

双轴晶体中非共线相位匹配 二次谐波产生现象分析*

杨学林 谢绳武

(上海交通大学应用物理系, 上海 200030)

摘 要 激光束与其散射光束在晶体中发生非线性和频作用, 在满足非共线相位匹配条件时, 可观察到二次谐波环的现象。本文以折射率主轴坐标 xoz 平面为例, 推导出了双轴晶体中环参数的近似表达式。并用计算机得出了精确数值解, 与实验观察到环的形状完全一致。提出了一种寻找最佳二次谐波产生方向的方法。

关键词 非共线相位匹配, 二次谐波产生, 双轴晶体。

1 引 言

早在 1963 年, Giordmaine^[1] 首次报道了对晶体中二次谐波环的观察, 并作出了正确解释, 他给出的是负单轴晶体第一类相位匹配时的情形, 故只观察到了一个环。1981 年, Trebino^[2] 分析了单轴晶体中各类相位匹配的二次谐波环的位置, 与实验结果相符。同时, 他提出了通过比较环的形状及其位置来精确测量单轴晶体折射率的可能性。本文首次报道在双轴晶体中观察到二次谐波环现象, 并给出了计算这些环参数的近似表达式。通过求数值解而得到的结果与实验观察图案完全一致。

2 理论分析

二次谐波环的产生基于非共线相位匹配, 此时共线相位匹配条件应不满足。但是, 入射到二次谐波晶体的主激光束必须相对共线相位匹配方向相差只有几度, 这样才能保证非共线相位匹配条件得到满足。即

$$K_0 + K_1 \neq K_2, \quad (K_0 + K_1) \cos \alpha = K_2$$

这里, α 为二次谐波光束与入射主激光束的夹角, 如图 1 所示。

双轴晶体在某一光波频率 ω_1 下的折射率曲面方程为:

$$\frac{\sin^2 \theta \cos^2 \phi}{n_1^2 - n_{x1}^2} + \frac{\sin^2 \theta \sin^2 \phi}{n_1^2 - n_{y1}^2} + \frac{\cos^2 \theta}{n_1^2 - n_{z1}^2} = 0, \quad (1)$$

式(1)中, θ, ϕ 为波矢 K 在球坐标下的方位角, n_{x1}, n_{y1}, n_{z1} 分别对应 ω_1 频率下双轴晶体的主折射

* 本工作得到上海市科委自然科学基金的资助。

收稿日期: 1994 年 12 月 1 日; 收到修改稿日期: 1995 年 1 月 17 日

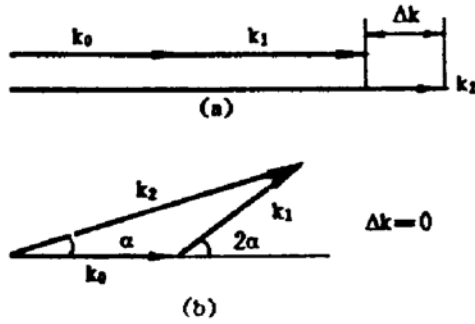


Fig. 1 The K wave vector diagram of SHG. K_0 and K_1 represent the fundamental wave vectors, and K_2 is the vector of the second harmonic. (a) for CPM, (b) for NCPM

率。给定任一沿 (θ, ϕ) 方向传播的 K 矢量，一般可解出两个正实根 n_i ，较大的与较小的各定义为 $n^e(\omega, \theta, \phi)$ 和 $n^o(\omega, \theta, \phi)$ ，分别对应于 ω 频率下的慢光和快光的折射率， e_1 和 e_2 分别为相应的慢光和快光的偏振态。

一般在双轴晶体中二次谐波产生的最佳倍频效率都发生在折射率主轴坐标平面上^[3]。为了简单起见，本文仅考虑当 K_0 矢量在平面 xoz 上的 $(\theta_0, 0)$ 方向满足共线相位匹配条件的情形。假设基频光的 K_0 矢量为

$$K_0 = \frac{2\pi}{\lambda_0} n_i(\omega_0, \theta_0, 0)$$

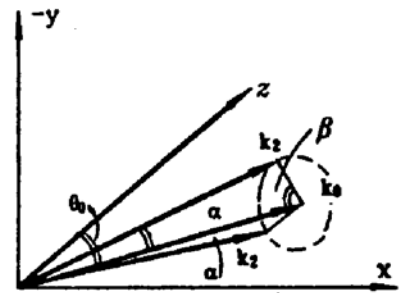
式中 λ_0 为基频光的波长。设离轴的二次谐波 K_2 矢量的方向为 (θ_2, ϕ_2) ，且

$$\theta_2 - \theta_0 = \sin^{-1}(\sin \alpha \cos \beta), \quad \phi_2 = \sin^{-1}(\sin \alpha \sin \beta) \tag{2}$$

式中 α 为 K_2 矢量与 K_0 矢量之间的小夹角。 β 为 K_2 矢量以 K_0 为轴旋转而与 Z 轴所夹的角度，如图 2 所示。

由图 1 可知，假设 K_0 近似等于 K_1 ，非共线相位匹配所需的散射基频光 K_1 的方向为 (θ_1, ϕ_1) ，则它必须在 K_0 和 K_2 所构成的平面中，并与主基频光成 2α 角，由图 2 的角度关系，类似(2)式有

$$\theta_1 - \theta_0 = \sin^{-1}(\sin 2\alpha \cos \beta), \quad \phi_1 = \sin^{-1}(\sin 2\alpha \sin \beta)$$



(3) Fig. 2 The K wave vectors of SHG when the incident fundamental beam is on the principal xoz plane

这样，对非共线相位匹配，相位匹配条件可表示为以下三种：

$$\text{Type I : } \frac{1}{2} [n^e(\omega_0, \theta_0, \phi_0) + n^e(\omega_0, \theta_1, \phi_1)] \cos \alpha = n^e(2\omega_0, \theta_2, \phi_2)$$

$$\text{Type I A : } \frac{1}{2} [n^e(\omega_0, \theta_0, \phi_0) + n^o(\omega_0, \theta_1, \phi_1)] \cos \alpha = n^e(2\omega_0, \theta_2, \phi_2)$$

$$\text{Type I B : } \frac{1}{2} [n^o(\omega_0, \theta_0, \phi_0) + n^e(\omega_0, \theta_1, \phi_1)] \cos \alpha = n^e(2\omega_0, \theta_2, \phi_2)$$

为简单起见，假设对应于频率为 ω_0 的光波，在平面 xoz 上的 $(\theta_0, 0)$ 方向为二次谐波产生的相位匹配的方向，且 θ 大于光轴角 Ω ，则对应于快光和慢光(e_2 和 e_1) 的折射率分别为 $n_r(\omega_0)$ 和

$$n(\omega_0, \theta_0, 0) = \{n_z^{-2}(\omega_0) - [n_z^{-2}(\omega_0) - n_x^{-2}(\omega_0)] \cos^2 \theta_0\}^{-1/2} \tag{4}$$

为了得到 $(\theta_0, 0)$ 方向附近的 K 矢量对应的折射率数值，先求(4)式对 θ, ϕ 的偏导数，得到

$$\left. \frac{\partial n^e(\omega_0, \theta, 0)}{\partial \theta} \right|_{\theta=\theta_0} = A, \quad \left. \frac{\partial n^e(\omega_0, \theta, 0)}{\partial \theta} \right|_{\theta=\theta_0} = 0$$

$$\left. \frac{\partial n^e(\omega_0, \theta, \phi)}{\partial \phi} \right|_{\phi=0} = 0, \quad \left. \frac{\partial n^e(\omega_0, \theta, \phi)}{\partial \phi} \right|_{\phi=0} = 0$$

$$A = -\frac{1}{2} b [n_z^{-2}(\omega_0, \theta_0, 0) - b \cos^2 \theta_0]^{-3/2} \sin 2\theta_0, \quad b = n_z^{-2} - n_x^{-2},$$

由(2)式和(3)式, 近似有

$$n^{*1}(\omega_0, \theta_1, \phi_1) = n(\omega_0, \theta_0, 0) + 2A\alpha \cos \beta, \quad n^{*2}(2\omega_0, \theta_2, \phi_2) = n^{*2}(2\omega_0, \theta_0, 0) \quad (5)$$

将(5)式代入相位匹配条件, 利用 $\cos \alpha \simeq 1 - \alpha^2/2$, 并忽略 α^3 高次项, 有

$$\alpha^2 - 2A\alpha_c \cos \beta + \alpha_c^2 - \alpha_R^2 = 0 \quad (6)$$

当 α_c 、 α_R 很小时, (6) 式为圆的方程形式, 在观察屏上为光线所构成的圆环, 其中, α_c 为圆环中心与 Z 轴的夹角, α_R 为圆环的角半径。对于三种不同的相位匹配方式, 所形成的二次谐波环的圆心 α_c 和半径 α_R 可分别写成:

$$\text{Type I: } \alpha_c = A/n^*, \quad \alpha_R = \sqrt{(A/n^*)^2 + 2\Delta n/n^*},$$

$$\Delta n = n^* - n^{*2}(2\omega_0, \theta_0, 0), \quad n^* = n^{*1}(\omega_0, \theta_0, 0),$$

$$\text{Type I A: } \alpha_c = 0, \quad \alpha_R = \sqrt{2\Delta n/n^*},$$

$$\Delta n = n^* - n^{*2}(2\omega_0, \theta_0, 0), \quad n^* = \frac{1}{2}[n^{*1}(\omega_0, \theta_0, 0) + n^{*2}(\omega_0, \theta_0, 0)],$$

$$\text{Type I B: } \alpha_c = A/n^*, \quad \alpha_R = \sqrt{(A/n^*)^2 + 2\Delta n/n^*},$$

$$\Delta n = n^* - n^{*2}(2\omega_0, \theta_0, 0), \quad n^* = \frac{1}{2}[n^{*1}(\omega_0, \theta_0, 0) + n^{*2}(\omega_0, \theta_0, 0)].$$

以一水甲酸锂晶体($\text{HCOOLi} \cdot \text{H}_2\text{O}$)为例, 其最佳相位匹配方向为 xoz 平面上的 $(80.43^\circ, 0)$ 方向^[3]。由以上分析所预计的二次谐波环如图 3 所示。图 3 中各环的圆心和半径数据如表 1。

Table 1. The theoretical predicted parameters (the centers and radii) of SHG rings for various incident angles. (unit: degree)

θ_0	type I		type I A		type I B	
	α_c	α_R	α_c	α_R	α_c	α_R
78.7	-0.043	0.140	0	—	-0.043	0.025
80.3	-0.038	0.148	0	—	-0.038	0.036
80.6	-0.036	0.148	0	0.012	-0.036	0.038
84.3	-0.022	0.157	0	0.045	-0.022	0.050

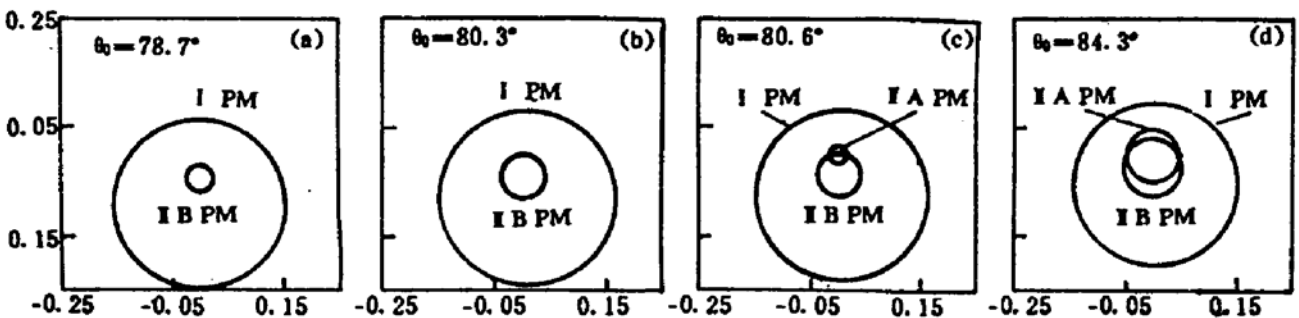


Fig. 3 The theoretical predicted SHG rings when NCPM condition is met on the principal xoz plane

对于各向异性并不足以产生第二类相位匹配而只有第一类相位匹配的晶体, 根据以上分析, 只可能在第一类相位匹配角度附近形成一个环。可是, 对于存在第二类相位匹配的晶体, 有多种不同的相位匹配方式, 可以产生多个独立的环。环的数目及其强度取决于相位匹配条件的满足与否和该方向有效非线性系数的大小。如, 表 1 中“—”号表示此时相位匹配条件不能实现。

3 实验研究

在室温下,基频激光波长为 $1.06 \mu\text{m}$,采用一水甲酸锂晶体作倍频实验。当基频光在准直后精确地以 $(80.43^\circ, 0)$ 方向入射,有极强的倍频光产生。而当在 xoz 平面上使得 θ 角稍微偏离 θ_0 角 (80.43°) 几度时,在观察屏上就可看到基频光斑点附近有光环出现。缓慢地转动晶体使得 θ 角由小到大变化,在接近最佳二次谐波产生共线相位匹配角度时,可观察到环的中心及其半径在不断地变化。具体情况如下:1)除了有一个较暗的第一类相位匹配环之外,在中心位置的下方先是出现一个小圆环(IIB),之后该小环不断地变大;2)在 IIB 环的上端接近中心位置时,二次谐波的强度不断变亮;3)出现共线相位匹配最强二次谐波产生,各环消失;4)在 θ 角比 θ_0 大时,除了先前的两个环之外,在中心位置出现了第三个小圆环(IIA);5)IIA 环不断地变大。以上观察到的各环的图案如图 4 所示。

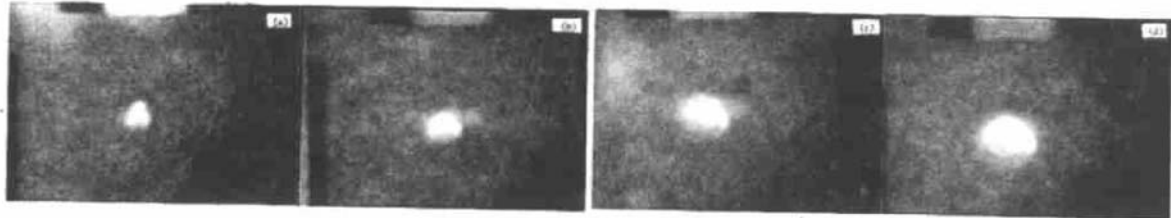


Fig. 4 The observed SHG rings when NCPM condition is met on the principal xoz plane

(a) $\theta_0 = 78.7^\circ$, (b) $\theta_0 = 80.3^\circ$, (c) $\theta_0 = 80.6^\circ$, (d) $\theta_0 = 84.3^\circ$

4 讨论与结论

由第 2 节所得到的环参数的近似表达式可预见二次谐波环的形状大致为圆环形。预计的环的圆心和半径的变化情况(图 3)与实验观察(图 4)相符。例如,图 3 所示的图案中,对于第一类相位匹配,当 $\theta = 84.3^\circ$ 时,圆环半径最大;对于第 I B 类相位匹配,当 θ 增大时,圆环半径也相应变大;对于第 I A 类相位匹配的出现与否的预计也与实验一致。这些特点在以下的数值解的图形中也得到了验证。由于在分析中作了一些近似,如: $K_1 = K_0$ 并不精确成立;当 α 角度较大时折射率的计算会产生可观的误差,故第一类相位匹配的环变形较大,而当第二类相位匹配环的半径及其中心位置偏离主基频形成的中心斑点较近时,该近似与实验结果更相符合。值得一提的是,只有当 θ 在靠近共线相位匹配角度附近变化时,才能观察到二次谐波环的现象,因为当角度偏离较大时,非共线相位匹配条件也不能满足。对于在其他平面上满足共线相位匹配的双轴晶体情况,也可作出类似于本文的分析。对于不在折射率主轴平面上满足共线相位匹配的二次谐波环的情况,因为三个光波矢量之间的角度关系十分复杂,难于得出环的解析表达式,一般只能用数值求解的方法。

为了得到更加精确的环的形状,作者编制了计算机程序,对同样实例的非共线相位匹配过程进行了数值求解,数值解的结果如图 5 所示。比较图 4 和图 5 可以看出,数值解与实验结果完全相符。

通过仔细分析实验中在不同入射角度时的环的形状可知,入射到晶体的光波方向在计算得到的最佳共线相位匹配角度附近时,可观察到非共线相位匹配的二次谐波环。由这些环的

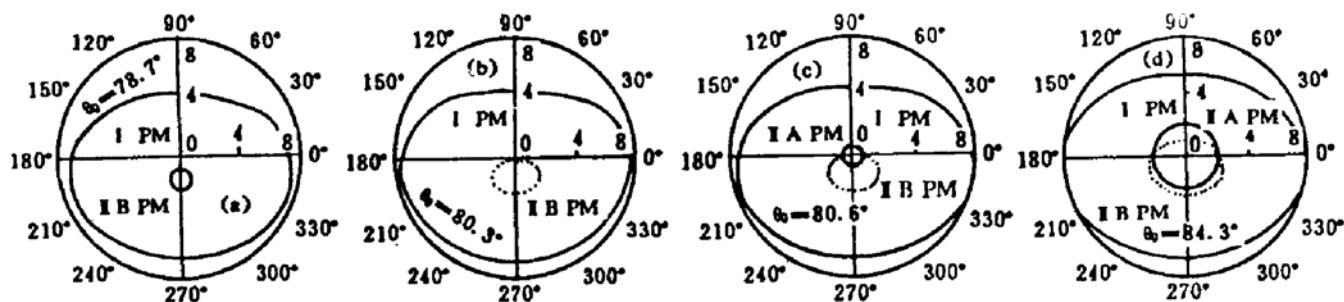


Fig. 5 The numerical calculated SHG rings when NCPM condition is met on the principal xoz plane

中心位置及其大小可判定最佳二次谐波产生的方向。首先，调整晶体使得二次谐波环左右对称，这就确保了入射光方向处在 xoz 平面上；然后，当只观察到两个环的时候，应旋转晶体使得中间环变大；而当出现三个环时，应旋转晶体使得最中心环不断缩小。本文的分析同样也适合于在其他主轴平面上进行二次谐波产生的情形。这种寻找最佳二次谐波产生方向的方法简单实用，适合于晶体加工不很精确的情形。

参 考 文 献

- [1] J. A. Giordmaine, Recent experiments in non-linear optics. *Proceedings of the Third International Congress on Quantum Electronics*, 1963, 2: 1549~1558
- [2] R. Trebino, Second-harmonic-generation rings and refractive-index measurement in uniaxial crystals. *Appl. Opt.*, 1981, 20(12): 2090~2096
- [3] 谢绳武, 郑文彦, 王佩筠等, 双轴晶体有效非线性系数在坐标平面的解析表达. *上海交通大学学报*, 1992, 26(3): 17~21
- [4] 谢绳武, 郭嘉荣, 赵家驹, 双轴晶体倍频相位匹配角及有效二阶非线性系数的数值计算. *上海交通大学学报*, 1982, 16(1): 37~52

Analysis of Non-Collinear Phase Matching Second Harmonic Generation Phenomenon in Biaxial Crystals

Yang Xuelin Xie Shengwu

(Department of Applied Physics, Shanghai Jiao-Tong University, Shanghai 200030)

(Received 1 December 1994, revised 17 January 1995)

Abstract Noncollinear second-harmonic-generation (SHG) processes involving an unfocused laser beam and its scattered radiation produce one or more cones of phase-matched second harmonic. On the principal xoz plane, the expressions of the ring parameters in terms of the indices of refraction and geometry in biaxial crystals are derived. The numeric solutions are in good agreement with observed rings. A method for determining the optimum direction in SHG is suggested.

Key words noncollinear phase matching, second harmonic generation rings, biaxial crystals