

准周期铁电晶体中不同阶次的准相位匹配谐波

马博琴¹ 马冬莉² 李志远² 张道中²

(¹ 中国传媒大学理学院, 北京 100024; ² 中国科学院物理研究所, 北京 100080)

摘要 采用外加高压电场极化的方法,制备了二维八重准周期结构的铌酸锂非线性光子晶体。沿该晶体倒空间的基矢方向上实现了两种波长的有效共线倍频输出,在偏离该方向 22.5° 的方向上,获得了另外三种波长的倍频输出。同时,在入射光束对称两侧观察到了不同种波长的非共线倍频光斑。利用二维八重准周期铁电晶体,在约 480 nm 的入射波长范围内实现了近 20 种波长的共线及非共线准相位匹配倍频过程,两邻近的基频波长间隔最小可达 3 nm。当晶体旋转 45° 的整数倍时,可以得到相同的结果。

关键词 非线性光学;非线性光子晶体;准周期极化铌酸锂;准相位匹配谐波

中图分类号 O437 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS20092912.3473

Different-Order Quasi-Phase Matching Harmonics in Quasiperiodic Ferroelectric Crystals

Ma Boqin¹ Ma Dongli² Li Zhiyuan² Zhang Daozhong²

(¹ College of Science, Communication University of China, Beijing 100024, China)
(² Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China)

Abstract The LiNbO₃ nonlinear photonic crystal with two-dimensional octagonal quasilattice was fabricated by applying external electric field. Along the direction of the basic reciprocal vectors, the effective collinear quasi-phase matching (QPM) second-harmonics (SH) of two wavelengths were realized, and along the direction diverging 22.5° from the former direction, so were three other wavelengths. Simultaneously, the non-collinear QPM SH at two symmetric angles with respect to the input wavelength were observed. The collinear and non-collinear QPM harmonics of about twenty wavelengths were obtained in the range of 480 nm, in which the minimum interval of two adjacent fundamental wavelengths was only 3 nm. The same results could also be obtained by rotating the crystal by 45° .

Key words nonlinear optics; nonlinear photonic crystal; quasi-periodically poled lithium niobate; quasi-phase-matching harmonics

1 引 言

根据准相位匹配(QPM)的概念可知,通过经典波矢和超晶格倒矢量之间的相互作用,可在非线性晶体(如铌酸锂、钽酸锂、磷酸氧钛钾等)中实现激光频率转换,以此来扩展激光波长的范围^[1]。最初,准相位匹配的概念只是局限在一维周期结构中^[2~5]。该结构能提供一套倒矢量,其中每一个矢量都可以用基本倒矢量(简称基矢)的整数倍表示出来,也就是说只有一个倒矢量是独立的。这样,准相位匹配频率转换的波长就不能任意选取。与周期结构相

比,准周期结构具有更加丰富的倒矢量,因为它可以提供具有不同比例关系的两个或更多的无公度周期。人们对于不同结构中的 QPM 倍频及三倍频过程进行了大量的研究,尤其是著名的斐波那契序列准周期光学超晶格结构^[6,7]。然而在一维结构中有效的非共线准相位匹配非线性相互作用是很难实现的。在二维结构中,却远远不同。过去的几年中,彭隆瀚及我们的研究小组^[8,9]对二维周期结构中高阶非共线准相位匹配倍频过程进行了系统的研究。对于二维准周期超晶格非线性光子晶体的研究,是近

收稿日期: 2008-12-19; 收到修改稿日期: 2009-03-13

基金项目: 中国传媒大学理科规划项目(NG0805),中国传媒大学“382 人才工程”资助课题。

作者简介: 马博琴(1976—),女,博士,讲师,主要从事非线性光子晶体方面的研究。E-mail: maboqin@cuc.edu.cn

几年来的热点。Lifshitz 等^[10]设计出了原则上可以对任意波长的光进行准相位匹配频率转换的二维准周期非线性光子晶体。南安普顿大学、德国的研究小组等^[11,12]对二维准周期结构中的准相位匹配倍频过程进行了实验研究。基于二维准周期结构中丰富的倒矢量的存在,本文将八重准周期超晶格结构的概念引入铌酸锂铁电晶体中,对该晶体中的 QPM 谐频过程进行了研究。

2 实 验

2.1 样品制备

采用外加高压脉冲电场极化的方法,制备了二维八重准周期铌酸锂非线性光子晶体。类似于周期结构非线性光子晶体的制备,准周期结构超晶格也是在室温下通过极化 z 向切割的铁电晶体来制备的。极化所得铌酸锂晶体的大小为 $8.5 \text{ mm} \times 8.5 \text{ mm} \times 0.4 \text{ mm}$ 。图 1 给出了样品 $-z$ 面的形貌图,可以看出整个样品范围内反转畴都非常均匀,清晰地体现了八重准周期的几何结构。二维八重准周期结构的元胞为正方形和 45° 菱形,它们的边长均为 $a = 11.77 \mu\text{m}$ 。极化反转圆柱位于正方形和菱形的顶点,直径约为 $4.7 \mu\text{m}$ 。图 1 中的插图为 He-Ne 激光器沿 z 轴入射进铌酸锂晶体样品后,所获得的衍射图样。在衍射图中,可以观察到衍射斑点也具有清晰的八重对称性。

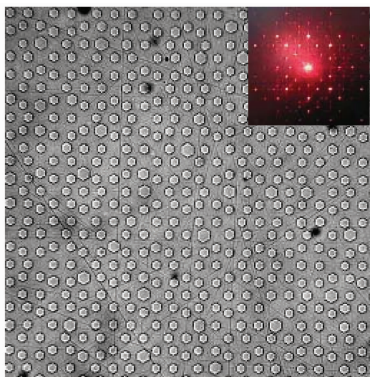


图 1 二维八重准周期极化铌酸锂晶体 $-z$ 表面的形貌图

Fig. 1 $-z$ face micrographs of poled LiNbO_3 crystal with two-dimensional octagonal quasiperiodic superlattice

根据准相位匹配的理论,在八重准周期光学超晶格中倍频过程所要满足的条件为

$$\Delta \mathbf{k} = \mathbf{K}_{2\omega} - 2\mathbf{K}_\omega - \mathbf{G}_{m,n,p,q} = 0,$$

式中 $\Delta \mathbf{k}$ 为波矢失配量, $\mathbf{K}_{2\omega}$, \mathbf{K}_ω 分别为倍频及基频波矢, $\mathbf{G}_{m,n,p,q}$ 为准相位匹配频率转换过程中所采用的倒矢量,是由 4 个基矢组合而成的。在二维八重准周期结构中, $\mathbf{G}_{m,n,p,q}$ 需要 4 个整数 m, n, p, q , 这一点

区别于二维周期结构中仅需要 2 个整数即可的倒矢量 $\mathbf{G}_{m,n}$ 。对于三倍频而言,激光波长的准相位匹配过程是个级联过程。它不仅要满足上述倍频条件,还要同时满足

$$\Delta \mathbf{k} = \mathbf{K}_{3\omega} - \mathbf{K}_{2\omega} - \mathbf{K}_\omega - \mathbf{G}_{m',n',p',q'} = 0,$$

式中 $\mathbf{K}_{3\omega}$ 是三倍频波矢。

图 2 示出二维八重准周期超晶格的倒矢量分布图,整个倒空间可由 4 个基矢 \mathbf{F}_i ($i=1,2,3,4$) 进行线性组合来构成,其中

$$\mathbf{F}_1 = (1,0) = (1000),$$

$$\mathbf{F}_2 = [\cos(\pi/4), \sin(\pi/4)] = (0100),$$

$$\mathbf{F}_3 = [\cos(2\pi/4), \sin(2\pi/4)] = (0010),$$

$$\mathbf{F}_4 = [\cos(3\pi/4), \sin(3\pi/4)] = (0001), \quad (1)$$

式中基矢是在传统的二维笛卡儿坐标系及四维矢量表示下完成的。4 个基矢 \mathbf{F}_i 的大小相等,与元胞边长 a 有直接的定量关系^[13]。

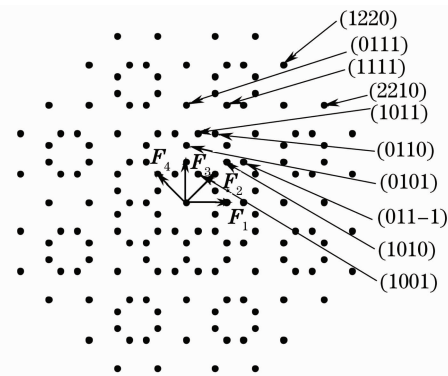


图 2 二维八重准周期结构倒空间中倒矢量的分布图

Fig. 2 Distribution of the reciprocal vectors in the reciprocal space of two-dimensional eightfold quasiperiodic structure

2.2 准相位匹配实验研究

对二维八重准周期铌酸锂非线性光子晶体进行 QPM 谐频研究。实验中所采用的入射光束是由 Nd:YAG 激光器抽运的纳秒光参变振荡器提供的。激光的重复频率和脉宽分别为 10 Hz 和 4 ns。通过透镜进行弱聚焦,入射基频光束在晶体中形成直径约 $180 \mu\text{m}$ 的光斑。基频光束沿 \mathbf{F}_3 方向入射,实现了波长 $\lambda_{i1} = 1.195 \mu\text{m}$ 和 $\lambda_{i2} = 1.066 \mu\text{m}$ 的有效共线准相位匹配倍频输出。实验中入射光束和出射光束垂直于晶体相互平行的前后表面。匹配过程中所采用的倒矢量分别为 (0010) 和 (0101),后者与前者的长度比为 $\sqrt{2}$ 。入射光的平均功率为 1.3 mW 时,两者的转换效率分别为 38% 和 23%。在相同的入射基频功率下,倍频光 597.5 nm (红) 的输出强度总高于 533 nm (绿) 的输出,这主要是由前者形成的

过程中所采用的倒矢量阶数较低引起的。实验中没有观察到饱和现象,即可通过提高入射功率使倍频转换效率得以继续提高。类似地,还可以利用更长的倒矢量,例如(0111)等获得更多种激光波长的倍频输出。

同时,在偏离(0010)方向 22.5° ,即(1001)方向上,实现了 $\lambda_{i3} = 1.314 \mu\text{m}$, $\lambda_{i4} = 1.17 \mu\text{m}$ 和 $\lambda_{i5} = 0.98 \mu\text{m}$ 的共线准相位匹配倍频输出。当入射平均功率分别为 1.12, 1.22 和 1.32 mW 时,倍频光 657, 585 和 490 nm 的转换效率可达 17%, 4.4% 和 5%。沿(1001)方向进行的 3 种共线准相位匹配谐波过程中所用到的倒矢量如表 1 所示。

表 1 准相位匹配谐波中的倍频输出
波长及所采用的倒矢量分布

Table 1 Second-harmonic output wavelengths and the adopted reciprocal vectors in the quasi-phase matching harmonic processes

Type of QPM	Input direction of laser	Reciprocal vectors $/(m, n, p, q)$	Wavelength of SHG /nm
Collinear QPM processes	(0010)	(0010)	597.5
		(0101)	533
		(1001)	657
		(-111-1)	585
		(0110)	490
		(0100)	681.5
		(0001)	681.5
		(1010)	595
		(-1010)	595
		(011-1)	593.5
Non-collinear QPM processes	(0010)	(0-111)	583
		(1011)	507.5
		(-1110)	507.5
		(0110)	502.5
		(0011)	502.5
		(1110)	499
		(-1011)	499
		(1111)	457
		(-1111)	457
		(2210)	441
(-2012)	441		

由于在二维八重准周期光学超晶格中存在着丰富的倒矢量,还对入射激光束与倒矢量非共线相互作用的情况进行了研究。为了更清晰地观察非共线准相位匹配谐波过程的作用效果,采用约 9 ps 脉宽的激光作为入射光源,入射光束沿基矢(0010)方向入射。

在室温下调节入射波长,可得到从 $0.882 \sim 1.363 \mu\text{m}$ 范围内一系列的非共线准相位匹配谐波输出,倍频光点对称地分布在入射光束两侧。

入射波长为 $1.363 \mu\text{m}$ 时,在(0010)方向的对称角度上出现了一对红光斑,参与该过程的倒矢量为对称分布在(0010)两侧的基矢,即(0100)和(0001)。该非线性相互作用过程中,入射激光的平均功率约为 1.5 mW 时,准相位匹配倍频红光的产生效率约为 5%。入射波长逐渐减小时,位于入射光束对称两侧的倍频光点彼此分离,随着波长的继续调节两个分离的光点又趋近中心,再次重合。当波长从 $1.363 \mu\text{m}$ 调至 $0.882 \mu\text{m}$ 时,上述变化过程重复出现。直到入射波长小于 $0.906 \mu\text{m}$ 时,输出光点变得微弱且模糊,这主要是由高阶准相位匹配过程引起的。其中,中心光斑是由共线非线性相互作用产生的。然而,仅仅靠共线谐波过程,不可能在这个波长范围内实现约 20 种波长的频率转换。这些表明,在此类过程中采用横向倒矢量的非共线过程发挥了至关重要的作用。图 3 给出了不同波长下倍频输出光斑的位置分布,及同一入射波长下多个倍频光斑的相对强度分布。图 3(a)中的倍频光斑非常弱,这是由相位失配量非常大造成的。图 3(b)对应于前面所述 $1.195 \mu\text{m}$ 的共线准相位匹配倍频的结果,中间的倍频光斑清晰可见,此时相位失配量 $\Delta\mathbf{k} = 0$ 。图 3(d), (e) 和 (h) 中的最外围光点对应于基频波长 $1.190, 1.187$ 及 $1.166 \mu\text{m}$ 的完全非共线准相位匹配倍频输出,即相位失配量为 0。准相位匹配过程中用到的成对倒矢量分别为(1010)和(-1010), (011-1)和(0-111), (111-1)和(-1-111),部分如图 2 所示。这些现象表明,在某些入射基频波长的准相位匹配过程中,高阶横向倒矢量成为主导。实验可测,运用较低阶倒矢量(1010)和(-1010)所产生的倍频输出是较高阶倒矢量(011-1)和(0-111)的 1.4 倍。基本来说,低阶准相位匹配的转换效率较高,即使高阶准相位匹配条件完全满足,相对应的转换效率也有可能低于相位失配条件下的低阶匹配过程。这一点有助于在同一个入射波长下实现不同准相位匹配倍频近乎等强度的输出,如图 3(c)和图 3(e)所示。在波长由 $1.363 \mu\text{m}$ 调至 $0.882 \mu\text{m}$ 的范围内,共出现了 4 次倍频光斑向(0010)方向聚拢与离开的现象,这是由二维八重准周期倒矢量的分布和准相位匹配倍频条件相结合而成的结果。其它波段范围内准相位匹配过程中所对应的倒矢量及生成的倍频光波长可参考图 2 和表 1。此外,在偏离入射方向 $\pm 5.6^\circ$ 角度的位置上,清楚地观

测到了 $1.195 \mu\text{m}$ 的非共线准相位匹配三倍频输出。此时,准相位匹配条件在三倍频的第一步中需采用倒矢量(0010),而第二步中需要成对倒矢量(1220)和(-1022)。

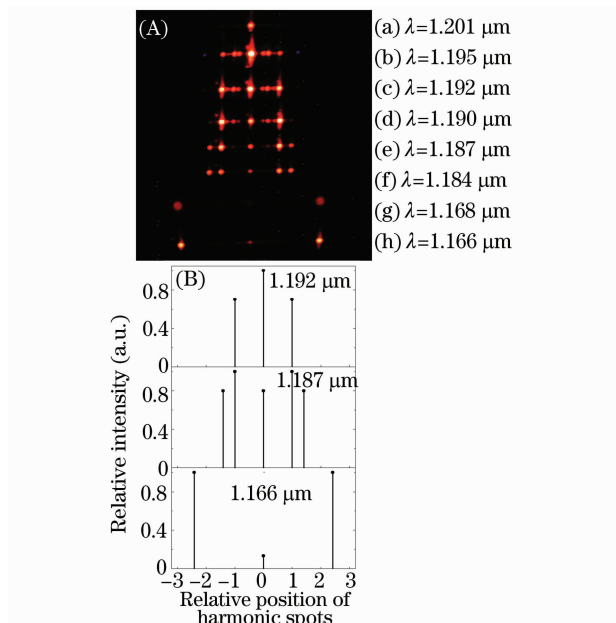


图3 不同基频波长下准相位匹配倍频光斑的分布(A)和同一入射波长下不同倍频输出的相对强度分布(B)

Fig. 3 the second-harmonic light spots under the different fundamental wavelengths (A) the relative intensity of different output second-harmonics under same input wavelengths was given (B)

对于二维八重准周期超晶格而言,其独特性在于,对于八重对称轴而言它具有等效性。当晶体绕 z 轴旋转 $\pi/4$ 的整数倍时,上述准相位匹配非线性过程同样可以得到,这与二维八重准周期超晶格的八重旋转对称性相吻合。

3 结 论

在二维八重准周期超晶格铌酸锂非线性光子晶体中,约 480 nm 的入射波长范围内实现了约 20 种波长的共线及非共线倍频输出。其中,两邻近的倍频输出之间最小的波长间隔仅有 1.5 nm 。从某种意义上来说,采用准周期光学超晶格晶体,实现了准连续可调倍频输出。值得注意的是,如果采用具有更高对称性的准周期结构,也就是说倒矢量彼此间若

更接近,两邻近倍频输出的基频波长间隔有望小于 2 nm 。利用该晶体,实现了红绿蓝三基色以及与红绿黄交通灯颜色相近的非共线倍频光点输出。这些将有助于激光连续频率转换及紧凑型光电子元件的发展。

参 考 文 献

- 1 J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing *et al.*. Interactions between light waves in a nonlinear dielectric [J]. *Phys. Rev. A*, 1962, **127**(6): 1918~1939
- 2 M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt *et al.*. Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances [J]. *IEEE J. Quant. Electron.*, 1992, **28**(11): 2631~2654
- 3 G. D. Miller, R. G. Batchko, W. M. Tulloch *et al.*. 42%-efficient single-pass cw second-harmonic generation in periodically poled lithium niobate [J]. *Opt. Lett.*, 1997, **22**(24): 1834~1836
- 4 Peng Yuefeng, Lu Yanhua, Xie Gang *et al.*. Investigation of quasi-phase-matched optical parametric oscillator based on PPMgLN [J]. *Chinese J. Lasers*, 2008, **35**(5): 670~674
- 5 彭跃峰, 鲁燕华, 谢刚等. 准相位匹配 PPMgLN 光参量振荡技术 [J]. *中国激光*, 2008, **35**(5): 670~674
- 6 Fu Weijia, Yu Jian, Kang Yuzhuo *et al.*. 13 mW-continuous-wave green light output by quasi-phase-matched frequency doubling in periodically poled KTP [J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, **27**(6): 1063~1066
- 7 付伟佳, 于建, 康玉琢等. 准相位匹配 PPKTP 晶体连续倍频 13 mW 绿光输出 [J]. *光学学报*, 2007, **27**(6): 1063~1066
- 8 S. N. Zhu, Y. Y. Zhu, Y. Q. Qin *et al.*. Experimental realization of second harmonic generation in a fibonacci optical superlattice of LiTaO_3 [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1997, **78**(14): 2752~2755
- 9 S. N. Zhu, Y. Y. Zhu, N. B. Ming. Quasi-phase-matched third-harmonic generation in a quasi-periodic optical superlattice [J]. *Science*, 1997, **278**(5339): 843~846
- 10 L. H. Peng, C. C. Hsu, Y. C. Shih. Second-harmonic green generation from two-dimensional χ^2 nonlinear photonic crystal with orthorhombic lattice structure [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2003, **83**(17): 3447~3449
- 11 B. Q. Ma, T. Wang, P. G. Ni *et al.*. High-order quasi-phase-matching harmonic generation in two-dimensional orthorhombic lattice [J]. *Europhys. Lett.*, 2004, **68**: 804~810
- 12 R. Lifshitz, A. Arie, A. Bahabad. Photonic quasicrystals for nonlinear optical frequency conversion [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2005, **95**: 133901~133904
- 13 Bratfalean, T. Radu, Peacock *et al.*. Ruth harmonic generation in a two-dimensional nonlinear quasi-crystal [J]. *Opt. Lett.*, 2005, **30**(4): 424~426
- 14 Y. Sheng, K. Koynov, J. H. Dou *et al.*. Collinear second harmonic generations in a nonlinear photonic quasicrystal [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2008, **92**: 201113~201115
- 15 M. A. Kaliteevski, S. Brand, R. A. Abram *et al.*. Diffraction and transmission of light in low-refractive index penrose-tiled photonic quasicrystals [J]. *J. Phys. Condens. Matter*, 2001, **13**: 10459~10470