

精确测量若干种常用二极化 $\chi^{(2)}$ 光学 晶体非线性折射率

詹庭宇 朱宝强 顾 震 钱列加

(中国科学院上海光机所 上海 201800)

提要 采用光谱分辨的双光束耦合方法,精确测量了 KDP, KTP, PPLN, BBO, LBO 及 LiIO_3 等常用 $\chi^{(2)}$ 非线性光学晶体的非线性折射率. 实验测量工作使用 800 nm 工作波长的克尔透镜锁模钛宝石激光振荡器.

关键词 非线性折射率, 双光束耦合, 谐波转换

1 引 言

飞秒激光脉冲技术的革命性进展为非线性光学研究注入了新的活力. 由于光学材料在飞秒脉冲时间尺度显示更高的功率密度破坏负载, 使得对高功率密度 ($\geq 10^{11} \text{ W/cm}^2$) 情况下光学非线性过程的实验研究成为可能. 高功率飞秒激光脉冲的非线性谐波转换(倍频、混频和光参量)过程便是一个感兴趣的研究课题, 除了应考虑谐波转化过程中不同波长飞秒脉冲的群速度失配(GVM)外, 三阶极化效应已不能忽略, 二阶极化光学晶体材料本身的非线性折射率 n_2 将起到重要作用; 其非线性相移将使高功率激光脉冲空间域自聚焦(self-focusing)及频率域激光脉冲自相位调制(self-phase modulation), 并影响激光谐波转换过程的相位匹配条件, 它揭示众多不同于低功率密度(GW/cm^2)情况的新的特性^[1,2]. 这类涉及飞秒激光自聚焦和相位调制的非线性过程尚无严格和准确的理论处理模型, 对它们的研究主要将依赖于实验手段^[3,4]. 精确测量光学晶体的非线性折射率 n_2 是分析实验数据和认识物理规律的关键. 最近已有几位不同的作者报道了若干种不同光学晶体 n_2 的实验测量结果^[5,6], 由于测量方法的灵敏度较低(Z-扫描)或者不同时测量(不同作者), 实验报道结果之间有较大的差异, 不能很好地满足人们的要求. 对此, 本文将在相同的实验条件下, 用 800 nm 钛宝石再生放大器的工作波长, 同时准确测量 KDP, KTP, PPLN, BBO, LBO 及 LiIO_3 等多种常用非线性光学晶体的 n_2 值. 实验采用高灵敏度的频率分辨的双光束耦合法(SRTBC)^[7], 它具有测量信噪比高和使用简单等优点.

2 SRTBC 实验和结果

SRTBC 的基本单元是双光束耦合(抽运和探测), 两光束间存在时间延迟, 被测弱光在非线性质样品内和另一束较强的抽运光 I_p 相互作用后, 由光电探测系统测量单色仪所截取偏

离中心频率 ω_0 的频率成分的光波. 其测量方法如图 1 所示. 受抽运光的影响, 探测光在样品(非线性折射率 n_2) 出射面($Z = L, L$ 为晶体厚度)处, 将感应到非线性相位 $\Delta\phi = (2\pi/\lambda)(4\pi n_2/cn)I_p L$. 当 $\Delta\phi$ 较小(< 0.1) 和忽略双光子吸收时, 探测光的非线性透过率为^[7]

$$\frac{\Delta T}{T}(\tau, \delta) = \frac{4}{\sqrt{3}} \exp(\delta^2 t_0^2/6) \exp(-2\tau^2/3t_0^2) * \Delta\phi \sin(2\delta\tau/3) \quad (1)$$

式中非线性透过率 $\Delta T/T$ 以及没有抽运光时的线性透过率 T 进行归一化, 并假定入射脉冲光波为高斯型 $E(t) \sim \exp(-t^2/t_0^2)$. 由于 $\Delta T/T \sim \Delta\phi$ 或 n_2 , SRTBC 可以用于相对测量非线性折射率 n_2 . 从(1)式可清楚看到, 对固定脉冲时间延迟 τ , 探测失调频率成分 $\delta = \omega - \omega_0$ (即光谱分辨) 可增强被测量信号 $\Delta T/T$, 从而提高测量灵敏度. 文献 [7] 在实验上证实该方法的测量极限接近 $\Delta\phi \sim 10^{-6}$ rad.

受样品散射光的限制, 传统的 Z 扫描方法的测量极限 $\Delta\phi \sim 0.1$ rad^[8], 只能用高功率的激光脉冲测量高非线性 (n_2) 的介质. SRTBC 的高灵敏度在物理意义上是简单清晰的: 受抽运光的影响, 探测光脉冲将感应到自相位调制 ($d\Delta\phi/dt$), 其光谱(功率谱 $I(\omega)$) 将改变或新增加频率成分. 越是远离中心频率, 其功率谱的改变量 $\Delta T/T$ 将越大, 因而具有较高的检测灵敏度. 该方法同样也适用于测量存在双光子吸收的非线性介质^[7].

克尔透镜锁模 80 fs 800 nm 波长激光振荡器作为实验用光源(平均功率 400 mW, 重复率 100 MHz). 800 nm 是重要的激光工作波长, 目前商品化的飞秒钛宝石再生放大器(~ 1 mJ/10

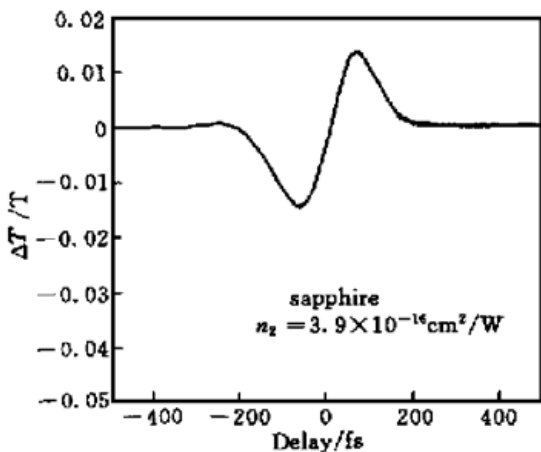


图 2 蓝宝石晶体非线性折射率 n_2 典型的 SRTBC 测量信号

Fig. 2 Typical two-beam coupling signal from sapphire crystal

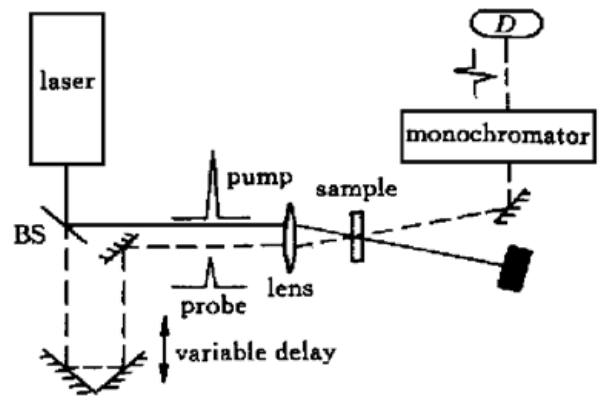


图 1 光谱分辨的双光束耦合测量方法实验装置示意图

BS: 10% 分束器; lens: 50 mm 聚焦透镜; Monochromator: 1 nm ; D: 低噪声光电二极管
Fig. 1 Experimental setup for spectrally resolved two-beam coupling measurement
BS: 10% beam splitter; lens: 50 mm focal lens; Monochromator: 1 nm resolution; D: low-noise photodiode

fs, 1 kHz) 均工作在该波长, 它为研究较高功率密度时非线性谐波转换过程提供实验条件. 通常的探测光比抽运光弱一个量级, 为最终分离抽运光和探测光, 实验上采用非共线(也可采用偏振分离). 时间快扫描延迟使用 10~ 30 Hz 的喇叭振动, 并利用数字式示波器对实验测量数据平均 ~ 1000 次扫描(30~ 100 s) 以降低噪声.

我们实验测量了 KDP, KTP, PPLN, BBO, LBO 及 LiIO_3 等常用非线性光学晶体的非线性折射率 n_2 . 由于较大的能带间隔(band-gap energies)^[6], 这 6 种晶体在 800 nm 波长处双光子吸收可被忽略, 满足方程(1)的应用条件. 尽管 SRTBC 具有很高的灵敏度, 为保证测量的准确性: 1) 必须考虑介质色散对飞秒激光脉冲的影响. 我们选择介质的厚度 L (1~ 3 mm 不等) 远小于其色散长度 L_D (高斯型脉冲宽度增宽到 $2^{0.5}$ 倍时所对应的介质长度); 2) 抽运光和探测光的

相互作用长度 L_{eff} ($\sim 0.1 \text{ mm}$) 远小于所有介质的厚度, 因此测量数据将不受介质厚度误差的影响; 3) 选择晶体的取向和激光偏振, 使抽运光和探测光在晶体内不发生倍频过程, 从而消除 $\chi^{(2)}$: $\chi^{(2)}$ 级联非线性相移的影响^[10]. 为对非线性折射率 n_2 测量值进行定标, 实验上用已知 n_2 值 ($n_2 \approx 3.9 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$) 的蓝宝石晶体作为标准^[5]. 在上述实验条件下, 作为典型的实验测量曲线, 蓝宝石晶体的 SRTBC 测量信号如图 2 所示.

表 1 总结了上述 6 种常用非线性光学晶体 n_2 值的实验结果, 并且给出了其他文献的报道结果. 测量结果因激光能量脉冲宽度和脉冲光谱不稳引起的误差很小(3% 以内), 样品厚度误差的影响可基本忽略($< 1\%$), 主要的测量误差来自于标准样品蓝宝石的非线性折射率 n_2 数据($\sim 20\%$), 但我们给出的实验测量结果的相对比例是非常精确的($\sim 4\%$). 由于具有较短的紫外截止波长, KDP 和 LBO 晶体显示较小的非线性折射率 n_2 , 而 PPLN 和 KTP 则因较长的截止波长, 其非线性折射率 n_2 值较大.

表 1 n_2 的测量值与其他文献报道值的比较(单位: $10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$)

Table 1 Comparison the measured values of n_2 with previously reported values (Unit: $10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$)

	n_2 This work ($\lambda_0 = 800 \text{ nm}$)	n_2 Ref. [6]	n_2 Ref. [11]	n_2 Ref. [5]
KDP	2.8 ± 0.7		2.1	
KTP	29.4 ± 7.1	10.8	18.6	29.5
PPLN	33.2 ± 8.0			
BBO	6.1 ± 1.5	3.7		3.3
LBO	3.3 ± 0.8	1.9		
LiIO ₃	13.0 ± 3.0			

3 总 结

针对高功率激光脉冲情况下非线性谐波转换过程的研究方向, 本文采用灵敏的光谱分辨双光束耦合 SRTBC 测量了 6 种常用非线性光学晶体的非线性折射率 n_2 . 测量结果较以前发表的实验数据有较大的差别. 由于我们使用同一实验条件, 并且采用灵敏度高和较准确的 SRTBC 方法, 相信本文给出的实验数据应该更为准确, 将对高功率激光非线性谐波转换过程的实验研究产生一定的影响.

参 考 文 献

- 1 T. Ditmire, A. M. Rubenchik, M. D. Perry. Effects of cubic nonlinearity on frequency doubling of high-power laser pulses. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1996, **13**(4): 649~ 655
- 2 J. Y. Zhang, J. Y. Huang, H. Wang *et al.*. Second-harmonic generation from regeneratively amplified femtosecond laser pulses in BBO and LBO crystals. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1998, **15**(1): 200~ 209
- 3 A. A. Zozulya, S. A. Diddams, A. G. V. Engen *et al.*. Propagation Dynamics of intense femtosecond pulses: Multiple splittings, coalescence, and continuum generation. *Phys. Rev. Lett.*, 1999, **82**(7): 1430~ 1433
- 4 J. K. Ranka, A. L. Gaeta. Breakdown of the slowly varying envelope approximation in the self-focusing of ultrashort pulses. *Opt. Lett.*, 1998, **23**(7): 534~ 536
- 5 R. Desalvo, A. A. Said, D. J. Hagan *et al.*. Infrared to ultraviolet measurements of two-photon absorption and n_2 in wide bandgap solids. *IEEE J. Quantum Electron.*, 1996, **32**(8): 1324~ 1333

- 6 S. Bian. Estimation of photovoltaic field in LiNbO₃ crystal by Z-scan. *Opt. Commun.*, 1997, **141**(5, 6): 292~ 297
- 7 I. Kang, T. Krauss, F. Wise. Sensitive measurement of nonlinear refraction and two-photon absorption by spectrally resolved two-beam coupling. *Opt. Lett.*, 1997, **22**(14): 1077~ 1079
- 8 M. Sheik-Bahae, A. A. Said, E. W. Van Stryland. High-sensitivity, single-beam n_2 measurements. *Opt. Lett.*, 1989, **14**(17): 955~ 957
- 9 J. Wang, M. Sheik-Bahae, A. A. Said *et al.*. Time-resolved Z-scan measurements of optical nonlinearities. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1994, **11**(6): 1009~ 1017
- 10 R. De Salvo, D. J. Hagan, M. Sheik-Bahae *et al.*. Self-focusing and self-defocusing by cascaded second-order effects in KTP. *Opt. Lett.*, 1992, **17**(1): 28~ 30
- 11 R. Adair, L. L. Chase, S. A. Payne. Nonlinear refractive index of optical crystals. *Phys. Rev. B*, 1989, **39**(5): 3337~ 3350

Accurate Measurements of Nonlinear Refraction in the Second-order $\chi^{(2)}$ Nonlinear Crystals

Zhan Tingyu Zhu Baoqiang Gu Zhen Qian Liejia

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

Abstract Based on the spectrally resolved two-beam coupling, accurate measurements of the nonlinear index of the refraction of the nonlinear optical crystals of KDP, KTP, PPLN, BBO, LBO and LiIO₃ are reported. The results were obtained using 100 fs 800 nm pulses from a Kerr-lens mode-locked Ti:sapphire laser oscillator.

Key words nonlinear refraction index, two beam coupling, frequency conversion