高斯光束在偏硼酸钡单晶和孪晶中的倍频现象

庞宛文 王 燕 刘志坤 刘 琦 白丽华 张惠芳
 (上海大学物理系,上海 200444)

摘要 理论探讨了高斯光束在非线性单轴晶体中的倍频效应。基于麦克斯韦方程组并考虑晶体的各向异性推导 出负单轴 I型晶体相位匹配下的倍频耦合波方程组。建立了具体的关于偏硼酸钡(BBO)单晶以及孪晶的物理模型 并做数值求解。对求解所得到的单晶以及孪晶的谐波能流分布、晶体出射面探测点处谐波电场时域分布、总输出 能量、输出光束频谱和输入光束角谱分别进行分析讨论,从束腰宽度、晶体结构以及材料性质对倍频的影响等方面 做出具体合理的解释。研究结果对于单轴晶体的非线性光学性质的研究以及相应的光学晶体器件的研发等具有 一定的参考价值。

关键词 非线性光学;晶体各向异性;倍频;孪晶;高斯光束 中图分类号 O734⁺.1 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS201232.1114002

Second Harmonic Generation of Gaussian Beam in Single and Twin Crystal of Barium Metaborate Medium

Pang Wanwen Wang Yan Liu Zhikun Liu Qi Bai Lihua Zhang Huifang (Department of Physics, Shanghai University, Shanghai 200444, China)

Abstract The coupled wave equations for frequency doubling of Gaussian beam propagating in birefringent uniaxial anisotropic medium are given. Based on them, specific physical models of single and twin crystal of barium metaborate (BBO) material have been established, and numerically computed results show the distribution of harmonic power flow, the electric field temporal distribution of harmonic at probe point on exit surface of the crystal, the output total energy, the output spectra of light and also the input angular spectra of beam. We make detailed analysis of various influences mainly from beam waist, medium structure and properties of material on second harmonic generation and give some reasonable explanations. The research results will benifit the study on nonlinear optical properties of uniaxial medium and optical crystal devices.

Key words nonlinear optics; crystal anisotropy; frequency doubling; twin crystal; Gaussian beam OCIS codes 190.4400; 160.4330; 070.4790; 260.1180

1 引 言

非线性光学领域自上世纪 60 年代开创至今,其 基本原理、新材料研发以及应用方面有了长足发展, 光学二次谐波是其中应用最广泛的技术之一。虽然 新的非线性光学材料层出不穷,但使用最广泛的仍 然是几种最基本的非线性光学晶体,如 KDP、BBO、 LBO 以及 KTP 等。人们很早就对孪晶结构有所认 识,由于晶体的双折射和色散问题比较复杂,对孪晶 界面的光学效应研究得非常少,基本上没有对其应 用进行开发。这主要因为天然的孪晶比较少,而且 质量不高,限制了对孪晶的研究和开发。2003年美 国 National Energy Laboratory 的 Zhang 等^[1]采用 "光胶"的方法制备出矾酸钇孪晶,首次在实验中发 现孪晶界面存在等效负折射和全透射现象,紧接着 复旦大学 Liu 等^[2]从理论上对其做了进一步论证。 寻常光通过孪晶界面时,其传播特性不发生任何改

收稿日期: 2012-05-18; 收到修改稿日期: 2012-06-15

基金项目:国家自然科学基金(11175045,60908006)资助课题。

作者简介: 庞宛文(1987—),女,硕士研究生,主要从事晶体光学方面的研究。E-mail: pwanw@yahoo.com.cn

导师简介:王 燕(1973—),女,博士,副教授,主要从事晶体光学方面的研究。E-mail: yanwang@staff.shu.edu.cn (通信联系人)

变,与在单晶中的传播没有任何差别;在一定入射角 范围内,孪晶界面对非常光的折、反射有不同干常规 光学材料的特性,即等效负折射和全透射[1~4]。对 于孪晶界面非线性光学性质的研究尚未见理论和实 验方面的报道。我们认为精心设计非线性光学晶体 的孪晶结构,利用非常光在孪晶界面上的负折射以 及全透射效应,能够较大程度地增加非常光和寻常 光在空间的交叠范围,部分消除离散效应对倍频过 程的影响,从而提高谐波的峰值功率及倍频效率。 本文从晶体各向异性的前提出发对高斯光束在单轴 晶体中的二次谐波效应做理论上的推导,得出非线 性耦合波方程组。考虑偏硼酸钡(BBO)材料,其倍 频系数比较大目走离明显,所以倍频效果也更好。 由于方程组较为复杂难以求得解析解,本文利用程 序对单晶和孪晶分别做数值模拟,并以单晶的倍频 结果为参照,将不同晶体结构以及不同入射光束束 腰下得出的谐波能流及时域电场分布、输出光束傅 里叶变换频谱、入射光束角谱逐一进行类比分析。 计算结果表明:在同等条件下的非线性材料中,孪晶 在二次谐波能流以及场强的峰值功率、倍频转换效 率、频谱分布方面比单晶有显著优势。研究所得到 的结论对于单轴晶体的非线性光学性质的研究以及 相应的光学晶体器件的研发等提供了一定的理论 参考。

2 理论模型

图 1 分别展示了单晶和孪晶中的倍频过程:当 一束基波入射到双折射晶体表面时,基波与谐波将 发生走离,图 1 中的 o 和 e 分别代表寻常光与非常 光,可以很明显看到单晶的偏折角要比孪晶大一点, 这是因为孪晶界面的负折射可以使倍频光往出射面 上会聚,增大 o 光和 e 光的重叠面积,从而抑制了走 离,使倍频转换效率得到提高^[5]。



图 1 高斯光束在单晶和孪晶中的倍频示意图 Fig. 1 Structure of frequency doubling in single and twin crystals

考虑晶体各向异性与负单轴 I 型(oo→e)相位 匹配^[6](相干波长 1064 nm⇒532 nm),许多参考文 献中的理论都是以各向同性介质为前提,但工程技 术中是利用晶体的各向异性▽•E≠0 来实现相位匹 配。基于 Maxwell 方程组推导出耦合波动方程

$$\nabla (\nabla \cdot \boldsymbol{E}) - \nabla^2 \boldsymbol{E} + \mu_0 \boldsymbol{\varepsilon}_0 \; \frac{\partial^2 \boldsymbol{E}}{\partial t^2} = -\mu_0 \; \frac{\partial^2 \boldsymbol{P}}{\partial t^2}, \; (1)$$

式中

$$\boldsymbol{P} = \boldsymbol{\varepsilon}_0 \left(\boldsymbol{\chi}^{(1)} \boldsymbol{E} + \boldsymbol{\chi}^{(2)} : \boldsymbol{E} \boldsymbol{E} \right).$$
 (2)

根据孪晶左右对称性,设左边晶体对应下标 1, 右边对应 2。以左晶为例,如图 2(a)所示,光束在 晶体内与光轴(z 轴)成 θ 角传播,波矢 k 与z 轴构成 的平面关于 x 轴成 φ = 45°角,e光的波矢方向与能 流方向发生走离,主要体现在 $D_{ex}E_{ex}$ 之间的离散角 α ,由此可以得到以下各参量表达式:相对介电常数

$$\boldsymbol{\varepsilon}_{\rm rl} = \begin{pmatrix} n_{\rm o}^2 & 0 & 0 \\ 0 & n_{\rm o}^2 & 0 \\ 0 & 0 & n_{\rm e}^2 \end{pmatrix}, \qquad (3)$$



- 图 2 (a)负单轴晶体中 o 光和 e 光在主轴坐标系下的示 意图,z 轴代表光轴方向,k 代表 I 型相位匹配方向; (b)按照 I 型相位匹配定向切割晶体后,所建立的新 坐标系下 o 光和 e 光的示意图
- Fig. 2 (a) Schematic of o-ray and e-ray in the principal axis system of uniaxial crystal, z axis is optical axis and k represents type-I phase matching direction; (b) o-ray and e-ray in the established axis system after the crystal is cut orientedly under type-I phase matching

基波场强

$$\boldsymbol{E}_{\text{ol}} = |\boldsymbol{E}_{\text{ol}}| \cdot \begin{pmatrix} \sin \phi \\ -\cos \phi \\ 0 \end{pmatrix}, \qquad (4)$$

谐波场强

$$\boldsymbol{E}_{\text{el}} = |\boldsymbol{E}_{\text{el}}| \cdot \begin{pmatrix} -\cos\phi\cos(\theta+\alpha) \\ -\sin\phi\cos(\theta+\alpha) \\ \sin(\theta+\alpha) \end{pmatrix}.$$
(5)

图 2(a)是主轴坐标系,依照相位匹配定向切割晶体后建立新坐标系,如图 2(b)所示,波矢 k 沿 x 轴方向,根据以下步骤进行坐标变换:首先 xoy 平面绕 z轴逆时针旋转 45°;接着 yoz 平面绕 x 轴逆时针旋转 90°;最后 xoy 平面绕 z 轴逆时针旋转 90°- $\theta^{[7]}$ 。那么 相对应的新坐标下各参量可分别表示为:相对介电常 数

$$\boldsymbol{\varepsilon}_{\rm rl} = \begin{pmatrix} \sin^2 \theta n_{\rm o}^2 + \cos^2 \theta n_{\rm e}^2 & \sin \theta \cos \theta (n_{\rm e}^2 - n_{\rm o}^2) & 0\\ \sin \theta \cos \theta (n_{\rm e}^2 - n_{\rm o}^2) & \sin^2 \theta n_{\rm e}^2 + \cos^2 \theta n_{\rm o}^2 & 0\\ 0 & 0 & n_{\rm o}^2 \end{pmatrix},$$
(6)

基频 o 光场强

$$\boldsymbol{E}_{\text{ol}} = |\boldsymbol{E}_{\text{ol}}| \cdot \begin{bmatrix} 0\\0\\1 \end{bmatrix}, \qquad (7)$$

 (α)

基频o光极化强度

$$\boldsymbol{P}_{\text{ol}} = 4\boldsymbol{\varepsilon}_{0} \cdot \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ -\frac{\sin(\theta + \alpha)d_{11}E_{\text{ol}z}E_{\text{el}y}}{\cos \alpha} \end{pmatrix}, \quad (8)$$

倍频 e 光场强

$$\boldsymbol{E}_{e1} = |\boldsymbol{E}_{e1}| \cdot \begin{pmatrix} \sin \alpha \\ \cos \alpha \\ 0 \end{pmatrix}, \qquad (9)$$

倍频 e 光极化强度

$$\boldsymbol{P}_{e1} = 2\boldsymbol{\varepsilon}_0 \cdot \begin{pmatrix} -\cos\theta d_{11}E_{o1z}^2 \\ -\sin\theta d_{11}E_{o1z}^2 \\ 0 \end{pmatrix}.$$
(10)

将(7)~(10)式代入(1)式,可得到如下四个标量耦 合波方程:

$$\frac{\partial^2 E_{\text{ol}}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 E_{\text{ol}}}{\partial y^2} - \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial^2 E_{\text{ol}}}{\partial t^2} + 4\mu_0 \varepsilon_0 \sin(\theta + \alpha) d_{11} \left(\frac{\partial^2 E_{\text{ol}}}{\partial t^2} E_{\text{el}} + \frac{\partial^2 E_{\text{el}}}{\partial t^2} E_{\text{ol}} + 2 \frac{\partial E_{\text{ol}}}{\partial t} \frac{\partial E_{\text{el}}}{\partial t} \right) = 0, \quad (11)$$

$$\cos \alpha \Big(\frac{\partial^2 E_{\rm el}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 E_{\rm el}}{\partial z^2}\Big) - \sin \alpha \frac{\partial^2 E_{\rm el}}{\partial y \partial x} - \mu_0 \varepsilon_0 \cos \alpha \frac{\partial^2 E_{\rm el}}{\partial t^2} + 4\mu_0 \varepsilon_0 \sin \theta d_{11} \Big[\frac{\partial^2 E_{\rm ol}}{\partial t^2} + \Big(\frac{\partial E_{\rm ol}}{\partial t}\Big)^2\Big] = 0, \quad (12)$$

$$\sin \alpha \left(\frac{\partial^2 E_{el}}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 E_{el}}{\partial z^2}\right) - \cos \alpha \frac{\partial^2 E_{el}}{\partial x \partial y} - \mu_0 \varepsilon_0 \sin \alpha \frac{\partial^2 E_{el}}{\partial t^2} + 4\mu_0 \varepsilon_0 \cos \theta d_{11} \left[\frac{\partial^2 E_{ol}}{\partial t^2} + \left(\frac{\partial E_{ol}}{\partial t}\right)^2\right] = 0, \quad (13)$$

$$\frac{\partial E_{\rm ol}}{\partial z} = \frac{\partial E_{\rm el}}{\partial z} = 0. \tag{14}$$

(11)~(14)式即为晶体各向异性条件下严格的耦合波方程组。孪晶的左右晶体呈镜面对称的相位关系,所 以对右晶的各分量可采用同样的方法求解^[8,9],对单晶进行程序计算时将其作为左晶处理。

设 o 光和 e 光的波长分别为 λ_0 = 1064 nm 以及 λ_e = 532 nm, 晶体为一般长方体, 长度为 20 μ m, 入射飞 秒高斯光束表达式为

$$E = \frac{E_0}{\sqrt{1 + (\lambda_0 x / \pi w_{1,2}^2)^2}} \cos\left\{\frac{2\pi ct}{\lambda_0} - \frac{2\pi x}{\lambda_0} + \arctan\left(\frac{\lambda_0 x}{\pi w_{1,2}^2}\right) - \frac{\pi y^2 / \lambda_0}{x \left[1 + (\pi w_{1,2}^2 / \lambda_0)^2\right]}\right\} \times \exp\left\{\frac{-y^2}{w_{1,2}^2 \left[1 + (\lambda_0 x / \pi w_{1,2}^2)^2\right]}\right\} \exp\left[\frac{-(t - t_0)^2}{\tau_0^2}\right],$$
(15)

式中 E_0 =3×10⁴ V/m,t=25 fs, τ_0 =10 fs,束腰表 达式为^[10]

$$w = w_{1,2} \sqrt{1 + (\lambda_0 x / \pi w_{1,2}^2)^2}.$$
 (16)

分别选取 $w_1 = 4 \mu m$, $w_2 = 10 \mu m$ 进行讨论。 对于 BBO 介质, 倍频系数

$$d = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{11} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{11} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{11} \end{bmatrix} (d_{11} = 2.204),$$
$$H \dot{\Box} \Box \Box \Box \dot{\Box} \theta = 22.8^{\circ}, \& \bar{a} \bar{bla} \alpha = 3.2^{\circ [11]}.$$

3 计算结果与讨论

图 3~5 展示了特定时间下入射高斯光束束腰分 别为 $w_1 = 4 \ \mu m$ 及 $w_2 = 10 \ \mu m$ 时,BBO 单晶和孪晶中 倍频光的能流分布情况。由于 BBO 晶体走离角较大 ($\alpha = 3.2^\circ$),其光束偏折可较明显看到,且因为孪晶界面 上的负折射及全透射效应,基波与二次谐波间的离散 效应得到改善, $w_1 = 4 \ \mu m$ 时,明显看出倍频光在孪晶 中的偏折要小于单晶;相同束腰半径对应的谐波能流 峰值也是孪晶更高:当 $w_1 = 4 \ \mu m$ 时,单晶和孪晶的能 流最大值分别对应 26.116 W/m²、141.98 W/m²,孪晶 约大了 5 倍;当 $w_2 = 10 \ \mu m$ 时,单晶和孪晶的能流 最大值分别对应 4.0122×10⁻⁷ W/m² 和 7.342× 10⁻⁷ W/m²,孪晶约大了 1 倍;束腰越小,光束聚焦 性越好且能量越高,却更容易分裂,从图 3 和图 5 可 以看到束腰 $w_1 = 4 \ \mu m$ 时光束分裂而 $w_2 = 10 \ \mu m$ 时 波束形状基本无太大的改变。束腰会在下文根据角 谱图具体说明。



图 3 束腰 w₁ = 4 μm 的高斯光束传播到单晶和孪晶中间位置时的能流分布图。(a) t=113.2 fs 时单晶倍频 e 光; (b) t=130 fs 时孪晶倍频 e 光

Fig. 3 Power flow in single and twin crystal with $w_1 = 4 \mu m$ when Gaussian beam propagates to the middle part. (a) E-ray in single medium when t=113.2 fs; (b) e-ray in twin medium when t=130 fs



图 4 图 3 中能流最强部分的局部示意图(箭头表示能流走向)。(a) 单晶倍频 e 光;

(b) 孪晶倍频 e 光。很明显孪晶改善了离散效应, 光束由偏离人射光路变为向其靠拢

Fig. 4 Part with strongest power about Fig. 3 (arrows indicate the direction of power flowing). (a) E-ray in single medium; (b) e-ray in twin medium. The effect of walk-off can be reduced in twin crystal and the beam approaches to the incident light path



图 5 束腰 w₂ = 10 μm 的高斯光束传播到单晶和孪晶中间位置时的能流示意图。(a) t=79.2 fs 时单晶倍频 e 光; (b) t=78.6 fs 时孪晶倍频 e 光

Fig. 5 Power flow in single and twin crystal with $w_2 = 10 \ \mu m$ when Gaussian beam propagates to the middle part. (a) E-ray in single medium when t=79.2 fs; (b) e-ray in twin medium when t=78.6 fs



图 6 束腰分别为(a) $w_1 = 4 \ \mu m \ 5(b) \ w_2 = 10 \ \mu m \ bt dt h m$

对两种束腰下 BBO 单晶和孪晶介质中的倍频 输出光分别做快速傅里叶变换(FFT),结果如图 6 所示, $w_2 = 10 \ \mu m$ 下的孪晶曲线保持着完美的高斯 线型,由图 7 也可看出其出射面探测点的输出电场 曲线平滑且结构对称,其形状与输入电场几乎一样, 为高斯线型,而单晶输出电场的峰值位置有所偏移 故而对应的 FFT 曲线在一些频谱位置有缺失。相 比之下, $w_1 = 4 \ \mu m$ 时光束聚焦引起的光束分裂导 致谐波失真。

从一列高斯光束进入晶体介质直至其相对面出 来另一列光束,计算这段时间内出射面的总输出能 量。前文提到的 $w_1 = 4 \ \mu m$ 时光束分裂在这里又一 次得到体现,但最高峰位置基本保持在出射面中心 处。同一束腰下孪晶的优势依然很明显,由图 8 可 以看出: $w_1 = 4 \ \mu m$ 时孪晶输出峰值功率约为单晶 的 3 倍多; $w_2 = 10 \ \mu m$ 时约为 20 多倍。对图 8 的四 条曲线分别积分可得: $w_1 = 4 \ \mu m$ 时单位长度下单 晶输出功率约为 9×10⁻²¹ W/m,孪晶约为 3.4× 10⁻²⁰ W/m; $w_2 = 10 \ \mu m$ 时单位长度下单晶输出功 率约为 5×10^{-27} W/m,孪晶约为 1.1×10^{-25} W/m, 显然同一束腰下孪晶的输出功率更高并且窄束腰对 应的能量值比宽束腰更大一些。但 $w_2 = 10 \ \mu m$ 下 输出能量曲线的形变无疑是最小的,基本是标准的 高斯线型。









图 8 束腰分别为(a) w₁=4 μm 与(b) w₂=10 μm 时,从时间零到从晶体输出一列波的时间内透过出射面的总能量 Fig. 8 Output total energy in single and twin crystal with (a) w₁=4 μm and (b) w₂=10 μm when Gaussian beams pass through the exit surface from time zero to time that the harmonic waves are outputted

已知入射光束的角谱表达式[12]

$$\psi(\beta) = (w_{1,2}/2\sqrt{\pi}) \times$$

exp[$-w_{1,2}^2(2\pi/\lambda_0)^2(\cos\beta-1)^2/4$],(17) 式中 β 为高斯光束中任意角谱成分与光束中心轴线 的夹角。由此得到图 9,显然束腰半径越大,相应角 谱越窄,光束发散角越小且准直性好。因为在高斯光 束中只有沿轴线传播的角谱成份(β = 0) 是严格相 位匹配的,其他成分(β ≠ 0) 都为准相位匹配并且 β 越大越难匹配^[13],所以 $w_2 = 10$ μm 时谐波的相位 匹配更优, $w_1 = 4$ μm 时会出现如图 8(a) 以及图 3

所示的光束分裂。

4 结 论

在晶体各向异性和负单轴 I 型相位匹配前提下 推导了一组关于基波和谐波的耦合波方程,据此建 立了具体的模型并进行数值模拟,继而根据计算结 果就两类结构(单晶与孪晶)以及大小两种束腰进行 了比较分析。BBO 介质的大走离角使得基频光与 倍频光更容易会聚在一起,增大 o 光和 e 光的重叠 面积,可以更好地提高倍频效率。同类条件下孪晶



图 9 束腰分别为 w₁=4 μm 与 w₂=10 μm 时, 人射高斯 光束的角谱分布图

Fig. 9 Angular spectra of incident Gaussian beam with

 $w_1 = 4 \ \mu m$ and $w_2 = 10 \ \mu m$

倍频效果明显好于单晶。束腰较窄时,虽然由于聚 焦性好使得光束能量比较高,但容易发生光束分裂, 而束腰较宽时,光束相位匹配比较好,输出谐波的峰 值位置基本不会偏移,而且在孪晶条件下谐波电场 的时域分布也保持着与入射波相似的高斯线型,相 位匹配情况更佳,但输出谐波的强度不如窄束腰,故 进行倍频时对束腰半径的选择需要综合考虑谱波强 度与时域分布。

参考文献

- 1 Yong Zhang, B. Fluegel, A. Mascarenhas. Total negative refraction in real crystals for ballistic electrons and light [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2003, **91**(15): 157404
- 2 Zheng Liu, Zhifang Lin, S. T. Chui. Negative refraction and omnidirectional total transmission at a planar interface associated with a uniaxial medium [J]. *Phys. Rev. B*, 2004, **69** (11): 115402

- 3 Yan Wang, Xuejun Zha, Jinkui Yan. Reflection and refraction of light at the interface of a uniaxial bicrystal [J]. Euro. Lett., 2005, 72(5): 830~836
- 4 B. Fluegel, A. Mascarenhas. Aberration-free imaging for light and electrons[J]. Appl. Phys. Lett., 2008, 93(16): 161105
- 5 G. D. Boyd, D. A. Kleinman. Parametric interaction of focused Gaussian light beams [J]. J. Appl. Phys., 1968, 39 (8): 3597~3539
- 6 Chen Yuping, Chen Xianfeng, Zeng Xianglong *et al.*. Blue light generation by type I quasi-phase-matching frequency doubling in periodically poled LiNbO₃[J]. Acta Optica Sinica, 2004, 24(6): 813~816

陈玉萍,陈险峰,曾祥龙等. [型准相位匹配周期性极化铌酸锂 倍频蓝光输出[J]. 光学学报,2004,24(6):813~816

- 7 J. F. Nye. Physical Properties of Crystals [M]. Oxford: Clarendon Press, 1984. 3~49
- 8 R. W. Boyd. Nonlinear Optics M]. London: Academic Press, 2008. 116~133
- 9 Dongmei Deng, Qi Guo. Propagation of Laguerre-Gaussian beams in nonlocal nonlinear media[J]. J. Opt. A, 2008, 10(3): 035101
- 10 J. C. Diels, W. Rudolph. Ultrashort Laser Pulse Phenomena [M]. London: Academic Press, 1996. 30~40
- 11 V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan, D. N. Nikogosyan. Handbook of Nonlinear Optical Crystals [M]. Berlin: Springer, 1999. 80~82
- 12 Jin'au Kong, Baelan Wu, Yan Zhang. Lateral displacement of a Gaussian beam reflected from a grounded slab with negative permittivity and permeability [J]. Appl. Phys. Lett., 2002, 80(12): 2084~2086
- 13 Zhou Xugui, Wang Yanling, Wu Hong et al.. High efficiency frequency-doubling of femtosecond laser pulses with simultaneously spatial walk-off and phase velocity compensation [J]. Acta Optica Sinica, 2009, 29(9): 2630~2634
 - 周绪桂,王燕玲,吴 洪等.空间走离和相速度补偿的高效飞秒 脉冲倍频[J].光学学报,2009,**29**(9):2630~2634

栏目编辑:李文喆