

文章编号: 0253-2239(2001)04-397-03

用光谱分辨的双光束耦合方法测量 $\chi^{(2)}$: $\chi^{(2)}$ 级联非线性相移*

詹庭宇 朱宝强 顾 震 钱列加

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

摘要: 针对重要的 $\chi^{(2)}$: $\chi^{(2)}$ 级联非线性相移, 在理论上论证了可以用光谱分辨的双光束耦合方法来测量 $\chi^{(2)}$: $\chi^{(2)}$ 级联非线性相移, 在实验上研究了飞秒时域级联非线性相移随波矢失配量的变化规律。这一新颖的测量方法灵敏度高、实际使用简单, 应用低能量的飞秒激光振荡器, 就能方便地测量微弱 $\chi^{(2)}$ 晶体的级联非线性相移。

关键词: 级联非线性相移; 双光束耦合; 倍频

中图分类号: O437 文献标识码: A

具有二阶非线性极化率 $\chi^{(2)}$ 的非中心对称光学晶体通常被用作产生新的激光波长, 这样的二阶非线性过程有倍频、混频和光参量振荡, 它们均要求相位匹配以获得较高的转换效率。级联二次应用二阶非线性过程等价于三阶非线性过程, 一个典型的例子就是激光的三倍频, 其等效的三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}(3\omega; \omega, \omega, \omega)$ 来源于 $\chi^{(2)}(3\omega; 2\omega, \omega)$: $\chi^{(2)}(2\omega; \omega, \omega)$ 级联过程。不同于上述产生三倍频光的过程, $\chi^{(2)}(\omega; 2\omega, -\omega)$: $\chi^{(2)}(2\omega; \omega, \omega)$ 级联过程将等效于频率简并的三阶极化率 $\chi^{(3)}(\omega; \omega, \omega, -\omega)$ 或克尔非线性可用 $\chi^{(3)}$ 简单表示^[1], 这是本文所关心的级联过程。 $\chi^{(2)}(\omega; 2\omega, -\omega)$: $\chi^{(2)}(2\omega; \omega, \omega)$ 相当于激光二倍频后倍频光能量又倒流回基波光。相位失配的倍频过程也属于上述级联过程, 该过程剩余的 2ω 光能量对基波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, 基波光将遭受到一非线性相移, 等效于三阶极化率的实部 $\text{Re}[\chi^{(3)}]$ 。这种等效的三阶非线性被称为 $\chi^{(2)}$: $\chi^{(2)}$ 级联非线性^[2]。

级联非线性相移具有许多重要的潜在应用^[3]。由于其独特的饱和性, 它可以被用于产生高维时空光孤子^[4]; 同时, 级联非线性相移符号的可控性可被用于补偿 B 积分, 使飞秒克尔透镜锁模激光器结构变得紧凑^[5]。因此, 在实验上研究和测量级联非

线性相移是非常重要的。迄今为止, 测量三阶非线性 $\chi^{(3)}$ 的主要手段有 Z 扫描^[2]、时间分辨的探测方法^[6]和非线性椭圆仪^[7]。这些方法在不同程度上都有调整困难、灵敏度不高等缺点。本文提出用光谱分辨的双光束耦合方法^[8]来测量级联非线性相移, 使用简单且灵敏度高, 已被用来测量传统的三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}$ 。本文将在理论上论证光谱分辨的双光束耦合方法也可以被用来测量级联非线性相移这一特殊形式的非线性相移, 并利用 800 nm 波长 80 fs 的钛宝石激光振荡器在实验上研究级联非线性过程, 实验结果与已有理论分析一致。

1 理论分析

考虑通常的非线性双光束耦合情况, 其中被探测的一束光较弱(晶体入射处光波幅度满足 $E_{10} \ll E_{20} = E_0$)^[6]。我们将讨论双光束间混频过程的级联非线性相移, 每束光本身倍频过程因波矢失配较大而被忽略。由于实验中所用的晶体较薄(约 100 μm 量级), 理论处理将不考虑激光的空间离散以及基波与谐波光脉冲间的群速度失配:

$$\frac{dE_1}{dz} = -j \frac{\omega_1 d_{\text{eff}}}{n_1 c} E_2^* E_3 e^{-j\Delta k z}, \quad (1)$$

$$\frac{dE_2}{dz} = -j \frac{\omega_2 d_{\text{eff}}}{n_2 c} E_1^* E_3 e^{-j\Delta k z}, \quad (2)$$

$$\frac{dE_3}{dz} = -j \frac{\omega_3 d_{\text{eff}}}{n_3 c} E_1 E_2 e^{j\Delta k z}, \quad (3)$$

其中波矢失配 $\Delta k = k_3 - k_1 - k_2$, (1) 和 (2) 式分别描述基波光束 E_1 和 E_2 在混频过程中复振幅的演变

* 国家自然科学基金(60088003)、国家 973 (G19990752023)、国家 863 高技术(416-5-1)资助项目。

收稿日期: 1999-05-27; 收到修改稿日期: 1999-11-10

($\omega_3 = \omega_1 + \omega_2 = 2\omega_0$), 而(3)式则给出倍频光($2\omega_0$)在晶体样品内随传播距离 z 的增长。 n_j ($j = 1, 2, 3$) 和 d_{eff} 分别是晶体样品的折射率和有效非线性系数。对上述方程作小信号近似($E_3 \ll E_{10}, E_{20}$), 被测光束 E_1 将满足如下方程(应用与文献[2]相似的推导):

$$\frac{d^2 E_1}{dz^2} + j\Delta k \frac{dE_1}{dz} + \frac{\omega_1 \omega_3 d_{\text{eff}}^2}{n_1 n_3 c^3} |E_0|^2 E_1 = 0, \quad (4)$$

(4)式表明通过双光束间的混频过程, 被测弱光束 E_1 在晶体出射面 $z = L$ 处“烙印”上非线性级联相移 $\Delta\Phi^{\text{NL}}(L)$

$$\Delta\Phi^{\text{NL}} \approx (\Delta k L / 2) \left\{ 1 - \left[1 + \left(2\Gamma / \Delta k \right)^2 \right]^{1/2} \right\}$$

其中非线性驱动 Γ 为

$$\Gamma = (\omega_0 d_{\text{eff}} |E_0|) / (c \sqrt{n \omega_1 \omega_3}). \quad (5)$$

对低功率光波 E_0 ($\Gamma \ll |\Delta k|$), $\Delta\Phi^{\text{NL}}$ 可被简化成 $\Delta\Phi^{\text{NL}} = -2\Gamma^2 L^2 / \Delta k L$. 被测光束 E_1 被较强的 E_2 光波“烙印”上和光强 I (I 正比于 $|E|^2$) 成正比的非线性相移或等效的非线性折射率 n_2^{eff} :

$$n_2^{\text{eff}} = -\frac{4\pi L}{c\epsilon_0 \lambda} \frac{d_{\text{eff}}^2}{n_1^2 n_3} \frac{1}{\Delta k L}, \quad (6)$$

$$\Delta\Phi^{\text{NL}} = 2k_\omega \left[(4\pi n_2^{\text{eff}}) / (cn_\omega) \right] IL. \quad (7)$$

光谱分辨的双光束耦合方法测量通常的克尔非线性折射率 n_2 时, 被测光束所遭受到的非线性相移为 $\Delta\Phi^{\text{NL}} = 2k_\omega (4\pi n_2 / cn) IL$ ^[8], 和描述级联非线性过程的(7)式相比较, 二者在形式上完全一致, 因此我们可以得到结论: 光谱分辨的双光束耦合方法可以被用来测量 n_2^{eff} 或级联非线性相移。如果用已知非线性折射率 n_2 的克尔介质样品作定标的话, 通过比较被测光谱分辨的双光束耦合方法的信号, 即可测得 n_2^{eff} 或非线性相移。

2 实验结果和讨论

用光谱分辨的双光束耦合方法测量 $x^{(2)}$: $x^{(2)}$ 级联非线性相移的实验装置如图1所示。800 nm 波长 80 fs 的克尔透镜锁模激光振荡器作为实验用光源(平均功率 400 mW, 重复率 100 MHz), 其基本结构与用于测量脉冲宽度的非线性自相关仪相似。被测弱光(被称为探测激光)在样品晶体内和另一束较强激光(被称为抽运激光)相互作用后(在实验中相互作用长度取 125 μm), 由光电探测系统测量单色仪截取偏离中心波长一定量的频率成分的探测光波, 所记录信号为有及没有抽运光时探测激光的相

对变化强度 ($\Delta T/T$), 该相对强度 ($\Delta T/T$) 值与 n_2 或 n_2^{eff} 成正比^[8]。

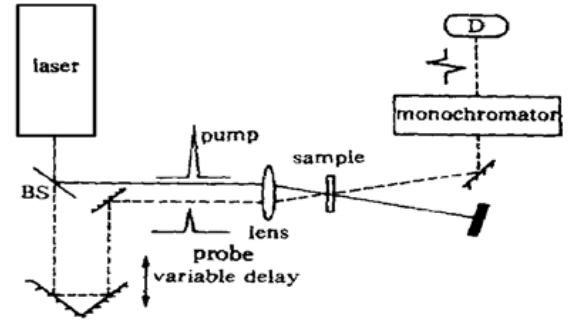


Fig. 1 Schematic of experimental set up for spectrally resolved two-beam coupling measurement

为在实验上利用光谱分辨的双光束耦合方法测量 n_2^{eff} , 必须注意以下事实: 1) 晶体的群速度失配较小可忽略, 为此应该使用较薄的晶体(或者抽运光和探测光的相互作用长度较小), 使群速度失配远小于光脉冲宽度。多数晶体在 800 nm 波长处的群速度失配在 100 fs/mm ~ 500 fs/mm, 对于实验中所用 80 fs 的激光脉冲, 级联过程的相互作用长度应选用约 100 μm , 从而保证群速度失配可忽略; 2) 级联过程的波矢失配 Δk 应大于非线性驱动 Γ ($|\Delta k| \gg \Gamma$)。任何条件的破坏都会引起级联非线性相移的畸变(偏离与光强 I 的线性变化规律)^[5]。

实验中我们研究了 800 nm 波长处 LBO、BBO、PPLN、LiIO₃ 等多种非线性光学晶体的级联非线性过程。与理论讨论相同, 所有非线性 $x^{(2)}$ 晶体中的级联过程显示共同的物理特征。为获得级联非线性折射率 n_2^{eff} 的量值, 实验中都用蓝宝石的非线性折射率 ($n_2 = 3.9 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$) 为标准定标。图2总结了 BBO 晶体(晶体厚 300 μm) 中不同波矢失配情况下级联非线性过程的测量结果: 1) 严格波矢匹配 ($\Delta k L = 0$) 时, 不存在非线性相移, 测量结果只显示双光子吸收(剩余 $2\omega_0$); 2) 当 $\Delta k L = \pm 2\pi$, 由于小信号倍频效率为零, 测量结果上下幅度对称, 不显示双光子吸收, 只有 n_2^{eff} (约 $1.9 \times 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{W}$); 而 $\Delta k L = \pm \pi$ 时, 尽管 n_2^{eff} 值相对较大, 但伴随着双光子吸收, 光谱分辨的双光束耦合测量信号上下幅度不对称。3) 通过改变 $\Delta k L$ 的符号, 可以控制级联非线性折射率 n_2^{eff} 的符号(即光谱分辨的双光束耦合测量信号的形态相反, 见图2)。上述 n_2^{eff} 测量结果中同时也包含了 BBO 晶体本身的非线性折射率 n_2 ($5.4 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$) 在内, 因此 $\Delta k L = -2\pi$ 较 $\Delta k L = 2\pi$ 显示更高的测量值。 n_2^{eff} 的另一个重要的特征是它和相互作用长度 L 成正比, 可以通过增加

L 来获得较大的 n_2^{eff} , 当然这主要取决于脉冲的宽度。所有的这些实验结果均与已有的理论分析和实验结果一致^[2], 证明了本文提出的用光谱分辨的双光束耦合方法可以较方便地测量级联非线性折射率或相移。同时光谱分辨的双光束耦合测量数据曲线(图 2) 具有很高的信噪比(约 10^3), 较其他测量方法更具优越性。

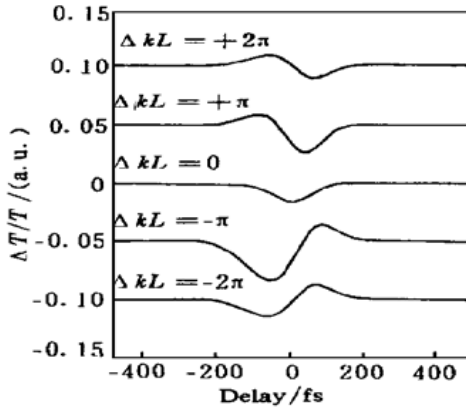


Fig. 2 Experimental measuring result of cascaded nonlinear processes of various ΔkL

结论 本文提出用光谱分辨的双光束耦合方法测量 $x^{(2)}$: $x^{(2)}$ 级联非线性折射率 n_2^{eff} , 理论分析表明光谱分辨的双光束耦合方法测量级联非线性相移是可行的。针对常用的 BBO、LBO、PPLN 等非线性晶体, 我们在实验上测量了级联非线性折射率 n_2^{eff} , 并研究了非线性过程随波矢失配的变化规律。光谱分辨的双光束耦合测量方法的高灵敏度可被用于研究弱

非线性系数光学晶体的级联非线性过程。实验数据中的信噪比约为 10^3 表明: 用纳焦耳能量的飞秒激光振荡器已能测量 d_{eff} 约为 0.03 pm/V (较 KDP 晶体小一个量级) 的光学晶体的级联非线性相移。本文的研究为人们提供了一种可靠、简单、准确测量级联非线性相移的新方法。

参 考 文 献

- [1] Bakker H J, Planken P C M, Kuipers L. Phase modulation in second-order nonlinear optical process. *Phys. Rev. (A)*, 1990, **42**(7): 4085~ 4101
- [2] Salvo R D, Hagan D J, Stegeman G. Self-focusing and self-defocusing by cascaded second-order effects in KTP. *Opt. Lett.*, 1992, **17**(1): 28~ 30
- [3] Stegeman G I, Hagan D J, Torner L. $x^{(2)}$ cascading phenomena and their application to all-optical signal processing, mode locking, pulse compression and solitons. *Opt. Quant. Electron.*, 1996, **28**(12): 1691~ 1740
- [4] Qian L J, Liu X, Wise F. Kerr-lens mode-locked lasers with negative nonlinear phase shifts. *Opt. Lett.*, 1999, **24**(3): 166~ 168
- [5] Qian L J, Liu X, Wise F. Generation of spatiotemporal solitons. *Phys. Rev. Lett.*, 1999, **82**(23): 4631~ 4634
- [6] Albert O, Etxepare J. Femtosecond temporal behavior measurement of Kerr-like cascaded second-order nonlinearities. *Opt. Commun.*, 1998, **154**(5): 345~ 349
- [7] Kim H K. Kerr nonlinearity measurement by nonlinear ellipsometer. *Opt. Lett.*, 1998, **23**(18): 1429~ 1431
- [8] Kang I, Krauss T, Wise F. Sensitive measurement of nonlinear refraction and two-photon absorption by spectrally resolved two-beam coupling. *Opt. Lett.*, 1997, **22**(14): 1077~ 1079

$x^{(2)}$: $x^{(2)}$ Cascaded Nonlinearity Measurements by Spectrally Resolved Two-Beam Coupling

Zhan Tingyu Zhu Baoqiang Gu Zhen Qian Liejia

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

(Received 27 May 1999; revised 10 November 1999)

Abstract: Aimed for the applications of $x^{(2)}$: $x^{(2)}$ cascaded second-order nonlinear phase shifts, it is theoretically proved that this nonlinear phase shifts can be measured by spectrally resolved two-beam coupling. The dependence of the cascaded nonlinear phase shifts on the phase mismatching in femtosecond time scale is investigated experimentally. The proposed novel approach has advantages of high sensitivity and easy to be applied. The cascaded nonlinearities of weak $x^{(2)}$ crystals can be measured easily by use of low energy femtosecond laser oscillators.

Key words: cascaded nonlinear phase shifts; two-beam coupling; frequency doubling