1)}$ 的表达式为

$$\gamma^{(k-1)} = \frac{|\nabla E[T^{(k)}]|^2}{|\nabla E[T^{(k-1)}]|^2}, \quad k = 1, 2, 3, \cdots.$$
(9)

为了保证迭代的收敛,τ^(k)的选择应使得

$$E[T^{(k+1)}] < E[T^{(k)}]$$
(10)

目标函数 E 对畴宽度 t_n 的梯度值可以表示为

$$\frac{\partial E(T)}{\partial t_n} = \sum_{\alpha=1}^{N_{\omega}} 2(1 - \frac{1}{|\eta_{\alpha}|}) \operatorname{Re}(\eta_{\alpha}^* \frac{\partial |\eta_{\alpha}|}{\partial t_n}) + \beta \sum_{\alpha=1,\beta=1}^{N_{\omega}} \sum_{\alpha\neq\beta}^{N_{\omega}} 2(|\eta_{\alpha} - \eta_{\beta}|) (\frac{\partial |\eta_{\alpha}|}{\partial t_n} - \frac{\partial |\eta_{\beta}|}{\partial t_n}), \quad (11)$$

$$\frac{\partial |\eta|}{\partial t} = \frac{1}{|\eta|} \operatorname{Re}\left(\frac{\partial \eta}{\partial t} \eta^*\right)_{\circ}$$
(12)

当目标函数的梯度值小于一个给定的小量时或者迭代次数超过给定值的时候迭代过程结束,算法退出。从 以上算法可以看出,设计出的每层畴宽度是任意的,所以得到的畴宽度可能会小于实际制备过程中的误差。 为此,在设计过程中令畴宽度大于1 μm。

3 NOS 结构中 CTHG 转换效率的研究

图 1 为每层畴宽度 Δx 随畴序号 n 的分布图,如图所示,大多数畴的宽度在 7 μ m 左右,少数畴宽度对称 地分布在 7 μ m 附近,计算得到畴宽度的均值为 7 μ m,样品总长度为 3530 μ m。为了将此结果与 SA 算法设 计的 AOS 结构作比较,保持晶体总长度不变,设每层畴宽度为 7 μ m,层数为 504。图 2 为扫描波长所得 CTHG 转换效率随波长的变化曲线,黑色曲线为采用 NCG 算法设计的 NOS 结构计算所得结果,红色曲线 为采用 SA 算法设计的 AOS 结构计算所得结果。如图 2 所示,基频波波长为 λ = 1.38 µm 时,NCG 算法设 计的 NOS 结构中 CTHG 的转换效率为 0.36, SA 算法设计的 AOS 结构中 CTHG 的转换效率为 9.04×10⁻²,NCG 算法设计的 NOS 结构中 CTHG 的转换效率远大于 SA 算法设计的 AOS 结构。为了证明 NCG 算法设计的 NOS 结构中可实现任意单波长的 CTHG,任选多个波长,通过 NCG 算法和 SA 算法分别 实现 CTHG,并比较其转换效率。当基频波波长为 λ = 1.20 µm 时,NCG 算法计算所得 CTHG 转换效率为 0.12, SA 算法计算所得 CTHG 转换效率为 3.54×10⁻²;当基频波波长为 λ = 1.56 µm 时,NCG 算法计算所 得 CTHG 转换效率为 0.50, SA 算法计算所得 CTHG 转换效率为 3.55×10⁻²。结果表明,在相等的晶体总 长度下,对任意抽运波长利用 NCG 算法实现 CTHG 的转换效率均高于 SA 算法的结果。因此,NCG 算法 设计的 NOS 结构可实现任意单波长的 CTHG,且获得明显高于 SA 算法的转换效率。







在 NCG 算法设计的 NOS 结构中实现多波长的 CTHG。以三波长为例,设基频波的波长分别为 λ =1.25 µm,1.38,1.52 µm,FW、SHW 及 THW 在 LiNbO₃ 材料中的折射率在 *T*=25 ℃下获得,层数为 *N*=500,入射光强为 *I*=1.0×10¹¹ W/m²。图 3 为得到的样品的每层畴宽度 Δ*x* 随畴序号*n* 的分布图,畴宽 度在 8 µm 附近随机分布,晶体总长度为 3675 µm。为了与 SA 算法作比较,保持晶体总长度一致,每层畴宽 度为 8 µm,层数为 460,用 SA 算法设计结构实现 CTHG。图 4 为扫描波长所得 CTHG 的转换效率随波长 变化的曲线,黑色曲线为 NCG 算法实现的结果,红色曲线为 SA 算法实现的结果。如图 4 所示,在 NCG 算 法设计的 NOS 结构中三个波长的转换效率明显大于 SA 算法设计的 AOS 结构,且三个波长的转换效率的 值基本一致。在 NOS 结构中三个波长的转换效率分别为 2.84×10⁻²,3.17×10⁻²,3.22×10⁻²,相应的 AOS 结构中三个波长的转换效率分别为 1.02×10⁻³,1.03×10⁻³,1.03×10⁻³,转换效率提高了近 30 倍。





图 3



为了进一步了解光学超晶格中 CTHG 的内部机制,进一步研究了 NCG 算法和 SA 算法实现 CTHG 的 样品中 $\sqrt{\eta}$ 随光波在晶体中传播距离的变化情况(即光波随晶体长度的变化),如图 5 所示,其中,黑色曲线代 表 NCG 算法设计的结构中 $\sqrt{\eta}$ 随光波在晶体中传播距离的变化情况,红色曲线代表 SA 算法设计的结构中 $\sqrt{\eta}$ 随光波在晶体中传播距离的变化情况。由图 5 可知,两种算法设计的结构中 $\sqrt{\eta}$ 均随光波在晶体中传播距 离的增加而增加,但采用 NCG 算法获得的曲线斜率明显大于采用 SA 算法获得的曲线斜率,这说明在 NCG 设计的 NOS 结构中更容易达到准相位匹配,谐波在样品的每层畴中得到持续的增长,所以能获得较高的转 换效率。



Fig. 5 Variation of $\sqrt{\eta}$ as a function of the optical wave propagating distance

4 结 论

借鉴文献[19]的 NCG 算法设计了 NOS 结构,并在该结构中实现了对 CTHG 转换效率的大幅提高。 在保持样品总长度不变的条件下对比了 NCG 算法设计的结构和传统的 SA 算法设计的结构中 CTHG 的转 换效率。结果表明:NCG 算法设计的 NOS 结构中,无论是单波长还是多波长的 CTHG 转换效率都明显高 于 SA 算法设计的 AOS 结构。这是因为在 NOS 结构中,每层畴的宽度是任意的,通过 NCG 算法对畴的宽 度进行优化可以达到更优良的 QPM。另外,计算了转换效率随光波在晶体中传播距离的变化情况,计算结 果表明:转换效率随光波在晶体中传播距离的增加而增加,这说明谐波在样品的每层畴中得到持续的增长, 所设计样品结构达到了较好的 QPM,所以获得的转换效率明显高于 SA 算法设计的结构。该研究结果将为 非线性光学材料中 CTHG 转换效率的提高提供理论指导。

参考文献

- 1 Gawith C B E, Shepherd D P, Abernethy J A, et al. Second-harmonic generation in a direct-bonded periodically poled LiNbO₃ buried waveguide[J]. Opt Lett, 1999, 24(7): 481-483.
- 2 Miller G D, Batchko R G, Tulloch W M, et al. 42%-effective single-pass cw second-harmonic generation in periodically poled lithium niobate[J]. Opt Lett, 1997, 22(24): 1834-1836.
- 3 Pruneri V, Koch R, Kazansky P G, et al. 49 mW of cw blue light generated by first-order quasi-phase-matched frequency doubling of a diode-pumped 946-nm Nd: YAG laser[J]. Opt Lett, 1995, 20(23): 2375-2377.
- 4 Myers L E, Eckardt R C, Fejer M M, et al. Quasi-phase-matched optical parametric oscillation in bulk periodically poled LiNbO₃[J]. J Opt Soc Am B, 1995, 12(11): 2101-2116.
- 5 Yang S T, Velsko S P. Frequency-agile kilohertz repetition optical parametric oscillator based on periodically poled lithium niobate[J]. Opt Lett, 1999, 24(3): 133-135.
- 6 Li Weifan, Guo Baoshan, Shi Wei. Progress of terahertz parametric oscillator [J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2014, 51(9): 090005.

李惟帆,郭宝山,史 伟.太赫兹参量振荡器研究进展[J].激光与光电子学进展,2014,51(9):090005.

- 7 Franken P A, Hill A E, Peters C W, et al. Generation of optical harmonics [J]. Phys Rev Lett, 1961, 7(4): 118-120.
- 8 Shi Shunxiang, Chen Guofu, Zhao Wei. Nonlinear optics[M]. Xi'an: Xidian University Press, 2003: 177.

石顺祥,陈国夫,赵 卫. 非线性光学[M]. 西安: 西安电子科技大学出版社, 2003: 177.

- 9 Armstrong J A, Bloembergen N, Ducuing J, et al. Interactions between light waves in a nonlinear dielectric [J]. Phys Rev, 1962, 127(6): 1918-1939.
- 10 Bloembergen N, Pershan P S. Light waves at the boundary of nonlinear media[J]. Phy Rev, 1962, 128(2): 606-622.
- 11 Lifshita R, Arie A, Bahabad A. Photonic quasicrystals for nonlinear optical frequency conversion [J]. Phys Rev Lett, 2005, 95(13): 133901.
- 12 Gu B Y, Dong B Z, Zhang Y, et al. Enhanced harmonic generation in aperiodic optical superlattices[J]. Appl Phys Lett, 1999, 75(15): 2175-2177.
- 13 Arbore M A, Marco O, Fejer M M. Pulse compression during second-harmonic generation in aperiodic quasi-phasematching gratings[J]. Opt Lett, 1997, 22(12): 865-867.
- 14 Chen X F, Wu F, Zeng X L, et al. Multiple quasi-phase-matching in a nonperiodic domain-inverted optical superlattice [J]. Phys Rev A, 2004, 69(1): 013818.
- Li Hong, Feng Jinxia, Wan Zhenju, *et al.* Low noise continuous-wave single frequency 780 nm laser high-efficiently generated by extra-cavity-enhanced frequency doubling[J]. Chinese J Lasers, 2014, 41(5): 0502003.
 李 宏, 冯晋霞, 万振菊, 等. 高效率外腔倍频产生低噪声连续单频 780 nm 激光[J]. 中国激光, 2014, 41(5): 0502003.
- 16 Li Keyu, Feng Bin, Wang Fang, et al. Harmonic conversion rule for Gauss pulse with nonideal conditions [J]. Acta Optica Sinica, 2014, 34(8): 0819001.

李恪宇,冯 斌,王 芳,等.高期脉冲非理想条件下的谐波转换规律[J].光学学报,2014,34(8):0819001.

- 17 Zhu S N, Zhu Y Y, Ming N B. Quasi-phase-matched third-harmonic generation in a quasi-periodic optical superlattice[J]. Science, 1997, 278(5339): 843-846.
- 18 Zhu S N, Zhu Y Y, Qin Y Q, et al. Experimental realization of second harmonic generation in a Fibonacci optical superlattice of LiTaO₃[J]. Phys Rev Lett, 1997, 78(14): 2752-2755.
- 19 Zhao L M, Yue G K, Zhou Y S, *et al.* A promising nonlinear conjugate-gradient method proposed to design nonlinear domains with a disordered distribution [J]. Mod Phy Lett B, 2015, 29(9): 1550030.
- 20 Hestenes M R, Stiefel E. Methods of conjugate gradients for solving linear systems[J]. J Res Nat Bur Standards, 1952, 49(6): 409-436.
- 21 Fletcher R, Reeves C. Function minimization by conjugate gradients [J]. Computer J, 1964, 7(2): 149-154.
- 22 Chen Yunlin, Guo Juan, Liu Xiaojuan, et al. Continuous-wave quasi-phase-matched second harmonic generation at 490 nm in periodically poled MgO:LiNbO₃[J]. Acta Photonica Sinica, 2005, 34(1): 29-31. 陈云琳, 郭 娟, 刘晓娟, 等. 准相位匹配周期极化掺镁铌酸锂 490 nm 倍频连续输出[J]. 光子学报, 2005, 34(1): 29-31.
- Zhang Yuantao, Qu Qiuzhi, Qian Jun, et al. Thermal effect analysis of 1560 nm laser frequency doubling in a PPLN crystal[J]. Chinese J Lasers, 2015, 42(7): 0708002.
 张远涛, 屈求智, 钱 军, 等. PPLN 晶体 1560 nm 激光倍频过程的热效应分析[J]. 中国激光, 2015, 42(7): 0708002.
- 24 Dmitriev G, Gurazdyan G G, Nikogosyan D N. Handbook of nonlinear optical crystals [M]. Berlin: Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1999.
- 25 Zhao L M, Yue G K, Zhou Y S, *et al.* Effect of pump depletion on second harmonic generation in multiple quasi-phasematching gratings[J]. Opt Express, 2013, 21(15): 17592-17601.