

$\chi^{(2)}$ 级联过程产生能量无损耗的高量值 五阶非线性相移*

徐光^{①**} 钱列加^② 王 韬^② 范滇元^{①②} 李富铭^②

(①中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800; ②复旦大学先进光子学材料与器件国家重点实验室, 上海 200433)

摘要 针对二阶非线性 $\chi^{(2)}$ 级联产生等效五阶非线性的过程, 研究发现基频光感应到的级联五阶非线性相移会随着其在整个过程中所遭受到的能量损耗的加剧而增大. 与材料固有非线性所产生的多光子吸收效应有着本质的区别, 该级联非线性过程中所形成的基频光能量损耗是可控的. 在数值模拟计算的基础上, 提出了在级联五阶非线性过程之后引入倍频光与基频光相互作用的差频过程, 最终实现了基频光在感应到大的级联五阶非线性相移的同时无能量损耗效应.

关键词 级联非线性相移 相位失配 倍频

材料固有的三阶非线性 $\chi^{(3)}$ 通常量值都较小, 在共振吸收区虽然可以获得大的量值, 但此时相应的双光子吸收将变得十分强烈. 为了在获得大的三阶非线性 $\chi^{(3)}$ 的同时能够有效地控制双光子吸收, 人们研究提出了等效于频率简并 $\chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega, -\omega)$ 的 $\chi^{(2)}(\omega, \omega, 2, -\omega)$; $\chi^{(2)}(2\omega, \omega, \omega)$ 二阶级联非线性过程^[1]. 整个过程中基频光感应到的非线性相移等效于级联三阶极化率的实部 $\text{Re}[\chi^{(3)}]$, 而剩余的倍频光对基频光而言相当于能量损耗, 等效于级联三阶极化率的虚部 $\text{Im}[\chi^{(3)}]$. 不同于材料固有三阶非线性所形成的双光子吸收, 级联三阶非线性虚部 $\text{Im}[\chi^{(3)}]$ 所造成的基频光能量损耗是可以通过选择合适的相位失配量 ΔkL 完全消除, 从而实现了在获得大的感应级联三阶非线性的同时无能量损耗效应, 级联过程中能量损耗的可控和抑制是应用的关键. 正因为如此, 级联三阶非线性效应已经在高维时空光孤子的产生^[2]、B 积分的补偿^[3]、飞秒 Kerr 透镜锁模^[4]及光通讯中全光开关的实现^[5]等方面获得了广泛应用.

介质固有的非线性除了 $\chi^{(3)}$ 以外还有高阶的 $\chi^{(5)}$, $\chi^{(7)}$ 等(非中心对称时, 还有 $\chi^{(2)}$, $\chi^{(4)}$ 等). 通过对二阶级联非线性产生的物理机理的研究, 我们在相位失配三倍频过程的基础上提出了等效于 $\chi^{(5)}(\omega; \omega, \omega, \omega, -\omega, -\omega)$ 的 $\chi^{(2)}(\omega; 3\omega, -2\omega)$; $\chi^{(2)}(3\omega; 2\omega, \omega)$; $\chi^{(2)}(2\omega; \omega, \omega)$ 级联五阶非线性过程^[6], 它可以产生较级联三阶非线性更大且饱和性更丰富的级联五阶非线性相移. 然而与 $\chi^{(2)}$ 级联产生三阶非线性的过程类似, 基频光在感应到大的级联五阶非线性相移的同时也将不可避免地遭受到能量损耗. 因此, 对于能量损耗效应的研究以及抑制, 将成为级联五阶非线性实际应用的核心, 这是我们所关心的主要问题. 本文系统研究了三次 $\chi^{(2)}$ 级联产生五阶非线性的过程, 结果表明基频光所感应到的级联五阶非线性相移随其能量衰减的加剧而

2003-03-16 收稿

* 国家自然科学基金(批准号: 60088003, 10276012), 国家重点基础研究发展规划(批准号: G19990752023)和国家“八六三”高技术基金资助项目

** E-mail: xuguang71cn@yahoo.com.cn

增大. 基频光的能量损耗体现在剩余的倍频和三倍频光能量上, 仅靠相位失配量 ΔkL 自由度, 不可能同时消除剩余的倍频和三倍频光的存在. 对此, 本文提出在级联五阶非线性过程之后引入倍频光与基频光之间的差频过程, 该差频过程相当于提供了一个新的自由度, 它可以将剩余的倍频光能量完全倒流回基频光. 最终实现了基频光在感应到大的级联五阶非线性相移的同时无能量损耗.

1 理论分析

级联五阶非线性是在相位失配三倍频过程的基础上产生的. 三倍频光的产生通常是通过先倍频(满足相位匹配)再进行和频(满足相位匹配)的 $\chi^{(2)}(3\omega; 2\omega, \omega) : \chi^{(2)}(2\omega; \omega, \omega)$ 二阶级联非线性过程来实现的, 此过程等效于 $\chi^{(3)}(3\omega; \omega, \omega, \omega)$ 级联三阶非线性过程. 如果在三倍频光产生过程中第二步和频时相位失配 $\Delta k \neq 0$, 那么在和频过程中将同时存在着混频的正过程及逆过程. 首先倍频光和基频光由正过程相互作用产生三倍频光, 逆过程则将三倍频光与倍频光的能量倒流回基频光. 因此在相位失配条件下, 该过程实质上为 $\chi^{(2)}(\omega; 3\omega, -2\omega) : \chi^{(2)}(3\omega; 2\omega, \omega) : \chi^{(2)}(2\omega; \omega, \omega)$ 的三次二阶非线性级联过程, 等效于频率简并的 $\chi^{(5)}(\omega; \omega, \omega, \omega, -\omega, -\omega)$ 级联五阶非线性过程, 此时基频光将感受到级联五阶非线性相移.

基频光在级联过程中能量损耗是无法避免地. 级联五阶非线性过程中最终所得到的基频光是由经正过程生成的三倍频光与倍频光经逆过程差频而产生的, 因此在得到感应了级联五阶非线性相移的基频光的同时仍然会有一部分能量分别滞留在倍频光及三倍频光上, 对基频光而言这无疑会导致其能量的衰减. 其中, 由剩余的倍频光所造成的能量损耗等效于级联三阶极化率的虚部 $\text{Im}[\chi^{(3)}]$. 在级联五阶非线性过程中, 由于应用了相位匹配的倍频过程, 不存在等效于级联三阶极化率实部 $\text{Re}[\chi^{(3)}]$ 的级联三阶非线性相移, 然而等效于级联三阶极化率虚部 $\text{Im}[\chi^{(3)}]$ 的能量损耗机制却依然存在. 同时, 剩余的三倍频光能量是伴随着级联五阶非线性的产生而形成的, 在级联五阶非线性过程中基频光所感应到的非线性相移等效于级联五阶极化率的实部 $\text{Re}[\chi^{(5)}]$, 而导致基频光能量衰减的剩余三倍频光则等效于级联五阶极化率的虚部 $\text{Im}[\chi^{(5)}]$.

级联五阶非线性可以由非线性耦合波方程来进行理论分析. 采用慢变振幅近似, 非线性耦合波方程为

$$\frac{dE_1}{dz} = -i \frac{\omega}{2cn_\omega} \chi^{(2)}(\omega; 3\omega, -2\omega) E_3 E_2^* \exp(-i\Delta kz), \quad (1)$$

$$\frac{dE_2}{dz} = -i \frac{\omega}{cn_{2\omega}} \chi^{(2)}(2\omega; 3\omega, -\omega) E_3 E_1^* \exp(-i\Delta kz), \quad (2)$$

$$\frac{dE_3}{dz} = -i \frac{3\omega}{2cn_{3\omega}} \chi^{(2)}(3\omega; 2\omega, \omega) E_1 E_2 \exp(i\Delta kz), \quad (3)$$

低输入功率时, 上述对应级联五阶非线性过程的耦合波方程具有解析解. 基频光在和频晶体出射处 $z = L$ 所感应到的级联五阶非线性相移 $\Delta\Phi^{\text{NL}}$ 与其能量损耗之间的关系为

$$\Delta\Phi^{\text{NL}} = -\frac{\eta_{l_1} \eta_{l_2}}{3\Delta kL} [1 - \sin c(\Delta kL)], \quad (4)$$

其中

$$\eta_{L_1} = 1 - \frac{\epsilon_0 n_0^2 c \lambda}{\epsilon_0 n_0^2 c \lambda + 3\pi I_1 L_0 \text{Im}[\chi^{(3)}]}, \quad (5)$$

$$\eta_{L_2} = 1 - \sqrt{\frac{\epsilon_0^2 n_0^3 c^2 \lambda}{\epsilon_0^2 n_0^3 c^2 \lambda + 10\pi I_1 L \text{Im}[\chi^{(5)}]}} \quad (6)$$

式中 $\Delta k = k_{3\omega} - k_{2\omega} - k_{\omega}$, I_1 为入射基频光 λ 的光强, L_0 为倍频晶体长度, n_0 为材料的线性折射率, $\chi^{(3)}$, $\chi^{(5)}$ 分别为等效的级联三阶及五阶非线性极化率. η_{L_1} , η_{L_2} 分别为由剩余倍频及三倍频光所导致的基频光能量损耗率.

(4)~(6)式表明, 在小信号条件下, 基频光所感应到的级联五阶非线性相移是随着能量损耗 η_{L_1} , η_{L_2} 的增加而线性增大的. 通过使等效级联三阶及五阶极化率的虚部 $\text{Im}[\chi^{(3)}]$, $\text{Im}[\chi^{(5)}]$ 为零, 可以消除由剩余倍频及三倍频光所导致的基频光能量损耗 η_{L_1} , η_{L_2} , 然而伴随与此基频光所感应到的级联五阶非线性相移 $\Delta\Phi^{\text{NL}}$ 也变为零了. 由此可见, 在保证获得大量值的级联五阶非线性的同时, 如何消除剩余倍频光及三倍频光对基频光所造成的能量损耗成为了级联五阶非线性实际应用的关键.

2 能量损耗的抑制

上述解析表达式(4)~(6)适用于小信号弱光强的情况, 它可以很好地帮助我们在物理上理解复杂的非线性过程. 对于强非线性相互作用, 为了能够完整清晰地描述此时该级联五阶非线性过程的变化, 我们借助计算机对耦合波方程进行了相应的数值计算. 在整个数值计算过程中我们按照通常定义的非线性长度来衡量入射基频光的强弱:

$$L_{\text{NL}} = \frac{2n_{\omega}c}{\omega\chi^{(2)}E_1}. \quad (7)$$

基频光的衰减程度对级联五阶非线性的影响是非常显著的. 由数值计算(图 1)可知, 级联五阶非线性相移 $\Delta\Phi^{\text{NL}}$ 随该过程中基频光能量损耗率 η_{L_1} 的增加呈阶梯状增大. 非线性长度的定义很好地统一了 $\chi^{(2)}$ 晶体以及激光场的参数, 从而使得非线性耦合波的计算结果具有普遍性. 在实际应用中, 为了利用材料的固有三阶非线性获得大的非线性相移, 材料的双光子吸收损耗往往被要求小于 50%^[7]. 可是, 图 1 结果显示在上述损耗条件下级联五阶非线性过程无法产生较大的非线性相移(约 0.2π). 由此可知, 为了获得较大量值的级联五阶非线性, 由剩余倍频光所造成的基频光能量损耗至少需大于 50%.

这与材料固有的 $\chi^{(3)}$, $\chi^{(5)}$ 非线性非常类似, 要产生大的量值就必须工作在有较强双光子及三光子吸收的共振区. 然而在能量衰减的方式上, 级联非线性与它们是完全不同的. 材料固有的非线性 $\chi^{(3)}$, $\chi^{(5)}$ 所造成的双光子及三光子吸收损耗是无法控制和逆转的, 损耗的光波能量被转移到了非线性材料上. 级联非线性所涉及的基频光能量损耗是被转移给了其他光波, 因此有可

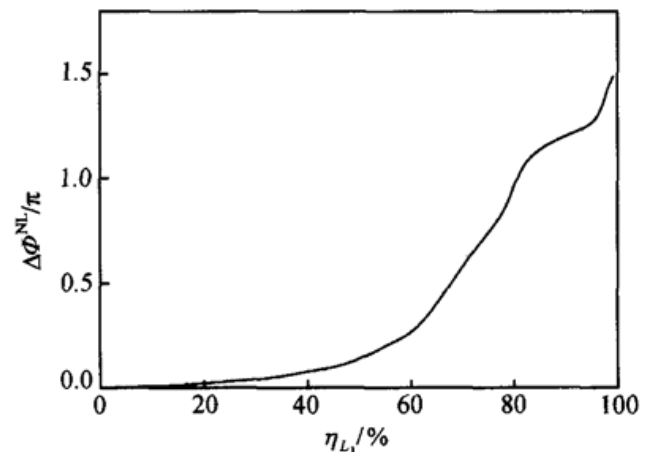


图 1 级联五阶非线性相移与由剩余倍频光所导致的基频光能量损耗率 η_{L_1} 间的变化关系
计算中所用参数: $L = 10 \text{ mm}$, $L_{\text{NL}} = 1 \text{ mm}$, $\Delta kL = -80$

能通过相应的非线性相互作用来控制 and 消除. 在相当简单的级联三阶非线性过程中, 基频光所遭受到的能量损耗可以通过选择合适的相位失配量 ΔkL 来控制 and 消除. 级联五阶非线性过程更为复杂, 涉及到相位匹配的倍频过程以及相位失配的和频过程, 不能简单地照搬这种方法来解决该过程中所出现的基频光能量衰减问题. 除了控制相位失配量 ΔkL 以外, 还需寻找新的自由度来同时抑制剩余倍频及三倍频光的能量. 对此, 我们提出在级联五阶非线性过程之后引入一个倍频光与基频光之间的差频过程, 最终完成了对能量损耗的控制. 具体方法如下: 首先针对相位失配的和频过程, 选择合适的晶体长度或 Δk 确保三倍频光能量在晶体出射处经逆过程与倍频光差频产生基频光时完全倒流回基频光和倍频光. 此时只有感应到非线性相移的基频光与倍频光出射, 而三倍频光的能量则被抑制. 其次对于出射的基频光和倍频光, 通过在倍频光上引入一附加位相, 使两者间形成 π 位相差. 在相位匹配条件下, 将两者再注入与第 1 步倍频晶体长度完全相等的晶体中, 经非线性相互作用滞留在倍频光上的能量也将完全倒流回基频光, 从而实现了输入基频光在感应到大的非线性相移的同时无能量损耗. 上述基频光与倍频光相互作用的过程与通常意义上的差频是有所不同的, 因为基频光在整个过程中始终保持着原先所感应到的级联五阶非线性相移不发生变化.

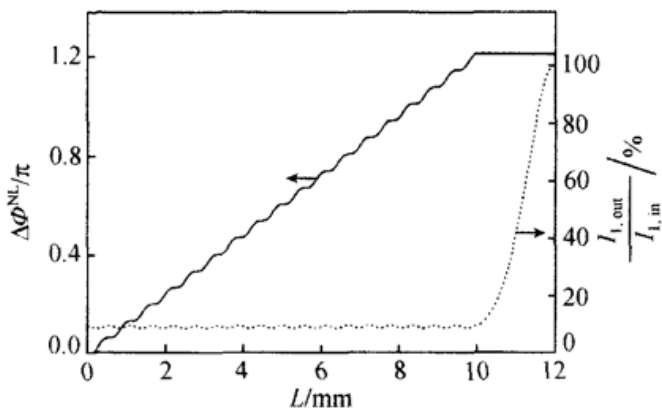


图 2 级联五阶非线性相移及输入光通量 $I_{1,\text{out}}/I_{1,\text{in}}$ 随晶体长度的变化关系

计算中所用参数: $L_{\text{NL}} = 1 \text{ mm}$, $\Delta kL = -80$, $L = 10 \text{ mm}$, 倍频效率为 90%, 倍频光上引入的附加相位 $\theta = 1.5 \text{ rad}$, 差频晶体长度为 2 mm, 实线对应级联五阶非线性相移的变化, 虚线为输入光通量 $I_{1,\text{out}}/I_{1,\text{in}}$ 随晶体长度变化

基于对消除级联五阶非线性过程中所形成的输入基频光能量损耗效应的理论分析, 我们数值模拟了整个过程. 图 2 中 $\Delta kL = -80$, $L_{\text{NL}} = 1 \text{ mm}$, 倍频效率为 90%. 通过选择和频晶体长度 $L = 10 \text{ mm}$, 实现了三倍频光能量在晶体出射处完全倒流回基频光和倍频光, 消除了由于剩余三倍频光所造成的基频光能量损耗, 此时基频光感受到的级联五阶非线性相移接近 1.2π (实线), 而能量只有入射时的 10% (虚线), 主要的能量滞留在倍频光上. 另一方面, 在倍频光上引入附加相位 $\theta = 1.5 \text{ rad}$ 后, 通过 2 mm 厚的差频晶体, 数值模拟显示滞留在倍频光的能量同样完全倒流回了基频光 (虚线), 与此同时基频光感应的非线性相移

仍保持 1.2π 不变 (实线). 在此能量倒流的过程中, 由于附加相位的偏差 $\Delta\theta$ 所造成的影响是较弱的, 当 $\Delta\theta = \pm 0.4 \text{ rad}$ 时, 只有 1.5% 的倍频光能量无法倒流回了基频光.

级联五阶非线性具有大的量值. 就目前所得到的研究结论来看, 级联三阶非线性量值最大, 较 Kerr 非线性可以大 3 个数量级^[8], 然而由图 3(a) 可知, 级联五阶非线性相移 (实线) 要比级联三阶非线性相移 (虚线) 大近 4 倍. 入射光强方面, 图 3(b) 的计算结果显示, 在产生同样 π 大小的非线性相移时, 级联五阶非线性过程 (实线) 所需的人射光强要比级联三阶非线性过程 (虚线) 小近 7 倍. 显然, 采用级联五阶非线性过程可以在低输入功率下获得大的非线性相移. 以 LiNbO_3 晶体为例, 输入基频光 $\lambda = 1 \mu\text{m}$, $\Delta kL = -80$, $L = 10 \text{ mm}$, 倍频效率为 90%, 此时输入光强只需 $I_1 \approx 230 \text{ MW/cm}^2$ 就可以实现 π 大小的非线性相移.

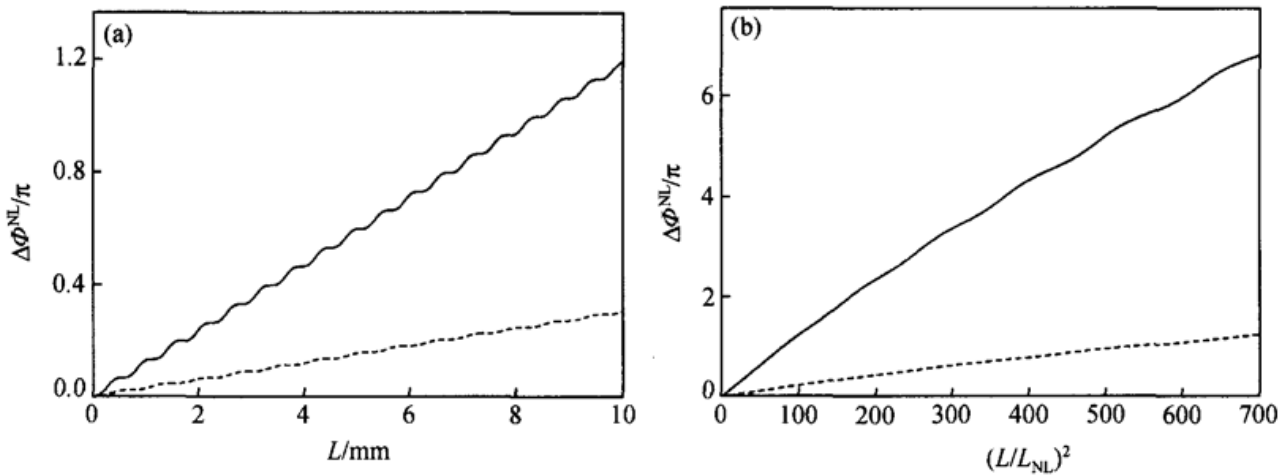


图3

(a)非线性相移与晶体长度的变化关系, 计算中所用参数: $L_{NL} = 1$ mm, 其中实线对应 $\Delta kL = -80$, $L = 10$ mm, 倍频效率为 90% 时级联五阶非线性相移, 虚线为 $\Delta kL = -80$, $L = 10$ mm 情况下级联三阶非线性相移的计算结果; (b)非线性相移与入射光强的变化, 其中实线对应 $\Delta kL = -80$, $L = 10$ mm, 倍频效率为 90% 时级联五阶非线性相移, 虚线为 $\Delta kL = -80$, $L = 10$ mm 情况下级联三阶非线性相移的计算结果

3 结论

本文研究了多个 $\chi^{(2)}$ 过程产生的级联五阶非线性, 它可以使基频光感应到很大的非线性相移, 但相应的伴随着严重的能量损耗. 文章同时分析了级联五阶非线性过程中基频光能量损耗形成的物理机理及与材料固有的非线性所造成的多光子吸收效应间的本质区别——可控性, 最终提出了引入一倍频光与基频光相互作用的差频过程, 实现了输入基频光在感应到大的级联五阶非线性相移的同时无能量损耗效应. 可以预计在全光开关及激光发展等方面, 高量值且无能量损耗的级联五阶非线性相移将获得广泛的应用.

参 考 文 献

- 1 Stegeman G I, Hagan D J, Torner L. $\chi^{(2)}$ cascading phenomena and their applications to all-optical signal processing, mode-locking pulse compression and solitons. *Opt Quant Ele*, 1996, 28(10): 1691~1740
- 2 Liu X, Qian L J, Wise F. Generation of optical spatiotemporal solitons. *Phys Rev Lett*, 1999, 82(23): 4631~4634
- 3 Beckwitt K, Wise F, Qian L J. Compensation for self-focusing by use of cascade quadratic nonlinearity. *Opt Lett*, 2001, 26(21): 1696~1698
- 4 Qian L J, Liu X, Wise F. Femtosecond Kerr-lens mode locking with negative nonlinear phase shifts. *Opt Lett*, 1999, 24(3): 166~168
- 5 Assanto G, Torelli I. Cascading effects in type-II 2nd-harmonic generation-applications to all-optical processing. *Opt Comm*, 1995, 199(1-2): 143~148
- 6 Xu G, Zhu H Y, Wang T, et al. Large high-order nonlinear phase shifts produced by $\chi^{(2)}$ cascaded processes. *Opt Comm*, 2002, 207(1-6): 347~351
- 7 Mizrahi V, Delong K W, Stegeman G I, et al. Two-photon absorption as a limitation to all-optical switching. *Opt Lett*, 1989, 14(20): 1140~1142
- 8 Vidakovic P, Lovering D J, Levenson J A, et al. Large nonlinear phase shift owing to cascaded $\chi^{(2)}$ in quasi-phase-matched bulk LiNbO_3 . *Opt Lett*, 1997, 22(5): 277~279