# 大非线性相移下光学非线性 Z 扫描特性的研究\*

陈树琪 刘智波 臧维平 田建国<sup>†</sup> 周文远 张春平

(南开大学物理科学学院光子学中心,天津 300071)(2005年5月16日收到2005年7月31日收到修改稿)

采用高斯分解法(GD)对大非线性相移下的 Z 扫描特性进行了分析,通过对数值算法的优化,将 GD 推广到对 脉冲入射激光下大非线性相移下的 Z 扫描理论分析.对不同条件下大非线性相移 Z 扫描曲线峰谷结构的比较,发 现在大非线性相移的情况下 Z 扫描曲线的峰和谷随透过光阑或入射光强变化表现出某些新的特性.随着透过光阑 孔径的增加,Z 扫描曲线峰的变化要明显快于谷的变化,而且在谷明显存在的情况下,峰很快消失.采用皮秒脉冲激 光下的纯二硫化碳实验对理论结果加以验证,实验结果和理论分析相一致.我们的分析结果对大非线性相移下 Z 扫描测量有一定的指导性意义,避免在大非线性相移下对 Z 扫描结果产生错误的分析.

关键词:大非线性相移,高斯分解法,Z扫描 PACC:4265,4265B,0260

# 1.引 言

在上个世纪 90 年代初 Sheik-Bahae 等人提出了 一种用于光学非线性测量的 Z 扫描方法<sup>[12]</sup>.该方法 使用紧聚焦的单束高斯光束,在远场测量通过有限 孔径光阑的透过率 T和样品相对于焦平面的位置 坐标z的关系.Z扫描方法用于光学非线性系数的 测量具有测量灵敏度高和实验装置简单等优点,并 且能够同时得到材料非线性折射和非线性吸收的大 小和符号 因此被广泛用于材料光学非线性性质的 研究<sup>[3,4]</sup>.Z扫描方法不断地得到完善,并被相继应 用于其他方面的测试和研究,例如激光束质量的测 试以及高斯光束传输特性的研究<sup>[56]</sup>.Z扫描已经发 展成为非线性光学特性研究的一种具有重要实际应 用价值的实验方法和手段,为了准确地分析 Z 扫描 测量结果 必须深入地了解 Z 扫描理论,在文献 7] 中, Chapple 等人已经从理论和实验方面深入分析了 影响 Z 扫描测量的各个因素,处理薄非线性介质 Z 扫描,人们常用高斯分解法(GD)进行<sup>1278]</sup>,对于入 射激光为高斯光束的情况,在一阶近似下,可以得到 远场轴上透过率的简单解析表达式,当然也有一些 作者采用菲涅耳(Fresnel)衍射法<sup>[9]</sup>和汉克尔

(Hankel) 变换法<sup>10]</sup>对Z扫描进行数值分析.

在文献 11 冲, Yao 等人基于衍射的模型对 Z 扫描进行了理论分析 采用菲涅耳-基尔霍夫衍射积 分公式来求出远场接收屏的光强分布 进而求出非 线性相移较小的情况下开孔透过率等物理量 并且 将此结果推广到大非线性相移的情况,但是为了得 到光阑平面处的强度分布 必须完成菲涅耳-基尔霍 夫衍射积分,这是一个两维积分,数值计算效率低, 非常耗时:为了提高计算效率通常采用减小窗口或 增大积分计算的步长,这些方法都会增大计算误差; 其次 Yao 等人采用的理论分析都是针对时间连续 电场的 没有涉及到脉冲电场 然而在实际的实验中 为了得到大非线性相移 往往需要使用脉冲电场 如 果用文献 11 的方法分析脉冲电场的情况 被积函 数将变得三维 这样积分时间将变得更长 从而给数 值计算带来了更大的困难,在大非线性相移情况,我 们在以前的研究中已经证明了高斯分解法仍然是有 效的 而且实际上 GD 和菲涅耳-基尔霍夫处理方法 是等效的12],但相对于菲涅耳-基尔霍夫衍射积分 方法 GD 具有更快的计算速度. 在文献 11 1和 12] 仅给出了连续 CW )高斯光束的情况 而实际的 Z 扫 描实验中采用的多为脉冲激光 将连续高斯光束情 况拓展到脉冲高斯光束情况的处理将会更符合实际

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金(批准号 160025512),天津市自然科学基金(批准号 1043601211),南开大学创新基金资助的课题.

<sup>†</sup> E-mail : jjtian@nankai.edu.cn

的实验情况.

本文采用 GD 对大非线性相移下的 Z 扫描进行 了分析.通过对数值算法的优化,我们将 GD 推广到 对脉冲入射激光下大非线性相移下的 Z 扫描理论分 析.通过对脉冲入射激光下不同条件下大非线性相 移 Z 扫描曲线峰谷结构的比较,发现在大非线性相 移的情况下 Z 扫描曲线的峰和谷随透过光阑或入 射光强变化表现出某些新的特性.随着透过光阑或入 射光强变化表现出某些新的特性.随着透过光阑或入 射光强变化表现出某些新的特性.随着透过光阑或入 射光强变化表现出某些新的特性.随着透过光阑或入 射光强变化表现出某些新的特性.随着透过光阑或入 射光强变化表现出某些新的特性.随着透过光阑或入 射光强变化表现出某些新的特性.随着透过光阑或入 射光强变化表现出某些新的特性.随着透过光阑或入 射光强变化表现出某些新的特性.随着透过光阑或入 射光强变化表现出某些新的特性.通着透过光阑或入 别光强变化表现出某些新的特性.利利

## 2. 理论分析

为了简单起见,我们只讨论薄非线性介质具有 三阶光学非线性的情况,高阶非线性的分析方法完 全类似.

一个 TEM<sub>00</sub>高斯光束,沿 + z 方向传播.把样品 出射表面的复电场分解成一系列高斯光束的叠加, 每一个高斯光束独立传播到光阑平面,在光阑平面 再对电场进行重新求和,得到光阑处的电场为<sup>[2]</sup>

$$E_{a}(r, z, t) = E(z, r = 0, t)e^{-aL/2}$$

$$\times \sum_{m=0}^{\infty} \frac{[-i\Delta\varphi_{0}(z, t)]^{m}}{m!} \frac{w_{m0}}{w_{m}}$$

$$\times \exp\left(-\frac{r^{2}}{w_{m}^{2}} - \frac{ikr^{2}}{2R_{m}} + i\theta_{m}\right), (1)$$

设 g = 1 + d/R(z),d为在自由空间中从介质到光 阑平面的距离,方程(1)中其他参量如下:

$$w_{m0}^2 = w^2(z)(2m+1),$$
 (2a)

$$d_m = \frac{1}{2} k w_{m0}^2 , \qquad (2b)$$

$$R_m = d \left[ 1 - \frac{g}{g^2 + d^2/d_m^2} \right]^{-1} , \qquad (2c)$$

$$\theta_m = \tan^{-1} \left[ \frac{d/d_m}{g} \right] , \qquad (2d)$$

$$w_m^2 = w_{m0}^2 [g^2 + d^2/d_m^2],$$
 (2e)

其中  $\alpha$  是线性吸收系数 , $\Delta \varphi_0$  为非线性相移 ,w(z) =  $w_0(1 + z^2/z_0^2)^{1/2}$ 为光束半径 , $w_0$  是光束的束腰半

径 ,*R*(*z*) = *z*(1 +  $z_0^2/z^2$ ) 是 *z* 处的波前曲率半径 ,*z*<sub>0</sub> =  $\frac{1}{2} k w_0^2$  是光束的共焦参数 ,*k* = 2 $\pi/\lambda$  是波矢 , $\lambda$  是 激光波长.

从而可以得到光阑处的归一化透过率为

$$T(r_{a},z) = \frac{\int_{0}^{\infty} dt \int_{0}^{r_{a}} |E_{a}(r,z,t) \Delta \varphi_{0}(t)|^{2} r dr}{\int_{0}^{\infty} dt \int_{0}^{r_{a}} |E_{a}(r,z,t)|^{2} r dr},$$
(3)

其中 r。为光阑半径.

#### 2.1. 轴上小孔归一化透过率( $r_a \approx 0$ )

在大非线性相移的情况下,进行 Z 扫描理论分 析时,高斯分解法中的级数求和就不能只保留到  $|\Delta \varphi_0|$ 的一次项,而需要考虑非线性相移的高次项 对透过率的影响.为了简单起见,我们先分析连续电 场的情况,在远场条件下, $r_a \approx 0$ 时,由(3)式可以得 到 Z 扫描的归一化透过率为

$$T_{cw}(z \ \Delta \varphi_0) = |P(z \ \Delta \varphi_0)|^2$$
$$= \left|\sum_{m=0}^{\infty} C_m(z \ \mathbf{I} \ \Delta \varphi_0(z \ )^m \ ]\right|^2, \quad (4a)$$
$$C_m(z) = \frac{(-i)^m}{m!} \frac{w_{m0} w_0}{w_m w_{00}} \exp\left[i\left(\theta_m - \theta_0 - \frac{m\pi}{2}\right)\right]$$
$$(4b)$$

我们可以很容易地将稳态结果扩展到由脉冲电 场诱导的瞬态效应,数值计算由脉冲电场引起的 Z 扫描的归一化透过率可以分为两步,首先 将激光脉 冲总的作用时间分成很多时间层 在每一个时间层 中的传播就像连续激光一样,对每一个时间层独立 进行数值计算 ;其次 ,累积所有的时间层产生的效 应 这是一个关于时间的积分,可以用 Simpson 算法 高效率的完成这个积分.计算时间由所分的时间层 数所决定 总的时间由每一层连续激光所需要的计 算时间乘以时间层数所得到,图1给出了在小孔情 况下由连续激光和脉冲激光产生的 Z 扫描曲线 级 数求和项  $m = 30^{12}$ .其中实线和虚线分别是非线性 相移  $\Delta \varphi_0 = 3\pi$  下由连续激光和脉冲激光产生的 Z 扫描曲线,从图 1 可以看到 ,在同样的非线性相移 下 由脉冲激光产生的归一化透过率的峰和谷都要 比连续激光的小 :而且由脉冲激光产生的归一化透 过率的谷更光滑.



图 1 在小孔情况下,由连续激光和脉冲激光产生的 Z 扫描曲 线(非线性相移  $\Delta \varphi_0 = 3\pi$  级数求和项 m = 30)

#### 2.2. 一般的闭孔情况

我们首先定义无量纲半径  $Y_a = r_a/Dw_0$ ,即光阑 半径对光阑平面处线性光束半径的比值,其中  $D = d/z_0$ 为样品到光阑平面的距离.如果无量纲半径  $Y_a$ 大于 0.1,我们必须考虑光阑对闭孔 Z 扫描实验的 影响.一般情况下,随着无量纲半径  $Y_a$ 的增大,非 线性折射对 Z 扫描测量结果的影响逐渐减弱.

为了简单起见,我们先分析连续电场的情况,由 (3)式可以得到Z扫描的归一化透过率为

$$T_{cw} = \sum_{m=0}^{\infty} \sum_{k=0}^{\infty} a_{mn} \left\{ \cos \left( c_{mn} \frac{\pi}{2} \right) - \exp \left( - b_{mn} Y_{a}^{2} \right) \right. \\ \left. \times \cos \left[ c_{mn} \frac{\pi}{2} - d_{mn} Y_{a}^{2} \right] \right\} , \qquad (5)$$

其中

$$a_{nn} = \left[\frac{\Delta\varphi_0}{(1+x^2)}\right]^{m+n} \left[\frac{1}{S(m+n+1)m!n!}\right], \quad (6a)$$
  
$$b_{nn} = (1+x^2) \left[\frac{2m+1}{x^2+(2m+1)^2} + \frac{2n+1}{x^2+(2n+1)^2}\right], \quad (6b)$$

$$= m - n , \qquad (6c)$$

$$d_{mn} = \frac{4x(x^2 + 1)(m - n)(m + n + 1)}{[x^2 + (2m + 1)^2][x^2 + (2n + 1)^2]}, \quad (6d)$$

$$S = 1 - \exp(-2Y_a^2)$$
, (6e)

$$x = z/z_0. \tag{6f}$$

应用对称性,将(5)式简化为

$$T_{cw} = \sum_{m=0}^{k} \sum_{\substack{n=0\\n < m}}^{k-m} 2a_{mn} \left\{ \cos\left(c_{mn} \frac{\pi}{2}\right) - \exp\left(-b_{mn}Y_{a}^{2}\right) \cos\left[c_{mn} \frac{\pi}{2} - d_{mn}Y_{a}^{2}\right] \right\}$$



图 2 在闭孔情况下,由连续激光和脉冲激光产生的 Z 扫描曲线 (非线性相移  $\Delta \varphi_0 = 3\pi$ ,级数求和项 m = 30,无量纲半径  $Y_a = 0.5$ )

应用 2.1 中的切片方法,可以很容易将稳态结 果扩展到由脉冲电场诱导的瞬态效应。图 2 给出了 由连续激光和脉冲激光产生的闭孔 Z 扫描曲线 其 中非线性相移  $\Delta \varphi_0 = 3\pi$  级数求和项 m = 30 ,无量纲 半径  $Y_a = 0.5$ . 实线是由连续激光产生的闭孔 Z 扫 描曲线 虚线是由脉冲激光产生的闭孔 7 扫描曲线。 可以看出,由脉冲激光产生的归一化透过率的峰和 谷都要比连续激光的小 ,可以计算出由脉冲激光和 连续激光产生的 Z 扫描曲线的峰谷差  $\Delta T_{n}$  之比约 为 0.83. 一般地, 在非线性相移较小的情况下, 由脉 冲激光和连续激光产生的 Z 扫描曲线的峰谷差  $\Delta T_{\rm Pv}$ 之比为  $1/\sqrt{2}^{[13]}$ ,在大非线性相移下 ,这个值就 不再适用了.图 3 给出了随非线性相移  $\Delta \varphi_0$  的改 变 由脉冲激光和连续激光产生的归一化透过率峰 谷差 △T<sub>ву</sub>之比的曲线.可以看出,当非线性相移  $\Delta \varphi_0$  小于 2 的时候 这个比值近似等于  $1\sqrt{2}$  随着非 线性相移  $\Delta \varphi_0$  的增加 ,这个比值也在增加 ,这条曲 线的斜率先增大后减小 最后趋近于零 从而达到饱 和.当非线性相移  $\Delta \varphi_0 = 3\pi$  时,这个比值近似等于 0.83 这也与图 2 的结果是符合的.

图 4 给出了不同  $Y_a$  下由脉冲激光产生的 Z 扫 描曲线 ,无量纲半径  $Y_a$  分别为 0.5 0.8 ,1 2 和 3 ,非 线性相移  $\Delta \varphi_0$  为 3 $\pi$ .可以看出 ,在大非线性相移下 , Z 扫描曲线已经不再对称 ,随着  $Y_a$  的增大 ,归一化 透过率的峰逐渐减小 , $Y_a = 1$  时 ,归一化透过率的峰



图 3 不同的非线性相移  $\Delta \varphi_0$ 下  $\Delta T_{p,v}$ ( pulse ) $\Delta T_{p,v}$ ( cw)的变化 曲线



图 4 不同 Y<sub>a</sub>下由脉冲激光产生的 Z 扫描曲线 Y<sub>a</sub>分别为 0.5, 0.8, 1 2 和 3)

已经明显减小;Y,继续增大,当Y,=2时,归一化透 过率的谷已经明显变浅,整个过程中,峰的高度随着  $Y_{0}$ 的增加而减小,而谷的深度则趋于饱和.图 5 给 出了不同非线性相移  $\Delta \varphi_0$  下由脉冲激光产生的 Z 扫描曲线,非线性相移 Δφ₀ 分别为 0.5π,π,2π,3π 和  $4\pi$ ,无量纲半径  $Y_{a}$ 为 0.5.可以看出,在非线性相 移  $|\Delta \varphi_0| \leq \pi$  时 Ζ 扫描曲线是对称的 这与文献 1] 的结果是一致的;随着非线性相移  $\Delta arphi_0$ 的增加,  $|\Delta \varphi_0| > \pi$ 时 ,Z 扫描曲线变得越来越不对称 ,峰的 高度随着非线性相移  $\Delta \varphi_0$  的增加而增大,谷的深度 则趋于饱和,为了解释图4和图5中峰变化快谷变 化慢的原因 图 6 给出了样品分别位于 Z 扫描曲线 峰和谷的位置以及线性情况下光阑处归一化光强的 径向分布曲线.可以看出  $\Delta \varphi_0 = 0.1\pi$  时 ,在光阑处 的归一化光强变化趋势基本一致,这是非线性相移 较小的情况下图 5 中 Z 扫描曲线峰谷对称的原因;

随着非线性相移的增大,样品位于峰处时光阑处归 一化光强变化趋势要明显比样品位于谷处的变化 快,这正是图4和图5中峰变化快谷变化慢的原因. 下面我们将用实验对该结果加以证明.



图 5 不同的非线性相移  $\Delta \varphi_0$  下由脉冲激光产生的 Z 扫描曲线 ( $\Delta \varphi_0$  分别为  $0.5\pi \pi 2\pi 3\pi \pi 4\pi$ )



图 6 样品分别位于 Z 扫描曲线峰和谷的位置以及线性情况下 光阑处归一化光强的径向分布曲线

55 卷

3. 实验结果与分析

我们所用的 Z 扫描实验装置与文献 2.14 的相 同激光器、扫描移动装置、Boxcar等都由计算机控 制 整个测量过程在计算机的控制下自动进行,我们 将从激光器出射的激光先经过小孔衍射。在远场只 取衍射光斑的最内环 ,之后再经过空间滤波 ,从而得 到在时间包络和空间包络上完美的高斯光束 聚焦

透镜的焦距 f = 150mm ,光束的束腰半径  $w_0 = 20\mu$ m. 在探测器前加一个直径可以自由变化的限制光阑, 在限制光阑的后面用探测器 D<sub>2</sub>(Molectron J3S-10)测 量透射激光的光强,为了减少激光脉冲能量起伏的 影响,每一个测量点结果为入射能量波动低于5% 的 50 个激光脉冲的测量结果的平均值,实验所用的 光源是 PY61 染料脉冲激光系统(Continuum 公司), 输出波长为 532nm 脉冲宽度为 30ps 脉冲重复频率 10Hz.



图 7 相同输出能量下不同 Y<sub>a</sub>的实验和理论拟合 Z 扫描曲线 非线性相移 Δφ<sub>0</sub> = 1.80π, Y<sub>a</sub> 分别为 0.148 0.370 0.593 和 1.077 )



实验中 选择纯的二硫化碳作样品 因为二硫化 碳有很强的光克尔效应 并且它常被用作确定三阶 光学非线性系数大小的参考标准,二硫化碳样品在 1mm 厚的石英比色皿中,我们测量了相同输出能量 下,光阑半径 r。分别为 4mm,10mm,16mm 和 28mm 的 Z 扫描曲线 还测量了光阑半径 r<sub>a</sub> = 16mm 时,不 同输出能量下的 Z 扫描曲线.图 7 给出了相同输出 能量下不同 Y<sub>2</sub> 的实验和理论拟合 Z 扫描曲线 非线 性相移  $\Delta \varphi_0 = 1.80\pi$ , Y<sub>a</sub> 分别为 0.148, 0.370, 0.593 和 1.077.可以看出,在不同的 Y<sub>a</sub>下实验结果和数 值计算结果符合得很好;随着 Y<sub>a</sub> 的增大 ,Z 扫描曲 线的峰逐渐减小,并且在 Y<sub>a</sub> = 1.077 时,实验和理论 曲线的峰接近消失,如果继续增大 Y。,Z 扫描曲线 的峰就会消失 这也与图 4 中理论曲线的变化趋势 是一致的,文献 11 将这种现象归因于非线性吸收, 而我们的研究结果表明 在大非线性相移下 必须考 虑光阑孔径对非线性折射的影响,它可以造成 Z 扫 描曲线的谷远大于峰,类似存在非线性吸收的情况. 图 8 给出了相同 Y。下不同输出能量的实验和理论 拟合 Z 扫描曲线 ,无量纲半径 Y<sub>a</sub> = 0.593 ,非线性相

移  $\Delta \varphi_0$  分别为 0.24π ,1.14π ,1.5π 和 2.10π. 可以看 出 ,在不同的非线性相移  $\Delta \varphi_0$  下实验结果和数值计 算结果也符合得很好 ;随着非线性相移  $\Delta \varphi_0$  的增 加 Z 扫描曲线越来越不对称 , $\Delta \varphi_0 = 2.10π$  时 ,曲线 的谷已经趋于饱和 ,这也与图 5 中理论曲线的变化 趋势是一致的

### 4.结 论

综上所述,我们用高斯分解法(GD)对由脉冲电 场诱导的大非线性相移下的 Z 扫描进行了研究,证 明了 GD 仍然可以用来分析大相移下的 Z 扫描理 论,并对脉冲和连续两种不同入射激光下的大非线 性相移 Z 扫描曲线的峰谷结构进行了比较.我们发 现在大非线性相移的情况下,Z 扫描曲线的峰和谷 随透过光阑或光强的变化表现出来某些新的特性. 我们采用皮秒脉冲激光下的纯二硫化碳实验对理论 分析加以验证,结果表明理论与实验结果是相一 致的.

- [1] Sheik-Bahae M, Said A A, Vanstryland E W 1989 Opt. Lett. 14 955
- [2] Sheik-Bahae M, Said A A, Wei T, Hagan D J, Vanstryland E W 1990 IEEE. J. Quantum Electron. 26 760
- [3] Fang G Y, Song Y L, Wang Y X et al 2000 Acta Phys. Sin. 49
   1499 (in Chinese ] 方光宇、宋瑛林、王玉晓 等 2000 物理学报
   49 1499 ]
- [4] Wang W T, Yang G, Chen Z H et al 2002 Chin. Phys. 11 1324
- [5] Lee S J , Lee Y L , Woo S Y , Hwang W , Lee J H , Kim J H , Kwak C H 2003 Lasers and Electro-Optics. 1 246
- [6] Paz-Alonso M J, Michinel H, Bara S 2003 J. Opt. Soc. Am B 20 2484
- [7] Chapple P B, Straromlynska J, Hermann J A, Mckay T J, McDuff R G 1997 J. Nonlin. Opt. Phys. Mat. 6 251
- [8] Weaire D, Wherrett BS, Miller DAB, Smith SD 1979 Opt.

Lett . 4 331

- [9] Ricardo Elgul Samad, Nilson Dias Vieira 1998 J. Opt. Soc. Am B 15 2742
- [10] Gaskill J D 1978 Linear System, Fourier Transforms, and Optics (New York: Wiley)
- [12] Zang W P, Tian J G, Liu Z B et al 2003 Acta Opt. Sin. 23 1451 (in Chinese] 臧维平、田建国、刘智波等 2003 光学学报 23 1451]
- [13] Sutherland R L 1996 Handbook of Nonlinear Optics (Marcel Dekker, New York) Chap. 7
- [14] Zhou W Y, Tian J G, Zang W P et al 2002 Acta Phys. Sin. 51 2623 (in Chinese ] 周文远、田建国、臧维平 等 2002 物理学报 51 2623 ]

# Study on Z-scan characteristics for large optical nonlinear phase shift \*

Chen Shu-Qi Liu Zhi-Bo Zang Wei-Ping Tian Jian-Guo<sup>†</sup> Zhou Wen-Yuan Zhang Chun-Ping

( Photonics Center , College of Physics , Nankai University , Tianjin 300071 , China ) ( Received 16 May 2005 ; revised manuscript received 31 July 2005 )

#### Abstract

Using Gaussian decomposition (GD) method, we studied the theory of Z-scan with large nonlinear phase shift induced by a pulsed laser. It has been verified that the GD method is still valid to deal with analysis of Z-scan measurements with large nonlinear phase shift. By comparing the peak-valley configuration of the Z-scan curves for large nonlinear phase shift induced by pulsed and CW laser, we found that some new peak-valley features of the Z-scan curves appear as the aperture size or light intensity increases in the case of large nonlinear phase shift. Meanwhile, we carried out the Z-scan experiments of pure  $CS_2$  to confirm the results of numerical simulation in the case of large nonlinear phase shift induced by a picosecond pulsed laser. The experimental results agree well with the theoretical. Our results have some significance to the measurement of Z-scan with large nonlinear phase shift induced by a pulsed laser.

Keywords : large nonlinear phase shift , Gaussian decomposition method , Z-scan PACC : 4265 , 4265 B , 0260

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60025512), the Natural Science Foundation of Tianjin (Grant No. 0436012 11), and the Innovation Foundation of Nankai University.

<sup>†</sup> E-mail: jjtian@nankai.edu.cn