

# 双轴晶体有效非线性系数的计算问题

王恭明 王文澄  
(复旦大学物理系)

## 提 要

本文指出了一些文献在计算双轴晶体有效非线性系数  $d_{\text{eff}}$  时的某些不当之处,说明了正确计算方法。并以  $mm2$  点群的双轴晶体为例全面地给出了  $d_{\text{eff}}$  的计算公式,用已有的实验结果加以验证。这一计算方法使得通用的双轴晶体变频器件最佳相位匹配的计算机设计得以实现。

## 一、引 言

利用二级非线性光学效应实现激光变频的双轴晶体越来越多,但双轴晶体的复杂性使得已往在设计器件时常常作简化处理。譬如把 BNN 和  $\alpha\text{-HIO}_3$  晶体近似作为单轴晶体来处理<sup>[1,2]</sup>,对 DSS 和  $\text{KB}_5$  晶体只计算在坐标平面上的一些特殊的位相匹配点<sup>[3,4]</sup>。为获得高而稳定的变频转换效率,器件最佳化设计是必须的。双轴晶体最佳相位匹配条件的计算将提供器件设计的全部数据,这一设计包括位相匹配曲线计算和有效非线性系数计算二部分。早在 1967 年 Hobden 就这两方面的计算给出了正确的思想<sup>[5]</sup>。1975 年 Ito 等人详细地讨论了计算方法<sup>[6]</sup>,谢绳武等同志的文章验证了 Ito 等人的工作<sup>[7,8]</sup>,并付诸计算机进行了  $mm2$  点群双轴晶体的最佳设计<sup>[9]</sup>。最近我们在对双轴晶体非线性光学性质的研究工作中发现文献[6]只是给出了双轴晶体在某一特定情况下的  $d_{\text{eff}}$  公式,文献[6]中表 III 在“双轴晶体有效非线性系数”的标题下只列出上述一种形式的  $d_{\text{eff}}$  公式是不全面的。文中也未作明确的说明,容易引起混淆。正是这一原因,文献[7,9]在计算属  $mm2$  点群的诸双轴晶体时,得到错误的结果。他们在  $d_{\text{eff}}$  系数的计算中,没有考虑到属于同一点群、具有同一压电轴  $X$ 、 $Y$ 、 $Z$  的各种双轴晶体都可能有不同的光学主轴  $x$ 、 $y$ 、 $z$ (都是相对于结晶轴  $a$ 、 $b$ 、 $c$  来讲,见文献[5]表 III)。若不加区别地都采用以压电轴为参考坐标系的  $d$  张量矩阵来计算  $d_{\text{eff}}$ ,其结果往往是错误的。(对压电轴和光学主轴的次序完全重合的双轴晶体,譬如甲酸盐晶体类,碰巧会得到正确的计算结果<sup>[6]</sup>)。本文论述了这一看法,并以  $mm2$  点群的不同双轴晶体为例说明之。所得结果完全适用其余四种点群的双轴晶体。

## 二、双轴晶体有效 $d$ 系数的计算

为简明起见,本节讨论倍频的情况。设  $e_1$  和  $e_2$  分别为慢光和快光在双轴晶体中传播时的两个单位本征矢,所以有效  $d$  系数  $d_{\text{eff}}$  的计算是先将基频光场投影到坐标轴上,求得三个坐标轴上的非线性极化强度分量,然后再将它们投影到倍频光的偏振方向上求和,根据两

种类型的位相匹配情况,有效  $d$  系数  $d_{\text{eff}}$  可写成

I 型:

$$d_{\text{eff}}^{\text{I}} = [a_i^{\alpha}] [d_{i\alpha}] [a_j^{\beta} a_k^{\gamma}], \quad (1)$$

II 型:

$$d_{\text{eff}}^{\text{II}} = [a_i^{\alpha}] [d_{i\alpha}] [a_j^{\beta} a_k^{\gamma}], \quad (2)$$

其中  $i, j, k=1, 2, 3, \alpha=1, 2, 3, \dots, 6$ 。式中  $a_i^{\alpha}$  和  $a_k^{\gamma}$  分别为慢光和快光在双轴晶体传播时光电场的投影矩阵。由(1)、(2)式我们把快光  $a_i^{\alpha}$  的投影矩阵简写成

$$\begin{bmatrix} a_1^{\alpha} \\ a_2^{\alpha} \\ a_3^{\alpha} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} a \\ b \\ c \end{bmatrix};$$

把 I 型匹配时  $[a_j^{\beta}] [a_k^{\gamma}]$  的并矢简写成

$$[a_j^{\beta}] [a_k^{\gamma}] = \begin{bmatrix} A_1 \\ B_1 \\ C_1 \\ D_1 \\ E_1 \\ F_1 \end{bmatrix};$$

把 II 型匹配时  $[a_j^{\beta}] [a_k^{\gamma}]$  的并矢简写成

$$[a_j^{\beta}] [a_k^{\gamma}] = \begin{bmatrix} A_2 \\ B_2 \\ C_2 \\ D_2 \\ E_2 \\ F_2 \end{bmatrix}.$$

矩阵元  $a, b, c, A_1, B_1, C_1, D_1, E_1, F_1$  和  $A_2, B_2, C_2, D_2, E_2, F_2$  的值可通过与文献[6]或[7]的对比得到。

式中  $[d_{i\alpha}]$  是  $d$  系数矩阵。显然,在(1)、(2)式中进行矢量投影和决定  $(d_{i\alpha})$  的非零张量元应采用同一参考坐标系。

在晶体光学中,假定双轴晶体的光学主轴坐标  $x, y, z$  按折射率大小要求  $n_z > n_y > n_x$ , 那末晶体的两条光轴分布在  $xOz$  平面上  $z$  轴的两侧,其光轴角为  $\Omega$ 。  $\theta$  和  $\varphi$  为光在晶体中传播的方位角,分别如图 1 所示。则双轴晶体的折射率曲面由下面方程对  $n$  的两个解给出:

$$\frac{\sin^2 \theta \cos^2 \varphi}{n^2 - (n_x)^{-2}} + \frac{\sin^2 \theta \sin^2 \varphi}{n^2 - (n_y)^{-2}} + \frac{\cos^2 \theta}{n^2 - (n_z)^{-2}} = 0, \quad (3)$$

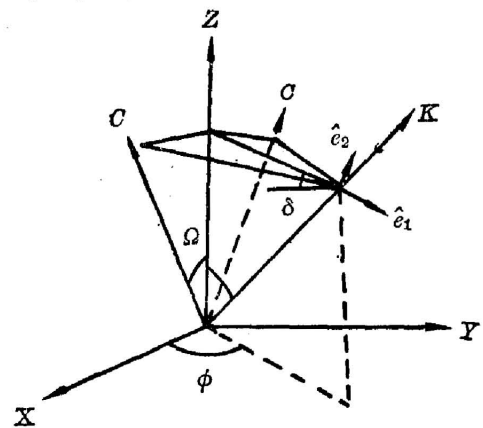


图 1 光在双轴晶体中传播  
Fig. 1 Propagation of light in a biaxial crystal

双轴晶体的这一假定是必要的,这不仅在切制样品时角度量 $\theta$ 和 $\varphi$ 有一个统一的参考坐标,还使得在利用(3)式计算位相匹配曲线时能对所有的双轴晶体编制统一的计算程序。

据上所述,在双轴晶体位相匹配曲线的计算中应把光学主轴作为参考坐标。因此在有效非线性系数 $d_{\text{eff}}$ 的计算中,必须注意把依赖压电轴坐标系统的 $d$ 系数矩阵变换到所采用的光学主轴坐标系统上去。如果在计算 $d_{\text{eff}}$ 系数时一概采用标准的 $d$ 系数矩阵形式,即 $d_{i\alpha}$ 采用压电轴作为参考坐标系,那末在同一个公式中,(1)式或(2)式,出现了两个参考坐标系,这样的计算结果当然错了。简言之,由于 $X$ 不一定对应 $x$ , $Y$ 不一定对应 $y$ , $Z$ 不一定对应 $z$ ,共有六种不同的对应关系。以 $mm2$ 点群为例,应该有六种不同的 $d_{\text{eff}}$ 表式,如表1所示。

表1  $mm2$ 点群的 $d_{\text{eff}}$ 公式  
Table 1  $d_{\text{eff}}$  formulas of the class  $mm2$

	压电轴与光学主轴的对应关系	在以光学主轴为参考坐标系中的( $d_{i\alpha}$ )	$d_{\text{eff}}$ 公式
I	标准取向 Z-z Y-y X-x	$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{24} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$	$d_{\text{eff}}^I = d_{31}(aE_1 + cA_1) + d_{32}(bD_1 + cB_1) + d_{33}cC_1$ $d_{\text{eff}}^{II} = d_{31}(aE_2 + cA_2) + d_{32}(bD_2 + cB_2) + d_{33}cC_2$
II	Z-z Y-x X-y	$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{24} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{32} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$	$d_{\text{eff}}^I = d_{31}(bD_1 + cB_1) + d_{32}(aE_1 + cA_1) + d_{33}cC_1$ $d_{\text{eff}}^{II} = d_{31}(bD_2 + cB_2) + d_{32}(aE_2 + cA_2) + d_{33}cC_2$
III	Z-x Y-y X-z	$\begin{bmatrix} d_{13} & d_{32} & d_{31} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{24} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \end{bmatrix}$	$d_{\text{eff}}^I = d_{31}(cE_1 + aC_1) + d_{32}(bF_1 + aB_1) + d_{33}(aA_1)$ $d_{\text{eff}}^{II} = d_{31}(cE_2 + aC_2) + d_{32}(bF_2 + aB_2) + d_{33}(aA_2)$
IV	Z-x Y-z X-y	$\begin{bmatrix} d_{33} & d_{31} & d_{32} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{24} & 0 \end{bmatrix}$	$d_{\text{eff}}^I = d_{31}(bF_1 + aB_1) + d_{32}(cE_1 + aC_1) + d_{33}(aA_1)$ $d_{\text{eff}}^{II} = d_{31}(bF_2 + aB_2) + d_{32}(cE_2 + aC_2) + d_{33}(aA_2)$
V	Z-y Y-z X-x	$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} \\ d_{31} & d_{33} & d_{32} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{24} & 0 & 0 \end{bmatrix}$	$d_{\text{eff}}^I = d_{31}(aF_1 + bA_1) + d_{32}(cD_1 + bC_1) + d_{33}bB_1$ $d_{\text{eff}}^{II} = d_{31}(aF_2 + bA_2) + d_{32}(cD_2 + bC_2) + d_{33}bB_2$
VI	Z-y Y-x X-z	$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{24} \\ d_{32} & d_{33} & d_{31} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 & 0 \end{bmatrix}$	$d_{\text{eff}}^I = d_{31}(cD_1 + bC_1) + d_{32}(aF_1 + bA_1) + d_{33}bB_1$ $d_{\text{eff}}^{II} = d_{31}(cD_2 + bC_2) + d_{32}(aF_2 + bA_2) + d_{33}bB_2$

表1中第一种是标准取向情况,即晶体压电轴与光学主轴的次序完全对应,在压电轴坐标系中的非零张量元是 $d_{31}$ 、 $d_{32}$ 、 $d_{33}$ 、 $d_{34}$ 和 $d_{15}$ ,其中 $d_{15} = d_{31}$ , $d_{24} = d_{32}$ 。为类比方便和公式统一,在以后的各种情况中仍保留相同的脚标表示。

表 1 中六种  $d_{ia}$  系数矩阵的形式可在所依据的主光轴参考系内按  $mm2$  对称操作得到, 也可通过坐标变换方便地获得。文献[5]表 III 列出所有具有非中心对称的五种点群双轴晶体的结晶轴与压电轴之间的确定关系。据此就能由晶体的对称性确定晶体的压电轴, 从而就有了标准取向  $d_{ia}$  的系数矩阵形式。再根据压电轴与光学主轴的转换关系, 就可得到  $d_{ia}$  系数矩阵在以光学主轴为参考坐标系内的非零矩阵元。

本文为避免繁杂, 表 1 中只列出  $mm2$  点群双轴晶体的  $d_{eff}$  公式群, 而其它四种点群双轴晶体的  $d_{eff}$  公式, 可以通过对照文献[5]中的表 III 按主光轴坐标系写出  $[d_{ia}]$  的形式, 代入(1)或(2)式, 得到矩阵形式的  $d_{eff}$  公式。

利用矩阵形式写出的  $d_{eff}$  公式简明易记, 不会书写错。更重要的是对编制  $d_{eff}(\theta)$  的计算程序, 这种表达形式与文献[6]相比要方便得多。

### 三、计算公式的实验判别

我们对同属  $mm2$  点群的 BNN 晶体和 DSS 晶体进行了计算。图 2 和图 3 分别列出了我们的计算结果(a)及文献[7]、[9]的计算结果(b), 两种计算的输入数据是相同的。在(a)的计算中注意了压电轴与主光轴的对应关系, 譬如 BNN 晶体, 它与表 1 中第 IV 种情况相对应, DSS 晶体与表 1 中第 V 种情况相对应, 两者相应的  $d_{eff}$  公式是不相同的。而在(b)的计算中对这两种晶体不加区别, 全部采用表 1 中第 I 种标准取向的  $d_{eff}$  公式。

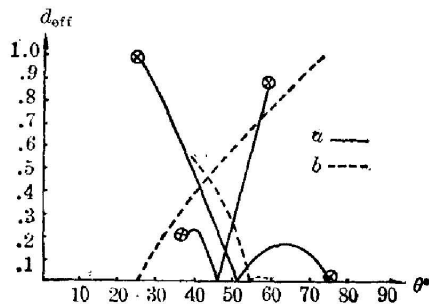


图 2 DSS 晶体的两种  $d_{eff}(I, II) \sim \theta$  计算曲线和实验判别点 $\otimes$ ,

Fig. 2 Calculated curves and experimental data of  $d_{eff}(I, II) \sim \theta$  of DSS crystals

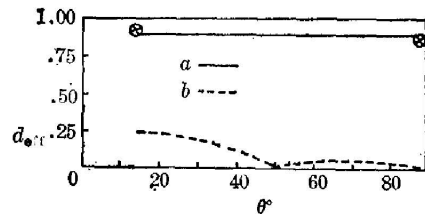


图 3 BNN 晶体的两种  $d_{eff}(I) \sim \theta$  计算曲线和实验判别点 $\otimes$

Fig. 3 Calculated curves and experimental data of  $d_{eff}(I) \sim \theta$  of BNN crystals

我们利用 DSS 晶体和 BNN 晶体样品来判别这两种计算结果的正确性。用声光调 Q YAG 的  $1.06 \mu m$  输出作为基频光, 测量四块 DSS 晶体样品的倍频 ( $0.53 \mu m$ ) 输出, 得到下列结果:

样品 1	I 型匹配	$\theta=59.2^\circ$	$\varphi=0^\circ$	倍频光输出极大
样品 2	I 型匹配	$\theta=38.3^\circ$	$\varphi=0^\circ$	无倍频光输出
样品 3	II 型匹配	$\theta=27.8^\circ$	$\varphi=0^\circ$	倍频光输出极大
样品 4	II 型匹配	$\theta=75.2^\circ$	$\varphi=0^\circ$	无倍频光输出

实验的情况显然与(a)的计算结果符合。

两块 I 型匹配倍频 BNN 晶体的测量结果可在文献[10]中查到:

$$\text{样品 1. } \theta=14^\circ, \quad \varphi=0^\circ, \quad d_{\text{eff}}=-d_{32} \cos \theta, \quad \therefore |d_{\text{eff}}/d_{32}|=\cos \theta \approx 0.97;$$

$$\text{样品 2. } \theta=90^\circ, \quad \varphi=74^\circ, \quad d_{\text{eff}}=-d_{31} \sin \varphi, \quad \therefore |d_{\text{eff}}/d_{31}| \approx \sin \varphi=0.93。$$

显然, (a) 的计算结果与实验是符合的。

我们没有用足够多的样品逐点验证, 但这六个特殊的实验点已可证明 (a) 种计算的正确和 (b) 种计算的错误。

就本文的内容我们与谢绳武同志进行了许多有意义的讨论\*, 作者向他表示衷心的感谢。

### 参 考 文 献

- [1] S. Singh *et al.*; *Phys. Rev. (B)*, 1970, **2**, No. 7 (Oct), 2709.
- [2] K. Kurtz *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1968, **12**, No. 5 (1 Mar), 186.
- [3] 苏根博, 王文澄等; 《光学学报》, 1982, **2**, No. 5 (Nov), 439.
- [4] Harry J. Dewey; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1976, **QE-12**, No. 5 (May), 303.
- [5] M. V. Hobden; *J. Appl. Phys.*, 1967, **38**, No. 11 (Oct), 4365.
- [6] Hiromasa Ito *et al.*; *J. Appl. Phys.*, 1975, **46**, No. 9 (Sep), 3992.
- [7] 谢绳武等; 《上海交通大学学报》, 1982, No. 1, 37.
- [8] 谢绳武等; 《光学学报》, 1983, **3**, No. 8 (Nov), 697.
- [9] 谢绳武等; 《上海交通大学学报》, 1984, No. 1, 39.
- [10] 王文澄等; 《光学学报》, 1981, **1**, No. 6 (Nov), 537.
- [11] 王恭明; 《应用激光》, 1984, **4**, No. 6 (Dec), 259.

## On the calculation of effective nonlinear optical coefficients of biaxial crystals

WANG GONGMIN AND WANG WENCHENG

(Physics Department, Fudan University, Shanghai)

(Received 18 September 1984; revised 20 December 1984)

### Abstract

We have found some inappropriate points in calculating the effective NLO coefficients ( $d_{\text{eff}}$ ) of biaxial crystals described in literature. The correct calculation method is developed. As an example the calculation method for biaxial crystals with symmetry of  $mm2$  point group is presented in detail. These formulas have been borne out by experimental results. The calculation method makes it possible to design optimum phase matching for all kinds of biaxial crystals with a microcomputer.

\* 基于上述讨论, 我们在 Apple-II 微机上用 Basic 语言编制了对所有双轴晶体通用的最佳相位匹配计算程序。我们已在另文介绍这一计算程序的编制原理<sup>[11]</sup>。