

第十六章 非线性光学导论-----二次谐波产生

16.0 引言

非线性光学现象的理论描述涉及到激光辐射场与物质相互作用的问题，通常采用半经典理论处理。

宏观麦克斯韦方程可以写成：

$$\nabla \times H = i + \frac{\partial D}{\partial t} = i + \frac{\partial}{\partial t} (\epsilon_0 E + P)$$
$$\nabla \times E = -\frac{\partial}{\partial t} (\mu_0 H)$$

i 为宏观传导电流密度矢量。介质感应的极化强度 P 可以写为线性项和非线性项之和，

$$P = \epsilon_0 \chi_L E + P_{NL}$$

非线性光学效应的唯象描述中，把极化强度 P 展开为外场的幂级数的形式即：

$$P = \chi^{(1)} \cdot \vec{E} + \chi^{(2)} \bullet \vec{E}\vec{E} + \chi^{(3)} \vdots \vec{E}\vec{E}\vec{E} + \dots$$

式中 $\chi^{(r)}$ 为非线性光学介质的 r 阶非线性光学极化率张量，是描述非线性光学介质对外场的响应特性。

非线性光学问题可以归结为两个问题：

- 求出非线性光学介质感应的非线性极化强度 P^{NL} ，求得 P^{NL} 后，将其作为次波源。
- 在一定的边界条件下求解麦克斯韦方程，从而求得非线性辐射场。

16.1 二阶非线性光学极化率张量

考虑两个光场（ ω_1 和 ω_2 ）通过二阶非线性介质（非线性晶体）耦合。

ω_1 和 ω_2 光场的电矢量分别沿j和k方向，于是可以表示为

$$E_j^{\omega_1}(t) = \text{Re}(E_j^{\omega_1} e^{i\omega_1 t}) = \frac{1}{2} (E_j^{\omega_1} e^{i\omega_1 t} + c.c) \quad (16.1-1)$$

$$E_k^{\omega_2}(t) = \text{Re}(E_k^{\omega_2} e^{i\omega_2 t}) \quad (16.1-2)$$

它们通过与二阶非线性介质相互作用，可以引起和频频率为 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$

的极化强度分量，方向沿 i 的极化强度分量，

$$P_i^{\omega_3}(t) = \text{Re}(P_i^{\omega_3} e^{i\omega_3 t}) \quad (16.1-3)$$

其中的感应极化强度 $P_i^{\omega_3}$ 可以写成

$$P_i^{\omega_3} = d_{ijk}^{\omega_3 = \omega_1 + \omega_2} E_j^{\omega_1} E_k^{\omega_2} \quad (16.1-4)$$

式中要对重复下标求和。 d_{ijk} 为二阶极化率张量。

用类似方法可以表示出差频 ($\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$) 极化强度

$$P_i^{\omega_3} = d_{ijk}^{\omega_3 = \omega_1 - \omega_2} E_j^{\omega_1} E_k^{-\omega_2} \quad (16.1-5)$$

式中有 $E_k^{-\omega_2} = (E_k^{\omega_2})^*$

二阶非线性光学晶体---具有非中心对称的晶体

在有对称中心的晶体中，如果 $E_j^{\omega_1}$ 和 $E_k^{\omega_2}$ 改变符号，必引起

$P_i^{\omega_3=\omega_1+\omega_2}$ 改变符号且振幅不变，利用(16.1-4)式则有

$$d_{ijk}^{\omega_3=\omega_1-\omega_2} E_j^{\omega_1} E_k^{\omega_2} = -d_{ijk}^{\omega_3=\omega_1-\omega_2} (-E_j^{\omega_1})(-E_k^{\omega_2})$$

因此 $d_{ijk} = 0$ ，可见只有非中心对称的晶体才可能具有非零 d_{ijk} 张量，

即二阶非线性光学效应仅发生在非中心对称的晶体中。

极化率张量的内禀交换对称性

通常在二阶非线性效应中，晶体在 ω_1, ω_2 和 ω_3 的整个波段是透明的。

这将使得 P 是 E 的单值函数，于是有

$$P_i(t) = d_{ijk} E_j(t) E_k(t) \quad (16.1-6)$$

式中 d_{ijk} 与频率无关。遇有相同脚标时，需对其求和。

考虑到(16.1-6)式中的 E_j 和 E_k 可以随意交换（交换没有任何物理意义），因此可以得到 $d_{ijk} = d_{ikj}$ ，因此可以将下标 jk 用单个符号

代替，即 $xx = 1 \quad yy = 2 \quad zz = 3$

$$yz = zy = 4 \quad xz = zx = 5 \quad xy = yx = 6$$

于是，张量 d_{ij} 成为一个 3×6 矩阵，(16.1-6)式可以改写成

$$\begin{pmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x^2 \\ E_y^2 \\ E_z^2 \\ 2E_z E_y \\ 2E_z E_x \\ 2E_x E_y \end{pmatrix}$$

表16.1给出了几种典型对称性的晶体的非线性光学张量 d_{ij} 的形式。

表 16.1 由式(16.4)定义的非线性光学张量 d_{ijk} 的形式^[9]

关键符号	
•	零系数
•	非零系数
—•	系数相等
—○	系数数值相等符号相反

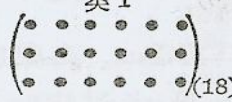




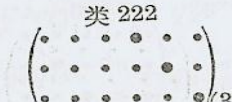
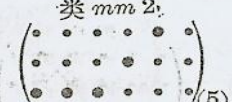
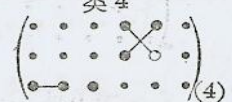

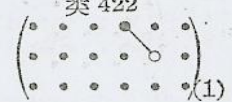
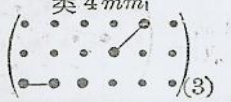
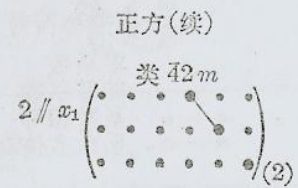
中心对称类 (所有系数为零)	
非中心对称	
三斜 类 1	
	
(18)	
单斜	
$2 // x_2$ (标准取向)	$2 // x_3$ (标准取向)
	
(8)	(8)
$m \perp x_2$ (标准取向)	$m \perp x_3$ (标准取向)
	
(10)	(10)
正交斜方	
222 类 222	$mm2$ 类 $mm2$
	
(8)	(5)
正方	
4 类 4	4 类 4
	
(4)	(4)
422 类 422	$4mm$ 类 $4mm$
	
(1)	(3)

表16.1



例如：点群对称性为 $\bar{4}2m$ 的 KH_2PO_4 (KDP) 晶体，其张量 d_{ij} 为

$$d_{ij} = \begin{vmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{36} \end{vmatrix} \quad (16.1-8)$$

则非线性极化强度分量可以写成，

$$P_x = 2d_{14}E_z(t)E_y(t) \quad (16.1-9a)$$

$$P_y = 2d_{14}E_z(t)E_x(t) \quad (16.1-9b)$$

$$P_z = 2d_{36}E_x(t)E_y(t) \quad (16.1-9c)$$

16.2 非线性场的哈密顿----极化率张量的克莱因曼全交换

电子过程：当参与相互作用的光频比离子共振频率高很多时，极化强度仅来自于电子的位移的贡献，可以忽略离子的贡献。

无损耗过程：光频比电子吸收带低很多时，可以认为是无损耗过程。

考虑上述纯电子过程和无损耗过程后，可以由半经典理论推导出非线性光学常数 d_{ijk} 的表达式（见附录4中的的推导式(A-4-19)）。由这个公式可以得到， $d_{ijk}^{\omega_3=\omega_1+\omega_2}$ 有下述置换对称性：

$$d_{ijk}^{\omega_3=\omega_1+\omega_2} = d_{jki}^{\omega_1=-\omega_2+\omega_3} = d_{kij}^{\omega_2=\omega_3-\omega_1}$$

即下标的次序重新排列得到的所有 d_{ijk} 系数都是相等的，被称为**克莱因曼猜想**。**克莱因曼猜想仅适用于无损耗（吸收）介质**。于是，利用克莱因曼猜想可以将独立的 d_{ijk} 系数缩减到**10个**

$$\begin{vmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{16} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{14} & d_{12} \\ d_{15} & d_{24} & d_{33} & d_{23} & d_{13} & d_{14} \end{vmatrix} \quad (16.2-6)$$

对前面提到的**KDP**晶体，两个独立的系数 d_{14} 和 d_{36} 相等，缩减为一个。

16.3 非线性光学系数的物理起源

本节采用经典的非谐振子模型讨论非线性光学系数 d_{ij} 。假设电子对光场的响应可以用在非谐振势阱中电子的运动来模拟。此时电子的运动方程为，

$$\frac{d^2 X}{dt^2} + \gamma \frac{dX}{dt} + \omega_0^2 X + DX^2 = \frac{eE_0}{2m} (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}) \quad (16.3-1)$$

式中 X 相对势能最小点的偏离， mDX^2 是非谐振恢复力， γ 是阻尼项，方程式右边为驱动电场。

考虑二次谐波产生（倍频）情况， $\omega_1 + \omega_2 = 2\omega$ ，即对于

$$\omega_1 + \omega_2 = \omega_3, (\omega_1 = \omega_2 = \omega, \quad \omega_3 = 2\omega)$$

方程的解可以写成

$$X = \frac{1}{2} (q_1 e^{i\omega t} + q_2 e^{i2\omega t} + c.c.) \quad (16.3-2)$$

将其代入(16.3-1)式, 令等式两边 $e^{i\omega t}$ 的系数相等, 并假定

$Dq_2 \ll [(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \gamma^2]^{1/2}$ 可得

$$q_1 = \left(\frac{eE_0}{m} \right) \frac{1}{(\omega_0^2 - \omega^2) + i\omega\gamma} \quad (16.3-4)$$

线性极化率 $\chi_L^{(\omega)}$ 定义为

$$\begin{aligned} P^{(\omega)}(t) &= \frac{\epsilon_0}{2} (\chi_L^{(\omega)} E_1 e^{i\omega t} + c.c.) \\ &= \frac{Ne}{2} (q_1 e^{i\omega t} + c.c.) \end{aligned} \quad (16.3-5)$$

式中 \mathbf{N} 为对 \mathbf{P} 有贡献的单位体积的电子数。于是可以得到

$$\chi_L^{(\omega)} = \frac{Ne^2}{m\varepsilon_0[(\omega_0^2 - \omega^2) + i\omega\gamma]} \quad (16.3-6)$$

用类似的方法（令等式两边 $e^{i2\omega t}$ 的系数相等）可以求出 q_2 ，

$$q_2 = \frac{-De^2 E_0^2}{2m^2[(\omega_0^2 - \omega^2) + i\omega\gamma]^2(\omega_0^2 - 4\omega^2 + i2\omega\gamma)} \quad (16.3-7)$$

按下式定义非线性极化率 $d_{NL}^{(2\omega)}$

$$\begin{aligned} P^{(2\omega)}(t) &= \frac{1}{2} Ne(q_2 e^{i2\omega t} + c.c.) \\ &= \frac{1}{2} (d_{NL}^{(2\omega)} E_0^2 e^{i2\omega t} + c.c.) \end{aligned} \quad (16.3-8)$$

于是可得

$$d_{NL}^{(2\omega)} = \frac{-DNe^3}{2m^2[(\omega_0^2 - \omega^2) + i\omega\gamma]^2(\omega_0^2 - 4\omega^2 + i2\omega\gamma)} \quad (16.3-9a)$$

利用(16.3-6)式得

$$d_{NL}^{(2\omega)} = \frac{mD(\chi_L^{(\omega)})^2 \chi_L^{(2\omega)} \epsilon_0^3}{2N^2 e^3} \quad (16.3-9b)$$

定义参量 $\delta^{(2\omega)}$ 为

$$\delta^{(2\omega)} = \frac{d_{NL}^{(2\omega)}}{(\chi_L^{(\omega)})^2 \chi_L^{(2\omega)} \epsilon_0^3} \quad (16.3-10)$$

该参量值为

$$\delta^{(2\omega)} = \frac{mD}{2e^3 N^2} \quad (16.3-11)$$

在三维情况下，参量 $\delta^{(2\omega)}$ 表示为

$$\delta_{ijk}^{(2\omega)} = \frac{d_{ijk}^{(2\omega)}}{\chi_{ii}^{(2\omega)} \chi_{jj}^{(\omega)} \chi_{kk}^{(\omega)} \epsilon_0^3} \quad (16.3-12)$$

此时该参量被称为米勒系数。

表16.2给出了一些晶体的非线性光学系数 $d_{ijk}^{(2\omega)}$ 和米勒系数 $\delta^{(2\omega)}$ ，可以发现 $d_{ijk}^{(2\omega)}$ 值的范围扩展四个数量级（如由ADP晶体到Te晶体），但是 $\delta^{(2\omega)}$ 的取值在其平均值 $\delta^{(2\omega)} \sim 2 \times 10^9$ 的2倍范围内。

利用非线性极化率与线性极化率的三次方成正比的关系式

$$\left(\delta^{(2\omega)} = \frac{d_{NL}^{(2\omega)}}{(\chi_L^{(\omega)})^2 \chi_L^{(2\omega)} \epsilon_0^3} \right), \text{ 可以由晶体的折射率 } (\epsilon = \epsilon_0(1 + \chi_L^{(\omega)}))$$

和对称性预言非线性极化率。

表 16.2 某些晶体的非线性光学系数^[1]

晶 体	$d_{ijk}^{(2\omega)}$ ($\frac{1}{9} \times 10^{-22}$ MKS 为单位)	δ_{ijk} (以 10^9 为单位)
LiIO ₃	$d_{15}=4.4$	
NH ₄ H ₂ PO ₄ (ADP)	$d_{36}=0.45$ $d_{14}=0.50 \pm 0.02$	3.2 3.2
KH ₂ PO ₄ (KDP)	$d_{36}=0.45 \pm 0.03$ $d_{14}=0.35$	3.4 3.4
KD ₂ PO ₄	$d_{36}=0.42 \pm 0.02$ $d_{14}=0.42 \pm 0.02$	3.1 3.1
KH ₂ AsO ₄	$d_{36}=0.48 \pm 0.03$ $d_{14}=0.51 \pm 0.03$	2.9 3.1
石 英	$d_{11}=0.37 \pm 0.02$	2.3
AlPO ₄	$d_{11}=0.38 \pm 0.03$	2.5
ZnO	$d_{33}=6.5 \pm 0.2$ $d_{31}=1.95 \pm 0.2$ $d_{15}=2.1 \pm 0.2$	4.0 1.3 1.5
CdS	$d_{33}=28.6 \pm 2$ $d_{31}=30 \pm 10$ $d_{36}=33$	3.8 1.9 2.3
GaP	$d_{14}=80 \pm 14$	1.5
GaAs	$d_{14}=72$	2.0
BaTiO ₃	$d_{33}=6.4 \pm 0.5$ $d_{31}=18 \pm 2$ $d_{15}=17 \pm 2$	1.3 3.1 2.9
LiNbO ₃	$d_{15}=4.4$ $d_{22}=2.3 \pm 1.0$	1.4 0.66
Te	$d_{11}=517$	0.8
Se	$d_{11}=130 \pm 30$	5.0
Ba ₂ NaNb ₃ O ₁₅	$d_{33}=10.4 \pm 0.7$ $d_{32}=7.4 \pm 0.7$	
Ag ₃ AsS ₃ (淡红银矿)	$d_{22}=22.5$ $d_{36}=13.5$	
CdSe	$d_{31}=22.5 \pm 3$	
CdGeAs ₂	$d_{36}=363 \pm 70$	
AgGaSe ₂	$d_{36}=27 \pm 3$	
AgSbS ₃	$d_{36}=9.5$	
ZnS	$d_{36}=13$	

表16.2一些晶体的非线性光学系数

$d_{ijk}^{(2\omega)}$ 和米勒系数 $\delta^{(2\omega)}$

(1) 有些作者是用 $P=e_0 d E^2$ 来定义非线性系数 d 而不是用本书的关系式 $P=e_0 d E^2$ 来定义。表中的数据收集了补充参考文献[3]所列出的最新资料。

图16.1、16.2和16.3解释了由于电子在非简谐势阱中运动而产生二次谐波极化强度的过程。

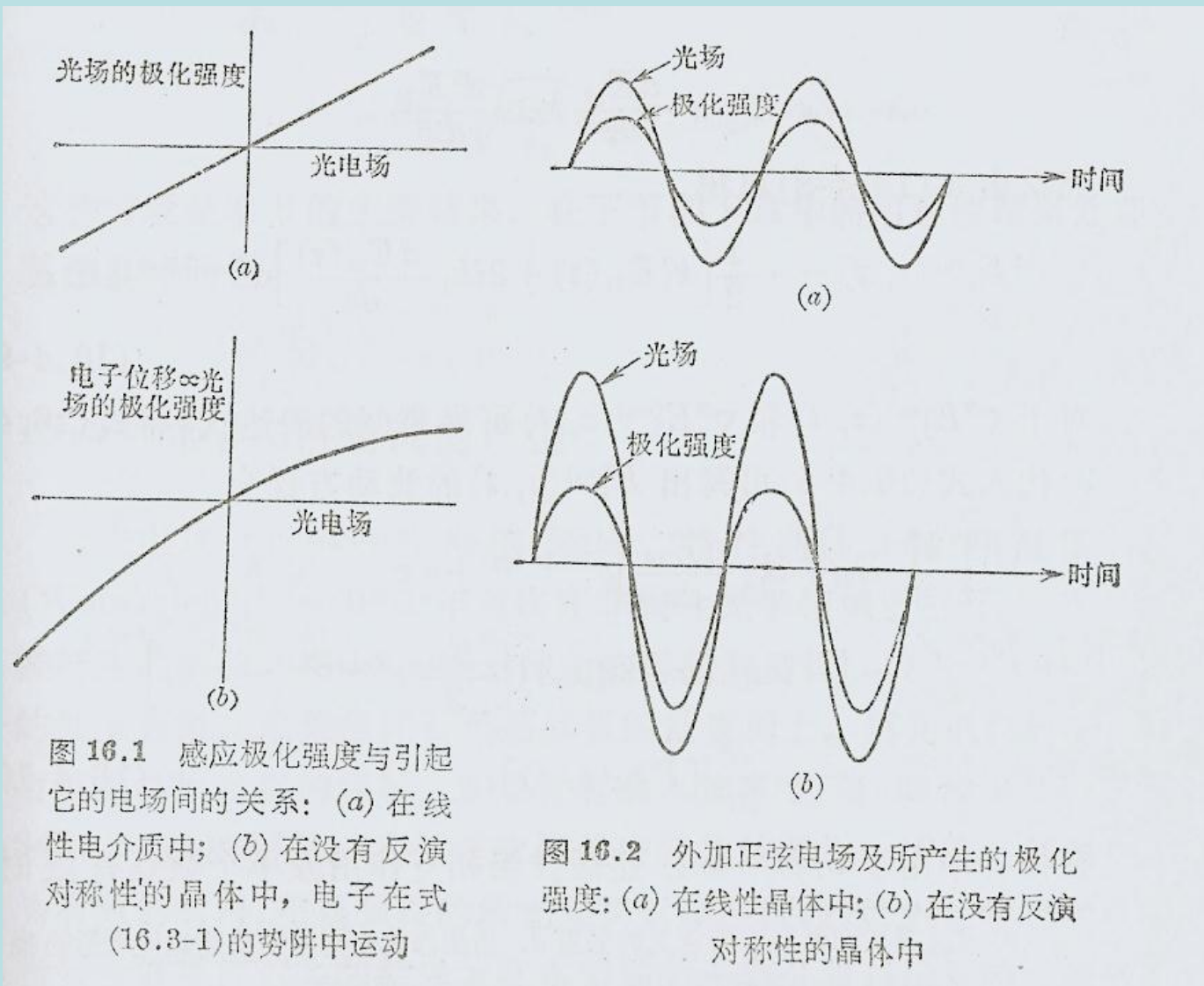


图 16.1 感应极化强度与引起它的电场间的关系: (a) 在线性电介质中; (b) 在没有反演对称性的晶体中, 电子在式 (16.3-1) 的势阱中运动

图 16.2 外加正弦电场及所产生的极化强度: (a) 在线性晶体中; (b) 在没有反演对称性的晶体中

图16.1和16.2

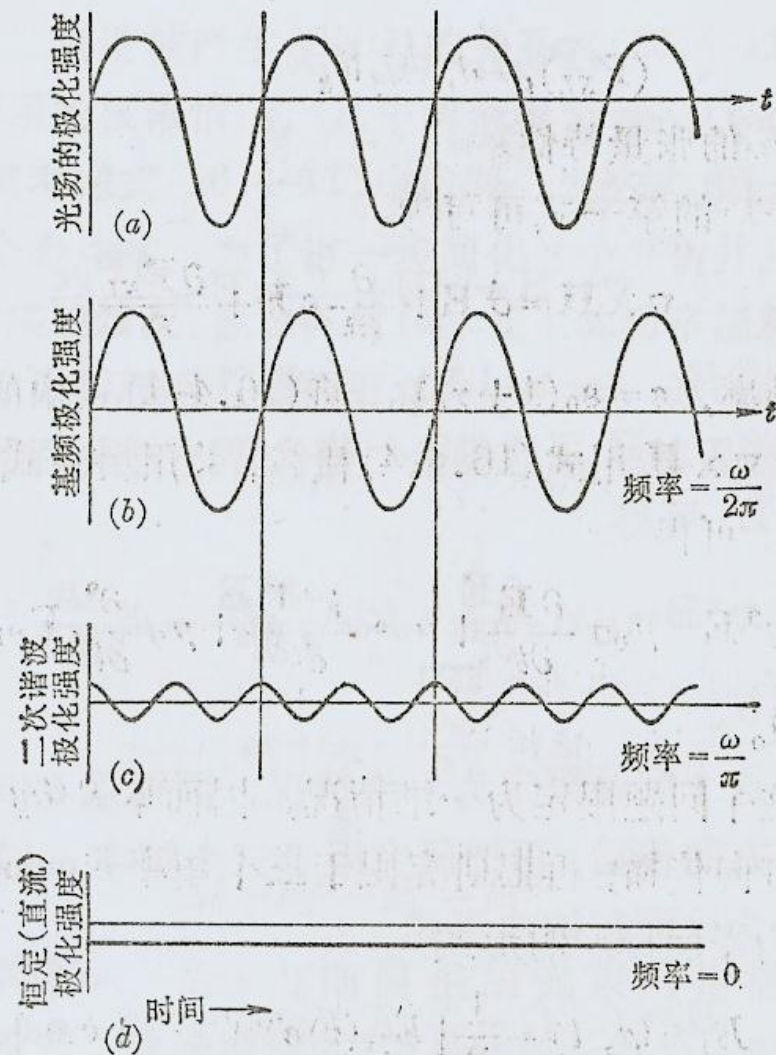


图 16.3 对图 16.2b 的非线性极化强度波(a)的分析表明它包含以感应波相同频率(ω)振荡的分量(b), 二倍感应频率(2ω)的振荡分量(c)及平均(直流)分量(d)

图16.3

16.4 非线性相互作用的电磁场公式化---耦合波方程

宏观麦克斯韦方程可以写成：

$$\begin{aligned}\nabla \times H &= i + \frac{\partial D}{\partial t} = i + \frac{\partial}{\partial t} (\varepsilon_0 E + P) \\ \nabla \times E &= -\frac{\partial}{\partial t} (\mu_0 H)\end{aligned}\tag{16.4-1}$$

i 为宏观传导电流密度矢量。介质感应的极化强度 P 可以写为线性项和非线性项之和，

$$P = \varepsilon_0 \chi_L E + P_{NL}\tag{16.4-2}$$

式中

$$(P_{NL})_i = d_{ijk} E_j E_k \quad (16.4-3)$$

d_{ijk} 为二阶非线性光学系数（极化率张量元素）。

利用(16.4-1)和(16.4-2)式，可以得到

$$\nabla^2 E = \mu_0 \sigma \frac{\partial E}{\partial t} + \mu_0 \varepsilon \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2} \quad (16.4-5)$$

式中 σ 为电导率 ($i = \sigma E$)， $\varepsilon = \varepsilon_0(1 + \chi_L)$ 。并利用了 $\nabla \cdot D = \rho = 0$

(因为假定介质内不存在自由电荷，即 $\rho = 0$)。

假定光波沿z方向传播的一维情况，取 $\partial/\partial y = \partial/\partial x = 0$ ，并考虑三个频率（ $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ ）的平面波光场参与作用的二阶非线性效应。其光场可以取下列形式，

$$\begin{aligned} E_i^{(\omega_1)}(z, t) &= \frac{1}{2} [E_{1i}(z) e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} + c.c.] \\ E_k^{(\omega_2)}(z, t) &= \frac{1}{2} [E_{2k}(z) e^{i(\omega_2 t - k_2 z)} + c.c.] \\ E_j^{(\omega_3)}(z, t) &= \frac{1}{2} [E_{3j}(z) e^{i(\omega_3 t - k_3 z)} + c.c.] \end{aligned} \quad (16.4-6)$$

式中 i, j, k 属于笛卡儿坐标，根据光场的偏振它们可以取x和y值。

根据(16.4-3)和(16.4-6)式, 频率为 $\omega_1 = \omega_3 - \omega_2$ 的非线性极化强度的 i 分量为

$$[P_{NL}^{(\omega_1)}(z, t)]_i = \frac{d'_{ijk}}{2} E_{3j}(z) E_{2k}^*(z) e^{i[(\omega_3 - \omega_2)t - (k_3 - k_2)z]} + c.c.) \quad (16.4-7)$$

注意 E_{2k}^* 中的复共轭和 $\omega_1 = \omega_3 - \omega_2$ 中的 $-\omega_2$ 的关系。张量元由 d_{ijk} 变为 d'_{ijk} 。

对晶体坐标系: d_{ijk}

使用描述光场传播的坐标: 有效二阶非线性光学系数 d'_{ijk}

将(16.4-6)式的电场表达式代入(16.4-5)式中的波动方程中的等式左侧，并取第 i 个分量得

$$\begin{aligned}\nabla^2 E_i^{(\omega_1)}(z, t) &= \frac{\partial^2}{\partial z^2} E_i^{(\omega_1)}(z, t) \\ &= \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial z^2} [E_{1i}(z) e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} + c.c.] \end{aligned} \quad (16.4-8)$$

假定电场的复振幅随 z 的变化足够小以致

$$\frac{dE_{1i}}{dz} k_1 \gg \frac{d^2 E_{1i}}{dz^2}$$

$$\nabla^2 E_i^{(\omega_1)}(z, t) = -\frac{1}{2} [k_1^2 E_{1i}(z) + i2k_1 \frac{dE_{1i}(z)}{dz}] e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} + c.c. \quad (16.4-9)$$

将(16.4-6)式的电场表达式代入(16.4-5)式中的波动方程，并利用(16.4-9)式可以将波动方程简化为

$$\begin{aligned} & \left[\frac{1}{2} k_1^2 E_{1i} + ik_1 \frac{dE_{1i}}{dz} \right] e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} + c.c. \\ & = [-i\omega_1 \mu_0 \sigma + \omega_1^2 \mu_0 \varepsilon] \left[\frac{E_{1i}}{2} e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} + c.c. \right] - \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} [P_{NL}^{(\omega_1)}(z, t)]_i \end{aligned} \quad (16.4-10)$$

用(16.4-7)式代入上式中 $[P_{NL}^{(\omega_1)}(z, t)]_i$ ，并利用 $\omega_1^2 \mu_0 \varepsilon = k_1^2$ ($k_1 = \frac{n\omega_1}{c}$ ，

$$\begin{aligned} \mu_0 \varepsilon_0 = \frac{1}{c^2}) \text{ 可以得到 } & ik_1 \frac{dE_{1i}}{dz} e^{-ik_1 z} \\ & = -\frac{i\omega_1 \mu_0 \sigma}{2} E_{1i} e^{-ik_1 z} + \frac{\mu_0 \omega_1^2}{2} d'_{ijk} E_{3j} E_{2k}^* e^{-i(k_3 - k_2)z} \end{aligned}$$

等式两边都用 $ik_1 e^{-ik_1 z}$ 除, 可得

$$\frac{dE_{1i}}{dz} = -\frac{\sigma_1}{2} \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_1}} E_{1i} - \frac{i\omega_1}{2} \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_1}} d'_{ijk} E_{3j} E_{2k}^* e^{-i(k_3 - k_2 - k_1)z}$$

用同样方法可得

$$\frac{dE_{2k}^*}{dz} = -\frac{\sigma_2}{2} \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_2}} E_{2k}^* + \frac{i\omega_2}{2} \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_2}} d'_{kij} E_{1i} E_{3j}^* e^{-i(k_1 - k_3 + k_2)z}$$

(16.4-11)

$$\frac{dE_{3j}}{dz} = -\frac{\sigma_3}{2} \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_3}} E_{3j} - \frac{i\omega_3}{2} \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_3}} d'_{jik} E_{1i} E_{2k} e^{-i(k_1 + k_2 - k_3)z}$$

注意书中 d_{kij} 的印刷错误。

16.5 光学二次谐波（倍频）的产生

图16.4表示了首次光学二次谐波产生实验装置。这也是由于激光器被发明之后，首次实现的非线性光学现象。

激发光源：红宝石激光 ($\lambda = 694.3\text{nm}$)

非线性晶体：石英晶体

产生的新波长激光（二次谐波）： $\lambda/2 = 347.15\text{nm}$

二次谐波转换效率： 10^{-8} （未满足位相匹配条件），目前的二次谐波转换效率可以接近于**100%**。

P.A. Franken, et al, Physical Review Letters 7, 118 (1961)

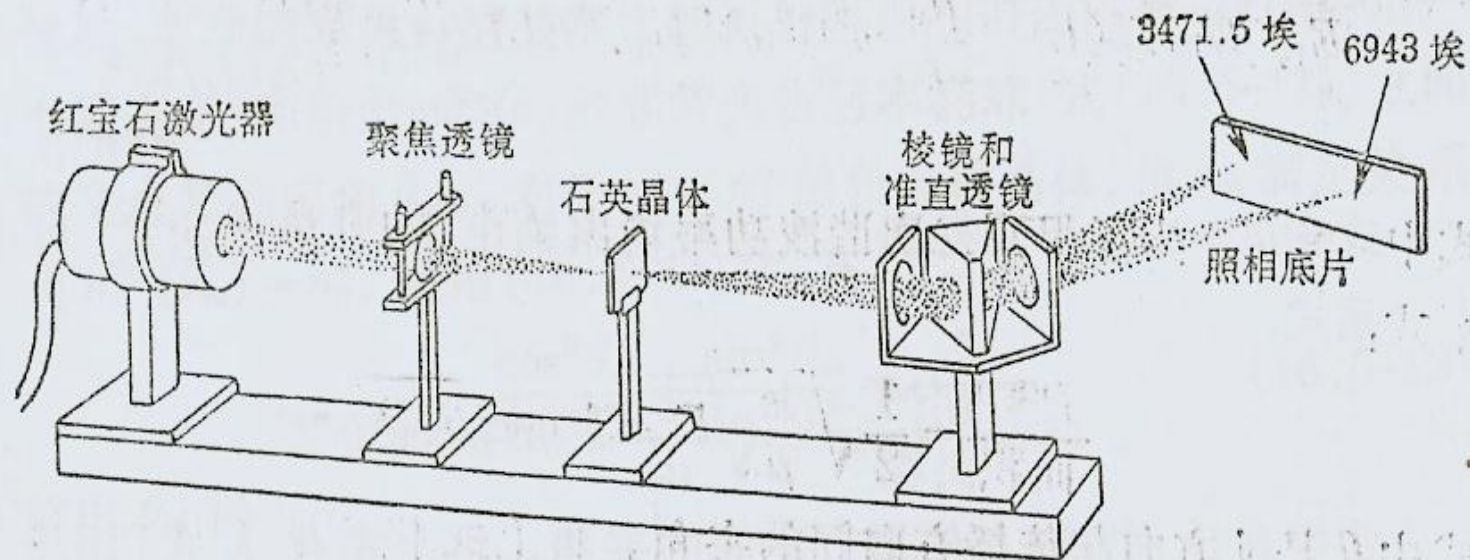
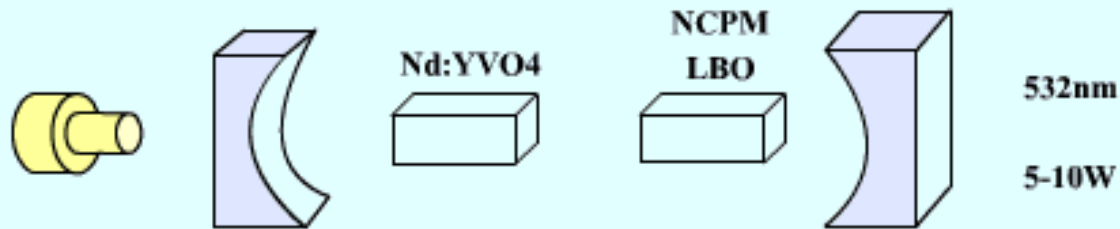


图16.4
腔外倍频

图 16.4 首次实验论证二次谐波产生的实验装置^[1]。波长为 0.6943 微米的红宝石激光聚焦到石英晶体上，产生弱的波长为 $\lambda/2=0.347$ 微米的光束。然后用棱镜将这两束光分开并在照相底片上检测



腔内倍频

光倍频的稳态小信号解

当参与非线性相互作用的三个光波中，其中两个泵浦光的频率相等，即

$\omega_1 = \omega_2 = \omega$ 时，**信号光（倍频光）**的频率可以写成 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2 = 2\omega$

。因此(16.4-11)式中的三个公式仅需考虑第一式和第三式。

小信号解：即假定很低的倍频效率使得泵浦光功率变化很小（忽略其变化）

，因此有 $dE_{1i}/dz \approx 0$ ，因此仅需研究(16.4-11)式中的第三

式，并假定介质对 ω_3 频率是透明的，因而有 $\sigma_3 = 0$ ，于是可得

$$\frac{dE_{3j}}{dz} = -i\omega \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon}} d'_{jik} E_{1i} E_{1k} e^{i\Delta kz} \quad (16.5-1)$$

式中 $\omega = \omega_1 = \frac{\omega_3}{2}$, $\Delta k = k_3^{(j)} - k_1^{(i)} - k_1^{(k)}$, $\varepsilon = \varepsilon_3$

((16. 4-11) 式中的脚表2k换成1k)

其中 $k_1^{(i)}$, $k_1^{(k)}$ 分别为 ω_1 光沿 i 和 k 方向偏振的光束波矢。

(16. 5-1) 式的解为

$$E_{3j}(L) = -i\omega \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon}} d'_{jik} E_{1i} E_{1k} \frac{e^{i\Delta kz} - 1}{i\Delta k} \quad (16. 5-2)$$

进而有

$$E_{3j}(L) E_{3j}^*(L) = \frac{\mu_0}{\varepsilon} \omega^2 (d'_{jik})^2 E_{1i}^2 E_{1k}^2 L^2 \frac{\sin^2(\Delta k L / 2)}{(\Delta k L / 2)^2} \quad (16. 5-3)$$

利用关系式
$$\frac{P^{(2\omega)}}{Area} = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\varepsilon}{\mu_0}} E_{3j} E_{3j}^*$$

将(16.5-3)式代入上式可得

$$\frac{P^{(2\omega)}}{Area} = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon}} \omega^2 (d'_{jik})^2 E_{1i}^2 E_{1k}^2 L^2 \frac{\sin^2(\Delta kL/2)}{(\Delta kL/2)^2} \quad (16.5-4)$$

于是二次谐波的转换效率为

$$\frac{P^{(2\omega)}}{P^{(\omega)}} = 2 \left(\frac{\mu_0}{\varepsilon_0} \right)^{3/2} \frac{\omega^2 (d'_{jik})^2 L^2}{n^3} \left(\frac{P^{(\omega)}}{Area} \right) \frac{\sin^2(\Delta kL/2)}{(\Delta kL/2)^2} \quad (16.5-5)$$

此处取 $\varepsilon_1 \approx \varepsilon_3 = \varepsilon_0 n^2$ 。 d'_{ijk} 为有效二阶非线性光学系数， L 为晶体长度（相互作用长度）， Δk 为非线性极化波矢与光波波矢的差。

可见，在小信号近似下，二次谐波的转换效率与 L^2 , $(d'_{jik})^2$ 成正比，还与泵浦光强 $I(\omega) = P^{(\omega)} / A_{\text{rear}}$ 成正比。另外通过

$$\text{sinc}^2(\Delta kL/2) = \frac{\sin^2(\Delta kL/2)}{(\Delta kL/2)^2}$$

函数与 Δk 有密切关系，其关系被在

图16. A中描述。

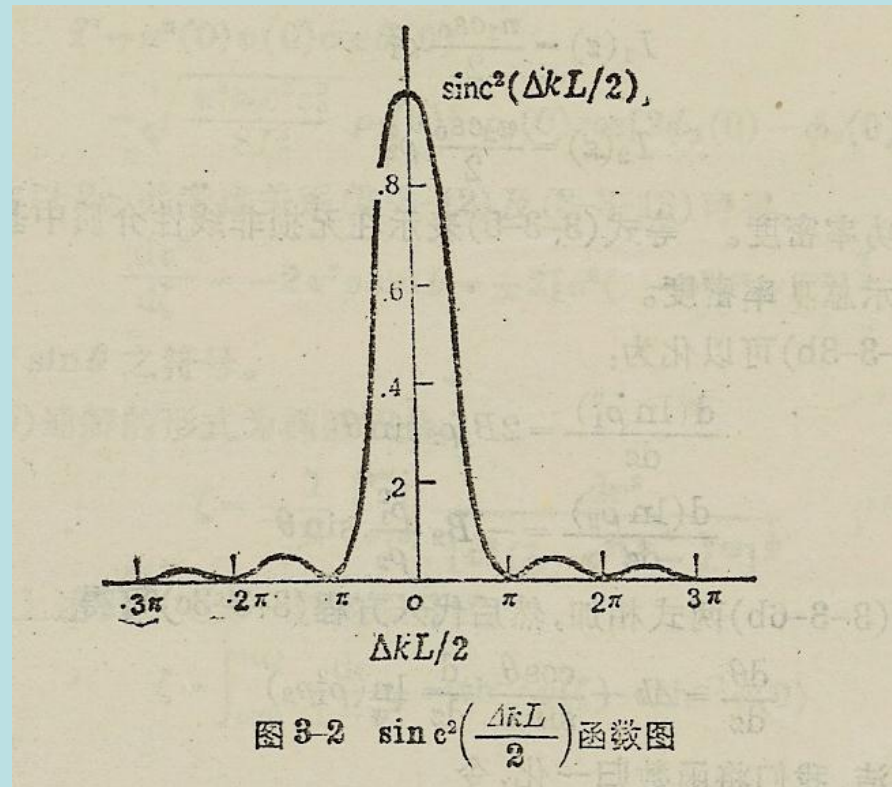


图16. A

当 $\Delta k = 0$ 时: $\sin^2(\Delta k L / 2) = 1$, 为最大值。 $\Delta k = 0$ 被称为位相匹配条件。

当 $\Delta k \neq 0$ 时: $\sin^2(\Delta k L / 2)$ 随 $\Delta k L$ 增加迅速下降, 使得二次谐波转换效率下降很快。

定义相干长度: 从最大值到最小值分开的距离,

$$l_c = 2\pi / \Delta k = \frac{2\pi}{k^{(2\omega)} - 2k^{(\omega)}} \quad (16.5-7)$$

对给定 Δk 值, 当晶体的长度超过相干长度时, 转换效率就会很快下降。

利用关系式 $k = \omega n^\omega / c$, 可得

$$\Delta k = k^{(2\omega)} - 2k^{(\omega)} = \frac{2\omega}{c} (n^{2\omega} - n^\omega) \quad (16.5-8)$$

于是相干长度也可以写为

$$l_c = \frac{\pi c}{\omega(n^{2\omega} - n^\omega)} = \frac{\lambda}{2(n^{2\omega} - n^\omega)} \quad (16.5-9)$$

式中 λ 是基频光束自由空间波长。

当 $\lambda = 1$ 微米; $(n^{2\omega} - n^\omega) \approx 10^{-2}$; 可得 $l_c = 50$ 微米。

由(16.5-5)式可见, 若 l_c 由100微米增加到2厘米, 二次谐波转换效率将会增加 4×10^4 倍。

二次谐波产生中的位相匹配

由以上分析可见，为了有效地产生二次谐波（利用转换效率与 L^2 成正比），需使 $\Delta k = 0$ ，即满足位相匹配条件，或写成

$$n^{2\omega} = n^{\omega} \quad (16.5-10)$$

即在基频 ω 和二次谐波频率 2ω 处的折射率必须相等。

由于色散效应（假如在正常色散介质中），在寻常光（或非常光）沿给定方向的折射率随 ω 的增加而增大（见表16.3）。

因此当 ω 和 2ω 光属于同一类型，即同为寻常光或非常光时，就不可能满足(16.5-10)式的位相匹配条件。

表 16.3 KH_2PO_4 的折射率色散数据^[9]

波 长 (微 米)	折 射 率	
	n_o (寻 常 光)	n_e (非 常 光)
0.2000	1.622630	1.563913
0.3000	1.545570	1.498153
0.4000	1.524481	1.480244
0.5000	1.514928	1.472486
0.6000	1.509274	1.468267
0.7000	1.505235	1.465601
0.8000	1.501924	1.463708
0.9000	1.498930	1.462234
1.0000	1.496044	1.460993
1.1000	1.493147	1.459884
1.2000	1.490169	1.458845
1.3000	1.487064	1.457838
1.4000	1.483803	1.456838
1.5000	1.480363	1.455829
1.6000	1.476729	1.454797
1.7000	1.472890	1.453735
1.8000	1.468834	1.452636
1.9000	1.464555	1.451495
2.0000	1.460044	1.450308

表16.3

利用各向异性晶体的双折射效应实现位相匹配：

假定使用 $n_e < n_o$ 负单轴晶体。

基频光(ω)：沿 θ 角作为寻常光入射。（即与晶体光轴 z 之间夹角）。

其折射率为 n_o^ω

产生的倍频光(2ω)：沿与基频光 ω 相同方向传播的非常光。其折射率

$n_e^{2\omega}(\theta)$ ，由(5.4-2)式给出，

$$\frac{1}{n_e^{2\omega}(\theta)} = \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2} + \frac{\sin^2 \theta}{n_e^2} \quad (16.5-11)$$

假如 $n_e^{2\omega} < n_o^\omega$ ，存在一个角度 θ_m ，使 $n_e^{2\omega}(\theta_m) = n_o^\omega$ ，从而满足位相匹配条件。

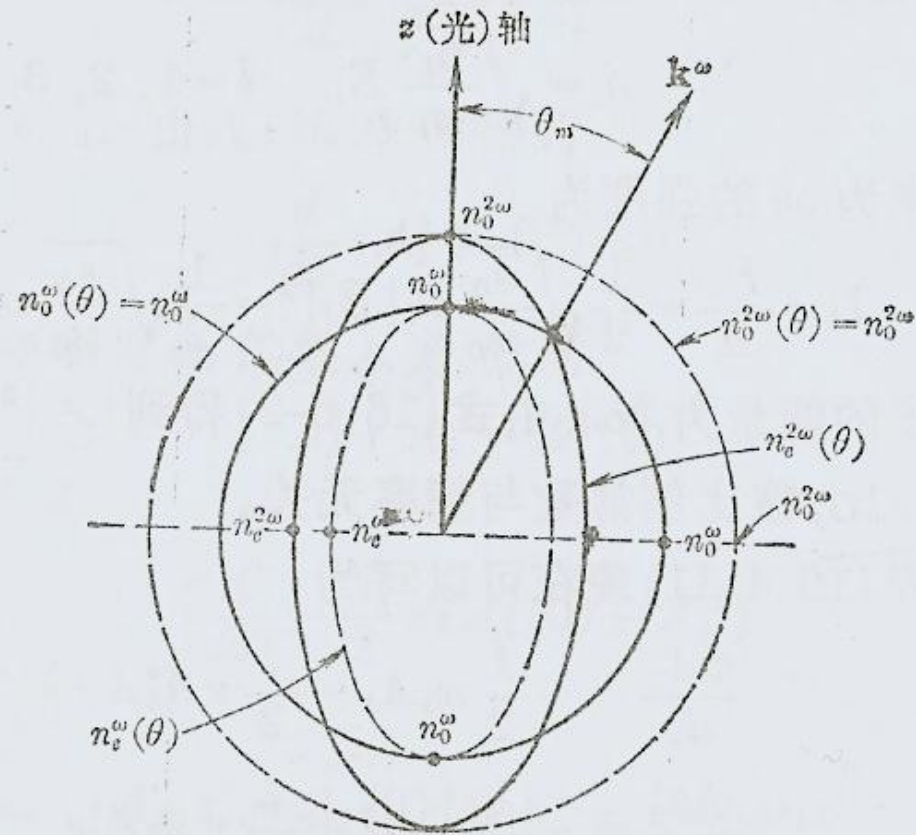


图 16.5 在负 ($n_e < n_o$) 单轴晶体中寻常光和非常光的法线 (折射率) 面。若 $n_e^{2\omega} < n_o^\omega$ ，那么当 $\theta = \theta_m$ 时满足条件 $n_e^{2\omega}(\theta) = n_o^\omega$ 。图中夸大了椭球的偏心率

图16.5

角度 θ_m 的确定：如图16.5所示。

描述 n_o^ω 的折射率球（图中用实线圆表示）；

描述 $n_e^{2\omega}(\theta)$ 的折射率椭球（图中用实线椭圆表示）；

该圆和椭圆的交点与原点的连线即为基频光入射方向 k^ω 。而 k^ω 方向与光轴的夹角即是 θ_m 。

将 θ_m 和 $n_e^{2\omega}(\theta_m) = n_o^\omega$ 代入(16.5-11)式可得

$$\frac{1}{(n_o^\omega)^2} = \frac{\cos^2 \theta_m}{(n_o^{2\omega})^2} + \frac{\sin^2 \theta_m}{(n_e^{2\omega})^2} \quad (16.5-12)$$

求解(16.5-12)式可得

$$\begin{aligned}\sin^2 \theta_m &= \frac{(n_o^\omega)^{-2} - (n_o^{2\omega})^{-2}}{(n_e^{2\omega})^{-2} - (n_o^{2\omega})^{-2}} \\ &= \left(\frac{n_e^{2\omega}}{n_o^\omega}\right)^2 \frac{(n_o^{2\omega})^2 - (n_o^\omega)^2}{(n_o^{2\omega})^2 - (n_e^{2\omega})^2}\end{aligned}$$

(负单轴晶体 ooe) (16.5-13)

$$\sin^2 \theta_m = \left(\frac{n_e^\omega}{n_o^{2\omega}}\right)^2 \frac{(n_o^{2\omega})^2 - (n_o^\omega)^2}{(n_e^\omega)^2 - (n_o^\omega)^2}$$

(正单轴晶体 eeo) (16.5-13a)

以上基频光只取一种偏振态的方法称为**I型相位匹配**：

负单轴晶体（ $n_e < n_o$ ）：基频光取**o**光，倍频光为**e**光（即**ooe**）。

正单轴晶体（ $n_e > n_o$ ）：基频光取**e**光，倍频光为**o**光（即**eeo**）。

II型相位匹配

基频光：有两种偏振态（o光和e光两部分）。

产生的倍频光：在负单轴晶体（ $n_e < n_o$ ）中为e光。（即**oeo**）。

$$n_{je}^{2\omega}(\theta) = \frac{1}{2} [n_{io}^{\omega} + n_{ke}^{\omega}(\theta)] \quad (16.5-14)$$

其中 i, j, k 为折射率椭球轴。位相匹配角 θ_m 由(16.5-14)式给出

在正单轴晶体（ $n_e > n_o$ ）中为o光；（即eoo）。

$$n_{jo}^{2\omega} = \frac{1}{2} [n_{ie}^{\omega}(\theta) + n_{ko}^{\omega}] \quad (16.5-14a)$$

位相匹配角 θ_m 也可以由折射率椭球得出。

已知在晶体坐标系下的 d_{jik} ，求在光场坐标系下的 d'_{jik} （有效二阶非线性极化系数）。对KDP晶体，

$$\begin{aligned} P_x^{(2\omega)} &= 2d_{14} E_z^{(\omega)} E_y^{(\omega)} \\ P_y^{(2\omega)} &= 2d_{14} E_z^{(\omega)} E_x^{(\omega)} \\ P_z^{(2\omega)} &= 2d_{36} E_x^{(\omega)} E_y^{(\omega)} \end{aligned} \quad (16.5-16)$$

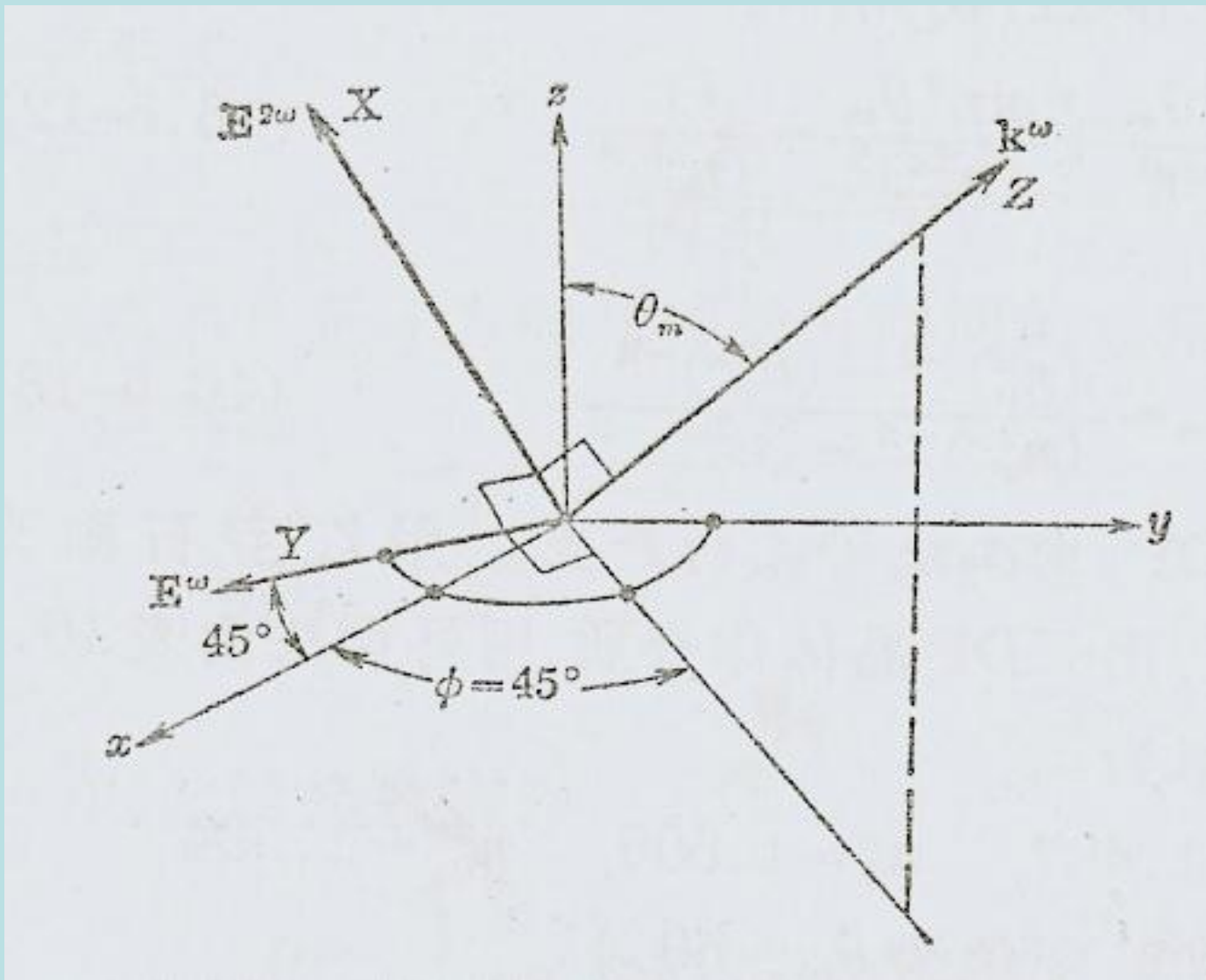


图16.6 在KDP中的二次谐波产生。 $E^{(\omega)}$ 与 $x-y$ 轴成 45° 角，
传播方向 \vec{k}^ω 与光轴 z 成 θ_m 角。

二次谐波在X方向，因此考虑X方向的谐波极化率

$$P_X^{(2\omega)} = d'_{XYX} E_Y^{(\omega)} E_Y^{(\omega)} = d'_{XYX} E^{(\omega)} E^{(\omega)}$$

另外有，

$$\begin{aligned} P_X^{(2\omega)} &= P_z^{(2\omega)} \sin \theta_m \\ &= 2d_{36} (E_x^{(\omega)} E_y^{(\omega)}) \sin \theta_m \\ &= 2d_{36} (E^{(\omega)} \sin \phi E^{(\omega)} \cos \phi) \sin \theta_m \\ &= d_{36} (E^{(\omega)})^2 \sin \theta_m \\ &(\phi = 45^\circ, \quad E_x^{(\omega)} = E_y^{(\omega)} = E^{(\omega)} / \sqrt{2}) \end{aligned}$$

比较上面两式得， $d'_{XYX} = d_{36} \sin \theta_m$

位相匹配条件的偏离

(输入光束的发散角的影响)

对于给定的晶体长度，当由于光束入射角偏离匹配角，使得位相匹配条件偏离时，二次谐波输出功率将按下式减小

$$\frac{P^{(2\omega)}}{P_{\max}^{(2\omega)}} = \frac{\sin^2(\Delta k L / 2)}{(\Delta k L / 2)^2} \quad (16.5-17)$$

定义入射光的入射角偏离位相匹配角的量为 $\sigma = \theta - \theta_m$

对于小的 σ 值， $\Delta k(\theta)$ 可以写成 $\Delta k(\theta) = 2\beta\sigma$

β 是与 $n_o^\omega, n_o^{2\omega}, n_e^{2\omega}$ 有关的常数

图16.7给出了二次谐波输出功率作为 σ 函数的曲线。

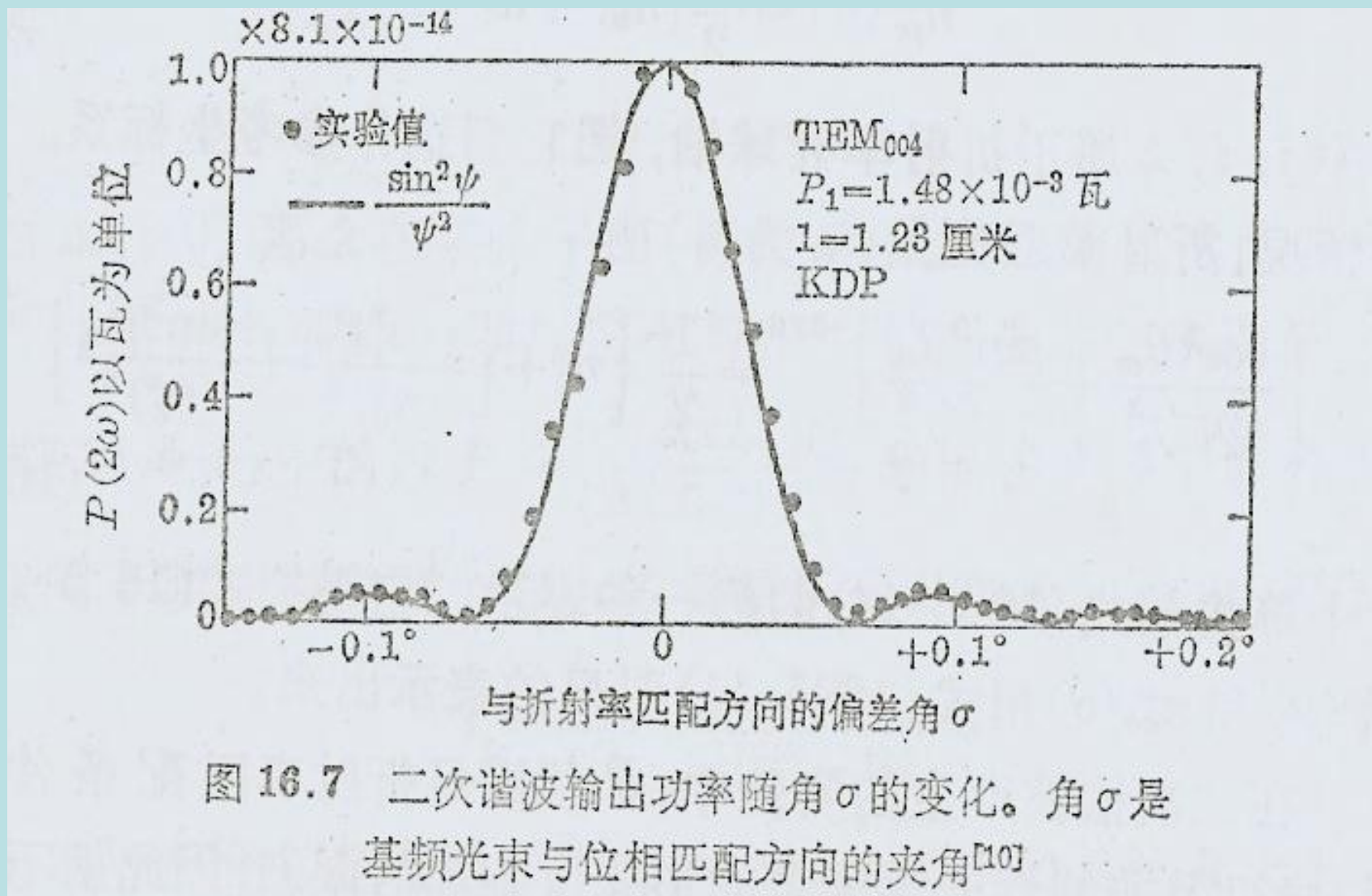


图16.7