

帽顶光束 Z 扫描特征曲线的非对称参量

潘雯, 陶红, 顾兵

(南京师范大学物理科学与技术学院, 江苏 南京 210097)

[摘要] 研究了描述帽顶光束 Z 扫描曲线峰谷相对大小的非对称参量 A 随远场光阑的线性透过率 S 和三阶非线性折射相移 Φ_3 之间的变化关系. 结果表明对于光克尔介质, 当 $S = 0.156$ 时, 帽顶光束 Z 扫描特征曲线的峰高等于谷低且与三阶非线性折射相移 Φ_3 无关, 实验中取这一特殊值 S 可以很方便地对测量的结果进行归一化处理. 此外, 分析了高阶非线性效应对非对称参量 A 的影响, 发现当 $S = 0.156$ 时, 可以从单一 Z 扫描特征曲线来判断非线性光学介质是否具有高阶非线性效应以及高阶非线性系数的符号.

[关键词] 非线性光学, Z 扫描, 非对称参量, 非线性折射

[中图分类号] O437 **[文献标识码]** A **[文章编号]** 1001-4616(2007)02-0042-05

A Symmetry Parameter of the Z -Scan Traces Using Top-Hat Laser Beam

Pan Wen, Tao Hong, Gu Bing

(School of Physical Science and Technology, Nanjing Normal University, Nanjing 210097, China)

Abstract The relationship of the asymmetry parameter A , which is the ratio of the relative magnitudes of the peak and valley for the Z -scan traces using top-hat spatial profile beam, with the linear transmittance of the far field aperture S and the third-order nonlinear refractive phase shift Φ_3 , was investigated in detail. For the Kerr optical nonlinear medium $A = 1$, implying that the relative magnitude of valley is equal to the peak's, its independence of Φ_3 at $S = 0.156$. Taking this particularly value S , it is easy to normalize the Z -scan traces from the experimental viewpoint. The influence of the high order nonlinearity on A was also analyzed. A new method, which could identify whether the sample exhibits the higher order nonlinearity or not and its sign from a single top-hat Z -scan trace, was introduced.

Key words nonlinear optics, Z -scan technique, asymmetry parameter, nonlinear refraction

0 引言

具有大的非线性光学系数和快速响应时间的新型光学材料因其在光限幅、高速全光器件等方面的潜在应用而成为当前的研究热点. 因此, 获得材料的非线性光学性质显得至关重要. 至今为止, 已经有多种表征技术用于非线性光学的测量之中^[1]. 在这些技术当中, Z 扫描技术^[2], 由于其实验装置简单, 测量灵敏度高, 成本低, 常用于非线性光学的测量. 样品沿光轴在紧聚焦光束焦点附近移动时, 测量透过远场光阑的能量, 得到透过率与样品位置 (用 z 表示) 之间的变化曲线 $T(z)$ (称为 Z 扫描特征曲线或归一化透过率曲线), 可以同时获得材料的非线性系数的大小和符号.

Z 扫描利用光束的空间横向效应测量光学非线性, 但其缺点是对激光的横向光场分布 (即横模) 有比较严格的要求, 偏离 TEM_{00} 模的激光将导致很大的测量误差. 近年来人们在利用 Z 扫描方法测量大量样品^[3-4]的同时, 其测量方法本身也得到了很大的发展, 拓展了测量内容. 改进的思路主要有两个方面: 一方面讨论其它可能的光入射方式, 如帽顶光束 Z 扫描^[5]、准一维狭缝光束 Z 扫描^[6]等, 改进了 Z 扫描测量可靠性, 提高了测量灵敏度; 另一方面, 讨论在“恶劣”的条件下, 如何用 Z 扫描进行测量, 从而扩大测量方法

收稿日期: 2006-04-16 修回日期: 2006-09-30

基金项目: 江苏省高校自然科学基金 (06KJB140057) 资助项目.

作者简介: 潘雯 (1965-), 女, 实验师, 主要从事普通物理实验的教学与研究. E-mail: panwen1@njnu.edu.cn

的适用范围^[7-8].

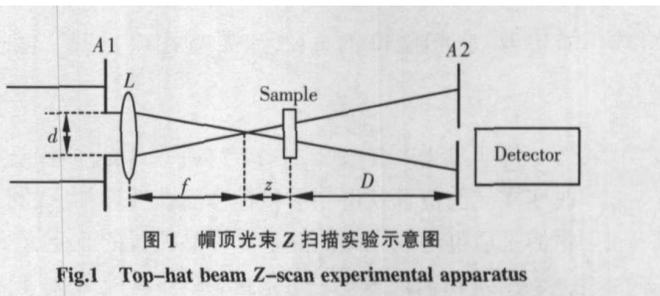
一般情况下材料的高阶非线性效应相比于三阶而言非常小, 认为材料仅具有三阶非线性效应, 材料为光克尔介质. 然而, 许多材料也具有很大的五阶非线性效应, 如一些半导体材料^[9]; 另一方面, 在 Z 扫描测量中常利用高强度激光来得到高信噪比, 在提高测量可靠性的同时高阶非线性的影响也不能忽视, 怎样用 Z 扫描方法判断在所用光强条件下材料是否具有五阶非线性效应及如何得到五阶非线性光学系数是当前的研究热点^[9-13].

实验上从 Z 扫描曲线的线型和归一化透过率峰值 T_P 、谷值 T_V 两个方面来获得材料的光学非线性, 并且分析光学非线性的物理机理. 通常采用如下步骤: 测量远场光阑的透过能量随样品位置的变化关系 $P(z)$; 对 $P(z)$ 归一化得到远场光阑的归一化透过率 $T(z)$, 计算出归一化透过率的峰谷差值 $\Delta T_{PV} (= T_P - T_V)$; 进而利用 Z 扫描理论估算出光学非线性系数的大小和符号. 在 Z 扫描实验中, 可以很方便找到透过远场光阑能量的最大值 P_P 和最小值 P_V . 例如: 高斯光束 Z 扫描中, P_P 和 P_V 对应于 $z \approx \pm 0.86x_0$ ^[2] 处; 在帽顶光束 Z 扫描中, $z \approx \pm 0.7x_0$ ^[5]; 在准一维狭缝光束 Z 扫描中, $z \approx \pm 0.68x_0$ ^[6]. 如果能简便有效地对测量数据进行归一化处理, 可以大大提高实验测量的效率.

本文基于上述考虑, 分析了帽顶光束 Z 扫描技术中非对称参量 A 、小孔的线性透过率 S 和非线性折射相移 Φ_1 之间的关系, 发现 S 取某一特殊值时 $A = 1$, 实验中很方便地对测量结果进行归一化处理, 提高了测量效率. 此外还给出了从单一帽顶光束 Z 扫描曲线判别样品是否具有高阶非线性效应及其非线性系数的符号的新方法, 这些结论对实验操作具有一定的指导意义.

1 原理

所谓帽顶光束 Z 扫描, 即扩束任意光束, 用圆孔取均匀辐射部分, 再对透过圆孔的光进行聚焦, 照射样品^[5]. 其实验装置如图 1 所示. 通过圆孔 A_1 衍射并经过透镜 L 的光束在横向上光强分布不均匀, 特别是在透镜焦点附近, 光强呈衍射环状. 由于非线性效应导致折射率有一个横向变化, 从而造成光束自聚焦或自散焦. 由菲涅尔衍射理论可知^[14], 光场经小孔 A_1 和透镜 L 后, 满足如下形式:



$$E(r, z) \propto \frac{2J_1(\pi r/\omega_0)}{\pi r/\omega_0} \otimes \frac{\exp\left\{\frac{j\pi r^2}{\lambda z}\right\}}{\lambda z}, \quad (1)$$

式中 r 为径向坐标, z 为样品的位置坐标, $J_1(\cdot)$ 是第一类一阶贝塞尔函数, λ 为入射光束波长, \otimes 是卷积算符.

在焦平面 ($z = 0$) 处, 场分布为:

$$E(r, z = 0) = \sqrt{\frac{j\pi n_0 P}{4\omega_0^2}} \frac{2J_1(\pi r/\omega_0)}{\pi r/\omega_0}, \quad (2)$$

其中 $\omega_0 = \lambda f/d$ 为光束光腰, d 为圆孔 A_1 的半径, f 为透镜焦距. 光束的瑞利长度为 $z_0 = \pi\omega_0^2/\lambda$

为简化分析, 假定样品仅有线性吸收和非线性折射存在, 而非线性吸收存在, 这在实验上是容易满足的^[2, 12]. 样品的折射率改变 $\Delta n(I)$ 随光强 I 的变化关系可表示为:

$$\Delta n(I) = \gamma^{(1)} I + \gamma^{(2)} I^2 + \dots + \gamma^{(n)} I^n + \dots, \quad (3)$$

式中 $\gamma^{(n)}$ 表示 $(2n + 1)$ 阶非线性折射系数.

在满足薄样品近似 ($L \ll z_0$, 即光束在样品内的衍射和非线性折射对光束尺寸的影响可以忽略, L 是样品的几何长度) 和缓变振幅近似下, 样品内传播的光波满足如下方程:

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha_0 I, \quad (4a)$$

$$\frac{d\Delta\phi}{dz} = -\Delta n(I) k, \quad (4b)$$

式中 z' 是光束在样品内的传播距离, α_0 是线性吸收系数, $k = 2\pi/\lambda$ 为光波波矢. 样品出射面处的光场可表示为:

$$E_e(r, z) = E(r, z) \exp\left[\sum_{n=1}^{\infty} (kL_{\text{eff}}^{(n)} I^n)\right], \quad (5)$$

式中 $L_{\text{eff}}^{(n)} = [1 - \exp(-n\alpha_0 L)]/n\alpha_0$ 是样品的 $(2n + 1)$ 阶非线性效应对应的有效长度. 定义 $\bar{E}(r, z)$ 为归一化光场, 满足 $|\bar{E}(r, z)|^2 = \frac{|E(r, z)|^2}{I_0}$. 上式也可以写成

$$E_e(r, z) = E(r, z) \exp\left[\sum_{n=1}^{\infty} (i\Phi_n |\bar{E}(r, z)|^{2n})\right]. \quad (6)$$

当样品位于焦平面 ($z = 0$) 处, $(2n + 1)$ 阶非线性折射相移为:

$$\Phi_n = kL_{\text{eff}}^{(n)} \chi^{(n)} I_0^n,$$

其中 $I_0 = |E(r=0, z=0)|^2$ 是光束在轴峰值强度. $n = 1$ 时, $\Phi_1 = kL_{\text{eff}}^{(1)} \chi^{(1)} I_0$ 是三阶非线性折射相移; $n = 2$ 时, $\Phi_2 = kL_{\text{eff}}^{(2)} \chi^{(2)} I_0^2$ 是五阶非线性折射相移. Φ_1 和 Φ_2 取正或负值取决于材料本身的属性和所用激光束的频率.

远场 A_2 平面处的场分布 $E_{A_2}(r', z)$ 正比于 $E_e(r, z)$ 的傅里叶变换, 即^[5]

$$E_{A_2}(r', z) \propto F\{E_e(r, z)\}, \quad (7)$$

式中 r' 是 A_2 平面处的横向坐标, $F\{\}$ 是傅里叶变换算符. 可以直接计算透过 A_2 光阑的能量 $P(z)$, 它是样品位置 z 的函数:

$$P(z) = \int_0^{D'} |E_{A_2}(r', z)|^2 2\pi r' dr', \quad (8)$$

式中 D' 是光阑 A_2 的直径. 这样光阑 A_2 的归一化透过率 $T(z)$ 可表示为:

$$T(z) = \frac{P(z)}{P(\infty)}. \quad (9)$$

很明显当 $|z| \gg z_0$ 时, 取 $T(z) = 1$ 说明样品远离焦点时非线性效应可以忽略, 这样通过沿光轴方向改变样品的位置就得到了包含样品非线性信息的归一化 Z 扫描特征曲线 $T(z)$. 实际上在 Z 扫描实验中测量的是透过远场光阑的能量随样品位置的改变 $P(z)$, 再对实验结果进行归一化处理得到 $T(z)$.

在 Z 扫描技术中一个很重要的参量是光阑 A_2 的线性透过率 S . 其定义为在低强度条件下, 透过光阑 A_2 的能量与入射到 A_2 平面上的总能量的比值. 实验操作中通过改变光阑 A_2 的孔径大小可以很精确地测量出 S 值.

由于样品的非线性折射所致自聚焦或自散焦效应, Z 扫描特征曲线表现为谷-峰或峰-谷图样. Z 扫描特征曲线的另一个显著特征是峰高和谷深的不对称性, 可用非对称参量 A 来描述^[5,6]:

$$A = \frac{T_P - 1}{1 - T_V}, \quad (10)$$

式中 T_P 和 T_V 分别表示 Z 扫描曲线的峰和谷.

2 分析

样品具有非线性折射时, 帽顶光束 Z 扫描特征曲线关于透镜后焦点近似对称呈现谷-峰/峰-谷结构(图 2), 这种类似于色散/反常色散型曲线的显著特征是峰高和谷深的相对大小的不对称. 研究表明^[5]: 对于克尔介质, 在 $S \ll 1$ 的条件下, 帽顶光束 Z 扫描特征曲线的峰高大于谷深, 即 $(T_P - 1) > (1 - T_V)$. 考虑到线性透过率 S 对 Z 扫描曲线的影响, 图 2(a) 给出了三阶非线性折射相移 $\Phi_1 = 0.5$ 时, 对应 3 个不同 S 值的 Z 扫描特征曲线. 从图中可以看出: 随着 S 值的增加, Z 扫描曲线的峰和谷的相对大小减小. 进一步研究 S 与 Φ_1 对 A 的

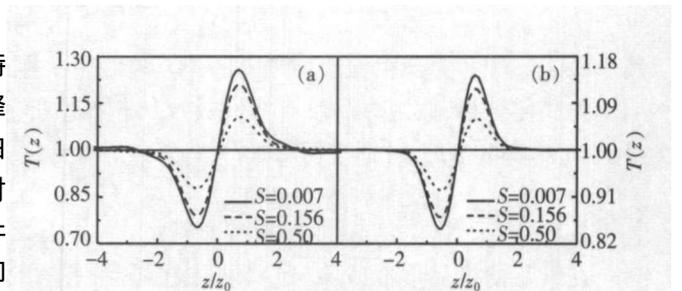


图 2 $\Phi_1=0.5$ (a), $\Phi_2=0.5$ (b) 时不同 S 情况下帽顶光束 Z 扫描特征曲线
Fig.2 The characteristic curves of the top-hat beam Z -scan with different S for $\Phi_1=0.5$ (a) and $\Phi_2=0.5$ (b)

影响如图 3(a) 所示: A 随 S 和 Φ_1 的增加而非线性减小; 对于 $S \rightarrow 0$ 时, 无论 Φ_1 取何值, 帽顶光束 Z 扫描曲线的峰高始终大于谷深; 而对 S 很大时, 情形正好相反; 明显地 $S = 0.156$ 时, 非对称参量 $A = 1$ 而且与 Φ_1 无关, 也就是说对于 S 取这个特殊值, 归一化扫描曲线的峰高等于谷深. 从实验的角度来看, 测量介质的光学非线性系数时取光阑 A_2 的线性透过率 $S = 0.156$ 可以很方便地对实验曲线进行归一化, 也就是说只要测量出透过光阑能量峰值 P_p 和谷值 P_v , 再分别除以 $(P_p + P_v)/2$ 就可以得到透过率曲线的峰 T_p 和谷 T_v , 进而得到 ΔT_{pv} 值.

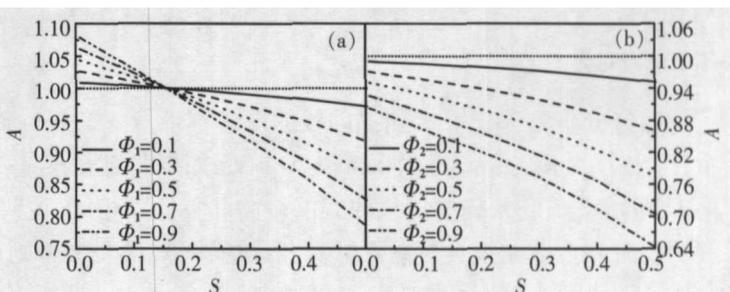


图 3 不同 Φ_1 (a) 和 Φ_2 (b) 时, 非对称参量 A 与 S 的关系

Fig.3 The asymmetry parameter A versus the linear transmittance S at difference Φ_1 (a) and Φ_2 (b)

一般只关注材料的三阶非线性效应, 是因为高阶非线性效应相比于三阶效应而言可以忽略不计. 然而实验操作中有时为了提高信噪比, 入射光功率 / 辐射往往很强, 或材料本身具有很大的五阶非线性系数, 高阶非线性效应对测量结果的影响是不能忽视的. 假定材料仅具有五阶非线性折射效应, 图 2(b) 给出五阶非线性折射相移 $\Phi_2 = 0.5$ 时不同 S 值对应的 Z 扫描特征曲线, 曲线对 S 的依赖关系和图 2(a) 类似. 在不同的五阶非线性折射相移 Φ_2 情况下, 非对称参量 A 随 S 的变化关系如图 3(b) 所示. 可以看出, 无论 Φ_2 和 S 取何值, 对于纯五阶非线性折射而言, 非对称参量 A 始终小于 1, 即 Z 扫描特征曲线的谷深始终大于峰高.

研究高阶非线性效应一般通过测量不同功率密度 I_0 下 Z 扫描曲线. 假定介质仅具有三阶非线性效应, 用三阶非线性理论来处理实验数据, 得出非线性系数 γ_{non} 随 I_0 的变化关系, 来判断介质是否表现出高阶非线性效应^[9-12]: 如果 γ_{non} 与 I_0 无关, 说明介质仅具有三阶非线性效应; γ_{non} 随 I_0 增加而线性增加, 说明三阶和五阶非线性系数同号; γ_{non} 随 I_0 增加而线性减小, 说明三阶和五阶非线性系数异号. 现在分析介质同时存在三阶和五阶非线性折射对 Z 扫描特征曲线的影响. 利用上面的结论取特殊值 $S = 0.156$ 图 4 给出了 $\Phi_1 = 0.5$ 时, 五阶非线性折射相移对 Z 扫描曲线的影响: $\Phi_2 = -0.2$ 时, 五阶效应压制峰和谷; 与此相反, $\Phi_2 = 0.2$ 时, 增强了峰谷值. 高阶效应对帽顶光束 Z 扫描曲线非对称参量 A 的影响如图 5 所示, 图中给出了 $S = 0.156$ Φ_1 取不同数值时, Φ_2 对 A 的变化关系. 可以看出: 对于具有谷 - 峰 / 峰 - 谷结构的帽顶光束 Z 扫描曲线 Φ_1 与 Φ_2 异号时, $A > 1$; 而它们同号时, $A < 1$; $\Phi_2 = 0$ 时, $A = 1$. 我们可以得出结论: $S = 0.156$ 时, 五阶非线性效应影响 Z 扫描曲线特征的非对称参量 A , 就是说如果在实验中取线性透过率 $S = 0.156$ 通过计算曲线的非对称参量 A 可以判断该介质在实验所用光功率密度下是否表现出五阶非线性效应. 如果 $A > 1$ 说明三阶和五阶非线性系数符号相反; 如果 $A < 1$ 则它们同号, 而无需用测量不同 I_0 时一系列 Z 扫描实验曲线来判断, 提高了实验中数据处理的效率.

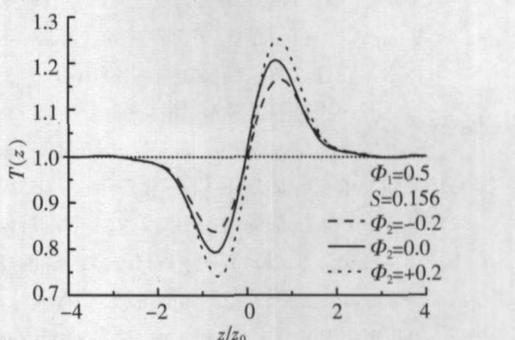


图 4 当 $S=0.156$ 和 $\Phi_1=0.5$ 时, Φ_2 对帽顶光束 Z 扫描曲线的影响

Fig.4 The influence of Φ_2 on the top-hat beam Z-scan curves with $S=0.156$ and $\Phi_1=0.5$

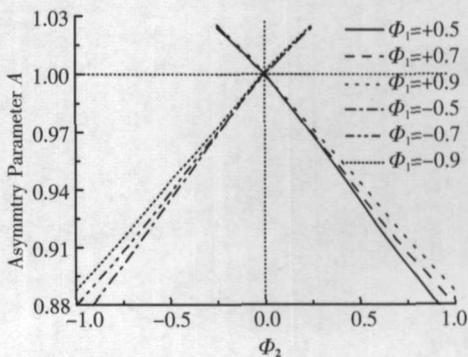


图 5 $S=0.156$ 时不同 Φ_1 情况下非对称参量 A 与 Φ_2 的关系

Fig.5 The asymmetry parameter A versus Φ_2 with $S=0.156$ for different values of Φ_1

3 结论

通过分析帽顶光束 Z 扫描曲线的非对称参量 A 与线性透过率 S 和非线性折射相移 Φ 之间的变化关系, 得出了如下结论: 实验中取 $S = 0.156$ 如果非对称参量 $A = 1$ 说明该光学介质为克尔型介质; 如果 $A \neq 1$, 即帽顶光束 Z 扫描特征曲线的峰高和谷低不相等, 说明光学介质的高阶非线性效应不能忽略; $A > 1$ 表明三阶和五阶非线性折射系数有相反的符号, 而 $A < 1$ 则说明它们有相同的符号.

[参考文献]

- [1] 顾兵. 三阶非线性光学材料及其表征技术研究进展 [J]. 应用光学, 2003, 24(6): 35-37
- [2] Bahae M S, Said A A, Wei T H, et al. Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam [J]. IEEE J Quant Electron, 1990, 26(4): 760-769.
- [3] Gu B, Wang Y H, Peng X C, et al. Giant optical nonlinearity of a $\text{Bi}_2\text{Nd}_2\text{T}_3\text{O}_{12}$ ferroelectric thin film [J]. Appl Phys Lett, 2004, 85(17): 3687-3689
- [4] Guo S L, Gu B, Zhang T. Third-order nonlinearities and optical limiting of C_{60} polyurethane-urea [J]. J Nonlinear Opt Phys Mater, 2004, 13(1): 45-54.
- [5] Zhao W, Palfy-Muhoray P. Z -scan technique using top-hat beams [J]. Appl Phys Lett, 1993, 63(12): 1613-1615.
- [6] Gu B, Jun Y, Wang Q, et al. Z -scan technique for characterizing third-order optical nonlinearity by use of quasi-one-dimensional slit beams [J]. J Opt Soc Am B, 2004, 21(5): 968-972.
- [7] Bridges R E, Fischer G L, Boyd R W. Z -scan measurement technique for non-Gaussian beams and arbitrary sample thicknesses [J]. Opt Lett, 1995, 20(17): 1821-1823.
- [8] Wang Y, Saffman M. Experimental study of nonlinear focusing in a magneto-optical trap using a Z -scan technique [J]. Phys Rev A, 2004, 70: 013801-1-013801-9.
- [9] Bhandra K S, Oak S M, Rustagi K C. Intensity dependence of Z -scan in semiconductor-doped glasses for separation of third and fifth order contributions in the below band gap region [J]. Opt Commun, 1999, 168(1/4): 219-225.
- [10] Liu Z B, Zang W P, Tian J G, et al. Analysis of Z -scan of thick media with high-order nonlinearity by variational approach [J]. Opt Commun, 2003, 219(1/6): 411-419.
- [11] Tsigaridas G, Fakis M, Polyzos I, et al. Z -scan analysis for high nonlinearities through Gaussian decomposition [J]. Opt Commun, 2003, 225(4/6): 253-268.
- [12] Gu B, Peng X C, Jia T, et al. Determinations of third and fifth order nonlinearities by the use of top-hat beam Z -scan theory and experiment [J]. J Opt Soc Am B, 2005, 22(2): 446-452.
- [13] Gu B, Chen J, Fan Y X, et al. Theory of Gaussian beam Z -scan with simultaneous third and fifth-order nonlinear refraction based on a Gaussian decomposition method [J]. J Opt Soc Am B, 2005, 22(12): 2651-2659.
- [14] Born M, Wolf E. Principle of Optics [M]. 6th ed. U K Oxford: Pergamon, 1980.

[责任编辑: 丁 蓉]