

分类号 _____ 密 级 _____

UDC _____

学 位 论 文

光学超晶格中光散射效应

和光子纠缠研究

(题名和副题名)

徐 平

(作者姓名)

指导教师姓名、职务、职称、学位、单位名称及地址 祝世宁 教授、博导
南京大学物理系 南京市汉口路22号

申请学位级别 博士 专业名称 凝聚态物理

论文提交日期 2007 年 12 月 3 日 论文答辩日期 2007 年 12 月 2 日

学位授予单位和日期 南 京 大 学 2007 年 12 月 19 日

答辩委员会主席 施大宁 教 授

评阅人 施大宁 教 授

李相银 教 授

朱永元 教 授

秦亦强 教 授

陈延峰 教 授

2007 年 11 月 27 日

Study on Optical Scattering and Photon Entanglement in Optical Superlattice

Author: Ping Xu

Major: Condensed Matter Physics

Supervisor: Prof. Shining Zhu

National Laboratory of Solid State Microstructures

& Department of Physics,

Nanjing University

November, 2007

目 录

摘 要.....	i
Abstract.....	iii
第一章 前 言.....	1
【参考文献】	6
第二章 二维光学超晶格及其基本光参量过程.....	8
§2.1 引言.....	8
§2.2 二维光学超晶格的基本描述.....	10
§2.3 参量上转换：倍频和高次谐波.....	12
§2.3.1 倍频.....	12
§2.3.1.1 倍频的相位匹配.....	12
§2.3.1.2 倍频的调谐能力.....	14
§2.3.2 高次谐波.....	16
§2.4 参量下转换.....	16
§2.5 参量自倍频.....	20
§2.6 本章小结.....	22
【参考文献】	23
第三章 光学超晶格中的弹性散射.....	24
§3.1 引言.....	24
§3.2 弹性散射诱导锥形二次谐波产生的物理机制.....	25
§3.3 弹性散射诱导锥形二次谐波产生的实验研究.....	26
§3.4 本章小结.....	31
【参考文献】	32
第四章 光学超晶格中的拉曼散射.....	33
§4.1 引 言.....	33
§4.2 声子极化激元拉曼散射.....	33
§4.3 增强声子极化激元拉曼散射的实验研究.....	34
§4.4 增强声子极化激元拉曼散射的理论处理.....	40
§4.5 几点讨论.....	43
§4.6 结 论.....	44
【参考文献】	45
第五章 光学超晶格中的 EPR 双光子态.....	46
§5.1 EPR 态	46
§5.2 双折射晶体中的 EPR 双光子态	47
§5.3 光学超晶格中的 EPR 双光子态	47
§5.3.1 EPR 双光子态的时间(纵向)关联.....	49
§5.3.2 EPR 双光子态的空间(横向)关联.....	52

§5.4 产生 EPR 双光子对的几种常用非线性光学晶体的比较	55
§5.5 本章小结	57
【参考文献】	59
第六章 光学超晶格中的纠缠转移 EPR 双光子态	60
§6.1 引言	60
§6.2 利用光学超晶格实现纠缠转移	61
§6.2.1 纠缠转移双光子的态函数	61
§6.2.2 时间关联的传递	62
§6.2.3 空间关联的传递	63
§6.2.4 一个重要的应用：高分辨量子光刻	65
§6.2.4.1 经典光刻和量子光刻	65
§6.2.4.2 纠缠转移双光子源光刻	66
§6.2.5 传递效率的估算	67
§6.3 光学超晶格中的其他奇异双光子态	70
§6.4 本章小结	72
【参考文献】	73
第七章 光学超晶格中的 EPR 三光子态	74
§7.1 引言	74
§7.2 光学超晶格中的 EPR 三光子态	75
§7.2.1 EPR 三光子态的产生方案	75
§7.2.2 EPR 三光子态函数	76
§7.2.3 EPR 三光子态的时间关联	77
§7.2.4 EPR 三光子的空间关联	79
§7.3 EPR 三光子态的应用实例	80
§7.3.1 量子成像	80
§7.3.1.1 EPR 双光子“鬼成像”	80
§7.3.1.2 EPR 三光子“鬼成像”	82
§7.3.2 量子光刻	86
§7.4 EPR 三光子产生的其他几种可行性方案	87
§7.5 本章小结	92
【参考文献】	93
第八章 结论和展望	95
攻博期间发表论文、参加学术会议及申请专利	97
致 谢	100

摘 要

近年来光学超晶格（又称准相位匹配材料）的研究取得了很大进展。一方面，光学超晶格已经走出实验室，开始进军产业界，广泛应用于产生不同频率的激光，研制出各种类型的激光器。另一方面，随着人们对光学超晶格研究的深入，新的物理效应层出不穷，不断开创出新的研究课题。本论文系统地研究了二维光学超晶格中准相位匹配耦合参量过程，重点报道了在光学超晶格尤其是二维光学超晶格中发现的若干新效应，在此基础上探讨了这些新效应在非线性光学和量子光学中的可能应用。主要涉及以下几个方面的研究内容：

1、将光学超晶格的理论研究从一维扩展到二维，建立了二维光学超晶格中的耦合波标量方程，探讨了非共线准相位匹配过程的基本特性。实验研究了二维六角极化的钽酸锂超晶格中的基本参量过程，如倍频、参量下转换以及各种级联参量过程。通过对这些基本参量过程的研究，为今后基于二维超晶格的各种原型器件的研制奠定了基础。

2、发现了光学超晶格中锥形的二次谐波光束，这种锥形光束产生于入射光与它的弹性散射光在准相位匹配条件下的和频效应。利用这种效应可将晶体内的近红外弹性散射光转换到可见光波段，并测出弹性散射光在晶体内的空间分布。这一原理可以用来制备锥形激光光束，以及其他各种空间分布的非线性衍射花样。

3、介质中的本征元激发能与电磁波耦合形成极化激元，导致拉曼散射斯托克斯和反斯托克斯信号的产生。我们研究了光学超晶格中拉曼散射的准相位匹配增强效应。实验发现极化激元拉曼散射信号被增强了5~6个量级，高阶（最高达11阶）拉曼散射也达到可探测的强度，形成频率间隔可调的梳形拉曼光谱。这一结果可用于研制新型拉曼激光器并可推广到用于研究晶体中具有电磁特征的其他类型元激发。

4、研究了光学超晶格中 EPR 双光子对的产生及其时、空关联特性。结果证明通过准相位的参量下转化过程产生的 EPR 光子对表现出很好的非经典的时间（能量）关联特性和非经典的空间（动量）关联特性。由于超晶格提供的倒格矢能够参与 EPR 光子对的产生，因而可以通过超晶格中微结构的设计，调控纠缠光子对的空间和时间关联特性，开拓光子纠缠研究的新领域。

5、理论研究了光学超晶格中的几种特异双光子态，包括纠缠转移双光子态、横向调制双光子态及高维的路径纠缠双光子态。研究表明：和频过程能够高保真的转移量子信息，并且如果利用纠缠转移后的纠缠双光子对做光刻光源，其分辨率是经典光刻的 4 倍。利用超晶格还能够产生空间调制的双光子态及各种高维双光子态。

6、理论研究了光学超晶格中产生 EPR 三光子对的关联特性，探讨了利用光学超晶格实现 EPR 三光子对的几种技术途径。重点研究利用参量自倍频过程产生的 EPR 三光子对的时空关联特性。从 EPR 两光子到 EPR 三光子不是一个简单的推广，其涵盖的物理意义有新的扩充，将在量子成像和量子光刻领域有新的应用。

Abstract

In the past decades, great achievements have been made in the engineering of the functional material called optical superlattice (OSL) or quasi-phase-matching material (QPM). Now optical superlattice has stepped out of the laboratory and played an important role in the laser industries arising with kinds of new laser sources. Meanwhile, new phenomena keep being disclosed from the optical superlattice and bring fresh ideas to new research fields. This dissertation is an attempt to address several such new phenomena and utilize these unique properties to provide potential applications in the fields of nonlinear optics and quantum optics. The main contributions are as follows:

1. 2D OSL was thoroughly studied. We expanded the wave-coupling equations from 1D to 2D regime and investigated the main characteristics of optical frequency conversion process in the 2D OSL. Experimentally we explored some basic parametric processes, such as second-harmonic generation, parametric down-conversion and other cascaded nonlinear process like high-order harmonic generation, frequency self-doubling in optical parametric amplification process. These studies indicate potential applications of 2D OSL for novel laser devices developing.
2. The conical harmonic beam was observed in the 2D optical superlattice. The conical beam is generated by the sum frequency generation of the incident light and its elastic scattering light. The near-infrared scattering light is thus converted to visible light band so that its spatial distribution can be easily recorded. According to this phenomenon, people may find new ways to produce the conical beams and other special nonlinear diffractive patterns.

3. An enhanced phonon-polariton (P-P) Raman scattering was observed from a 2D hexagonally poled lithium tantalate wafer. The QPM material is found to be a unique amplifier of Raman scattering. In the experiment, we found the intensity of P-P Raman scattering was enhanced by 5~6 orders and the 11th order of Raman scattering was detectable. The output Raman scattering exhibits a quasi-continuous distributed spectrum with multiple frequency peaks and tunable peak intervals, which enables us to develop a new kind of Raman laser. Besides, most of the other electromagnetic wave (EM) elementary excitations can also be enhanced by the QPM approach in the optical superlattice.

4. The nonclassical space-time correlation of EPR biphoton from optical superlattice was investigated theoretically and experimentally. It proved that the EPR photon pair from optical superlattice behaves in a nonclassical way just like the biphoton from the traditionally birefringence phase-matching (BPM) crystals. In addition the biphoton also carries transverse information with proper spatial design of the OSLs. This differs the QPM EPR biphoton from the BPM biphoton and expand new applications in the area of quantum information.

5. Several novel biphoton states were predicted by the use of the optical superlattice, including entanglement transferred state, spatial-mode modulated biphoton state and other high-dimensional biphoton states. It is concluded that the frequency up-conversion process can be used as a reliable interface for entanglement transfer. The entanglement-transferred biphoton could improve the resolution of lithography by 4 times. Meantime, by taking advantage of the flexibility of structure design, colorful spatial-mode modulated biphoton states and other high-dimensional biphoton states were feasible.

6. Several approaches to generate EPR triphoton state were proposed. Through the cascaded process like frequency self-doubling after spontaneous parametric down-conversion (SPDC) precess, an standard EPR triphoton state can be prepared. The detailed nonclassical space-time correlation was explored. An EPR triphoton state will act as a powerful tool to reveal the fundamental issues about the quantum mechanics and further bring new breakthroughs in quantum imaging and quantum lithography etc.

第一章 前言

由于晶格周期势场的存在，晶体中电子的运动受到影响形成电子能带，人们通过对半导体晶体电子能带的重新设计或裁剪，实现了对电子的调控，奠定了当代信息技术的基础^[1]。正是上世纪七十年代 Esaki 和 Tsu 提出的半导体超晶格^[2]，开创了半导体材料的能带工程，带动了微电子、光电子产业的兴起和发展。这一成就给南京大学研究人员以启示，他们于上世纪八十年代初，将微结构引入介电晶体^[3]，研制出介电体超晶格。介电体超晶格的人工调制周期可和光波、超声波的波长比拟。这样，光波、超声波在介电体超晶格中传播，就类似于电子在晶格周期势场中运动。于是，光子能带、声子能带及与光声有关的其他准粒子能带就出现在介电体超晶格中^[4]。

介电体中引入的有序微结构，可以是对不同物理常数的调制。如被调制的是介电常数(或折射率)，这就是光子晶体，它具有光子能带^[5-7]。如被调制的是弹性常数，就是声子晶体，具有声子能带^[8]。压电常数调制的是离子型声子晶体(Ionic-type phononic crystals)，电磁波与声子晶体中弹性波通过压电效应发生耦合，就产生极化激元能带^[9-11]。二阶非线性极化率张量被调制的称为准相位匹配材料(Quasi-phase-matching materials)，又叫光学超晶格或非线性光子晶体，这种超晶格材料在非线性光学特别是在激光变频方面有着重要的应用^[12-14]。

在非线性介质中，不同频率参量波之间相互作用存在相位(波矢)失配，产生这种失配的原因来自介质的色散效应。这种失配制约了不同频率(波长)参量波之间能量的有效转化。如何补偿这种相位或者波矢失配，在非线性光学诞生之初就引起了人们的极大重视。1962 年诺贝尔奖获得者、非线性光学奠基人 Bloembergen 等人提出了著名的准相位匹配原理^[15,16]。根据该原理，人们可以在非线性晶体中引入周期性的调制结构，通过二阶非线性极化率张量的周期性变号来补偿由于色散引起的不同参量波之间的相位失配。从倒空间即波矢空间看，这种周期调制相当于提供了一个倒格矢，补偿由于色散导致的波矢失配，从而使得不同频率的参量波之间的非线性光学过程得以有效实现。准相位匹配技术和另一种相位匹配技术即双折射匹配相比，有几个显见的优点：(1) 可通过结构设计灵活匹配各种非线性光学过程，例如利用铌酸锂晶体，能够实现在其整个透明波段，

从可见光到中红外波段的倍频、差频、参量振荡过程等，这使得一般双折射匹配材料望尘莫及^[17]。(2)可提高非线性光学过程的效率，因为能够利用最大的非线性系数 d_{33} ，例如周期极化铌酸锂晶体的准相位匹配倍频的效率要比其双折射匹配的倍频效率高 $\left(\frac{2d_{33}}{\pi d_{31}}\right)^2 \approx 20$ 倍。(3)可实现多个非线性过程的级联即多重准相位匹配，比如引进一维准周期序列或设计二维光学超晶格^[18-20]，利用多个独立的倒格矢在一块晶体内就能同时匹配多个非线性光学过程，匹配方式可以是共线的也可以是非共线的。(4)可通过微结构设计任意调整参量波的波前，实现高斯光束的完美匹配和局域相位匹配等，这些被统称为非线性波前工程^[21-23]。

微结构功能材料的应用依赖于制作技术。上世纪八十年代初，用晶体生长办法制作的铌酸锂超晶格晶体被首次用于实验，验证了准相位匹配效应^[24]。上世纪九十年代室温脉冲极化技术的突破，有力地推动了介电体超晶格的基础研究和应用研究。如今光学超晶格已经广泛应用到科研、工业等不同领域。最直接的应用是用来实现高效的激光倍频、三倍频和利用光参量技术研制可调谐的激光光源^[25-29]，在超快激光中用来脉冲压缩、脉冲整形^[30]等；此外在太赫兹波产生^[31]、光学双稳^[32]、光学混沌^[33]、光孤子^[34]等方面都有应用。如今人们研制成如化学剂量掺镁(锌)铌(钽)酸锂等新材料，这类新材料能有效地抑制光折变，抗光损伤和极化性能也有很大改善，这些进展加快了准相位匹配材料进入产业化的步伐。

随着对准相位匹配研究的深入，人们发现将两个或者两个以上准相位匹配过程级联到一块晶体内，能够产生很多新的非线性光学效应。这种级联的耦合过程就称为多重准相位匹配过程，这正是南京大学介电超晶格实验室的特色工作。1990 年左右朱永元教授等率先对 Fibonacci 序列的超晶格进行理论研究^[18]，1997 年祝世宁教授等首次对该理论进行了实验验证，在一块 Fibonacci 超晶格里同时实现了倍频和三倍频^[19]。随后多重准相位匹配的理论 and 实验都得到了进一步的发展，尤其是 1998 年 Berger 将准相位匹配推广到二维结构^[35]，空间对称性的增加丰富了多重准相位匹配的研究内容。我们从 2002 年开始了对二维光学超晶格的实验研究^[20,36]。本论文工作从研究二维光学超晶格的极化工艺开始，发展了一套非共线准相位匹配的理论 and 实验方案。特别是通过准相位匹配不仅实现了不同参量过程的级联，而且发现了光学超晶格中一系列基于准相位匹配的新效应，如

弹性散射诱导的锥形二次谐波的产生、非线性增强拉曼散射等。将光与介质相互作用产生的微弱电磁性信号及介质内的基本元激发信号通过准相位匹配过程进行非线性放大,是本论文对准相位匹配研究的一项重要贡献,这是本论文的第一部分将要介绍的内容。

量子光学是当今正在迅速发展的一门学科,研究内容非常广泛。从 60 年代 Glauber 定义辐射场的相干特性开始^[37],研究者们相继建立激光场和原子作用的理论模型,实现原子相干捕获、激光制冷、玻色爱因斯坦凝聚、无反转激光、单原子激光等,量子光学取得了令人瞩目的成就。另一方面量子光学的发展为研究量子力学的基本物理问题如定域性、互补性原理、隐变量理论等提供了有力工具^[38],这个有力工具就是量子纠缠态。量子纠缠态的性质一直是量子光学中最基本和最核心的研究内容,所以纠缠态的制备是一项关键技术。第一个用于检测 Bell 不等式的光子纠缠态是通过 Ca^{40} 的级联跃迁产生的,由法国 Aspect 小组在上世纪八十年代完成^[39]。后来 Yanhua Shih、Z.Y.Ou 等人利用晶体中自发参量下转换(SPDC)过程产生了孪生光子对^[40,41],这种纠缠光子对因为更接近理想的 EPR 态,后来被广泛应用到量子计算、量子密集编码、量子隐形传态、量子计算等领域。目前这些领域中使用的纠缠光子对主要通过使用双折射非线性晶体(主要是 BBO 晶体)来产生,尽管这种方法已经非常成熟,但是人们一直在寻求具有新特征的纠缠光子源,特别是能够通过非线性参量过程制备的 EPR 多光子纠缠对($n \geq 3$)的途经。由于在非线性光学领域的出色应用,光学超晶格晶体吸引了很多量子光学领域的研究者的兴趣。目前,通过光学超晶格产生的高通量的光子纠缠对已经用于 Bell 不等式的检验、远程量子通信的接口,并且制备出一些新型的纠缠双光子对,如 energy-time 纠缠光子对、time-bin 纠缠光子对、频率关联光子对和反向传播光子对等^[42-46],同时光学超晶格在产生光场压缩态、连续变量纠缠^[47-49]等方面也显现出独特的优势。本论文的后半部分工作主要研究了利用准相位匹配方法产生双光子、多光子纠缠对的可能性及其一些新异的量子特性。我们首先用实验证实了通过光学超晶格中自发参量下转换产生的双光子纠缠态的时间关联和空间关联特性;在此基础上我们希望通过级联准相位匹配过程实验实现光子间的纠缠转移并寻找产生 EPR 多光子态的技术途经,这种多光子态将不同于目前通过后选择的方法得到的“投影”多光子态^[50],对于探究量子力学

本身的完备性和非局域性有重要意义，同时还会在量子隐型传态、量子计算、量子光刻等领域带来技术突破，本论文在这方面做了初步的探索。

综上所述，虽然准相位匹配方法在非线性光学领域的应用已日臻成熟，但新效应的发现仍层出不穷；而在量子光学领域，准相位匹配的研究才刚刚开始，不过它所展现出的新异功能及其可能的应用已引人入胜。在这两个领域光学超晶格与常规晶双折射晶体相比都显示出许多独特的优势和潜力。见下表：

特征	非线性光学	量子光学
一	可灵活设计结构，获得任何所需波长的激光	可灵活设计结构，产生任意频率的纠缠光子
二	可实现高效激光变频、高增益激光输出	可产生高通量纠缠光子对、高增益连续变量纠缠光
三	可实现多重准相位匹配，产生多色激光	可实现多重准相位匹配，产生多光子纠缠态或多色多组分连续变量的模场纠缠
四	可任意调制波前	可产生奇异空间关联的光子纠缠态

本论文主要研究二维光学超晶格在非线性光学和量子光学中的若干新应用，分前后两部分。前半部分即第二章到第四章是研究二维光学超晶格中的弹性散射、元激发非弹性散射等微弱过程的激发和准相位匹配的耦合；后半部分即第五章到第七章主要研究光学超晶格中光子纠缠态的产生和关联特性，光子纠缠的转移、多光子 EPR 态的制备及其新的应用。全文安排如下：

第二章分析了二维光学超晶格的准相位匹配特征，建立非共线二维耦合波方程，着重研究了二维超晶格中特有的倍频效应和参量特性；

第三章实验研究了二维光学超晶格中弹性散射参与的准相位匹配过程，探讨了锥形二次谐波的产生机理及其对研究晶体内部弹性散射的意义；

第四章实验研究了二维光学超晶格中声子极化激元参与的多重准相位匹配过程，介绍了通过二阶非线性过程增强拉曼散射的基本原理，探讨了多级、梳形拉曼散射谱对研究声子极化激元的意义；

第五章实验研究了光学超晶格中的双光子纠缠对的时空关联特性并与常见

的几种双折射晶体做了对比；

第六章理论探讨如何利用光学超晶格实现纠缠传递，以及纠缠传递的特性和应用；

第七章理论探讨如何利用光学超晶格产生 EPR 三光子态，分析了三光子 EPR 态的时间空间关联特性，展示其在量子成像和量子光刻方面的新前景，为今后的实验工作奠定了基础。

最后一章对全文的总结和今后工作的展望。

【参考文献】

- [1] 黄昆, 物理, **22**, 257 (1993)
- [2] L. Esaki and R. Tsu, IBM Research Note, **RC2418** (1969)
- [3] 冯端, 物理, **18**, 1 (1989)
- [4] Ming Nai-Ben, Facets **2** (No.2), 6 (2003)
- [5] E. Yablonovitch, T. J. Gmitter, Phys. Rev. Lett. **63**, 1950 (1989)
- [6] Jin Feng, Nai-Ben Ming, Phys. Rev. A **40**, 7047 (1989)
- [7] Z. L. Wang, Y. Y. Zhu, Z. J. Yang *et al.*, Phys. Rev. B **53**, 6984 (1996)
- [8] E. N. Economou, M. Sigalas, J. Acous. Soc Am **95**, 1734 (1994)
- [9] Y. Q. Lu, Y. Y. Zhu, Y. F. Chen *et al.*, Science **284**, 1822 (1999)
- [10] Y. Y. Zhu, X. J. Zhang, Y. Q. Lu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **90**, 053903 (2003)
- [11] C. P. Huang and Y. Y. Zhu, Phys. Rev. Lett. **94**, 117404 (2005)
- [12] 闵乃本, 自然科学进展 **4**, 543 (1994)
- [13] Y. Y. Zhu, N. B. Ming, Opt. Quant. Electron **31**, 1093 (1999)
- [14] N. B. Ming, Adv. Mater. **11**, 1079 (1999)
- [15] J. Armstrong, N. Bloembergen *et al.*, Phys. Rev. **127**, 1918 (1962)
- [16] P. A. Franken and J. F. Ward, Rev. Mod. Phys. **35**, 23 (1963)
- [17] Byer, R. L. Nonlinear Opt. **7**, 234 (1994)
- [18] Y. Y. Zhu and N. B. Ming, Phys. Rev. B **42**, 3676 (1990)
- [19] S. N. Zhu, Y. Y. Zhu and N.B. Ming, Science **278**, 843 (1997)
- [20] P. Xu, S. H. Ji, S. N. Zhu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **93**, 133904 (2004)
- [21] J. R. Kurz *et al.*, IEEE J. Sel. Top. Quan. Elec. **8**, 660 (2002)
- [22] G. Imeshev *et al.*, Opt. Lett. **23**, 673 (1998)
- [23] Y. Q. Qin, C. Zhang *et al.*, submitted to Phys. Rev. Lett.
- [24] D. Feng, N. B. Ming, J. F. Hong *et al.*, Appl. Phys. Lett. **37**, 607 (1980)
- [25] M. Yamada, N. Nada, M. Saitoh *et al.*, Appl. Phys. Lett. **62**, 435 (1993)
- [26] J. Webjorn, V. Pruneri, P. St. J. Russell *et al.*, Electron. Lett. **30**, 894 (1994)
- [27] S. N. Zhu, Y. Y. Zhu, Z. Y. Zhang *et al.*, J. Appl. Phys. **77**, 5481 (1995)
- [28] T. Hatanaka *et al.*, Opt. Lett. **75**, 2175(1999); W. R. Bosenberg *et al.*, Opt. Lett.

- 21, 1336 (1996)
- [29] S. V. Tovstonog *et al.*, Appl. Phys. Lett. **90**, 051115 (2007); C. Canalias *et al.*, Nature **1**, 459 (2007)
 - [30] G. Imeshev *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **17**, 1420 (2000)
 - [31] Y. Sasaki *et al.*, Appl. Phys. Lett. **81**, 3223 (2002)
 - [32] Y. Q. Qin *et al.*, J. Phys. C **10**, 8939 (1998); B. Xu and N. B. Ming *et al.*, Phys. Rev. Lett. **71**, 1003 (1993)
 - [33] K. N. Alekseev *et al.*, JETP. Lett. **75**, 174 (2002)
 - [34] F. Baronio *et al.*, IEEE J. Quant. Elec **38**, 1309 (2002)
 - [35] V. Berger, Phys. Rev. Lett. **81**, 4136 (1998)
 - [36] P. Xu, S. N. Zhu, X. Q. Yu *et al.*, Phys. Rev. B **72**, 064307 (2005)
 - [37] R. J. Glauber, Phys. Rev. **131**, 2766 (1963)
 - [38] M. O. Scully and M. S. Zubairy, *Quantum Optics* (1997)
 - [39] A. Aspect, P. Grangier, and G. Roger, Phys. Rev. Lett. **49**, 91 (1982)
 - [40] Y. H. Shih and C. O. Alley, Phys. Rev. Lett. **61**, 2921 (1988)
 - [41] Z. Y. Ou and L. Mandel, Phys. Rev. Lett. **61**, 000050 (1988)
 - [42] E. J. Mason *et al.*, Opt. Lett. **27**, 2115 (2002)
 - [43] S. Tanzili *et al.*, Eur. Phys. J. D **18**, 155 (2002)
 - [44] S. Tanzilli *et al.*, Nature **437**, 116 (2005)
 - [45] O. Kuzucu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 083601 (2005)
 - [46] M. C. Booth *et al.*, Phys. Rev. A **66**, 023815 (2002)
 - [47] Y. B. Yu *et al.*, Phys. Rev. A **74**, 042332 (2006)
 - [48] Y. Li *et al.*, Opt. Lett. **24**, 660 (2007)
 - [49] M. J. Lawrence *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **19**, 1592 (2002)
 - [50] D. Bouwmeester, J. W. Pan, M. Daniell *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 1345 (1999); Z. Zhao, T. Yang, Y.-A. Chen *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 180401 (2003); K. J. Resch, P. Walther, and A. Zeilinger, Phys. Rev. Lett. **94**, 070402 (2005); Z. Zhao, Y.-A. Chen, A.-N. Zhang *et al.*, Nature **430**, 54 (2004)

第二章 二维光学超晶格及其基本光参量过程

§ 2.1 引言

1998 年 Berger 理论上将准相位匹配的研究从一维扩展至二维^[1], 2000 年 N. Broderick 等第一次成功制备并演示了在六角极化超晶格中的倍频及高次谐波的产生^[2]。我们研究组则从 2002 年初开始二维极化的钽酸锂光学超晶格的实验研究^[3,4], 发现了二维光学超晶格中有很多新颖特有的非线性光学效应^[5-6]。

相比一维周期、准周期光学超晶格^[7,8], 二维光学超晶格的优势在于丰富了非线性三波耦合的相匹配几何。在二维光学超晶格中, 由于 $\chi^{(2)}$ 调制的空间对称性, 非线性参量过程如倍频、三倍频、及参量下转换等非线性极化场会按特定对称性重新分布, 甚至出现一些二维所特有的非线性衍射花纹。数学处理二维光学超晶格中的多波耦合问题, 不能套用一维的耦合波方程。我们从麦克斯韦方程出发, 重新寻求三维的耦合波方程:

$$\begin{cases} \nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \\ \nabla \times \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{J} \\ \nabla \cdot \vec{D} = \rho \\ \nabla \cdot \vec{B} = 0 \end{cases} \quad (2.1)$$

加上物质的本构方程:

$$\begin{cases} \vec{J} = \sigma \vec{E} \\ \vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \\ \vec{B} = \mu_0 (\vec{H} + \vec{M}) \end{cases} \quad (2.2)$$

实验涉及的几种铁电材料都是非电非磁的, 所以 $\sigma = 0, \vec{M} = 0$ 。极化波依赖于外加激发波的电场和材料的微观结构, 对于二阶非线性系数调制的铁电材料, 我们有:

$$\vec{P} = \epsilon_0 \vec{\chi} : \vec{E} + \epsilon_0 \vec{\chi}^{(2)} : \vec{E} \vec{E} \quad (2.3)$$

与一般体块均匀体块材料相比, 不同之处在于 $\chi^{(2)}$ 是空间调制的。以倍频为例,

(2.3)式写为:

$$\nabla^2 \bar{E}_2(\vec{r}) + \frac{n^2 \omega_2^2}{c^2} \bar{E}_2(\vec{r}) = \frac{\omega_2^2}{c^2} \chi^{(2)} \bar{E}_1(\vec{r}) \bar{E}_1(\vec{r}) \quad (2.4)$$

$\bar{E}_2(\vec{r}), \bar{E}_1(\vec{r})$ 分别是倍频和基波的复电场矢量。两边点乘 $\frac{\bar{E}_2(\vec{r})}{|\bar{E}_2(\vec{r})|}$ 变成标量方程,

$$\nabla^2 E_2(\vec{r}) + \frac{n^2 \omega_2^2}{c^2} E_2(\vec{r}) = \frac{\omega_2^2}{c^2} \chi^{(2)} E_1^2(\vec{r}) \quad (2.5)$$

其中 $E_2(\vec{r}) = \tilde{E}_2(\vec{r}) e^{i\vec{k}_2 \cdot \vec{r}}$ 和 $E_1(\vec{r}) = \tilde{E}_1(\vec{r}) e^{i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}}$ 是倍频和基波的电场标量。根据电场边界条件我们得到二维光学超晶格中的耦合波标量方程:

$$\begin{cases} \frac{\partial \tilde{E}_2}{\partial x} + \frac{1}{2ik_2} \frac{\partial^2 \tilde{E}_2}{\partial y^2} = -i \frac{\omega_2 \chi^{(2)}(x, y)}{n_2 c} \tilde{E}_1^2 e^{i(\Delta k_x x + \Delta k_y y)} \\ \frac{\partial \tilde{E}_1}{\partial x} + \frac{1}{2ik_1} \frac{\partial^2 \tilde{E}_1}{\partial y^2} = -i \frac{\omega_1 \chi^{(2)}(x, y)}{n_1 c} \tilde{E}_2 \tilde{E}_1^* e^{i(\Delta k_x x + \Delta k_y y)} \end{cases} \quad (2.6)$$

这个方程非常有用, 形同 $\chi^{(2)}$ 空间孤子方程^[9]。这个方程很容易推广到三维情形, 只要多引入 z 自由度即可。其中 $\Delta k_x = 2k_{1x} - k_{2x}$, $\Delta k_y = 2k_{1y} - k_{2y}$ 。数值求解方程(2.6), 我们就可以直观地研究光场能量如何在倍频和基波在两维空间内相互耦合、相互转化。当然我们还可以进一步简化这个问题, 以便看清物理本质。作小信号和小角近似, 即忽略基波能量损耗并且只考虑谐波与基波夹角较小的情形, 利用格林函数求解 (2.5) 式。满足无源齐次振动方程 $\nabla^2 G(\vec{r}, \vec{r}') + k_2^2 G(\vec{r}, \vec{r}') = -\delta(\vec{r} - \vec{r}')$ 的格林函数为:

$$G(\vec{r}, \vec{r}') = \frac{1}{4\pi} \frac{e^{ik_2(\vec{r} - \vec{r}')}}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \quad (2.7)$$

则二次谐波的电场为:

$$E_2(\vec{r}, t) = \int \frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2} \frac{\ddot{P}(\vec{r}', t - \frac{|\vec{r} - \vec{r}'|}{v_3})}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d\vec{r}' \quad (2.8)$$

这是一个典型的偶极辐射场, 偶极子形式为 $\vec{P} = \vec{P}_0 e^{i[(2\vec{k}_1 + \vec{G}) \cdot \vec{r}' - 2\omega_1 t]}$ 。所以晶体内部每点都可以看成是非线性偶极子, 空间中某点总电场是这些非线性偶极子在该点的辐射场的线性叠加。能否形成有效的相干叠加, 则取决于非线性极化波的相速

和二次谐波的相速的比较。晶体中的非线性极化波的相速为 $v_p = \frac{2\omega_1}{|2\vec{k}_1 + \vec{G}|}$ 。因为

极化波相速受 $\chi^{(2)}$ 空间调制的影响，实际上是等效相速。二次谐波的相速为

$v_s = \frac{2\omega_1}{|\vec{k}_2|}$ 。根据二次谐波的相速和极化波相速关系的不同，我们分三种情形讨论：

(1) $v_s = v_p$ 即二次谐波的相速和极化波相速相同，二次谐波的等相位面法线同极化波波矢方向，此时二次谐波就沿着极化波方向传播。这就是我们熟悉的完全相位匹配条件：

$$\vec{k}_2 = 2\vec{k}_1 + \vec{G} \quad (2.9)$$

(2) $v_s < v_p$ 即二次谐波的相速小于极化波相速，二次谐波的等相位面法线方向

在某个不同于极化波波矢方向，夹角为 θ ， $\cos\theta = \frac{v_s}{v_p}$ 。这就是非线性 Čerenkov

辐射，其相位匹配条件是：

$$\cos\theta = \frac{|2\vec{k}_1 + \vec{G}|}{|\vec{k}_2|} \quad (2.10)$$

(3) $v_s > v_p$ 即二次谐波的相速大于极化波相速，这时候二次谐波没有等相位面。

没有谐波输出。

§ 2.2 二维光学超晶格的基本描述

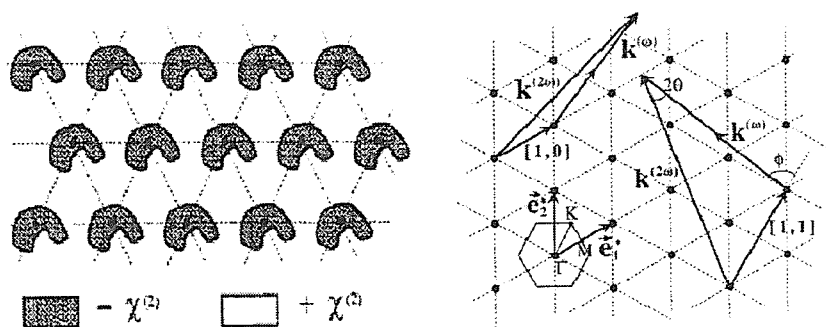


图 2.1 (a)二维光学超晶格的示意图 (b)对应倒空间示意图

图 2.1(a)是一个六角极化的光学超晶格的示意图^[1]。阴影区的二阶非线性系数 $\chi^{(2)}$ 被反转。六角结构的倒空间也是六角的，只不过相对正空间要旋转 90° ，见图 2.1(b)，。以 $\vec{e}_1$ 和 $\vec{e}_2$ 为基矢，倒空间描述为： $\vec{G}_{m,n} = m\vec{e}_1 + n\vec{e}_2$ 。因为倒空间的六度对称性，模相等的倒格矢是等价的，即具有相同的傅立叶系数和相同的相位匹配功能。二维结构的傅立叶系数表示为：

$$f_r(|\vec{G}_{m,n}|) = \begin{cases} -4f \frac{J_1(|\vec{G}_{m,n}|r)}{|\vec{G}_{m,n}|r}, & |\vec{G}_{m,n}| \neq 0, \\ 1-2f, & |\vec{G}_{m,n}| = 0, \end{cases} \quad (2.11)$$

其中 $J_1(x)$ 是一类 **Bessel** 方程，(2.11)式适用于所有的二维结构。 r 是反转圆柱孔的半径（这里设反转畴为圆柱形）， f 是反转区单元面积和结构的初基元胞面积的比值。对于六角结构， $|\vec{G}_{m,n}| = \frac{4\pi\sqrt{(m^2+n^2+mn)}}{\sqrt{3}} \frac{r}{a}$ ， $f = \frac{\pi r r^2}{\sqrt{3}a^2/2} = \frac{2\pi}{\sqrt{3}} \left(\frac{r}{a}\right)^2$ 。其

中 $\frac{r}{a}$ 定义为占空比，是直接判定极化反转程度的物理量。图 2.2 是几个低阶倒格矢的傅立叶系数随着占空比 $\frac{r}{a}$ 的变化情况：

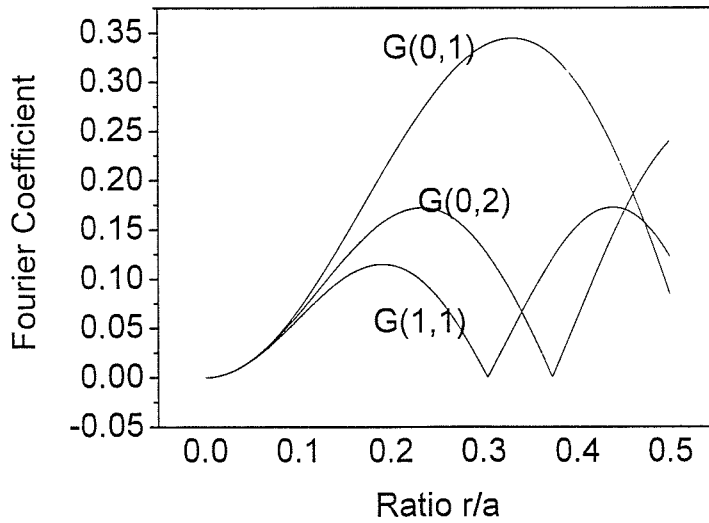


图 2.2 几个低阶倒格矢的傅立叶系数随占空比的变化情况

模越小的倒格矢对应的傅立叶系数越大，这是由 *Bessel* 函数的性质决定的。 $\vec{G}_{0,1}$ 的傅立叶系数相对较大，在占空比 $\frac{r}{a} = \frac{1}{3}$ 时傅立叶系数达到的最大值为 0.344。这个值还是小于一维周期结构中的最大的傅立叶系数最大值 $\frac{2}{\pi}$ ，所以二维超晶格中单个准相位匹配过程的效率不会高于一维结构。然而二维结构具有更高的空间对称性，二维超晶格完全可以同时利用多个等价倒格矢参与相位匹配，丰富了相匹配几何。并且输出光场具有一定的空间花样，这是在一维结构中不可能实现的。

§ 2.3 参量上转换：倍频和高次谐波

§2.3.1 倍频

§2.3.1.1 倍频的相位匹配

本章中涉及的实验使用的是室温脉冲极化法制备的六角结构的钽酸锂光学超晶格。图 2.3 (a) 是该超晶格在酸溶液中腐蚀后+c 面的显微照片，反转区域近似圆形。该反转区域的二阶非线性极化率与整个背景相反，占空比 $\frac{r}{a} \approx 0.33$ ，反转面积占空比 40% 左右，调制结构的点阵参数为 $a = 9.05$ 微米。样品尺寸 $15.5mm(x) \times 15.5mm(y) \times 0.5mm(z)$ 。整个区域比较均匀，少有畴合并现象。图 2.3(b) 是的显微照片，和+c 面对应的反转区域呈三角形，三角形的一条边沿着 x 轴，腐蚀后的形状是由腐蚀动力学和晶体结构共同决定的。(c) 是该结构的衍射花样。(d) 是倒空间结构的示意图。图(c)除了像图(d)反映六角结构的倒空间结构特征以外，还携带了各阶倒格矢傅立叶系数强度和腐蚀深度的信息。

在这种二维 $\chi^{(2)}$ 光子晶体中的二次谐波产生需要满足的相位匹配条件为：

$$\vec{k}_2 - 2\vec{k}_1 - \vec{G}_{m,n} = 0, \quad (2.12)$$

$\vec{k}_1$ 和 $\vec{k}_2$ 分别为基波和二次谐波的波矢， $\vec{k}_1$ 、 $\vec{k}_2$ 和倒格矢 $\vec{G}_{m,n}$ 可以共线也可以不共线。基波来自可调谐光参量振荡器(PL9010, Continuum, Santa Clara, CA), z 偏振，波长可在 200nm-1700nm 范围内连续调谐，线宽 0.075cm^{-1} ，脉宽 3ns，重复频率 10Hz。经过透镜聚焦到在晶体内，束腰约 100 微米，对应共焦长度 60mm，

所以在晶体长度内基波的发散可忽略。

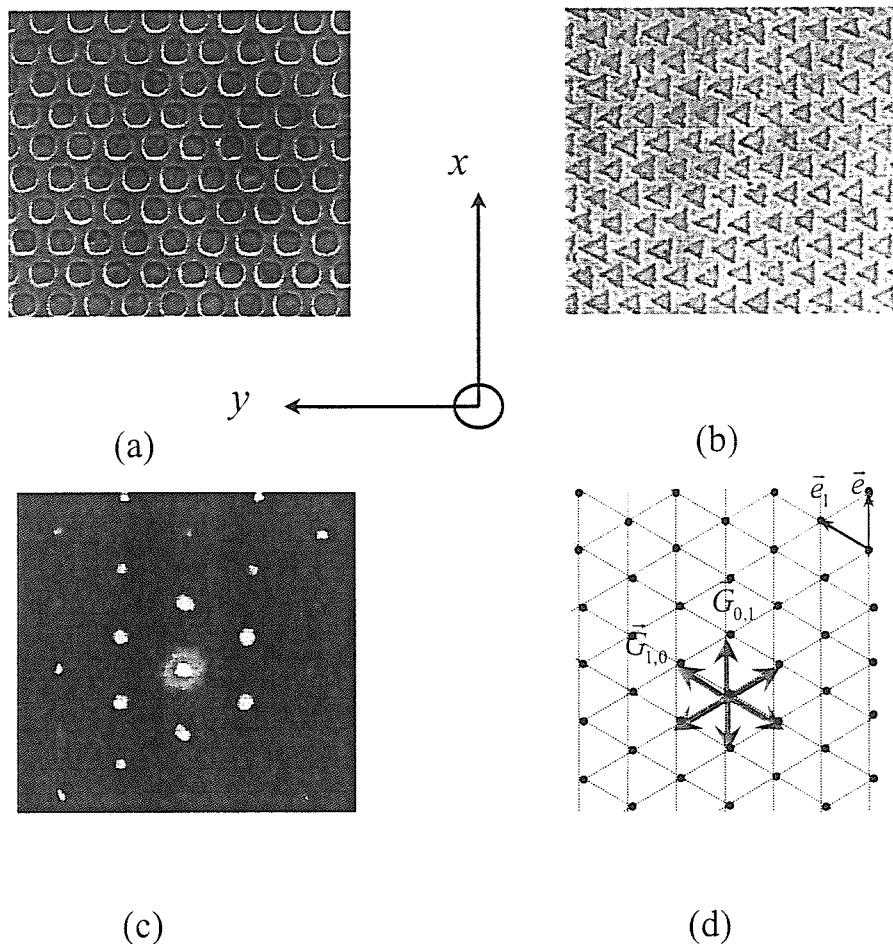


图 2.3 (a)六角极化钽酸锂超晶格的+c 显微照片 (b) -c 面显微照片
(c) 样品的结构衍射花样 (d)倒空间的示意图

这块超晶格的设计的初衷是在室温(20°C)实现 1064nm 沿 x 轴的共线倍频。扫描基波的波长从 800nm 到 1400nm 范围内一直有比较强的二次谐波输出,谐波几乎覆盖了整个可见光区域。二次谐波束或者与基波平行或者相对基波镜像对称分布,由各阶倒格矢的对称性决定,见图 2.3。每个倍频过程都对应某个倒格矢,倍频匹配波长和倍频出射角的实验值都与理论计算都符合得很好,见图 2.4。当然这些倍频过程有强有弱,主要取决于参与其中的倒格矢的傅立叶系数的大小。图中标示的 $\vec{G}_{0,1}$ (1063.8nm $\rightarrow$ 531.9nm, $\theta_{\text{ext}} = 0^\circ$) 和 $\vec{G}_{1,0}$ (1351.1nm $\rightarrow$ 675.6nm, $\theta_{\text{ext}} = 4.32^\circ$)倒格矢参与的两个倍频过程最强。值得注意的是: $\vec{G}_{10,-5}$ 是图中倍频过程涉及到的倒格矢中傅立叶系数最小的。能够观察到这个高阶倒格矢参与的倍

频过程充分说明了样品内部极化非常的非常均匀一致。

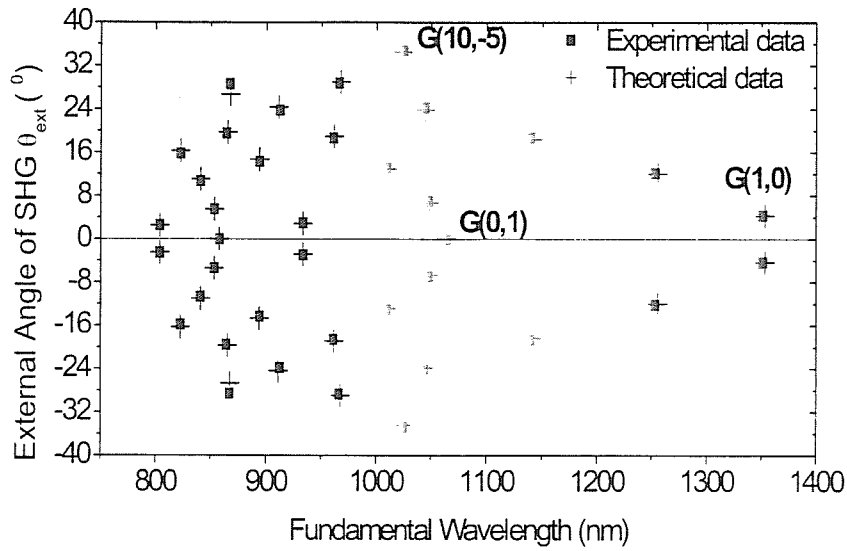


图 2.4 六角极化的钽酸锂超晶格中多倍频输出

§2.3.1.2 倍频的调谐能力

二维光学超晶格中相位匹配的一个重要特征就是匹配带宽变宽，如图2.5。

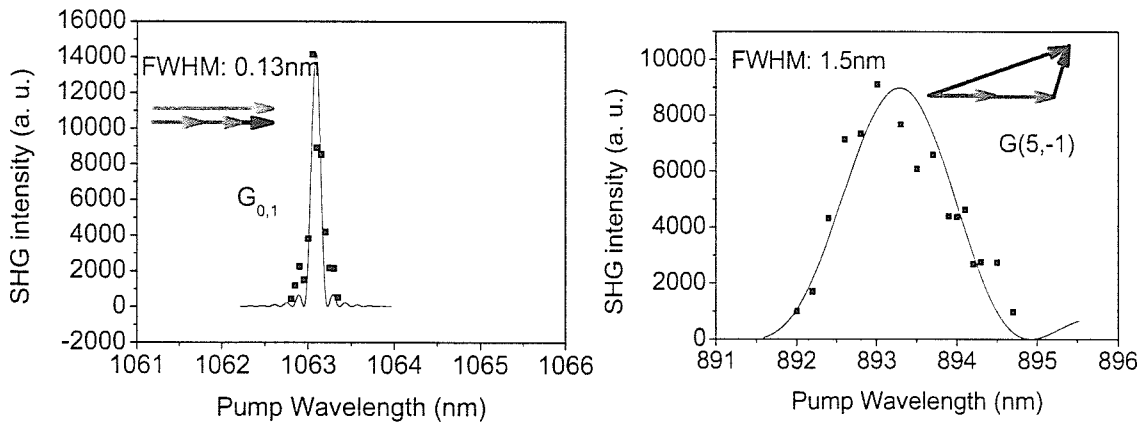


图 2.5 (a)共线匹配倍频带宽

(b)非共线匹配倍频带宽

图 2.5 (a)是 $\vec{G}_{0,1}$ 倒格矢参与的 1064nm 倍频的调谐情况，倍频带宽为 0.13nm。

这和相同长度的一维周期极化的光学超晶格中倍频的接收带宽相近。但是如果与基波非共线且夹角较大的倒格矢参与的倍频过程，倍频的匹配带宽有所增加即可以在较宽的波长范围内调谐，并且随着倒格矢与基波夹角的增大，倍频调谐能力

也随之增强。如图 2.5 (b) 所示是所示的 $\vec{G}_{s,-1}$ 参与的倍频过程，匹配中心波长在 893.5nm，匹配带宽达到 1.5nm，远大于共线匹配的倍频带宽。实验测得的带宽和理论计算吻合得很好。本质上二维斜匹配带宽的增加是因为光束本身的尺寸效应。取小信号近似，理论上计算二维匹配的带宽问题应从 (2.8) 式出发，得到：

$$E_2(\vec{r}) = \tilde{E}_2 e^{i\vec{k}_2 \cdot \vec{r}} \int d\vec{r}' e^{i(\vec{k}_2 - \vec{g}_{mn} - 2\vec{k}_1) \cdot \vec{r}'} \quad (2.13)$$

在直角坐标系下：

$$E_2 \propto \sin c\left(\frac{k_{2x} - 2k_{1x} - g_x}{2} l\right) \sin c\left(\frac{k_{2y} - 2k_{1y} - g_y}{2} a\right) \sin c\left(\frac{k_{2z} - 2k_{1z}}{2} b\right) \quad (2.14)$$

在柱坐标系下：

$$E_2 \propto \sin c\left(\frac{k_{2x} - 2k_{1x} - g_x}{2} l\right) \text{somb}\left(\left|\vec{k}_{2\rho} - 2\vec{k}_{1\rho} - \vec{g}_\rho\right| a\right) \quad (2.15)$$

一般 $l \gg a, b$ ，所以倍频的匹配带宽主要由光束横向尺寸决定。横向尺寸越小，允许的横向失配就越大，也就是只需纵向“投影”匹配，简称投影匹配，我们熟悉的非线性 Čerenkov 辐射就属于这种匹配方式^[10-12]。

我们看到改变非线性相互作用的尺寸可以改变相位匹配的效果。在此我们对尺寸受限系统作分类：

(1) “0 维”受限系统，对应“完全相位匹配”。也就是当就是样品三个维度的尺寸都很大，即体块样品，那么每个方向都要求严格的相位匹配。这就是通常意义上的相位匹配，即

$$\vec{k}_2 - 2\vec{k}_1 - \vec{g} = 0 \quad (2.17)$$

(2) “1 维”受限系统，对应“面投影匹配”。比如样品是平面波导，必然允许在波导厚度方向的相位失配，而只需在波导面内投影匹配即可。这就是平面波导的点状 Čerenkov 辐射^[12]，即

$$(\vec{k}_2 - 2\vec{k}_1 - \vec{g}) \cdot \vec{\rho}_{xy} = 0 \quad (2.18)$$

(3) “2 维”受限系统，对应“线投影匹配”。如样品是条形波导，必然允许在整个条形波导横截面内的相位失配，而只需沿波导轴向投影匹配即可。这就是条形波导的环形 Čerenkov 辐射^[13]。

$$(\vec{k}_2 - 2\vec{k}_1 - \vec{g}) \cdot \hat{e}_x = 0 \quad (2.19)$$

§2.3.2 高次谐波

二维六角密堆结构具有丰富的角分布的倒格式，所以较容易实现三次甚至四次谐波的输出。比如在室温 1353nm 附近观察到基波两侧 5° 倍频的同时，还在约 3° 的方向观察到 1353nm 的三倍频。倍频和三倍频过程的相位匹配分别由倒格矢 $\bar{G}_{1,0}$ 和 $\bar{G}_{1,1}$ 完成。除此以外，在某些波长还有看到较弱的四次谐波的输出。

§ 2.4 参量下转换

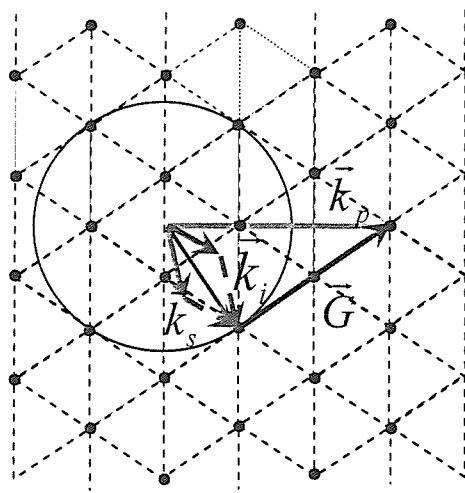


图 2.6 二维光学超晶格参量过程的非线性 *Ewald* 球

与二维光学超晶格中的倍频过程类似，参量下转换过程除了共线匹配几何之外，还有非共线的匹配几何。如图 2.6 所示，泵浦光波矢终点落在倒空间的某个格点上，以起点作为原点，半径 $|\bar{k}_s + \bar{k}_i|$ 的球面如果恰好落在某个或某几个倒格点上，那么就正好满足了参量下转换的匹配条件。这个可类比于晶体 X 射线散射中的 *Ewald* 球，只不过现在的散射光波矢 $|\bar{k}_s + \bar{k}_i|$ 和入射光波矢 $\bar{k}_p$ 大小不相等，所以称为非线性 *Ewald* 球。我们要注意对应某个倒格矢只是确定了 $|\bar{k}_s + \bar{k}_i|$ 的大小， $\bar{k}_s$ 和 $\bar{k}_i$ 还可以有角度调谐关系。这就是参量的角度带宽问题，所以参量匹配的带宽总是宽于倍频或和频等上转换过程的匹配带宽。

下面就列举实验中观察到的几种参量下转换的匹配几何，将这种二维六角极化的钽酸锂光学超晶格和一维超晶格作对比，寻同求异。实验的泵浦光源来自可

调谐光参量振荡器 OPO (PL9010, Continuum, Santa Clara, CA)。脉宽 3 纳秒, 重复频率 10Hz。用 $f = 100 \text{ mm}$ 的透镜将泵浦紧聚焦到晶体内, 以便提高泵浦的峰值功率密度。因为泵浦单次产生参量受激一般需要很高的峰值功率密度。

(1) 共线匹配

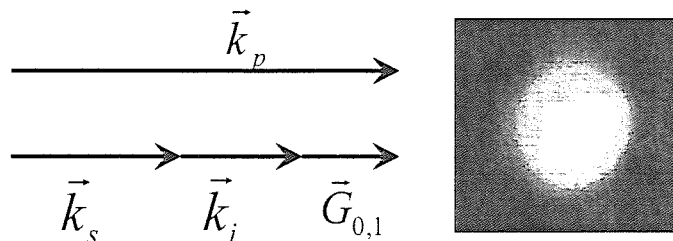


图 2.7 共线参量匹配几何及 CCD 采像

图 2.7 所示的是 $\vec{G}_{0,1}$ 倒格矢参与的共线参量过程。根据前面的倍频实验知道, 如果泵浦光为 532nm, 室温下发生简并参量下转换。泵浦波长向短波方向调节, 这种共线的参量几何仍然能够满足, 只不过参量光两支频率不再简并。调谐泵浦从 532nm 到 503nm 可以得到连续可调参量光 700nm~1.8μm。如图 2.8 所示, 实验调谐波长和理论值吻合得很好。泵浦光波长的微小调节, 比如 30nm 的变化, 就可以得到 1000nm 左右的可调谐参量光输出。

图 2.9 是调谐泵浦波长时信号光带宽的变化规律, 和理论估计是一致的。越靠近简并点, 参量匹配带宽就越宽, 参量线宽由下面公式给出^[14]:

$$B_{\omega} = \frac{2}{a} \left(\frac{2g_0}{L} \ln 2 \right)^{1/2}, \quad (2.20)$$

其中 $a = \left(\frac{dk_s}{d\omega_s} \Big|_{\omega_s^0} - \frac{dk_i}{d\omega_i} \Big|_{\omega_i^0} \right)$ 是信号光和闲置光中心频率的群速倒数之差。

$g_0 = 2 \sqrt{\frac{\omega_s \omega_i}{n_p n_s n_i \epsilon_0 c^3}} d_{\text{eff}} (I_p)^{1/2}$ 是参量放大的阈值, L 是晶体的长度。单通参量受激所需泵浦能量大概在 0.012mJ, 束腰 60 微米左右, 对应峰值功率密度大约 70MW/cm²。

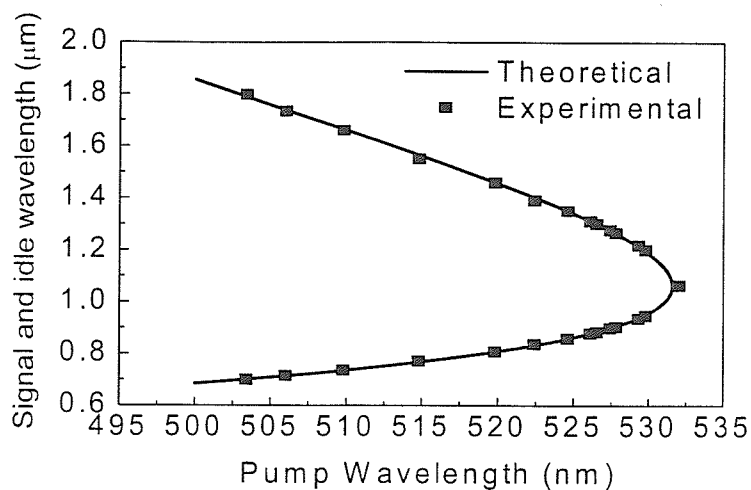


图 2.8 二维光学超晶格中共线参量匹配的波长调谐规律

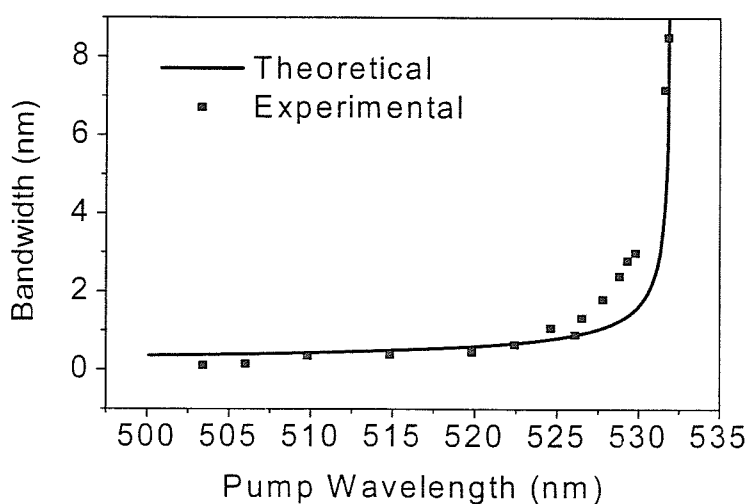


图 2.9 二维光学超晶格中共线参量匹配的信号光带宽随泵浦光波长的变化规律

(2) 非共线匹配

a. 等腰三角形匹配几何

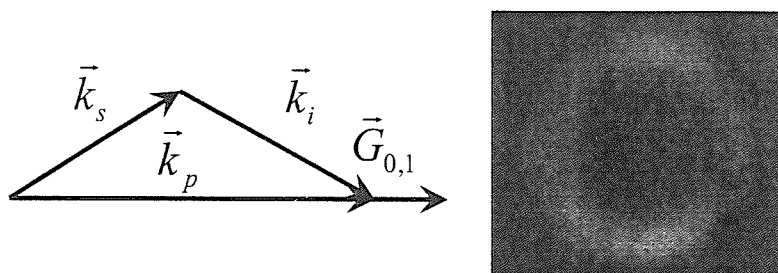


图 2.10 等腰三角形（或菱形）参量匹配几何及 CCD 采像

在前面共线参量匹配附近，如果我们调谐泵浦光波长大于 532nm，发现会有简并的等腰三角形（或菱形）匹配出现。随着泵浦波长增大，参量出射角变大。参量受激的阈值也越来越高。

b. 一般三角形匹配几何

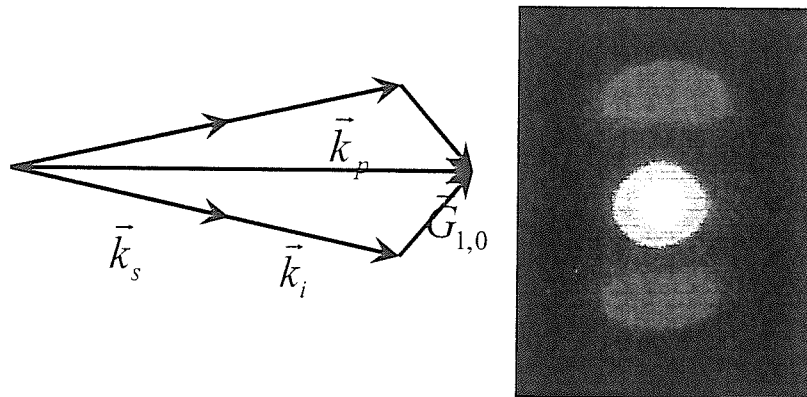


图 2.11 一般三角形参量匹配几何及 CCD 采像

将晶体转过 90° ，也就是泵浦光沿着晶体的 y 方向入射，我们就可以观察到这种一般三角形匹配，即由于斜倒格矢（相对泵浦光）的参与，信号光和闲置光在不同于泵浦的方向同向输出，这就是共线非简并情形，这里共线指的是信号光和闲置光共线。图 2.11 中泵浦光波长为 517nm，信号光波长和闲置光波长分别在 680nm 和 $2.15\mu\text{m}$ ，出射角为 2° 左右。这些数据都和理论值吻合。

除了上面总结的三种参量匹配模式，还有一种也就是非简并非共线参量模式。实验中我们并没有被观察到这种模式。虽然从相位匹配的可能性来讲，这种匹配方式并没有劣势，但是达到受激参量的阈值较高，因为它既不简并（图 2.9，图 2.10）也不共线（图 2.9 和图 2.11）。当然可以用 OPO 技术将其选择振荡。

不难发现，上面列举的参量匹配几何其实都不是二维超晶格特有的，在一维超晶格中通过转动角度或者是调谐波长都可以找到对应的匹配方式。然而却很少有这方面的报道，究其原因，有二：

(1) 实现相同的相位匹配的调制参数不一样，六角结构的极化周期要比一维大 $2/\sqrt{3}$ 倍，这样更好的保证极化的质量，在单通光路配置下，更容易达到参量

受激的阈值。

(2) 六度对称性带来光路配置的简单易行，无需调整晶体角度。更有可能保证某些具有空间对称性的多过程的同时匹配。这些都是一维结构无法企及的。

§ 2.5 参量自倍频

在研究二维光学超晶格中的参量特性时，我们发现利用 532nm 泵浦晶体得到下转换的信号光和闲置光的同时，在某些温度，信号光或者闲置光还能够满足倍频匹配条件，得到额外的红光（闲置光倍频）或蓝光（信号光倍频）输出。这种参量下转换级联倍频的过程称为参量自倍频过程^[15]。

在室温(20°C)，基波 532nm 沿着上述二维光学超晶格的 x 轴入射时，可实现 532nm→1064nm 的简并参量下转换。调节晶体温度到 178°C，除了沿着泵浦方向得到参量下转换的信号光(873nm)、闲置光(1362nm)，在泵浦光两侧 5° 方向观察到闲置光的倍频 681nm 的红光。参与闲置光倍频过程的倒格矢是 $\vec{G}_{1,0}$ 及其镜面对称的倒格矢。这个级联参量过程满足的相位匹配关系为：

$$\begin{aligned}\vec{k}_p - \vec{k}_s - \vec{k}_i - \vec{G}_{0,1} &= 0 \\ \vec{k}_u - 2\vec{k}_i - \vec{G}_{1,0} &= 0\end{aligned}\quad (2.21)$$

其中， $\vec{k}_p, \vec{k}_s, \vec{k}_i$ 和 $\vec{k}_u$ 分别代表泵浦光、信号光、闲置光和闲置光的倍频。两个过程利用的是都具有最大傅立叶系数的倒格矢 $\vec{G}_{0,1}$ 和 $\vec{G}_{1,0}$ 。泵浦为 1.36mJ 时，得到信号光脉冲能量为 110μJ，能量转化效率 8%，光子转换效率 13%。同时得到 19nJ 的闲置倍频红光，其相对于闲置光的能量转化效率为 27%，光子效率 14%，相对泵浦光的能量转换效率为 1.4%，光子效率为 1.8%。提高泵浦单脉冲能量，参量信号光和闲置倍频光的能量随之快速增长，具有高增益光学参量放大（OPA）的特征。参量自倍频的空间花样的照片见图 2.12。

调节晶体温度，我们还观察到其他几个很强的参量自倍频过程：118°C 附近的 $\vec{G}_{3,-1}$ 参与的闲置光倍频；95°C 附近 $\vec{G}_{1,1}$ 参与的信号光倍频及 195°C 附近 $\vec{G}_{2,1}$ 参与的信号光倍频。表 2.1 列出了这几个参量自倍频过程的调谐特性。在温度 178°C~190°C 范围内我们同时得到了红蓝双色，再加上剩余泵浦绿光，就有希望

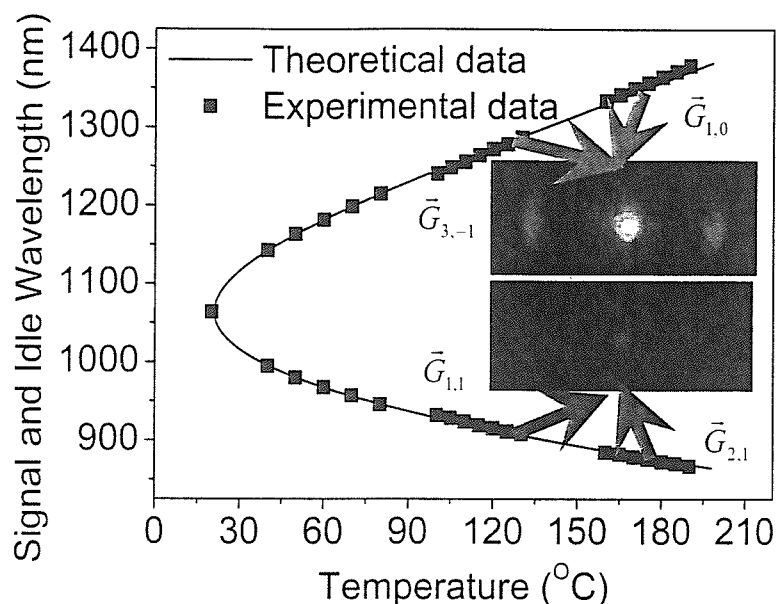


图 2.12 信号光和闲置光波长的温度调谐，内置插图是信号光倍频（蓝光）和闲置光倍频（红光）的空间花样的照片。

用作 RGB 三色激光光源。这是一种新型的非共线的红绿蓝激光显示方案。通过加谐振腔的优化设计，让信号光或者闲置光在腔内高度反馈，参量自倍频过程就是一个 high-Q 的 OPO 过程级联一个 high-Q 的腔内倍频过程，有望获得高功率 RGB 三色输出。具体实验已经在进行之中，利用一个 Q-switched 的准连续 532nm 激光泵浦这块六角极化超晶格，目前已获得红蓝总功率约 500mW。

$T(\Delta T)$ (°C)	$\lambda_s(\Delta\lambda_s)$ (nm)	$\lambda_{su}(\Delta\lambda_{su})$ (nm)	$\lambda_i(\Delta\lambda_i)$ (nm)	$\lambda_{iu}(\Delta\lambda_{iu})$ (nm)	α_{ext} (°)	$G_{m,n}$	f_{mn}	I_u (Exp)	I_u (Theo)
90(5)	936(6)	468(0.5)	1233(12)		3	$\bar{G}_{1,1}$	0.04	1	1
112(13)	920.8(5.5)		1260(10)	630(5)	12	$\bar{G}_{3,-1}$	0.07	3.3	2.3
178(12)	873(4)		1362(7.3)	681.2(3.3)	5.5	$\bar{G}_{1,0}$	0.32	40	40
190(4.4)	867(2.6)	433(1)	1379(7.7)		5	$\bar{G}_{2,1}$	0.07	8	3

表 2.1 四个较强的参量自倍频的线宽、温度带宽、效率

由于这个过程对相位匹配的条件要求很高，如果利用双折射晶体如 KTP、LBO、BBO 只有某个特殊角度恰好能够满足这个条件^[15-18]。然而使用光学超晶格就变得容易多了。目前，国际上已经有人研究一维周期和非周期结构中参量级联倍频或和频的过程^[19,20]。我们发现：在二维超晶格中，参量自倍频以新的非共线匹配的方式出现，具有一定的空间对称性。参量自倍频过程除了用来产生红绿蓝三色激光外还可以产生比泵浦光波长更短的相干光，特别能够用来得到短波长 fs 脉冲激光。此外，非常重要的一点：参量自倍频过程等级联准相位匹配过程在量子光学领域会有新的应用，比如能够产生纠缠的多光子态或者产生多色的关联正交模场。这在第七章中将有详细讨论。

§ 2.6 本章小结

本章建立了二维光学超晶格的耦合波标量方程，探讨了二维准相位匹配的基本特征。实验研究了两维六角极化的钽酸锂超晶格中的倍频、三倍频以、参量下转换和级联准相位匹配等过程的特征和应用的性质。

六角极化的钽酸锂超晶格在很宽的基波调谐范围内都有倍频输出。非共线相位匹配有宽调谐能力，我们这一特征归结为非线性作用的“尺寸受限”效应。六角密堆的结构设计同时有利于三倍频、四倍频的输出。

六角极化的钽酸锂超晶格中的参量下转换过程匹配几何非常丰富。为二维超晶格的 OPO 设计奠定了基础，也为两维超晶格中新型纠缠光子对产生提供了方案。

六角极化的钽酸锂超晶格中能够产生新型的多重准相位匹配过程。我们详细研究了其中一种具有代表性的级联参量过程：参量自倍频过程。展望其在 RGB 激光显示、短波长相干光产生及在量子光学中的可能应用。

【参考文献】

- [1] V. Berger, Phys. Rev. Lett. **81**, 4136 (1998)
- [2] N. G. R. Broderick *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 4345 (2000)
- [3] P. Xu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **93**, 133904 (2004)
- [4] 准位相匹配光参量过程的理论和实验研究 南京大学硕士论文 杜燕 (2002)
- [5] P. Xu, S. N. Zhu, X. Q. Yu, *et al.*, Phys. Rev. B **72**, 064307 (2005)
- [6] B. Ma *et al.*, Appl. Phys. Lett. **87**, 251103 (2005)
- [7] S. N. Zhu, Y. Y. Zhu and N. B. Ming, Science **278**, 843 (1997)
- [8] M. M. Fejer *et al.*, IEEE J. Quan. Elec. **28**, 2631 (1992)
- [9] X. Liu, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 4631 (1999)
- [10] P. K. Tien, R. Ulrich, and R. J. Martin, Appl. Phys. Lett. **17**, 447 (1970)
- [11] D. H. Auston *et al.*, Phys. Rev. Lett. **53**, 1555 (1984)
- [12] Y. Zhang, Z. Qi, W. Wang and S. N. Zhu, Appl. Phys. Lett. **89**, 171113 (2006)
- [13] K. Chikuma *et al.*, Appl. Opt. **43**, 4697 (2004)
- [14] Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics* _Wiley, New York (1984)
- [15] T. Kartaloglu *et al.*, Opt. Lett. **22**, 280 (1997)
- [16] J. M. Yarborough and E. O. Ammann, Appl. Phys. Lett. **18**, 145 (1971)
- [17] V. Petrov and F. Noack, Opt. Lett. **20**, 2171 (1995)
- [18] E.C. Cheung *et al.*, Opt. Lett. **19**, 1967 (1994)
- [19] H. H. Abu-Safe, Appl. Opt. **44**, 7458 (2005)
- [20] T. Kartaloglu *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **20**, 343 (2003)

第三章 光学超晶格中的弹性散射

§ 3.1 引言

晶体内部的缺陷或其他非均匀性会造成光的弹性散射，例如我们熟知的 1871 年 T. B. Rayleigh 发现的瑞利散射。在散射中心的尺寸远小于光的波长的情况下，瑞利散射的强度反比于波长的四次方。后来 G. Mie 和 P. Debye 用球形散射理论模型将散射分类，得出 $I_s(\lambda) \propto I_0(\lambda) \frac{1}{\lambda^\sigma}$ ， σ 的值取决于散射中心的尺寸。散射中心尺度远小于波长时， $\sigma = 4$ ，就是前面提到的瑞利散射；散射中心尺寸远大于波长时，弹性散射光的强度就和波长无关了， $\sigma = 0$ ；散射中心尺寸介于和波长可比拟时， $\sigma \in (0, 4)$ ，具体的值还要看散射杂质和介质的特定情况^[1]。散射光的强度还和散射中心的数目、散射截面的大小等有关。一般来讲，弹性散射尤其是在透明固体媒质内的弹性散射通常很弱，不易探测，特别是近红外和红外光波段的弹性散射就更难探测了。

非线性光学晶体中各种物理过程能导致各种线性或者非线性衍射花样的产生，这就为人们观察和研究这些物理过程提供了一种有效方法和手段，成为非线性光学中的一个研究热点^[2-6]。其中锥形光束可用在光学微操纵操控、光信息处理、光学加工、量子光学等领域，因此如何产生锥形谐波束引起了人们广泛的兴趣。

本章通过实验证明：光学超晶格能够将弱弹性散射信号显著增强，其基本原理是微弱的弹性散射光信号和入射光之间可以实现和频。在位相匹配条件下，这种和频将能以很高的效率完成。我们观察到了这一新颖的非线性效应，并且从一块六角极化的二维光学超晶格中产生出了不同空间分布的锥形二次谐波束。这种明亮的锥形谐波束直接将红外波段的弹性散射光转换成可见光，它的强弱也正比于散射光的强度。利用这种方法我们首次测得了弹性散射在钽酸锂晶体中的分布，这是一种前向的小角散射，为晶体质量和微结构的表征提供了一种有效的方法，同时这也是一个简单易行的产生锥形谐波束的方法^[7]。

§ 3.2 弹性散射诱导锥形二次谐波产生的物理机制

在二维光学超晶格中一般的二次谐波的产生需要满足的相位匹配的条件为：

$$\vec{k}_2 - 2\vec{k}_1 - \vec{G}_{m,n} = 0, \quad (3.1)$$

其中 $\vec{G}_{m,n} = \frac{4\pi}{\sqrt{3}a} \sqrt{m^2 + n^2 + m \cdot n}$ 是六角点阵(点阵周期为 a)的倒格矢, 下标 m, n

表示倒格矢的阶数。等式 (3.1) 中, $2\vec{k}_1$ 表示入射基波, $\vec{k}_1$, $\vec{k}_2$ 和 $\vec{G}_{m,n}$ 可以共线或者不共线。这种简单的倍频匹配情形在第二章中已经有详细研究。

现在我们关注的是晶体内的弹性散射光有没有可能与基波发生和频? 假设弹性散射光波矢为 $\vec{k}_1'$, 它在 4π 立体角内都有分布, $\vec{k}_1'$ 和 $\vec{k}_1$ 大小相等但是方向不同, 弹性散射光与基波和频的过程要满足的相位匹配条件是：

$$\vec{k}_2 - \vec{k}_1 - \vec{k}_1' - \vec{G}_{m,n} = 0 \quad (3.2)$$

按倒格矢相对基波的对称性分类, 有：

(1) 倒格矢 $\vec{G}_{m,n}$ 和基波共线

对于倒格矢 $\vec{G}_{m,n}$ 和基波共线的情形, (3.2)式的匹配波长要大于 (3.1) 的匹配波长, 也就是每找到一个倒格矢的倍频匹配点后, 增加基波波长, 非共线的弹性散射光就会和基波发生和频, 给出锥形的二次谐波光束。随着基波波长的进一步增加, 更大角度的弹性散射光将满足和频过程的相位匹配条件, 输出的锥形谐波光束的锥角越来越大。图3.1很清楚的说明了这一点。

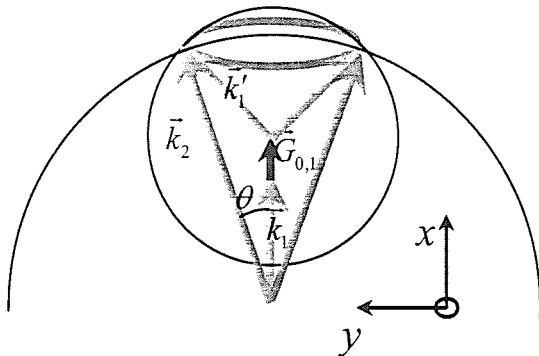


图 3.1 弹性散射光与基波光的和频：共线倒格矢情形