

文章编号: 0253-2239(2005)04-515-5

## 较高阶非线性抽运-探测过程中的空间效应\*

林 洁<sup>1,2</sup> 程 静<sup>3</sup> 余向阳<sup>2</sup> 周建英<sup>2</sup>

1 广东工业大学信息工程学院, 广州 510640  
2 中山大学光电材料与技术国家重点实验室, 广州 510275  
3 中国科学院上海光学精密机械研究所量子光学实验室, 上海 201800

**摘要:** 在飞秒抽运-探测光谱技术中, 空间分辨的探测光信号反映了在不同空间位置的材料的非线性效应。当抽运光强度增大时, 探测光信号中会出现明显的高阶特别是五阶非线性效应。利用劈裂算子方法直接解决了一维非线性传播方程的问题。在数值模拟中, 研究了在不同抽运强度和位置下的抽运-探测过程中的五阶非线性效应。在足够高的抽运场下, 探测信号出现清晰的振荡, 显示了三阶和五阶非线性效应之间的干涉。当空间位置离抽运场中心足够远时, 五阶比三阶非线性效应的衰减快得多, 对其物理机制和趋势进行了定性的讨论。

**关键词:** 非线性光学; 抽运-探测; 飞秒脉冲; 五阶非线性; 数值模拟

中图分类号: O437 文献标识码: A

## Spatial Effects in the Pump-Probe Process with Higher Order Nonlinearity

Lin Jie<sup>1,2</sup> Cheng Jing<sup>3</sup> Yu Xiangyang<sup>2</sup> Zhou Jianying<sup>2</sup>

1 Faculty of Information Engineering, Guangdong University of Technology, Guangzhou 510640  
2 The State Key Laboratory of Optoelectronic Materials and Technologies, Sun Yat-sen University, Guangzhou 510275  
3 Laboratory of Quantum Optics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800

**Abstract:** In femtosecond pump-probe spectroscopy, spatial resolved probe signal reflects the nonlinear effects of the sample in different spatial positions. However, as the pump intensity increases, high order, especially fifth-order nonlinear effects will appear in the probe signal. The split-step method is used to directly solve the nonlinear propagation equation with one transverse dimension. In the numerical simulation, the effects of fifth-order nonlinearity in pump probe process are studied for different pump intensities and spatial positions. For sufficient intense pump field, the probe signal show distinct interference between the third- and fifth-order nonlinear polarization. Clearly oscillation has been observed in the signal. At the spatial position far away from the center of the pump field, the fifth-order contribution of the probe decays much faster than the third-order contribution. The physical mechanism and intention are discussed qualitatively.

**Key words:** nonlinear optics; pump-probe; femtosecond pulse; fifth-order nonlinearity; numerical simulation

### 1 引 言

在非线性光学中, 由三阶非线性效应所引起的各种物理现象, 已得到广泛的研究<sup>[1]</sup>。其中三阶非线性极化率是反映材料非线性效应的一个主要参量, 人们已经发展了几种有效测量三阶非线性极化率的方法, 如 Z-扫描<sup>[2]</sup>, 四波混合<sup>[3]</sup>等。抽运-探测技术是其中

灵敏而简单的实验方法, 已得到广泛的应用<sup>[4~7]</sup>。

已知在各向同性的物质中, 极化强度与电场强度有非线性的关系, 当光强增大时, 五阶甚至更高阶的非线性效应就会变得明显而不得不加以考虑。但是, 到目前为止, 对包含光场空间分布的较高阶非线性效应的认识和报道比较少<sup>[8]</sup>。2001年, Ekvall

\* 国家自然科学基金(19974078)、国家重点基础研究专项经费(G1999075200)、国家 863 青年基金和广东工业大学重点学科基金(XZ200102)资助课题。

作者简介: 林 洁(1977~), 女, 广东工业大学信息工程学院助教, 主要从事信息光子学方面的研究。

E-mail: dedelam\_gzb@21cn.net

收稿日期: 2004-03-24; 收到修改稿日期: 2004-07-24

等<sup>[9]</sup>利用抽运-探测技术对紫外级熔融二氧化硅(UV-grade fused silica)的三阶以及五阶非线性效应进行测量,并通过对实验结果进行理论模拟得到五阶非线性极化率的近似值。在抽运-探测典型的实验装置中<sup>[10]</sup>,激发脉冲经过一个迈克耳孙干涉仪后,被分为相对延时时间为 $\tau$ 的两个平行的脉冲,其相对延时时间可由迈克耳孙干涉仪的延时线控制。两束平行光脉冲经过一个透镜后聚焦在样品上。

但是,我们注意到,无论是测量三阶还是五阶非线性效应,理论分析都是基于入射光为平面波的假设。实际上,光场是有一定空间分布的,例如激光器的基模,它的输出是高斯型的。在抽运-探测技术中,由抽运光诱导介质极化而产生的感应探测光场的空间分布,与原始入射的探测光场的空间分布是不相同的,这两个光场在远场的信号会发生相互干涉,从而使抽运-探测信号在不同空间位置有不同的形状。这样的一种和光场空间分布有关的抽运-探测信号是不能用过去的平面波近似来解释的。

为了解决上述问题,我们测量了半导体磷化镓(GaP)材料的三阶非线性极化率,并研究了抽运-探

测过程中所产生的空间效应,提出了时-空分辨抽运-探测技术测量物质非线性折射率的方法<sup>[10]</sup>。在这项工作的理论分析中用了比较多的近似,其方法不能用来研究五阶非线性效应,因此我们将用数值模拟的方法来对五阶非线性效应进行分析。

在本文中,我们将给出一个一般的模型来研究抽运-探测过程中的高阶非线性效应。模型中只用了慢变振幅近似,能够完整地包括光场的空间分布,空间抽运-探测技术中的高阶非线性效应可以进行详尽的数值模拟,并对其定性解释。

## 2 理论分析

对各向同性的材料,平面波近似的非线性麦克斯韦波动方程为

$$\nabla^2 E - \frac{1}{v^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2}, \quad (1)$$

其中光场 $E$ 为抽运和探测脉冲之和,令非线性极化强度 $P_{NL}$ 的形式只取到五阶:

$$P_{NL} = \epsilon_0 [\chi^{(3)} E^3 + \chi^{(5)} E^5], \quad (2)$$

同时,光场 $E$ 为正频和负频分量的叠加,即

$$E = \frac{1}{2} [\Phi \exp(-j\omega t + ikz) + \Phi^* \exp(j\omega t - ikz)], \quad (3)$$

为计算方便,并不失一般性,只考虑一维横向空间分量( $x$ )。利用慢变振幅近似,经过一些推导后可得到正频光场所满足的方程为

$$i \left( \partial_z + \frac{1}{v} \partial_t \right) \Phi + \frac{1}{2k} \partial_{xx} \Phi = -\eta |\Phi|^2 \Phi - \epsilon |\Phi|^4 \Phi, \quad (4)$$

其中 $\eta = \frac{3}{8} \frac{\omega}{cn_0} \chi^{(3)}$ ,由于非线性折射率 $n_2 = \frac{3}{8n_0} \text{Re}[\chi^{(3)}]$ ,双光子吸收系数 $\beta = \frac{3\omega}{8cn_0} \text{Im}[\chi^{(3)}]$ ,则 $\eta = \frac{\omega}{c} n_2 + i\beta = \frac{\omega}{c} n_2 (1 + i\gamma)$ , $\gamma = \frac{\beta}{\omega n_2}$ 反映了双光子吸收相对于非线性折射率的大小; $\epsilon = \frac{5}{16} \frac{\omega}{cn_0} \chi^{(5)}$ ;  $v$ 是相速度; $n_0$ 是介质的线性折射率; $k = \frac{\omega}{v}$ 是波数; $\omega$ 是载波频率。

通常实验中入射波的形状是比较规则的, $\Phi \approx A_0 \exp\left(-\frac{t^2}{\tau^2}\right) \exp\left(\frac{x^2}{R^2}\right)$ , $A_0$ 代表了入射波的特征幅度(如最大值), $\tau$ 决定了入射波的特征时间(如脉宽), $R$ 是入射波的特征空间大小(如光斑尺寸)。通过引入变量代换

$$z' = \frac{z}{v\tau}, \quad x' = \frac{x}{R}, \quad t' = \frac{t}{\tau}, \quad F = \frac{2R^2 k}{v\tau}, \quad u = \sqrt{\frac{\omega n_2 (A_0)^2 v\tau}{c}} \frac{\Phi}{A_0}, \quad \Gamma = \frac{5}{16} \frac{c}{\omega n_0 (n_2)^2 v\tau} \chi^{(5)},$$

可以把传播方程写成归一化的形式:

$$i \frac{\partial u}{\partial z'} + i \frac{\partial u}{\partial t'} + \frac{1}{F} \frac{\partial^2 u}{\partial x'^2} = -(1 + i\gamma) |u|^2 u - \Gamma |u|^4 u, \quad (5)$$

其边界条件是

$$u(t', x', z' = 0) = \{V_{pu} \exp[-(t' - t'_0)^2] + V_{pr} \exp[-(t' - t'_0 - t'_d)^2] \exp[-i\Delta(t' - t'_0 - t'_d)]\} \exp(-x'^2), \quad (6)$$

其中  $V_{pu} = \sqrt{\frac{\omega n_2 (A_0)^2 v\tau}{c}}$ ,  $V_{pr} = \sqrt{\frac{\omega n_2 (A_0)^2 v\tau}{c}} \frac{A_{pr}}{A_0}$ ,  $\Delta = \delta\tau = (\omega - \omega_{pr})\tau$ ,

方便起见,下面我们略去“'”号,对(5)式作整理得

$$\frac{\partial u}{\partial t} = (L + V)u = \left(-\frac{\partial}{\partial t} + \frac{i}{F} \frac{\partial^2}{\partial x^2}\right)u + [i(1 + i\gamma)|u|^2 + i\Gamma|u|^4]u, \quad (7)$$

其中  $L$  和  $V$  分别表示差分和非线性微分算符,(7)式类似于非线性薛定谔方程,可用下一节介绍的劈裂算子方法作数值解。算出样品后表面  $z=L$  处的  $u_L(t, x)$ ,对其做傅里叶变换得到  $\tilde{U}_L(\omega, x)$ ,在  $\omega=\delta$  处的值可作为欲测量的探测信号,即

$$T(x, t_d) \propto |\tilde{U}_L(\delta, x)|^2, \quad (8)$$

其中  $T(x, t_d)$  表示在样品后表面  $L$  处的透射率,  $x$  为一维横向位置,  $t_d$  为延时。

### 3 劈裂算子方法简介

一般情况下,非线性偏微分方程不适合于解析求解,因而为阐明介质中的非线性效应,通常需作数值处理。已广泛地应用到解非线性色散介质的脉冲传输问题的一种方法是劈裂算子方法。这里简单介绍劈裂算子方法的基本原理<sup>[11]</sup>。对以下方程:

$$\frac{\partial A}{\partial z} = (D + N)A, \quad (9)$$

式中  $D$  是差分算符,它表示线性介质的色散和吸收; $N$  是非线性算符,它决定了脉冲传输过程中介质的非线性效应。一般来说,沿脉冲的传播方向,色散和非线性是同时作用的,劈裂算子方法通过假定在传播过程中,光场每通过一小段距离  $h$ ,色散和非线性效应可分别作用,得到近似结果。以对称分步傅里叶方法为例,其数学表示为

$$A(z+h, T) \approx \exp\left(\frac{h}{2}D\right) \exp\left[\int_z^{z+h} N(z')dz'\right] \times \exp\left(\frac{h}{2}D\right)A(z, T), \quad (10)$$

按规定,指数操作  $\exp(hD)$  在傅里叶域内进行

$$\exp(hD)B(z, T) = \{F^{-1} \exp[hD(i\omega)]\mathcal{F}\}B(z, T), \quad (11)$$

这里的  $\mathcal{F}$  表示傅里叶运算,  $D(i\omega)$  从方程(9)通过  $i\omega$  代替微分算符得到,  $\omega$  为傅里叶域中的频率。因为  $D(i\omega)$  恰好是傅里叶空间中的一个数,故可直接计算方程(11)的值。使用快速傅里叶算法使得方程(11)的数值算法相对较快。正是这个原因,劈裂算子方法较大多数有限差分法快一、二个数量级。更详细的讨论见文献<sup>[11]</sup>。

(7) 式中,  $\left(-\frac{\partial}{\partial t} + \frac{i}{F} \frac{\partial^2}{\partial x^2}\right)u$  代表线性部分,

$[i(1 + i\gamma)|u|^2 + i\Gamma|u|^4]u$  代表非线性部分。在计算过程中,首先设定精度和初始条件,然后进行迭代,使计算结果达到精度要求,从而得到正确的数值结果。劈裂算子方法已被广泛用于光纤中的光传输<sup>[11]</sup>。最近, Haus 等<sup>[12]</sup> 曾经利用这种方法研究了周期结构中光脉冲的空时传播不稳定性。

### 4 结果分析及讨论

以文献<sup>[9]</sup>中的数据为例,在该文参量下,长  $100 \mu\text{m}$  的材料将被归一化为长度  $L \approx \pi$ , 而  $R = 10 \mu\text{m}$  的横向光斑将导致  $F \approx 100$ , 若设抽运光强  $I_{\text{pu}} \approx 10^{11} \text{ W/cm}^2$ , 即  $A_{\text{pu}} = 6 \times 10^8 \text{ V/m}$ , 则归一化的  $V_{\text{pu}} \approx 0.12$ , 五阶非线性极化率归一化后得到  $\Gamma \approx (-13 + i5)$ 。在文献<sup>[9]</sup>中的抽运-探测失谐非常大,接近  $1/8$  波长,这么大的失谐在计算中将要求时间采样非常高。在实际计算中,假设失谐为  $7 \sim 8 \text{ nm}$ , 使得归一化的失谐  $\Delta = 15$ 。在计算程序中,选用了  $F = 400$  (相当于  $R = 20 \mu\text{m}$  的光斑大小), 材料长度  $L = 3\pi$  (相当于  $300 \mu\text{m}$  的实际长度), 探测光幅度固定为  $A_{\text{pr}} = 0.02$ , 相当于  $2.7 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$  的强度。计算了  $A_{\text{pu}}$  分别为  $0.10, 0.30, 0.50, 0.70$  的一维横向空间 ( $x$ ) 分辨的探测光信号 (见图 1)。图 1 中横坐标为抽运和探测之间的延时,从  $-2.9$  到  $3.0$  共取了 60 个点,即每隔  $0.1$  个归一化时间取一个延时。纵坐标是相对探测光强度,从上到下分布的曲线是位置从  $x=0$  (光场中心) 向  $x$  增大的空间分辨模拟结果,共计算了 128 个结果。

根据过去的抽运-探测实验结果显示,如果只有三阶效应,在空间的同一位置,随着抽运光场的强度增加,所对应的曲线的下凹幅度应该不断加大。但实际图形中[图 1(c)、图 1(d)],随着测量点偏离中心,即使抽运光强度增大,所对应的曲线出现了向上凸起,这就说明了五阶非线性效应的出现。同时,我们观察到,当探测光与抽运光相差较大时,信号的振荡加剧。这种现象以前从来没有报道过,对此,我们可给出以下定性的解释。由于五阶非线性极化率比三阶非线性极化率小很多,当抽运光强不大时,(7)式等号右边第三项(五阶部分)和第二项(三阶部分)相比可忽略。但是当抽运光强增大到一定值时,(7)式等号右边两项大小可比,两者在传播过程中发

生干涉,这就是产生振荡的原因。所以,抽运-探测过程中的振荡现象和抽运光的幅度有很大关系,用通常的抽运-探测耦合方程不能解释。另外,在图 1 中,随着空间位置由中心光场向边缘移动,探测光信号也发生显著的空间效应。

我们也计算了失谐量为正负一个单位时所对应

的测量结果,它们的趋势基本上与图 1 相同,二者相互之间成反对称。图 2 是中心光场位置的探测光信号,它非常清晰地展示了三阶和五阶非线性效应随着抽运强度增大各自变化和相互竞争的过程,在只有三阶效应时,随着抽运光强加大,信号的凹陷深度不断增加。

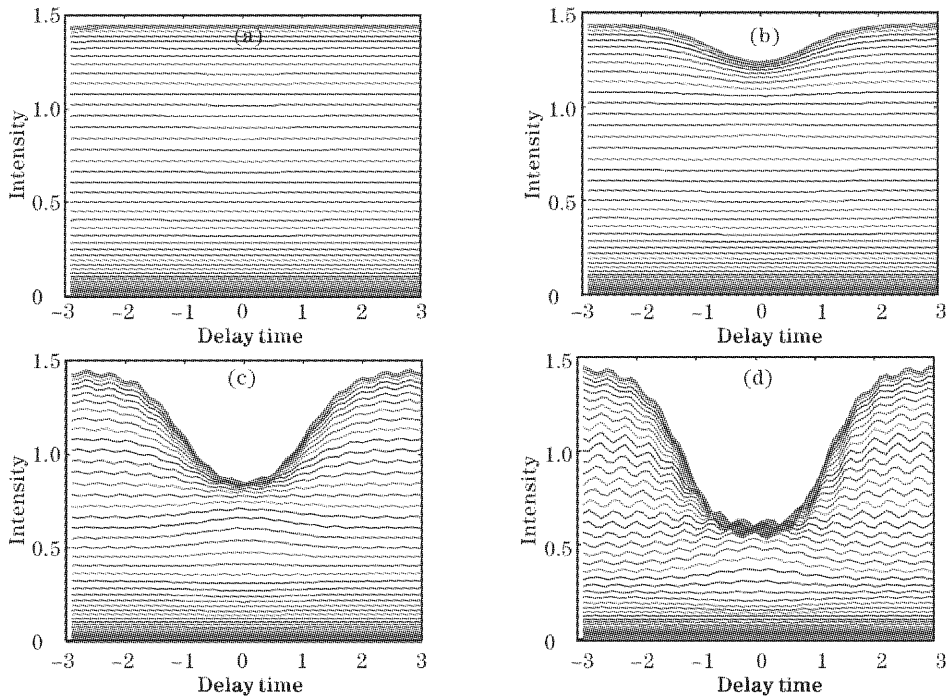


图 1 一维横向空间分辨的抽运-探测较高阶非线性效应理论模拟。A<sub>pu</sub>分别为(a) 0.10, (b) 0.30, (c) 0.50, (d) 0.70

Fig. 1 Numerical simulation of higher order nonlinear optical effects for one dimensional spatial resolved pump-probe signal.

The pump amplitudes ( $A_{pu}$ ) are (a) 0.10, (b) 0.30, (c) 0.50, (d) 0.70

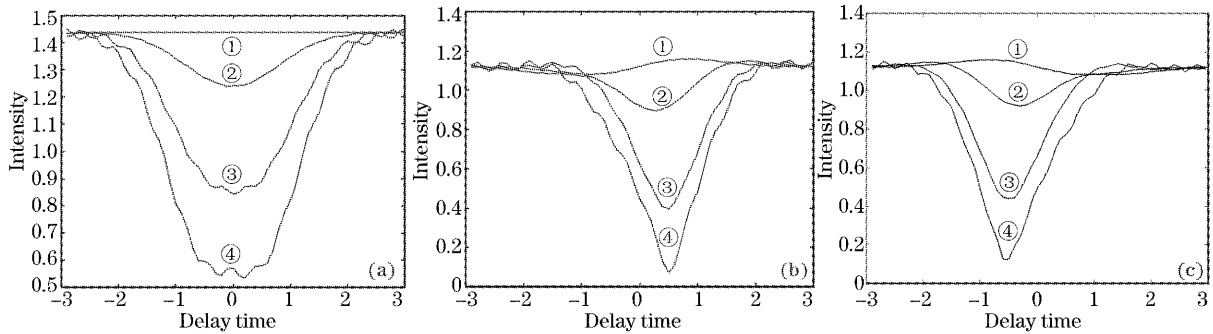


图 2 光场中心位置的较高阶模拟结果。(a),(b),(c)分别是在频率失谐量  $\Delta=0, -1, +1$  时的结果,

A<sub>pu</sub>分别为① 0.10, ② 0.30, ③ 0.50, ④ 0.70

Fig. 2 Simulated results of higher order in the center of the optical field. The frequency detunings are  $\Delta=0, -1, +1$  for figures (a), (b), (c), respectively. For curves ①, ②, ③, ④, the pump amplitudes ( $A_{pu}$ ) are 0.10, 0.30, 0.50, 0.70, respectively

### 5 结 论

本文在时间分辨三阶非线性抽运-探测光谱技

术的基础上,进一步对含有五阶非线性效应的材料的空-时分辨抽运-探测过程进行理论研究。从麦克斯韦波动方程出发,利用劈裂算子方法对抽运-探测

过程中的高阶非线性效应进行了数值模拟。给定材料的三阶和五阶非线性极化率结果表明当抽运光强度远大于探测光强度时,探测信号表现出三阶和五阶的干涉,并以五阶非线性效应为主;还发现,在高强度抽运光下,探测信号有明显的振荡,同时在横向空间上高阶非线性效应比低阶非线性效应衰减的速度快。对此进行了定性的解释。根据此理论结果,我们将在实验中对材料的五阶非线性折射率进行测量,并且再进一步研究更高阶的非线性效应。

### 参 考 文 献

- 1 Qian Shixiong, Wang Gongming. *Principle and Development of Nonlinear Optics* [M]. Shanghai: Fudan University Press, 2001. 441 (in Chinese)  
钱士雄,王恭明. 非线性光学原理与进展[M]. 上海: 复旦大学出版社, 2001. 441
- 2 M. Sheik-Bahae, A. A. Said, T. H. Wei *et al.*. High-sensitivity, single-beam  $n_2$  measurements[J]. *Opt. Lett.*, 1989, **14**(17): 955~957
- 3 R. Adair, L. L. Chase, S. A. Payne. Nonlinear refractive-index measurements of glasses using three-wave frequency mixing[J]. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1987, **4**(6): 875~883
- 4 I. Kang, T. Krauss, F. Wise. Sensitive measurement of nonlinear refraction and two-photon absorption by spectrally resolved two-beam coupling[J]. *Opt. Lett.*, 1997, **22**(14): 1077~1079
- 5 J. K. Wang, T. L. Chiu, C. H. Chi *et al.*. Nonlinear refraction and absorption measurements with chirped femtosecond laser pulses; experiments and simulations[J]. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1999, **16**(4): 651~661
- 6 L. Luo, L. Chen, Z. R. Qiu *et al.*. Measurement of femtosecond resonant nonlinear refraction in Nd:YVO<sub>4</sub> by degenerate pump-probe spectroscopy[J]. *J. Appl. Phys.*, 2001, **89**(12): 8342~8344
- 7 Luo Li, Yu Xiangyang, Zhou Jianying *et al.*. Ultrafast resonant nonlinear optical characteristics in rare earth materials[J]. *Acta Optica Sinica*, 2003, **23**(1): 6~10 (in Chinese)  
罗 莉,余向阳,周建英等. 稀土材料的超快共振非线性光学特性研究[J]. 光学学报, 2003, **23**(1): 6~10
- 8 S. Wu, X. C. Zhang, R. L. Fork. Direct experimental observation of interactive third and fifth order nonlinearities in a time- and space-resolved four-wave mixing experiment[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1992, **61**(8): 919~921
- 9 K. Ekvall, C. Lundevall, P. Meulen. Studies of the fifth-order nonlinear susceptibility of ultraviolet-grade fused silica[J]. *Opt. Lett.*, 2001, **26**(12): 896~898
- 10 Lin Jie. *Principle and Technique of Time, Space-Resolved Pump-Probe Femtosecond Spectroscopy* [D], Sun Yat-sen University, 2003 (in Chinese)  
林 洁. 时间、空间分辨抽运-探测飞秒光谱的原理与技术[D], 中山大学, 2003
- 11 Lin Jie, Cheng Jing, Zhou Jianying *et al.*. Study of spatial effects in spectrally resolved two-beam coupling pump-probe technique [J]. *Chin. J. Lasers*, 2003, **30**(11): 993~997 (in Chinese)  
林 洁,程 静,周建英等. 频率分辨双光束耦合抽运-探测技术中的空间效应研究[J]. 中国激光, 2003, **30**(11): 993~997
- 12 G. P. Agrawal. *Nonlinear Fiber Optics* [M]. Orlando: Academic Press, 1992
- 13 Joseph W. Haus, Boon Yi Soon, Michael Scalora *et al.*. Spatio-temporal instabilities for counterpropagating waves in periodic media[J]. *Opt. Express.*, 2002, **10**(2): 114~121