

KDP 晶体三倍频实验和分析*

阎 江 谢绳武 杨学林

(上海交通大学应用物理系, 上海 200030)

摘 要 报道了 KDP 晶体中的三倍频产生的实验研究, 计算并比较了直接三倍频过程和级联过程对 KDP 晶体三阶有效非线性系数的贡献。并探讨了 KDP 作为非线性晶体材料三阶非线性系数测量基准的可行性。

关键词 KDP, 三倍频, 三阶有效非线性系数。

1 引 言

三倍频(THG)过程源于介质的三阶非线性系数。近年来利用皮秒激光器在非线性晶体中进行三倍频实验引起了广泛注意^[1-3]。文献[4, 5]对晶体中的三阶非线性过程作了系统的讨论, 并对三倍频实验中的相位匹配问题和三阶有效非线性系数的计算进行了详细的分析。

ADP、LiIO₃、BBO 和 CaCO₃ 晶体中的三倍频实验在文献中都有报道^[1, 2, 6, 7]。1983 年, Thalhammer 等利用非相位匹配三倍频方法测量了一些固体、液体和气体的有效三阶非线性系数^[8]。但 KDP 晶体作为良好的倍频晶体, 在其中进行的三倍频实验及其有效三阶非线性系数的研究在国内、外文献中都未见报道。本文以 Nd:YAG 激光器的调 Q 输出为泵浦源, 在 KDP 晶体中得到了基频光(1064 nm)的三倍频输出(355 nm), 最大转换效率达 10⁻⁹, 并推算出其三阶有效非线性系数约为 7.4 × 10⁻²³ m²V⁻²。

2 理 论

晶体中三次谐波的产生要求满足一定的相位匹配条件,

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_1 + \omega_1, \quad (\text{能量守恒})$$

$$\mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_1, \quad (\text{动量守恒})$$

式中, ω_1 、 ω_3 分别为基波和三次谐波频率($\omega_3 = 3\omega_1$), \mathbf{k}_1 、 \mathbf{k}_3 分别为基波和三次谐波的波矢方向($|\mathbf{k}_i| = n_i\omega_i/c_0$, $i = 1, 2, 3$, 分别表示与频率 ω , 2ω , 3ω 的有关物理量), 相位匹配条件可表述为

$$\Delta\mathbf{k}_{\text{THG}} = \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_1 = 0 \quad (1)$$

KDP 晶体为负单轴晶体, $\bar{4}2m$ 点群, 不具有反演对称中心。三次谐波信号还可通过级联效应

* 上海市自然科学基金和国家教委博士点基金资助课题。

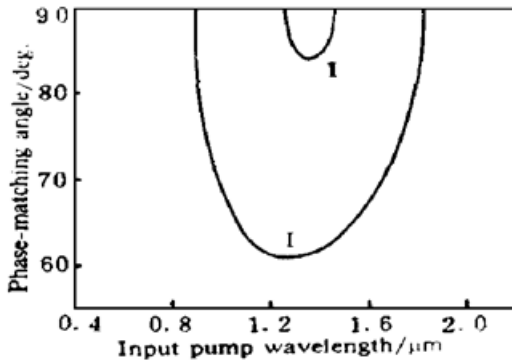
收稿日期: 1997-04-21; 收到修改稿日期: 1997-09-11

产生:

$$\omega + \omega + \omega \rightarrow (\omega + \omega) + \omega \rightarrow 3\omega \tag{2}$$

其相位匹配条件要求: $\Delta k_{FM} = k_3 - k_2 - k_1 = 0$ 。

由(1)式, 及 $|k_i| = n_i\omega/c_0 (i = 1, 2, 3; n_i$ 为相应的折射率), 可求得各种匹配类型下的



相位匹配曲线。KDP 晶体进行三倍频实验时对应于不同泵浦波长的相位匹配角 θ_{pm} 如图 1 所示。由图可见, 当入射波长在 $0.84 \mu\text{m} \sim 1.74 \mu\text{m}$ 的范围内时, 在 KDP 晶体中可实现第 I 类相位匹配; 当入射波长在 $1.28 \mu\text{m} \sim 1.53 \mu\text{m}$ 的范围内时, 在 KDP 晶体中可实现第 II 类相位匹配, 第 III 类相位匹配条件在 KDP 晶体中无法满足。这两类相位匹配方式下的三阶有效非线性系数可由文献[5]所给公式求得:

Fig. 1 The phase-matching angle in the THG experiment of KDP crystal: curve I ($o_1 + o_1 + o_1 \rightarrow e_3$) is the type I phase-matching and the curve II refers to type II ($o_1 + o_1 + e_1 \rightarrow e_3$)

$$\chi_{\text{eff}, I}^{(3)} = -\frac{1}{4}(\chi_{11} - 3\chi_{18}) \cos \theta \sin (4\phi) \tag{3}$$

$$\chi_{\text{eff}, II}^{(3)} = \frac{1}{2}\chi_{11} \sin^2(2\phi) \cos^2 \theta + \chi_{16} \sin^2 \theta + \chi_{18} \cos^2 \theta \cos^2(2\phi) \tag{4}$$

因为 KDP 晶体本身是良好倍频晶体, 所以在直接三次谐波产生的同时伴有级联二阶非线性过程, 同样得到三倍频信号输出, 其大小由和频过程的相位失配度 Δk_{FM} 和倍频、和频过程的二阶有效非线性系数 $\chi_{\text{eff}, SHG}^{(2)}$ 、 $\chi_{\text{eff}, FM}^{(2)}$ 决定^[11]:

$$E_3(z) = -i \frac{\omega_3 z}{2n_3 c_0 \cos^2 \alpha_3} \chi_{\text{eff}} E_{1a} E_{1b} E_{1c} \exp(i\Delta k z / 2) \frac{\sin(\Delta k / 2)}{\Delta k / 2} \tag{5}$$

其中, $\Delta k = |\Delta k_{THG}|$

$$\chi_{\text{eff}} = \chi_{\text{eff}, THG}^{(3)} + \chi_{\text{eff}, cas}^{(3)} = \chi_{\text{eff}, THG}^{(3)} + \sum_{i=1}^m \frac{\omega_2 \chi_{\text{eff}, SHG, i}^{(2)} \chi_{\text{eff}, FM, i}^{(2)}}{n_2 c_0 \cos^2 \alpha_2 |\Delta k_{FM, j}|} \tag{6}$$

式中, c_0 为真空中的光速, α_2 为二次谐波信号和基频信号间的离散角, n_2 为晶体中的倍频信号折射率。 E_{1a} 、 E_{1b} 、 E_{1c} 为基频光电场强度。在第 I 类相位匹配方式下, 对 1064 nm 的入射光, 在 KDP 晶体中进行三倍频实验的最佳相位匹配角是 $\theta_{PM} = 64.8^\circ$, $\phi = 22.5^\circ$, 当基波沿此方向入射时, 各种可能的级联过程的相位失配度及其对三阶有效非线性系数的贡献 $\chi_{\text{eff}, cas}^{(3)}$ 见表 1。

Table 1. Mixed direct third harmonic generation and cascading third harmonic generation in KDP crystal (Type I: $o_1 + o_1 + o_1 \rightarrow e_3$, pump wavelength $\lambda = 1.064 \mu\text{m}$)

interaction	θ_{pm}	$\Delta K / (1/\text{cm})$	$\chi_{\text{eff}, cas}^{(3)} / (10^{-16} \text{ esu})$
phase-matched THG ($\Delta k_{THG} = \Delta k_{SHG} + \Delta k_{FM} = 0$)			
1) $o_1 + o_1 + o_1 \rightarrow e_3$	64.8°	0	
2) $o_1 + o_1 \rightarrow e_2$		- 1891.3	- 3.91
$e_2 + o_1 \rightarrow e_3$		1875.0	3.93
$e_2 + o_1 \rightarrow o_3$		8511.0	0.87
3) $o_1 + o_1 \rightarrow o_2$		2183.8	3.39
$o_2 + o_1 \rightarrow e_3$		- 2191.2	- 3.39
$o_2 + o_1 \rightarrow o_3$		4428.5	1.68

表中, $\chi_{\text{eff, cas}}^{(3)} = \sum_{i=1}^m \frac{\omega_2 \chi_{\text{eff, SHG}, i}^{(2)} \chi_{\text{eff, FM}, i}^{(2)}}{n_2 c_0 \cos^3 \alpha_2 \Delta k_{\text{FM}, i}}$, $o_1 + o_1 \rightarrow e_2$ 过程, $\Delta K = k_{2, e} - k_{1, o} - k_{1, o}$; $e_2 + o_1 \rightarrow e_3$ 过程 $\Delta K = k_{3, e} - k_{2, e} - k_{1, o}$ 余类推(脚标 o、e 分别代表 o 光和 e 光)。

3 实 验

按照前面的计算结果, 加工了两块通光长度分别为 14 mm 和 11 mm 的 KDP 晶体, 入射面法线与光轴夹角为 64.8° 。实验装置如图 2 所示, 小孔用于调节泵浦光能量的大小, 调节范围从 0.5 mJ 到 5 mJ。He-Ne 激光器用于调节整个光路共线等高。滤光片 P_1 用于滤去泵浦光中的三倍频成分, 滤光片 P_2 从泵浦光中分出一部分送入激光能量计测量其大小。透镜 L_1 焦距为 20 cm, 用于提高泵浦光在介质中的功率密度, 从而提高三倍频信号转换效率。但为避免打坏晶体, 样品略微偏离透镜焦平面, 晶体表面上基频光光斑直径约为 1.1 mm。

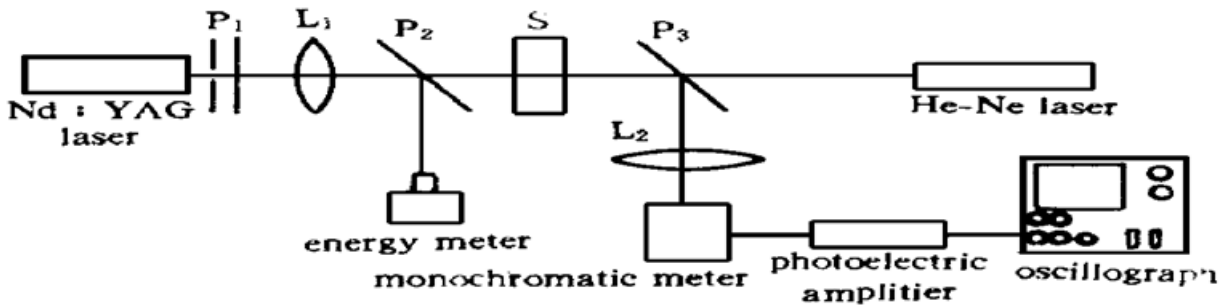


Fig. 2 Experimental setup of THG in KDP single crystal

透镜 L_2 焦距为 10 cm, 用于将信号光聚焦在单色仪的接收平面上。实验泵浦光源是法国 Quantel 公司的 YAG580 型 Q 开关 Nd·YAG 激光器, 输出的脉冲基频光波长 $1.064 \mu\text{m}$, 脉宽约 10 ns, 最大功率密度 $0.63 \text{ GW}/\text{cm}^2$ 。单色仪用于对各种波长的出射光进行定标, 并通过光电倍增管放大后用示波器观测。

按图 2 所示的实验装置, 得到了波长 $1.064 \mu\text{m}$ 的泵浦光的三倍频信号输出, 图 3 是实验中得到的直接三次谐波信号强度 ($I_{3\omega, \text{THG}}$) 随相位失配角 $\Delta\theta$ 的变化关系, 它与理论预计(图 4)符合提很好。三次谐波信号的转换效率在 20 分内即由极大变为零。 $I_{3\omega, \text{THG}}$ 与 $\Delta\phi$ 的关系见图 5, 显然三倍频信号的转换效率对 $\Delta\phi$ 的变化并不敏感。

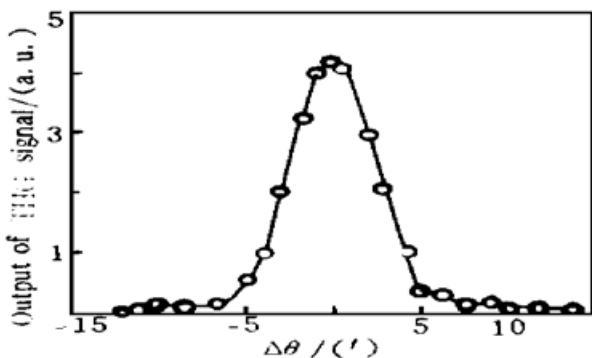


Fig. 3 The experimental power-output of THG signal versus phase-mismatching ($\Delta\theta$)

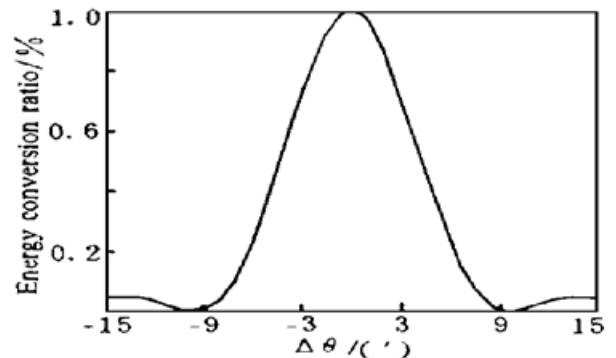


Fig. 4 The theory energy conversion-ratio of THG signal versus phase-mismatching ($\Delta\theta$)

图 6 给出了 $I_{3\omega, \text{THG}}$ 相对于泵浦光强 I_ω 的变化关系, 图中坐标为对数坐标, 图 6 中直线的斜率约为 3, 表明 $I_{3\omega, \text{THG}}$ 与 I_ω 的三次方成正比, 证明输出信号是三次谐波信号。

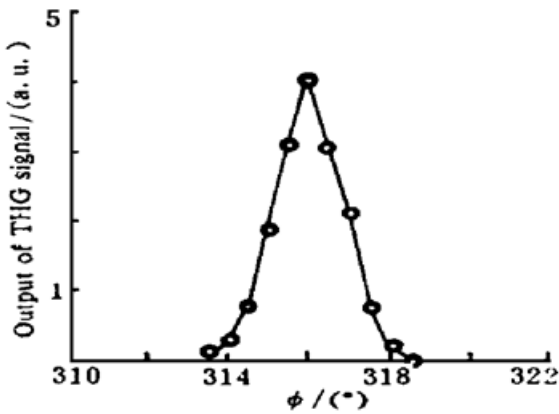


Fig. 5 The output power of THG signal versus ϕ at THG phase-matching angle

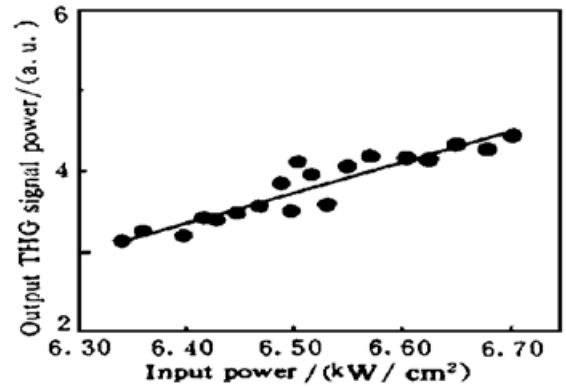


Fig. 6 The curve of output THG power versus fundamental input power

4 讨 论

因为 KDP 晶体无反演对称中心, 所以当基频波沿直接三倍频的相位匹配方向传播时, 所得到的三倍频信号必然还包括级联过程产生的三倍频信号。表 1 给出了基频光沿 KDP 晶体直接三倍频的相位匹配方向入射时可能的级联过程, 因为 $o_1 + o_1 \rightarrow o_2$ 过程的 $\chi_{\text{eff}}^{(2)} = 0$, 所以此时的级联过程只有 $o_1 + o_1 \rightarrow e_2$, $e_2 + o_1 \rightarrow e_3$ 和 $o_1 + o_1 \rightarrow e_2$, $e_2 + o_1 \rightarrow o_3$ 两种, 由表 1 知它们对三阶有效非线性系数 $\chi_{\text{eff}}^{(3)}$ 的贡献约为 $6.7 \times 10^{-23} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1}$ 。文献[7]得到 ADP 晶体的有效三阶非线性系数 $\chi_{\text{eff, THG}}^{(3)}$ 为 $3.5 \times 10^{-23} \text{ m}^2 \text{ V}^{-2}$, 文献[8]指出 $\chi_{\text{KDP}}^{(3)} = 2.1 \chi_{\text{ADP}}^{(3)}$, 从而可推出 KDP 晶体的 $\chi_{\text{eff, THG}}^{(3)}$ 约为 $7.4 \times 10^{-23} \text{ M}^2 \text{ V}^{-2}$, 由此可见直接三倍频和间接三倍频过程所产生的三倍频信号基本相当, 这与 BBO 和 ADP 结果一致。由于晶体质量的限制, 没能得到 $\chi_{\text{eff}}^{(3)}$ 的值。

通过对图 1 和(4)式、(6)式的分析, 并考察 $\chi_{\text{eff, SHG}}^{(2)}$ 、 $\chi_{\text{eff, FM}}^{(2)}$ 表明, 如以 1280 nm 或 1530 nm 的波长入射, 即可采用第二类相位匹配方式, 此时直接三倍频的相位匹配角 $\theta_{\text{pm}} = 90^\circ$, 若取 $\phi = 0^\circ$, 而不是 22.5° , 则 $\chi_{\text{eff, II}}^{(3)} = \chi_{16}$, 且所有级联过程都被禁止, 这样即可得到 KDP 晶体三阶有效非线性系数一个分量 χ_{16} 的值, 这个值即可以作为测量晶体材料三阶非线性系数的一个基准。相应结果有待进一步的实验验证。

参 考 文 献

- [1] P. Qiu, A. Penzkofer, Picosecond third-harmonic light generation in BBO. *Appl. Phys. (B)*, 1988, **45**(4): 225~ 236
- [2] A. Penzkofer, P. Qiu, Picosecond third-harmonic light generation in Calcite. *Appl. Phys. (B)*, 1988, **47**(1): 71~ 81
- [3] I. V. Tomov, Wouterghem Van B., P. M. Rentzepis, Third-harmonic generation in barium borate. *Appl. Opt.*, 1991, **31**(21): 4172~ 4174
- [4] Xue-Lin Yang, Sheng-Wu Xie, Phase-matching considerations of four-wave interaction process in biaxial crystal. *Opt. Engng.*, 1995, **34**(4): 1191~ 1194
- [5] 杨学林, 谢绳武, 晶体中三阶有效非线性系数的计算方法. *光学学报*, 1995, **15**(4): 411~ 416
- [6] C. C. Wang, E. L. Baardsen, Optical third harmonic generation using mode-locked and nonmode-locked laser. *Appl. Phys. Lett.*, 1969, **15**(12): 396~ 397
- [7] M. Okada, Third-order nonlinear optical coefficients of LiIO_3 . *Appl. Phys. Lett.*, 1971, **18**(10): 451~ 452

- [8] M. Thalhammer, A. Penzkofer, Measurement of third-order susceptibilities by non-phase matched third-harmonic generation. *Appl. Phys. (B)*, 1983, **32**(1) : 137~ 143

The Experimental and Analysis of Third-Harmonic Generation in KDP Crystal

Yan Jiang Xie Shengwu Yang Xuelin

(*Department of Applied Physics, Shanghai Jiaotong University, Shanghai 200030*)

(Received 21 April 1997; revised 11 September 1997)

Abstract Third-harmonic generation (THG) in KDP crystals was reported. Based on the experimental result, we analyzed and compared the contributions to KDP third-order nonlinearity for direct THG process and cascading process. As a result, we discussed the possibility of using KDP as the standard in measuring the coefficient of nonlinear optical crystals.

Key words KDP, third-harmonic generation (THG), third-order nonlinear coefficients.