

厚非线性介质瞬态热光非线性效应的研究 *

周文远 田建国[†] 臧维平 张春平 张光寅 王肇圻

(南开大学物理科学学院 光电子信息技术科学教育部重点实验室 天津 300071)

(2002 年 3 月 3 日收到 2002 年 4 月 21 日收到修改稿)

瞬态热光非线性效应是指由脉冲宽度可以和非线性效应的建立时间相比拟的纳秒脉冲激光入射产生的热光非线性效应。用 Z-scan 法测量了不同厚度、不同束腰半径碘的酒精溶液的瞬态热光非线性效应曲线。从声波的传播方程和光波的非线性传播方程出发,用数值计算方法模拟了这一非线性过程。并对实验结果和数值模拟结果进行了比较。

关键词: 瞬态热光非线性效应, 非线性光学, 数值计算

PACC: 7820N, 4265, 0260

1. 引 言

热光非线性效应是最早研究的光学非线性效应之一, 迄今为止, 无论从理论上还是从实验上, 人们都进行了大量的研究^[1-6]。以往的研究主要集中在连续光或毫、微秒脉冲激光入射产生的稳态热光非线性效应。研究发现要对热光非线性效应的建立过程进行全面的理论分析和模拟非常困难, 因此对于由脉冲宽度可以和非线性效应的建立时间相比拟的纳秒脉冲激光入射产生的瞬态热光非线性效应的研究并不多。为了方便, 人们或者把瞬态热光非线性效应的问题当作稳态热光非线性效应进行处理, 或者忽略它的影响。纳秒脉冲激光已广泛应用于各种非线性效应的研究中, 瞬态热光非线性效应的存在常常不可避免, 在这种情况下如果把它近似成稳态热光非线性效应处理, 就有可能高估了热光非线性效应的影响; 反之, 如果忽略它的影响, 就有可能把本来是热光非线性效应造成的影响归结成其他的非线性效应, 比如反饱和吸收效应或者三阶光学非线性效应等。对瞬态热光非线性效应进行深入研究不仅对非线性光学的研究具有重要意义, 对光限幅器的研究同样具有重要意义。由于热光非线性效应的建立时间远少于热扩散所需要时间, 因此在很宽的时

间范围内表现为积累效应, 可以获得很强的非线性效应, 因而广泛用于调 Q 脉冲激光的限幅研究, 本文的研究可用于确定这类光限幅器的合理配置。

部分研究者对瞬态热光非线性效应进行了研究^[7-9]。在文献[7]中, 作者从理论上研究了这一非线性效应的产生过程, 他们从流体力学的基本方程出发, 研究了由于激光脉冲在短时间内加热样品而造成样品局域的温度、压力、密度等的变化。Brochard 等人用单光束 Z-scan 法和双光束时间分辨型 Z-scan 法研究了强光入射下的瞬态热光非线性, 并给出了考虑声波传播和热扩散效应的简化的理论模型^[8]。Kovsh 等人研究了不同非线性效应的 Z-scan 曲线的数值模拟方法, 他们采用的是对脉冲时间分段并分两步计算的近似方法, 但对于瞬态热光非线性效应他们只给出了薄样品的数值模拟结果^[9]。从实用的角度考虑, 厚样品的数值模拟更具有意义。

本文从理论和实验两方面对瞬态热光非线性进行了研究。在同时考虑密度波的传播和光波的非线性传播条件下, 用差分数值计算方法模拟了瞬态热光非线性效应的建立过程, 得到了不同样品厚度、不同束腰半径的 Z-scan 曲线的数值解。用单光束 Z-scan 法测量了不同条件下的掺碘酒精样品的瞬态热光非线性效应实验曲线, 对数值计算结果和实验结果进行了比较和讨论。

* 国家杰出青年基金(批准号: 60025512)、国家自然科学基金(批准号: 18974032)、国家教育部重点科学基金(批准号: 00026)、国家教育部骨干教师计划、天津市光电联合研究中心及高等学校重点实验室访问学者基金资助。

† 通讯联系人, E-mail: jjtian@nankai.edu.cn

2. 理论分析与数值模拟

2.1. 理论模型

液体介质的瞬态热光非线性效应的产生过程大致是这样的,在高强度纳秒脉冲激光照射下,介质通过吸收激光能量而被加热,形成了局域的温度梯度分布,并因此产生了热膨胀,导致了声波在样品中的传播,声波在传播过程中改变了样品的密度分布,密度的改变又导致了样品折射率的改变,反过来影响了光波在介质中的传播。热光非线性效应的建立时间通常定义为声波横过光束截面所需要的传播时间 $\tau_{ac} = \omega/c_s$,其中 ω 是入射激光光束的 $1/e^2$ 半径, c_s 是介质的声速, τ_{ac} 的典型值为几纳秒到几十纳秒。可以看出,对于厚样品的液体介质的瞬态热光非线性,其作用过程非常复杂,它事实上是液体介质中声波和光波相互作用相互影响的过程,一方面,由于光波在介质中的传播导致了声波的产生和传播,声波的传播又反过来影响了后面的光波的传播,另一方面,光波传播状态的改变又反过来影响了后面介质中的声波的产生和传播。同时,由于瞬态热光非线性效应是一种积累型的非线性效应,它不仅与当前的光波的能量传播过程有关,更决定于以前光波的空间时间分布。因此,要对瞬态热光非线性效应的建立过程进行全面的理论分析和模拟非常艰巨,这需要同时解两个相互联系的非线性传播方程:光波的非线性传播方程和密度波传播的声学方程。

从流体力学的三个基本方程出发,考虑热扩散效应的影响在纳秒时域内可以被忽略,并假设温度、密度、压力的变化都很小的情况下,可以得到在纳秒脉冲激光照射下介质折射率变化的声学方程^[7~9]:

$$\frac{\partial^2(\Delta n)}{\partial t^2} - c_s^2 \nabla^2(\Delta n) = \frac{\gamma^e}{2n\rho} \frac{\beta c_s^2}{c_p} \int_{-\infty}^t \nabla^2(\alpha_L I(r, t')) dt', \quad (1)$$

其中 n 是样品的折射率, $\gamma^e = \rho(\partial n^2 / \partial \rho)$ 是电致伸缩耦合常数, ρ 是样品的密度, β 是热膨胀系数, c_p 是样品的定压热容, α_L 是样品的线性吸收系数, I 是入射光的光强。

对于在非线性介质中传播的光波,从麦克斯韦方程组出发,在傍轴近似和慢变化包络近似下,可以得到光波非线性传播方程^[9,10]:

$$\nabla_{\perp}^2 \tilde{E}(r, z, t) - 2jk \frac{\partial \tilde{E}(r, z, t)}{\partial z}$$

$$- jk\alpha(r, z, t)\tilde{E}(r, z, t) + \frac{2k^2}{n}\Delta n(r, z, t)\tilde{E}(r, z, t) = 0, \quad (2)$$

其中 $\tilde{E}(r, z, t)$ 是光波的电场包络, ∇_{\perp}^2 是径向Laplace 算符, $k = nk_0 = n \frac{\omega}{c}$, c 是真空中的光速, $\alpha(r, z, t) = \alpha_L + \alpha_{NL}(r, z, t)$, α_L 是介质的线性吸收系数, $\alpha_{NL}(r, z, t)$ 是介质的非线性吸收系数, $\Delta n(r, z, t)$ 是介质的非线性折射率分布。

2.2. 数值模拟算法

Z-scan 法用于非线性系数的测量具有结构简单和灵敏度高的优点^[11],广泛用于材料的非线性折射率的测量及其他光学非线性性质的研究。本文用数值计算方法模拟出液体厚样品的瞬态热光非线性效应的发生过程,并描绘出相应的 Z-scan 曲线,以便和实验曲线进行比较。问题的关键是要同时求解描述这一过程的两个偏微分方程,也就是描述声波在介质中传播并改变了介质的折射率分布的双曲线型偏微分方程(1)和描述光波在非线性介质中传播的抛物线型偏微分方程(2)。这两个偏微分方程都没有解析解,但都可以分别通过差分运算方法得到精确的数值解。但要用数值计算的方法同时解这两个偏微分方程,计算量是两个方程单独计算量相乘的关系,因此工作量非常巨大。随着计算机技术的飞速发展,特别是运算速度的提高,使得有可能得到这一问题的精确的数值解。通过分析可知,在入射激光的束腰半径远大于激光波长的条件下,介质中径向的温度梯度就会远大于传播方向的温度梯度,从而可以近似认为热膨胀仅仅在径向发生。在这一近似条件下,可以完全用差分运算的方法来同时解这两个偏微分方程,得到更精确的数值解。根据这一原理我们研制了图形界面的计算软件,该软件可以在普通的个人电脑运行。具体的计算方法将另文报道。

3. 实验结果及分析

为了更好地进行非线性效应的研究,本文建立了一套先进的 Z-scan 非线性效应测量系统,主要特点是自动化程度高、测量精度高、组合性能好,可以根据实验的具体要求快速搭建出需要的实验配置,实验装置图如图 1 所示。该实验装置主要由 Z-scan 光路和计算机测量控制系统两部分组成。光路部分

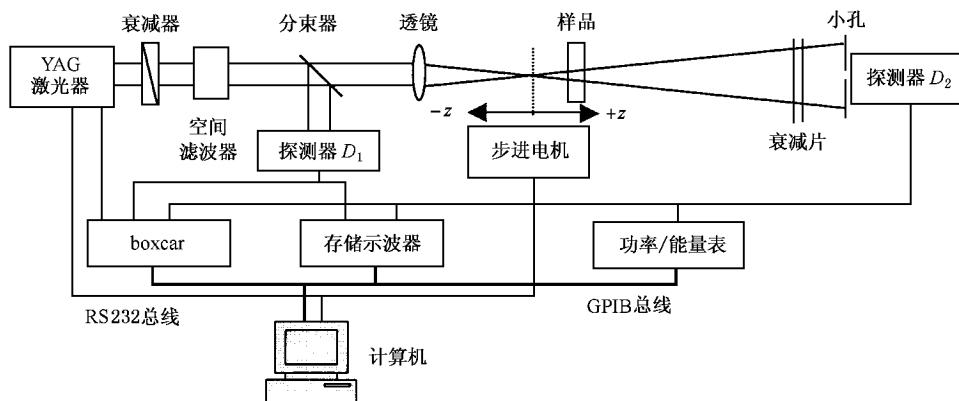


图 1 Z-scan 实验装置示意图

是一个标准的单光束 Z-scan 光路。实验所用的光源是调 Q 倍频 Nd:YAG 脉冲激光系统(Continuum 公司)输出波长为 532nm, 脉冲宽度为 4—6ns, 实验中所用脉冲重复频率为 10Hz。入射激光首先经过衰减器将光强衰减到实验需要的大小, 经过空间滤波器滤波后再由分束器将激光分成两束, 一路作参考光, 由探测器 D_1 接收。另一路作探测光, 经由透镜聚焦后入射到比色皿内溶液的前表面上, 选用不同焦距的聚焦透镜以获得不同的束腰半径。比色皿置于由步进电机驱动的精密移动平台上, 步进电机的转动由计算机控制。从样品出射的激光, 经过衰减片衰减后照射到远场的小孔光阑上, 小孔的直径为 3mm, 小孔的透过率约占总能量的 1/250。在小孔光阑的后面用探测器 D_2 (型号 J3S-10)测量透射激光的光强。通过样品在焦点附近沿 z 轴移动, 在总的输入光强不变的情况下, 测量透过率 T 和样品相对于焦点的距离 z 的扫描曲线。整个测量过程在计算机软件的控制下自动进行, 计算机和测量仪器、YAG 激光器之间通过 GPIB 总线和 RS232 总线连接在一起。

具体实验安排上采取了多种措施来减小实验的误差, 提高实验的精度。首先对光束进行了空间滤波处理, 使其更接近于高斯光束。采用对比测量的方法, 减小激光能量不稳定对实验结果造成的影响。在计算机软件的控制下, D_1 和 D_2 之间的定标可以非常方便地自动进行。为减小激光脉冲能量起伏的影响, 每一个测量点都是 25 个(或 50 个)激光脉冲的测量平均值。实验在相对封闭的环境中进行, 以减少外界的干扰。在每一组实验曲线的测量之前, 都用分析纯的二硫化碳调整光路, 直到获得满意的二硫化碳测量曲线后, 再进行正式的测量, 并对测量结果用二硫化碳曲线进行定标。

实验样品是碘的酒精溶液, 将吸收系数调整为 -1 cm^{-1} 。选择它的主要原因是人们已经对酒精的热光非线性效应进行了大量的研究, 各种参数很容易查到。同时通过实验发现这种溶液没有其他明显的非线性效应。我们测量了碘的酒精溶液和定标用二硫化碳的开孔 Z-scan 曲线, 如图 2 所示。实验所用的聚焦透镜的焦距为 180mm, 比色皿的厚度为 1mm, 入射脉冲能量为 $16\mu\text{J}$ 。从图 2 可以看出, 在实验误差范围内, 无论是碘的酒精溶液还是用来做比较的二硫化碳, 都不存在非线性吸收或非线性散射。

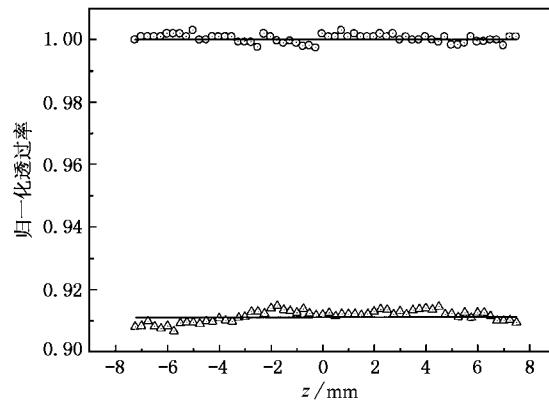


图 2 二硫化碳和碘的酒精溶液的开孔 Z-scan 曲线 ○为二硫化碳 △为碘的酒精溶液

图 3 是用厚度为 1mm 的比色皿和焦距为 80mm 的聚焦透镜测量得到的碘的酒精溶液的闭孔 Z-scan 曲线。激光的束腰半径为 $7\mu\text{m}$, 由此可以得到激光的共焦参数为 0.39mm。样品的厚度是激光共焦参数的 2.5 倍(是空气中共焦参数的 3.5 倍)。酒精的声速为 1207m/s, 由此可以算出 $\tau_{ac} = 5.8\text{ ns}$, 是激光脉冲宽度的 1.2 倍。实验测得的归一化后的透过率的峰谷差

$\Delta T = 0.34$, 同样条件下二硫化碳的峰谷差的测量值为 0.24, 二者之比为 1.4。图 4 是用厚度为 5mm 的比色皿和焦距为 180mm 的聚焦透镜测量得到的碘的酒精溶液的闭孔 Z-scan 曲线。激光的束腰半径为 $13\mu\text{m}$, 由此可以得到激光的共焦参数为 1.36mm, 样品的厚度是激光共焦参数的 3.7 倍。可以算出 $\tau_{\text{ac}} = 11\text{ns}$, 是激光脉冲宽度的 2.2 倍。实验测得的归一化的透过率的峰谷差 $\Delta T = 0.16$, 同样条件下二硫化碳的峰谷差的测量值为 0.37, 二者之比为 0.43。

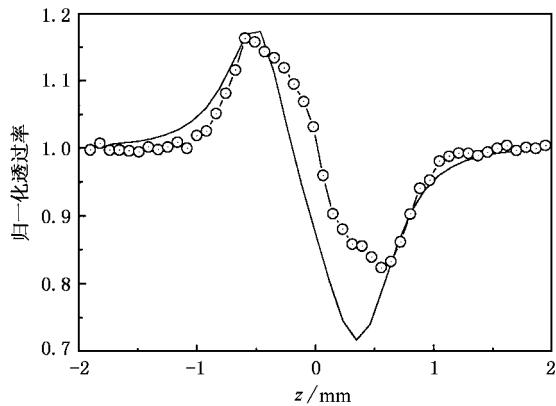


图 3 用 80mm 聚焦透镜得到的厚度为 1mm 碘的酒精溶液的闭孔 Z-scan 曲线 ○为实验结果, ——为数值模拟结果。 $\tau_p = 5\text{ns}$, $\omega_0 = 7\mu\text{m}$, $\alpha_L = 1\text{cm}^{-1}$, $L = 1\text{mm}$, $E_{\text{in}} = 8\mu\text{J}$

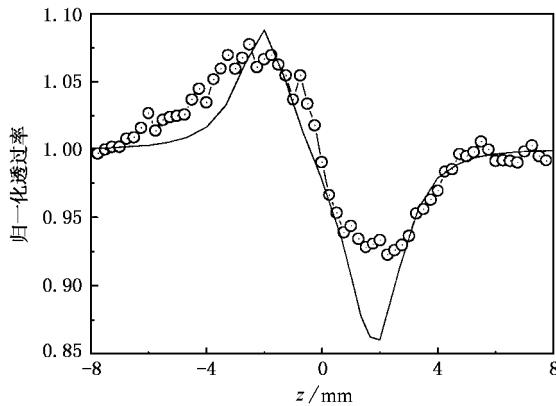


图 4 用 180mm 聚焦透镜得到的厚度为 5mm 碘的酒精溶液的闭孔 Z-scan 曲线 曲线说明同图 3。 $\tau_p = 5\text{ns}$, $\alpha_L = 1\text{cm}^{-1}$, $L = 5\text{mm}$, $E_{\text{in}} = 12\mu\text{J}$

通过对图 3 与图 4 的实验结果和数值模拟结果的比较分析, 可以得到以下一些结论。首先由于实验样品的厚度均是共焦参数的若干倍, 因此都是厚样品的 Z-scan 曲线。为了获得较强的非线性效应, 瞬态热光非线性效应实验通常选用较小的束腰半径,

因而这类研究多数情况下是厚样品条件下的。其次, 通过实验可以看到, 瞬态热光非线性效应的大小与 τ_p/τ_{ac} 的比值关系非常密切, 当 $\tau_p/\tau_{\text{ac}} < 1$ 时, 比值越小非线性效应越弱, 这与前面的分析以及文献 [8, 9] 中的报道一致。通过对数值计算结果与实验结果的比较, 我们发现二者在距离束腰较远的地方符合得较好, 但是在束腰附近符合得不好, 特别是数值计算得到的谷的深度要比实验值深一些。事实上, 随着样品的厚度和激光共焦参数的比值的增加, 数值计算结果和实验结果之间的差别会越大。但即便是薄样品的情况下, 数值计算得到的谷的深度仍然会比实验结果深一些。同样的问题出现在 Kovsh 等人 [9] 的结果中, 他们的样品厚度只有 $50\mu\text{m}$, 而所用激光脉冲的共焦参数为 $280\mu\text{m}$, 可以看到他们数值模拟得到的谷同样要比实验的深。我们还发现, 数值计算得到的这种峰弱谷强的结果与 Brachard 等人 [8] 报道的实验结果比较相像, 但他们所用的激光脉冲强度要比我们实验所用的光强大得多, 我们在试图增加激光光强以获得与他们相似的结果的时候, 出现了严重的非线性散射, 详细观察发现这是由于激光脉冲的能量太大, 使样品局部产生气化并形成气泡, 气泡对入射激光产生散射所致。

图 5 是用厚度为 5mm 的比色皿和焦距为 80mm 的聚焦透镜测量得到的碘的酒精溶液的厚样品闭孔 Z-scan 实验曲线和数值计算结果。样品的厚度是激光共焦参数的 13 倍。图 6 是同样实验条件下二硫化碳的闭孔 Z-scan 实验曲线和数值计算结果。我们看到, 对于 Kerr 效应的二硫化碳的厚样品 Z-scan 曲线, 理论计算结果与实验能够较好地符合, 实验结果和前人报道结果一致。而瞬态热光非线性效应与克尔效应相比, 不论理论模拟结果还是实验曲线, 都有明显的不同。瞬态热光非线性效应的厚样品 Z-scan 实验曲线的峰和谷之间一段较平坦的曲线的归一化透过率明显地大于 1.0, 而不像 Kerr 效应那样近似等于 1.0。由图 2 的实验曲线可以看到, 在我们的实验条件下, 碘的酒精溶液并不存在非线性吸收, 因此这种实验现象并非由非线性吸收效应造成。遗憾的是数值计算结果无法说明这一问题, 它的峰和谷之间虽然也有较平坦的一段, 但其归一化透过率却小于 1.0。

对于 Kerr 效应或者稳态热光非线性效应的厚样品 Z-scan 曲线, 由于它们的非线性折射率的径向分布通常和激光束的径向功率分布相一致, 因此在

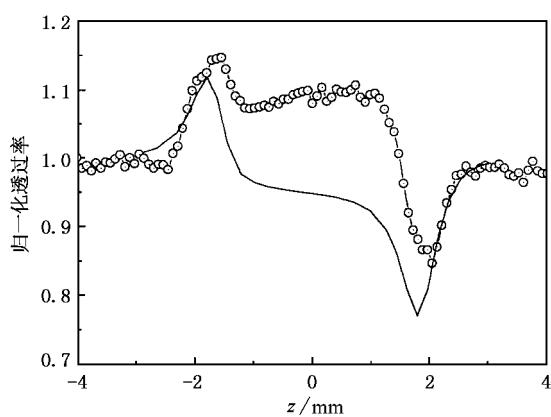


图 5 用 80mm 聚焦透镜得到的厚度为 5mm 碘的酒精溶液的闭孔 Z-scan 曲线 曲线说明同图 3. $\tau_p = 5\text{ns}$, $\omega_0 = 7\mu\text{m}$, $\alpha_L = 1\text{cm}^{-1}$, $L = 5\text{mm}$, $E_{in} = 6\mu\text{J}$

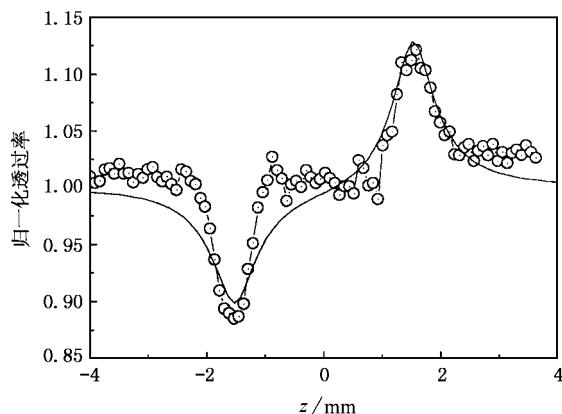


图 6 用 80mm 聚焦透镜得到的厚度为 5mm 二硫化碳的闭孔 Z-scan 曲线 曲线说明同图 3. $\tau_p = 5\text{ns}$, $\omega_0 = 7\mu\text{m}$, $\gamma = 3.1 \times 10^{-18}\text{m}^2/\text{W}$, $L = 5\text{mm}$, $E_{in} = 6\mu\text{J}$

非线性效应不太强时, z 等于 0 点的归一化透过率应该近似等于 1.0, 相应的数值计算也能得到类似的结论。对于瞬态热光非线性效应的厚样品 Z-scan 实验曲线, 由于它的非线性折射率的径向分布不再简单地和激光束的径向功率分布呈线性关系, 而是动态变化的, 光束在厚样品内传播的过程中也

会逐渐偏离高斯分布, 因此它在 z 等于 0 点的归一化透过率就不会再等于 1.0。对于数值计算结果不能和实验曲线很好符合的问题, 可能存在如下一些原因: 首先理论模型是在多个近似条件下得到的, 有些近似并不太符合实验情况, 比如要求样品内的温度变化很小等。其次数值计算只能部分模拟实验过程, 由于脉冲激光的能量、脉冲宽度都是在一个较大的范围内随机变化的, 实验结果是统计平均的结果, 理论计算时却只能把激光的脉冲能量和脉冲宽度看成稳定不变的。激光脉冲的空间分布和时间分布都不可能是理想的高斯型分布, 而数值计算时也只能假设是理想的分布。作为一种积累型的非线性效应, 它的大小不仅和当前的激光脉冲的分布有关, 更决定于以前的分布情况。虽然本文在实验过程中采取了多种措施, 以减少这些非理想因素对实验结果的影响, 但是对于这样一个复杂的过程, 不可能完全消除它们的影响。总而言之, 对于瞬态热光非线性效应, 不论从理论上还是从实验上都有待更深入的研究。

4. 结 论

随着计算机技术的飞速发展, 使得人们能够用普通的个人计算机对前人的一些理论模型进行数值模拟, 给出更精确的数值解, 通过与实验结果的比较来检验这些理论。本文测量了厚样品瞬态热光非线性效应的 Z-scan 曲线, 并用数值计算的方法模拟了这一过程, 发现现有理论可以很好地解释瞬态热光非线性的一些结果, 比如 τ_p 和 τ_{ac} 比值的大小对于瞬态热光非线性效应强弱的影响等。对于薄样品, 理论和实验结果能较好地一致, 但对于厚样品, 数值计算的结果虽然和实验结果的基本形状一致, 但是差别还是非常明显, 特别是无法解释厚样品瞬态热光非线性的归一化 Z-scan 曲线在峰和谷之间的一段曲线明显高于 1.0 的现象, 说明瞬态热光非线性的理论模型有待进一步完善。

- [1] Gordon J P et al 1965 *J. Appl. Phys.* **36** 3
- [2] Akhmanov S A, Krindach D P, Migulin A V, Sukhorukov A P and Khokhlov R V 1968 *IEEE J. Quantum Electron.* QE-4 568
- [3] Leite R C C, Porto S P S and Damen T C 1967 *Appl. Phys. Lett.* **10** 100

- [4] Tian J G, Zang W P and Zhang G Y 1994 *Acta Phys. Sin.* **43** 1460 (in Chinese) 田建国、臧维平、张光寅 1994 *物理学报* **43** 1460
- [5] Jia Z H et al *Acta Opt. Sin.* **16** 635 (in Chinese) 贾振红等 1996 *光学学报* **16** 635
- [6] Tian J G et al 2000 *Chin. Phys. Lett.* **17** 510

- [7] Longaker P R and Litvak M N 1969 *J. Appl. Phys.* **40** 4033
 [8] Brachard P , Grolier-Mazza V and Cabanel R 1997 *J. Opt. Soc. Am. B* **14** 405
 [9] Kovsh D *et al* 1999 *Appl. Opt.* **38** 5168
 [10] Wen S C and Fan D Y 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 460 (in Chinese)
 [文双春、范滇元 2000 物理学报 **49** 460]
 [11] Sheik-Bahae M *et al* 1990 *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-26** 760

Study on thermally induced optical nonlinearities in thick nonlinear media *

Zhou Wen-Yuan Tian Jian-Guo[†] Zang Wei-Ping Zhang Chun-Ping Zhang Guang-Yin Wang Zhao-Qi

(College of Physics , Nankai University ; Key Laboratory of Optoelectronic Information Technical Science , Ministry of Education of China , Tianjin 300071 , China)

(Received 3 March 2002 ; revised manuscript received 21 April 2002)

Abstract

Thermo-optical effects in thick liquid media in a nanosecond regime is discussed. Thermo-optical effect in different thickness and different beam radius for the alcoholic solution of iodine was measured by *Z*-scan method. We solved simultaneously acoustic and electromagnetic wave equations to model refractive index change due to the thermal expansion in thick media. The results of experiment and modeling was compared and discussed.

Keywords : thermo-optical effects , nonlinear optics , numerical modeling

PACC : 7820N , 4265 , 0260

* Project supported by the National Funds for Outstanding Young Researchers (Grant No. 60025512), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 18974032), the National Major Fundamental Research Project of China (Grant No. 00026) the Foundation for University Key Teachers by the Ministry of Education of China , the Foundation from Centre of Optoelectronic Information Technical Science , Tianjin , and the Domestic Visitor Foundation of Institution of Higher Education of China .

[†] Author to whom correspondence should be addressed. E-mail : jjtian@nankai.edu.cn