

锗硅玻璃全光极化的偏振和强度相关性研究

冯 曦^{1,2,3}, 李富全², 林傲祥², 王 芳², 柴向旭², 朱启华^{2*}, 王正平^{1,3}, 孙喜博², 孙 洵^{1,3*}

(1. 山东大学 晶体材料国家重点实验室, 山东 济南 250100;

2. 中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 四川 绵阳 621900;

3. 山东大学 功能晶体材料及器件教育部重点实验室, 山东 济南 250100)

摘 要: 搭建了可以连续控制基频光、倍频光偏振夹角的实验平台, 并实现了一系列锗硅玻璃样品的全光极化。极化效果和极化方向由内建电场的大小和方向所决定, 研究了两者与极化光束偏振态以及强度之间的关系。所获得的实验结果基本与经典模型及其推论相一致, 但同时也发现了两者在定量方面的差异, 包括局部变化趋势、角度大小等, 这进一步说明了全光极化过程的复杂性。实验发现, 当基频光与倍频光平行偏振时, 极化过程效果最优; 同时, 极化过程对极化光束的强度也非常敏感。

关键词: 非线性光学; 全光极化; 锗硅玻璃; 二次谐波产生

中图分类号: O437.1 文献标志码: A DOI: 10.3788/IRLA201948.0817002

Polarization and intensity dependence of all-optical poling in germanosilicate glass

Feng Xi^{1,2,3}, Li Fuquan², Lin Aoxiang², Wang Fang², Chai Xiangxu², Zhu Qihua^{2*},
Wang Zhengping^{1,3}, Sun Xibo², Sun Xun^{1,3*}

(1. State Key Laboratory of Crystal Materials, Shandong University, Jinan 250100, China;

2. Research Center of Laser Fusion, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China;

3. Key Laboratory of Functional Crystal Materials and Device (Shandong University), Ministry of Education, Jinan 250100, China)

Abstract: An experimental platform capable of continuously controlling the polarization angle of the 1ω and 2ω lights was constructed, and a series of all-optical poling of the silicon germanium glass sample was realized. The poling effectiveness and poled direction, which were determined by the magnitude and direction of internal electric field, correlations of which with the poling polarization state and intensity were studied. Basically the experimental results were consistent with the classic model and its derivation, but quantitative inconsistencies were found as well, including local tendency, angle size, etc, which further proved the complexity of the all-optical poling process. It was experimentally found that the effectiveness of the poling process was the best when 1ω and 2ω lights were polarized parallel, and the poling process was also very sensitive to the poling intensity.

Key words: nonlinear optics; all-optical poling; germanosilicate glass;
second harmonic generation

收稿日期: 2019-03-11; 修订日期: 2019-04-21

基金项目: 国家自然科学基金(51323002, 51402173)

作者简介: 冯曦(1990-), 男, 博士生, 主要从事非线性光学与非线性材料方面的研究。Email: xifengsdu@126.com

导师简介: 孙洵(1972-), 男, 教授, 博士, 主要从事晶体生长和晶体物理方面的研究。Email: sunxun@sdu.edu.cn

朱启华(1969-), 男, 研究员, 博士, 主要从事高功率激光技术方面的研究。Email: qihzh@163.com

0 引言

1981年, Sasaki 和 Ohmori 首次在二氧化硅玻璃中发现了二阶非线性现象 (和频)^[1]。1986 年, Osterberg 在玻璃中首次完成了有效的全光极化以及二次谐波产生^[2]。极化是一种在各向同性的玻璃中诱导二阶非线性的有效方式, 而玻璃材料因其中心对称特性原本并不具备二阶非线性^[3]。全光极化是一种只需要激光辐照而无需电场、加热或者其他额外条件的极化方式。全光极化玻璃具有自发准相位匹配特性, 故而适用于倍频等应用场景^[4]。

Stolen 报道了当使用由基频光、倍频光所组成的极化光束时, 全光极化过程可以更快地完成^[5]。Jinhai Si 以及部分其他日本科学家系统研究了在全光极化过程中锺相关缺陷所起的作用^[6-9]。极化(特别是热极化)的理论解释可以分为两类: “冻结的空间电荷场”模型^[10-12]和“化学键重定向”模型^[13]。前者认为, 电荷载流子的迁移导致了内建电场的建立, 而内建电场诱发了二阶非线性系数 $\chi^{(2)}$ 。而后一种模型将二阶非线性的出现归因于极性结构单元在极化过程中所发生的重新取向。被广泛接受的全光极化经典模型由 Anderson 和他的同事首次提出^[14]。他们给出了自洽的玻璃光纤中二次谐波产生过程的计算方式。他们认为, 光致二次谐波产生归因于多光子吸收下光电离引发的电荷迁移、俘获以及重新分布。全光极化后, 玻璃中形成内建电场。相应地, 由于内建电场的存在改变了玻璃介质的对称性, 从而导致极化玻璃的特性类似于单轴晶体。内建电场 E_{dc} 的大小和方向决定了极化的程度以及极化后对称轴的方向, 文中, 称之为极化效果和极化方向。

现已知极化光束的偏振态影响着全光极化过

程, 但据笔者所知, 目前还尚未有系统的研究报道。极化光束的偏振态及其强度对全光极化过程的影响研究, 有利于了解全光极化的物理机理。在前期工作中^[15], 基于经典模型从理论上推导了全光极化的特性。在文中, 笔者从实验上研究了全光极化的特性, 包括偏振相关性和强度相关性。通过连续控制极化光束的偏振态和强度, 以输出二次谐波信号作为表征, 研究了他们对极化效果和极化方向的影响。通过对比实验结果与理论预期, 获得了定性上的一致性。

1 实验

实验中使用两块 30%GeO₂:70%SiO₂ 样品, 分别取自同一根通过气相沉积法制作的芯部直径 5 mm、包层直径 15 mm 的光纤预制棒, 并编号 A、B, 切片厚度 5 mm, 通光面抛光。由于取自同一预制棒, 因此样品 A、B 组分具有一致性, 且加工工艺相同。在样品 A、B 的芯部, 围绕样品中心, 分别有 8 个和 5 个极化点, 分别标识为 A1~A8 和 B1~B5。每轮实验分为两个过程: 极化过程和倍频过程。在极化过程中, 极化点被全光极化; 在倍频过程中, 通过进行二次谐波产生来对极化样品进行检测。在每轮实验结束前, 样品与光路保持不变, 从而保证极化点位置的准确。

1.1 极化过程

图 1 给出了样品照片及极化过程的实验光路。E1、E2: 能量计; P1、P2: 取样楔形透镜; I SHG: I 类倍频晶体; R1、R2、R3 和 R4: 反射镜; FS: 熔石英板; PR: 基频转子; L1: 聚焦透镜; S: 样品。基频光以红色箭头表示, 倍频光以绿色箭头表示, 混合光以棕色箭头表示。图中左侧是样品照片实验中, 激光光源采用输出基频波长为 1 053 nm 的 Nd:YLF 锁模固体激光器。输出脉冲脉宽为 50 ps、重复频率 2 Hz。采用

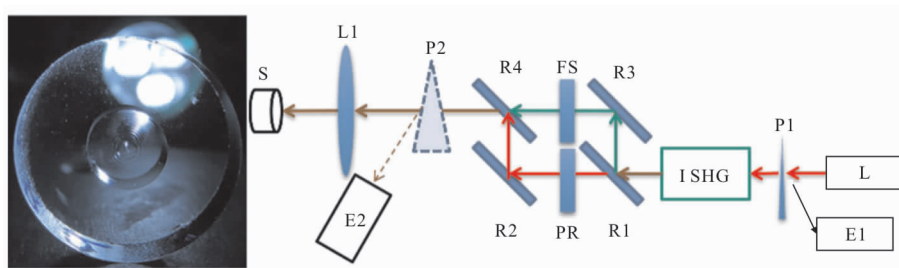


图 1 偏振控制的极化过程光路

Fig.1 Light path for poling process with polarization state control

楔形透镜 P1 和能量计 E1 对输入光束进行取样和测量。通过 I 类倍频晶体 LBO 产生二倍频光。为调节极化光束的偏振态,实验采用了由反射镜 R1~R4 所组成的光束分离-耦合结构。其中,R1、R3 对二倍频光高反,而 R2、R4 对基频光高反。图中不同光束的传输路径已由不同颜色所标识。基于这样的光路结构,基频光偏振态可通过偏振转子 PR 单独调节。两束光的同步性已经过调节和优化。通过透镜 L1 将光束汇聚至样品表面,从而提高极化辐照强度。透镜 L1 焦距 35 cm,样品距透镜 L1 23.5 cm,对应光斑直径 1 mm。在极化前后,楔形透镜 P2 被插入至光路,由能量计 E2 分别记录不同光束的能量。

极化过程中,倍频光竖直偏振。基频光的偏振态由其偏振方向与竖直方向的夹角 $\theta_{1\omega}$ 定义,这也同样是基频光与倍频光之间的偏振夹角。作为区分,将极化过程中极化光束中的基频光、倍频光称为极化基频光(1 ω light in the poling process, 1 ω -PP)、极化倍频光 (2 ω light in the poling process, 2 ω -PP);而在倍频过程中,输入的基频光称之为输入基频光(Input 1 ω light in the frequency-doubling process, 1 ω -Input);输出的倍频光称之为输出倍频光(Output 2 ω light in the frequency-doubling process, 2 ω -Output)。对于样品 A 上的 8 个极化点 A1~A8,其极化光束强度相同,极化基频光和极化倍频光的能量均为 4 mJ;其对应的极化光束偏振夹角 $\theta_{1\omega}$ 为 $-90^\circ \sim 67.5^\circ$,间隔 22.5° ,具体如表 1 所示,表中 $\theta_{1\omega}^a$ 是极化基频光、极化倍频光之间的偏振夹角。。对于样品 B 上的 5 个极化点 B1~B5,其极化光束偏振夹角相同,均为 0° ;其对应的极化光束强度中,极化基频光和极化倍频光的能量均为 3.0~5.0 mJ,间隔 0.5 mJ,具

体如表 2 所示。每个样品极化点共经历三次极化过程,每次极化过程中极化光束的辐照时间为 2 h。

表 1 样品 A 各极化点的极化光束偏振夹角
Tab.1 Polarization angle of the poling beam for each poled point on sample A

Position	A1	A2	A3	A4	A5	A6	A7	A8
$\theta_{1\omega}^a / (^\circ)$	-90.0	-67.5	-45.0	-22.5	0	22.5	45.0	67.5

表 2 样品 B 各极化点的极化光束能量
Tab.2 Energy of the poling beam for each poled point on sample B

Position	B1	B2	B3	B4	B5
1 ω	3.0	3.5	4.0	4.5	5.0
2 ω	3.0	3.5	4.0	4.5	5.0

1.2 倍频过程

在倍频过程中,对样品极化点的二次谐波输出进行测试。如图 2 所示,E1:能量计;P1:取样楔形透镜;R1、R2、R3 和 R4:反射镜;PR:基频转子;F1:基频滤波片;L1:聚焦透镜;S:样品;L2:成像透镜;F2:二倍频滤波片。基频光以红色箭头表示,倍频光以绿色箭头表示,混合光以棕色箭头表示。图中左侧是 CCD 探测到的以灰度值表示的典型输出光斑光强分布图。与图 1 相比,取掉了倍频晶体,因而只有基频光辐照至样品。F1 是基频带通滤波片,用以保证无荧光进入。F2 是二倍频光带通滤波片,用以保证仅二次谐波被测量。透镜 L2 与 CCD (Apogee F47UV) 构成成像系统,输出的二次谐波(输出倍频光)通过 CCD 记录的光斑图像进行表征和测量。

当极化点被辐照 2 h 后,执行倍频过程,并将输

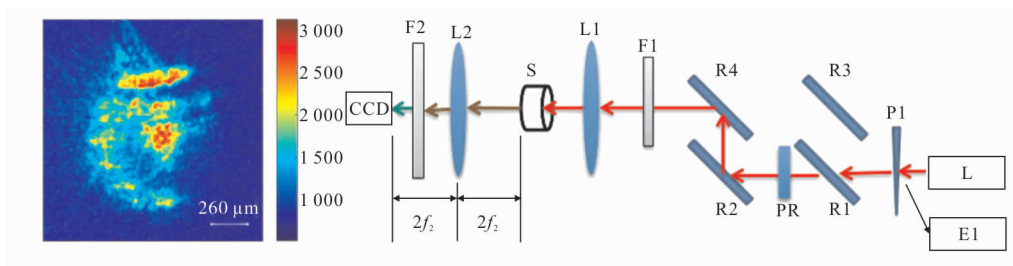


图 2 偏振控制的倍频过程光路

Fig.2 Light path for frequency-doubling process with polarizaiton state controlling

出倍频光强度及相应的输入基频光偏振态进行记录。每个极化点执行三次输出倍频测试,也即执行三次倍频过程。

2 实验结果

以极化点 A4 为例,其倍频输出测试结果如图 3 所示。 θ_{in} 是以输入基频光偏振方向与竖直线(极化倍频光偏振方向)的夹角所表示的输入基频光偏振态。图中竖直实线标识了峰值位置。从图中可以看出,输出倍频强度与输入基频光偏振态之间的关系呈现三角函数形式,而这与二阶非线性晶体类似。事实上,之前的研究报道已经给出极化玻璃属于 $C_{\infty v}$ 对称点群,即其拥有一旋转对称轴。图中的峰值强度代表了极化玻璃二阶非线性大小,这由内建电场的大小所决定;而图中的峰值位置指示了极化玻璃的对称轴方向,即微观上内建电场的方向。因此,取每次极化后图中的峰值强度作为极化效果的表征,以峰值位置表示极化方向。例如,以极化光束总能量 8 mJ 且极化基频光、极化倍频光偏振夹角 -22.5° 作为条件极化的极化点 A4,其极化效果在三次极化后分别为 ~ 20 、 ~ 30 和 ~ 65 ;其极化方向为 0° ,且在每次极化后保持稳定。

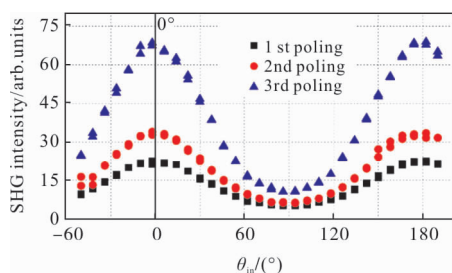


图 3 极化点 A4(极化基频光、极化倍频光偏振夹角 -22.5°) 输出倍频强度与输入基频光偏振态的关系
Fig. 3 Correlations between 2ω -output intensities and 1ω -input polarization state in poled point A4 (1ω -PP and 2ω -PP are polarized with an angle of -22.5°)

2.1 偏振相关性

如前所述,极化光束偏振态由 $\theta_{1\omega}$ 所表示。极化光束偏振态对极化效果、极化方向的影响分别如图 4、5 所示。图中,极化点 A1~A8 以其极化基频光的偏振方向作为横坐标。横坐 $\theta_{1\omega}$ 是极化基频光、极化倍频光之间的偏振夹角考虑到偏振方向的周期为

180° ,因此极化点 A1 在图中被绘制了两次,以展示一个完整的偏振方向周期。

从图 4 中可以得到,当 $\theta_{1\omega}=0^\circ$ 时,极化效果最为有效。而当极化基频光与极化倍频光垂直偏振时($\theta_{1\omega}=\pm 90^\circ$),极化效果非常微弱,但仍旧存在。此外,图中曲线为偶对称。偏离 0° 后,极化效果随极化光束偏振夹角起伏变化,在图中可看到有两处波谷。对于每一个极化点来说,其极化效果随极化过程次数的增加而逐渐增强,但曲线的总体形状保持一致。

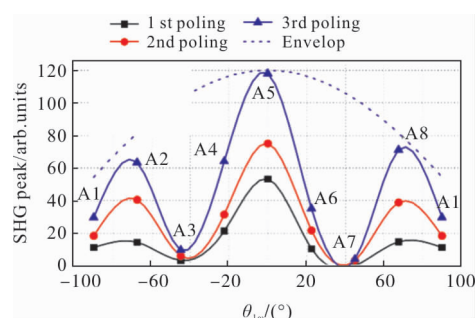


图 4 极化点 A1~A8 的峰值强度(极化效果)
Fig.4 Peak values intensity (poling effectiveness) of poled point A1-A8

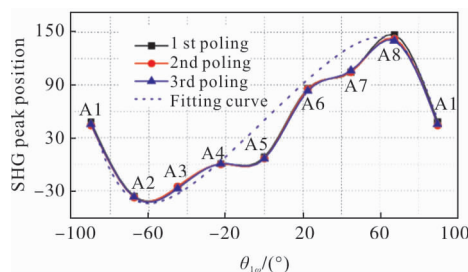


图 5 极化点 A1~A8 的峰值位置(极化方向)
Fig.5 Peak positions (poling directions) of poled point A1-A8

图 5 中,极化方向随 $\theta_{1\omega}$ 呈现出非线性变化。其拐点出现在 $\pm 60^\circ$ 附近。与极化效果不同,极化方向的曲线为奇对称。对于每一极化点,尽管其极化效果在每次极化过程中都发生变化,其极化方向却保持稳定。

图 4、5 中的拟合曲线(虚线)均基于经典模型,该模型将在下文中进一步讨论。在研究过程中,在与样品 A、B 取自同一预制棒的切片上,类似的偏振相关性实验进行多次,实验结果基本保持一致。每个极化点均被极化三次,每次 2 h。

2.2 强度相关性

在极化点 B1~B5 的极化条件中,极化光束偏振态保持一致,但极化光束强度不同。每个极化点均被极化三次,每次 2 h。图 6 给出了极化光束强度对于极化效果的影响。横坐每个极化点对应的极化光束能量(极化基频光、极化倍频光能量之和)。对于以 6 mJ 能量极化的 B1 极化点,CCD 几乎未能检测到其倍频信号输出。但如图所示,极化效果随极化能量的增加迅速增强。当极化能量高于 8 mJ 时,极化效果又迅速下降。通过观察样品,在极化点 B4 和 B5 均发现了光致损伤。事实上,当样品 B 在 10 mJ 能量下极化时,样品最终开裂。因此,极化效果的下降其实来自于超高辐照强度所引起的光致损伤。

此外,极化点 B1~B5 的极化方向均为 0°,这说明极化光束的强度对于极化方向并没有影响。

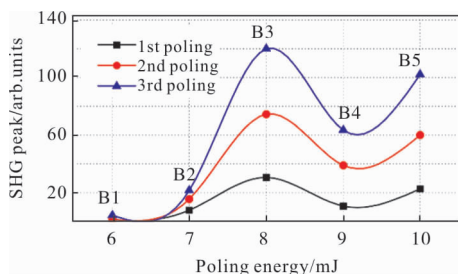


图 6 极化点 B1~B5 的峰值强度(极化效果)

Fig.6 Peak values intensity (poling effectiveness) of poled point B1-B5

将极化光束的偏振态和强度对极化效果和极化方向的影响分别进行对比,可以发现,极化效果同时与极化光束偏振态和强度相关,而极化方向则主要由极化光束的偏振态所决定。

3 讨论与分析

根据经典模型,当基频光、倍频光所组成的极化光束辐照锗硅玻璃时,在介质内引发了各向异性的光致电流,该电流可表达为:

$$j_{ph} = \beta \cdot A(\omega)A(\omega)A^*(2\omega)\exp(i\Delta kx) + c.c. \quad (1)$$

式中: j_{ph} 为光致直流电流; β 为光伏打系数; Δk 为相位匹配因子,即 $2k_1 \sim k_2$, $A(\omega)$ 和 $A(2\omega)$ 分别为基频光与倍频光的光电场强度的模值。在引发光电流的同时,被辐照的锗硅玻璃产生局部光电导,在光电导

的作用下,电荷的重新分布导致了内建电场的建立,该过程可表示为:

$$E_{dc} = j_{ph} / \sigma \quad (2)$$

式中: σ 为光电导。

极化后,由于内建电场 E_{dc} 的存在,当输入基频光通过介质时,可通过三阶非线性效应产生非线性极化强度 $P^{(3)}(2\omega)$,可表示为:

$$P^{(3)}(2\omega) = 3\chi^{(3)} \cdot E_{dc} E_{in}(\omega) E_{in}(\omega) \quad (3)$$

式中: $\chi^{(3)}$ 为三阶非线性系数; $E_{in}(\omega)$ 为倍频过程中输入基频光的光电场强度。如果将极化玻璃本征的 $\chi^{(3)}$ 和 E_{dc} 作为一个整体,可以得到:

$$P^{(2)}(2\omega) = \chi^{(2)} \cdot E_{in}(\omega) E_{in}(\omega) \quad (4)$$

$$\chi^{(2)} = 3\chi^{(3)} \cdot E_{dc} \quad (5)$$

显然,内建电场 E_{dc} 和二阶非线性系数 $\chi^{(2)}$ 都具有与 j_{ph} 相同的空间周期 Δk 。而 Δk 的存在说明,全光极化玻璃具有自发准相位匹配的特点。

在笔者之前的报道中,已经从理论上推导得到了极化光束偏振态对极化效果和极化方向的影响^[15],结果见图 7。理论上,极化效果正比于 $8\cos^2(\theta_{1\omega})+1$,而极化方向遵从方程 $\sin(2\theta_{1\omega})/(\cos(2\theta_{1\omega})+2)$ 。

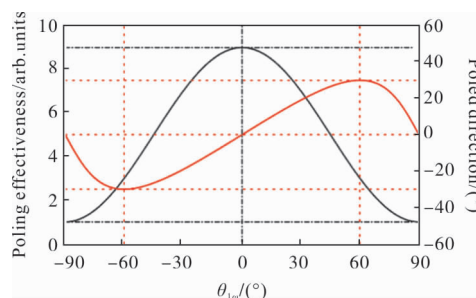


图 7 理论上极化效果和极化方向与极化基频光、极化倍频光偏振夹角之间的关系

Fig.7 Theoretical correlations of poling effectiveness and poled direction with the angle between polarization directions of 1ω-PP and 2ω-PP lights

从图中可以看出,极化效果与极化基频光、极化倍频光偏振夹角之间的关系为偶对称。当极化基频光与极化倍频光平行偏振时,极化过程最为有效。反之,当极化基频光与极化倍频光垂直偏振时,极化过

程最弱,但即便如此,仍有极化效应存在。对比理论结果与图 4 中的实验结果,可以观察到实验结果的包络与理论预测一致。然而,在实验结果中存在额外的两个波谷。

在图 7 中,极化方向关于偏振夹角奇对称。极化方向曲线同样也是非线性,并且拐点出现在 $\pm 60^\circ$ 。极化方向的最大值为 $\pm 30^\circ$ 。无论极化基频光与极化倍频光平行偏振或者垂直偏振,极化方向均为 0° ,与极化倍频光的偏振方向平行。对比图 5,可以得到实验结果与理论预测的变化趋势是一致的。然而,两者在定量数值上并不一致。尽管曲线拐点都出现在 $\pm 60^\circ$,实验数据的最大值和最小值远离 $\pm 30^\circ$,并且它们之间的间隔也比理论结果要大。

根据模型的理论推导,输出倍频强度与极化基频光、极化倍频光强度之间的关系为:

$$I_{\text{out}} \propto I^2(\omega)I(2\omega) \quad (6)$$

式中: I_{out} 为输出倍频强度; $I(\omega)$ 和 $I(2\omega)$ 分别为极化基频光与极化倍频光的强度。可以看出,输出倍频强度以及极化效果对于极化光束的强度非常敏感。与图 6 相比,在光致损伤发生前,极化效果随极化光束强度的增加迅速增强,与理论预测非常一致。

因此,实验中的结果与理论预测具有非常好的一致性。然而,仍然存在一些定量上的差异。根据经典模型,极化过程是极化光束与介质之间的三阶非线性效应,这意味着该过程对于影响因素的控制非常敏感而复杂。一方面,定性结果的一致性说明了经典模型的正确性;另一方面,实验结果也说明了全光极化是非常复杂的,并且需要进一步的严格实验来获得更加精确的定量结果。

4 结 论

综上所述,研究了锗硅玻璃全光极化过程中对于极化光束偏振态以及强度的依赖性。通过对比实验结果与理论结果,获得了定性程度地一致性。

(1) 极化效果与极化基频光、极化倍频光偏振夹角的关系中,其曲线包络与理论预测一致,正比于 $8\cos^2(\theta_{1\omega})+1$ 。当极化基频光与极化倍频光平行偏振时,极化过程最为有效;而当两者垂直偏振时,极化

效果最为微弱但仍然存在。然而,在曲线中存在两个波谷,这与理论预测并不一致;

(2) 极化方向与极化基频光、极化倍频光偏振夹角的关系在趋势上与理论预测一致。曲线的拐点出现在 $\pm 60^\circ$ 。但目前尚未获得定量上的一致性;

(3) 极化效果对于极化光束的强度非常敏感,随极化光束强度的增加而迅速增强直至光致损伤的出现。该实验结果与理论预测非常一致;

(4) 极化方向并没有受到极化光束强度的影响。这与理论预测相一致。

因此,极化效果同时受到极化光束偏振态和极化光束强度的影响,而极化方向主要由极化光束偏振态所决定。当极化基频光、极化倍频光平行偏振时极化过程最为有效。实验结果定性地与经典模型相一致,但精确的定量结果仍需进一步的研究。

参 考 文 献:

- [1] Sasaki Y, Ohmori Y. Phase-matched sum-frequency light generation in optical fibers [J]. *Appl Phys Lett*, 1981, 39(6): 466-468.
- [2] Österberg U, Margulis W. Dye laser pumped by Nd:YAG laser pulses frequency doubled in a glass optical fiber [J]. *Opt Lett*, 1986, 11(8): 516-518.
- [3] Gladyshev A. Second-order nonlinearity in optical fibers: achievements and perspectives[C]//*Photonics and Fiber Technology 2016 (ACOFT, BGPP, NP)*, 2016: BT5B.
- [4] Farries M C, Russell P S J, Fermann M E, et al. Second-harmonic generation in an optical fibre by self-written $\chi^{(2)}$ grating[J]. *Electron Lett*, 1987, 23(7): 322-324.
- [5] Stolen R H, Tom H W K. Self-organized phase-matched harmonic generation in optical fibers [J]. *Opt Lett*, 1987, 12(8): 585-587.
- [6] Si J, Kitaoka K, Mitsuyu T, et al. Optically encoded second-harmonic generation in germanosilicate glass via a band-to-band excitation[J]. *Appl Phys Lett*, 1999, 75(3): 307-309.
- [7] Hideo H, Masafumi M, Hiroshi K, et al. Correlation between GeE' centers and optical absorption bands in $\text{SiO}_2\text{:GeO}_2$ glasses [J]. *Jpn J Appl Phys*, 1996, 35(2B):

- L234.
- [8] Hosono H, Kawazoe H, Nishii J. Defect formation in $\text{SiO}_2\text{:GeO}_2$ glasses studied by irradiation with excimer laser light[J]. *Phys Rev B*, 1996, 53(18): R11921–R11923.
- [9] Hosono H, Abe Y, Kinser D L, et al. Nature and origin of the 5-eV band in $\text{SiO}_2\text{:GeO}_2$ glasses [J]. *Phys Rev B*, 1992, 46(18): 11445–11451.
- [10] Kazansky P G, Russel P S J. Thermally poled glass: frozen –in electric field or oriented dipoles [J]. *Opt Commun*, 1994, 110(5–6): 611–614.
- [11] Myrén N, Margulis W. Time evolution of frozen –in field during poling of fiber with alloy electrodes [J]. *Opt Express*, 2005, 13(9): 3438–3444.
- [12] Kashyap R, Veldhuis G J, Rogers D C, et al. Phase–matched second–harmonic generation by periodic poling of fused silica [J]. *Appl Phys Lett*, 1994, 64 (11): 1332–1334.
- [13] Mukherjee N, Myers R A, Brueck S R J. Dynamics of second–harmonic generation in fused silica [J]. *J Opt Soc Am B*, 1994, 11(4): 665–668.
- [14] Anderson D Z, Mizrahi V, Sipe J E. Model for second–harmonic generation in glass optical fibers based on asymmetric photoelectron emission from defect sites[J]. *Opt Lett*, 1991, 16(11): 796–798.
- [15] Li Fuquan, Lin Aoxiang, Wang Fang, et al. Theoretical analysis of optical poling and frequency doubling effect based on classical model[C]//SPIE, 2018,12: 2317011.