

# 测量慢弛豫介质的非线性折射率 Z 扫描方法\*

杨启光 费浩生<sup>1)</sup> 魏振乾

(吉林大学物理系, 长春 130023)

(1994年8月9日收到)

对非线性折射率慢弛豫介质的Z扫描理论进行了详细推导, 得到了透射光场的表达式。分析表明: 对于慢弛豫介质, 其Z扫描过程也是非线性折射的累积过程。实验结果与理论分析一致。

PACC: 4290; 4265J

## 1 引 言

非线性光学材料由于在光学存储、光计算、光通信、光限幅等领域的极其重要的应用, 越来越受到人们的重视。测量材料的非线性折射率 $n_2$ 是研究其非线性光学效应的重要手段, 已逐步发展了多种方法<sup>[1]</sup>。最近, 由Bahae等人提出的测量非线性折射率的Z扫描技术<sup>[2]</sup>, 由于其操作简单, 测量灵敏度高, 能方便地确定非线性折射率的符号, 而且可将非线性吸收系数和非线性折射率分开, 同时测量非线性折射率的实部和虚部, 从而引起了人们的极大兴趣<sup>[3-5]</sup>。但是在他们的讨论中, 仅考虑了非线性折射率快弛豫, 亦即实时的情形, 因而结果与Z扫描的速度无关。但是许多非线性介质的弛豫较慢, 此时Z扫描的线型就与扫描速度和弛豫时间有关。

利用Z扫描技术, Michelotti等人在实验中观察到了额外的Z扫描信号, 他们认为这是样品在强激光作用下由于其结构的改变而感生的永久透镜效应, 并用一短焦距薄透镜代替该感生透镜, 对实验结果进行了粗略的处理<sup>[6]</sup>。我们在用连续的He-Ne激光测量具有慢弛豫特性的材料的非线性折射率时, 也观察到了这种“额外”信号。我们认为这是由于样品具有的慢弛豫特性的必然结果。介质的非线性效应的来源是多种多样的, 有的过程弛豫时间很短, 可视为瞬时过程; 有的过程弛豫时间却很长, 在光场消失后, 光致非线性折射并不与之同时消失。当这两种过程都存在时, 则在用Z扫描技术测量介质的非线性折射率时, 样品位于 $z$ 处时激光感生的类透镜可分为实时和慢变两部分, 其中慢变类透镜随时间逐渐衰减, 并且对 $z$ 以后各点的透射率有着不同大小的贡献。当然,  $z$ 处的透射率亦包括了它以前的各点所形成的慢变类透镜的影响。本文从理论上分析了具有慢弛豫

\* 国家自然科学基金资助的课题。

1) 通信联系人。

特性的材料的 Z 扫描透射光场的特点, 指出了慢弛豫效应对 Z 扫描信号的重大影响。与实验结果比较, 表明理论与实验相符合。

## 2 慢弛豫效应对 Z 扫描信号的影响

如图 1 所示, 具有高斯光强分布的光束沿  $z$  轴传播, 一凸透镜将光束聚焦于轴上某点, 具有非线性折射率的薄膜样品沿  $z$  轴移动, 通过测量样品在焦点前后不同位置处远场小孔的透射率, 就可以得到样品的非线性折射率  $n_2$  的大小和符号。

在高斯光束作用下, 非线性引起的光感生折射效应将对通过样品的光束的位相进行调制, 此时样品相当于一个无确定焦距的透镜。透镜的正负取决于样品的非线性折射率的正负。

假定一个具有负非线性系数的样品从  $+z$  向  $-z$  方向移动, 开始时, 由于照射到样品上的光功率密度较低, 非线性效应可以忽略。这时远场的透射率 ( $D_2/D_1$ ) 为一常数, 即样品的透过率是线性的。当样品接近焦点时, 样品中感生一类负透镜, 负透镜的发散作用使得光束的束腰变大, 小孔平面光斑变大, 透射率减小; 样品位于焦点时, 透镜对光束的影响最小, 透射率近似为线性值; 样品通过焦点后, 同样由于负透镜的发散作用, 会聚光束在小孔平面的光斑变小, 透射率增加; 样品远离焦平面时, 又将逐渐到达线性区。因此透射率曲线为一先谷后峰结构。

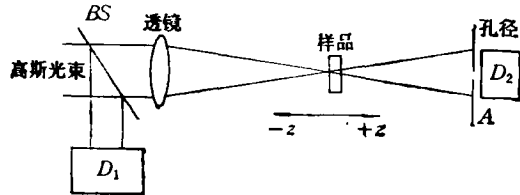


图 1 Z 扫描实验装置 BS 为分束器;  $D_1, D_2$  为光探测器

由同样的分析可以得出: 具有正非线性折射率的样品的透射率曲线为先峰后谷的结构。因此我们从 Z 扫描曲线的结构, 就可以得出材料的非线性系数的符号。经过适当的理论处理, 也可以得到不同情况下的非线性折射率的数值<sup>[3-5]</sup>。

下面推导薄样品近似下慢弛豫介质的 Z 扫描理论。

具有三阶非线性的介质, 其折射率为

$$n = n_0 + \Delta n = n_0 + \gamma I = n_0 + \frac{1}{2} n_2 |E|^2, \quad (1)$$

其中  $I$  为入射光强度,  $E$  为峰值场强,  $n_0$  为介质的线性折射率,  $\gamma$  为非线性折射率 (MKS),  $n_2$  为 cgs 制下的非线性折射率,  $\gamma$  和  $n_2$  的关系为<sup>[6]</sup>

$$n_2(\text{esu}) = \frac{cn_0}{40\pi} \gamma(\text{m}^2/\text{W}), \quad (2)$$

其中  $c$  为真空中光束。

如前所述, 如果光致非线性折射具有快、慢两个弛豫过程, 则介质中除了感生一实时类透镜外, 还将感生一慢变化的类透镜, 该类透镜随时间逐渐衰减。设它的衰减常数为  $\tau$ , 则可用指数函数  $\exp(-t/\tau)$  近似描述这种衰减。透镜的衰减, 表现为它对光束的位相调制作用变弱, 亦即对折射率改变的贡献随时间增加而减少。这样, 样品在  $z$  处的折射

率改变可表示为

$$\Delta n(z) = \sum_{z_i} \eta \gamma I(z_i) \exp\left(-\frac{|z - z_i|}{\nu \tau}\right) + (1 - \eta) \gamma I, \quad (3)$$

其中  $\nu$  为样品沿  $z$  轴移动的速度,  $\eta$  为慢变类透镜引起的折射率改变占总的折射率改变的百分比, 求和从扫描的起点至样品所在的  $z$  点, 其中  $z_i$  处的光强为

$$I(z_i, t) = I_0(t) \frac{\omega_0^2}{\omega^2(z_i)} \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega^2(z_i)} - \alpha L'\right), \quad (4)$$

其中  $\omega_0$  为光束的束腰半径,  $\omega(z_i) = \omega_0(1 + z_i^2/z_0^2)^{1/2}$  为  $z_i$  处的光束半径,  $z_0 = k\omega_0^2/2$  为光束的衍射长度,  $k = 2\pi/\lambda$  为波矢,  $\lambda$  为激光的波长,  $\alpha$  为样品的吸收系数,  $L'$  为光束透过样品的深度.

由(3)和(4)两式, 可以得出光束通过样品后的位相改变为

$$\begin{aligned} \Delta\Phi(z, r, t) &= \int_{L'} \Delta n(z) k dL' \\ &= \Delta\Phi_0(t) \sum_{z_i} \frac{\eta}{1 + z_i^2/z_0^2} \exp\left(-\frac{|z - z_i|}{\nu \tau} - \frac{2r^2}{\omega^2(z_i)}\right) \\ &\quad + (1 - \eta) \frac{\Delta\Phi_0(t)}{1 + z^2/z_0^2} \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega^2(z)}\right), \end{aligned} \quad (5)$$

其中

$$\Delta\Phi_0(t) = \gamma I_0(t) k \frac{1 - e^{-\alpha L}}{\alpha}, \quad (6)$$

其中  $L$  为样品厚度.

由此可以得到通过样品后的光场为

$$E_s(z, r, t) = E(z, r, t) e^{-\alpha L/2} e^{i\Delta\Phi(z, r, t)}. \quad (7)$$

利用惠更斯原理, 或者利用所谓的“高斯分解”法<sup>[7]</sup>, 可以由(7)式得出小孔平面上光场的分布函数. 设扫描从远离焦平面处开始, 则在小位相畸变 ( $|\Delta\Phi_0(t)| \ll 1$ ) 条件下, 其结果为

$$\begin{aligned} E_s(r, t) &\approx E(z, r=0, t) e^{-\alpha L/2} \sum_{m=0}^{m=1} \left\{ \sum_{z_i} \frac{[i\eta\Delta\Phi_0(z_i, t)]^m}{m!} \frac{\omega_{m0}'}{\omega_m'} \right. \\ &\quad \times \exp\left(-\frac{r^2}{\omega_m'^2} + i\frac{kr^2}{2R_m'} + i\theta_m' - \frac{m|z - z_i|}{\nu \tau}\right) \\ &\quad \left. + \frac{[i(1 - \eta)\Delta\Phi_0(z, t)]^m}{m!} \frac{\omega_{m0}}{\omega_m} \exp\left(-\frac{r^2}{\omega_m^2} + i\frac{kr^2}{2R_m} + i\theta_m\right) \right\}, \end{aligned} \quad (8)$$

其中各物理量定义如下:

$$g = 1 + d/R(z), \quad R(z) = z(1 + z_0^2/z^2), \quad \omega_{m0}^2 = \frac{\omega^2(z)}{1 + 2m},$$

$$\omega_{m0}'^2 = \frac{\omega^2(z)}{1 + 2m\omega^2(z)/\omega^2(z_i)}, \quad d_m = \frac{k\omega_{m0}^2}{2}, \quad d_m' = \frac{k\omega_{m0}'^2}{2},$$

$$\omega_m^2 = \omega_{m0}^2(g^2 + d^2/d_m^2), \quad \omega_m'^2 = \omega_{m0}'^2(g^2 + d^2/d_m'^2),$$

$$R_m = d \left( 1 - \frac{g}{g^2 + d^2/d_m^2} \right)^{-1}, \quad R'_m = d \left( 1 - \frac{g}{g^2 + d^2/d_m'^2} \right)^{-1},$$

$$\theta_m = \tan^{-1} \left( -\frac{d/d_m}{g} \right), \quad \theta'_m = \tan^{-1} \left( -\frac{d/d'_m}{g} \right), \quad \Delta\Phi_0(z, t) = \frac{\Delta\Phi_0(t)}{1 + z^2/z_0^2},$$

$$\Delta\Phi_0(z, t) = \frac{\Delta\Phi_0(t)}{1 + z^2/z_0^2}, \quad \text{其中 } d \text{ 表示样品到小孔平面的距离.}$$

透射率由空间积分得

$$P_T(\Delta\Phi_0(t)) = \frac{1}{2} c \epsilon_0 n_0 \int_0^{r_0} |E_s(r, t)|^2 2\pi r dr, \quad (9)$$

其中  $\epsilon_0$  为真空中的介电常数,  $r_0$  为小孔半径. 归一化 Z 扫描透射率为

$$T(z) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} P_T(\Delta\Phi_0(t)) dt}{S \int_{-\infty}^{+\infty} P_i(t) dt}, \quad (10)$$

其中  $P_i(t) = \pi \omega_0^2 I_0(t)/2$  为瞬时输入功率,  $S = 1 - \exp(-2r_0^2/\omega_0^2)$  为小孔的线性透射率,  $\omega_0$  为线性情况下光束在小孔处的半径.

### 3 数值计算与讨论

图 2 为在  $\Delta\Phi_0(t) = -0.1$ ,  $\eta = 0.1$ ,  $v\tau$  取不同值时利用(8)式进行数值计算得到的轴上归一化 Z 扫描透过率曲线. 可以看出曲线的峰谷差值  $\Delta T_{p-v}$  随  $v\tau$  的增大而增大, 而且峰谷距离  $\Delta z_{p-v}$  也同时增大. 图 3 和图 4 为理论计算得到的  $\Delta T_{p-v}$  和  $\Delta z_{p-v}$  随  $v\tau$  的变化关系曲线. 由此可以看到: 归一化 Z 扫描透过率曲线线型与扫描速度  $v$  和非

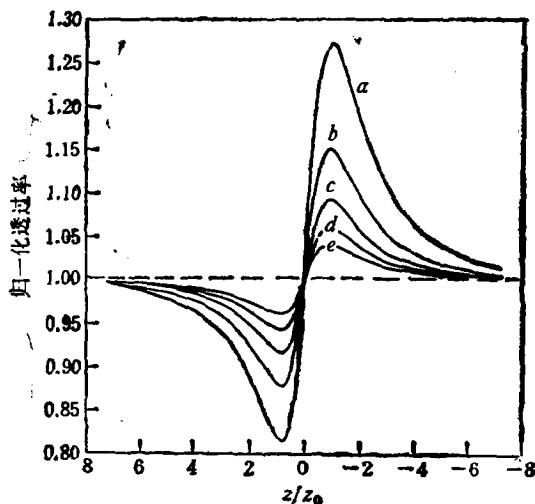


图 2 具有不同弛豫时间的三阶非线性介质的 Z 扫描透过率曲线  $\Delta\Phi_0 = -0.1$ ;  $\eta = 0.1$ ; 曲线 a 为  $v\tau = 1 \times 10^{-3}$  m; 曲线 b 为  $v\tau = 5 \times 10^{-3}$  m; 曲线 c 为  $v\tau = 2.5 \times 10^{-3}$  m; 曲线 d 为  $v\tau = 1 \times 10^{-3}$  m; 曲线 e 为  $v\tau = 0$  m ( $\tau = 0$  s)

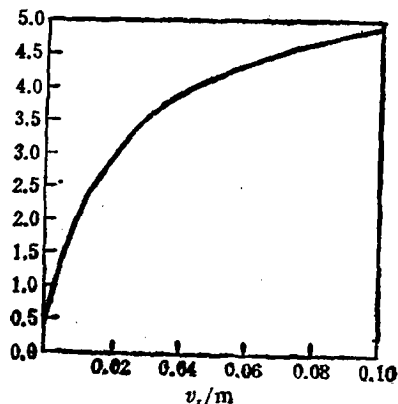


图 3 归一化峰谷差值  $\Delta T_{p-v}$  随  $v\tau$  的变化关系曲线  $\Delta\Phi_0 = -0.5$ ;  $\eta = 0.1$

线性折射的弛豫时间  $\tau$  有极大的关系。这与 Bahae 等人所得结果不同。只有当  $\nu\tau$  的值很小,亦即只有当非线性折射弛豫很快或者扫描速度很慢时,由(8)式所得结果才与文献[2]一致。

上述结果表明对于具有慢弛豫过程的非线性材料,在 Z 扫描过程中,样品的非线性折射是一累积作用的结果,即在  $z$  点感生的非线性折射,对  $z$  以后的各点的非线性折射都有一定的贡献。只有当  $\nu\tau$  非常小时,才能忽略这种累积作用。

图 5 表示曲线的峰谷差值  $\Delta T_{p,-}$  随慢弛豫过程所占比例  $\eta$  的增加而增大的情形。这是很显然的,  $\eta$  的增加,表示非线性折射的累积作用的贡献增大,则  $\Delta T_{p,-}$  值也会增大。

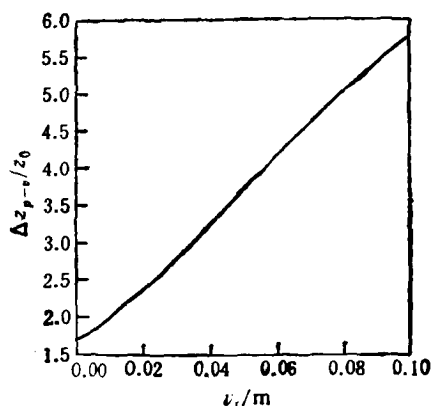


图 4 峰谷距离  $\Delta z_{p,-}/z_0$  随  $\nu\tau$  的变化关系曲线  
说明同图 3

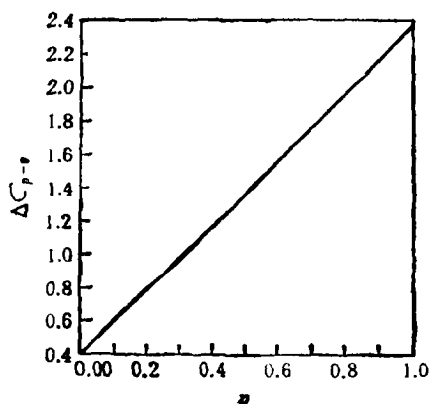


图 5 归一化峰谷差值  $\Delta T_{p,-}$  随  $\eta$  的变化关系曲线  
 $\Delta\Phi_0 = -0.5$ ;  $\nu\tau = 1\text{mm}$

## 4 实验结果

为了证实上述的理论分析,我们用一具有慢弛豫非线性折射的偶氮类化合物有机薄膜进行了 Z 扫描实验,样品厚度约为 1mm。我们所做的简并四波混频实验表明样品在吸收带尾的 632.8nm 处具有大的三阶非线性系数 ( $\chi^{(3)} \sim 10^{-4}\text{esu}$ ),其非线性响应具有快、慢两种过程<sup>[9]</sup>。

实验所用光源为 632.8nm 的 He-Ne 激光,束腰半径约为 0.5mm。实验装置如图 1 所示。实验所用透镜焦距约为 14cm,光腰距透镜的距离约为 60cm,小孔半径为 1mm,满足  $S \approx 0$  的条件。样品沿  $z$  轴的扫描速度约为  $3 \times 10^{-4}\text{m/s}$ 。通过小孔后的透射信号经衰减后用光电倍增管(PMT)接收,然后由计算机进行处理。图 6(a), (b) 分别为 2.5mW 和 0.075mW 光强下的 Z 扫描曲线。图中的曲线 b 为实验结果,曲线 a 为由(8)式给出的拟合曲线。拟合参数  $\tau \approx 2.78\text{h}$ ,  $\eta = 0.1$ 。由此可得出样品的非线性折射率分别为  $n_2 = -1.4 \times 10^{-4}\text{esu}$  和  $n_2 = -6.0 \times 10^{-4}\text{esu}$ 。与用简并四波混频方法测得的结果基本一致<sup>[9]</sup>。

从这里可以看出:如果  $\nu\tau$  取值很大,则即使在位相畸变很小的情况下,峰谷距离  $\Delta z_{p,-}$  也很大。这是不考虑慢弛豫效应的影响所无法解决的问题。

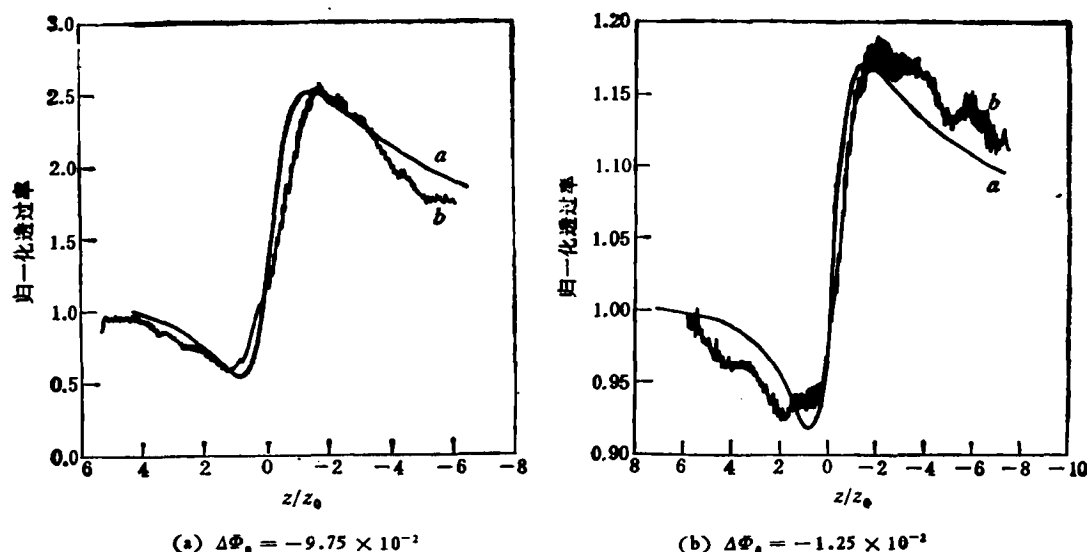


图 6 实验曲线及其拟合曲线

## 5 结 论

本文讨论了非线性折射率慢弛豫介质的 Z 扫描理论。慢弛豫介质的 Z 扫描透射率曲线的峰谷高度远大于快弛豫介质的峰谷高度,因而在处理慢弛豫介质的 Z 扫描曲线时,除非  $\nu\tau$  值很小(以至于它对 Z 扫描曲线的贡献可以忽略),一般都必须考虑慢弛豫效应的影响;慢弛豫介质的 Z 扫描曲线的峰谷距离  $\Delta z_p$ ,也和快弛豫时的不同,它是类透镜的时间衰减常数和入射光强的函数;最后必须指出的是,曲线的线型还和样品扫描的速度有关。这表明在用 Z 扫描技术测量介质的非线性折射率时,要特别注意扫描速度和介质的非线性过程的弛豫特性。

- [1] 费浩生,物理,23(1994),129.
- [2] M. S. Bahae, A. A. Said, Tai-buei Wei, D. J. Hagan and E. W. Van Stryland, *IEEE J. Quantum Electron.*, 26 (1990), 760.
- [3] R. Desalvo, M. S. Bahae, A. A. Said, D. J. Hagan and E. W. Van Stryland, *Opt. Lett.*, 18 (1993), 194.
- [4] F. Michelotti, E. Fazio, F. Senesi, M. Bertolotti, V. Chumash and A. Andriesh, *Opt. Commun.*, 101 (1993), 74.
- [5] 臧维平、田建国、张光寅,物理学报,43(1994),476.
- [6] W. E. Williams, M. J. Soileau and E. W. Van Stryland, *Opt. Commun.*, 50 (1984), 256.
- [7] D. Weaire, B. S. Wherrett, D. A. B. Miller and S. D. Smith, *Opt. Lett.*, 4 (1979), 331.
- [8] Haosheng Fei, Zhenqian Wei, Xinxian Bao, Qiguang Yang, Ruijuan Nie, Yuquan Shen, Xingfa Fu, Ling Qiu, *Opt. Lett.*, accepted.

## MEASUREMENT OF NONLINEAR REFRACTIVE INDEX WITH Z-SCAN METHOD FOR SLOW DECAY MATERIALS

YANG QI-GUANG FEI HAO-SHENG WEI ZHEN-QIAN

(*Department of Physics, Jilin University, Changchun 130023*)

(Received 9 August 1994)

### ABSTRACT

The measurement of nonlinear refractive index with Z-scan method for slow decay materials are discussed in detail. We derive the resultant electric field pattern at the aperture. It is pointed out that the accumulating effect contribute largely to the Z-scan signal in the slow decay nonlinear optical materials. The theoretical analysis is consistent with experimental result.

**PACC:** 4290; 4265J