

文章编号: 0258-7025(2001)11-0985-03

高斯激光束闭孔 Z-扫描曲线特征研究

刘晓东^{1,2} 郭胜利² 侯蓝田¹ 王慧田² 闵乃本²

(¹ 燕山大学红外光纤与传感研究所 秦皇岛 066004, ² 南京大学固体微结构国家重点实验室 南京 210093)

摘要 从理论上研究了材料的非线性折射和非线性吸收同时存在时, 闭孔 Z-扫描透过率曲线的特征, 结果表明峰-谷或谷-峰结构特征取决于材料的三阶非线性极化率的虚部与实部的比值 ρ , 给出了高斯光束情况下决定峰-谷或谷-峰结构存在与否的精确临界值 ρ_c 和曲线的某些特征参量与 ρ 的关系以及本理论的适用范围。CS₂ 的 Z-扫描实验与理论结果符合得很好。

关键词 Z-扫描, 高斯光束, 非线性折射, 非线性吸收

中图分类号 TN 241 **文献标识码** A

Studies on Some Features of the Closed-aperture Z-scan Curves with Gaussian Laser Beam

LIU Xiao-dong^{1,2} GUO Sheng-li² HOU Lan-tian¹ WANG Hui-tian² MIN Nai-ben²

(¹ Institute of Infrared Optical Fibers and Sensors, Yanshan University, Qinhuangdao 066004)
(² National Lab of Solid State Microstructures, Nanjing University, Nanjing 210093)

Abstract Some features of the closed-aperture Z-scan transmittance curves of nonlinear optical materials with Gaussian beam have been studied theoretically when the nonlinear refraction and the nonlinear absorption coexist. It is found that the peak-valley or valley-peak structure depends on the ratio ρ of the real part to the imaginary part of the third-order nonlinear susceptibility. The exact critical value ρ_c , which determines whether the peak-valley or valley-peak structure exists or not, is given; the ρ dependences of some parameters of the transmittance curves are obtained numerically, and the scope of applications for the results is also discussed. The Z-scan experiment of CS₂ is consistent with the theoretical results obtained here.

Key words Z-scan, Gaussian beam, nonlinear refraction, nonlinear absorption

1 引言

透射 Z-扫描方法已经成为测量光学非线性材料的三阶非线性折射和吸收的大小和符号的重要的实验技术^[1-4]。当三阶非线性折射和吸收都比较显著时, 闭孔 Z-扫描实验获得的归一化透过率曲线通常具有一压缩了的峰和加深了的谷。所以对许多科研人员来说, 具有明显的峰-谷或谷-峰结构的实验曲线是证明材料拥有三阶非线性折射和吸收的令人信服的结果, 否则会被认为是不正确的或反常的。但是, 很多材料的非线性吸收效应比非线性折射效应更明显, 致使实验曲线形状发生实质性的改变, 即透过率曲线形状依赖于材料的非线性吸收系数与非

线性折射系数的相对比值。这里, 我们将材料的三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}$ 的虚部 $\chi_i^{(3)}$ (源于非线性吸收) 与实部 $\chi_r^{(3)}$ (源于非线性折射) 的比值定义为 ρ , 并研究了高斯激光束条件下闭孔 Z-扫描实验曲线与 ρ 的定量关系。发现存在一个并不很大的临界值 ρ_c , 它决定了峰-谷结构或谷-峰结构的存在与否。另外, 用数值解法得到的透过率曲线的某些形状参量与 ρ 的关系也是非常有用的。

2 理论

对于一个标准的在轴透射 Z-扫描实验, 高斯型入射激光束沿着 Z 方向传播, 并被一个凸透镜所聚焦。在小孔径、薄样品近似和低辐射强度极限下, 采用文献[3, 4]的结果将闭孔 Z-扫描实验所得到的归

一化透过率 T 表示为

$$T = 1 + \frac{4x}{(x^2 + 9)(x^2 + 1)} \Delta\Phi - \frac{2(x^2 + 3)}{(x^2 + 9)(x^2 + 1)} \Delta\Psi \quad (1)$$

$$\Delta\Phi = k\gamma I_0 L_{eff} \quad (2)$$

$$\Delta\Psi = \beta I_0 L_{eff} / 2 \quad (3)$$

这里, $\Delta\Phi$ 和 $\Delta\Psi$ 分别为源于非线性折射和吸收的非线性相移, $x = Z/Z_0$ 为样品离开焦点的无量纲距离, Z 为样品离开焦点的实际距离, Z_0 为激光束衍射长度(瑞利长度), k 为激光在真空中的波矢, γ 为非线性折射系数(强度), β 为非线性吸收系数(强度), I_0 为激光束在焦点处的功率密度, L_{eff} 为考虑线性衰减后样品的等效长度。

如果定义: $\rho = \frac{\chi_r^{(3)}}{\chi_r^{(1)}} = \frac{\beta}{2k\gamma} \quad (4)$

那么, 方程(1)可表示成

$$T = 1 - \frac{2(\rho x^2 - 2x + 3\rho)}{(x^2 + 9)(x^2 + 1)} \Delta\Phi \quad (5)$$

这一公式就是下面研究工作的基础。实际上, 从三阶非线性材料的自聚焦或自散焦和饱和或反饱和和吸收特性方面看 γ 和 β 均可正可负, 因而 ρ 也可正可负。本文只讨论常见的反饱和和吸收($\beta \geq 0$)型三阶非线性材料, 即 ρ 的符号等于 γ 和 $\Delta\Phi$ 的符号。

图 1 给出了 $\gamma > 0$, 因而 $\rho \geq 0$ 时的闭孔 Z-扫描透过率理论曲线, 其中已设定 $\Delta\Phi = 1$ 。从图中可以看出当 $\rho = \sqrt{3}/3$ 时曲线 c 的透过率峰相对于远场而言正好消失了, 而当 $\rho > \sqrt{3}/3$ 时曲线根本没有峰。

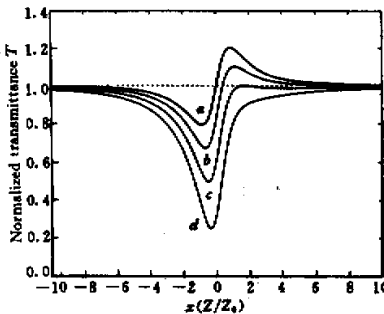


图 1 $\gamma > 0, \rho \geq 0$ 时的闭孔 Z-扫描透过率理论曲线 ($\Delta\Phi = 1$), 其中 a, b, c, d 分别对应 $\rho = 0, 0.2\sqrt{3}/3, 0.8$

Fig.1 Numerical result of normalized transmittance plotted as a function of $x(Z/Z_0)$ using the parameter $\Delta\Phi = 1$ ($\gamma > 0, \rho \geq 0$), and curves a, b, c, d correspond to $\rho = 0, 0.2\sqrt{3}/3, 0.8$, respectively

所以说 0.577 是闭孔 Z-扫描曲线不出现相对于远场透过率($T = 1$) 的峰临界值。其实, 这可以用解析法从(5)式精确地得到。

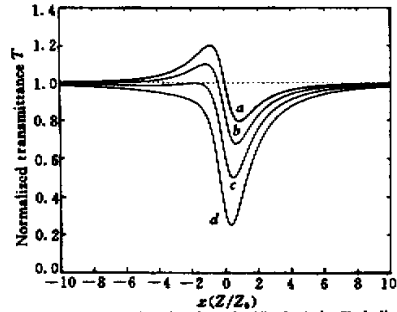


图 2 $\gamma < 0, \rho \leq 0$ 时的闭孔 Z-扫描透过率理论曲线 ($\Delta\Phi = -1$), 其中 a, b, c, d 分别对应 $\rho = 0, -0.2, -\sqrt{3}/3, -0.8$
Fig.2 Numerical result of normalized transmittance plotted as a function of $x(Z/Z_0)$ using the parameter $\Delta\Phi = -1$ ($\gamma < 0, \rho \leq 0$), and curves a, b, c, d correspond to $\rho = 0, -0.2, -\sqrt{3}/3, -0.8$, respectively

图 2 给出了 $\gamma < 0$, 因而 $\rho \leq 0$ 时的闭孔 Z-扫描透过率理论曲线, 其中设定了 $\Delta\Phi = -1$ 。该图完全类似于图 1, 但曲线刚好没有峰时 $\rho = -\sqrt{3}/3$ 。

从图 1 和图 2 中看出, $|\rho| = \sqrt{3}/3$ 可以被看作决定峰-谷结构或谷-峰结构存在与否的临界值 ρ_c , 因而我们得出结论: 在标准的高斯光束闭孔 Z-扫描实验中得到的曲线, 如果具有明显的峰-谷结构或谷-峰结构, 那么材料的 ρ 值就满足 $|\rho| < \sqrt{3}/3$, 否则 $|\rho| \geq \sqrt{3}/3$ 。该结论可以作为检验我们或其他研究者所做的实验数据处理的正确性的一个判据。

基于公式(3), 通过数值计算得到透过率曲线的峰-谷的位置间距 $\Delta Z_{P,V}$ 与 ρ 的近似关系

$$\Delta Z_{P,V} \cong 1.717(1 + 0.72\rho^2 + 0.47\rho^4) \quad (6)$$

其中, $-\sqrt{3}/3 < \rho < \sqrt{3}/3$, 且成立的精度是 $\pm 1\%$ 。 $\Delta Z_{P,V}$ 的最大值等于 $2.232Z_0$, 因而当人们用公式^[1]

$$\Delta Z_{P,V} \cong 1.717Z_0 \quad (7)$$

计算衍射长度 Z_0 时, 最大误差会达到 30%。准确地定出 Z_0 是非常必要的, 因为它是确定光强 I 因而也是确定 β 和 γ 的重要参数。

(8) 式给出了峰-谷透过率差 $\Delta T_{P,V}$ 与 ρ 的近似关系

$$\Delta T_{P,V} \cong 0.406(1 + 0.66\rho^2) |\Delta\Phi| \quad (8)$$

其中, $-\sqrt{3}/3 < \rho < \sqrt{3}/3$, 且成立的精度是 $\pm 7\%$ 。 $\Delta T_{P,V}$ 的最大值等于 0.487, 于是用公式^[1]

$$\Delta T_{RV} \cong 0.406 |\Delta\Phi| \quad (9)$$

计算 $\Delta\Phi$ 时最大误差会达到 22%。

3 实验

为了检验这些理论结果, 我们用非线性系数已知的二硫化碳(CS_2)进行了实验。实验用的光源为脉冲宽度 7 ns, 重复频率 10 Hz, 波长 532 nm 和束径约 5.5 mm 的调 Q Nd:YAG 激光器倍频输出。虽然标准的高斯型光束不是很容易得到, 但所用的激光束还是可以近似为高斯型的, 因而对这一结论仍然能进行很好的检验。实验时, 光束被分成两部分: 其一用作对入射功率的实时取样, 其二用焦距为 300 mm 的透镜聚焦并照射在 1 mm 厚的 CS_2 样品池上; 探测器为双通道 ADVANTEST-Q8221 型光功率计; 小孔直径调在 1.2 mm, 相应的线性透过率 $S = 0.09$ 。

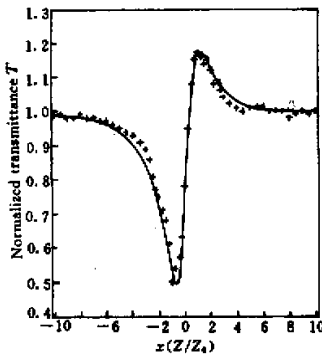


图3 CS_2 的闭孔 Z-扫描实验结果

Fig.3 Closed-aperture Z-scan data for CS_2

图3为实验的典型数据, 曲线拟合得到 $\rho = 0.231$, $\Delta\Phi = 1.626$, 根据其他实验条件, 计算得到 $\gamma = 3.2 \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{W}$, $\beta = 0.87 \times 10^{-12} \text{ m/W}$, 这比准确值分别大了约 7% 和 9%^[5], 此误差可能主要来源于本实验中的光束并非标准的高斯光束。但是, ρ 的实验值和准确值 0.227 相差非常小, 这说明光束形状的小偏差并未对获得 γ 和 β 的准确相对值有大的影响。透过率数据的峰-谷的位置间距 $\Delta z_{RV} = 2.0 Z_0$, 峰-谷透过率差 $\Delta T_{RV} = 0.685$, 分别与(6)式和(8)式符合得较好。

另外, 有很多文献报道了具有类似于图1(b)和图2(b)的曲线^[4-6], 这些数据分析结果, 与我们的理论分析符合得非常好。

4 讨论

当然, 上面得到的理论结果有它们的适用范围。为了讨论问题方便, 假定 $\gamma > 0$, 那么 $\rho > 0$, $\Delta\Phi > 0$ 。从方程(5)得到 $\Delta\Phi$ 的系数的最小值可近似地取为 $-\left(\frac{2}{3}\rho + 0.2\right)$, 从物理上讲, 方程(1)和(9)中的透过率必须大于零, 因而

$$\Delta\Phi < \frac{3}{2(\rho + 0.3)} \quad (10)$$

$$\text{或} \quad \rho < \frac{3}{2} \left(\frac{1}{\Delta\Phi} - 0.2 \right) \quad (11)$$

(10)式是对实验条件的严格限制, 例如测量 $\rho \approx 0.7$ 左右的样品, $\Delta\Phi$ 应小于 1.5, 这与薄样品近似和低强度极限要求是一致的。

本文认为, 一般不必对每种样品都做闭孔和开孔 Z-扫描实验, 因为单从闭孔 Z-扫描实验就可以同时获得非线性折射和非线性吸收系数, 不过开孔 Z-扫描实验可以用来验证直接用公式(5)拟合闭孔 Z-扫描实验数据所得的结果。

参考文献

- 1 M. Sheik-Bahae, A. A. Said, T. H. Wei *et al.*. Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam. *IEEE. J. Quantum Electron.*, 1990, 26(4):760~769
- 2 W. Zhao, P. Palffy-Muhoray. Z-scan measurement of $\chi^{(3)}$ using top-hat beams. *Appl. Phys. Lett.*, 1994, 65(6): 673~675
- 3 P. B. Chapple, J. Staromlynska, J. A. Hermann *et al.*. Single-beam Z-scan measurement techniques and analysis. *J. Nonlin. Opt. Phys. Mat.*, 1997, 6(3):251~293
- 4 M. Yin, H. P. Li, S. H. Tang *et al.*. Determination of nonlinear absorption and refraction by single Z-scan method. *Appl. Phys. B*, 2000, 70:587~591
- 5 J. G. Breitzer, D. D. Dlott, L. K. Iwaki *et al.*. Third-order nonlinear optical properties of sulfur-rich compounds. *J. Phys. Chem. A*, 1999, 103(35):6930~6937
- 6 Baolong Yu, Congshan Zhu, Fuxi Gan *et al.*. Nonlinear optical properties of SnO_2 nanoparticles studied by Z-scan technique. *Acta Optica Sinica (光学学报)*, 1997, 17(4): 423~429 (in Chinese)
- 7 Haiping Xia, Sixun Wu, Baolong Yu *et al.*. Measurement of the nonlinearities of C60 doped ormosil with Z-scan method. *Acta Optica Sinica (光学学报)*, 1998, 18(2): 204~207 (in Chinese)
- 8 Zhijian Liang, Fuxi Gan, Baolong Yu *et al.*. Nonlinear optical properties of phthalocyanine-doped organically modified sol-gels. *Chinese J. Lasers (中国激光)*, 2000, A27(5):419~422 (in Chinese)
- 9 G. Fang, Y. Song, Y. X. Wang *et al.*. Z-scan excited-state nonlinear materials with reverse saturable absorption. *Opt. Comm.*, 2000, 183(5-6):523~527