

电场极化条件对石英玻璃的电致二阶非线性光学效应的影响*

陈红兵 徐建华¹ 刘丽英¹ 余保龙 朱从善 陆兴泽¹ 干福熹

(中国科学院上海光机所 上海 201800 ¹复旦大学物理系 上海 200433)

提要 报道了电场极化条件对石英玻璃的电致二阶非线性光学效应的影响的研究结果。通过实验发现,石英玻璃经较高温度下的电场极化作用所产生的二次谐波发生与极化温度、极化电压具有相关性,并表现出一定的规律性:在一定的极化电压下,二次谐波强度在某一适中的温度下达到极值;在一定的极化温度下,二次谐波强度随极化电压的增大而逐渐增强,并渐趋饱和。根据玻璃的电致二阶非线性极化的“偶极子取向”模型,解释了实验结果。

关键词 石英玻璃, 电场极化, 二次谐波发生, 偶极子取向

1 引 言

根据非线性光学原理,玻璃在宏观上是各向同性的,它不具有二阶非线性极化率($\chi^{(2)} = 0$),因而在较长时间内被人们认为一般不可能产生二阶非线性光学效应。1986年 Osterberg 和 Margulis^[1]首次报道了掺锗石英光纤的光致二阶非线性光学效应的实验结果,玻璃材料的二阶非线性才受到研究者的重视。1991年 Myres 等人^[2]利用较高温度下的高压直流电场对石英玻璃片进行极化,然后测量该样品的二次谐波,结果获得了是光纤 $10^3 \sim 10^4$ 倍的二阶非线性系数,同时还发现了与光致二阶非线性不同的现象,如光致二阶非线性极化可以被较强的倍频光擦去,而石英玻璃的电致二阶非线性极化则不能。这一实验启示人们开始探索获得玻璃材料的二阶非线性的另一新途径——电致二阶非线性光学效应。除石英玻璃以外,人们先后在含 OH^- 的 SiO_2 玻璃^[3]、含 TiO_2 硅酸盐玻璃^[4]、半导体微晶掺杂玻璃^[5]中发现电致二阶非线性效应。玻璃中光、电致二阶非线性光学效应的机理研究表明,作为非晶态材料的玻璃经强激光或强电场的预处理后,其宏观的中心对称性将被破坏,并呈现出永久性的二阶非线性极化,从而在实验上表现出光、电致二阶非线性光学效应。目前该研究对于开拓无机非晶态材料的新性能具有一定的学术价值,而光学倍频玻璃材料也可望具有潜在的应用前景。

基于玻璃中电致二阶非线性效应的强弱与电场极化条件存在相关性,本文通过实验测量定量地研究了石英玻璃的电致二阶非线性效应与极化温度、极化电压相关的规律性,并根据玻璃的电致二阶非线性极化的“偶极子取向”模型,对实验结果进行了分析和解释。

* 国家自然科学基金资助课题。

2 实验方法

2.1 样品的电场极化

实验采用的样品为石英玻璃 JGS_2 , 将其加工成 $1.6 \text{ mm} \times \phi 20 \text{ mm}$ 的玻璃片。

通过电场极化技术对样品进行极化, 采用的极化实验装置如图 1 所示。通过调压器、变压器和整流器将 220 V 的交流电转变为高压直流电加于两不锈钢平行板电极之间, 极板间的电压(即极化电压 V_p) 由调压器调节, 并由高压静电计测量; 电极装置在一小型电阻炉中, 用温度控制仪对炉中温度进行控制。

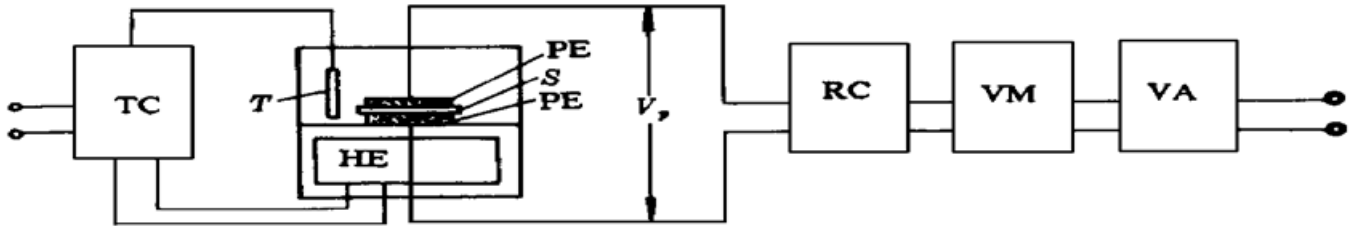


图 1 电极化实验装置

TC: 控温仪; HE: 加热元件; S: 样品; PE: 平行板电极; T: 热电偶; RC: 整流器; VM: 电压倍增器; VA: 调压器; V_p : 极化电压

Fig. 1 Experimental setup for electrical poling

TC: temperature controller; HE: heating element; S: sample; PE: planar electrode;

T: thermocouple; RC: rectifier cell; VM: voltage multiplier; VA: voltage adjuster; V_p : poling voltage

极化样品时, 将样品直接置于两电极之间并与电极接触; 开启电炉, 先将炉温升至一定温度 ($150 \sim 450^\circ\text{C}$), 然后将极化电压调制至一定数值 ($1 \sim 8 \text{ kV}$), 加于两电极之间, 极化时间为几分钟至几小时。经过一段时间的极化后, 关闭电炉, 使样品自然冷却至室温, 然后撤去极化电压。通过以上过程, 便实现了对样品的极化。

2.2 二次谐波的测量

电致二次谐波的测量装置如图 2 所示。使用调 $Q \text{ Nd} \cdot \text{YAG}$ 激光器的 $1.064 \mu\text{m}$ 波长输出作为基频光, 脉宽为 10 ns , 单脉冲能量为 10 mJ , 重复率为 10 Hz 。经一对格兰棱镜调节光强并使之成为偏振光, $1/2$ 波片用于改变入射光偏振方向。样品置于电动转台上, 通过旋转样品调节激光束的入射角; 出射光经 $0.532 \mu\text{m}$ 干涉滤光片和隔红外玻璃, 以使接收到的是二次谐波信号。以石英晶体的二次谐波产生信号 (I_q) 为参比, 二次谐波信号 (I) 由光电倍增管接收, 经 Boxcar 积分平均后由 X-Y 记录仪记录。

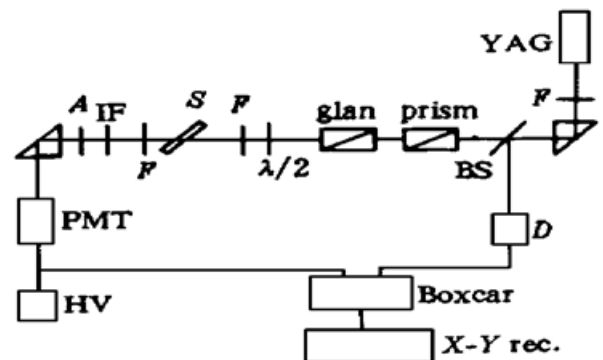


图 2 二次谐波发生实验装置

F: 滤光片; S: 样品; D: 光电二极管;

A: 检偏器; BS: 分光镜; IF: 532 nm 干涉滤光片

Fig. 2 Experimental setup for second harmonic generation

F: filter; S: sample; D: photodiode; A: polarization analyzer;

BS: beam splitter; IF: 532 nm interference filter

3 实验结果

本实验测量了不同基频光入射角下所产生的二次谐波强度, 从而得到样品的 Marker

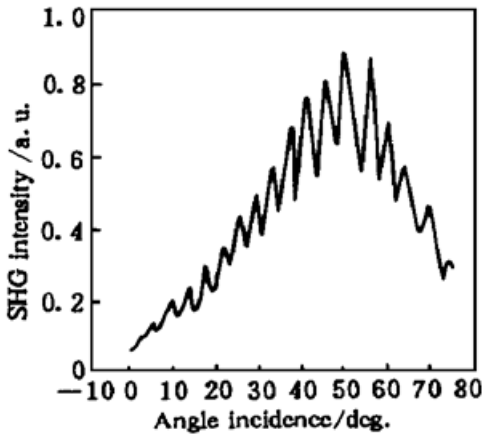


图3 二次谐波强度随入射角的变化
(样品经 250℃, 7.5 kV 下的电场极化)
Fig. 3 Variation of SHG intensity with
incidence angle for silica glass poled
at 250℃ and 7.5 kV

条纹。将样品在 7.5 kV, 250℃下经 1 h 的电场极化, 对此样品测得其条纹如图 3 所示。该图部分显示出条纹, 二次谐波在 50℃左右取得最大, 且测得 $I/I_q = 6 \times 10^{-3}$ 。

为了研究电场极化条件影响电致二阶非线性形成的有关规律, 先对样品进行不同极化温度(T_p) 和极化电压(V_p) 下的极化, 然后测量其二次谐波(SHG)信号的相对强度, 由此可得到二次谐波强度与极化温度、极化电压相关的经验曲线。

将若干片相同的样品在固定的极化电压(7.5 kV)而不同的极化温度下(150~ 450℃)进行 1 h 电场极化, 然后测量其最强二次谐波信号的相对强度, 从而得到二次谐波强度(a. u.)随极化温度的变化趋势(如图 4 所示)。由图可见, 在相同的极化电压下, 二次谐波信号开始随极化温度的升高而逐渐增强, 并在约 250℃下获得极大值, 然后随着极化温度的升高其强度又逐渐减弱, 且逐渐趋于稳定。

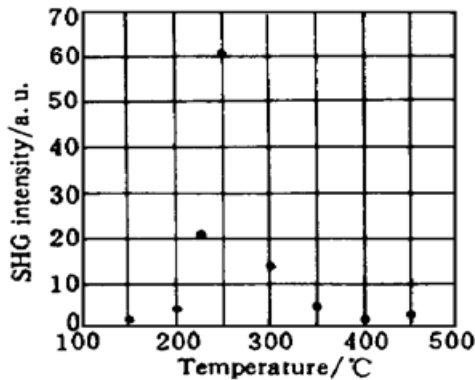


图4 二次谐波强度与极化温度的关系
(样品在 7.5 kV 下经 1 h 极化)

Fig. 4 Dependence of SHG intensity on the poling temperature when the sample is poled at 7.5 kV for 1 h

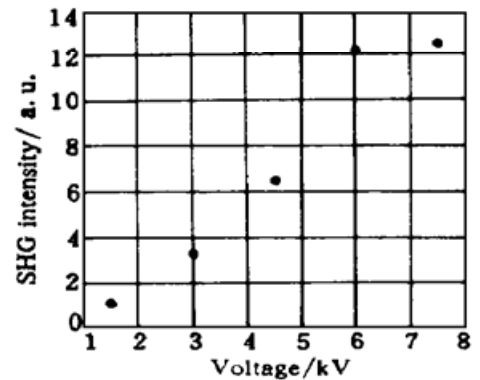


图5 二次谐波强度与极化电压的关系
(样品在 250℃下经 1 h 极化)

Fig. 5 Dependence of SHG intensity on the poling voltage when the sample is poled at 250℃ for 1 h

在 250℃的极化温度下, 将若干片相同的样品置于不同的极化电压下进行 1 h 电场极化, 然后测定其最强的二次谐波信号, 从而得到二次谐波强度(a. u.)随极化电压的变化趋势, 如图 5 所示。图中显示, 在相同的极化温度下, 二次谐波信号随极化电压的增大而增强, 并逐渐趋于饱和。

实验还发现, 在所使用的 SHG 测量装置的灵敏度下, 当极化温度低于 100℃时, 尽管用较大的极化电压对样品进行极化处理, 也测不出其二次谐波信号。这表明石英玻璃的有效二阶非线性电极化存在一个温度阈值。

4 讨 论

近年来, 关于玻璃中光致二阶非线性光学效应的机理研究基本上认为, 玻璃的光致二阶非

线性来源于玻璃内部偶极子(可能是由玻璃中缺陷、色心等所致)的取向排列,而这种偶极子的取向排列是强激光场的基波场和二次谐波场相干叠加所产生的周期性直流场对其进行极化的结果。关于玻璃中电致二阶非线性光学效应的机理,目前尚没有成熟的物理模型。有人就不同组成、结构的玻璃而提出若干可能的作用机制,基本上都认为该效应缘于玻璃中偶极子在较高温度的直流电场诱导下的定向作用。这种“偶极子取向”模型可作如下基本描述:在高温高压直流电场作用下,由于温度升高,内能增大,玻璃的网络结构对其偶极子的束缚作用减弱,偶极子沿电场方向发生定向作用;当环境温度降至室温后再撤去电场,由于玻璃的网络结构对偶极子的束缚作用加强,以致于偶极子沿电场方向的定向排列的趋势被“冻结”,因而破坏了介质的各向同性或中心对称性,从而由二阶非线性电极化导致二次谐波的产生。

根据玻璃的电致二阶非线性效应的物理模型,显然,二阶非线性电极化的实质是玻璃内部偶极子的取向作用,然而对一定的玻璃材料来说,影响玻璃中偶极子取向作用的几个主要因素为(a)玻璃的网络结构对偶极子的束缚作用;(b)诱导偶极子定向排列的外部驱动力;(c)偶极子的热运动。这些因素则与极化温度和极化电压密切相关。极化电压即提供了诱导偶极子定向排列的外部驱动力;而较高的极化温度同时具有两方面作用:一方面可以减小玻璃的网络结构对偶极子的束缚作用,从而有利于偶极子的取向作用,另一方面加剧了偶极子的热运动,却不利于偶极子的取向作用。

在玻璃的电极化过程中,极化电压一定时,随着极化温度的升高,在较低温度的范围内,第一种作用居优势,继而两种作用达到平衡,最后第二种作用上升而居优势。所以,在石英玻璃的上述实验中,在150~250℃范围内,二次谐波信号随极化温度的升高而增强,并在250℃左右二次谐波信号达到最强;当极化温度继续升高时,二次谐波信号减弱。由此可以解释二次谐波强度随极化温度变化的实验结果(如图4所示)。而二阶非线性电极化过程中极化温度阈值的存在,则表明对石英玻璃来说存在一个最低温度,该温度下的玻璃其网络结构对偶极子的束缚作用变得足够弱,以实现足够强的偶极子取向作用,即获得可以被探测的最低限度的二阶非线性电极化强度。

在一定的极化温度下,较高的极化电压可使偶极子获得较大的进行定向排列的驱动力,以实现较强的二阶非线性电极化,从而得到较强的二次谐波信号。故在一定的极化温度下,二次谐波信号随极化电压的增大而逐渐增强,而随着极化电压的持续增大,二次谐波信号强度最终趋于饱和,则说明偶极子的取向作用相应地存在一个逐渐增强并渐趋稳定的过程(如图5所示)。

本实验的结果对玻璃中电致二阶非线性效应的“偶极子取向”模型也是一个实验上的印证。

参 考 文 献

- 1 U. Østerberg, W. Margulis. Dye laser pumped by Nd-YAG laser pulses frequency doubled in a glass optical fiber. *Opt. Lett.*, 1986, **11**(8): 516~518
- 2 R. A. Myers, N. Mukherjee, S. R. J. Brueck. Large second-order nonlinearity in poled fused silica. *Opt. Lett.*, 1991, **16**(22): 1732
- 3 Hiroyuki Nasu, Hideki Okamoto, Akihiro Mito *et al.*. Influence of the OH content on second harmonic generation from electrically polarized SiO₂ glasses. *Jpn. J. Appl. Phys., Part 2*, 1993, **32**(3B): L406~L407
- 4 Katsuhisa Tanaka, Kenichi Kashima, Kazuyuki Hirao *et al.*. Highly efficient optical second harmonic gen-

eration in poled Ti-doped silica glasses. *Jpn. J. Appl. Phys.*, Part 1, 1995, **34**(1) : 175~ 176

- 5 Chen Hongbing, Zhu Congshan, Gan Fuxi *et al.*. Electroinduced second order nonlinear optical effect of semiconductor microcrystal doped glasses. *Chinese Journal of Lasers* (中国激光), 1997, **A24**(6) : 523~ 528 (in Chinese)

The Influence of Electrical Poling Conditions on Electroinduced Second Order Nonlinearity in Fused Silica

Chen Hongbing Xu Jianhua¹ Liu Liying¹

Yu Baolong Zhu Congshan Lu Xingze¹ Gan Fuxi

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800

¹Department of Physics, Fudan University, Shanghai 200433)

Abstract In this paper, reported is influence of the electrical poling conditions on the electroinduced second order nonlinearity in fused silica. It is found that the second harmonic generation in fused silica caused by electrical poling at elevated temperature is dependent upon the electrical poling temperature and voltage. By poling glasses with a certain voltage, the SHG intensity acquires a maximum value at a moderate temperature, while the SHG intensity increases with the rise of poling voltage and reaches the saturation gradually when the poling temperature is fixed. The experimental results can be explained reasonably by the dipole orientation model for the electroinduced second order nonlinear polarization in glasses.

Key words fused silica, electric field poling, second harmonic generation, dipole orientation