

# Z扫描测量中的热致非线性效应\*

贾振红 李 敏 陈益新 陈英礼 周 骏

(上海交通大学应用物理系, 上海 200030)

**摘 要** 从热传导方程出发, 研究了用脉冲激光进行 Z 扫描测量时因样品线性吸收引起热效应而产生的折射率变化, 所得结论同以前实验结果相符合。

**关键词** Z 扫描, 热效应, 非线性折射率。

## 1 引 言

Z 扫描<sup>[1]</sup>法是一种实验装置简单而又具有高灵敏度的测量方法, 广泛地被用于材料的非线性折射率的测量及其它非线性光学性质的研究。为了能测出外加光场作用下的折射率变化, 通常用短脉冲激光来提高外加光场的强度, 其中由热效应引起的折射率变化与其它效应产生的折射率变化形式是不一样的。对于吸收产生的热效应来说, 其有效极化率阶数高于 3, 所以折射率变化在一般情况下不与光强  $I$  成正比, 故不能定义相应的非线性折射率  $n_2^{[2]}$ 。

本文从热传导方程出发, 对在激光脉冲作用下, 由于样品线性吸收产生热效应引起的折射率变化进行了研究。结果表明, 当激光脉冲宽度远小于被测样品的特征时间时, 其热效应产生的折射率变化与其它效应产生的折射率变化有类似的形式, 即与入射激光脉冲光强的空间部分成正比, 因而可定义时间平均非线性折射率。在这种情况下, 可用通常的 Z 扫描法进行非线性折射率  $n_2$  及折射率温度系数  $dn/dT$  的测量, 本文所得结论与以前的实验结果相同。

## 2 理论分析

设强度为  $I$  的激光沿  $z$  方向穿过较薄的样品时, 满足

$$dI/dz' = -\alpha I \quad (1)$$

式中  $\alpha$  为线性吸收系数,  $z'$  为激光在样品中的传播长度。

如果入射激光是空间分布非均匀的高斯光束, 则因介质吸收而造成的加热也是非均匀的, 故使温度分布不均匀, 产生的折射率变化  $\Delta n_c$  也是非均匀的。对于气体和液体介质, 及激光脉冲较短情况下的固体介质, 则有:

$$\Delta n_c = \frac{dn}{dT} \Delta T \quad (2)$$

\* 上海市科技发展基金资助课题。

收稿日期: 1995 年 4 月 7 日; 收到修改稿日期: 1995 年 9 月 8 日

设其它过程产生的折射率变化为  $\Delta n_1$ ,

$$\Delta n_1 = n_2 I \quad (3)$$

$n_2$  为材料的非线性折射率。

在入射激光脉冲较短时, 可忽略因热传递过程中的辐射、自然对流及强迫对流引起的光束畸变, 并假设介质的光学和热力学参数与温度无关。因短脉冲的微小局域加热, 可不考虑材料与空气及容器的热交换, 热传导方程为:

$$c\rho \frac{dT}{dt} = Q + \kappa \nabla^2 T \quad (4)$$

其中  $c$  为材料的比热,  $\rho$  为密度,  $\kappa$  为热导率,  $Q$  是由于吸收而单位时间、单位长度产生的热量, 定义为:

$$Q = \frac{dI}{dz'} \quad (5)$$

从(4)式可求出时刻  $t$ 、柱坐标  $(r, z)$  中一点的温升<sup>[3]</sup>:

$$\Delta T(r, z, t) = \int_0^t \int_{-\infty}^{\infty} 2\pi r_1 Q(r_1, t_1, z) G(r, r_1, t - t_1) dr_1 dt_1, \quad (6)$$

其中

$$G(r, r_1, t) = \frac{1}{4\pi\kappa t} \exp\left[-\frac{(r^2 + r_1^2)}{4Dt}\right] I_0\left(\frac{rr_1}{2Dt}\right) \quad (7)$$

为格林函数,  $D = \kappa/\rho c$  为热扩散率,  $I_0(x) = J_0(ix)$  为零阶第一类贝塞尔函数。

设入射激光脉冲为:

$$\begin{aligned} I(r, z, t) &= I(0, 0, 0) \frac{w_0^2}{w^2(z)} \exp\left[-\frac{2r^2}{w^2(z)}\right] A(t) \\ &= I(0, z, 0) \exp\left[-\frac{2r^2}{w^2(z)}\right] A(t), \end{aligned} \quad (8)$$

$I(0, 0, 0)$  为激光峰值强度。根据(1)、(5)、(8)式, (6)式可表示为:

$$\begin{aligned} \Delta T(r, z, t) &= \frac{\alpha I(0, z, 0)}{2\kappa} \int_{-\infty}^t \frac{A(t_1)}{t - t_1} \exp\left\{\frac{-r^2}{4D(t - t_1)}\right\} \int_0^{\infty} I_0\left(\frac{rr_1}{2D(t - t_1)}\right) \\ &\quad \times \exp\left[\frac{-2r_1^2}{w^2(z)} - \frac{r_1^2}{4D(t - t_1)}\right] r_1 dr_1 dt_1, \end{aligned} \quad (9)$$

对上式进行拉普拉斯变换得:

$$\begin{aligned} \Delta T(r, z, t) &= \frac{\alpha D w^2(z) I(0, z, 0)}{\kappa} \int_{-\infty}^t A(t_1) \frac{\exp\{-2r^2/[w^2(z) + 8D(t - t_1)]\}}{w^2(z) + 8D(t - t_1)} dt_1 \\ &= \frac{\alpha D I(0, z, 0)}{\kappa} \int_{-\infty}^t \frac{A(t_1) \exp\left[-\frac{2r^2}{w^2(z)} \frac{1}{1 + 2(t - t_1)/t_c}\right]}{1 + 2(t - t_1)/t_c} dt_1 \end{aligned} \quad (10)$$

其中  $t_c = t_c(1 + z^2/z_0^2)$ ,  $t_c = w_0^2/4D$ , 定义为特征时间。由(2)式可求出热效应引起的折射率变化为:

$$\Delta n_1(t) = \frac{\alpha D (dn/dT) I(0, z, 0)}{\kappa} \int_{-\infty}^t \frac{A(t_1) \exp\left[-\frac{2r^2}{w^2(z)} \frac{1}{1 + 2(t - t_1)/t_c}\right]}{1 + 2(t - t_1)/t_c} dt_1, \quad (11)$$

从上式可以看出, 通常情况下, 热效应产生的折射率变化并不正比于场强的空间部分。

故无法用通常的 Z 扫描法进行测量。

由文献[4]、[5]可知,对于大多数液体材料而言,束腰  $w_0 = 50 \mu\text{m}$  时,特征时间约 0.5 s 左右。因此,当入射激光脉冲宽度  $t_w \ll t_c$  时,考虑  $0 \sim t_w$  时间范围,(11)式可写成:

$$\Delta n_r(t) = \frac{\alpha D(dn/dT)I(0, z, 0)}{\kappa} \exp\left(-\frac{2r^2}{w^2(z)}\right) \int_{-\infty}^t A(t_1) dt_1, \quad (12)$$

设入射激光为矩形脉冲,脉冲宽度为  $t_w$ ,由  $t = 0$  时刻起始,

$$A(t) = \begin{cases} 1 & 0 \leq t \leq t_w, \\ 0 & t > t_w \end{cases}$$

由(12)式得,

$$\Delta n_r(t) = \frac{\alpha D(dn/dT)t}{\kappa} I(z, r, 0) \quad (13)$$

若入射激光为高斯型脉冲,  $A(t) = \exp(-t^2/\tau^2)$ ,由(12)式得

$$\Delta n_r(t) = \begin{cases} \frac{\sqrt{\pi} \tau \alpha D(dn/dT)[1 - \text{erf}(t/\tau)]}{2\kappa} I(z, r, 0), & t \leq 0 \\ \frac{\sqrt{\pi} \tau \alpha D(dn/dT)[1 + \text{erf}(t/\tau)]}{2\kappa} I(z, r, 0), & t \geq 0 \end{cases} \quad (14)$$

$\text{erf}(x)$  为误差函数。

(13)、(14)式为激光脉冲宽度远小于材料的特征时间时,热效应产生的折射率变化。在激光脉冲作用的时间内 ( $0 \sim t_w$  或  $-\tau \sim \tau$ ),折射率的变化随时间延长而增加。在脉冲光场作用完的一段时间内(仍远小于  $t_c$ ),折射率的变化将维持不变。

在 Z 扫描测量中,如  $s \ll 1$  ( $s = 1 - \exp(-2r_s^2/w_s^2)$ ,  $r_s$  为处于远场的屏上小孔半径,  $w_s$  为光束在屏上的半径),则  $t$  时刻的归一化透过率为:

$$\mathcal{T}(x, t) = 1 + \frac{\Delta\Phi_0(t)x}{(x^2 + 9)(x^2 + 1)}, \quad (15)$$

式中  $x = z/z_0$ ,  $\Delta\Phi_0(t) = k\Delta n_{r_0}(t) l_{\text{eff}}$ ,  $l_{\text{eff}}$  为样品有效厚度,  $\Delta n_{r_0}(t)$  为样品在激光束腰处轴上的瞬时折射率变化。

对于矩形脉冲

$$\Delta n_{r_0}(t) = \frac{\alpha D dn/dT}{\kappa} I(0, 0, 0) \quad (16)$$

对于高斯脉冲

$$\Delta n_{r_0}(t) = \frac{\sqrt{\pi} \tau \alpha D(dn/dT) [1 \pm \text{erf}(t/\tau)]}{2\kappa} I(0, 0, 0), \quad (17)$$

探测器每接收一个脉冲而测得的时间平均归一化透射率为:

$$\mathcal{T} = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} T(z, t) I(0, 0, t) dt}{\int_{-\infty}^{\infty} I(0, 0, t) dt}, \quad (18)$$

对于矩形激光脉冲

$$\mathcal{T} = 1 + \frac{4\langle\Phi_0(t)\rangle x}{(x^2 + 9)(x^2 + 1)}, \quad (19)$$

其中

$$\langle \Phi_0(t) \rangle = \kappa I_{\text{eff}} \langle n_{t_0}(t) \rangle$$

$$\langle n_{t_0}(t) \rangle = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \Delta n_{t_0}(t) I(0, 0, t) dt}{\int_{-\infty}^{\infty} I(0, 0, t) dt} = \frac{\alpha D t_0 d n / d T}{2\kappa} I(0, 0, 0)$$

定义

$$n_{21} = \frac{\alpha D t_0 d n / d T}{2\kappa} \quad (20)$$

为时间平均非线性折射率。

对于高斯脉冲, 同样可求得

$$n_{21} = \frac{\alpha D d n / d T}{2\kappa} \left[ \sqrt{\pi} \tau + \int_{-\infty}^{\infty} \text{erf}(t/\tau) \exp(-t^2/\tau^2) dt \right], \quad (21)$$

由于(13)、(14)式知, 在脉冲宽度远小于特征时间的条件下, 热效应同电子效应、克尔效应一样, 产生的折射率变化正比于激光场强度的空间部分, 因而可定义(20)、(21)式的平均非线性折射率  $n_{21}$ 。它与材料及激光脉冲宽度有关。对于大多数液体材料,  $dn/dT < 0$ , 故  $n_{21} < 0$ 。

当热效应很强而可忽略其它效应产生的非线性时, 用 Z 扫描法测出的热效应归一化透过率曲线, 其峰谷之间的距离为  $1.7 z_0$ ,  $\Delta T_{p-v} = 0.406 \langle \Phi_0(t) \rangle$ , 这同文献[1]中用 300 ns 脉冲激光进行 Z 扫描测量得出的实验结果一致, 通过进一步的数值计算可以证明, 当入射激光脉冲宽度增大, Z 扫描法的归一化透过率曲线中峰谷之间的距离也随之增大, 当连续激光入射时, 田建国等人已从理论和实验上得出归一化透过率曲线峰谷距离为  $6z_0$ ,  $\Delta T_{p-v} = 1.33 \Phi_0$  [6]。

如果同时还存在其它效应产生的非线性, 则在高斯脉冲下用 Z 扫描法测得的非线性折射率  $n_2$  应为

$$n_2 = \frac{n_{2e}}{\sqrt{2}} + n_{21}, \quad (22)$$

$n_{2e}$  为材料中其它效应的非线性折射率。

对有些材料, 热响应时间可快到几十纳秒<sup>[1, 7]</sup>, 故在纳秒脉冲激光情况下, 用 Z 扫描法测材料的非线性折射率  $n_2$  时, 如材料的吸收较大, 则应考虑到  $n_{21}$  对测量结果的影响。因  $n_{21}$  与脉冲宽度无关, 可用二个不同宽度的脉冲激光进行 Z 扫描测量, 由(22)式分别求出  $n_{2e}$  及  $n_{21}$ 。

**结 论** 从热传导方程求出了由于介质线性吸收产生的热效应导致的折射率改变。在激光脉冲宽度较短的情况下, 折射率改变同激光强度的空间部分成正比。因而可定义热效应的时间平均非线性折射率, 其随脉冲宽度减小而减小, 可用通常的 Z 扫描法进行测量。

## 参 考 文 献

- [1] M. Sheik-Bahae, A. A. Said, T. H. Wei *et al.*, Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam. *IEEE J. Quant. Electron.*, 1990, **QE-26**(4): 760~769
- [2] S. Guha, K. Kang, P. L. Porter, Two-photo absorption-induced thermal effects in platinum poly-ynes. *Appl. Phys. (B)*, 1991, **53**(5/6): 308~313
- [3] H. S. Carslaw, J. C. Jaeger, *Conduction of Heat in Solids*, 2nd. edition, Oxford, Oxford Univ. Press, 1959: 263~280
- [4] J. P. Gorodon, R. C. C. Leite, R. S. Moore *et al.*, Long-transient effects in lasers with inserted liquid samples. *J. Appl. Phys.*, 1965, **36**(1): 3~8
- [5] S. J. Sheldon, L. V. Knight, J. M. Thorne, Laser-induced thermal lens effect; a new theoretical model. *Appl. Opt.*, 1982, **21**(9): 1663~1669
- [6] Jianguo Tian, Chunping Zhang, Guangyin Zhang *et al.*, Position dispersion and optical limiting resulting from thermally induced nonlinearities in Chinese tea liquid. *Appl. Opt.*, 1993, **32**(33): 6628~6632
- [7] 杨少辰, 钱秋明, 立群等, 利用单光束测量掺有叶绿素- $\alpha$  的有机聚合材料的非线性折射率. *光学学报*, 1992, **12**(3): 223~227

## Linear Absorption-Induced Thermal Effect in Z-Scan Measurements

Jia Zhenghong    Li Qu    Chen Yixin    Chen Yingli

(Department of Applied Physics, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200030)

(Received 7 April 1995; revised 8 September 1995)

**Abstract** By using thermal conductivity equation, the index change resulted from linear absorption-induced thermal effect in Z-scan measurements with pulse laser is studied. The conclusion is consistent with previous experimental results.

**Key words** Z-scan, thermal effect, nonlinear refractive index.