

doi:10.3788/gzxb20154405.0506001

基于超晶格结构衍射图的倒易矢量分布

马博琴, 史建华, 田少华

(中国传媒大学 理工学部, 北京 100024)

摘 要:根据超晶格结构的激光衍射图,提出了一种定量确定倒易矢量分布的实验方法.首先,将正方形周期超晶格结构作为参考光栅,得到其衍射图.根据傅里叶光学理论,计算出基本倒易矢量的大小,与衍射图上的几何长度建立标尺关系.通过引入矩形超晶格结构,证明了该方法在周期超晶格结构中的可行性.其次,将 H 型和谢尔宾斯基分形超晶格结构作为光栅,获得的衍射图与正方形结构衍射图进行对比.由衍射点间的几何长度比值,推算出分形衍射图中的倒易矢量分布.根据倒易矢量和准相位匹配谐波的基频波长之间的定量关系,理论计算出能够进行的谐波波长.最后,实验制备分形结构 LiNbO_3 非线性光子晶体,探测准相位匹配倍频,所实现的倍频波长与理论计算值相吻合.谢尔宾斯基分形结构光栅在理论与实验上均可实现 $1.352 \mu\text{m}$ 的有效倍频输出.

关键词:非线性光学;非线性光子晶体;准相位匹配谐波;衍射;超晶格结构

中图分类号:O437

文献标识码:A

文章编号:1004-4213(2015)05-0506001-5

Distribution of Reciprocal Vectors Based on Diffraction Patterns of Superlattice Structures

MA Bo-qin, SHI Jian-hua, TIAN Shao-hua

(College of Science, Faculty of Science and Engineering, Communication University of China, Beijing 100024, China)

Abstract: An experimental method was provided, in which the distribution of reciprocal vectors can be easily obtained by their diffraction patterns. First, the diffraction pattern of square periodic superlattice as a reference grating was gotten. The value of the reciprocal vector according to the Fourier optics was calculated, and the scale relation with the geometric length in the pattern was built. By introducing the rectangular superlattice structure, this method was proved to be right in the periodic superlattices. Secondly, the diffraction patterns of the H-shape and Sierpinski fractal superlattice structures were realized and made a comparison with the square structure. The reciprocal vectors in two structures could be calculated based on the obtained geometric length ratio. Then by quantitative relation between the reciprocal vectors and fundamental wavelengths in quasi-phase matching processes, the harmonic wavelengths were calculated. Finally, the LiNbO_3 nonlinear photonic crystals with fractal superlattice structures were fabricated experimentally. It can be gotten that the experimental quasi-phase matching harmonic wavelengths agree with the calculated ones. Especially, for Sierpinski fractal superlattice, by calculation, the effective second harmonic of $1.352 \mu\text{m}$ can be realized. And the corresponding results can be accomplished by experiments.

Key words: Nonlinear optics; Nonlinear photonic crystal; Quasi-phase matching harmonics; Diffraction; Superlattice structure

OCIS Codes: 190.2620;260.1960;160.3380

基金项目:国家自然科学基金(No. 11004175)、中国传媒大学工科规划项目(No. 3132014XNG1411)和“优秀中青年教师培养工程”(No. YXJS201306)资助

第一作者:马博琴(1976—),女,副教授,博士,主要研究方向为非线性光子晶体. Email: maboqin@cuc.edu.cn

收稿日期:2014-08-29; **录用日期:**2014-12-11

<http://www.photon.ac.cn>

0 引言

由非线性光学中二次谐频过程的耦合方程可知,入射基频激光与输出倍频光不仅要满足能量守恒,还应该满足动量守恒.对于普通光学介质而言,因色散效应的存在,折射率随着频率而变化,使得倍频波矢大于基频波矢的两倍,即动量不守恒.也就是说,非线性二次谐频过程中,存在波矢失配量,不能满足相位匹配.目前,实现相位匹配的方式主要有双折射相位匹配和准相位匹配技术^[1].双折射相位匹配技术通过角度和温度调节,弥补基频和谐频激光束之间的相位差,从而实现相位匹配.准相位匹配技术通过铁电晶体局部畴反转,调节晶体局部非线性系数的符号,形成倒易矢量来弥补波矢失配,使得动量守恒条件得以满足,从而实现基频光向谐频光单方向能量转移.与双折射相位匹配相比,准相位匹配技术具有可设计性强、所采用的非线性系数较大、基频光与谐频光之间无走离效应等优势.这些局部畴被反转的晶体称为非线性光子晶体^[1],其微观结构调制周期多在波长量级,远大于晶格常量,故称为超晶格.

随着微电子学、光刻技术和高压极化技术等的发展,20世纪90年代以来人们对非线性光子晶体中激光与物质相互作用进行了大量的理论与实验研究.研究内容主要涉及一维结构钽酸锂^[2]、铌酸锂^[3-4]、 RbTiOAsO_4 ^[5]和钛酸钡^[6]等非线性光子晶体中的准相位匹配谐频和 THz 波,二维结构非线性光子晶体中的准相位匹配谐频理论^[7]和相关实验^[8]、切连科夫辐射^[9]和塔尔博特效应^[10].此外,研究人员对椭圆^[11]、超周期结构^[12]、分形^[13]和无序^[14]等超晶格结构的非线性光子晶体进行了研究,发现倒易矢量的分布和大小直接决定了能够有效输出的倍频波长.本文利用超晶格结构作为衍射光栅的衍射图来实现对不同超晶格结构倒空间中倒易矢量分布的前期探索,可预测具有该超结构的非线性光子晶体中能够实现有效准相位匹配倍频波长.

1 正方形和矩形周期结构

铌酸锂晶体具有优良的非线性光学、光电、双折射等物理特性,耐高温、抗腐蚀、易于加工、成本低、不易潮解,因此其有“光学硅”的美誉.本文采用铌酸锂晶体作为非线性光子晶体的制备材料,室温下,铌酸锂晶体的色散关系为

$$n(\lambda) = \sqrt{4.582 + \left(\frac{0.09921}{\lambda^2 - 0.2109^2} \right) - 0.02194 \times \lambda^2} \quad (1)$$

式中, λ 为入射基频波长^[15].对于周期结构非线性光子晶体而言,其倒易矢量 $\mathbf{G} = \pi/\mathbf{A}$, \mathbf{A} 为周期.可见,正空间的周期与倒空间的倒易矢量成反比.由共线准相位

匹配过程的动量守恒条件得

$$\frac{4\pi n(\lambda)}{\lambda} + \mathbf{G} = \frac{4\pi n(\lambda/2)}{\lambda} \quad (2)$$

由此可知,当入射波长减小时,倒易矢量逐渐增加.意味着在二维倒空间中离散分布的衍射点能实现多种激光束的不同阶次倍频.由于式(2)中只有波长与倒易矢量两个参量,因此,在倒易矢量已知的情况下,可以定量地确定能够实现倍频的光波长.

采用两种正方形周期结构作为铌酸锂非线性光子晶体的超晶格结构,周期分别为7和13.64 μm ,两周期之比为0.51:1.本文中,不同超晶格结构的正空间均以13.64 μm 作为参考进行比较.采用超晶格结构制作的掩膜板作为衍射屏,将He-Ne激光束垂直入射至衍射屏,获得正方形周期结构的衍射斑图,如图1(a)和(b).图1(a)是周期为7 μm 结构的衍射斑图,图1(b)是周期为13.64 μm 结构的衍射斑图.图1(b)中的插图是周期为13.64 μm 的铌酸锂非线性光子晶体的形貌图.显而易见,衍射图同样具有周期性,构成单元依旧是正方形.在相同实验条件下,测得两衍射图中正方形单元的边长比为2:1,测量结果和周期与倒易矢量之间的反比关系完全吻合.

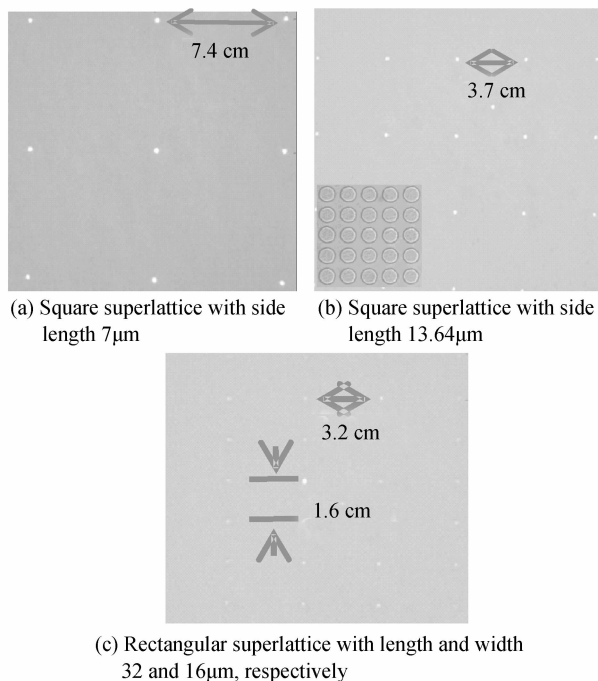


图1 二维周期超晶格的衍射图
Fig. 1 Diffraction patterns of two-dimensional periodic superlattices

对矩形超晶格结构作为衍射光栅的衍射图进行了测量,如图1(c).在正空间中,矩形的长宽分别为32和16 μm ,与边长为13.64 μm 的正方形相比,得到两个比值2.35:1和1.17:1.在倒空间中,所测量矩形单元的长宽(3.2和1.6 cm)与正方形单元的边长(3.7 cm)之比分别为0.87:1和0.43:1,这与正空间的比值

2.35 : 1 和 1.17 : 1 的倒数值相吻合,证明了矩形周期结构中正空间的周期和倒空间的倒易矢量的反比例关系.这说明,以一种已知超晶格衍射图中的倒易矢量为标准,可以定量确定其他超晶格衍射图中的倒易矢量分布.

由此,通过确定的倒易矢量的分布和大小,可推导出非线性光子晶体中实现的准相位匹配倍频波长.以铌酸锂非线性光子晶体为例,对于边长为 $13.64 \mu\text{m}$ 的正方形周期超晶格结构,其倒易矢量 $\mathbf{G}=0.46 \mu\text{m}^{-1}$,可以进行 $1.352 \mu\text{m}$ 激光波长的准相位匹配倍频,实现 $0.676 \mu\text{m}$ 的倍频输出.同一实验条件下,矩形的短边 ($16 \mu\text{m}$) 与正方形超晶格的衍射图中测量的倒易矢量的长度之比为 $3.2 : 3.7$,也就是 $0.87 : 1$,由此可得与矩形短边相对应的倒易矢量 $\mathbf{G}=0.4 \mu\text{m}^{-1}$.根据倒易矢量与激光波长的直接关系,利用该矩形短边可实现 $1.438 \mu\text{m}$ 激光波长的准相位匹配倍频.

参考已知结构的倒易矢量分布,通过复杂或未知与已知超晶格结构衍射图的比例关系,可确定复杂或未知结构可实现的准相位匹配倍频波长,更加直接地了解超晶格倒空间.

2 分形结构

分形是由美国曼德勃·罗特(Mandelbrot)在1975年首次提出,其组成部分为以某种方式与整体相似的图形^[16].或者说,分形的局部与整体具有相似性.这意味着不管放大或缩小多少倍,它们的图案都在进行数学上的推导和重现.分形具有明显的光学特性,其衍射图样仍具有分形的特征,可对不同的波长进行倍频.由此,在二维分形非线性光子晶体中,可实现多个方向上多种波长的准相位匹配倍频输出.

结合非线性光子晶体中进行激光倍频的激光波长范围、晶体的光学特性、非线性光子晶体的制备工艺等参量,重点对 H 型和谢尔宾斯基分形结构,以及该结构的铌酸锂非线性光子晶体进行了研究.

2.1 H 型分形结构

将该方法推广至二维 H 型分形超晶格结构中.用图 2(a)中的 12 阶 H 型分形超晶格结构图案制作掩膜板作为衍射光栅,在 He-Ne 激光束下获得衍射图,如图 2(b).图 2(c)为图 2(b)虚线框中的放大图,即 $1/4$ 区域图.图 2(a)中分形第一级条长约为 $1\,024 \mu\text{m}$,第十二级条长约 $32 \mu\text{m}$,条宽均为 $3 \mu\text{m}$.因为整个分形结构由水平方向和垂直方向的条带构成,所以衍射图的衍射斑比较集中于这两个方向上,如图 2(b).在周期结构相同的实验条件下,测得了较亮点与中心之间的距离.如图 2(c)中,倒空间中三个较亮点与中心间距分别为 $1.6, 3.2$ 和 6.4 cm .正空间中正方形周期为 $13.64 \mu\text{m}$ 的衍射图中正方形单元的边长为 3.7 cm ,倒

易矢量 $\mathbf{G}=0.46 \mu\text{m}^{-1}$.将图 2(c)中的各点与此相比,可得三个亮点所对应的倒易矢量分别为 $0.2, 0.4$ 和 $0.8 \mu\text{m}^{-1}$.由倒易矢量和波长的关系式可知,利用 H 型分形超晶格可实现 $2.105, 1.438$ 和 $1.114 \mu\text{m}$ 激光波长的有效准相位匹配倍频.其中,最亮衍射点所对应的波长为 $1.438 \mu\text{m}$,倒易矢量为 $0.4 \mu\text{m}^{-1}$.实验中,对于用该超晶格结构制作的铌酸锂非线性光子晶体而言,实现了 $1.348 \mu\text{m}$ 激光波长的高效倍频输出,其对应的倒易矢量为 $0.464 \mu\text{m}^{-1}$ ^[17].理论值与实验值的差距主要是由掩膜板和成品晶体这两个不同的衍射光栅、入射激光束波长漂移等因素造成的. H 型分形由条形组成,在外加高压电场极化铌酸锂晶体时,条形电极的不均匀扩展可能导致其中心的偏移.

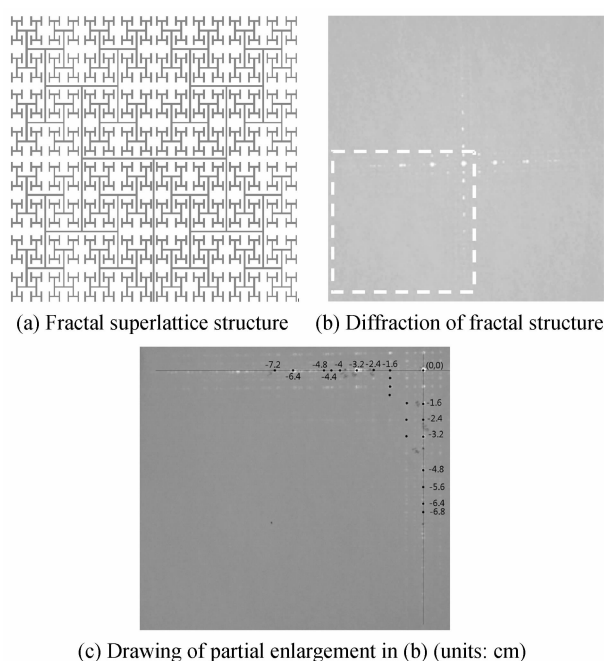


图 2 二维 H 型分形超晶格结构

Fig. 2 Two-dimensional H-shaped fractal superlattice

值得注意的是,在 H 型分形超晶格结构的铌酸锂非线性光子晶体中,入射基频波长从 0.813 至 $1.450 \mu\text{m}$ 的调节过程中,均能够观察到倍频光斑输出,即实现较大范围内的连续倍频输出.这是因为分形结构倒空间中衍射点分布较为密集,能够形成丰富的倒易矢量来满足各种波长进行准相位匹配倍频的要求.

2.2 谢尔宾斯基分形结构

将一个正方形等分为 9 个小正方形,去掉中间的一个,将余下 8 个的每一个分别再等分为 9 个更小的正方形,再去掉中间的一个正方形,如此循环,经过无数次操作,得到一个极限图形,称为谢尔宾斯基地毯.将谢尔宾斯基地毯中的正方形都替换成了圆形,希望实现圆形直径等于正方形边长的分布.考虑到外加高压电场极化的畴连接、掩膜板加工的数据量,以及激光波长范围等关键因素,本文中二维谢尔宾斯基分形

的阶数为4.图3示出了外加高压电场极化实验所用的掩模板示意图,考虑到极化扩展问题,最大圆到最小圆的直径分别设置为100、30、10和3 μm,最小圆之间的间距设置为13.64 μm.之后,将该图形进行周期性重复至需要的大小.

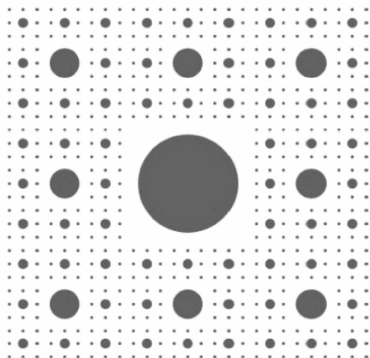
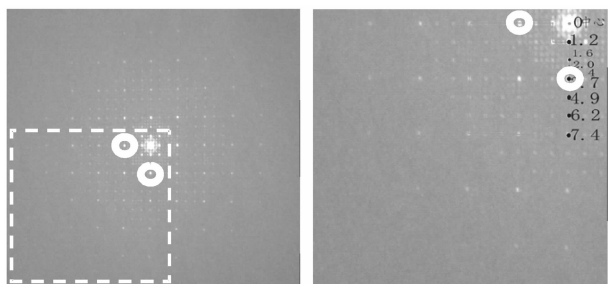


图3 二维谢尔宾斯基分形超晶格结构

Fig. 3 Two-dimensional Sierpinski fractal superlattice

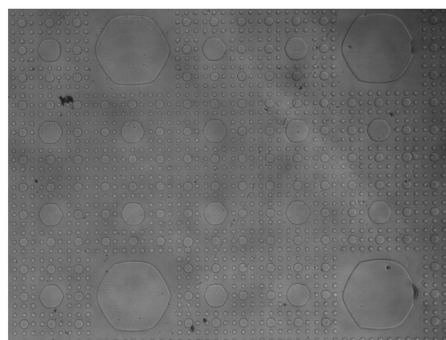
将该方法应用于二维谢尔宾斯基分形超晶格结构的准相位匹配倍频波长预测中.图4(a)是图3的衍射图,分形结构的自相似特点很明显,局部放大后可以看到原图的结构.图4(b)是图4(a)中1/4区域的放大图,其中心最强点是He-Ne激光束的入射点.衍射图与傅里叶变换相对应,由此,衍射图的强点可体现倒空间中倒易矢量的分布.在相同实验条件下,测得衍射图中的强点为2.4,3.7和7.4 cm,与倒易矢量 $G = 0.46 \mu\text{m}^{-1}$ 对应的正方形超晶格衍射图中的3.7 cm相比,可得该三个点所对应的倒易矢量分别为0.3,0.46和 $1.0 \mu\text{m}^{-1}$.由此,可理论计算出能够实现基频波长1.628,1.352和 $1.037 \mu\text{m}$ 的准相位匹配倍频输出.准相位匹配谐频实验中所采用的入射激光束来自 $0.355 \mu\text{m}$ 泵浦的光参量振荡器,与三种基频波长对应的调谐光束为0.454、0.481和 $0.539 \mu\text{m}$.其中,衍射强点中测量距离为3.7 cm处的点位于有效的激光器可调范围内,即衍射图中能够有效利用的点,如图4中白色圆环所圈住的点.图5(a)和(b)给出了利用谢尔宾斯基分形掩模板制作的铌酸锂非线性光子晶体的形貌图



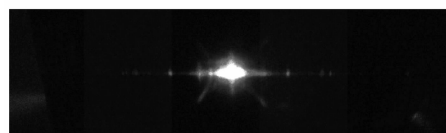
(a) Diffraction of fractal structure (b) Drawing of partial enlargement in (a) (units: cm)

图4 二维谢尔宾斯基分形超晶格结构的衍射图

Fig. 4 Diffraction of two-dimensional Sierpinski fractal superlattice



(a) Microscope image of lithium niobate nonlinear photonic crystal



(b) Quasi-phase matching harmonics

图5 二维谢尔宾斯基分形超晶格结构的铌酸锂非线性光子晶体

Fig. 5 Lithium niobate nonlinear photonic crystal with two-dimensional Sierpinski fractal superlattice

和 $1.352 \mu\text{m}$ 的准相位匹配倍频图.由此可知利用与周期结构衍射图相对比的方法,对于谢尔宾斯基分形结构中准相位匹配倍频的预测结果和实验结果非常吻合.

3 结论

利用正方形周期超晶格结构和H型、谢尔宾斯基分形等超晶格结构之间衍射图的对比,通过简单超晶格中的倒易矢量分布,确定复杂超晶格中的倒易矢量分布,由此预测可进行准相位匹配倍频实验的激光波长.两种分形结构铌酸锂非线性光子晶体中理论预测可实现的倍频波长与实验测量结果吻合得很好.对于谢尔宾斯基分形结构,理论上实现了 $1.352 \mu\text{m}$ 的有效倍频输出,并得到实验验证.借助于对简单模型的对比,该方法简单易行,可定量分析多种已知或未知超晶格结构的倒易矢量分布,有助于对准相位匹配倍频和三倍频等高阶谐频,以及傅里叶变换的探究,可大大降低光学特性研究的计算和实验成本.

参考文献

[1] ARMSTRONG J A, BLOEMBERGEN N, DUCUING J, *et al.* Interactions between light waves in a nonlinear dielectric [J] *Physical Review*, 1962, **127**(6): 1918-1939.
 [2] ZHU Shi-ning, ZHU Yong-yuan, MING Nai-ben. Quasi-phase-matched third-harmonic generation in a quasi-periodic optical superlattice[J]. *Science*, 1999, **278**(7): 843-846.
 [3] XUE Ting, HUA Yong, YANG De-wei *et al.* Theoretical analysis of terahertz radiation generated in periodically poled lithium niobate[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2004, **33**(10): 1180-1186.
 薛挺, 华勇, 杨德伟, 等. 周期极化铌酸锂 THz 波产生理论分析[J]. *光子学报*, 2004, **33**(10): 1180-1186.
 [4] CHEN Yun-lin, Guo Juan, Liu Xiao-luan, *et al.* Continuous-

- wave quasi-phase-matched second harmonic generation at 490 nm in periodically poled MgO : LiNbO₃ [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2005, **34**(1): 29-31.
- 陈云琳, 郭娟, 刘晓娟, 等. 准相位匹配周期极化掺镁铌酸锂 490 nm 倍频连续输出[J]. 光子学报, 2005, **34**(1): 29-31.
- [5] MEN Yan-bin, WANG li, WEN fang *et al.* Gain bandwidth of periodically poled RbTiOAsO₄ in noncollinear quasi-phase matching[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2010, **39**(1): 12-15.
- 门艳彬, 王丽, 温芳, 等. 非共线准相位匹配周期极化 RbTiOAsO₄ 的增益带宽[J]. 光子学报, 2010, **39**(1): 12-15.
- [6] WANG Ai-hua, ZHAO Jing. Second harmonic generation with broadened band width in one-dimensional nonlinear photonic crystal at the oblique incidence of light [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2012, **41**(7): 786-789.
- 王爱华, 赵静. 倾斜入射光入射于一维非线性光子晶体中带宽加宽的二次谐波的产生[J]. 光子学报, 2012, **41**(7): 786-789.
- [7] BERGER V. Nonlinear photonic crystals[J]. *Physical Review Letters*, 1998, **81**(19): 4136-4139.
- [8] NI Pei-gen, MA Bo-qin, WANG Xue-hua, *et al.* Second-harmonic generation in two-dimensional periodically poled lithium niobate using second-order quasiphase matching[J]. *Applied Physics Letters*, 2003, **82**(24): 4230-4232.
- [9] SHENG Yan, ROPPO Vito, REN Ming-liang, *et al.* Multi-directional Cherenkov second harmonic generation in two-dimensional nonlinear photonic crystal [J]. *Optics Express*, 2012, **20**(4): 3948-3953.
- [10] ZHAO Xiao-hui, ZHENG Yuan-lin, REN Huai-jin, *et al.* Cherenkov second-harmonic Talbot effect in one-dimension nonlinear photonic crystal [J]. *Optics Letters*, 2014, **39**(20): 5885-5887.
- [11] CHEN Bao-qin, ZHANG Chao, LIU Rong-juan, *et al.* Multi-direction high-efficiency second harmonic generation in ellipse structure nonlinear photonic crystals [J]. *Applied Physics Letters*, 2014, **105**(15): 151106.
- [12] REN Ming-liang, MA Dong-li, LI Zhi-yuan. Experimental demonstration of super quasi-phase matching in nonlinear photonic crystal [J]. *Optics Letters*, 2011, **36**(18): 3696-3698.
- [13] HOU Bo, XU Gu, WEN Wei-jia, *et al.* Diffraction by an optical fractal grating[J]. *Applied Physics Letters*, 2004, **85**(25): 6125-6127.
- [14] SHENG Yan, MA Dong-li, REN Ming-liang. Broadband cascading of second-order nonlinearity in randomized nonlinear photonic crystal [J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2012, **45**(36): 365105.
- [15] EDWARDS G J, LAWRENCE M. A temperature-dependent dispersion equation for congruently grown lithium niobate[J]. *Optical and Quantum Electronics*, 1984, **16**(4): 373-375.
- [16] MANDELBROT B. Fractals; form, chance and dimension [M]. San Francisco: W. H. Freeman, 1977.
- [17] MA Bo-qin, REN Ming-liang, MA Dong-li, *et al.* Multiple second-harmonic waves in a nonlinear photonic crystal with fractal structure[J]. *Applied Physics B: Lasers & Optics*, 2013, **111**(2): 183-187.