

超短脉冲抽运掺铁铌酸锂的光折变效应实验研究

牛振国 范 薇 黄大杰 李国扬

中国科学院上海光学精密机械研究所高功率激光物理联合实验室, 上海 201800

摘要 对掺铁铌酸锂晶体在高功率超短脉冲激光照射下的光折变指数进行半定量的理论计算并实验验证。由理论计算得出在高功率超短脉冲激光(0.33 mJ, 10 ps, 527 nm)作用下, 掺铁铌酸锂晶体的折射率指数变化量达到 10^{-4} 量级, 在几个纳秒的弛豫时间后降低到 10^{-5} 量级。实验采用同样的超短脉冲平顶激光, 经过空间整形, 形成空间强度分布为直角三角形的激光光束, 照射掺铁铌酸锂晶体发生光折变, 产生直角棱镜, 使得经过瞬时光折变棱镜的 1053 nm 脉冲信号光发生偏转, 根据偏转的角度计算出的折射率指数减小量为 10^{-5} 量级, 理论计算与实验结果较为相符。这项研究表明利用掺铁铌酸锂晶体的瞬时光折变效应将有望实现全光条纹相机对短脉冲时间特性的测量。

关键词 超快光学; 光折变效应; 掺铁铌酸锂; 光束偏转; 条纹相机

中图分类号 O436 文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201542.s232001

Experimental Study on Photorefractive Effect of Fe:LiNbO₃ Induced by Ultra-Short Optical Pulse

Niu Zhenguo Fan Wei Huang Dajie Li Guoyang

Joint Laboratory on High Power Laser and Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics,
Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China

Abstract The photorefractive index change of iron-doped lithium niobate crystal induced by high power ultrashort pulse laser irradiation is calculated in semi-quantitative and verified in experiment. By theoretical calculations, the refractive index decrease of the iron-doped lithium niobate crystal which is induced by the high power ultrashort pulse laser (0.33 mJ, 10 ps at 527 nm) about 10^{-4} . After the relaxation of a few nanoseconds, the index decrease is reduced to 10^{-5} . In the experiment, the same ultrashort pulse laser is used, which is flattened and its intensity distribution is spatially shaped into a right triangle, to irradiate the iron-doped lithium niobate photorefractive crystal, resulting in rectangular prism, thus 1053 nm signal light pulse through the instantaneous photorefractive prism is deflected. The refractive index decrease calculated according to the angle of deflection is about 10^{-5} and theoretical result is almost in agreement with experiment. This study suggests that all-optical streak camera using the instantaneous photorefractive effect of iron-doped lithium niobate is expected to achieve the measurement of time characteristics of short pulse.

Key words ultrafast optics; photorefractive effect; Fe:LiNbO₃; optical beam deflection; streak camera

OCIS codes 320.7100; 230.7390; 190.4400

1 引 言

掺铁铌酸锂晶体自从发现其突出的光折变效应^[1]以来, 一直是研究的热点。但是很多研究都集中于连续激光照射条件下的光折变效应^[2], 而掺铁铌酸锂晶体在超短光脉冲抽运下的光折变效应, 目前国际上相关的实验研究却很少。Beyer 等^[3]于 2006 年利用 1.5 μm 波长, 130 fs 脉宽的激光照射掺铁铌酸锂晶体, 测得

收稿日期: 2015-03-17; 收到修改稿日期: 2015-05-04

作者简介: 牛振国(1987—), 男, 硕士研究生, 主要从事超短光脉冲时间波形测量方面的研究。

E-mail: zhengunu@siom.ac.cn

导师简介: 范 薇(1975—), 女, 博士生导师, 研究员, 主要从事激光脉冲整形方面的研究。

E-mail: fanweil@siom.ac.cn(通信联系人)

发生的折射率改变最大为 $\Delta n \approx -10^{-3}$, Eugene 等^[4]于 2010 年使用会聚的 (8~24 nJ, 1 kHz, 150 fs, 800 nm) 激光照射铌酸锂晶体, 发生的折射率改变最大为 $\Delta n/n_0 \approx -10^{-3}$ 。但是他们采用的测量光折变的方法较为复杂, 而且仅仅在材料很小的局部区域观测到光折变效应。

全光条纹相机^[5,6]用于测量超短光脉冲的时间波形, 其中影响其提高时间分辨率的关键部分是信号光偏转单元, 选用在超短光脉冲抽运条件下具有很大光折变效应的材料才能让偏转单元对信号光实现较大角度的偏转, 完成从时间波形向空间波形的转变, 提高条纹相机的时间分辨率^[7]。实验采用了简易的方法实现了掺铁铌酸锂在 527 nm 波长超短光脉冲抽运下光折变效应的测量, 同时为全光条纹相机采用掺铁铌酸锂作为信号光偏转单元的可能性提供了实验依据。

2 实验研究内容与结果

2.1 铌酸锂光折变效应的半定量解释

截至目前, 虽然在实验上曾有人做过超短光脉冲实验条件下铌酸锂的光折变效应研究, 但是关于铌酸锂晶体和掺铁铌酸锂晶体在超短光脉冲抽运下光折变效应的理论模型仅能给予半定量的解释^[4]。

Gamaly 等^[4]认为在超短光脉冲条件下的光折变机理与在连续光或者长脉冲条件下的机理有所不同。在连续光或者长脉冲光照条件下, 掺铁铌酸锂晶体主要是在光照区产生光生载流子(受激电子), 经过一系列的激发-迁移-俘获-再激发过程, 载流子最终离开光照区, 在暗区稳定下来, 此时光激发过程不再进行, 这样运动的结果, 在晶体内形成了与光强的空间分布相对应的电荷空间分布, 这样的过程需要较长的时间(一般至少几分钟)。根据泊松方程, 这样的空间电荷分布必将产生相应的空间电荷场 E_{sc} , 并通过电光效应, 调制晶体的折射率, 使得光照区晶体的折射率减小^[8]。而在超短光脉冲照射条件下, 由于功率密度较高, 脉冲光与晶体的作用时间很短, 在脉冲作用期间和脉冲结束后的过程都是暂态过程。本实验中使用的抽运脉冲光的半峰全宽(FWHM)10 ps, 重复频率 1 Hz, 波长为 527 nm, 能量为 0.33 mJ, 光斑直径 4 mm(平顶)的激光, 则其功率密度为 2.626×10^8 W/cm²。在这里值得一提的是临界电子密度 n_c (与损伤阈值有关)对 527 nm (3.57×10^{15} s⁻¹) 而言, $n_c = \frac{m_e \omega}{4\pi e^2} = 2.64 \times 10^{21}$ cm⁻³。 10^8 W/cm² 的强度下电场强度为 $E = \sqrt{\frac{8\pi I}{c}} = 274.6$ kV/cm, 它比铌酸锂中的光伏电场 100 kV/cm 大两倍^[9,10]。受超短脉冲照射的影响, 晶体中电子的振荡能由下式表示为^[11,12]

$$\epsilon_{osc} = 9.3 \left(\frac{I}{10^{14}} \right) \lambda^2. \quad (1)$$

该理论模型认为在脉冲期间电子激发受两个最重要机制影响: 雪崩过程和多光子电离。受激的电子造成了晶体中电子离子化的雪崩过程, 单位时间内离子化的速率可由下式进行估计:

$$w_{imp} \approx \frac{\epsilon_{osc}}{\Delta_{gap}} \frac{\omega^2 v_{e-ph}}{(v_{e-ph}^2 + \omega^2)}, \quad (2)$$

式中 v_{e-ph} 和 ω 分别是电子-光子动量交换速率和激光频率, 电光动量交换速率在超出德拜温度的晶格温度 (T_L)^[13] 下可被表示为 $v_{e-ph}^{(mon)} \approx T_L/h$ 。在 293 K 的室温下, 这个速率等于 3.83×10^{13} /s。对于铌酸锂晶体 ($\Delta_{gap} = 3.8$ eV, 在 527 nm 的激光作用下 $\omega = 3.577 \times 10^{15}$ s⁻¹ $\gg v_{e-ph}$), 雪崩激发速率是激光强度表达式的函数, 可表示为 $w_{imp} \approx 2.603 \times 10^{13} \frac{I}{10^{14}}$ s⁻¹。注意掺铁晶体的离子化速率大约是其两倍, 因为掺杂在带隙中引

入了额外一条能级, 所以对于掺铁铌酸锂 $w_{imp} \approx 5.206 \times 10^{13} \frac{I}{10^{14}}$ s⁻¹。

多光子电离速率(每个原子每秒离子化的概率)可用下式表示^[14]:

$$w_{mpi} \approx \omega n_{ph}^{\frac{3}{2}} \left(\frac{\epsilon_{osc}}{2 \Delta_{gap}} \right)^{n_{ph}}, \quad (3)$$

式中 $n_{ph} = \Delta_{gap}/h\omega$ 表示一个电子为了从价带跃迁到导带应该吸收的光子数。那么铌酸锂在 527 nm 激光作用条件下得到与强度有关的多光子电离速率表达式为

$$\omega_{\text{mpi}} \approx 1.28 \times 10^{15} \left(\frac{I}{10^{14}} \right)^{1.7}. \quad (4)$$

在脉冲抽运结束时电子数密度 n_e 由雪崩和多光子过程联合得到,可由以下简化的方程^[15]得出

$$\frac{d n_e}{d t} = n_e \omega_{\text{imp}} + n_a \omega_{\text{mpi}}, \quad (5)$$

式中 n_a 代表原子数密度。假设在脉冲期间激光强度是常数(平顶强度分布,在脉冲期间的电子的再结合可被忽略)那么在初始条件 $n_e(t=0) = n_{e0}$ 和 ω_{imp} 和 ω_{mpi} 都明确的情形下,(4)式的解为

$$n_e(I, \lambda, t) = \left\{ n_{e0} + \frac{n_a \omega_{\text{mpi}}}{\omega_{\text{imp}}} [1 - \exp(-\omega_{\text{imp}} t)] \right\} \exp(\omega_{\text{imp}} t), \quad (6)$$

式中 $n_{e0} \approx 6 \times 10^6 \text{ cm}^{-3}$, $n_a \approx 9.41 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ 。将以上实验中采用的光脉冲的参数代入(1)~(6)式可得 $n_e = 4.36 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 。那么由于电子激发而造成的变化为负,可由下式^[3]计算而得,式中 $\omega_{\text{pe}}^2 = 4\pi e^2 n_e / (\epsilon_0 m_e)$ 是等离子体频率的平方, $n_0 = 2.254$ 为寻常光的折射率^[16]。

$$-\Delta n / n_0 \approx \omega_{\text{pe}}^2 / 2 n_0^2 \omega^2. \quad (7)$$

将 $n_e = 4.36 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 代入上式得 $-\Delta n / n_0 \approx 1.125 \times 10^{-4}$ 。则

$$\Delta n \approx -2.536 \times 10^{-4}. \quad (8)$$

脉冲抽运后晶体中激发的电子数会逐渐减少,减少的数目与电子数密度成正比,Gamaly 等^[4]认为该弛豫时间为纳秒量级,所以在脉冲结束后 3.23 ns 时折射率变化减小为 5×10^{-5} 。实验中采用能量 0.33 mJ,脉宽 10 ps,波长为 527.5 nm 的脉冲激光照射掺铁铌酸锂晶体(掺铁摩尔分数 0.1%),其表面功率密度为 0.263 GW/cm^2 ,在脉冲结束后 3.23 ns 时测得发生光折变 $-\Delta n$ 为 4.63×10^{-5} 到 7.16×10^{-5} 之间,理论计算与该实验结果较为一致。实验若采用纯净的铌酸锂晶体却没有观察到有信号光的偏转。实验表明在较低的功率密度下即可使掺铁铌酸锂晶体达到 10^{-5} 量级的折射率变化。由于目前尚无定量的理论模型来解释超短光脉冲作用下的光折变效应,因此只能做到半定量的解释。

2.2 实验过程及现象

实验使用脉宽为 10 ps,重频 1 Hz,波长为 527 nm,光斑直径 4 mm(平顶)的激光经过顶角为直角的掩模板整形为直角三角形的空间强度分布,照射掺铁铌酸锂晶体,由于光折变效应而产生直角棱镜,掺铁铌酸锂晶体光折变的响应时间为飞秒量级,弛豫时间为 10 ns 左右,信号光较抽运光延迟 3 ns,在此弛豫时间内波长为 1053 nm,脉宽 10 ps 的信号光经过此直角棱镜照射到电耦合探测器(CCD)上,在 CCD 上观察到 2~3 个像素的位移偏转。其中掺铁铌酸锂晶体的 z 轴方向与抽运光平行, x 轴方向与信号光方向平行,晶体厚度为 2 mm,掺铁浓度为 0.1%,信号光经过光折变棱镜正中心,晶体中心与 CCD 的距离为 36 cm。实验示意图如下图所示, ξ 为偏转的角度。

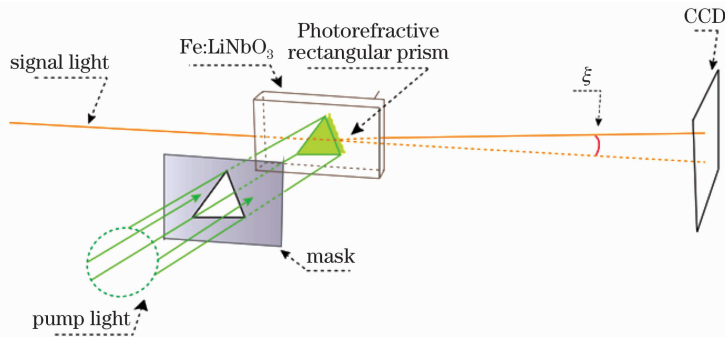


图 1 实验光路示意图

Fig.1 Schematic diagram of experimental light path

由于折射率是变小,所以 CCD 上观察到的位移偏转是向上偏转。折射率计算过程如下。

如图 2 所示,虚线为法线, ξ 为偏转后的信号光方向与原信号光方向的夹角。假设直角棱镜的折射率为 n^* ,掺铁铌酸锂晶体的折射率为 n ,由于折射率变小,所以有 $n^* < n$,信号光将发生如图 2 所示的偏转。由斯涅耳定律可知:

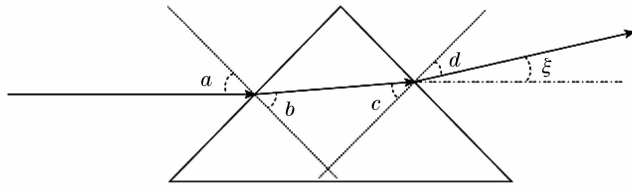


图 2 信号光(1053 nm)经过直角棱镜发生偏转

Fig. 2 Deflection of the signal light (1053 nm) after it passes through the instantaneous prism

$$n \times \sin a = n^* \times \sin b, \quad (9)$$

$$n \times \sin d = n^* \times \sin c, \quad (10)$$

$$b + c = \frac{\pi}{2}, \quad (11)$$

$$d + \xi = \frac{\pi}{4}, \quad (12)$$

式中 $a = \frac{\pi}{4}$, 由(9)~(12)式可得

$$\Delta n = n^* - n = n \times \left[\sqrt{\frac{1}{2} + \sin^2 \left(\frac{\pi}{4} - \xi \right)} - 1 \right]. \quad (13)$$

实验中在 CCD 上观测到的是 2~3 个像素的偏转(每个像素边长 $7.4 \mu\text{m}$), 得到对应的偏转的角度至少为 $\xi = 4.11 \times 10^{-5} \sim 6.17 \times 10^{-5} \text{ rad}$, 代入(13)式可得到 $-\Delta n$ 为 $4.63 \times 10^{-5} \sim 7.16 \times 10^{-5}$ 。

3 结 论

本实验在国际上首次对掺铁铌酸锂晶体在 527 nm 波长的超短脉冲激光抽运下的光折变效应进行了实验研究及理论计算。实验采用简易的方法测得掺铁铌酸锂晶体在较低能量 0.33 mJ 的皮秒激光(1 Hz, 10 ps, 527.5 nm)抽运下的折射率改变 $-\Delta n$ 已达到 10^{-5} 量级。理论计算与实验结果较为相符。若采用更大功率密度的抽运激光, 将会有更大的光折变效应。同时该研究是全光条纹相机的一个关键实验部分, 验证了采用掺铁铌酸锂晶体作为全光条纹相机信号光偏转单元的可行性, 表明在实验上已实现了单个锯齿棱镜对信号光的偏转, 对于全光条纹相机下一步使用更大功率的抽运激光, 采用多锯齿棱镜实现对信号光的偏转以便在 CCD 上成像为条纹的研发, 同时对其他领域, 比如光开关^[17], 光通信等, 具有重要的参考和应用价值。

参 考 文 献

- 1 Ashkin, G D Boyd, J M Dziedzic, *et al.*. Optically-induced refractive index inhomogeneities in LiNbO₃ and LiTaO₃ [J]. Appl Phys Lett, 1966, 9(1): 72-74.
- 2 Zhang Chunyu, Wang Yanfu. Photorefractive effect induced by YAG: Nd³⁺ laser in LiNbO₃ [J]. Acta Optica Sinica, 1984, 4(9): 860-864.
- 3 张纯玉, 王延福. 由 1.06 μm 激光引起铌酸锂光折变实验[J]. 光学学报, 1984, 4(9): 860-864.
- 4 O Beyer, I Breunig, F Kalkum, *et al.*. Photorefractive effect in iron-doped lithium niobate crystals induced by femtosecond pulses of 1.5 μm wavelength [J]. Appl Phys Lett, 2006, 88(5): 051120.
- 5 Eugene G, Gamaly, Saulius Juodkasis, Vyngantas Mizeikis, *et al.*. Modification of refractive index by a single femtosecond pulse confined inside a bulk of a photorefractive crystal [J]. Phys Rev B, 2010, 81(5): 054113.
- 6 Chris H, Sarantos, John E. Heebner L. Solid-state ultrafast all-optical streak camera enabling high-dynamic-range picosecond recording [J]. Opt Lett, 2010, 35(9): 1389-1391.
- 7 Wei Huiyue, Xu Tao, Wang Feng, *et al.*. Designment of a novel optical streak camera with ultrahigh temporal resolution [J]. Acta Optica Sinica, 2013, 33(8): 0823003.
- 8 魏惠月, 徐涛, 王峰, 等. 一种新型高时间分辨的光扫描装置设计 [J]. 光学学报, 2013, 33(8): 0823003.
- 9 Wu Zhengxiang. Research of All-optical Streak Camera for Measurement of the Temporal Waveform of Single Shot Ultrafast Pulse [D].

- Shanghai: Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, 2013; 11–13.
- 吴正香. 用于测量单发超快光脉冲时间波形的全光条纹相机的研究[D]. 上海: 中国科学院上海光学精密机械研究所, 2013; 11–13.
- 8 Li Minghua, Yang Chunhui, Xu Yuheng, *et al.*. Introduction to Photorefractive Crystal of Materials Science[M]. Beijing: Science Press, 2003; 1–2.
- 李铭华, 杨春晖, 徐玉恒, 等. 光折变晶体材料科学导论[M]. 北京: 科学出版社, 2003; 1–2.
- 9 B I Sturman, V M Fridkin. The Photovoltaic and Photorefractive Effects in Noncentrosymmetric Materials, Ferroelectricity and Related Phenomena[M]. New York: Gordon and Breach, 1992, Vol. 8.
- 10 A M Glass, D von der Linde, T J Negran. High-voltage bulk photovoltaic effect and the photorefractive process in LiNbO_3 [J]. Appl Phys Lett, 1974, 25(4): 233.
- 11 Y Raizer. Gas Discharge Physics[M]. Berlin: Springer, 1991.
- 12 E G Gamaly, A V Rode, and B. Luther-Davies. Laser ablation of carbon at the threshold of plasma formation[J]. Appl Phys A, 69(1): 5121–5127.
- 13 Y Il'insky, L Keldysh. Electromagnetic Response of Material Media Plenum[M]. New York: Plenum Press, 1994.
- 14 Y P Raizer. Laser-Induced Discharge Phenomena[M]. New York: Consultant Bureau, 1977.
- 15 E G Gamaly, A Rode, B Luther-Davies, *et al.*. Ablation of solids by femtosecond lasers; ablation mechanism and ablation thresholds for metals and dielectrics[J]. Physics of Plasmas, 2002, 9(3): 949.
- 16 D N Nikogosyan, Properties of Optical and Laser-Related Materials; A Handbook[M]. New York: Wiley, 1988.
- 17 Chen Yunlin, Liu Xiaojuan, Guo Juan, *et al.*. The study of all-optical switching of LiNbO_3 based on cascading of second-order nonlinearity [J]. Acta Optica Sinica, 2004, 24(12): 1667–1671.
- 陈云琳, 刘晓娟, 郭娟, 等. 级联二阶非线性铌酸锂全光开关的研制[J]. 光学学报, 2004, 24(12): 1667–1671.

栏目编辑: 宋梅梅