

透明和吸收介质非线性参数 n_2 , $\chi^{(3)}$ 及其时间响应特性研究

邱佩华, 庄大奎, 王文耀, 立群, 刘华, 王之江

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

沈玉全

(中国科学院感光化学研究所, 北京 100101)

提 要

对透明和吸收介质的简并四波混频理论作了处理, 实验上给出了掺半导体玻璃, 无机和有机材料的三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}$ 和非线性折射率 n_2 的值, 而且确定了非线性参数 $\chi^{(3)}$ 的时间响应特性, 实验装置的时间分辨率为 5ps.

关键词 非线性参数, 吸收介质, 简并四波混频.

1 导 论

介质的三阶极化率 $\chi^{(3)}$ 是非线性光学中很重要的物理量. 近些年来, 围绕着光通讯和光计算的研究, 人们正在研制和探索具有非线性材料, 获得精确的三阶极化率 $\chi^{(3)}$ (或非线性折射率 n_2) 的方法很多, 例如干涉法^[1,2]; Z 扫描法^[3,4]; 近简并三波混频法^[5]; 光束畸变法^[6]和三次谐波法^[7]等. 而简并四波混频法^[8,9,10]的最大优点是: 它不但能给出介质的非线性参数 $\chi^{(3)}$ 和 n_2 , 同时能给出介质的快速时间响应特性.

设作用在非线性吸收介质的光场为^[8,9]

$$\left. \begin{aligned} E_j(r, t) &= -A_j(r_j) \exp[i(\omega t - k_j r)] + c. c. \\ k_j &= k_j [k_j + i(\alpha/2)], \quad k_j = \eta\omega/c \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

式中 r_j 为沿波矢 k_j 方向上的长度, k_j 为 E_j 传播方向上的单位矢量, α 为介质对激发频率 ω 光束的强度吸收系数, η 为介质线性折射率的实部, c 为真空中的光速, 四波混频光线配置如图 1 所示.

A_1 和 A_2 为两个传播方向相反的强泵浦波. A_3 为物波 (或称探测波), 物波与泵浦波成一小的角度. 这三个波在非线性介质中互相作用, 引起非线性极化 P^{NL} . 从而产生第四个共轭反射波 (或叫信号波) A_4 , A_4 的传播方向与 A_3 相反, 在下面的讨论中

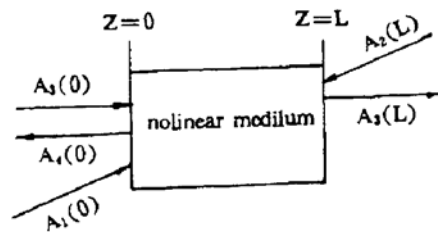


Fig. 1 Degenerate four-wave mixing geometry

假设: 泵浦光强 I_1 和 I_2 在非线性介质中除被介质吸收之外, 未被抽空, 即除吸收之外的损耗可

忽略不计;且 $I_1 \cong I_2$, 同时探测光强 $I_3 \ll I_1$. 非线性介质是各向同性的, 仅存在于 $0 < z < L$ 空间. 为了简单起见, 设所有光波都是线偏振的, 且偏振方向是互相平行的, 于是便可导出非线性介质的三阶极化率的表达式^[9]:

$$\chi^{(3)} = \frac{2\lambda n^2 |\Gamma|}{3\pi c \mu_0} \cdot \frac{1}{\sqrt{I_1 I_2}} \exp\left(\frac{1}{2} \alpha L\right) \quad (2)$$

式中 λ 为激光波长, n 为介质的线性折射率, C 为真空中光速, μ 为磁导率, I_1 和 I_2 为前向和后向泵浦光强, α 为材料的吸收系数, L 为样品的厚度, Γ 为耦合波方程的耦合常数, 它可以由简并四波混频的反射率 $R = I_4/I_3$ 求得^[9]. 对于本文的实验情况下, 耦合常数 Γ 与反射率 R 的关系式可写成如下形式:

$$R = \left| \frac{A_4(O)}{A_3^*(O)} \right|^2 = \left| \frac{2\Gamma \sin(\frac{1}{2}HL)}{H \cos(\frac{1}{2}HL) + \alpha \sin(\frac{1}{2}HL)} \right|^2 \quad (3)$$

$$H = (4|\Gamma|^2 - \alpha^2)^{1/2}$$

对于透明介质 $\alpha = 0$, (3)式可以简化成:

$$R = \text{tg}^2(|\Gamma|L) \quad (4)$$

此式与 Yariv^[8] 导出的透明介质的结果完全一致, 实验上通过测量四波混频各光束的光强, 可以从(2)式和(3)式求出 $\chi^{(3)}$ 的值, 对于各向同性介质, 非线性折射率 n_2 与 $\chi^{(3)}$ 的关系为^[11]

$$n_2 = \frac{12\pi}{n} \chi^{(3)} \quad (5)$$

其中 n 为样品的线性折射率的实部.

2 实验和结果讨论

以碰撞锁模 YAG 激光器产生的 8 ps 红外脉冲, 经 KDP 晶体倍频后输出的绿光脉冲(波长 $\lambda = 0.53 \mu\text{m}$, 脉宽 $t_p = 6$ ps)作为简并四波混频的光源, 实验装置示意图如图 2 所示. 图 2 中 AP 为光阑, BS 为分束器, M 为全反射镜, OD 为光延迟线, PD 为光电接收器, F 为中性滤光片, S 为样品, A_1, A_2, A_3 和 A_4 分别为前向, 后向, 探测和信号光束, 皮秒简并四波混频和纳秒简并四波混频相比, 调整精度要求高, 在样品 S 处, 不但要求 A_1, A_2 和 A_3 三光束在空间上要重叠, 而且要求时间上精确同步, 三光束只要有一光束在光程上与另两束光相差几毫米, 四波混频信号就会急剧的变小, 甚至消失, 为了确保调整的高精度和皮秒时间分辨实验, 在探测光束和后面泵浦光束的光路中分别放置一个光延迟线 OD_1 和 OD_2 , 由于对整个装置先做好了标定, 当 PD_1 和 PD_2 监测到入射光束总强度和信号光强后, 便可推知 I_1, I_2, I_3 和 I_4 . 实验中前向泵浦光强 I_1 大约等于后向泵浦光强 I_2 , 即 $I_1 \cong I_2$, 而探测光束强度 $I_3 \ll I_1$ 或 I_2 , 即 $I_3 \cong 0.1I_1$, 信号光强 I_4 的大小, 则因样品而异. 实验中对掺半导体微晶 ($\text{CdS}, \text{Se}_{1-x}$) 玻璃和大量新的有机分子材料进行了研究, 本文将对 CS_2 测得的

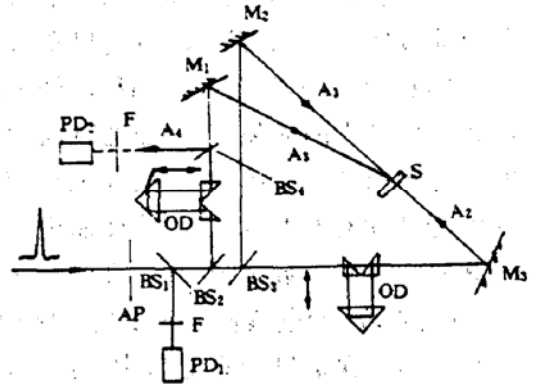


Fig. 2 Experimental set-up of picosecond degenerate four-wave mixing

值作为对其它样品进行相对标定*。由于 (CdS_xSe_{1-x}) 微晶是均匀的掺杂在硼酸盐玻璃中, 44#, 46#, 48# 和 74-1# 的分子也是均匀的掺杂在基片中, 这样全部样品均可视为各向同性的, 于是可利用导出的公式给出 $\chi^{(3)}$, 当已知三阶极化率 $\chi^{(3)}$ 后, 便可从(4)式获得非线性折射率 n_2 的值, 实验中获得的部分结果列于表 1 中

Table 1 Data of the experimental results

					$\chi^{(3)}$ (esu)	n_2 (esu)	t_f (ps)	t_p
1	$CdS_{0.85}Se_{0.15}$	2	819.95	2.88×10^{-1}	4.7×10^{-8}	1.17×10^{-6}		8 ns
1	$CdS_{0.85}Se_{0.15}$	2	819.95	5.31×10^{-4}	5.3×10^{-11}	1.65×10^{-9}	30	6 ps
2	$CdS_{0.9}Se_{0.1}$	2	69.63	2.06×10^{-1}	8.936×10^{-9}	2.23×10^{-7}		8 ns
2	$CdS_{0.9}Se_{0.1}$	2	69.63	4.52×10^{-4}	1.05×10^{-11}	2.47×10^{-10}	30	6 ps
3	CS_2	2	0	1.939×10^{-4}	5.14×10^{-13}	1.17×10^{-11}		6 ps
4	44#	0.002	4.33×10^3	9.1×10^{-5}	1.13×10^{-9}	2.82×10^{-8}	48	6 ps
5	46#	0.002	1.97×10^4	1×10^{-4}	1.89×10^{-8}	4.73×10^{-7}		6 ps
6	48#	0.002	4.34×10^2	7.69×10^{-5}	4.73×10^{-10}	1.18×10^{-8}	30	6 ps
7	74-1#	0.002	1.87×10^4	1.08×10^{-4}	1.52×10^{-8}	3.79×10^{-7}	32	6 ps

表 1 中 t_f 为前向泵浦光和后向泵浦光在介质中干涉形成的瞬态光栅寿命, 亦可称为材料的超快响应时间寿命, 表 1 中 44#, 46#, 48# 和 74-1# 样品的分子结构式示于图 3。

在光通讯光计算实际应用中, 要制成好的光电子器件, 不但要求材料具有大的 $\chi^{(3)}$ 值, 而且要求材料的响应时间要快, 即 t_f 要短, 材料在光场作用下, 产生 $\chi^{(3)}$ 的机制很多, 如电子云畸变, 电子振动, 电子跃迁, 分子取向, 电致伸缩, 分子天平动和热效应等。各种机制的响应时间是不尽相同的。例如热过程是一个慢过程, 其响应时间在 10^{-6} 到 $10^{-2}S$ 之间, 分子取向弛豫时间则与分子的质量, 尺寸的大小, 温度和溶液的粘度诸因素有关, 而电子云畸变, 电子振动和电子跃迁则是相当快的过程。一般在 10^{-13} 到 $10^{-15}S$ 之间。而电致伸缩过程的响应时间在 $10^{-8}S$ 左右。所以利用不同时间分辨的实验装置, 可以对产生 $\chi^{(3)}$ 和 n_2 的不同机制在时间上进行区分, 如果能改变激发光的波长, 就可以获得非线性参数 $\chi^{(3)}$, n_2 随波长变化的信息。

实验中, I_1 、 I_2 和 I_3 在空间和时间上都完全同步时, 产生的四波混频信号 I_4 最强。此时, 保持 I_1 和 I_3 两光束的光强不变, 而通过前后调整光延迟线 OD_1 改变 I_2 相对 I_1 和 I_3 的光程。所测出的时间分辨曲线示于图 4 中。每个实验点是五个或十个数据的平均之值。实验上, 利用 8 ns 和 6 ps 的光脉冲对 CdS_xSe_{1-x} 玻璃样品进行了研究。所获得的 $\chi^{(3)}$ 和 n_2 值, 在用纳秒脉冲时要比皮秒脉冲时大两个数量级。其关键原因就是当利用皮秒脉冲时, 电致伸缩对非线性参数 $\chi^{(3)}$ 和 n_2 没有贡献。因为电致伸缩对于皮秒脉冲来不及响应。而它对 8 ns 的脉冲是可以响应的。当探测脉冲与前向泵浦脉冲在样品中干涉时, 产生一个粗光栅。后向泵浦脉冲在粗光栅下散射, 产生一信号光 $I_4(C)$ 。同样探测光束与后向泵浦光束干涉, 在样品中产生一个细光栅。前向泵浦光束在细光栅上散射, 产生 $I_4(F)$ 。因此总的共轭光信号 I_4 可写成

$$I_4 = I_4(C) + I_4(F) \quad (6)$$

在皮秒简并四波混频中, 由于后向泵浦光束 I_2 相对于 I_1 和 I_3 有着时间延迟 t_0 这样 $I_4(F)$ 对 I_4 的贡献大大小于 $I_4(C)$, 即 $I_4(C) \gg I_4(F)$ 。所以, 在时间分辨实验中可将 $I_4(F)$ 忽略不计。认定 $I_4 = I_4(C)$ 。表中列出了图 4 中给出的各种样品的时间分辨率: 30 ps ($CdSSe$); 48 ps (44# 样

* 由于 CS_2 研究的人多, 国际上认为 CS_2 是标准样品。

品); 30 ps(48# 样品); 32 ps(74-1# 样品). 这些数据表明, 对三阶极化率 $\chi^{(3)}$ 有贡献的过程是极快的电子过程. 本实验采用的脉冲宽度为 6 ps, 装置的时间分辨率达 5 ps.

表中样品 CS_2 ^[1,2] 所获得的有关数据与国际上报道完全一致, 这说明本文实验结果是可靠的.

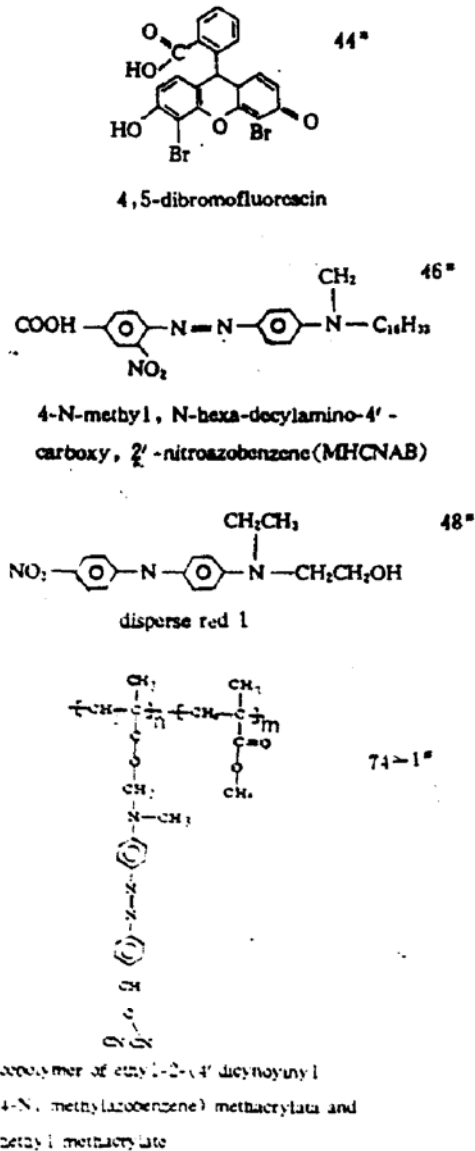


Fig. 3 Molecular structure of 44#, 46#, 48# and 74-1# samples

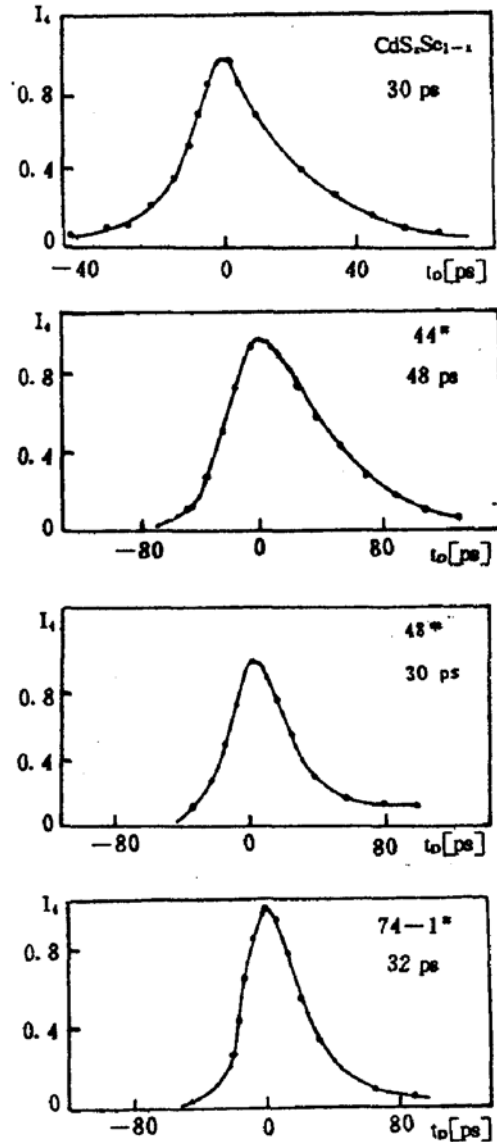


Fig. 4 Time-resolution curve of semiconductor doped glass and new organic molecule samples

参 考 文 献

- [1] M. J. Weber, D. Milam, W. L. Smith, Nonlinear refractive index of glasses and crystals. *Optical Engineering*, 1987, 17, 463~469
- [2] M. J. Moran, C. Y. She, R. L. Carman, Interferometric measurements of nonlinear refractive-index coefficient relative to CS_2 in laser-system-related materials. *IEEE J. Quantum Electron*, 1975, QE-11, 259~263

- [3] M. Sheik-bahae, A. A. Said, T. H. Wei *et al.*, Z-scan: a simple and sensitive technique for nonlinear reflection measurement. *Proc. SPIE, Nonlinear Optical Properties of Materials*, 1989, **1148**: 41~52
- [4] M. Sheik-bahae, A. A. Said, E. W. Van Stryland, High sensitivity single beam n_2 measurement. *Optics Letters*, 1989, **14**(17): 955~957
- [5] R. Adair, L. L. Chase, S. A. Payne, Nonlinear refractive index measurement of glasses using three-wave frequency mixing. *J. Opt. Soc. Am.*, 1987, **B4**: 875~881
- [6] W. E. Williams, M. J. Soileau, E. M. Van Stryland, Optical switching and n_2 measurements in CS_2 . *Opt. Comm.*, 1984, **50**: 256~260
- [7] M. Thalhammer, A. Penzkofer, Measurement of third-order nonlinear susceptibilities by non-phase matched third harmonic generation. *Appl. Phys.*, 1983, **B32**: 137~143.
- [8] A. Yariv, D. M. Pepper, Amplified reflection phase conjugation and oscillation in degenerate four-wave mixing. *Opt. Lett.*, 1977, **1**(1): 16
- [9] R. G. Caro, M. C. Gower, Phase conjugation by degenerate four-wave mixing in absorbing media. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1982, **QE-18**(9): 1376
- [10] R. K. Jain, R. C. Lind, Degenerate four-wave mixing in semiconductor doped glasses. *J. Opt. Soc. Am.*, 1983, **73**(5): 647
- [11] L. L. Chase, A. Payne, Nonlinear refractive index of optical crystals. *Physical Review B*, 1989, **39**(5): 15
- [12] P. P. Hó, R. R. Alfano, Optical Kerr effects in liquids. *Physical Review A*, 1979, **20**(5): 2170

The study of nonlinear parameters n_2 , $\chi^{(3)}$ and time response properties of transparent and absorbing media

QIU Peihua ZHUANG Dakui WANG Wenyao LI Qun
LIU Hua WANG Zhijiang

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai 201800)

SHEN Yuquan

(Institute of Photographic Chemistry, Academia Sinica, Beijing 100101)

(Received 12 June 1992; revised 22 September 1992)

Abstract

This paper deals with the theory of degenerate four-wave mixing (DFWM) in transparent and absorbing media. The values of third order nonlinear susceptibilities $\chi^{(3)}$ and nonlinear refractive index n_2 in semiconductor doped glass, inorganic and organic media were given experimentally. The time response properties of the nonlinear susceptibility $\chi^{(3)}$ was also determined. Time resolution of the experimental device is 5 ps.

Key words nonlinear parameter, absorbing material, degenerate four-wave mixing (DFWM).