

准相位匹配非线性切连科夫倍频与和频效应^{*}

张勇[†] 祝世宁

(南京大学物理学院 固体微结构国家重点实验室 南京大学现代工程与应用科学学院 南京 210093)

摘要 研究了二维光学超晶格光波导中的准相位匹配切连科夫(Cerenkov)倍频与和频效应,利用光学超晶格的不同倒格矢实现了多组准相位匹配切连科夫倍频与和频的同时输出,从理论和实验两个方面探讨了光学微结构材料中非线性切连科夫辐射产生的机制、效应和可能的应用.

关键词 准相位匹配,切连科夫辐射,光学超晶格

Quasi-phase-matched Cerenkov second-harmonic and sum-frequency generation

ZHANG Yong[†] ZHU Shi-Ning

(Physics School of Nanjing University, National Laboratory of Solid State Microstructures, College of Engineering and Applied Science, Nanjing University, Nanjing 210093, China)

Abstract We demonstrate quasi-phase-matched Cerenkov second-harmonic and sum-frequency generation in a two-dimensional optical superlattice waveguide. Multiple radiation spots with different azimuth angles are simultaneously exhibited from such a hexagonally poled waveguide. The fundamental understanding and potential applications of such Cerenkov effects are presented and discussed.

Keywords quasi-phase matching, Cerenkov radiation, optical superlattice

1 研究背景

20 世纪初,许多从事放射性工作的物理学家都观察到了一种很奇特的现象:位于强放射源附近的透明物体会发出一种微弱的淡蓝色光.1934 年,前苏联物理学家切连科夫(P. A. Cerenkov)通过实验证实:当高速运动的带电粒子穿过透明介质时,一旦其速度大于光在其中的传播速度,便会沿着与粒子运动方向成一定角度的圆锥面发出微弱的可见光,这种现象被称为切连科夫辐射^[1].辐射光的传播方向与粒子运动方向之间的夹角 θ_c 被称为切连科夫角,满足关系式: $\cos\theta_c = v'/v$,式中 v 为粒子速度, v' 为介质中的光速.实现切连科夫辐射的必要条件就是 $v > v'$.在没有色散的理想介质中,切连科夫辐射出来的光只分布在一个圆锥面上,以冲击波的

形式存在,粒子处于圆锥的顶点.切连科夫辐射的一个重要应用是切连科夫电磁量能器,它是高能物理实验中的重要探测设备之一^[2,3].

到 20 世纪 70 年代,切连科夫辐射的概念被引入到了非线性光学领域^[4-10].类似于带电粒子可以发出切连科夫辐射,光在介质中传播的时候,由于非线性光学作用,同样可以以一定的角度发出辐射,称之为非线性切连科夫辐射.1970 年,提恩(P. K. Tien)等人首次非线性晶体 ZnO 上生长的 ZnS 多晶光波导中观察到了切连科夫倍频的产生^[4].在粒子的切连科夫辐射中,高能带电粒子是辐射源;而在非线性切连科夫辐射中,辐射源是入射光场在介质

^{*} 国家自然科学基金(批准号:11004097;11021403)、高等学校博士学科点专项科研基金(批准号:20100091120010)资助项目
2010-09-07 收到

[†] 通讯联系人. Email: zhangyong@nju.edu.cn

中诱导产生的二阶非线性极化波. 当二阶非线性极化波的相速度 v_p 满足 $v_p > v'$ 时, 在切连科夫角的方向上光满足相干叠加条件, 非线性切连科夫辐射就可以产生. 切连科夫角由公式

$$\theta_c = \arccos(v'/v_p) \quad (1)$$

决定. 可见, 二阶非线性极化波的相速度越快, 切连科夫辐射的角度就越大. 以一个比较简单的情况为例, 入射光是单色光, 具有频率 ω , 它在非线性光学介质中传播的时候会产生频率为 2ω 的二阶非线性倍频极化波. 从非线性光学原理可以知道, 二阶非线性倍频极化波的相速度和入射光是相同的. 所以, 在正常色散的介质中, 二阶非线性倍频极化波比自由传播的二次谐波的相速度要快, 满足切连科夫辐射条件, 因而就可以以一定的角度向介质中发出频率为 2ω 的相干光. 目前, 切连科夫倍频被广泛应用于发展波导倍频器^[10]. 与波导中的导模倍频相比, 切连科夫倍频的优势在于它能够自动满足相位匹配, 对波导工艺要求大大放宽, 并且可以充分利用非线性晶体中最大的非线性系数.

然而, 在科学研究中, 人们发现非线性切连科夫辐射的相速度条件 ($v_p > v'$) 大大限制了其进一步发展和应用. 例如: 在正常色散介质中, 只能实现频率上转换的切连科夫辐射, 而频率下转换过程无法满足产生非线性切连科夫辐射的相速度条件. 如何打破这一瓶颈, 已成为非线性切连科夫辐射研究的一个关键课题.

2 工作原理及实验

2.1 工作原理

近来一些研究表明, 光波在介质中产生的极化波可以通过一些特殊的手段进行调制. 例如: 引入元激发(声子等), 使之与极化波发生相互作用^[11]; 或者使光在周期结构(光子晶体等)中传播^[12]. 类似地, 在光学超晶格(也就是非线性光子晶体)中, 二阶非线性极化波的相速度同样可以改变^[13]. 在光学超晶格中, 晶体铁电畴发生周期性反转, 晶体二阶非线性张量 $\chi^{(2)}$ 的符号就会被调制. 光在这样的晶体中传播时, 光学超晶格中的倒格矢可以补偿二阶非线性极化波的相位, 从而改变其相速度; 两维超晶格结构中的非共线倒格矢甚至可以改变二阶非线性极化波的方向^[14,15]. 这样, 非线性切连科夫辐射的阈值和出射角度都会发生改变, 而且有可能使频率下转换过程的二阶非线性极化波满足辐射条件. 这样产

生的辐射光就是准相位匹配切连科夫辐射.

以前工作中只研究了单色光入射的情况. 实际上, 当入射光包含有两个或者两个以上的频率时, 同样可以产生切连科夫辐射. 我们首先从理论上分析基波有两个频率 ω_1 和 ω_2 的情况. 光在介质中传播时诱导的二阶非线性极化就包括 $2\omega_1, 2\omega_2, \omega_1 + \omega_2$ 和 $\omega_1 - \omega_2$ 这些项. 其中 $2\omega_1$ 和 $2\omega_2$ 这两项可以产生切连科夫倍频, 这在前面已经讨论过. 而 $\omega_3 = \omega_1 \pm \omega_2$ 这两项与倍频过程不同, 它的相速度 v_p 既不同于 ω_1 也不同于 ω_2 , 而是由 $\frac{\omega_1}{v_1} \pm \frac{\omega_2}{v_2} = \frac{\omega_3}{v_p}$ (v_1 和 v_2 分别对应于频率为 ω_1 和 ω_2 的光在介质中的相速度) 决定的. 切连科夫角由(1)式确定. 在正常色散的介质中, 频率上转换过程产生的二阶非线性极化 $2\omega_1, 2\omega_2$ 和 $\omega_1 + \omega_2$ 都可以满足 $v_p > v'$, 产生切连科夫辐射; 而来自频率下转换过程的 $\omega_1 - \omega_2$ 却有 $v_p < v'$, 无法实现相干辐射. 在均匀介质中, 非线性切连科夫辐射是由介质的折射率及其色散所决定的. 在光学超晶格光波导中, 二阶非线性极化波的相速度 v_p 受到倒格矢的调制, 满足关系: $\frac{\omega_1}{v_1} \mathbf{x}_1 \pm \frac{\omega_2}{v_2} \mathbf{x}_2 + \mathbf{G} = \frac{\omega_3}{v_p} \mathbf{x}_p$, 其中 \mathbf{x}_i 是 v_i 的方向 ($i=1, 2, p$; p 代表极化波), \mathbf{G} 是光学超晶格提供的倒格矢. 这里用矢量表达式是考虑到两维光学超晶格中 \mathbf{G} 可以是非共线的. 我们的工作中涉及到的是波导中产生的切连科夫倍频和和频辐射, 其相位匹配条件可以写成以下的形式:

$$|\boldsymbol{\beta}(\omega_1) + \boldsymbol{\beta}(\omega_2) + \mathbf{G}_{m,n}| = k(\omega_3) \cos\theta_c \quad (2)$$

其中 $\boldsymbol{\beta}(\omega_1)$ 和 $\boldsymbol{\beta}(\omega_2)$ 是入射光 ω_1 和 ω_2 在波导中传播的波矢, $k(\omega_3) = \omega_3/v'$ 是辐射波在衬底中传播的波数. 对不同的倒格矢 \mathbf{G} , 二阶非线性极化波相速度的大小和方向都可能不同, 非线性切连科夫辐射也就可能沿着不同的方向被发射出来. 如图 1 所示, 正向的倒格矢使二阶非线性极化波相速度减小, 切连科夫角变小; 反向的倒格矢增加了二阶非线性极化波相速度, 使辐射角度变大. 在本文中, 我们具体地讨论光学超晶格中的两个频率上转换过程——倍频和和频是如何产生切连科夫辐射的^[16,17].

2.2 准相位匹配切连科夫倍频

在实验中^[16], 我们采用具有六角超晶格结构的 LiTaO_3 平面波导作为样品. 在两维超晶格中, 倒格矢可表示为 $\mathbf{G}_{m,n} = (4\pi/\sqrt{3}a)(\sqrt{m^2+n^2+m \cdot n})$ (a 是晶格周期参数, m 和 n 表示倒格矢的阶数)^[18].

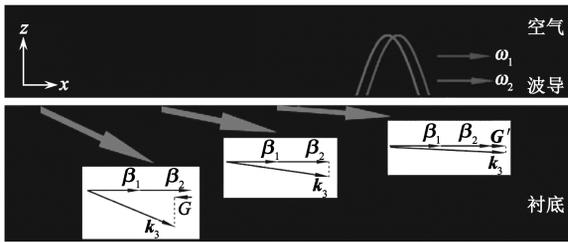


图1 频率为 ω_1 和 ω_2 的两个人射脉冲在光学超晶格波导中传播时产生切连科夫辐射的原理示意图. 从左到右, 3 个绿色箭头分别表示了反向倒格矢参与的、没有倒格矢参与的和正向倒格矢参与的切连科夫辐射方向. (见《物理》网刊彩图, 下同) 箭头下面给出了相应的波矢匹配图

测试的基波光源是一台 LD 抽运的 Nd:YAG 激光器, 输出波长为 $1.064\mu\text{m}$. 用一个短焦距的柱透镜把基波光聚焦耦合到平面波导中. 在距离样品后端面 18cm 的地方放置了一个屏, 从样品中出射 $0.532\mu\text{m}$ 的绿光直接打到屏上. 另外, 实验中使用了一个可控半导体加热模块来调节和保持样品的温度. 实验温度保持在 30°C .

图 2 给出了实验结果, 图 2(a) 是在 400mW 的基波入射时投影到屏上的实验图案. 在图的底端, 可以看到 3 条基本上平行的绿线沿竖直方向延伸. 这 3 条绿线都是波导内的倍频产生的, 基波光和倍频光都是波导的导模. 由于平面波导限制了光的传播, 光从波导中出射以后, 衍射作用使其在竖直方向上迅速发散. 在两维超晶格结构中有共线和非共线两种匹配方式. 在我们的实验中, 中间一条是共线的准相位匹配过程; 两边的两条绿线是对称的非共线倒格矢参与的准相位匹配过程, 得到的倍频绿线也是对称的. 在图 2(a) 的上端, 有一些绿色的点, 它们相对于中间的绿线对称分布. 很明显, 这些点不可能是波导的导模, 也不是波导内倍频产生的. 这些绿点就是由切连科夫倍频过程产生的. 我们把入射基波光

功率提高到 600mW , 得到的实验结果如图 2(b) 所示. 跟图 2(a) 相比, 更多的绿点出现在屏上面. 从 (2) 式中可以得到不同的倒格矢 \mathbf{G} 参与时, 切连科夫倍频点的位置, 计算的结果如图 2(c) 所示. 可以看出, 计算结果和实验结果符合得非常好. 中间最亮的一个点对应的是没有倒格矢参与的直接切连科夫倍频, 实验中测得的切连科夫角是 31.0° , 计算的结果是 30.9° . 直接切连科夫倍频在没有超晶格结构的波导中也可以出现; 在超晶格波导中, 如果反转畴的占空比是 50% , 则理论上这个点强度为 0. 在我们的实验中, 样品反转畴占空比在 30% 左右, 这个点仍然可以观察到. 除了中间这个点以外, 其他的点都是由倒格矢参与的准相位匹配切连科夫倍频产生的. 从 (2) 式可以得到, 向前的倒格矢 (如 $\mathbf{G}_{1,0}$) 可以减小二阶非线性极化波的相速度, 从而得到位置比直接切连科夫倍频点低的倍频辐射; 向后的倒格矢 (如 $\mathbf{G}_{1,-1}$) 可以增加二阶非线性极化波的相速度, 对应的就是高处的点. 这在我们的实验结果中都得到了验证.

2.3 切连科夫倍频弧线

在切连科夫倍频的实验中, 在入射光功率足够大 (1W) 的情况下, 我们还发现了另外一种辐射现象——弧线. 我们对这种现象进行了进一步的研究, 发现它涉及到散射光, 是波导中的散射光和导模之间的非线性光学作用产生的切连科夫辐射, 我们称之为切连科夫倍频弧线^[19].

实验结果如图 3(a) 所示, 仔细观察可以看到, 每个辐射点上都存在弧线, 在中间几个强度较大的点上, 这种现象尤其明显. 要从理论上解释这种现象, 只要在切连科夫辐射的相位匹配公式 (2) 中引入散射光 $\beta'(\omega_2)$, 就可以得到切连科夫倍频弧线的相位匹配公

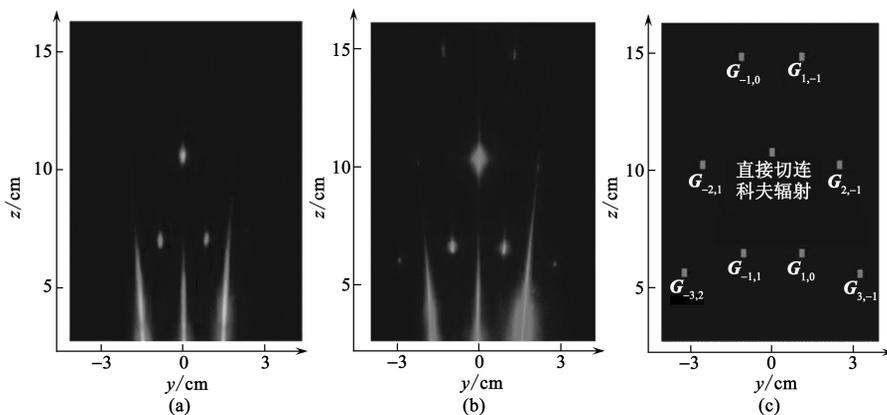


图2 准相位匹配切连科夫倍频 (a) 入射基波光功率为 400mW 时, 投影到屏上的实验图像; (b) 入射基波光功率为 600mW 时投影到屏上的实验图像; (c) 理论计算得到的图像^[16]

式： $|\beta(\omega_1) + \beta'(\omega_2) + G_{m,n}| = k(\omega_3) \cos\theta_C$. 在这里，倍频过程中的频率满足关系： $\omega_1 = \omega_2$. 由于波导对光有限制作用，散射光主要分布在波导平面(x - y 平面)以内. 散射光是以入射光方向为对称轴呈连续对称的分布. 在图 3(a)中，中间的 3 个点最亮，上面弧线也最为明显. 其中，正中间的那个点对应的是直接切连科夫辐射，另外的两个点对应的是对称的非共线倒格矢 $G_{1,0}$ 和 $G_{-1,1}$ 参与的准相位匹配切连科夫辐射情况. 这 3 条倍频弧线相对应的相位匹配示意图分别如图 4(a), (b) 所示.

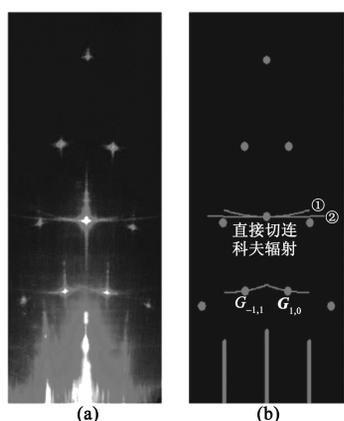


图 3 切连科夫倍频弧线 (a)入射基波光功率为 1W 时投影到屏上的实验图样;(b)理论计算得到的图像^[19]

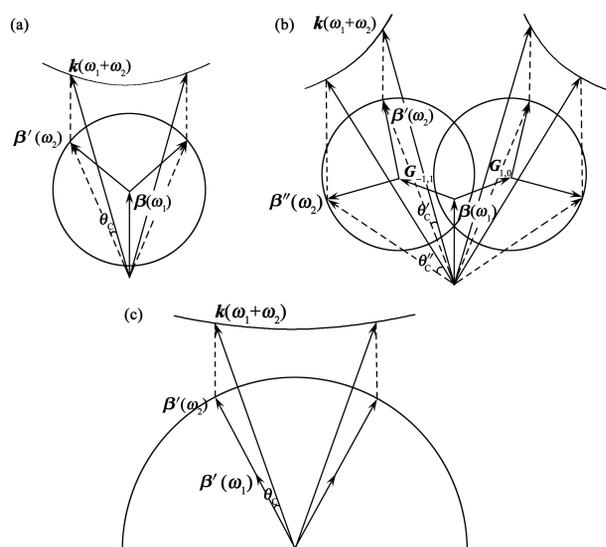


图 4 切连科夫弧线的相位匹配示意图 (a)直接切连科夫辐射过程产生的弧线①;(b)倒格矢 $G_{1,0}$ 和 $G_{-1,1}$ 参与的准相位匹配切连科夫弧线;(c)直接切连科夫辐射过程产生的弧线②^[17,19]

另外，对于中间最亮的那个点，仔细观察可以发现，它上面其实有两条弧线. 由图 4(a)中的相位匹配方式可以得到弧度较大的一条弧线. 而另外一条弧度较小的弧线是如何产生的呢？通过分析可以知道，这条弧线是共线的散射光之间的相互作用产生

的辐射. 在(2)式中，同时引入两个共线的散射基波光，就可以得到它的相位匹配公式： $|\beta'(\omega_1) + \beta'(\omega_2) + G_{m,n}| = k(\omega_3) \cos\theta_C$. 相应的相位匹配过程如图 4(c)所示. 理论计算结果(见图 3(b))和实验结果非常吻合.

2.4 准相位匹配切连科夫和频

前面对波导中准相位匹配切连科夫倍频实验进行了分析，这是最简单的单一频率入射光的情况. 在文章开始我们提到过，如果入射光包括两个或者两个以上的频率时，同样可以产生二阶非线性极化，有可能发出切连科夫辐射. 在这一小节中，我们将对两个频率的入射光的情况——切连科夫和频辐射进行研究^[17].

在实验中，我们采用的入射基波光源为 LD 抽运的 Nd:YAG 双波长固体激光器，可以同时输出波长为 $1.064\mu\text{m}$ 和 $1.319\mu\text{m}$ 的激光. 当基波光通过柱透镜耦合到波导里面时，我们就可以在屏上得到一棵漂亮的彩色“圣诞树”，由红、黄、绿 3 种颜色的点和线组成. 实验结果如图 5(a)所示，底部 5 条竖直的线(3 条绿线和 2 条红线)组成了“树”的根. 这些线对应的是波导导模的倍频过程：中间的一条绿线对应于共线的准相位匹配过程，其他的绿线和红线对应于非共线倒格矢参与的准相位匹配过程. 上面的点组成了“树”的枝叶，是非线性切连科夫辐射产生的. 红色和绿色的点分别来自于 $1.064\mu\text{m}$ 和 $1.319\mu\text{m}$ 基波的倍频，黄色的点来自于它们的和频. 点的分布是左右对称的，这是因为入射光是沿着超晶格结构的一个对称轴的方向传播的. 这些点可以按照参与非线性过程的倒格矢的不同分成几组，每组包括 3 个不同颜色的点(2 个倍频点和 1 个和频点). 计算得到的结果如图 5(b)所示，和实验结果吻合得非常好. 位置上有细小的差别是由于放置的屏并不是完全垂直于入射光的缘故. 理论计算都是基于波导基模的. 实际上我们的波导是多模的，图 5(a)中心最亮的绿点上面还有两个小的绿点，这是由波导的多模造成的. 另外，在图 5(a)中仔细观察也可以看到准相位匹配切连科夫和频弧线.

2.5 其他准相位匹配切连科夫辐射

在本文中，我们详细介绍了准相位匹配技术在频率上转换切连科夫辐射过程中的应用. 除了切连科夫倍频和和频辐射，我们最近在实验中还发现了模式耦合(mode-coupling)切连科夫辐射^[20]和切连科夫三倍频辐射^[21]. 另外，对于设计合适的超晶格结构，则可以在理论上实现均匀正常色散介质中不

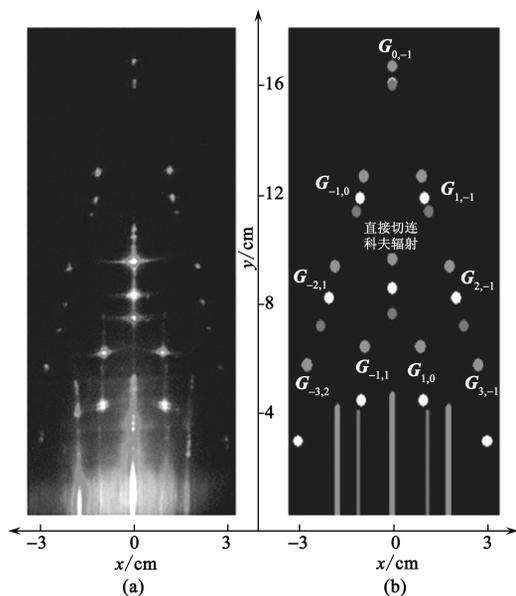


图5 准相位匹配切连科夫和频 (a) 实验图像; (b) 理论计算得到的图像^[17]

可能发生的频率下转换切连科夫辐射。

3 前景

准相位匹配技术的传统应用领域是全固态激光器。除此之外,由于具有高的非线性频率转换效率和可人工设计的超晶格晶体结构,准相位匹配技术也被广泛应用于研究新型的非线性光学效应,并可实现人工调控。例如,二维超晶格结构中一些新型的非线性光学作用,如二阶倍频^[22]、锥形倍频^[23]、级联高次谐波^[24]和增强拉曼散射^[25]等等,已经相继被报道。

非线性光学切连科夫辐射就是基于准相位匹配技术的一种新型的非线性光学效应,它涉及了波导、非线性光学、切连科夫辐射 3 个领域,是一个全新的方向。切连科夫辐射的传统应用领域是粒子探测,非线性切连科夫辐射可以用于光子探测。除此之外,光参量下转换切连科夫辐射还有其自身独特的应用方向,如超连续光源、量子纠缠光源、太赫兹光源等等。这使其在量子通信、成像、监控等领域有潜在的应用前景。更重要的是,可以通过超晶格结构的设计对辐射特性进行人为控制,从而具有更为广泛的应用空

间。非线性切连科夫辐射自身的特点决定了它对光波导参数要求并不苛刻,相应的器件开发相对比较容易。随着科研工作的进一步开展,非线性切连科夫辐射将会成为非线性光学领域的新的研究热点。

参考文献

[1] Cerenkov P A. Dok. Akad. Nauk SSSR, 1934, 2: 451
 [2] Zrelow V P. Cherenkov Radiation in High-Energy Physics. Jerusalem: Israel Program for Scientific Translations, 1970
 [3] Frank I. Vavilov-Cherenkov Radiation. Moscow: Nauka, 1988
 [4] Tien P K, Ulrich R, Martin R J. Appl. Phys. Lett., 1970, 17: 447
 [5] Chen B U, Tang C L, Telle J M. Appl. Phys. Lett., 1974, 25: 495
 [6] Li M J *et al.* IEEE J. Quantum Electron., 1990, 26: 1384
 [7] Keys R. J. Modern Opt., 1990, 37: 545
 [8] Sanford N A, Connors J M. J. Appl. Phys., 1989, 66: 2232
 [9] Hayata K, Koshiba M. Electron. Lett., 1989, 25: 376
 [10] Tohmon G *et al.* SPIE, 1988, 898: 70
 [11] Stevens T E, Wahlstrand J K, Kuhl J *et al.* Science, 2001, 291: 627
 [12] Luo C, Ibanescu M, Johnson S G *et al.* Science, 2003, 299: 368
 [13] Vaya M, Thyagarajan K, Kumar A. J. Opt. Soc. Am. B, 1998, 15: 1322
 [14] Yamada M, Nada N, Saitoh M *et al.* Appl. Phys. Lett., 1993, 62: 435
 [15] Zhu S N, Zhu Y Y, Ming N B. Appl. Phys. Lett., 1995, 67: 320
 [16] Zhang Y, Qi Z, Wang W *et al.* Appl. Phys. Lett., 2006, 89: 171113
 [17] Zhang Y, Gao Z D, Qi Z *et al.* Phys. Rev. Lett., 2008, 100: 163904
 [18] Berger V. Phys. Rev. Lett., 1998, 81: 4136
 [19] Zhang Y, Hu X P, Zhao G *et al.* J. Phys. D: Appl. Phys., 2009, 42: 215103
 [20] Chen C D, Su J, Zhang Y *et al.* Appl. Phys. Lett., 2010, 97: 161112
 [21] Chen C D, Lu J, Liu Y H *et al.* Opt. Lett., 2011, 36: 1227
 [22] Ni P G, Ma B Q, Wang X H *et al.* Appl. Phys. Lett., 2003, 82: 4230
 [23] Xu P, Ji S H, Zhu S N *et al.* Phys. Rev. Lett., 2004, 93: 133904
 [24] Broderick N G R, Bratfalean R T, Monroe T M *et al.* J. Opt. Soc. Am. B, 2002, 19: 2263
 [25] Xu P, Zhu S N, Yu X Q *et al.* Phys. Rev. B, 2005, 72: 064307