

# 晶体球中非相位匹配二次谐波产生 及最佳聚焦条件\*

阎 江<sup>1)</sup> 杨学林<sup>1)</sup> 李浩文<sup>1)</sup> 谢绳武<sup>1)</sup> 丁良恩<sup>2)</sup>

1), 上海交通大学应用物理系, 上海 200240

2), 华东师范大学量子光学开放实验室, 上海 200062

**摘 要** 晶体球法是近年来在国际上发展起来的一种测量非线性系数的新方法。根据聚焦高斯光束二次谐波产生的孔径方程理论, 分析了晶体球中的第 I 类非相位匹配二次谐波产生过程, 讨论了晶体球中第 I 类非相位匹配二次谐波最佳聚焦参数的选择。报道了 LiNbO<sub>3</sub> 晶体球中皮秒激光脉冲抽运的非相位匹配二次谐波实验。所得结果与理论预计相符。

**关键词** 晶体球, 高斯光束, 非相位匹配, 二次谐波产生。

## 1 引 言

晶体的二阶非线性光学极化率  $\chi^{(2)}$  的测量是非线性光学晶体材料应用的基础。 $\chi^{(2)}$  的测量的方法主要有 Maker 条纹法、二次谐波法、电场诱导二次谐波法、参量振荡和参量荧光等。相位匹配二次谐波法因为装置相对简单、精度较高而广泛应用于  $\chi^{(2)}$  的测量。但二次谐波法的缺点是: 1) 必须用棱镜法先测出晶体折射率, 计算出相位匹配方向, 并按此方向切割晶体使基频光正入射; 2) 如要测量  $\chi^{(2)}$  详细张量元的值, 必须加工不同方向的样片以满足不同的相位匹配方向; 3) 拟合得到的晶体非线性光学折射率的精确与否还必须经过实验的进一步验证。利用晶体球二次谐波法<sup>1,2)</sup> 测量样品非线性光学极化率分量值可从根本上克服上述缺点, 是一种更直接的测量。首先, 可以利用晶体球某些方向上的光离散角得到具体折射率; 其次, 晶体球满足任一方向都能垂直入射的优点, 只需一个晶体球即可测量出所有的非线性光学极化率张量元的值; 第三, 最佳入射方向经实验直接给出, 不需要重复实验验证。

因为球内光束分布受折射球面汇聚效应的影响, 一般是高斯分布, 因此平面波的二次谐波理论不能完整地描述晶体球内的二次谐波过程。文献[3]和文献[4]对高斯光束的第 I 类和第 II 类相位匹配二次谐波产生作了详细的理论研究, 文献[5]报道了 KTP 晶体球中第 I 类和第 II 类相位匹配条件下的二次谐波实验研究, 证明了聚焦高斯光束二次谐波的孔径方程理论<sup>3,4)</sup> 适用于晶体球内的倍频过程。考虑到晶体球可以实现任意方向正入射, 因而在晶体球定向准确和球心与旋转中心精确重合的基础上, 可以根据某一非相位匹配方向的二次谐波转换效率, 测

\* 上海市自然科学基金和国家教委博士点基金资助项目。

收稿日期: 1999-06-29; 收到修改稿日期: 1999-09-22

量晶体的二阶非线性系数。本文从球面折射矩阵出发讨论了高斯光束入射晶体球后球内的光束分布, 根据高斯光束二次谐波的孔径方程理论分析了晶体球中的第 I 类非相位匹配二次谐波过程, 讨论了晶体球中非相位匹配二次谐波产生最佳聚焦参数的选取, 并在 LiNbO<sub>3</sub> 晶体球中用皮秒激光脉冲抽运进行了第 I 类非相位匹配二次谐波产生实验, 结果与理论预计相符。

## 2 理 论

高斯光束入射半径为  $R$ , 传播方向折射率为  $n_2$  的晶体球, 球内的折射光束可以根据球面折射矩阵利用高斯光束的  $ABCD$  定律求得。以光束传播方向为  $z$  轴正方向, 入射球面的顶点为零点(见图 1), 球面折射矩阵为<sup>[6]</sup>

$$\begin{bmatrix} 1 & 0 \\ - (n_1 - n_2)/n_2 R & n_1/n_2 \end{bmatrix},$$

其中  $n_1$  为空气的折射率, 球内光束束腰的大小和位置( $w_2, z_2$ ) 随入射光束参数( $w_1, z_1$ ) 的变化由下式给出:

$$w_2^2 = \frac{AD - BC}{(Cz_1 + D)^2 + (Cz_R)^2} w_1^2, \tag{1}$$

$$z_2 = \frac{(Az_1 + B)(Cz_1 + D) + ACz_R^2}{(Cz_1 + D)^2 + (Cz_R)^2}, \tag{2}$$

式中  $ABCD$  为折射矩阵元。

图 2 给出了束腰  $w_1$  不同的光束入射到半径 28.65 mm 的 LiNbO<sub>3</sub> 晶体球上时, 球内光束束腰的大小和位置随  $z_1$  的变化, 图中  $s = z_R/f$ ,  $z_R = n_2 \pi w_1^2 / \lambda$ , 为瑞利长度,  $f$  为折射球面等效焦距。因为晶体中正交偏振的两束本征线偏振光(在单轴晶体中为  $o$  光和  $e$  光)的传播速度的不同, 引起了球内光束束腰大小和位置的差异(见图 3)。对于图 3 中直径为 28.65 mm 的 LiNbO<sub>3</sub> 晶体球, 快光和慢光束束腰大小的差别不大,  $|z_{2,o} - z_{2,e}|/w_{2,o} < 0.1$ , 可以忽略。但二者束腰的位置相差很大( $\Delta = |z_{2,o} - z_{2,e}|$ ), 这对第 II 类相位匹配二次谐波的转换效率将产生较大的影响, 但这已超出了本文研究的范围, 作者将在相关问题中加以讨论。

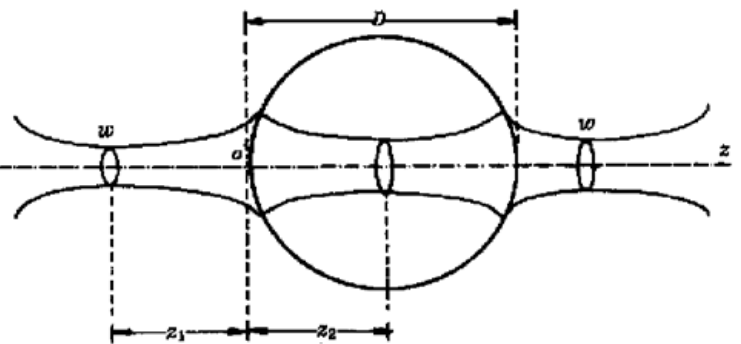


Fig. 1 Incident ( $w_1, z_1$ ) and refracted ( $w_2, z_2$ ) Gaussian beam parameters.  $D$  is the sphere diameter. The origin of the  $z_1, z_2$  axis is taken at the entrance of the sphere.

高斯光束二次谐波的理论分析指出, 仅当聚焦参量  $\zeta < 0.33$  ( $\zeta = \frac{l}{2z_R}$ ,  $l$  为晶体长度) 时, 球内光束可近似为平面波<sup>[3,4]</sup>。一般情况下, 球内光束为高斯分布, 平面波理论不再适用, 高斯光束二次谐波的孔径方程理论给出的谐波转换效率  $\eta$  表述为(忽略吸收)<sup>[4]</sup>

$$\eta = K \cdot P^w \cdot l \cdot k^w \cdot h(\zeta f, \gamma, \sigma), \tag{3}$$

$$h(\zeta f, \gamma, \sigma) = \frac{2\pi}{l} \int_{-\infty}^{+\infty} du |H(\zeta f, \gamma, \sigma)|^2 \exp(-4u^2), \tag{4}$$

$$H(\zeta f, \gamma, \sigma) = \frac{1}{2\pi} \int_{-f}^{2\zeta-f} \frac{d\tau'}{1+i\tau'} \exp[-\gamma^2(\tau'+f)^2 - i\sigma\tau'] \tag{5}$$

式中,  $P^\omega$ 、 $k^\omega$  分别为基波的入射功率和传播常数,  $h$  函数称为孔径方程,  $\zeta f$ 、 $\gamma$ 、 $\sigma$  和  $\tau'$  的定义见文献[4]。高斯光束第 I 类相位匹配二次谐波的最佳聚焦参数在文献[3, 4] 中都有详细的描述。定义离散参数

$$B = \frac{\rho \sqrt{k^\omega l}}{2} \quad (k^\omega = \frac{2n_2\pi}{\lambda}),$$

则(4) 式、(5) 式中  $\gamma^2 = B^2/(2\zeta)^{14}$ 。对不同的离散参数  $B$  都有唯一的最佳聚焦参量  $\zeta_m$  和最佳相位匹配参量  $\sigma_m$  与之对应。 $\zeta_m$  和  $\sigma_m$  定义为使孔径方程  $h(\zeta f, \gamma, \sigma)$  最大的  $\zeta$  和  $\sigma$  的取值, 其大小通过数值求解孔径方程(4) 确定。对第 I 类相位匹配, 高斯光束二次谐波的最佳聚焦强度  $\zeta_m$  在 1.39 ~ 2.84 之间<sup>[3, 4]</sup>, 最佳相位匹配度  $\Delta k_m > 0$  ( $\sigma_m, \zeta_m = \Delta k_m l/2$ ), 而不是通常的  $\Delta k_m = 0$ <sup>[3]</sup>。

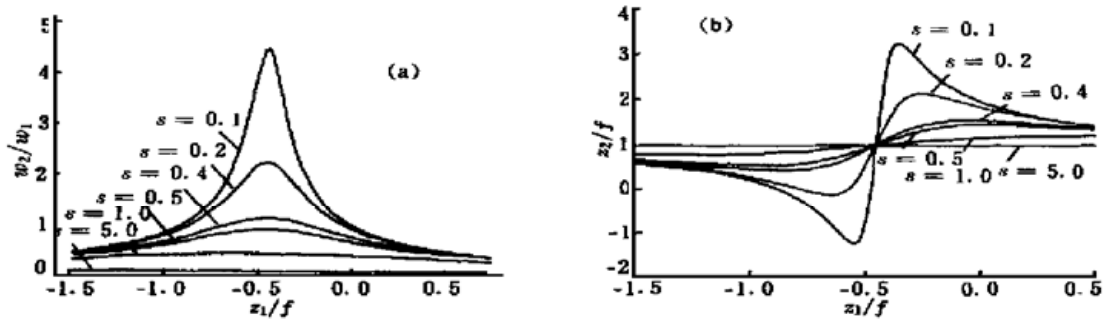


Fig. 2 Relationship of  $w_2/w_1$  and  $z_2/f$  versus  $z_1 = f$  as beam incidents into LiNbO<sub>3</sub> crystal sphere. Wavelength  $\lambda = 1.064 \mu\text{m}$ , sphere diameter  $D = 28.65 \text{ mm}$ ,  $s = z_R/f$ ,  $f = 26.3 \text{ mm}$

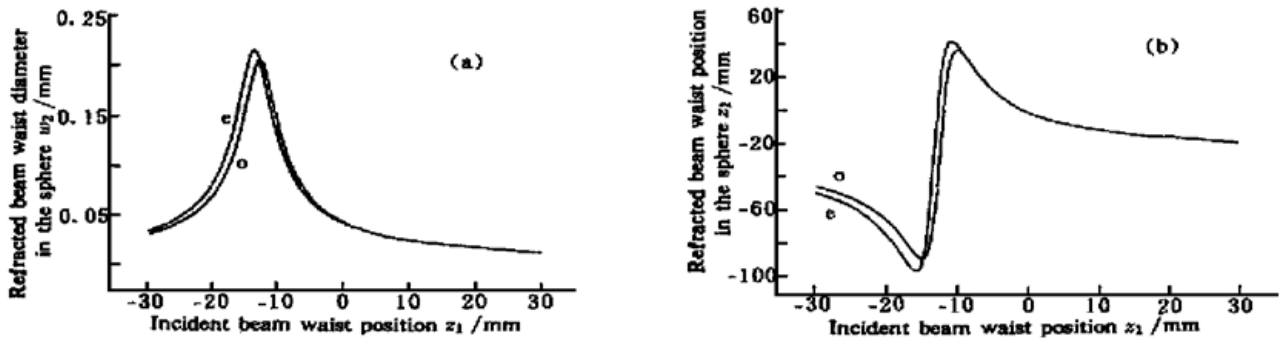


Fig. 3 Beam waist radius  $w_2$  and position  $z_2$  versus incident beam waist position  $z_1$ .

Crystal: LiNbO<sub>3</sub>  $\lambda = 1.064 \mu\text{m}$ , sphere diameter  $D = 28.65 \text{ mm}$ , incident beam waist  $w_1 = 29 \mu\text{m}$

在非相位匹配二次谐波产生中, 相位匹配度  $\Delta k$  随着入射方向的给定而唯一确定, 不再象相位匹配二次谐波产生中是可优化的参量, 但聚焦强度  $\zeta$  仍是可优化的参量。本文定义在给定离散参量  $B$  和相位匹配度  $\Delta k$  条件下使孔径方程  $h(\zeta f, \gamma, \sigma)$  最大的  $\zeta$  的值为非相位匹配二次谐波产生的最佳聚焦参量, 记为  $\zeta_{m, \text{NPM}}$ 。在(4) 式、(5) 式中令  $B$  和  $\sigma$  为定值, 数值求解孔径方程  $h(\zeta f, \gamma, \sigma)$  即可得到任意相位失配方向的最佳聚焦参量  $\zeta_{m, \text{NPM}}$ , 表 1 中给出了 LiNbO<sub>3</sub> 晶体在几个非相位匹配方向的  $\zeta_{m, \text{NPM}}$ 。可以预计, 非相位匹配条件下  $h(\zeta f, \gamma, \sigma)$  的最大值将远小于相位匹配时的值。

### 3 实 验

晶体球二次谐波产生的优点是可以满足任意方向正入射, 所以晶体主轴的准确定向和球心与旋转中心的精确定位是实验的关键。晶轴的定向较为准确的方法是 X 射线衍射, 但我们的晶体球较大, 用 X 射线衍射定位有一定难度, 因为  $\text{LiNbO}_3$  是单轴晶体, 相位失配度  $\Delta k = (2\pi/\lambda) \cdot [n_c^{2\omega}(\theta) - n_o^\omega]$  只与光轴和基频光波矢间的夹角  $\theta$  有关, 所以可以利用晶体球在正交偏振片间的偏光干涉较为准确地确定出晶体的  $z$  轴(光轴)方向, 从而得到任意入射方向与光轴  $c$  的夹角  $\theta$ 。我们加工了直径 28.65 mm 的  $\text{LiNbO}_3$  晶体球用于非相位匹配二次谐波实验, 抽运光源为 Continuum 公司染料调 Q YAG ·Nd 脉冲激光器, 输出波长为 1.064  $\mu\text{m}$ , 重复频率 6 Hz, 最大脉冲输出能量 35 mJ, 脉宽 35 ps。 $\text{LiNbO}_3$  晶体球固定在两个精密的压电陶瓷旋转座上, 用以满足绕两个正交轴的 360°旋转的条件。实验中用焦距为 25.7 cm 的透镜对光束聚焦后得到的光束束腰约为 29  $\mu\text{m}$ 。为避免晶体球的损伤, 激光器的输出能量用中性滤光片进行衰减。通过两块正交偏振片粗调后再根据晶体球偏振效应细调, 可以确定晶体球的光轴方向并使球心和两个转轴的中心相交于光束的中心。实验光路如图 4 所示, 格兰棱镜是起偏器, 滤光片  $F_1$  用于滤去基频光中的其他波长,  $F_2$  为中性滤波片, 经  $F_3$  波去基波后的谐波信号用光电管  $\text{PD}_2$  检测,  $\text{PD}_1$  探测到的微弱信号用于对 Boxcar 进行外触发, 以保证测量的同步性。

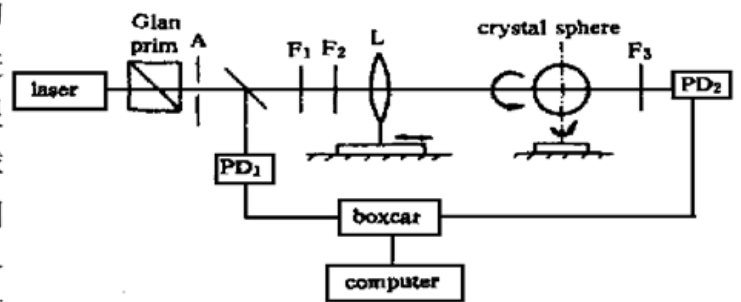


Fig. 4 Experimental setup for non-phase-matched second-harmonic generation.

因为实验中的基频光束功率密度较高, 即使在相位失配较大的情况下也有明显的非相位匹配二次谐波信号输出。常温下  $\text{LiNbO}_3$  中 1.064  $\mu\text{m} \rightarrow 0.532 \mu\text{m}$  二次谐波过程的相位匹配角为 84.2°, 本文作者选择非相位匹配方向  $\theta$  分别为 67.2°、65.2°、62.2°、58.2°、54.2°和 50.2°进行了非相位匹配二次谐波实验。激光器输出经透镜聚焦后射入晶体球, 透镜安放在一个由步进电机驱动的滑动导轨上沿  $z$  轴移动, 通过改变光束入射晶体球的位置  $z_1$  来调节球内聚焦强度  $\zeta$ 。 $\theta = 58.2^\circ$  时孔径方程  $h_{m,NPM}(z_1)$  随  $z_1$  变化的理论曲线如图 5 中的实线所示, 图中圆点是 Boxcar 测得的实验数值, 理论和实验值都以各自最大值作了归一化。理论与实验结果相符, 证明在相位失配情况下, 存在最佳聚焦强度  $\zeta_{m,NPM}$  使非相位匹配二次谐波的转换效率最大。在  $\theta = 58.2^\circ$  时的相关倍频参量  $B = 9.83$ ,  $\Delta k = 138.91 \text{ mm}^{-1}$ , 非相位匹配时的最佳聚焦强度  $\zeta_{m,NPM} = 1.03$ , 对应的入射光束腰位置在  $z_1 = -21.3 \text{ mm}$  和  $z_1 = -1.3 \text{ mm}$  处, 为避免晶体球入射表面的损伤, 取  $z_1 = -21.3 \text{ mm}$  为佳。但高斯光束相位匹配二次谐波的孔径方程理论指出, 在第 I 类相位匹配二次谐波中, 基频光束腰的位置处于晶体中心<sup>[31]</sup>时, 二次谐波转换效率最大。所以当入射光束的强度不是很高, 聚焦后的光束不致引起晶体球表面的损伤时, 入射光束束腰越接近晶体球, 倍频效率越高, 因为此时球内基频光

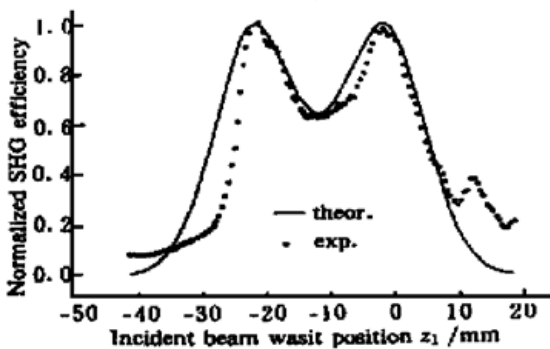


Fig. 5 Experimental and theoretical curve of NPM SHG conversion efficiency versus incident beam waist position.

引起晶体球表面的损伤时, 入射光束束腰越接近晶体球, 倍频效率越高, 因为此时球内基频光

束腰接近晶体球球心[见图 3(b)]。图 5 中  $z_1 > 0$  时的转换效率大于  $z_1 < 0$  时的值应是由于束腰位置对  $\eta$  的影响, 对  $z_1 > 0$  时的实验值明显大于理论值这一点, 我们没能发现合理的解释。其他入射方向的数据收集在表 1 中,  $h_m$  是在离散参量  $B$  下, 相位匹配参量  $\sigma$  和聚焦参量  $\zeta$  取最佳值时孔径方程(4) 的值,  $\Delta k_m$  是相应的最佳相位匹配条件( $\sigma_m \zeta_m = \Delta k_m l/2$ ) 下的值。

Table 1 The walk-off ( $\rho$ ), phase-match ( $\Delta k$ ), and walk-off parameter ( $B$ ) at given NPM SHG direction. And the calculated optimum aperture function ( $h_m$ ) at optimized focus parameter ( $\zeta_m$ ), phase-matching ( $\Delta k_m$ ) for every  $B$  in PM SHG. Compare with the optimum aperture function ( $h_{m,NPM}$ ) at its optimized focus parameter  $\zeta_{m,NPM}$  for NPM SHG.

$\theta$	67.2°	65.2°	62.2°	58.2°	54.2°	50.2°
1) SHG parameters under given azimuth angle $\theta$						
$\rho/\text{rad}$	0.025	0.027	0.029	0.032	0.034	0.035
$\Delta k/\text{mm}^{-1}$	72.10	85.52	107.26	138.91	173.09	209.20
$B$	7.68	8.30	8.91	9.83	10.45	10.76
2) Optimized over $\zeta$ and $\Delta k$ for given walk-off parameters $B$ in PM SHG						
$\zeta_m$	1.46	1.45	1.45	1.44	1.44	1.44
$\Delta k_m/\text{mm}^{-1}$	0.077	0.077	0.077	0.076	0.078	0.076
$h_m$	0.091	0.084	0.079	0.071	0.067	0.065
3) Optimized over $\zeta$ only for given walk-off parameters $B$ and $\Delta k$ in PM SHG						
$\zeta_{m,NPM}$	1.04	1.05	1.11	1.03	0.98	0.97
$h_{m,NPM}/10^{-7}$	20.72	14.73	9.29	5.58	3.58	2.45
4) No optimized parameters						
$h/10^{-7}$	7.60	5.58	3.63	2.14	1.25	0.94

在表 1 中可以看到, 因为实际相位失配度  $\Delta k$  远远大于各离散参量  $B$  所要求的最佳相应匹配条件  $\Delta k_m$ , 例如实验中当  $\theta = 67.2^\circ$  时的相位失配度最小,  $\Delta k = 72.1 \text{ mm}^{-1}$ , 仍远大于相应的最佳聚焦强度  $\zeta_m (= 1.46)$  所要求的  $0.077 \text{ mm}^{-1}$ , 故非相位匹配二次谐波时孔径方程的最大值  $h_{m,NPM}$  远小于相位匹配时的值  $h_m = 0.0911$ , 只有  $10^{-7}$  量级。表 1 中最后一行  $h$  是入射光束腰  $w_1 = 29 \mu\text{m}$  距晶体球顶点  $18 \text{ mm}$  ( $z_1 = -18 \text{ mm}$ ) 时在上述入射各方向上的(4)式的计算值,  $h_{m,NPM} \approx 2.6h$ 。比较表 1 中的  $\zeta_{m,NPM}$  和  $\zeta_m$  可以发现  $\zeta_{m,NPM} < \zeta_m$ , 即非相位匹配二次谐波的最佳聚焦强度小于相位匹配二次谐波时的最佳聚焦强度。

在另一直径  $30 \text{ mm}$  的晶体球中, 当入射基频光单脉冲能量  $1.55 \text{ mJ}$  时, 在  $z_1$  分别为  $-38.5 \text{ mm}$  和  $8.4 \text{ mm}$  时, 在入射面和近出射面处观察到轻微损伤, 说明此时晶体球内的束腰过小, 功率密度太高。实验中为避免晶体球受损伤, 入射能量衰减到  $1.1 \text{ mJ}$ , 得到的非相位匹配二次谐波转换效率小于  $8\%$ 。

上述实验表明, 利用皮秒脉冲激光器的高峰值功率可以在  $\text{LiNbO}_3$  晶体球中实现非相位匹配二次谐波产生, 实验结果与理论相符, 表明高斯光束二次谐波产生的孔径方程理论同样适用于晶体球中的皮秒脉冲非相位匹配二次谐波产生过程。从表 1 可以看到, 因为非相位匹配下的孔径方程  $h_{m,NPM}$  远小于相位匹配下的  $h_m$ , 所以在相位匹配条件下, 二次谐波的转换效率将远大于非相位匹配时的二次谐波转换效率, 此时必须考虑抽运耗尽效应。

**讨 论** 本文对晶体球中非相位匹配二次谐波产生进行了理论和实验探讨, 指出在非相位匹配二次谐波产生中存在最佳聚焦参数  $\zeta_{n, \text{NPM}}$  使非相位匹配二次谐波产生的转换效率最大, 晶体球中非相位匹配二次谐波产生的转换效率可通过数值求解高斯光束的孔径方程(4) 得到。因为球内光束分布受入射激光的参数( $w_1, z_1$ ) 和球面折射矩阵的影响, 为了得到较大的非相位匹配二次谐波转换效率, 须根据(1) 式、(2) 式首先确定入射激光参数( $w_1, z_1$ ), 然后选择适当的透镜对激光器的输出光束进行压缩, 以在球内得到最佳聚焦参数  $\zeta_{n, \text{NPM}}$ 。根据晶体球能够满足任意方向正入射的特点, 可以利用非相位匹配二次谐波方法通过较高的脉冲功率密度所产生的谐波信号测量晶体二阶非线性系数, 而避免抽运耗尽效应。利用非相位匹配二次谐波测量晶体二阶非线性系数的实验结果将另文讨论。

### 参 考 文 献

- [1] Velsko S P, Eimerl D. Second harmonic generation in sodium lanthanum fluoride. *J. Appl. Phys.*, 1987, **62**(6): 2461~ 2465
- [2] Marnier G, Boulanger B. The sphere method: a new technique in linear and nonlinear crystalline optical studies. *Opt. Commun.*, 1989, **72**(3, 4): 139~ 143
- [3] Boyd G D, Kleinman D A. Parametric interaction of focused Gaussian light beams. *J. Appl. Phys.*, 1968, **39**(7): 3597~ 3639
- [4] Zondy J J. Comparative theory of walk-off limited type II versus type I second-harmonic generation with Gaussian beam. *Opt. Commun.*, 1991, **81**(6): 427~ 440
- [5] Boulanger B, Fève J P, Marier G *et al.*. Absolute measurement of quadratic nonlinearities from phase-matched second-harmonic generation in a single KTP crystal cut as a sphere. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1997, **14**(6): 1380~ 1386
- [6] Casperson L W. Synthesis of Gaussian beam optical systems. *Appl. Opt.*, 1981, **20**(13): 2243~ 2249

## Non-Phase-Matched Second-Harmonic Generation and Optimum Focusing Condition in Crystal Sphere

Yan Jiang<sup>1)</sup> Yang Xuelin<sup>1)</sup> Li Haowen<sup>1)</sup> Xie Shengwu<sup>1)</sup> Ding Liang'en<sup>2)</sup>

[1), Department of Applied Physics, Shanghai Jiaotong University, Shanghai 200030]

[2), Laboratory for Quantum Optics, East China Normal University, Shanghai 200062]

(Received 29 June 1999; revised 22 September 1999)

**Abstract** The sphere method is a newly-developed technique for measurement of nonlinear optical coefficients in crystals. Based on the theory of aperture function of the focused Gaussian beam SHG, the non-phase-matched (NPM) SHG process in a crystal sphere is analyzed, and the optimum focus condition of type I NPM SHG is discussed. The experiment of NPM SHG in a LiNbO<sub>3</sub> crystal sphere pumped with a pico-second laser pulse is reported. The experimental results agree well with the theoretical prediction.

**key words** crystal sphere, Gaussian beam, non-phase-matching, second-harmonic generation.