

BBO 晶体中的级联二阶过程 和三阶光学非线性效应

檀慧明

(中国科学院长春光学精密机械研究所, 长春 130021)

G. P. Banfi

(意大利 Pavia 大学)

摘要 本文讨论了非线性光学晶体中的级联二阶过程。在小信号转换近似下, 这一过程被公式化, 由三阶非线性极化率表示。作为比较, 用自位相调制和光学混频方法, 研究了 BBO 晶体的级联二阶过程。发现由于这一过程的存在, 该晶体的三阶非线性被明显增加, 极化率达 $10^{-19} \text{m}^2/\text{V}^2$ 。

关键词: 非线性光学; BBO 晶体; 级联二阶过程; 三阶非线性

1 引言

具有二阶非线性光学系数晶体中的级联二阶现象早已被观察到^[1]。但仅在最近两年, 由于真正适用于全光学器件的克尔型三阶非线性光学材料的缺乏和级联二阶过程具有引起大的和快的电子型三阶非线性的可能性, 这一过程才重新引起人们的重视。

在级联二阶过程中, 两个场 a_1 与 a_2 通过和频产生中间场 s , 场 s 再与场 b 差频产生场 c , 如不考虑场 s , 整个过程可看作是场 a_1 、 a_2 、 b 和 c 的四波相互作用。级联二阶过程在 KTP 晶体中产生的自聚焦与自散焦^[2]和在 BBO 晶体中引起的自衍射^[3]已被报告。级联二阶过程被应用到光波导全光学开关器件中的可行性已被理论讨论^[4-7]。

本文讨论了在小信号转换近似下, 级联二阶过程可被公式化由简单的三阶非线性极化率表示。此公式化为级联二阶过程的研究提供了简单分析的基础。本文更主要地报告了在 BBO 晶体中级联二阶过程的研究结果。除了由自位相调制方法测量 BBO 晶体三阶非线性的实部, 我们较详细的研究了由于级联二阶过程引起的增强的光学混频效应。在混频中, 我们组合分别具有频率 ω_s 和 $\omega_b = \omega_s - \Delta\omega$ 的光束, 产生了具有频率 $\omega_c = \omega_s + \Delta\omega$ 的光束。结果表明了由于级联二阶过程的存在, 混频效率比仅有材料固有三阶非线性时高 5 个量级。甚至在仅有三阶

非线性的实部存在时,也要高 4 个量级以上。自位相调制是全光学开关器件的基础。光学混频效应的应用是很有兴趣的。我们可以应用这个效应由一个命令场产生高速频率开关,或实现“与”操作。

本文第二部分给出了具有级联二阶过程的三阶非线性极化率公式。第三部分表示了测量 BBO 自位相调制和光学混频的实验安排和测量结果。第四部分作了讨论。第五部分是简单的总结。

2 级联二阶过程

假设相互作用的光束是沿 z 方向传播的无限平面波。在透明非线性介质内,麦克斯韦波动方程是

$$\frac{\partial^2 E}{\partial z^2} = -\mu_0 \epsilon \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} - \mu_0 \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2} \quad (1)$$

这里,场强由

$$E = \frac{1}{2} \sum_{\alpha} \{A_{\alpha}(z) \exp[i(k_{\alpha}z - \omega_{\alpha}t)] + c.c.\} \quad (2)$$

表示。 α 是表示对所有电场求和。 A_{α} 是电场的复振幅, k_{α} 是波矢, ω_{α} 是圆频率以及 ϵ 是相对介电常数。二阶非线性极化强度由

$$P_{NL}^{(2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} EE \quad (3)$$

给出。 ϵ_0 是真空介电常数和 $\chi^{(2)}$ 是有效二阶极化率。

考虑在实际应用中,场 $a_1 \equiv a_2 \equiv a$ 和场振幅慢改变近似,代入 (2) 和 (3) 到 (1) 式中,得到场 a 的二次谐波振幅在传播方向的变化

$$\frac{dA_s(z)}{dz} = i \frac{\omega_s}{2n_s c} \chi^{(2)} A_a^2(z) \exp(i\Delta k z) \quad (4)$$

n_s 是二次谐波的折射率, c 是真空中光速以及 $\Delta k = 2k_a - k_s$, 是场 a 倍频场 s 的位相失配。在小信号转换近似下,即 $A_a(z) = A_a(0)$ 。积分 (4) 式从 $z = 0$ 到 $z = z'$, 并考虑到 $A_s(0) = 0$, 得到在 z' 处二次谐波场的振幅

$$A_s(z') = \frac{\omega_s}{2n_s c} \chi^{(2)} A_a^2 \frac{1}{\Delta k} (1 - e^{i\Delta k z'}) \quad (5)$$

场 s 与场 b 相互作用,产生差频场 c 。场 c 的振幅变化是

$$\frac{dA_c(z')}{dz'} = i \frac{\omega_c}{2n_c c} \chi^{(2)} A_s(z') A_b^*(z') e^{i(\Delta h - \Delta k)z'} \quad (6)$$

上式中, $\Delta h = 2k_a - k_b - k_c$ 是整个过程的位相失配。

仅考虑材料的固有三阶非线性极化率 $\chi_0^{(3)}$, 场 c 的振幅变化为

$$\frac{dA_c(z')}{dz'} = i \frac{\omega_c}{4n_c c} \chi_0^{(3)} A_a^2(z') A_b^*(z') e^{i\Delta h z'} \quad (7)$$

上式中 $\chi_0^{(3)}$ 由三阶极化强度 $P_{NL}^{(3)} = \epsilon_0 \chi_0^{(3)} |E|^2 E/2$ 所定义。

同时考虑固有三阶非线性和级联二阶效应的存在,把 (5) 式代入 (6) 式后与 (7) 式组合,在小信号转换的近似下积分 z' 从 0 到相互作用长度 L , 得到场 c 的输出振幅

$$A_c(L) = i \frac{\omega_c L}{4n_c c} (S_0 - iC_0) \chi_{eff}^{(3)} A_a^2 A_b^* \quad (8)$$

和输出强度

$$\Phi_c = \frac{n_a^2}{n_b n_c} (S_0^2 + C_0^2) \left[\frac{\chi_{eff}^{(3)}}{2\epsilon_0 c n_a^2} \cdot \frac{L\omega_c}{c} \right]^2 \Phi_a^2 \Phi_b \quad (9)$$

上式中 Φ_a 和 Φ_b 分别是场 a 和场 b 的强度。有效三阶非线性极化率 $\chi_{eff}^{(3)}$ 定义为

$$\chi_{eff}^{(3)} = \chi_0^{(3)} + \chi_{cas}^{(3)} = \chi_0^{(3)} + \frac{\omega_a (\chi^{(2)})^2}{c n_s \Delta k} \frac{S - iC}{S_0 - iC_0} \quad (10)$$

在以上公式中:

$$S_0 = \frac{\sin \Delta h L}{\Delta h L}, C_0 = \frac{\cos \Delta h L - 1}{\Delta h L},$$

$$S = S_0 - \frac{\sin(\Delta h - \Delta k)L}{(\Delta h - \Delta k)L} \text{ 和}$$

$$C = C_0 - \frac{[\cos(\Delta h - \Delta k)L] - 1}{(\Delta h - \Delta k)L}$$

。(10) 式表明, 由级联二阶过程引起的三阶非线性极化率 $\chi_{cas}^{(3)}$ 与有效二阶非线性极化率 $\chi^{(2)}$ 的平方成正比。 $\chi_{cas}^{(3)}$ 的实部和虚部随 $\Delta k L$ 的变化被画在图 1 中。

图中选用两个不同的 $\Delta h L$ 。我们注意到, 只要 $\Delta h L$ 小于 π , $\chi_{cas}^{(3)}$ 并不随 $\Delta h L$ 有明显的变化。如果 $\Delta h = 0$, $\chi_{cas}^{(3)}$ 的实部和虚部可分别由简单的形式给出:

$$\text{Re} \chi_{cas}^{(3)} = \frac{\omega_a L}{c n_s} (\chi^{(2)})^2 \frac{1}{\Delta k L} \left(1 - \frac{\sin \Delta k L}{\Delta k L} \right) \quad (11)$$

$$\text{Im} \chi_{cas}^{(3)} = \frac{\omega_a L}{c n_s} (\chi^{(2)})^2 \frac{1}{2} \frac{\sin^2 \left(\frac{\Delta k L}{2} \right)}{\left(\frac{\Delta k L}{2} \right)^2} \quad (12)$$

由于 $\text{Re} \chi_{cas}^{(3)}$ 与 Δk 成反比, 而 $\text{Im} \chi_{cas}^{(3)}$ 与 Δk^2 成反比, 所以作为 $|\Delta k L| \gg 2\pi$, $\text{Re} \chi_{cas}^{(3)}$ 起主要作用, 这时

$$\chi_{cas}^{(3)} \approx \frac{\omega_a}{c n_s} \cdot \frac{(\chi^{(2)})^2}{\Delta k} \quad (13)$$

上式可看出, $\chi_{cas}^{(3)}$ 与相互作用长度无关。仅由 $\chi^{(2)}$ 和 Δk 所决定。当 $|\Delta k L| = 2\pi$ 时, $\text{Im} \chi_{cas}^{(3)} = 0$, $\chi_{cas}^{(3)}$ 是纯实数。作为小的 $|\Delta k L|$, $\chi_{cas}^{(3)}$ 变成复数, 且与相互作用长度 L 有关。 $|\Delta k L| = \pi$ 时, $\text{Re} \chi_{cas}^{(3)}$ 具有最大值

$$\text{Re} \chi_{cas}^{(3)} = \pm \frac{\omega_a L}{c n_s} \frac{(\chi^{(2)})^2}{\pi} \quad (14)$$

$\Delta k = 0$ 时, $\chi_{cas}^{(3)}$ 是纯虚数的最大值

$$\chi_{cas}^{(3)} = i \frac{\omega_a L}{c n_s} \frac{(\chi^{(2)})^2}{2} \quad (15)$$

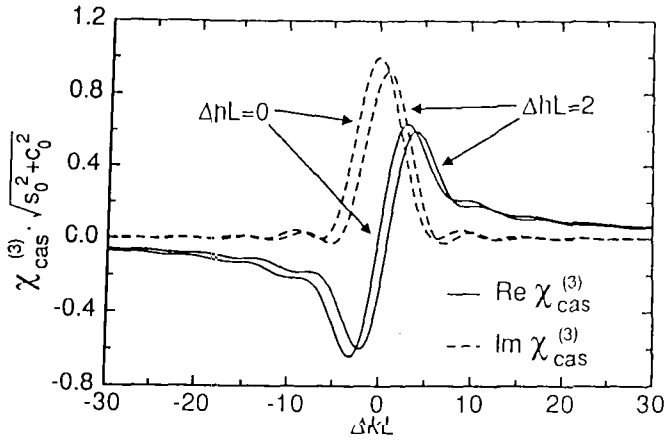


图 1 $\sqrt{S_0^2 + C_0^2} \chi_{cas}^{(3)}$ 随 $\Delta k L$ 的变化, 实部用实线表示, 虚部用划线表示

$\text{Im}\chi_{\text{ca}}^{(3)}$ 是由于二次谐波的产生, 泵浦光经过双光子吸收的结果。只不过这里泵浦光损失的两个光子转换成二次谐波的一个光子, 而不是激发材料中满带的电子到导带。如用双光子吸收系数表示三阶非线性极化率的虚部并考虑在简并情况下, 表达式是^[8]

$$\beta = \frac{\omega_a}{c^2 n_a^2 \epsilon_0} \text{Im}\chi_{\text{ca}}^{(3)} \quad (16)$$

代入 (12) 到 (16) 式, 得到

$$\beta = \frac{\omega_a}{c^2 n_0^2 \epsilon_0} \frac{\omega_a L}{c n_s} (\chi^{(2)})^2 \frac{1}{2} \frac{\sin^2(\frac{\Delta k L}{2})}{(\frac{\Delta k L}{2})^2} \quad (17)$$

忽略线性吸收, 泵浦光束 a 的强度沿传播方向衰减

$$\frac{d\Phi_a}{dz} = -\beta\Phi_a^2 \quad (18)$$

积分上式从 0 到 L , 得到

$$\Phi_a(L) = \frac{\Phi_a(0)}{1 + \Phi_a(0)bL} \quad (19)$$

假设 $\Phi_a(0)bL \ll 1$, 展开上式, 取前两项, 再把 (17) 式代入表示 b , 得到

$$\Phi_a(L) = \Phi_a(0) - \frac{\omega_a^2 L^2 (\chi^{(2)})^2}{2c^3 n_a^2 \epsilon_0 n_s} \Phi_a^2(0) \frac{\sin^2(\frac{\Delta k L}{2})}{(\frac{\Delta k L}{2})^2} \quad (20)$$

上式第二项是光束 a 传播距离 L 后, 光强的损失, 也正是二次谐波光强度的公式, 即 $\text{Im}\chi_{\text{ca}}^{(3)}$ 与二次谐波的产生公式表达了同一内容。由于 $\text{Im}\chi_{\text{ca}}^{(3)}$ 存在而损失的能量, 全部转换成二次谐波输出。

3 实验装置与测量结果

实验中使用输出波长是 $1.064\mu\text{m}$ 的固体锁模 Nd:YAG 激光器。采用主, 被动同时锁模, 从谐振腔输出的是稳定度好于 95% 的 4mJ 脉冲序列。用二阶相关法测量脉冲宽度是 30ps。实验中可用二分之一波片和格兰棱镜改变到测量系统的输入能量。用高速光电二极管测量脉冲信号, 经过 CAMAC 系统采集后输入到计算机中处理和贮存。实验中使用由福建物构所生产的商业产品 BBO 作为测量样品。以 I 类位相匹配角切割, 样品长度 $L = 10\text{mm}$ 。

测量由于 $\text{Re}\chi_{\text{ca}}^{(3)}$ 存在引起的自位相调制, 采用通常的简并 Z 扫描技术^[8]。测量安排如图 2 所示。测量中, 样品可在水平面转动和沿 z 方向移动。在简并方法中, 场 $a \equiv b \equiv c$, 因此 $\Delta h = 0$ 。场 a 经过自位相调制, 可表示为 $A_a(z) = A_a(0)\exp[i\Delta\varphi(z)]$ 。假设 $\Phi_s \ll \Phi_a$, 与场强有关的自位相漂移在样品输出端被近似给出:

$$\Delta\varphi(L) = \frac{\omega_a}{4cn_a} \text{Re}\chi_{\text{ca}}^{(3)} |A_a|^2 L \quad (21)$$

使用短脉冲, 只能测量时间平均位相漂移 $\langle\Delta\varphi\rangle$, 在 (21) 式中, 对脉冲期间积分后求平均, 和对光束强度分布的空间求积分, 我们得到

$$\langle\Delta\varphi\rangle = A \frac{L}{n_a^2} \text{Re}\chi_{\text{ca}}^{(3)} W_a \quad (22)$$

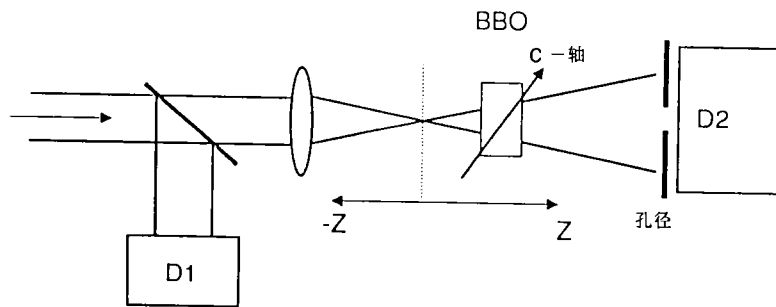


图2 测量BBO晶体自位相调制的简并Z-扫描实验装置,C轴是晶体的晶轴,与介电轴Z重合。D1和D2是高速光电二极管。

上式中 W_0 是脉冲 a 的能量, A 是与测量装置有关的常数。

测量BBO晶体的自位相调制采用由7~8个激光脉冲组成的序列输入到简并Z-扫描测量装置。激光序列的重复频率是1Hz。用CCD相机测量,聚焦后光束 $1/e$ 强度的光束腰半径 $\omega_0 \approx 0.09\text{mm}$ 。脉冲峰值功率是 $10\text{GW}/\text{cm}^2$ 。相对于位相匹配的两侧转动BBO晶体,测量 $\Delta\varphi$ 随 δ 的变化示于图3。 δ 是晶体外部波矢方向相对于晶体位相匹配方向的夹角。图中 $\Delta\varphi$ 附号在位相匹配方向两侧的改变是由于 Δk 附号的改变。根据BBO的Sellmeier数据^[9],在小 δ 时,计算得到 $\Delta k [\text{cm}^{-1}] \approx 6.6 \times 10^3 \delta [\text{rad}]$ 。图3中实线是根据公式(21)对实验数据的曲线拟合。拟合中,使用关系 $\chi^{(2)} = 2d_{eff}$, 并考虑 n_i 是随着 δ 变化的。测量中,场 a 在 o 方向偏振,二次谐波场在 e 方向偏振,有效二阶非线性系数

$$d_{eff} = d_{11} \cos \theta_{in} + d_{31} \sin \theta_{in} \quad (23)$$

θ_{in} 是在晶体内,波矢方向与晶体介电轴 z 方向的夹角。且有关系 $\sin(\theta_{in} - \theta_m) = \sin \delta / n_e$ 。 θ_m 是位相匹配角。作为比较,BK7玻璃 $\Delta\varphi$ 的测量结果被10倍的画在图3中。在 $\delta = 0.7^\circ$ 时获得BBO位相漂移的最大测量值是BK7玻璃的18倍。当 $|\delta| < 0.7^\circ$ 时,应该得到更大的位相漂移,但由于 $\chi^{(2)}$ 的增加,小信号转换近似将不再满足,实验数据将偏离理论曲线。

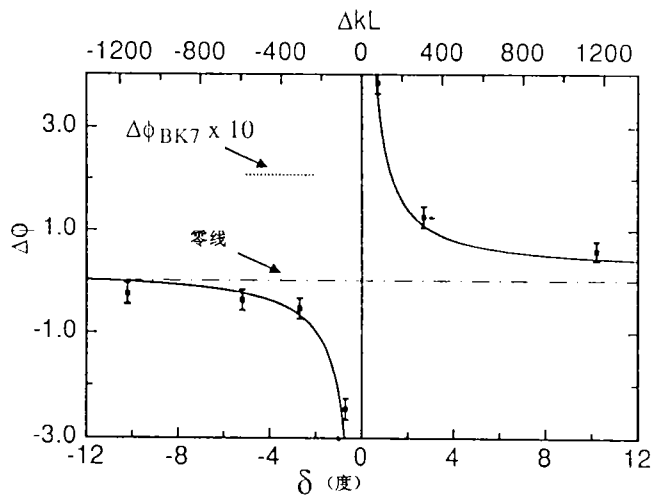


图3 自位相漂移 $\Delta\varphi$ 随 δ 的变化, $\Delta\varphi_{\text{BK7}}$ 与 δ 无关。

测量中,光强 $\Phi_0 = 10\text{GW}/\text{cm}^2$ 。

测量 BBO 晶体光学混频的近简并三波混频的实验安排如图4^[10]。测量中使用与测量自位相调制时相同的 BBO 样品。来自 Nd:YAG 锁模激光器的脉冲序列经过普克尔盒选出单个脉冲后进行两级放大, 获得20mJ 和30ps 的单脉冲。脉冲的一部分直接提供场 a , 另一部分通过 Raman 池获得很小的 Stocks 和反 Stocks 频移, $\frac{\Delta\omega}{c} \approx 260[\text{cm}^{-1}]$ 。通过光栅选出 Stocks 频移作为场 b 。场 a 接近于高斯光束空间分布。在 FWHM 强度的光束尺寸是2.2mm, 峰值强度可被改变从 10^{-2} 到 $1\text{GW}/\text{cm}^2$ 。场 b 被聚焦成0.44mm 的小光束尺寸。这样, 它很容易被调整到与场 a 的共线中心。用二阶相关法调整场 a 与场 b 的时间同步。场 b 的最大峰值强度是 $40\text{MW}/\text{cm}^2$ 。混频场 c 的频率 $\omega_c = 2\omega_a - \omega_b$ 。场 c 的脉冲能量经过单色仪分光后被光电倍增管检测。为了提高测量脉冲 c 能量的信噪比, 在单色仪后, 使用窄带干涉滤波片减少脉冲 a 和 b 的杂光。根据公式 (9), 我们可以得到由光电倍增管测量脉冲 c 的能量

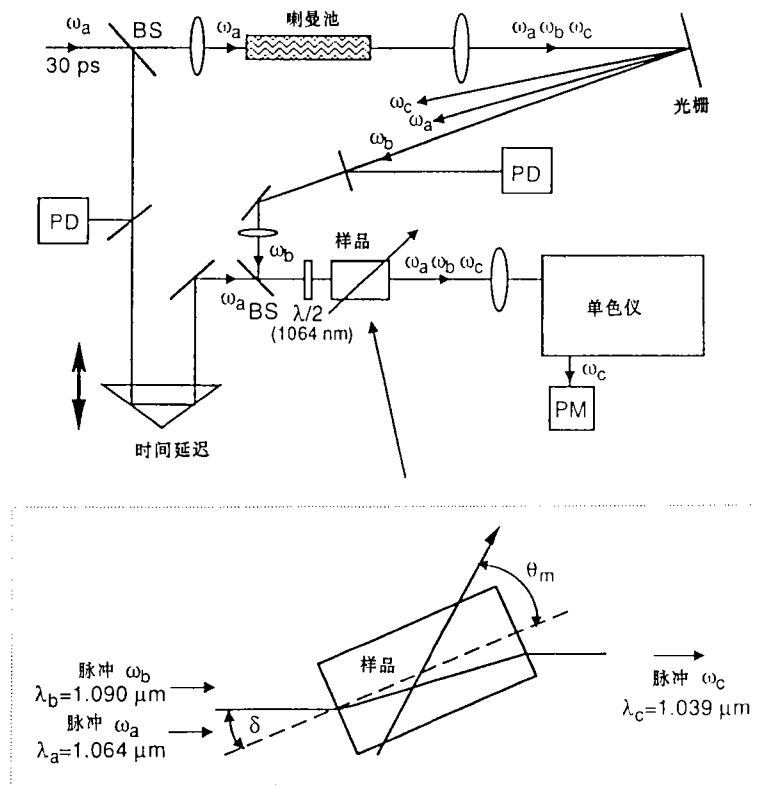


图4 测量光学混频近简并三波混频的实验安排, 脉冲 ω_a , ω_b 和 ω_c 的偏振方向都与纸平面垂直。

$$W_c = B \frac{L^2}{n_a^2} |\chi_{ii}^{(3)}| W_a^2 W_b \quad (24)$$

W_b 是脉冲 b 的能量。 B 类似于常数 A , 是与测量装置有关的常数。与测量 BBO 的自位相调制时相同, 为了与参考材料比较, 组合 W_c 与入射各脉冲能量, 样品长度和折射率, 得到与 $|\chi_{ii}^{(3)}|^2$ 成正比的归一化量为

$$\xi = \frac{W_c}{W_a^2 W_b} \frac{n_a^2}{L^2} \quad (25)$$

转动 BBO 晶体, 随着 δ 的增加, 产生了 ξ 的单调增加和减少, 如图5和图6所示。图6是图5在 δ 方向坐标的扩展。图中实线是根据公式 (10) 对实验数据的 $|\chi_{ii}^{(3)}|^2$ 拟合。整个过程有位相失配是 $\Delta h = \Delta h_a + \Delta h_d$ 。这里 Δh_a [cm^{-1}] $\approx 0.037\alpha^2$ [mrad] 是由于光束 a 与 b 的不平行起的位相失配。 Δh_d 是由于晶体的色散引起的位相失配, 经计算 $\Delta h_d \approx -0.3$ [cm^{-1}]。如再考虑光束 b 的扩散角, 估计 ΔhL 在 ± 0.3 的范围, 根据图1, 这样小的量是可以忽视的, 因此在图5和图6中的实验曲线拟合中采用 $\Delta hL = 0$ 。 ξ 随 δ 变化曲线的非对称性表明了 $\text{Re}\chi_{ii}^{(3)}$ 随 Δk 的附号变化, 这一点在图3也表示的很清楚。从图5看出, 当 $|\delta| > 0.5^\circ$ 时, 这个非对称性变得明显, 因为这时 $\chi_{ii}^{(3)}$ 和 $\chi_{iii}^{(3)}$ 是可比较的。当 $|\delta| < 0.5$ 时, 级联二阶效应起主要作用, 有 $\chi_{ii}^{(3)} \approx \chi_{iii}^{(3)}$ 。在这个范围, 如图6所示, 只有在

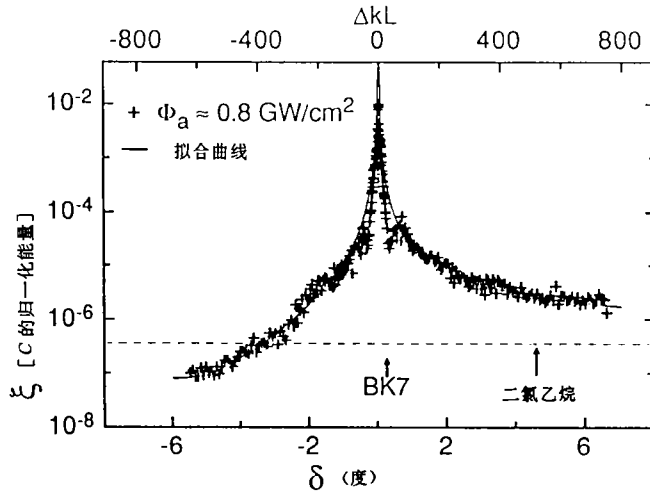


图5 ξ 随 δ 的变化, BK7玻璃和二氯乙烷的测量与 δ 无关。测量中, 峰值强度 $\Phi_a \approx 0.8 \text{ GW/cm}^2$, $\Phi_b \approx 40 \text{ MW/cm}^2$, 图中实线是根据公式 (10) 对 $|\delta| > 0.5^\circ$ 的测量数据的最小二乘法曲线拟合。

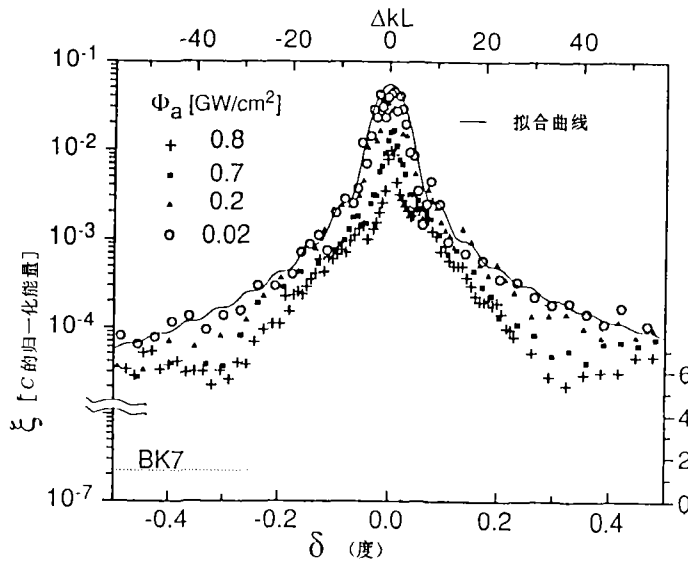


图6 图5在 δ 方向坐标的扩展、但增加了在弱光强 Φ_a 下获得的数据。

低光强 Φ_a 下测量的数据才服从公式 (10)。在 $\Phi_a = 20\text{MW}/\text{cm}^2$ 和 $\delta = 0$ 时, 场 a 的二次谐波转换效率小于 0.07, 能量由脉冲 b 到 c 的转换效率 $W_c/W_b \approx 10^{-2}$ 。在这个 Φ_a 下, 公式 (10) 是适用的。当 Φ_a 较大, 而且 $|\delta| < 0.5^\circ$ 时, 如图 6 所示, 实验结果将偏离由小信号转换近似获得的公式 (10)。

4 讨 论

通过与参考三阶非线性材料, 如 BK7 和二氧乙烷比较, 我们可以估计 BBO 的固有三阶非线性极化率 $\chi_0^{(3)}$ 和二阶非线性系数 d_{11} 。根据图 3 中测量 BBO 自位调制实验数据的曲线拟合, 并考虑参考材料的不同长度和折射率, 我们得到 $\chi_0^{(3)}/\chi_{\text{BK7}}^{(3)} = 1.4$ 和 $d_{11}^2/\chi_{\text{BK7}}^{(3)} = 7.6 \times 10^{-3}$ 。如考虑 $\chi_{\text{BK7}}^{(3)} = 4.5 \times 10^{-22} \text{m}^2/\text{V}^2$ [11, 12], 可得到 $\chi_0^{(3)} = 6.3 \times 10^{-22} \text{m}^2/\text{V}^2$ 和 $d_{11} = 1.84 \text{pm}/\text{V}$ 。在用光学混频测量数据曲线拟合的图 5 和图 6 中, 我们获得参数 $\chi_0^{(3)}/\chi_{\text{BK7}}^{(3)} = 1.6$ 和 $d_{11}^2/\chi_{\text{BK7}}^{(3)} = 6.8 \times 10^{-3}$, 考虑相同的 $\chi_{\text{BK7}}^{(3)}$ 值, 得到 $\chi_0^{(3)} = 7.2 \times 10^{-22} \text{m}^2/\text{V}^2$ 和 $d_{11} = 1.75 \text{pm}/\text{V}$ 。根据文献中的数据, d_{11} 在 1.6 到 2.2 pm/V 之间 [9, 13, 14], 与我们的测量结果相一致。BBO 的固有三阶非线性极化率 $\chi_0^{(3)}$ 的数据未见发表。由自位相调制和光学混频获得 $\chi_0^{(3)}$ 的不同可能是实验误差, 也可能是由于测量技术的不同所引起。在自位相调制测量中, 低频振动模式 $\omega_{\text{vib}} < \omega_a - \omega_b$ 可能对 $\chi_0^{(3)}$ 和 $\chi_{\text{BK7}}^{(3)}$ 有贡献。此外在自位相调制中, 使用 $\chi^{(3)}(\omega_a; \omega_a, \omega_a, -\omega_a)$, 而在光学混频中使用 $\chi^{(3)}(\omega_c; \omega_a, \omega_a, -\omega_b)$ 这些也可能会引起结果的不同。测量二阶非线性材料的三阶非线性极化率也为我们提供了交叉检验材料的二阶非线性系数 d 和三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}$ 的方法。即测量 d 可由标准二阶参考材料的 d , 如 KDP 晶体的 d_{36} 作为标准比较, 也可用标准三阶参考材料的 $\chi^{(3)}$, 如 BK7 玻璃等作为标准比较。同样, 测量 $\chi^{(3)}$ 可用已知三阶材料的 $\chi^{(3)}$, 也可用二阶非线性材料的 d 作为标准参考。

在应用中, 通常要求三阶非线性材料具有小的 $\text{Im}\chi^{(3)}$ 和大的 $\text{Re}\chi^{(3)}$, 即少的光能量损失和大的非线性折射率。级联二阶过程为我们提供了这种可能。从图 7 的 $1.064\mu\text{m}$ 波长的 BBO 二次谐波转换曲线可看出, 当 $\Delta kL = \pm 2\pi$ 时, 场 a 的转换效率是零。但根据图 6 的数据, 场 c 的转换仍是相当大的。这时, 级联二阶效应产生的三阶非线性极化率是纯实数, 它的值被测量是 $\chi_{\text{cas}}^{(3)} = 7.4 \times 10^{-20} \text{m}^2/\text{V}^2$, 比 $\chi_0^{(3)}$ 大 100 倍。

从图 6 中可以看出, 在高强度 Φ_a 下, ξ 的测量数据在对称的 δ 位置有两个宽的孔。左边的一个是由于和频过程 $\omega_a + \omega_b$ 的位相匹配引起光束 b

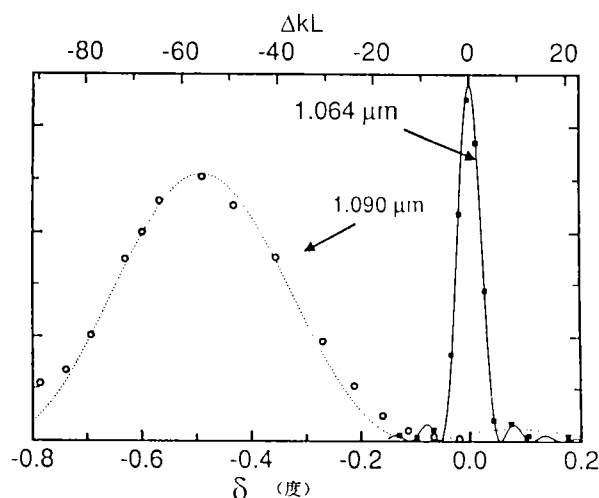


图7 场 a ($1.064\mu\text{m}$ 波长) 和场 b ($1.090\mu\text{m}$ 波长) 的二次谐波转换效率

的耗尽。从图7中可看出,场 b 的与场 a 的位相匹配角有 0.5° 的不同。这样我们可以估计和频过程 $\omega_a + \omega_b$ 的位相匹配角应在图6中的 $\delta = -0.25^\circ$ 左右。根据 Sellmeier 数据的计算也证实了这点。而图6中孔的位置在 $\delta = 0.3^\circ$ 附近。这个不同是由于 $\Phi_a \gg \Phi_b$ 所引起。图6中右边的孔是由于和频过程 $\omega_a + \omega_c$ 的位相匹配的所引起。两个孔的大小的宽度都是由于光束 b 的大发散角所致。

在高强度下,图6中场 a 位相匹配角附近的实验数据与拟合曲线的偏离是由于不满足小信号转换近似所引起。在这种情况下,除了四波相互作用,其它的非线性光学现象也可能出现,如前面提到的和频过程。此外,参量放大也可能发生。在 $\delta = 0$ 时,测量场 b 和场 c 的增益如图8所示。当 $\Phi_a > 80 \text{ MW/cm}^2$ 时,场 b 和场 c 增益随 Φ_a 的迅速增加表明了参量放大的发生。参量放大过程可以表示为 $\omega_a + \omega_a \rightarrow \omega_a \rightarrow \omega_b + \omega_c$ 。图8中的匹配曲线公式将在下面推导。

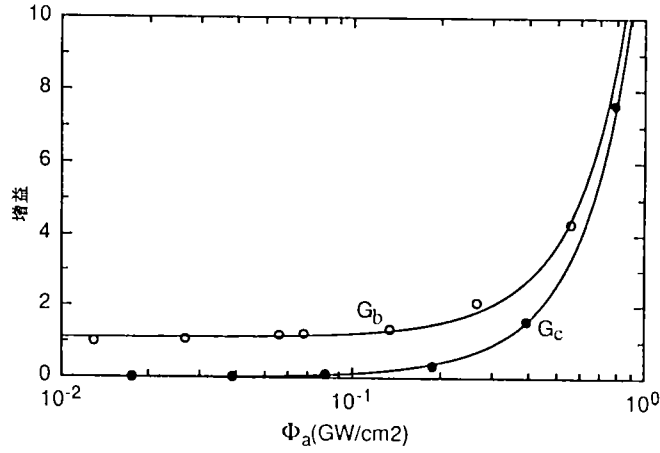


图8 混频中的光学参量放大

随着 δ 的减小和 Φ_a 的增加,场 a 的二次谐波场的产生将不满足小信号转换近似,即 $A_s(z')$ 不能由公式 (5) 得到。在 $\delta = 0$ 的情况下,我们重新写出 (4) 式

$$\frac{dA_s(z)}{dz} = i \frac{\omega_a}{2n_{ac}} \chi^{(2)} [A_s^2(z) + 2A_b(z)A_c(z)] \quad (26)$$

场 a 也不再是常数

$$\frac{dA_a(z)}{dz} = i \frac{\omega_a}{2n_{ac}} \chi^{(2)} A_s(z)A_s^*(z) \quad (27)$$

假设尽管 $A_s(z)$ 与 $A_s^*(z)$ 是可比较的,但仍有 $A_s(z) \gg A_b(z)$ 和 $A_s(z) \gg A_c(z)$ 的条件满足,即 (26) 式中的第二项可以忽略。联解 (26) 和 (27) 式,并积分 z 从 0 到 z' , 可得到众所周知的双曲函数的解^[15]

$$A_s(z') = iA_s(0) \text{tgh}[Kz'A_s(0)] \quad (28)$$

上式中, $K = \frac{\omega_a}{2n_a} \chi^{(2)}$ 。在公式 (6) 中,考虑 Δh 和 Δk 都为零,代入 (28) 式作为 $A_s(z')$, 公式变为

$$\frac{dA_c(z')}{dz'} = \frac{\omega_c}{2n_{ac}} \chi^{(2)} A_s(0)A_s^*(z') \text{tgh}[Kz'A_s(0)] \quad (29)$$

由于 $A_s(z')$ 很大, $A_s^*(z)$ 不能作为常数考虑,有

$$\begin{aligned} \frac{dA_s^*(z')}{dz'} &= -i \frac{\omega_b}{2n_{bc}} \chi^{(2)} A_s^*(z')A_c(z') \\ &= \frac{\omega_b}{2n_{bc}} \chi^{(2)} A_s(0)A_c(z') \text{tgh}(Kz'A_s(0)) \end{aligned} \quad (30)$$

令 $A'_b(z') = A_s^*(z') \sqrt{\frac{\omega_c}{n_c}}$, $A'_c(z') = A_c(z') \sqrt{\frac{\omega_b}{n_b}}$ 和 $g = \frac{1}{2c} \sqrt{\frac{\omega_c}{n_c} \frac{\omega_b}{n_b}} \chi^{(3)} A_s(0)$, 公式 (29) 和

(30) 被简化为

$$\frac{dA'_c(z')}{dz} = \text{gtgh}[Kz'A_a(0)]A'_b(z') \quad (31)$$

$$\frac{dA'_b(z')}{dz'} = \text{gtgh}[Kz'A_a(0)]A'_c(z') \quad (32)$$

联解 (31) 和 (32) 式, 并考虑到 $\frac{n_a}{\omega_a} \sqrt{\frac{\omega_b}{n_b} \frac{\omega_c}{n_c}} \approx 1$, 积分从 0 到 L , 得到场 b 和 c 的能量增益表达式

$$G_b = \frac{W_b(L)}{W_b(0)} = \frac{1}{4} \left[\frac{1 + \cosh^2(gL)}{\cosh(gL)} \right]^2 \quad (33)$$

$$G_c = \frac{W_c(L)}{W_c(0)} = \frac{1}{4} \left[\frac{1 - \cosh^2(gL)}{\cosh(gL)} \right]^2 \quad (34)$$

图8中的实线是由公式 (33) 和 (34) 对实验数据的曲线拟合。

级联二阶效应可为二阶非线性材料的应用提供新的可能性。有机晶体材料通常具有较高的二阶非线性系数, 如 NPP 的 $d_{21} = 84 \text{ pm/V}^{[16]}$, 根据公式 (10) 可算得 $|\chi_{\text{cos}}^{(3)}|$ 达 $10^{-16} \text{ m}^2/\text{V}^2$ 。阻碍有机晶体应用的主要障碍是在高重复频率下工作时, 它的光损坏阈值较低, 尤其在吸收系数较高的引见光波段。引起低损坏阈值的主要原因是它的低热电导性。在频率混合的应用中, Φ_c 与 $\langle \Phi_b \rangle d^2 L^2$ 成正比。 $\langle \Phi_b \rangle$ 是中间场的平均光强, 通常在可见光波段。由于有机晶体的 d 很大, 如选取合适的 $\langle \Phi_b \rangle$ 与晶体长度 L , 可以减小光损坏的危险。

级联二阶效应的一个可能的应用领域是在光波导开关中, 有些材料具有很大非位相匹配二阶非线性系数, 如 ZnTe ($d_{\text{eff}} \approx 100 \text{ pm/V}$) 和 MNA ($d_{11} \approx 2000 \text{ pm/V}^{[17]}$)。如被用在光波导中, 利用模式匹配能获得 $|\chi_{\text{cos}}^{(3)}| = 10^{-15} \sim 10^{-16} \text{ pm/V}$ 量级的三阶非线性光学极化率。而且响应速度是纯电子型的。而典型的有机三阶材料, 如 4-BCMU, 根据文献 [18] 中的 n_2 数据计算, $\chi^{(3)} \approx 2 \times 10^{-19} \text{ m}^2/\text{V}^2$ 。

5 结 论

本文讨论了级联二阶过程及由此引起的三阶光学非线性, 并由自位相调制和光学混频的方法研究了 BBO 晶体中的三阶非线性效应。通过这些研究我们可以认为, 二阶非线性晶体中的级联二阶过程可以获得大的和快的三阶非线性效应。根据这一效应, 光学晶体很可能被应用到全光学开关器件中。

参 考 文 献

- [1] J. M. Yarborough, E. O. Ammann, Appl. Phys. Lett., 1971, 18: 145
- [2] R. DeSalvo, D. J. Hagan, M. Sheik-Bahae, G. Stegeman, E. W. Van Stryland, and H. Vanherzeele, Opt. Lett., 1992, 17: 28

- [3] R. Danielius, P. Di. Trapani, A. Piskarskas, D. Podenas, A. Varanavicius and G. P. Banfi, *Opt. Lett.*, 1993, 18: 574
- [4] M. L. Sundheimer, Ch. Bosshard, E. W. Van Stryland and G. I. Stegeman, *Opt. Lett.*, 1993, 18: 1397
- [5] Roland Schiek, *J. Opt. Soc. Am. B10*, 1993: 1848
- [6] D. C. Hutchings, J. S. Aitchison, and C. N. Ironside, *Opt. Lett.*, 1993, 18: 793
- [7] G. Assanto, G. I. Stegeman, M. Sheik-Bahae and E. Van Stryland, *Appl. Phys. Lett.*, 1993, 62: 1323
- [8] M. Sheik-Bahae, Ali A. Said, Tai-Huei Wei, D. J. Hagan, and E. W. Van Stryland, *IEEE J. Quantum Electron.*, 1990, QE-26: 760
- [9] BBO 晶体数据手册. 福建 Castech 晶体公司, 1991
- [10] R. Adair, L. L. Chase and S. A. Payne, *J. Opt. Soc. Am.*, 1987, B4: 875
- [11] J. R. Heflin, Y. M. Cai and A. F. Garito, *J. Opt. Soc. Am.*, 1991, B18: 2132
- [12] D. C. Brown. *High-Peak-Power Nd: glass laser systems*. Springe. Berlin, 1981: 52
- [13] R. C. Eckardt, H. Masuda, Y. X. Tan, R. L. Byer, *IEEE J. Quantum Electron.*, 1990, QE-26: 922
- [14] D. Eimerl, L. Davis and S. Velsko, *J. Appl. Phys.*, 1987, 62: 1968
- [15] A. Yariv, *Quantum Electronics*. John Wiley & Sons. New York, 1989
- [16] I. Ledoux, C. Lepers, A. Perigaud. J. Badan and J. Zyss, *Opt. Comm.*, 1990, 80: 149
- [17] B. F. Levine, C. G. Bethea, C. D. Thurmond, R. T. Lynch, and J. L. Bernstein, *J. Appl. Phys.*, 1979, 50: 2523
- [18] J. E. Ehrlich, J. D. Valera, A. Darzi and A. C. Walker, *Appl. Phys. Lett.*, 1991, 59: 2938

Cascaded Second-Order Processes and Third Order Optical Nonlinear Effects in BBO Crystal

Tan Huiming

*(Changchun Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences,
Changchun 130021)*

G. P. Banfi

(University of Pavia, Italy)

Abstract

The cascaded second-order processes in nonlinear optical crystals is discussed. In small signal conversion condition, the processes are formularized by third order susceptibilities. We researched the cascaded second-order processes in BBO crystal with self-phase modulation and optical frequency mixing experiments. We found that since cascaded second-order processes, the third order nonlinearity is enhanced evidently and the susceptibility is about $10^{-19} \text{ m}^2/\text{V}^2$.

Key Words: Nonlinear optics, BBO crystal, Cascaded second-order Processes, Third-order nonlinearity.