

级联 $\chi^{(2)}$ 过程产生高量值高阶非线性相移*

徐 光¹⁾ 王 韬²⁾ 朱鹤元²⁾ 钱列加²⁾ 范滇元^{1,2)} 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

(2001 年 12 月 25 日收到, 2002 年 3 月 7 日收到修改稿)

基于位相失配三倍频 ($\Delta k \neq 0$) 转换, 构建了产生高阶非线性相移的 $\chi^{(2)}$ 级联非线性过程. 此过程不涉及三阶等其他非线性效应, 仅表现为纯的五阶非线性, 所感应的非线性相移正比于 I^2 . 进一步的数值计算研究表明 $\chi^{(2)}$ 级联五阶非线性相移不仅符号可控, 而且具有丰富的饱和特性, 其量值远高于 $\chi^{(2)}$ 级联三阶非线性相移.

关键词: 级联非线性相移, 倍频

PACC: 4265, 4265M

1. 引 言

通过 $\chi^{(2)}$ 二阶级联非线性效应在基频光上实现显著非线性相移的基本物理思想形成于 20 世纪 60 年代^[1], 近几年来, 随着晶体生长及激光技术的进步, 此现象再次引起人们的关注^[2-9], 并推广至基于 $\chi^{(3)}$ 的 $\chi^{(3)}: \chi^{(3)}$ 三阶级联非线性效应^[10]. 二阶级联非线性过程是接连两次利用二阶非线性相互作用, 使光波能量在基波和谐波间不断交换, 从而导致位相特性发生变化的过程. 在整个过程中, 部分基频光首先通过正过程转换为倍频光, 所产生的倍频光再经过逆过程(由 $\Delta k \neq 0$ 导致) 倒流回基频光, 具体物理过程可表示为: $\chi^{(2)}(\omega; 2\omega, -\omega): \chi^{(2)}(2\omega; \omega, \omega)$, 此时基频光将感应到非线性相移, 相当于一个频率简并的 $\chi^{(3)}(\omega; \omega, \omega, -\omega)$ 三阶非线性过程. 然而, 通常在倍频过程中为了获得高的转换效率只希望有正过程而尽量避免逆过程($\Delta k \neq 0$) 的出现. 由于这种级联过程是由两个连续的二阶非线性过程构成, 故所造成的有效非线性将与 $|\chi^{(2)}|^2$ 成正比, 而与波矢失配 Δk 成反比. Vidakovic 等进一步研究发现可以通过改变相位失配 Δk 的正负来改变非线性相移的符号^[11], 由于级联非线性相移固有的特性: 量值大、可饱和性、符号可控, 从而具有许多重要的

应用^[12]. 因其独特的饱和性, 它已被用于高维时空光孤子的产生^[13]; 同时, 级联非线性相移符号可控性可被用于补偿 B 积分^[14], 使飞秒克尔透镜锁模激光器结构更紧凑^[15].

介质固有的非线性除 $\chi^{(3)}$ 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), 与此类比对于 $\chi^{(2)}$ 级联非线性, 除了目前大家了解的等效于 $\chi^{(3)}$ 的非线性效应以外, 是否也存在高阶的级联非线性效应? 其特性又如何呢? 这些是本文研究的主要内容. Koynov 等研究了多个 $\chi^{(2)}$ 级联非线性过程^[16], 暗示了同时存在等效的 $\chi^{(3)}$ 及 $\chi^{(5)}$ 非线性, 但是在他们的工作中, 没有也无法单独对等效于频率简并 $\chi^{(5)}$ 的 $\chi^{(2)}: \chi^{(2)}: \chi^{(2)}$ 级联非线性过程作深入、系统的研究. 本文构建了只存在等效于频率简并 $\chi^{(5)}$ 的 $\chi^{(2)}: \chi^{(2)}: \chi^{(2)}$ 级联非线性过程, 并系统研究了此过程所产生的非线性相移的物理特性, $\chi^{(2)}$ 级联五阶非线性相移不仅符号可控, 而且具有丰富的饱和特性, 其量值远高于 $\chi^{(2)}$ 级联三阶非线性相移.

2. 理论分析

通常的二阶非线性过程有倍频、混频和参量过程. 在相位匹配条件下($\Delta k = 0$) 的倍频过程中(图 1

* 国家自然科学基金(批准号: 60088003), 973 国家重点基础研究发展规划(批准号: G19990752023) 和国家 863 高技术惯性约束核聚变项目资助的课题.

(a)) 将只存在基频光转换到倍频光的正过程. 如果倍频过程的相位匹配条件不满足, 即 $\Delta k \neq 0$ (图 1 (b)) 将同时存在基频光转换到倍频光的正过程及倍频光倒流回基频光的逆过程, 此倍频情况实质上是 $\chi^{(2)}(\omega, 2\omega, -\omega): \chi^{(2)}(2\omega, \omega, \omega)$ 二阶级联非线性过程, 等效于频率简并的 $\chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega, -\omega)$ 三阶非线性过程. 整个过程中剩余的 2ω 光能量对基频光而言相当于双光子吸收损耗, 等效于三阶极化率的虚部 $\text{Im}[\chi^{(3)}]$; 同时, 基频光将遭受到非线性相移, 等效于三阶极化率的实部 $\text{Re}[\chi^{(3)}]$.

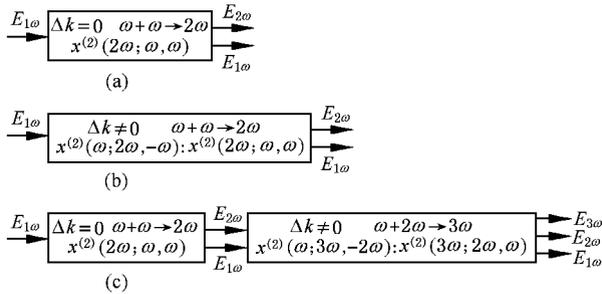


图 1 二阶非线性过程示意图 (a) 相位匹配时, 倍频过程不涉及等效于 $\chi^{(3)}$ 的二阶级联非线性效应, 此时只存在基频光转换到倍频光的正过程 (b) 相位失配时, 倍频过程具有等效于 $\chi^{(3)}$ 的二阶级联非线性效应, 此时存在基频光转换到倍频光的正过程及倍频光倒流回基频光的逆过程 (c) 相位失配时, 三倍频过程只具有等效于 $\chi^{(5)}$ 的二阶级联非线性效应, 此时存在基频光转换到倍频光的正过程、倍频光和基频光产生三倍频光的正过程及三倍频光与倍频光混频倒流回基频的逆过程

感应非线性相移的出现是和 $\chi^{(2)}$ 逆过程紧密关联的, 并且一个 $\chi^{(2)}$ 逆过程将感应一类非线性, 而多个 $\chi^{(2)}$ 逆过程则会感应多类 (高阶) 非线性. 要构建纯的 $\chi^{(5)}$ 非线性必须由三个 $\chi^{(2)}$ 级联过程组成, 其中只能有一个逆过程. 基于位相失配三倍频 ($\Delta k \neq 0$) 转换, 我们构建了产生高阶非线性相移的 $\chi^{(2)}$ 级联非线性过程. 三倍频光的产生通常是先通过倍频 (满足相位匹配) 再进行和频 (满足相位匹配) 的 $\chi^{(2)}(3\omega, 2\omega, \omega): \chi^{(2)}(2\omega, \omega, \omega)$ 二阶级联过程来实现, 此过程等效于 $\chi^{(3)}(3\omega, \omega, \omega, \omega)$ 三阶非线性过程. 如果在三倍频光产生过程中的第二步和频时相位失配 $\Delta k \neq 0$ (图 1(c)), 那么在和频过程中也将同时存在着正过程及逆过程, 倍频光和基频光经过正过程先产生三倍频光, 由于相位失配三倍频光与倍频光将会再经过逆过程将能量倒流回基频光, 因此

在相位失配 $\Delta k \neq 0$ 条件下, 整个三倍频过程实质为 $\chi^{(2)}(\omega, 3\omega, -2\omega): \chi^{(2)}(3\omega, 2\omega, \omega): \chi^{(2)}(2\omega, \omega, \omega)$ 二阶级联非线性过程, 等效于频率简并的 $\chi^{(5)}(\omega, \omega, \omega, \omega, -\omega, -\omega)$ 非线性.

慢变振幅近似条件下, 倍频过程的非线性耦合波方程为^[17]

$$\frac{dE_1}{dz} = -i \frac{\omega}{4cn_\omega} \chi^{(2)}(\omega, 2\omega, -\omega) \times E_2 E_1^* \exp(-i\Delta k_2 z), \quad (1)$$

$$\frac{dE_2}{dz} = -i \frac{\omega}{2cn_{2\omega}} \chi^{(2)}(2\omega, \omega, \omega) \times E_1 E_1 \exp(i\Delta k_2 z), \quad (2)$$

其中波矢失配 $\Delta k_2 = k_{2\omega} - 2k_\omega$, $n_\omega, n_{2\omega}$ 分别为基频光和倍频光所对应的折射率, 上两式分别描述基频光 E_1 和倍频光 E_2 在倍频过程中复振幅的变化情况. 假设初始倍频光为零、晶体长为 L_1 , 在抽运无耗损条件下 (即在整个过程中输入基频光振幅 E_1 不发生变化, $E_1 = E_0$), $\Delta k_2 = 0$ 时得第一步倍频过程的输出结果:

$$E_2 = -i \frac{\omega}{2cn_{2\omega}} \chi^{(2)}(2\omega, \omega, \omega) E_0 E_0 L_1, \quad (3)$$

$$E_1 = E_0. \quad (4)$$

对于第二步和频过程, 慢变振幅近似非线性耦合波方程为

$$\frac{dE_1}{dz} = -i \frac{\omega}{2cn_\omega} \chi^{(2)}(\omega, 3\omega, -2\omega) \times E_3 E_2^* \exp(-i\Delta k_3 z), \quad (5)$$

$$\frac{dE_2}{dz} = -i \frac{\omega}{cn_{2\omega}} \chi^{(2)}(2\omega, 3\omega, -\omega) \times E_3 E_1^* \exp(-i\Delta k_3 z), \quad (6)$$

$$\frac{dE_3}{dz} = -i \frac{3\omega}{2cn_{3\omega}} \chi^{(2)}(3\omega, 2\omega, \omega) \times E_1 E_2 \exp(i\Delta k_3 z), \quad (7)$$

其中波矢失配 $\Delta k_3 = k_{3\omega} - k_{2\omega} - k_\omega$, $n_\omega, n_{2\omega}$ 和 $n_{3\omega}$ 分别为基频光、倍频光和三倍频光所对应的折射率, (5)(6)(7) 式分别表示基频光 E_1 、倍频光 E_2 、三倍频光 E_3 在和频过程中复振幅的演变情况. 对上述方程作小信号近似 ($E_3 \ll E_1, E_2$), 得基频光 E_1 所满足的方程

$$\frac{d^2 E_1}{dz^2} + i\Delta k_3 \frac{dE_1}{dz} + \frac{3\omega^2}{4c^2 n_\omega n_{3\omega}} \chi^{(2)}(\omega, 3\omega, -2\omega) \times \chi^{(2)}(3\omega, 2\omega, \omega) |E_2|^2 E_1 = 0. \quad (8)$$

应用第一步倍频过程输出结果(3)(4)式作为初始值,由(8)式可得,在相位失配的三倍频过程,基频光 E_1 在第二块晶体出射处 $Z = L_2$ 将感应到非线性相移 $\Delta\Phi^{\text{NL}}$,

$$\Delta\Phi^{\text{NL}} = \frac{\Delta k_3 L_2}{2} \left\{ 1 - \left[1 + \frac{3\omega^4 |\chi^{(2)}|^4 L_1^2 I^2}{c^6 \epsilon_0^2 n_\omega^3 n_{2\omega}^2 n_{3\omega} \Delta k_3^2} \right]^{\frac{1}{2}} \right\}, \quad (9)$$

式中 I 为输入光强 $I = \frac{\epsilon_0 n_\omega c}{2} |E_0|^2$, 对于低功率光波 E_0 , $\Delta\Phi^{\text{NL}}$ 可进一步简化成

$$\Delta\Phi^{\text{NL}} = - \frac{3L_1^2 L_2^2 \omega^4 |\chi^{(2)}|^4}{4c^6 \epsilon_0^2 n_\omega^3 n_{2\omega}^2 n_{3\omega} \Delta k_3 L_2} I^2. \quad (10)$$

上式表明,基频光 E_1 在和频晶体出射处被 E_2 光波“烙印”上和入射光强 I_2 成正比符号受 Δk_3 的正负控制的非线性相移,其等效非线性折射率 n_4^{eff} 为

$$n_4^{\text{eff}} = - \frac{3\omega^3 |\chi^{(2)}|^4 L_1^2 L_2}{4c^5 \epsilon_0^2 n_\omega^4 n_{2\omega}^2 n_{3\omega} \Delta k_3 L_2}. \quad (11)$$

由上式可知通过改变 Δk_3 的正负号,可以控制 n_4^{eff} 的符号,增加第一块晶体长度 L_1 将直接导致 n_4^{eff} 的量值增大,同样,固定 $\Delta k_3 L_2$ 增加第二块晶体长度 L_2 也将使 n_4^{eff} 增大。

3. 级联高阶非线性的特征

等效于频率简并 $\chi^{(5)}$ 的 $\chi^{(2)}:\chi^{(2)}:\chi^{(2)}$ 级联非线性过程,只能在入射基频光无耗散的条件下得到近似的解析解(9)(10)(11)式,对于强非线性作用下,基频光的能量将受到显著影响,这将不能再满足弱抽运、无耗散条件,所以只能借助计算机来对耦合波方程进行数值计算.在整个数值计算过程中按照通常定义的非线性长度来衡量入射基频波的强弱,

$$L_{\text{NL}} = \frac{2n_\omega c}{\omega \chi^{(2)} E_0}. \quad (12)$$

数值计算显示,抽运无耗损小信号输入情况下(图2虚线)非线性相移 $\Delta\Phi^{\text{NL}}$ 随光强 I^2 将作线性变化,与我们在抽运无耗损近似下所得解析表达式(10)完全吻合.即抽运无耗损小信号输入时,等效于频率简并 $\chi^{(5)}$ 的 $\chi^{(2)}:\chi^{(2)}:\chi^{(2)}$ 级联非线性过程所产生的非线性相移 $\Delta\Phi^{\text{NL}}$,随入射光强 I^2 作线性变化。

级联五阶非线性具有大的量值.就目前所得到的研究结论看,级联三阶非线性量值最大,较克尔非线性可以大三个数量级,然而由图2可知,在大信号

时级联五阶非线性相移(实线)要比级联三阶非线性相移(点划线)约大5倍,小信号时前者(虚线)较后者(图中未绘出)也有近4倍增大.应用解析表达式(11),以 LiNbO_3 晶体为例计算可得,级联五阶非线性过程的等效非线性折射率 n_4^{eff} . 输入基频光 $\lambda_1 = 1\mu\text{m}$, $L_1 = L_2 = 10\text{mm}$, $\Delta k_3 L_2 = -\pi$ (由数值计算(图4)可知此时 n_4^{eff} 将达到最大值), $n_4^{\text{eff}} = 5.5 \times 10^{-20} \text{cm}^4/\text{W}^2$ 与一般材料固有的 n_4 典型值($\sim 10^{-26} \text{cm}^4/\text{W}^2$)比较有六个数量级的增大。

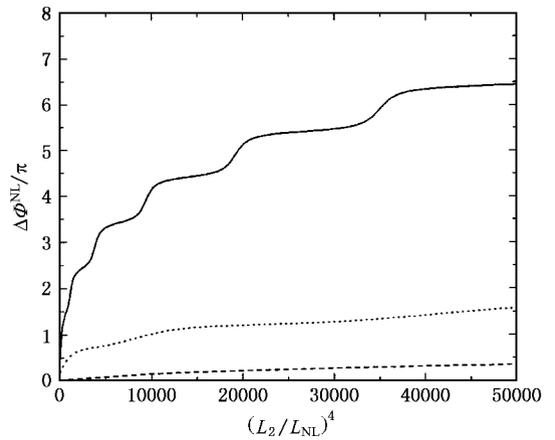


图2 非线性相移与入射光强变化关系曲线 ($L_1 = L_2 = 10\text{mm}$, $L_{\text{NL}} = 0.6\text{--}6\text{mm}$, $\Delta k_2 = 0$, 实线对应 $\Delta k_3 L_2 = -\pi$ (大信号非线性相移), 虚线为 $\Delta k_3 L_2 = -100\pi$ (小信号非线性相移), 点划线同时给出了对应相同情况下级联三阶非线性相移的计算结果 ($\Delta k L = -10$, $L = 10\text{mm}$))

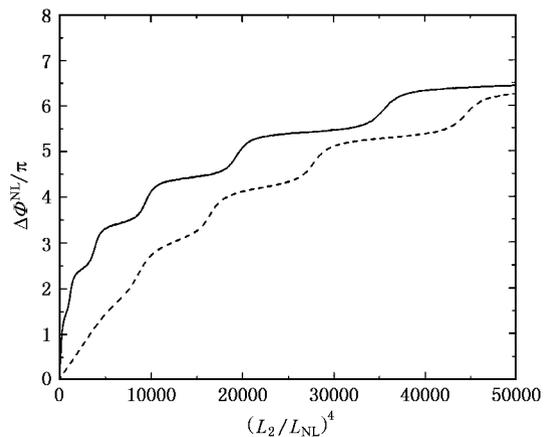


图3 第一步晶体长度变化时非线性相移与入射光强变化关系曲线 ($L_2 = 10\text{mm}$, $L_{\text{NL}} = 0.6\text{--}6\text{mm}$, $\Delta k_2 = 0$, $\Delta k_3 L_2 = -10$, 虚线为 $L_1 = 1.5\text{mm}$ 时非线性相移的变化情况, 实线为 $L_1 = 5\text{mm}$ 时非线性相移的变化情况)

由于本文所研究的 $\chi^{(2)}$ 级联高阶非线性相移是

由多个 $\chi^{(2)}$ 级联过程产生,其非线性具有丰富的饱和和特性.上节理论分析部分中任何小信号近似条件的破坏都将导致非线性相移的饱和:1)图 1(c)中位相匹配的倍频过程的工作区域将直接影响 $\chi^{(2)}$ 级联五阶非线性相移的饱和特性(图 3),强的入射基波光强或者长的晶体尺寸均将导致非线性相移的饱和.同时,图 3 中的计算结果表明增长倍频过程晶体的长度可以增大非线性相移的量值.然而,当晶体长度增加到一定值(对应图 3 中计算参数为 5mm 时)以后,晶体长度的进一步增加不会显著地增大非线性相移的量值,此时 $\chi^{(2)}$ 级联五阶非线性相移显示强烈的饱和性.2)图 1(c)中位相失配的和频过程同样也影响非线性相移的饱和特性(图 2),强的基波光强或者长的晶体以及较小的位相失配量均将导致非线性相移的饱和.

对于非线性相移的符号变化,数值计算表明(图 4)它是由 Δk_3 的正负惟一决定的,与抽运无耗损小信号输入近似及饱和效应无关,在抽运无耗损小信号输入近似下所得的解析式(10)中也可以清楚地看到这一点.与级联三阶非线性类似,非线性相移的最大值分别出现在 $\Delta k_3 L_2 = \pm \pi$ 处.

4. 结 论

本文构建了只存在等效于频率简并 $\chi^{(5)}$ 的 $\chi^{(2)}$: $\chi^{(2)}$: $\chi^{(2)}$ 级联非线性过程,通过理论分析得出了抽运无耗损小信号输入时,非线性相移与入射光强 I^2 成线性变化的解析式.针对大信号、强非线性相互作用,数值模拟了整个过程中非线性相移不仅具有与级联三阶非线性相同的特点,而且具有比后者更大的非线性相移和更丰富的饱和性.此外,应用类似的方法可以产生等效于 $\chi^{(7)}$ 的 $\chi^{(2)}$: $\chi^{(2)}$: $\chi^{(2)}$ 级联非线性过程以及更高阶的情况.

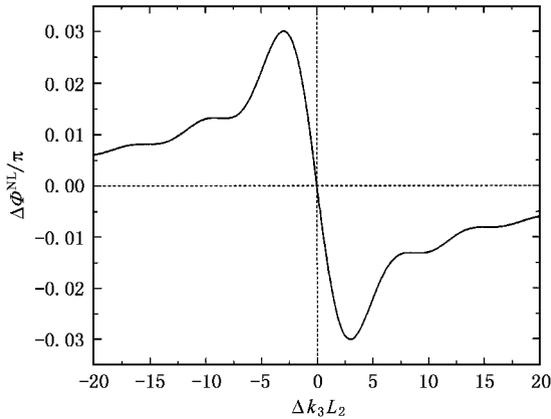


图 4 非线性相移随 $\Delta k_3 L_2$ 变化曲线($\Delta k_3 L_2$ 取负值时非线性相移为正, $\Delta k_3 L_2$ 取正值时非线性相移为负)

[1] Ostrovskii L A 1967 *JETP. Lett.* **5** 272
 [2] Bakker H J, Planken P C M, Kuipers L and Lagendijk A 1990 *Phys. Rev. A* **42** 4085
 [3] Planken P C M, Bakker H J, Kuipers L and Lagendijk A 1990 *J. Opt. Soc. Am. B* **7** 2150
 [4] Laenen R, Graener H and Laubereau A 1991 *J. Opt. Soc. Am. B* **8** 1085
 [5] Nitti S, Tan H M, Banfi G P and Degiorgio V 1994 *Opt. Commun.* **106** 263
 [6] Desalvo R, Hagan D J, Sheik-Bahae M, Stegeman G, Stayland E V and Vanherzeele H 1992 *Opt. Lett.* **17** 28
 [7] Stegeman G, Sheik-Bahae M, Stryland E V and Assanto G 1993 *Opt. Lett.* **18** 13
 [8] Yu T Y, Yu B K, Wang Q, Wan Y B and Pan Sh K 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 463 (in Chinese) [于天燕、余丙鲲、王奇、万尤

宝、潘守奎 2000 *物理学报* **49** 463]
 [9] Xue T, Yu J, Yang T X, Ni W J and Li Sh Ch 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 1521 (in Chinese) [薛挺、于建、杨天新、倪文俊、李世忱 2002 *物理学报* **5** 1521]
 [10] Saltiel S, Tanev S and Boardman A D 1997 *Opt. Lett.* **22** 148
 [11] Vidakovic P, Loring D J and Levenson A 1997 *Opt. Lett.* **22** 277
 [12] Stegeman G, Hagan D J and Torner L 1996 *Opt. Quant. Electron.* **28** 1691
 [13] Liu X, Qian L J and Wise F 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 4631
 [14] Beckwitt K, Wise F and Qian L J 2001 *Opt. Lett.* **26** 1696
 [15] Qian L J, Liu X and Wise F 1999 *Opt. Lett.* **24** 166
 [16] Koynov K, Saltiel S 1998 *Opt. Commun.* **152** 96
 [17] Eckardt R C, Masuda H, Fan Y X and Byer R L 1990 *IEEE. JQE.* **26** 922

The generation of high-order nonlinear phase shifts by cascaded $\chi^{(2)}$ processes *

Xu Guang¹⁾ Wang Tao²⁾ Zhu He-Yuan²⁾ Qian Lie-Jia²⁾ Fan Dian-Yuan^{1 2)} Li Fu-Ming²⁾

¹⁾ *Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China*

²⁾ *State Key Laboratory for Advanced Photonic Materials and Devices, Fudan University, Shanghai 200433, China*

(Received 25 December 2001 ; revised manuscript received 7 March 2002)

Abstract

Based on the phase mismatched frequency tripling, a special configuration is proposed to produce high-order nonlinear phase shifts. In this process, the fifth-order nonlinearity dominates, which is proportional to the square of input fundamental intensity in the limit of large phase mismatch, and no pump depletion in the first crystal. Compared with conventional cascaded $\chi^{(2)}$ nonlinearity, theoretical study and numerical simulations show that this specific high-order nonlinear phase shift can be much larger in magnitude with a controllable sign and a rich saturable feature.

Keywords : cascaded nonlinear phase shift, harmonic conversions

PACC : 4265, 4265M

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60088003), the State Key Development for Basic Research of China (Grant No. 19990752023) and by the National High-Tech Development Program of China