

单光束 Z 扫描法测量 Nd:YVO₄ 的非线性折射率

关俊^{1,3} 李霞² 程光华^{1,3} 陈国夫¹ 侯洵^{1,2}

(1 中国科学院西安光学精密机械研究所瞬态光学技术国家重点实验室, 西安 710068)

(2 河南大学 物理与信息光电子学院, 开封 475001)

(3 中国科学院研究生院, 北京 100039)

摘要 采用单光束 Z 扫描方法, 对 4 mm 厚 Nd:YVO₄ 晶体的非线性折射率进行了测量。采用薄样品理论对测量数据进行计算处理, 所得出的结果与其他不同方法测得的结果相吻合。由此证明这种简单的测量和处理方法的合理性和有效性。

关键词 非线性折射率; Z 扫描; Nd:YVO₄

中图分类号 TN248.1 **文献标识码** A

0 引言

非线性折射率 n_2 是研究介质非线性光学效应的重要参数。它的测量已有多种方法, 例如非线性干涉法^[1]、简并四波混频^[2]、简并三波混频^[3]、自衍射^[4]、椭圆偏振法^[5]以及光束畸变法^[6]等。前五种测量方法是利用非线性干涉原理, 测量灵敏度高, 但不能直接测量非线性折射率的符号, 并且测量仪器较为复杂; 最后一种测量方法较为简单, 而且可以得出非线性折射率的符号, 但是, 测量灵敏度较差, 而且还需对光束在非线性介质中的传播过程进行详细的分析。Z 扫描法测量非线性折射率不但操作简单而且可以直接得出非线性折射率的符号和大小, 且有强大的其他功能。

Nd:YVO₄ 晶体属四方晶系, 锆石英结构, 单轴晶系, 空间点群为 $D_{4h}-I_4/amd$, 中心对称结构, 没有二阶等偶阶非线性效应, 适合采用 Z 扫描方法进行非线性折射率的测量。因此, 本文采用单光束 Z 扫描法对 Nd:YVO₄ 晶体的非线性折射率进行了测量。

1 测量原理

Z 扫描技术是研究三阶非线性光学特性的一种重要方法, 它建立于光束空间畸变的原理基础之上。由于在测量过程中要求被测试样品沿单光束传输的光轴方向移动, 因而将该方法称之为 Z 扫描, 如图 1。其可由远场小孔透过率的变化和诱导相移的简单线性关系可直接推导出非线性折射率的大小和符号, 对于具有非线性吸收的介质, 也可直接测量出其非线性吸收系数。自 1989 年由 Sheik-Bahae 等人提出以来^[7], 在短短的十几年时间内, 该技术得到不

断的完善和发展。目前 Z 扫描技术大致可以分为单色 Z 扫描、双色 Z 扫描、遮挡 Z 扫描和反射 Z 扫描等四类。Z 扫描技术有着较为强大的功能和潜力, 相继被应用于其它方面的测试和研究^[8~14]。

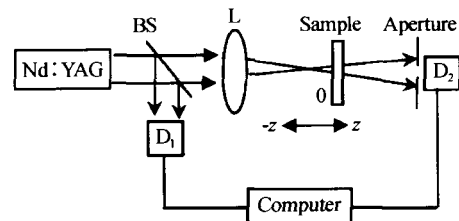


图 1 Z-扫描实验装置

Fig. 1 Setup of the Z-scan experiment

根据 U-Oplaz Technologies 公司提供的数据, Nd:YVO₄ 晶体在 1064 nm 处的吸收系数小于 $0.1\% \text{ cm}^{-1}$, 且 Nd:YVO₄ 晶体最常见的受激辐射的波长正是 1064 nm, 而我们采用 1064 nm 的光进行 Z 扫描测量, 所以在测量实验中我们忽略晶体的非线性吸收, 而只进行闭孔的 Z 扫描实验。因此本文主要说明 Z-扫描在介质非线性折射率测量方面的理论, 由于不考虑材料的非线性吸收, 所以以下只介绍单光束闭孔 Z 扫描理论。

对于只具有奇次阶非线性折射率的光学材料来说, 其折射率的大小与光强的关系为

$$n = n_0 + \Delta n = n_0 + n_2 |E|^2 = n_0 + \gamma I \quad (1)$$

其中 n_0 为介质的线性折射率, n_2 为非线性折射率, E 为电场强度, γ 为光克尔常数, I 为光强。 n_2 和 γ 的关系为

$$n_2 (\text{esu}) = \frac{cn_0}{80\pi} \gamma (m^2/W) \quad (2)$$

假设 TEM₀₀ 模高斯光束沿 +Z 轴方向传播, 电场 $E_0(z, r, t)$ 由式给出^[15]。

$$E_0(z, r, t) = E_0(0, 0, t) \frac{\omega_0}{\omega(z)} \exp \left[-\frac{r^2}{\omega^2(z)} \right] \cdot \exp \left[\frac{ikr^2}{2R(z)} + i\phi(z, t) \right] \quad (3)$$

式中 ω_0 为束腰半径, $\omega(z)$ 为 z 截面处的光腰半径, $\omega^2(z) = \omega_0^2 \left(1 + \frac{z^2}{z_0^2}\right)$, k 为激光的波矢, $k = 2\pi/\lambda$, λ 为激光波长. $R(z)$ 为坐标 z 处的曲率半径, $R(z) = z \left(1 + \frac{z_0^2}{z^2}\right)$, 其中 $z_0 = \pi\omega_0^2/\lambda$, 为高斯光束的共焦参数. $E_0(0, 0, t)$ 为脉冲在焦点处的时间包络电场强度, r 为径向坐标, $\exp[i\varphi_0(z, t)]$ 为包含了与径向无关的所有相移.

为了使样品内由于衍射或折射率改变对光束直径改变无影响, 要求样品足够薄, 必须满足 $L \ll z_0$, L 为样品的厚度. 这时光束通过样品时由于折射率的改变而使波面相位变化为

$$\Delta\varphi(z, r, t) = \Delta\varphi_0(z, t) \exp\left[-\frac{2r^2}{\omega(z)}\right] \quad (4)$$

$$\Delta\varphi_0(z, t) = \frac{\Delta\varphi_0(t)}{1 + z^2/z_0^2} \quad (5)$$

$\Delta\varphi_0(t)$ 是波面在 z 轴上焦点处的位相变化, 定义为

$$\Delta\varphi_0 = k\Delta n_0(t)L_{\text{eff}} \quad (6)$$

式中, $L_{\text{eff}} = \frac{1 - e^{-\alpha L}}{\alpha}$, α 是线性吸收系数; $\Delta n_0 = \gamma I_0(t)$, $I_0(t)$ 为轴上焦点处的光强, 则在样品出射平面处的光场为

$$E_e(z, r, t) = E(z, r, t) e^{-\alpha L/2} e^{i\Delta\varphi(z, r, t)} \quad (7)$$

采用高斯分解法, 对非线性相变作泰勒级数展开, 可以把样品出射面处的复合场分解为许多高斯光束的和的形式, 每一束高斯光束都可以简单地传播到小孔屏, 在那儿它们又重新组合. 当包含有聚焦光束初始曲率时, 可导出远场小孔处地复合场分布^[8]

$$E_e(z, r, t) = E(z, r=0, t) e^{-\alpha L/2} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{[i\varphi_0(z, t)]^m}{m!} \cdot \frac{\omega_{m0}}{\omega_m} \exp\left(-\frac{r^2}{\omega_m^2} - \frac{ikr^2}{2R_m} + i\theta_m\right) \quad (8)$$

把 d 定义为在自由空间内从样品到小孔屏的传播长度, $g = 1 + d/R(z)$, 则式(8)中的其余参数可表示为

$$\omega_{m0}^2 = \frac{\omega^2(z)}{2m+1}, d_m = \frac{k\omega_{m0}^2}{2}, \omega_m^2 = \omega_{m0}^2 \left[g^2 + \frac{d^2}{d_m^2}\right] \\ R_m = d \left[1 - \frac{g}{g^2 + d^2/d_m^2}\right]^{-1}, \theta_m = \tan^{-1} \left[\frac{d/d_m}{g}\right]$$

将复合场对半径 r 进行积分便可得到透射功率

$$P_t(\Delta\varphi_0(t)) = \epsilon_0 n_0 \pi \int_0^r |E_e(r, t)|^2 r dr \quad (9)$$

则归一化透过率为

$$T(z) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} P_t(\Delta\varphi_0(t)) dt}{S \int_{-\infty}^{\infty} P_i(t) dt} \quad (10)$$

式中, $P_i = \pi\omega_0 I_0(t)/2$ 是瞬时输入功率(样品内), $S = 1 - \exp(-2r_a^2/\omega_a^2)$ 是小孔对高斯光束的线性透过率.

对于一个小的非线性相移 $|\Delta\varphi_0(t)| < \pi$, 忽略 $\Delta\varphi_0(t)$ 的二阶和更高阶项, 归一化透过率可简化为^[8]

$$T(z, \Delta\varphi_0(t)) = 1 + \frac{4\Delta\varphi_0(t)x}{(x^2+1)(x^2+9)} \quad (11)$$

式中, $x = z/z_0$. 令 $dT/dz = 0$, 得峰谷坐标 x_{p-v} , 峰谷距离 Δx_{p-v} , 和峰谷透过率差 ΔT_{p-v} 分别为

$$x_{p-v} \approx \pm 0.858 \quad (12)$$

$$\Delta x_{p-v} \approx 1.7z_0 \quad (13)$$

$$\Delta T_{p-v} = 0.406\Delta\varphi_0(t) \quad (14)$$

考虑小孔光阑的影响, 峰谷透过率差 ΔT_{p-v} 可改写为

$$\Delta T_{p-v} \approx 0.406(1-S)^{0.25} |\Delta\varphi_0(t)| \quad (15)$$

设脉冲能量为 E , 脉冲宽度为 τ , 根据 $I_0 = E/\pi\omega_0\tau$, 并结合式(6), (15), 可以计算出介质的克尔常数为

$$\gamma = \frac{\lambda\omega_0^2\tau\Delta T_{p-v}}{0.812(1-S)^{0.25}L_{\text{eff}}E} = \frac{\lambda\omega_0^2\tau|\Delta\varphi_0(t)|}{2L_{\text{eff}}E} \quad (16)$$

根据式(2)可得非线性折射率系数 n_2 为

$$n_2(\text{esu}) = 1.47 \times 10^6 \times \frac{\lambda n_0 \omega_0^2 \tau \Delta T_{p-v}}{(1-S)^{0.25} E L_{\text{eff}}} = \\ 0.597 \times 10^{-6} \times \frac{\lambda n_0 \omega_0^2 \tau |\Delta\varphi_0(t)|}{E L_{\text{eff}}} \quad (17)$$

所有参量的单位都是国际单位.

有些文献[16]中也将式(1)中的 Δn 表示为

$$\Delta n = n_2 |E|^2 = n_2' I \quad (18)$$

即

$$n_2' = \gamma \quad (19)$$

式中, E 为电场强度(V/m), I 为光束的强度(W/cm²), n_2 和 n_2' 的单位分别用静电单位 esu 与 cm²/W 或 cm²/W 单位. 所以, 只要获得了介质的闭孔 Z-扫描曲线(不考虑非线性吸收), 就可以计算出介质的克尔常数和非线性折射率系数.

2 测量实验

2.1 实验装置

Z-扫描方法的基本实验装置如图 1. 所用光源为 Continuum 公司生产的锁模 Nd:YAG 皮秒激光器. 波长为 1064 nm, 脉宽为 38 ps, 重复频率为 10 Hz, 探测器为 EPM2000 双通道能量计. 输出的高斯光束经分束器 BS 后分成两部分. 一部分由探测器 D₁ 接收, 作为参考光, 监视激光能量的变化; 另一部分经焦距为 25 cm 的透镜 L, 聚焦后进入样品 S, 透镜焦点处束腰半径 ω_0 为 28.2 μm, 样品在沿

光束方向透镜焦点附近左右移动, 投射光由另一探测器 D_2 接收. 闭孔测量时, 在探测器 D_2 前面加以小孔 A; 开孔测量时, 不加小孔, 而在 D_2 前加一透镜使光全部进入探测器. D_1 、 D_2 数据输入计算机 C 中, 经程序处理后直接得出投射能量随样品位置 z 坐标变化的曲线, 归一化后得到 Z-扫描实验曲线.

当样品沿 z 轴相对于焦点平面移动时, 由于样品的非线性作用, 经远场小孔后的光强透过率将发生变化, 以 D_2/D_1 为归一化透过率, 则 D_2/D_1 为样品位置 z 的函数. Z-扫描方法的记录和测试过程都不复杂, 然而它提供的被测试样品的信息却是十分丰富的. 对于闭孔测量, 高斯光束经透镜会聚在具有非线性光学特性样品上, 光强的变化引起了样品折射率的变化, 样品表现出类似薄透镜的特性. 如样品非线性折射率 n_2 为负, 其归一化透过率曲线呈现先峰后谷; 如样品非线性折射率 n_2 为正, 则先谷后峰. 根据闭孔 Z-扫描归一化透过率曲线的形状和对其特征的分析, 我们就可以确定样品的非线性折射率 n_2 (n_2') 的符号及大小.

2.2 实验结果与分析

实验测得 Nd:YVO₄ 晶体的 Z 扫描数据曲线如图 2, 计算 Nd:YVO₄ 晶体的 n_2' 所需的数据见表 1. 其中 n_0 的取 Nd:YVO₄ 晶体 n_o 和 n_e 的平均值, 即 $(1.9573+2.1652)/2=2.061$. 将数据代入式 (16), 最终可以计算出所测得 Nd:YVO₄ 晶体的非线性折射率 $n_2'=4.7 \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{W}$. 这一测量结果与 L. Luo^[17] 等采用双光束时间分辨 Z 扫描技术对 Nd:YVO₄ 晶体的非线性折射率的测量结果是相吻合的.

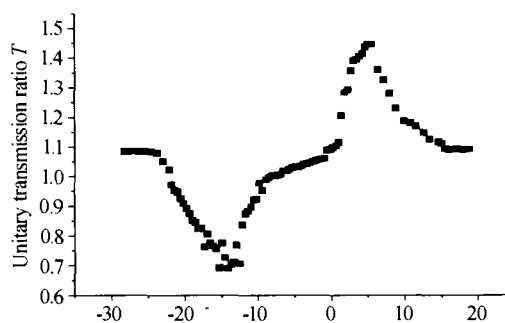


图 2 Nd:YVO₄ 晶体的 Z 扫描数据曲线
Fig. 2 Diagram of Nd:YVO₄ crystal Z-scan data

表 1 Nd:YVO₄ 晶体的非线性折射率所需的参数

λ/nm	$\omega_0/\mu\text{m}$	τ/ps	$E(\text{v/cm})$	L/mm	α/cm^{-1}	ΔT_{p-v}	n_0	L_{eff}/mm	$S/(\%)$
1064	28.2	38	3.6	4	0.001	0.775	2.06	4	22.5

3 结论

本文采用的是 Nd:YVO₄ 晶体的尺寸为 3 mm × 3 mm × 4 mm, 而 Z 扫描光源的 $z_0=2.3 \text{ mm}$, 这也就是说, 本实验中所用样品是厚介质, 但在计算时忽略了样品中由于衍射或折射率的改变对光束直径的改变, 所得出的结果与文献[17]采用 1 mm 厚的 Nd:YVO₄ 晶体进行测量的结果是一致的, 从而也验证了这种测量和计算方式的合理性.

由于钛宝石的非线性折射率 $n_2'=5.1 \times 10^{-19} \text{ m}^2/\text{W}$, 所以 Nd:YVO₄ 晶体的非线性折射率比钛宝石非线性折射率大, 因而理论上采用 Nd:YVO₄ 晶体做增益介质更容易自锁模. 目前钛宝石自锁模激光器已经比较成熟, 而在一定的条件下, 也观察到了 Nd:YVO₄ 激光器的类似自锁模现象, 目前正在对这一现象进行进一步的研究和原理解释, 测量 Nd:YVO₄ 晶体的非线性折射率正是对这一现象进行研究和解释的前期工作之一, 关于 Nd:YVO₄ 激光器的类似自锁模现象的研究, 将在以后文献中加以报道.

参考文献

1 Weber M J, Milam D, Smith W L, et al. Nonlinear refractive index of glasses and crystals. *Opt Eng*, 1978,

17(5):463~469

- Friberg S R, Smith P W. Nonlinear optical glasses for ultrafast optical switches. *IEEE J Q E*, 1987, **QE-23** (12):2089~2094
- Adair R, Chase L L, Payne S A. Nonlinear refractive-index measurements of glasses using three-wave frequency mixing. *J OSA B*, 1987, **4**(6):875~881
- Yech P. Exact solution of a nonlinear model of two-wave mixing in Kerr media. *J OSA B*, 1986, **3**(5):747~750
- Owyoung A. Ellipse rotation studies in laser host materials. *IEEE J QE*, 1973, **QE-9**(11):1064~1069
- Williams W E, Soileau M J, Van Stryland E W. Optical switching and n_2 measurement in CS₂. *Opt Commun*, 1984, **50**(4):256~260
- Sheik-Bahae M, Said A A, Van Stryland E W. High sensitivity single beam n_2 measurement. *Opt Lett*, 1989, **14**(17):955~957
- Sheik-Bahae M, Said A A, Wei T H, et al. Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam. *IEEE J Quantum Electronics*, 1990, **26**(4):760~769
- Castillo J, Kozich V P, Marcano A O. Thermal lensing resulting from one- and two-photon absorption studied with a two-color time-resolved Z-scan. *Appl Lett*, 1994, **19**(3):171~173

- 10 Wang J, Sheik-Bahae M, Said A A, *et al.* Time-resolved Z-scan measurements of optical nonlinearities. *J OSA B*, 1994, **11**(6):1009~1017
- 11 Sheik-Bahae M, Wang J, Desalvo R, *et al.* Measurement of nondegenerate nonlinearities using a two-color Z-scan. *Opt Lett*, 1992, **17**(4):258~260
- 12 Kovsh D I, Yang S, Hagan D J, *et al.* Nonlinear optical beam propagation for optical limiting. *Appl Opt*, 1999, **38**(24):5168~5180
- 13 Chapple P B, Staromlynska J, McDuff R G. Z-scan studies in the thin- and thick-sample limits. *J Opt Soc Am(B)*, 1994, **11**(6):975~985
- 14 Liu C, Zeng H, Segawa Y, *et al.* Optical limiting performance of a novel $\sigma\pi$ alternating polymer. *Opt Commun*, 1999, **162**(1):53~56
- 15 Chong H K, Yeung L L, Seong G K. Analysis of asymmetric Z-scan measurement for large optical nonlinearities in an amorphous As₂S₃ thin film. *J Opt Soc Am(B)*, 1999, **16**(4):600~604
- 16 干福熹, 邓佩珍. 激光材料. 上海:上海科学技术出版社, 1996. 148
- Gan F X, Deng P Z. Laser Material. Shanghai: Shanghai Scientific and Technical Publishers, 1996. 148
- 17 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
- 18 Robert Adair, Chase L L, Stephen A. Payne nonlinear refractive index of optical crystal. *Physical Review B*, 1989, **39**(5):3337~3350

Measurement of the Nonlinear Refraction Index of Nd : YVO₄ Crystal by Single-beam Z Scan

Guan Jun^{1,3}, Li Xia², Cheng Guanghua^{1,3}, Chen Guofu¹, Hou Xun^{1,2}

1 State Key Laboratory of Transient Optics Technology, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710068

2 College of Physics and Information Optic-electronics, Henan University, Kai feng 475001

3 Graduate School of the Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039

Received date: 2004-06-15

Abstract In this measurement of the nonlinear refraction index of 4mm thick Nd : YVO₄ crystal, the single-beam Z scan method is employed and the experimental data is processed according to the Z scan theory of thin sample. As a result, the refraction index, which tallies with the one resulting from other different measure method, is obtained in this measurement. So the rationality and the validity of this simple measurement and data processing method are proved.

Keywords Nonlinear refraction index; Z scan; Nd : YVO₄



Guan Jun was born in Zhumadian, Henan Province, in 1978. He received the B. S. degree in mechanical engineering from Xi'an Jiaotong University. Now, he is pursuing his M. S. degree directing by Prof. Hou Xun (Academician of CAS) and Prof. Cheng Guofu in Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics. His current interest is solid state laser.