

文章编号: 0253-2239(2003)01-06-05

稀土材料的超快共振非线性光学特性研究*

罗 莉^{1,2} 余向阳¹ 陈 磊¹ 丘志仁¹ 周建英¹

1 中山大学光电材料与技术国家重点实验室, 广州 510275

2 广东工业大学应用物理系, 广州 510090

摘要: 用抽运-探测技术测量光学响应材料非线性极化率的方法,研究了稀土材料非线性折射率的共振增强和超快响应的非线性动力学过程。测得钕玻璃的三阶非线性折射率强度系数为 $10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$, 比其基质的非线性折射率强度系数提高了 2 个量级。用该方法研究了 Nd:YVO₄、Er:YAG 等晶体的超快非线性响应过程。实验结果与理论分析表明,抽运-探测技术是测量非线性极化率的简单而又灵敏的方法。这一测量技术对研究与开发超高速光响应器件具有重要的实用价值。

关键词: 非线性光学; 抽运-探测; 超快响应; 非线性折射率

中图分类号: TN204 文献标识码: A

1 引 言

超高速光子信息处理系统,要求光子材料具有大的光学非线性系数和超快的响应时间^[1]。因而需要采用超快激光技术来研究材料的超快非线性光学性质和动力学过程^[2]。超快非线性光学性质(如非线性极化率)的研究,还可为设计新的光学材料和制造新的光学器件提供理论依据和数据参量^[3,4]。

稀土固体材料是广泛应用于调制器、光纤、光放大器、光开关等最为常见的光电材料^[5]。由于稀土元素电子组态的特点,未完全充满的 4f 电子层受到外层全充满的 5s5p 电子层的强烈屏蔽,使得基于 4f-4f 电子跃迁产生的稀土离子光谱具有类似原子光谱的特性。例如:室温下的稀土 4f-4f 电子跃迁具有皮秒量级的退相时间^[6],因而,用飞秒激光光谱技术可以很好地研究并利用其相干性(如激光相干控制)。另外,稀土光电材料总是把少量的稀土元素作为中心离子掺杂在基质中,这两方面的屏蔽效果使得稀土中心离子具有半导体量子点的性质,这使得室温下的稀土固体材料表现出新的光学性质。稀土离子的光谱性质和超快激光光谱技术,在过去的 20 多年已得到深入的研究与广泛的应用,有

关稀土固体材料的超快光谱性质的研究却报道甚少。本文报道用简并的飞秒抽运-探测光谱技术研究稀土固体材料的超快特性,尤其是研究共振及失谐激发条件下的非线性系数的测量。为超快速全光器件的研究和开发提供新的原理和技术。

光器件的许多性质来自于材料的三阶光学非线性折射率。三阶光学非线性折射率通常的测量方法有:四波混频,光学外差法探测光学克尔光栅和 Z 扫描^[7]。前两种方法直接测量三阶非线性极化率,但实验装置和实验过程较为复杂。Z 扫描是利用光束传播的自聚焦效应来测量三阶非线性折射率 $\chi^{(3)}$,即测量一束聚焦的激光束通过一个光阑后的透过率随光束的聚焦位置与样品的相对位置的变化^[8]。由于强度感应的折射率变化,可以测量到光透过率曲线出现峰和谷的特征。虽然 Z 扫描技术简单易行,但 Z 扫描技术要求较高的激光功率密度,而高功率密度的激光束又会导致其它负效应,如激光感应损伤和其它高阶光学非线性效应。另外,可能会引起严重的散射而影响透过率的测量。因而人们一直都在发展测量光学非线性折射率的新原理与新方法。

Kang 等人^[9]基于互相位调制的原理,建立了非简并抽运-探测方法测量凝聚态物质中的非线性折射率的新方法,即用一束强的抽运光诱导材料的非线性折射率,然后一束非简并波长的探测光来探测折射率的改变量。在偏离探测光的中心波长处,抽运光引起探测光的相位变化(互相位调制)和能量损失(双光子吸收),由此引起了探测光的透射率的变

* 国家自然科学基金(19974078)、国家 863 青年基金、广东省自然科学基金(990222)、广东工业大学青年基金(012030)资助课题。

E-mail: stszjy@zsu.edu.cn

收稿日期: 2001-12-28; 收到修改稿日期: 2002-07-09

化。用该方法测得石英和 CdS 样品的非线性相移和双光子吸收系数分别为 10^{-6} cm/GW 和 10^{-4} cm/GW, 由此得到石英和 CdS 的非线性折射率 n'_2 分别为 2.2×10^{-16} cm²/W 和 3×10^{-14} cm²/W, 这与四波混频方法测得的结果是一致的^[10]。

与其它方法相比, 用抽运-探测技术测量三阶非线性极化率是一种简单而高度灵敏的光谱技术。这种方法不要求高的脉冲能量, 对激光束的空间分布也不甚敏感, 另外, 由于是测量探测光的透射率, 抽运-探测技术也可用于非高品质光学样品。Kang 等人所发展的, 并由 Wang 等^[11]所完善的这一方法, 采用的是非共振激发的非简并抽运-探测方案。在实际的光学系统中, 尤其是在稀土固体中共振激发, 波长一般均在可见与紫外波段。共振激发能有效地增强非线性光学系数, 因而本文推广了抽运-探测技术测量三阶非线性极化率的方法, 发展了共振激发的简并抽运-探测测量三阶非线性极化率的方法。采用该方法研究了稀土固体材料的超快非线性光学性质。结果表明, 共振激发的简并抽运-探测技术同样可以有效地测量三级非线性极化率。同时, 本工作结合以前建立与发展起来的相位差分光谱技术^[12], 准确测量了极化强度的振幅与相位特征。

2 原 理

在近共振激发下, 介质被抽运光所诱导的极化将以介质的跃迁频率振荡, 这个振荡频率与激光中心频率的频率差将对探测光产生相位调制。由于共振激发抽运-探测技术与非共振激发的非简并的抽运-探测在原理上是一致的, 因而, 可以采用非简并抽运-探测技术测量非线性折射率的理论分析方法^[11]。两束激光脉冲(抽运光和探测光)在非线性介质中共线传播, 光场可以表示为

$$E(x, t) = E_p(z, t) \exp[i\phi_p(z, t)] + E_m(z, t) \exp[i\phi_m(z, t)], \quad (1)$$

在存在有三阶非线性光学系数 $\chi^{(3)}$ (克尔类)的介质中, 总的感应极化强度为

$$P(z, t) = P_L(z, t) + P_{NL}(z, t) = \epsilon_0 [\chi^{(1)} + \chi^{(3)} |E(z, t)|^2] E(z, t), \quad (2)$$

式中, E_p (E_{pu}) 和 ϕ_p (ϕ_{pu}) 分别是探测光(抽运光)的电场振幅包络和电场相位。因为

$$|E_p(z, t)|^2 \ll |E_{pu}(z, t)|^2,$$

所以互相位调制项 $2|E_p(z, t)|^2 E_{pu}(z, t)$ 和自相

位调制项 $|E_p(z, t)|^2 E_p(z, t)$ 都可以忽略, 于是从光波传播方程可以推导出双光束耦合波方程^[13]:

$$\frac{\partial I_{pu}}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial I_{pu}}{\partial t} = -(\alpha_0 + \beta I_{pu}) I_{pu}, \quad (3)$$

$$\frac{\partial \phi_{pu}}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial \phi_{pu}}{\partial t} = kn'_2 I_{pu}, \quad (4)$$

$$\frac{\partial I_p}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial I_p}{\partial t} = -(\alpha_0 + 2\beta I_{pu}) I_p, \quad (5)$$

$$\frac{\partial \phi_p}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial \phi_p}{\partial t} = 2kn'_2 I_{pu}, \quad (6)$$

其中 I 为激光束的强度包络, v_g 为介质中的群速度,

$\alpha_0 = \frac{\omega}{n_0 c} \text{Im}\{ \chi^{(1)} \}$ 为线性吸收系数, $\beta =$

$\frac{3\omega_0}{2\epsilon_0 cn_0^2} \text{Im}\{ \chi_{1111}^{(3)} \}$ 为非线性吸收系数, ϕ 为激光脉冲

的相位, k 为光束传播常数, n'_2 为非线性折射率强度系数, 它与非线性折射率 n_2 的关系是

$$n'_2 = \frac{n_2}{\epsilon_0 n_0 c} = \frac{3}{4\epsilon_0 cn_0^2} \text{Re}\{ \chi_{1111}^{(3)} \}.$$

上述四个方程描述了抽运光和探测光在有损耗(考虑非线性吸收)的克尔介质中的传播^[9, 14]。

(3) 式和(4) 式是抽运束本身的自作用方程, 它描述了抽运光的自相位调制和非线性吸收的效应。(5) 式和(6) 式描述了受到抽运光的互相位调制和非线性吸收效应影响的探测光的传播。

对于透明介质, 线性吸收系数 α_0 可以忽略。归一化的瞬态探测光透射率变化为^[11]

$$\frac{\Delta T}{T_0}(\tau, \delta) = -\frac{2}{\sqrt{3}} \exp\left[\frac{\delta^2 t_0^2}{6}\right] \exp\left[-\frac{2\tau^2}{3t_0^2}\right] \times \left[2\Delta\phi \sin\left[\frac{2\delta\tau}{3}\right] - g \cos\left[\frac{2\delta\tau}{3}\right]\right], \quad (7)$$

式中, τ 为抽运光和探测光之间的延时时间, δ 为失谐量, t_0 为脉冲宽度, $\Delta\phi$ 为非线性相移, 与非线性折射率 n'_2 有关, $\Delta\phi = kn'_2 I_{pu} L$, g 为在极化频率处的吸收或增益, $g = \beta I_{pu} L$, I_{pu} 为聚焦区共振频率处的峰值抽运功率密度, L 为相互作用长度, 与脉冲的共焦参量有关^[16], $k = 2\pi/\lambda$, λ 为真空中的波长。

当 $q \neq 0$ 时, 非线性吸收只引起调制的相位移动。对于非共振介质, 非简并抽运-探测技术是产生传输折射率光栅的基本要求^[7]。对于近共振激发, 强的抽运光诱导介质的极化与激发光的频率差, 同样可以产生调制效应。因而, 可以采用共振激发下的简并抽运-探测技术来测量材料的非线性折射率。

实验选用的钕玻璃样品, 激发能级是 $^4I_{9/2} \rightarrow ^4F_{5/2}, ^2H_{9/2}$ 不存在共振的双光子吸收效应^[15]。但是, 对于一个有饱和吸收的二能级系统, 其吸收系数为

$$\alpha(I) = \frac{\alpha_0}{1 + I/I_s} \approx \alpha_0(1 - I/I_s) = \alpha_0 - (\alpha_0/I_s)I,$$

其中 I_s 为饱和强度, α_0 是线性吸收系数。在本实验中, 入射光强 (10^6 W/m^2) 远远小于饱和吸收光强 ($I_s \approx 10^8 \text{ W/m}^2$)^[7], $I \ll I_s$, 上式近似成立, 这时 $-(\alpha_0/I_s)$ 可以看作是一个负的双光子吸收系数, 于是双光子吸收的讨论将 $\beta \rightarrow -\beta$ 的情形下仍然适用。于是可以得到非线性材料在近共振激发下探测光的透射率变化:

$$\frac{\Delta T}{T_0}(\tau, \delta) = \exp(\alpha_0 L) \frac{2}{\sqrt{3}} \exp\left[\frac{\delta^2 t_0^2}{6}\right] \exp\left[-\frac{2\tau^2}{3t_0^2}\right] \times \left[2\Delta\phi \sin\left[\frac{2\delta\tau}{3}\right] + g \cos\left[\frac{2\delta\tau}{3}\right]\right] \approx \frac{2}{\sqrt{3}} \exp\left[\frac{\delta^2 t_0^2}{6}\right] \exp\left[-\frac{2\tau^2}{3t_0^2}\right] \times \left[2\Delta\phi \sin\left[\frac{2\delta\tau}{3}\right] + g \cos\left[\frac{2\delta\tau}{3}\right]\right]. \quad (8)$$

因为相互作用长度 L 很小, $\alpha_0 L \approx 10^{-3}$, 所以 $\exp(\alpha_0 L) \approx 1$, 上式近似成立。

3 实 验

实验装置如图 1 所示, 采用全固化自锁模掺钛蓝宝石飞秒激光器(美国光谱物理公司, Millennia+Tsunami)作为光源, 其平均功率约为 400 mW, 重复频率为 82 MHz, 脉宽约为 70 fs。飞秒光脉冲经分束片 BS_1 分为两束, BS_1 镜上镀有介质膜, 在 800 nm 波段透射光和反射光的强度比约为 9/1。强的一束作为抽运光经迈克耳孙干涉仪(即一个放在可动臂上的相

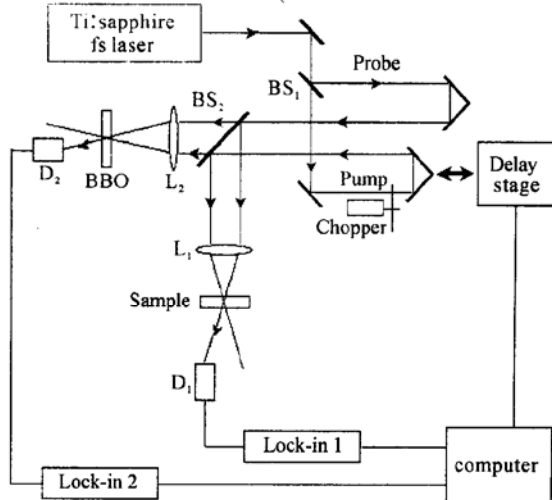


Fig. 1 Experimental arrangement for nonlinear refractive index measurement using two-beam coupling pump-probe spectroscopy

互成 90° 角的平面反射镜组), 可动臂由电动马达控制改变光程。探测光则经过另一路平面反射镜组, 其光程可以手动微调。然后两束光平行传播, 再由分束片 BS_2 分成两路抽运-探测记录通道。在两路抽运-探测记录通道上分别放置了厚度为 1 mm 的钜玻璃样品和 500 μm 的 BBO 晶体, 经透镜分别聚焦在样品上和 BBO 晶体上。探测光经过样品和 BBO 晶体后进入光电探测器, 然后送入两个锁相放大器, 再输入计算机记录并处理数据。

平行的抽运光和探测光间的距离约为 5 mm, L_1 的焦距为 7 cm, 于是抽运光和探测光的交叉角约为 3° , 这样由非共线重叠引起的延时时间误差将不会影响测量的精度。抽运光的光斑半径为 100 μm , 入射光强为 10^6 W/m^2 。延时线由电动马达控制, 其分辨率为 0.1 μm , 即脉冲对的相对延时精度可控制为光波波长的十分之一, 由此可记录到有干涉条纹的抽运-探测信号。采用薄的 BBO 晶体来测量激光脉冲的自相关曲线以决定延时时间零点、脉宽和提供干涉条纹, 其条纹间距等于脉冲的中心波长。使用斩波器调制抽运光, 然后由锁相放大器差分抽运光通过和未通过斩波器时的探测光信号, 最后的输出信号便是抽运光所引起的探测光透射率的变化。实验样品是置于室温的透明稀土固体样品。对于非透光样品, 也可测量探测光经样品后的反射信号。

4 实验结果和分析

钜玻璃实验测量结果如图 2、图 3 所示。探测光透过率差 $\Delta T/T_0 = (T - T_0)/T_0$, 其中 ΔT 为抽运光感应的透过率变化, T_0 为无抽运光存在时探测光的透过率, 比较信号光和探测光的干涉条纹可以得到相位差分光谱, 由相位差分光谱可以得到稀土材料的极化频率、典型的条纹分辨和平均透过率变化光谱。同步测量的自相关以及相位差分光谱如图 2 所示, 其激发波长为 808.5 nm, 相位差分光谱曲线的非零斜率是由两个干涉图的不同调制频率引起, 反映了极化强度的振荡频率和激发光场中心频率的失谐^[6, 12, 16]。

用 (8) 式对实验结果进行模拟, 得到的模拟结果如图 2(c) 中实线所示。用实验参量作为输入。从相位差分光谱(DPS)得到的失谐量 $\Delta\lambda = 7 \text{ nm}$, $I_{\text{pu}} \approx 1.9 \times 10^{11} \text{ W/m}^2$, $L = 1 \text{ mm}$, $(\Delta T/T_0)_{\text{max}} = 0.00018$, 得到了在激发波长 808.5 nm 处有最大的非线性折射率 $n_2 \approx 1 \times 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ 。用 (8) 式对从

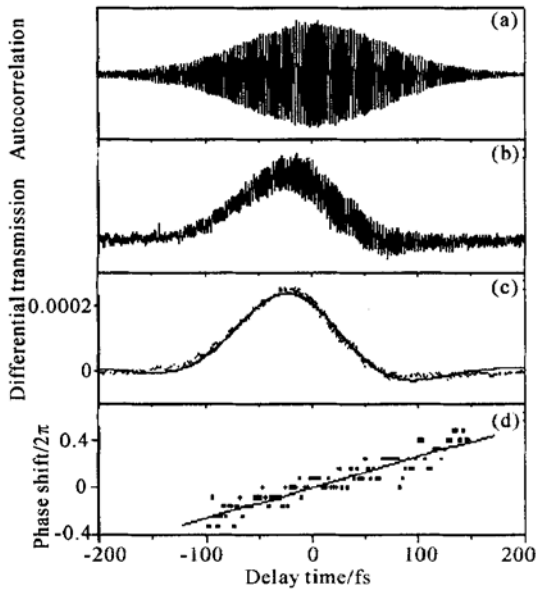


Fig. 2 (a) Reference signal of autocorrelation; (b) Experimental results of fringe-resolved pump-probe signals recorded at the excitation wavelength of 808.5 nm; (c) The average value of pump-probe signal (dots) and the numerical evaluation (solid line); (d) The differential phase spectroscopy (DPS) signal

799 nm 到 816 nm 激发波长的实验结果进行模拟, 得到 g 的值为 10^{-5} 量级。

从(8)式可以看出, 折射率的实部由右边的第一项来描写, 它产生一个相位光栅, 引起一个相对于探测光延迟的反对称的信号, 折射率的虚部由右边的第二项来描写, 它产生了一个振幅光栅, 引起抽运光和探测光的相干耦合并产生一个对称的信号, 于是透过率的变化率是对称信号和非对称信号的叠加^[17]。

相位光栅和振幅光栅起源于脉冲包络内系统的非线性响应。相位光栅与三阶非线性极化率的实部相联系, 由折射率的调制引起, 从感应的相位光栅散射的抽运光可以和探测光束相互作用并强烈地影响它的强度。相位光栅引起的相干信号关于延时时间反对称, 其反对称性可以理解如下: 在迅速退相的情形, 非线性极化率的实部不能影响储存在介质中的能量, 所以相位光栅只引起两束光之间的能量传递, 因为改变 $-\tau$ 为 τ 等价于交换抽运光和探测光。而振幅光栅与三阶非线性极化率的虚部相联系, 由吸收系数调制引起。

为了观察相位光栅对抽运光和探测光的相干相互作用的影响, 在近共振和共振的两边测量了探测

光的透射率。实验结果如图 3 所示。观察到瞬态信号与激发波长有关, 在电子跃迁的低能和高能两边瞬态信号的符号是相反的。激发波长分别为 799 nm、803 nm、810.7 nm、816 nm。

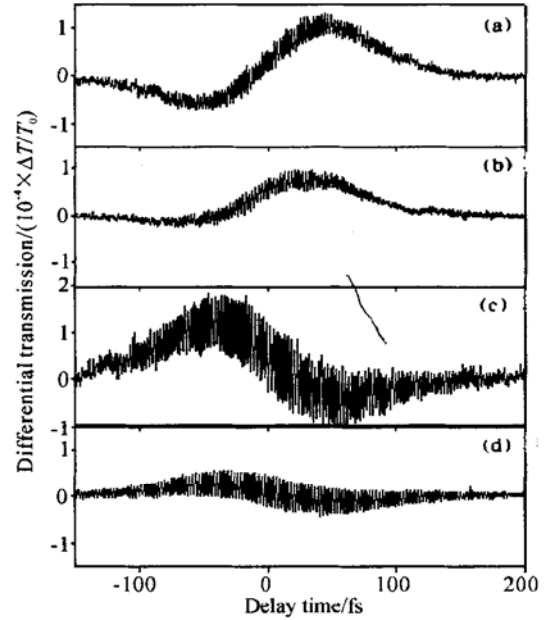


Fig. 3 The experimental results for differential transmission measured at excitation wavelengths of (a) 799 nm; (b) 803 nm; (c) 810.7 nm; (d) 816 nm

当激发波长扫过共振区域时, 探测光的透过率变化从反对称变为一个在共振时几乎对称的形状(如图 2)。

实验结果显示出钕玻璃对超短光脉冲有共振非线性响应, 此处的非线性折射率是由电子极化引起, 其响应速度明显小于 100 fs。

如前所述, 非线性折射率引起探测光和抽运光相干耦合, 结果条纹分辨的透射信号比平均的透射信号可以大 25 倍, 如图 3 中所示, 通过改变探测光和抽运光的相对相位能够有效的控制探测光通过样品后的透射率, 说明通过相位控制也能调制三阶非线性光学效应。

采用同样的方法研究了 Nd 和 Er: YAG 中的抽运-探测透射信号^[16], 实验测量表明 Nd: YVO₄ 的 $\Delta T/T_0$ 和 Nd: Glass 的 $\Delta T/T_0$ 在同一量级, 而 Er: YAG 中的 $\Delta T/T_0$ 则要小一个量级。通过比较近共振与远离共振的测量结果, 发现稀土离子的非线性共振增强效应使其非线性折射率比其基质提高了 2 个量级。实验同时表明抽运-探测光谱技术是测量非线性折射率的一种简单可行且高度灵敏的方法。

结论 本工作发展了抽运-探测技术测量光学响应材料三阶非线性极化率的方法,并研究了在超短脉冲激光相干作用下稀土材料瞬态非线性响应,以及通过相位控制方法调制三阶非线性光学效应。由此得到铽玻璃的近共振非线性折射率约为 $10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$,比基质材料高出 2 个量级^[7]。实验结果还表明,在这种激发方式下,这样大的非线性折射率还具有飞秒时间尺度的响应时间。

参 考 文 献

- 1 Stegeman G I, Miller A. *Photonics in Switching*. London: Academic Press, 1993
- 2 Yuan P, Xia Z, Zou Y H *et al.*. Ultrafast optical Kerr effect of phthalocyanine. *Chem. Phys. Lett.*, 1994, **224**(1~2): 101~105
- 3 Mukamel S. *The Principles of Nonlinear Optical Spectroscopy*. New York: Oxford University Press, 1995
- 4 Bonadeo N H, Erland J, Gammon D *et al.*. Low-field electron emission from undoped nanostructured diamond. *Science*, 1998, **282**(5393): 1473~1473
- 5 Su Qiang. *Rare Earth Chemistry (稀土化学)*. Zhengzhou: Henan Science and Technology Press, 1993
- 6 Luo Q, Dai D C, Wang G Q *et al.*. Theory and experiment of coherent wave packet dynamics in rare earth solids: Absorption spectrum vs femtosecond fringe-resolved interferogram. *J. Chem. Phys.*, 2001, **114**(4): 1870~1875
- 7 Sutherland R L. *Handbook of Nonlinear Optics*. New York: Marchel Dekker, 1996
- 8 Sheik-Bahae M, Said A, Wei T *et al.*. Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam. *IEEE J. Quantum Electron.*, 1990, **QE-26**(4): 760~769
- 9 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
- 10 Krauss T D, Wise F W. Femtosecond measurement of nonlinear absorption and refraction in CdS, ZnSe, and ZnS. *Appl. Phys. Lett.*, 1994, **65**(14): 1739~1741
- 11 Wang J K, Chiu T L, Chi C H *et al.*. Nonlinear refraction and absorption measurements with chirped femtosecond laser pulses: experiments and simulations. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1999, **16**(4): 651~661
- 12 Yu X Y, Luo Q, Li W L *et al.*. Ultrafast phase dynamics of coherent carriers in GaAs. *Appl. Phys. Lett.*, 1998, **73**(23): 3321~3323
- 13 Spencer S P, Shore K A. Pump-probe propagation in a passive Kerr nonlinear optical medium. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1995, **12**(1): 67~71
- 14 Agrawal G P. *Nonlinear Fiber Optics*. Second Edition. New York: Academic Press, 1995
- 15 Hufner L. *Optical Spectra of Transparent Rare Earth Compounds*. London: Academic Press, 1978
- 16 Luo L, Chen L, Qiu Z R *et al.*. Measurement of femtosecond resonant nonlinear refraction in Nd: YVO₄ by degenerate pump-probe spectroscopy. *J. Appl. Phys.*, 2001, **89**(12): 8342~8344
- 17 Palfrey S L and Heinz T F. Coherent interaction in pump-probe absorption measurements: the effect of phase gratings. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1985, **2**(4): 674~679

Studies on Ultrafast Resonant Nonlinear Optics in Rare Earth Solids

Luo Li^{1,2} Yu Xiangyang¹ Chen Lei¹ Qiu Zhiren¹ Zhou Jianying¹

¹ State Key Laboratory of Optoelectronic Materials and Technologies, Zhongshan University, Guangzhou 510275

² The Department of Applied Physics, Guangdong University of Technology, Guangzhou 510090

(Received 28 December 2001; revised 9 July 2002)

Abstract: Resonantly enhanced nonlinear refraction in rare-earth-doped solids is studied with femtosecond degenerate pump-probe two-beam coupling spectroscopy. An ultrafast resonant nonlinear refractive index of the order of $1 \times 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ is measured in Nd: glass, and it is 10^2 times greater than the host material. It shows that both the transient probe transmission and the nonlinear refraction can be effectively controlled via the coherent coupling of probe beam with the pump through Nd: glass sample. The experimental observation of the femtosecond resonant nonlinear refraction response in the rare earth solids may implicate important applications in ultrafast optical switching. It shows that coherent control can be applied to improve the modulation depth of ultrafast optical switching. Resonant nonlinear refraction measurements in other rare earth doped materials such as Er: YAG and Nd: YVO₄ demonstrate the general applicability of the pump-probe technique.

Key words: nonlinear optics; pump-probe; ultrafast response speed; nonlinear refraction