

双轴晶体中三波相互作用时的 最佳相位匹配问题

谢绳武 郭嘉荣 赵家驹 沈利

(上海交通大学应用物理系)

提 要

本文论述了双轴晶体中和频、差频、参量振荡、参量放大等各种三波相互作用过程时相位匹配曲线及有效非线性系数的数值计算方法。从而只要知道某种双轴晶体对相应波长的主折射率及非线性系数后,便可求得最佳相位匹配角 θ_{OPM} 和 ϕ_{OPM} 。本文报导了对六种双轴晶体的计算结果和对二种双轴晶体的实验情况。实验结果与计算结果十分一致。

一、前 言

近年来用于非线性光学的双轴晶体越来越多。在使用中,为了获得最大的转换效率,必须求得在 PM (相位匹配)条件下使有效非线性系数的绝对值 $|d_{eff}|$ 达到最大值的最佳 PM 角 θ_{OPM} 和 ϕ_{OPM} 。由于双轴晶体的折射率面无旋转对称性, d_{eff} 的表达式又极为冗长,因此必须使用计算机作数值计算。

双轴晶体中倍频最佳 PM 角的计算方法已经基本解决^[2~4]。双轴晶体中其它三波相互作用时最佳 PM 角的计算问题,文献[3]仅作了简单的讨论,对于II型 PM 的进一步分类以及差频过程 d_{eff} 的计算公式均未作讨论,也未给出和频、差频过程的 θ_{OPM} 、 ϕ_{OPM} 计算结果。

本文论述了包括和频、差频、参量振荡、参量放大在内各种三波相互作用时双轴晶体中最佳 PM 角的计算方法,给出了对一水甲酸锂、二水甲酸铯、五硼酸钾等六种双轴晶体的计算结果,并且报道了实验结果。

二、计算方法

双轴晶体中的 PM 也分为I型(平行式)和II型(正交式)。但同倍频过程不同,双轴晶体中的和频、差频过程,在II型 PM 中还应区分为II(A)型 PM 和II(B)型 PM 。这两种不同的 PM 方式有不同的最佳 PM 角。

各种类型的 PM 过程要满足如下条件:

$$\text{I型:} \quad n_1^2 \omega_1 + n_2^2 \omega_2 = n_3^2 \omega_3, \quad (1)$$

$$\text{II(A)型:} \quad n_1^2 \omega_1 + n_2^2 \omega_2 = n_3^2 \omega_3, \quad (2)$$

$$\text{II(B)型:} \quad n_1^2 \omega_1 + n_2^2 \omega_2 = n_3^2 \omega_3, \quad (3)$$

式中 $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ 为三波频率, 满足 $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$ 及 $\omega_1 \leq \omega_2 < \omega_3$, n_1, n_2, n_3 为与三种频率相应之折射率, e_1 表示波矢 \mathbf{K} 对应电场中慢光所相应的偏振态, e_2 表示快光所相应的偏振态。这里假定三波共线相互作用。

分别将上述 PM 条件和三个不同频率下的折射率曲面方程:

$$\frac{\sin^2 \theta \cos^2 \phi}{n_l^{-2} - n_{zl}^{-2}} + \frac{\sin^2 \theta \sin^2 \phi}{n_l^{-2} - n_{yl}^{-2}} + \frac{\cos^2 \theta}{n_l^{-2} - n_{zl}^{-2}} = 0 \quad (4)$$

$$(l=1, 2, 3)$$

联列就可求得 PM 曲线。其中 θ, ϕ 为 \mathbf{K} 在球坐标下的方位角, n_{zl}, n_{yl}, n_{xl} 分别对应 ω_l 频率下双轴晶体的主折射率。由于 θ, ϕ 之间无简单的解析表达式, 故必须作逐点数值计算, 然后描绘出 PM 曲线。在计算中对 PM 曲线上的每一点, 同时计算了 d_{eff} 的数值。

双轴晶体中各种点群倍频过程的 d_{eff} 计算公式可参见文献[3]和[4]。

双轴晶体中和频(SF)、差频(DF)过程 I 型 PM 的 d_{eff}^I 计算公式为

$$d_{\text{eff}SF}^I = d_{ijk} a_i^e a_j^e a_k^e, \quad (5)$$

$$d_{\text{eff}DF}^I = d_{ijk} a_i^e a_j^e a_k^e, \quad (6)$$

式中 d_{ijk} 是二阶非线性极化张量的元素, a_i^e, a_j^e 分别为电场的两个偏振分量 $\mathbf{E}^{e_1}, \mathbf{E}^{e_2}$ 方向上的单位矢量在坐标轴上的投影, i, j, k 分别均可取 x, y, z 。由于本文承认 Kleinman 近似对称条件, 三波是共线相互作用, 因此公式(5)、(6)式右边各项表示形式与频率均无关, 且可以交换。故 $d_{\text{eff}SF}^I, d_{\text{eff}DF}^I$ 同 $d_{\text{eff}SHG}^I$ 在形式上是相同的。

按照同样理由, 双轴晶体中和频、差频过程 II(A)型、II(B)型 PM 的有效非线性系数计算公式 $d_{\text{eff}SF}^{\text{II(A)}}, d_{\text{eff}SF}^{\text{II(B)}}, d_{\text{eff}DF}^{\text{II(A)}}, d_{\text{eff}DF}^{\text{II(B)}}$ 同倍频过程的 II 型 PM 的公式 $d_{\text{eff}SHG}^{\text{II}}$ 在形式上也是相同的。

这样便可利用倍频过程的 d_{eff} 公式来计算和频、差频过程的有效非线性系数, 从而求得 θ_{OPM} 和 ϕ_{OPM} 。众所周知, 参量振荡和参量放大可看成是差频过程的特殊情况, 因此各种三波作用过程下双轴晶体中 θ_{OPM} 和 ϕ_{OPM} 的计算问题都可解决了。

在计算前可根据 $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ 对应主折射率的数值来判别双轴晶体中三波相互作用时各种类型 PM 曲线的大致形状。经过分析, I 型 PM 曲线可分成五类, II(A)型、II(B)型 PM 曲线各可分成六类。

I 型 PM 曲线分类为:

当 $an_{z1} + bn_{z2} > n_{z3}$

$$an_{y1} + bn_{y2} > n_{y3}, \quad an_{z1} + bn_{z2} > n_{y3}, \quad (M)$$

$$an_{y1} + bn_{y2} < n_{y3}, \quad an_{z1} + bn_{z2} > n_{y3}, \quad (N)$$

$$an_{y1} + bn_{y2} > n_{y3}, \quad an_{z1} + bn_{z2} < n_{y3}, \quad (O)$$

$$an_{y1} + bn_{y2} < n_{y3}, \quad an_{z1} + bn_{z2} < n_{y3}, \quad (P)$$

当 $an_{z1} + bn_{z2} < n_{z3}$

II(A)型 PM 曲线分类为

(i) $an_{z1} + bn_{z2} > n_{z3}$ 时

$$an_{x1} + bn_{y2} > n_{x3}, \quad an_{y1} + bn_{z2} > n_{y3}, \quad (M)$$

$$an_{x1} + bn_{y2} < n_{x3}, \quad an_{y1} + bn_{z2} > n_{y3}, \quad (N)$$

$$an_{x1} + bn_{y2} > n_{x3}, \quad an_{y1} + bn_{z2} < n_{y3}, \quad (O)$$

$$an_{x1} + bn_{y2} < n_{x3}, \quad an_{y1} + bn_{z2} < n_{y3}, \quad (P)$$

(ii) $an_{x1} + bn_{z2} < n_{x3}$ 时

$$an_{y1} + bn_{z2} > n_{y3}, \quad (O)$$

$$an_{y1} + bn_{z2} < n_{y3}, \quad (Q)$$

II(B)型 PM 曲线分类为

(i) $an_{z1} + bn_{x2} > n_{x3}$ 时

$$an_{y1} + bn_{z2} > n_{x3}, \quad an_{z1} + bn_{y2} > n_{y3}, \quad (M)$$

$$an_{y1} + bn_{z2} < n_{x3}, \quad an_{z1} + bn_{y2} > n_{y3}, \quad (N)$$

$$an_{y1} + bn_{z2} > n_{x3}, \quad an_{z1} + bn_{y2} < n_{y3}, \quad (O)$$

$$an_{y1} + bn_{z2} < n_{x3}, \quad an_{z1} + bn_{y2} < n_{y3}, \quad (P)$$

(ii) $an_{z1} + bn_{x2} < n_{x3}$ 时

$$an_{z1} + bn_{y2} > n_{y3}, \quad (O)$$

$$an_{z1} + bn_{y2} < n_{y3}, \quad (Q)$$

上述式子中 $a = \omega_1/\omega_3$, $b = \omega_2/\omega_3$, (M)、(N)、(O)、(P)、(Q) 分别表示不同的 PM 曲线形状, 其中 (Q) 表示不能实现 PM , 在极射赤平投影坐标图上, (M)、(N)、(O)、(P) 的形状如图 1 所示:

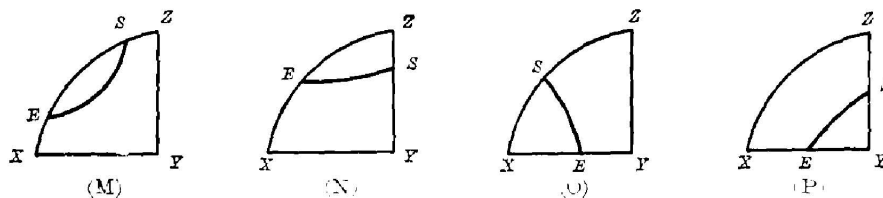


图 1 双轴晶体中三波相互作用时 PM 曲线分类

Fig. 1 PM loci classification of the three wave interaction in biaxial crystals

三、计算结果

根据上述计算方法, 使用 ALGOL-60 算法语言, 编制了可在 DJS-6 计算机上使用的计算源程序, 对正交 $mm2$ 点群的一水甲酸锂、一水甲酸锂钠、甲酸钠、五硼酸钾和正交 222 点群的甲酸铯、二水甲酸铯等六种双轴晶体进行了计算, 将计算结果列于表 1 和表 2 中。

具体计算方法是对每一根 PM 曲线, 先求出其两个端点的 θ 角: θ_s 和 θ_E , 其中 $\theta_s < \theta_E$ 。然后从 θ_s 开始, 对每一个 θ_i 值求得相应的 ϕ_i 值, 使这一组数值满足 PM 条件。然后再对另一个 θ_m 值求得 ϕ_m 值, …… 直至 θ_E 为止。在计算中采用了变步长技术和沿 PM 曲线跟踪的方法, 使计算工作量减小, 计算精度提高。

表 1 $1.064 \mu\text{m} + 0.532 \mu\text{m} \leftrightarrow 0.355 \mu\text{m}$ 过程 θ_{OPM} 和 ϕ_{OPM} 计算结果(度)Table 1 The computed results of θ_{OPM} and ϕ_{OPM} in the process
 $1.064 \mu\text{m} + 0.532 \mu\text{m} \leftrightarrow 0.355 \mu\text{m}$ (degree)

晶体名称	I 型		II(A)型		II(B)型	
	θ_{OPM}	ϕ_{OPM}	θ_{OPM}	ϕ_{OPM}	θ_{OPM}	ϕ_{OPM}
一水甲酸锂	66.6	14.0	90.0	14.6	90.0	36.8
一水甲酸锂钠	54.5	11.3	66.3	0	90.0	22.9
甲 酸 钠	50.8	10.7	60.3	0	90.0	4.3
五 硼 酸 钾	39.1	28.5	36.8	65.0	65.0	90.0
甲 酸 锶	55.0	90.0	—	—	—	—
二水甲酸锶	45.3	38.2	90.0	53.7	—	—

表 2 $1.064 \mu\text{m} + 0.266 \mu\text{m} \leftrightarrow 0.2128 \mu\text{m}$ 过程 θ_{OPM} 和 ϕ_{OPM} 计算结果(度)Table 2 The computed results of θ_{OPM} and ϕ_{OPM} in the process
 $1.064 \mu\text{m} + 0.266 \mu\text{m} \leftrightarrow 0.2128 \mu\text{m}$ (degree)

晶体名称	I 型		II(A)型		II(B)型	
	θ_{OPM}	ϕ_{OPM}	θ_{OPM}	ϕ_{OPM}	θ_{OPM}	ϕ_{OPM}
五 硼 酸 钾	56.1	42.5	57.9	90.0	—	—

四、实验结果和结论

本文用一台 Nd:YAG 脉冲调 Q 激光器的 $1.064 \mu\text{m}$ 激光, 同 LiNbO_3 晶体倍频后的

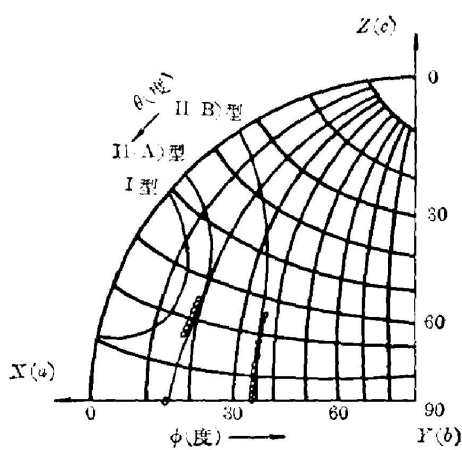


图 2 一水甲酸锂晶体 I 型、II(A)型、II(B)型和频($1.064 \mu\text{m} + 0.532 \mu\text{m} \rightarrow 0.355 \mu\text{m}$)计算所得相位匹配曲线及实验点(o)

Fig. 2 The computed PM loci of type I, type II(A), type II(B) and the experimental points (o) for Lithium Formate Monohydrate ($1.064 \mu\text{m} + 0.532 \mu\text{m} \rightarrow 0.355 \mu\text{m}$)

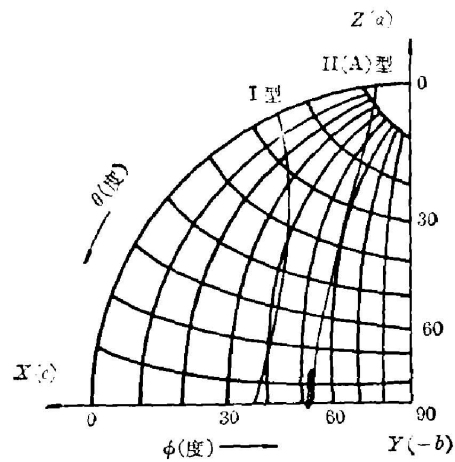


图 3 二水甲酸锶晶体 I 型、II(A)型和频($1.064 \mu\text{m} + 0.532 \mu\text{m} \rightarrow 0.355 \mu\text{m}$)计算所得相位匹配曲线及实验点(o)

Fig. 3 The computed PM loci of type I, type II(A) and the experimental points (o) for Strontium Formate Dihydrate ($1.064 \mu\text{m} + 0.532 \mu\text{m} \rightarrow 0.355 \mu\text{m}$)

0.532 μm 激光, 在一水甲酸锂晶体中实现 II(A)型和 II(B)型和频, 获得了 0.355 μm 的紫外激光, 在二水甲酸铯晶体中实现了 II(A)型和频, 也获得了 0.355 μm 激光。验证了这些晶体在三波相互作用过程时的 PM 曲线, 实验结果与计算曲线十分符合(见图 2, 图 3)。测得一水甲酸锂 II(A)型 $\theta_{OPM}=90.0^\circ$, $\phi_{OPM}=13.0^\circ$, II(B)型 $\theta_{OPM}=90.0^\circ$, $\phi_{OPM}=35.6^\circ$, 测得二水甲酸铯 II(A)型 $\theta_{OPM}=90.0^\circ$, $\phi_{OPM}=52.5^\circ$, 均同表 1 中的理论计算结果相当符合。

综上所述本文论述了双轴晶体中三波相互作用时, 相位匹配曲线及有效非线性系数的数值计算方法, 只要知道某种双轴晶体对 ω_1 、 ω_2 、 ω_3 的主折射率及非线性系数, 便可求得这种晶体在实现 ω_1 、 ω_2 、 ω_3 三波相互作用时的最佳相位匹配角 θ_{OPM} 和 ϕ_{OPM} 。

参加本文实验工作的还有华一敏同志。

对方俊鑫教授的指导, 福州大学、辽宁大学提供非线性晶体表示衷心感谢。

参 考 文 献

- [1] J. E. Midwinter *et al.*; *Brit. J. Appl. Phys.*, 1965, **16**, No. 8 (Aug), 1135.
- [2] M. V. Hobden; *J. Appl. Phys.*, 1967, **38**, No. 11 (Oct), 4365.
- [3] H. Ito *et al.*; *J. Appl. Phys.*, 1975, **46**, No. 9 (Sep), 3992.
- [4] 谢绳武等;《上海交通大学学报》, 1982, No. 1, 37.

The optimum phase matching (PM) of three wave interactions in biaxial crystals

XIE SHENGWU GUO JIARONG ZHAO JIAJU AND SHEN LI
(Shanghai Jiao Tong University, Department of Applied Physics)

(Received 13 December 1982)

Abstract

This paper discusses the calculation methods of the PM loci and the effective second-order nonlinear coefficients d_{eff}^I and d_{eff}^{II} of three wave interactions, such as SF , DF , OPO and etc. in biaxial crystals. It is found that the optimum PM angles θ_{OPM} and ϕ_{OPM} can be calculated by computers. The paper also reports the computed results for 6 biaxial crystals and the experimental results for 2 biaxial crystals. The computed results agree quite favorably with the experimental results.