第3卷 第8期
1983年11月

光 学 学 报
ACTA OPTICA SINICA

Vol. 3, No. 8
November, 1983

非线性晶体中的非共线谐波

杨天龙
(上海科学技术大学)

提　　要

根据在非线性晶体中非共线谐波有效产生的相位匹配条件，导出了基波共线和非共线时可能产生的谐波环的解析表达式，给出了谐波环的大小与基波在晶体中传播方向的关系。对 KDP 和 $LiNbO_3$ 晶体中的谐波环的变化进行了观测，实验结果与理论计算相符。

一、引　　言

用非线性晶体作强光的倍频时，可以清楚地看到与基波不共线的弧状谐波。此外，沿基波方向亦有一束倍频光。随着基波方向的移动愈来愈接近直至等于相位匹配方向，点状和弧状谐波的一端愈来愈靠近，直至点、弧重合。此时，基波方向谐波的能量转换效率达最大。对于基波共线条件下产生的弧状谐波已早有报导[1]。本文详细分析了谐波环的变化与基波在晶体中对匹配方向偏离的关系，并在 KDP 和 $LiNbO_3$ 晶体中观测了非共线谐波环的变化。实验结果和理论分析的结论一致。

二、理　　论

设基波、散射基波*和谐波波矢的单位矢量分别是 $\boldsymbol{s}_1$、$\boldsymbol{s}'_1$ 和 $\boldsymbol{s}_2$，那么，它们的波矢可以写为

$$\boldsymbol{k}_1=(2\pi n_1/\lambda_1)\boldsymbol{S}_1,\ \boldsymbol{k}'_1=(2\pi n'_1/\lambda_1)\boldsymbol{S}'_1,\ \boldsymbol{k}_2=(2\pi n_2/\lambda_2)\boldsymbol{S}_2。$$

在基波前进路程上的各点 P_1、P_2、P_3 处(见图 1(*a*))，均有非共线散射的基波 $\boldsymbol{s}'_1$。它和基波 $\boldsymbol{s}_1$ 又同时作用于介质，产生谐波 $\boldsymbol{S}_2$。在介质中增长的谐波强度可表示为：

$$I_2\propto\frac{\sin^2(\Delta\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{S}_2L/2)}{(\Delta\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{S}_2L/2)},\tag{1}$$

其中 L 为谐波方向的路程，$\Delta\boldsymbol{k}=\boldsymbol{k}_2-(\boldsymbol{k}_1+\boldsymbol{k}'_1)$。由(1)式可知，当基波和谐波的波矢满足条件

$$\Delta\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{S}_2=0\tag{2}$$

时(见图 1(*b*))，谐波 $\boldsymbol{S}_2$ 可获得极大增长。(2)式称为非共线位相匹配条件。如果 $\Delta\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{S}_2\neq0$，则出现较大强度的极值条件是

收稿日期：1982年12月6日；收到修改稿日期：1983年1月18日

* 我们称入射基波的散射波为"散射基波"。它的频率与入射基波相同，但除了与入射基波无法区分的前向散射基波外，它的波矢与入射基波不同。散射基波基本上具有连续的角分布，并只在入射基波前向的小角度内才有一定强度。晶体中的各向异性和密度起伏，晶体表面及内部的各种缺陷是产生和加强这种散射基波的因素[1]。

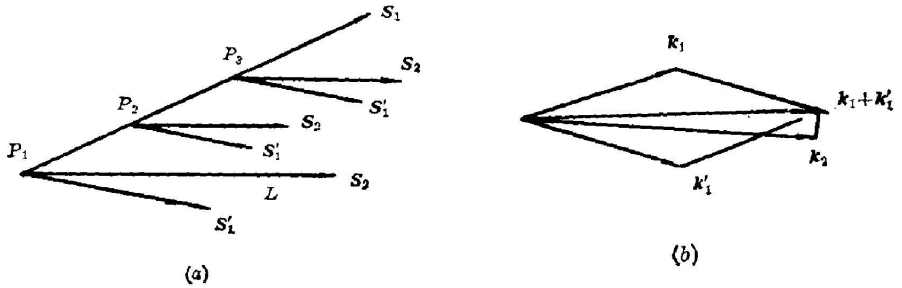


图 1　非共线散射(a)与动量匹配(b)

Fig. 1　Non-collinear scattering (a) and momentum-matching (b)

$$\Delta \boldsymbol{k}\cdot \boldsymbol{S}_2 L \approx \pm(2q+1)\pi \quad (q=1,\ 2,\ 3,\ \cdots), \tag{3}$$

当忽略光线方向与波矢方向的差异时，则由(2)式和(3)式可知，$\Delta \boldsymbol{k}\cdot \boldsymbol{S}_2=0$ 的非共线谐波与传播路程无关，因此最易产生和被观测到。

为了获得高的倍频效率，还必须满足能量守恒条件，即 $(1/\lambda_2)=(1/\lambda_1)+(1/\lambda_1')$。在本文情况下，$\lambda_1=\lambda_1'$，因此有 $\lambda_1=2\lambda_2=\lambda_0$。于是，可获得非共线谐波的极大条件是

$$\left.\begin{aligned} & n_1\boldsymbol{S}_1\cdot\boldsymbol{S}_2+n_1'\boldsymbol{S}_1'\cdot\boldsymbol{S}_2=2n_2\boldsymbol{S}_2\cdot\boldsymbol{S}_2\mp M, \\ & M=\begin{cases} 0 & (\text{当 } \Delta\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{S}_2=0), \\ (2q+1)\lambda/2L & (\text{当 } \Delta\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{S}_2\neq 0)。\end{cases} \end{aligned}\right\} \tag{4}$$

为了由(4)式获得谐波环的具体表达方式，我们采用图 2 所示的参考坐标。取 z 轴沿光轴方向 $\boldsymbol{S}_1$ 和 $\boldsymbol{S}_2$ 与光轴的夹角为 θ_1 和 θ_2，其与 z 轴组成的子午面在 xy 平面中的方位角为 ϕ_1 和 ϕ_2，在 δ 很小的情况下，$\boldsymbol{S}_1$ 和 $\boldsymbol{S}_2$ 之间的夹角为

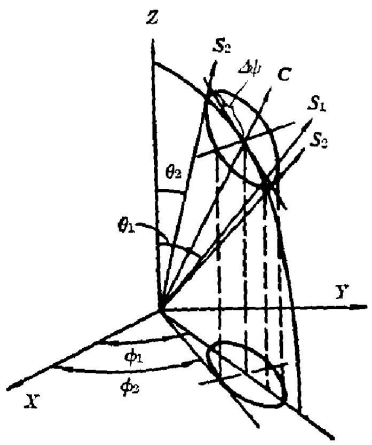


图 2　非共线谐波的分析坐标

Fig. 2　The reference coordinate for the non-collinear harmonic waves

$$\left.\begin{aligned} & \boldsymbol{S}_1\cdot\boldsymbol{S}_2=\cos\delta\doteq 1-(1/2)\delta^2, \\ & \delta^2=(\Delta\phi')^2+(\Delta\theta)^2,\quad \Delta\theta=\theta_2-\theta_1, \\ & \Delta\phi'=\sin\theta_1\Delta\phi,\quad \Delta\phi=\phi_2-\phi_1。\end{aligned}\right\} \tag{5}$$

对于异常光的折射率，其一级近似的表达式为

$$\left.\begin{aligned} & n_i(\theta)=B_i(A_i+\cos 2\theta_i), \\ & B_i=(n_{i0}-n_{ie})/2,\ A_i=(n_{i0}+n_{ie})/(n_{i0}-n_{ie})\quad (i=1,\ 2)。\end{aligned}\right\} \tag{6}$$

将(5)式和(6)式代入(4)式，可得到非共线谐波增强条件的原则解决。现分下列三种情况加以讨论：

1. 基波 $\boldsymbol{S}_1$、$\boldsymbol{S}_2$ 共线，oo-eI 类相位匹配的情况。此时，$n_1=n_1'=n_0$，谐波的极大条件是

$$n_{10}\cos\delta=B_2(A_2+\cos 2\theta_2)\mp(M/2)。 \tag{7}$$

不计及 $(\Delta\theta)^3$ 项，可导得谐波 $\boldsymbol{S}_2$ 对基波 $\boldsymbol{S}_1$ 的方位关系为

$$\left.\begin{aligned}&(\Delta\psi_c^I)^2=(\Delta\theta')^2+(\Delta\phi')^2,\\&\Delta\theta'=\Delta\theta-b_c^I,\ b_c^I=2\sin 2\theta_1/(A_2+\cos 2\theta_0^I),\\&\Delta\psi_c^I=\sqrt{h_c^I+(b_c^I)^2},\ h_c^I=[4\sin 2\theta_0^I\Delta\theta_0^I\pm(M/B_2)]/(A_2+\cos 2\theta_0^I),\\&\Delta\theta_0^I=(\theta_1-\theta_0^I),\ \cos 2\theta_0^I=[(n_{10}/B_2)-A_2],\end{aligned}\right\}\tag{8}$$

式中下标 c 表示基波共线，θ_0^I 为 oo–e I 类位相匹配角。

2．基波 $\boldsymbol{s}_1$、$\boldsymbol{s}_2$ 共线，oe–e II 类相位匹配的情况。此时，可导得谐波极大条件是

$$(n_{10}+A_1B_1+B_1\cos 2\theta_1)\cos\delta=2(A_2B_2+B_2\cos 2\theta_2)\mp M,\tag{9}$$

与情况 1 类似，有

$$\left.\begin{aligned}&(\Delta\psi_c^{II})^2=(\Delta\theta_1')^2+(\Delta\phi')^2,\\&\Delta\theta'=\Delta\theta-b_c^{II},\ b_c^{II}=(4B_2\sin 2\theta_1)/(n_{10}+A_1B_1+B_1\cos 2\theta_0^{II}),\\&\Delta\psi_c^{II}=\sqrt{h_c^{II}+(b_c^{II})^2},\ h_c^{II}=[4(2B_2-B_1)\sin 2\theta_0^{II}\cdot\Delta\theta_0^{II}\pm 2M]/\\&\qquad(n_{10}+A_1B_1+B_1\cos 2\theta_0^{II})\\&\Delta\theta_0^{II}=\theta_1-\theta_0^{II},\ \cos 2\theta_0^{II}=(n_{10}+A_1B_1-2A_2B_2)/(2B_2-B_1)。\end{aligned}\right\}\tag{10}$$

θ_0^{II} 为 0e–e II 类相位匹配角。

3．基波 $\boldsymbol{S}_1$、$\boldsymbol{S}_1'$ 不共线，oe–e II 类相位匹配情况。此时，设 $\Delta\boldsymbol{k}\ll\boldsymbol{k}$（见图 1($b$)），可认为满足(2)式的主极大环状谐波 $\boldsymbol{k}_2$ 在 $\boldsymbol{k}_1$ 和 $\boldsymbol{k}_1'$ 构成的平面四边形的对角线上。由于 $|\boldsymbol{k}_1|\approx|\boldsymbol{k}_1'|$，故可以设 $\boldsymbol{S}_2\cdot\boldsymbol{S}_1'\approx\boldsymbol{S}_1\cdot\boldsymbol{S}_2=\cos(\pm\delta)$，$(\theta_1'-\theta_1)=2(\theta_2-\theta_1)=2\Delta\theta$。此时，如不考虑由(3)式决定的高级次极大，则非共线谐波条件可写成

$$\delta^2=2\left[1-\frac{2(A_2B_2+B_2\cos 2\theta_2)\mp M}{n_{10}+A_1B_1+B_1\cos 2\theta_1}\right]。\tag{11}$$

我们仅考虑散射基波是 e 波的情况。对入射基波是 e 波的情况，其结果和情况 2 相同。当情况 1，2 类似，并用下标 nc 表示非共线，可导得

$$\left.\begin{aligned}&(\Delta\psi_{nc}^{II})^2=(\Delta\theta')^2+(\Delta\phi')^2,\\&\Delta\theta'=\Delta\theta-b_{nc}^{II},\quad b_{nc}^{II}=4(B_2-B_1)\sin 2\theta_1/(n_{10}+A_1B_1+B_1\cos 2\theta_0^{II}),\\&h_{nc}^{II}=4(2B_2-B_1)\sin 2\theta_0^{II}\cdot\Delta\theta_0^{II}\pm 2M/(n_{10}+A_1B_1+B_1\cos 2\theta_0^{II}),\\&(\Delta\psi_{nc}^{II})=\sqrt{h_{nc}^{II}+(b_{nc}^{II})^2}。\end{aligned}\right\}\tag{12}$$

在上述分析中，我们取位相匹配方向为角度变化的参考方向。此外，由于倍频效率随基波光对匹配方向的偏离的增大而迅速下降，我们只考虑了基波，谐波和位相匹配方向之间的角偏离是很小的情况。这样处理的结果，使上述的分析表达式与匹配方向明显地联系起来，从而可以用它们表征不同晶体中不同类型匹配时的非共线谐波环的变化。

从(8)、(10)和(12)式可知，上述三种情况的非共线谐波均可近似地表达成谐波环，只是决定谐波环半径 $\Delta\psi$ 大小的参量 b 和 h 不同。因此，对三种情况下的谐波可以统一地加以描述。显然，非共线谐波的轨迹是一个圆环，但圆心不在基波点上。在基波和光轴组成的主截面上，$\Delta\phi'=0$，$\Delta\psi=\Delta\theta'$，因此两谐波矢的位置是

$$\Delta\theta_\pm=b\pm\sqrt{h+b^2},\tag{13}$$

则可求得环的中心在 $\Delta\theta=b$ 处，而谐波环的半径是 $\Delta\theta_k=\sqrt{h+b^2}$。当 $\theta_1<90°$ 时（$\theta_1>90°$ 时，则情况相反），有 $b>0$，$\Delta\theta=\theta_0'-\theta_1>0$，故谐波环的中心在基波矢的远光轴一侧（如图 3 所示）。但是，谐波环却不一定都在基波点的远光轴一侧。

为了分析简明起见，以下仅考虑 $M=0$ 的情况。由(8)、(10)和(12)式可知，$h\propto\Delta\theta_0$。因此

(1) 当 $\Delta\theta_0>0$ 时，有 $\Delta\theta_+>0$, $\Delta\theta_-<0$。此时基波点必在谐波环内，与近光轴一侧的环的距离小，如图 4(*a*)所示。

(2) 当 $\Delta\theta_0<0$ 时，则有 $\Delta\theta_+>0$, $\Delta\theta_->0$，此时基波点在谐波环外，并且谐波环在基波方向的远光轴一侧，如图 4(*b*)所示。

(3) 当 $\Delta\theta_0=0$ 时，则有 $\Delta\theta_+=2b$, $\Delta\theta_-=0$。此时基波点在近光轴一侧的谐波环上，如图 4(*c*)所示。

(4) 当 $\Delta\psi=0$ 时，由关系式 $\Delta\theta_\pm=b\pm\sqrt{h+b^2}$，有 $\Delta\theta_d=b$。此时谐波环退缩成一点，它在基波的远光轴一侧，如图 4(*d*)所示。

此外，使 $\Delta\psi=0$ 时的 S_1 光对匹配方向 $\overrightarrow{OM}$ 的偏离为

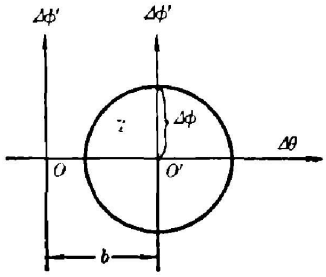


图 3　非共线谐波环对基波的相对配置
(*O*——基波的位置，*O'*——谐波环中心的位置)

Fig. 3　The position of non-collinear harmonic wave ring relative to the fundamental wave (*O*-the position of fundmental wave, *O'*-the position of the center of harmonic wave ring)

$$\left.\begin{aligned}&\Delta\theta^{\mathrm{I}}_{0,d}(c)=-b^{\mathrm{I}}_c/2,\quad \Delta\theta^{\mathrm{II}}_{0,d}(c)=-B_2b^{\mathrm{II}}_c/(2B_2-B_1),\\&\Delta\theta^{\mathrm{II}}_{0,d}(nc)=-(B_2-B_1)b^{\mathrm{II}}_{nc}/(2B_2-B_1)。\end{aligned}\right\}\tag{14}$$

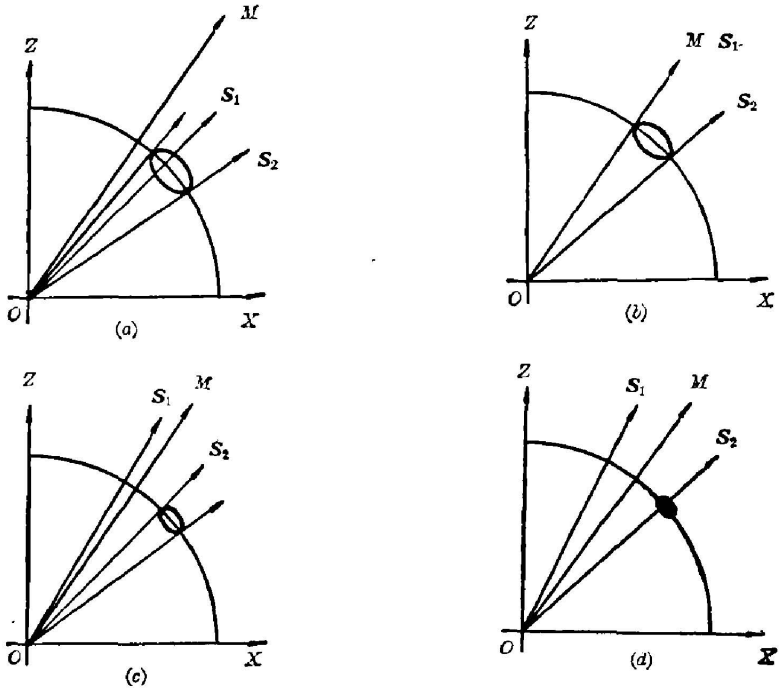


图 4　波谐环的配置与基波的匹配方向偏角 $\Delta\theta_0$ 的关系图
(X-Y 平面为基波光线的主截面，Z 为光轴方向，OM 为匹配方向)

Fig. 4　The relation between the position of harmonic wave ring and the angle deviation of fundamental wave from the phase-matched direction (X-Z is the principal plane, Z is the optical axis and OM is the phase-matched direction)

此时的谐波点与基波 S_1 的配置如图 4(*d*)所示，它们分居于匹配方向 M 的两侧。

对于光性单轴晶体，有两个匹配方向 M 和 M'（如图 5 所示）。因此，当匹配方向近于 90° 时，每个基波光 S_1 可能对两个匹配方向分别产生谐波环。考虑到倍频效率随着基波偏离匹配方向而迅速减小，可以忽略由 S_1 与不同象限的匹配方向决定的谐波环，这样，我们可以在实验上只看到一个较小的谐波环。而且当 S_1 在垂直于光轴方向的两侧等偏角时，环的大小相等，如图 5(*a*)所示。设 $\Delta\Omega=(\pi/2)-\theta_1$，$\Delta\Omega_0=(\pi/2)-\theta_0$，则可导得基波共线时的 I 类匹配谐波环的大小是

$$(\Delta\psi_c^{\mathrm{I}})^2=\frac{8(\Delta\Omega_0)^2}{A_2+\cos 2\theta_0^{\mathrm{I}}}\left[\frac{2}{A_2+\cos 2\theta_0^{\mathrm{I}}}\left(\frac{\Delta\Omega}{\Delta\Omega_0}\right)^2+1-\left(\frac{\Delta\Omega}{\Delta\Omega_0}\right)\right]。\tag{15}$$

显然，当 $\theta_1=\pi/2$ 时，谐波环最大，如图 5(*b*)所示。

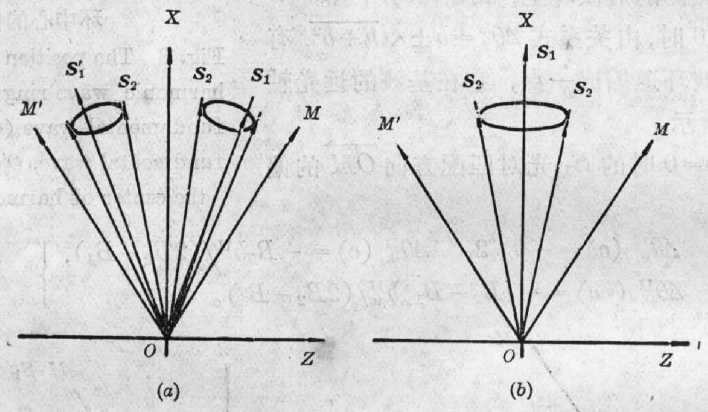


图 5 近 90° 匹配时的谐波环

Fig. 5 The harmonic wave rings near 90° phase-matched direction

三、实 验

我们用 YAG:Nd 调 Q 激光 1.06 μ 辐射作基波，对 KDP 和 $LiNbO_3$ 晶体中的非共线谐

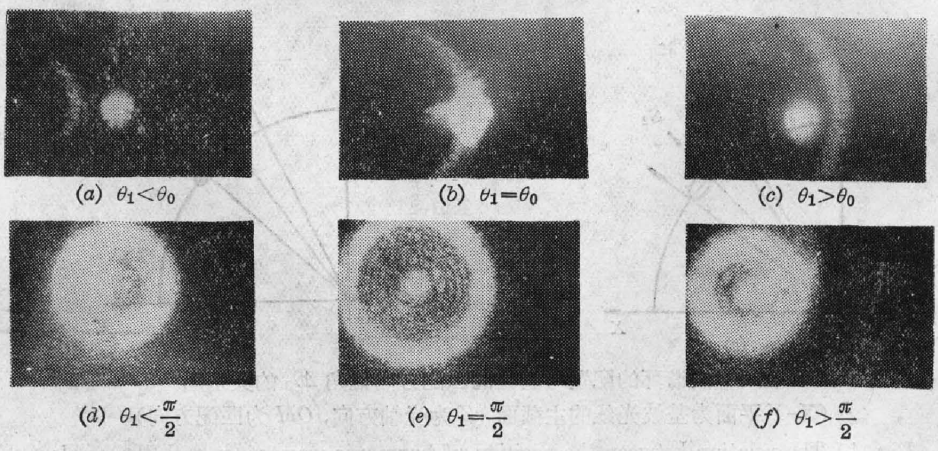
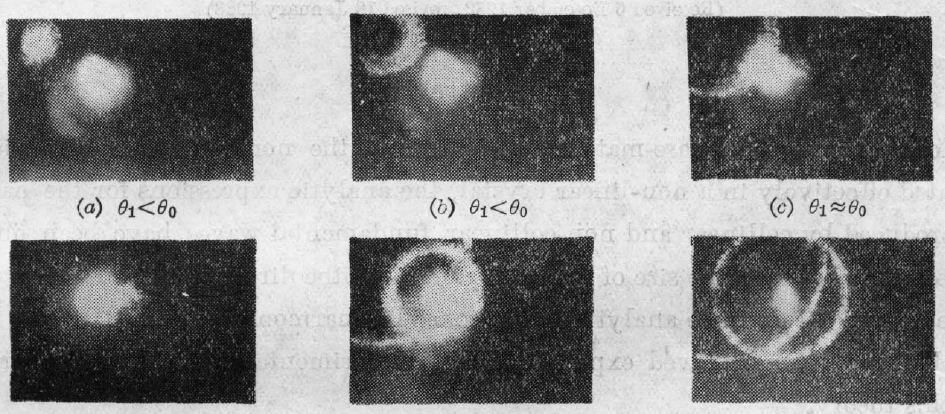


图 6 I 类共线匹配时的谐波环

Fig. 6 The harmonic wave rings of collinear type-I phase-matched directions

波环进行了观测。基波光束直径约5mm，发散角小于1mrad，脉宽小于10ns，功率约1mW。图6表示KDP（如图6(*a*)、6(*b*)和6(*c*)所示）和$LiNbO_3$（如图6(*d*)、6(*e*)和6(*f*)所示）晶体中的I类共线基波谐波环的照片；图7表示KDP晶体中II类共线和非共线基波谐波环的照片。各照片中的亮点相应于入射基波方向的谐波。图7(*a*)表示点状兼并谐波环的情况；图7(*b*)和图7(*c*)、7(*d*)表示近于位相匹配时的情况；图7(*e*)、7(*f*)中的圆环相应于非共线基波产生的谐波。从图7所有的照片中我们可以看出，谐波环随基波对光轴的夹角θ_1的增大而变大；谐波点（基波方向的）和谐波环的中心的距离近于不变。

实验还测量了KDP晶体兼并谐波环点和基波的角距b。它们与根据折射率数据的计算值b很接近（见表1）。



(*a*) $\theta_1<\theta_0$　(*b*) $\theta_1<\theta_0$　(*c*) $\theta_1\approx\theta_0$

(*d*) $\theta_1=\theta_0$　(*e*) $\theta_1>\theta_0$　(*f*) $\theta_1>\theta_0$

图7　KDP中II类共线和非共线基波的谐波环。

Fig. 7　The harmonic wave rings of type-II collinear and non-collinear fundamental waves

表1　b值的测值和计算值（对KDP晶体）

Table 1　The measured and calculated values of b value (for KDP crystal)

	计　算　值	测　量　值
	2.8×10^{-2}	2.5×10^{-2}
	2.4×10^{-2}	2.3×10^{-2}
	4.6×10^{-3}	—

四、结　　论

本文关于非共线谐波的理论可以说明实验现象。由于b值实际上是相对双折射率$2(n_e-n_0)/(n_e+n_0)$的测量，故可用非共线兼并谐波点与基波点间的角距来测定量级为10^{-2}的相对双折射。此外，由于谐波环对基波的方位配置是确定的，它也可用于寻找匹配方向的指示，作为进行相位匹配自动控制的基础。此外，由于基波非共线的谐波环与基波散射大小有关，故可作为晶体的光散射质量的指示。当然，由于谐波环的变化与I类或II类位相匹配有关，所以可用来判断晶体是处于何种位相匹配的工作状态。

参 考 文 献

[1] J. A. Giordmine; *Phys. Rev. Lett.*, 1962, **8**, No. 1 (Jan), 19.

Non-collinear harmonic wave in nonlinear crystal

YANG TIANLONG
(*Shanghai University of Science and Technology*)

(Received 6 December 1982, revised 18 January 1983)

Abstract

According to the phase-matched condition of the non-collinear harmonic wave generated effectively in a non-linear crystal, the analytic expressions for the harmonic ring produced by collinear and non-collinear fundamental waves have been obtained. The relations between the size of harmonic ring and the direction of fundamental wave can be deduced from these analytic expressions. The harmonic rings of RDP and $LiNbO_3$ crystals have been observed experimentally. Experimental results are in agreement with this theory.