

以衍射理论为基础考虑双光子吸收的 Z-扫描理论^{*}

李 霞^{1,2} 姚保利^{2**} 侯 洵^{1,2}

(1 河南大学物理与信息光电学院, 开封 475001)

(2 中国科学院西安光学精密机械研究所瞬态光学与光子技术国家重点实验室, 西安 710068)

摘 要 以菲涅尔-基尔霍夫衍射理论为基础,建立了非线性介质对高斯光束的衍射模型,对高斯光束通过非线性介质后的传输行为进行了详细的理论推导和数值计算,从一种新的角度解释了 Z-扫描现象. 理论推导出了考虑双光子吸收的闭孔和开孔 Z-扫描曲线的统一公式,是计算非线性折射率和双光子吸收系数的一种新方法. 数值模拟计算表明,对于考虑双光子吸收的闭孔 Z-扫描曲线,其结果与经典的 Z-扫描理论完全一致. 而对于已给定的开孔 Z-扫描曲线,用该理论计算出的双光子吸收系数是经典开孔 Z-扫描理论计算值的 1/3,其它结论与传统 Z-扫描理论完全吻合. 该理论的近似条件只要求薄样品和小非线性吸收,比传统理论具有更好的准确性.

关键词 Z-扫描;非线性折射率;双光子吸收;衍射;光克尔效应

中图分类号 O437 **文献标识码** A

0 引言

Sheik-Bahae 等在 1989 年提出采用单光束测量非线性折射率 n_2 的符号和大小的 Z-扫描方法^[1]. 1990 年,他们将该方法用于测量材料的非线性吸收系数^[2]. 当非线性介质位于 Z 轴上不同位置时,对于高斯光束而言,相当于一个焦距可变的薄透镜. 当光束通过介质后,远场小孔光阑的透过率随 z 值变化. 对于 $n_2 < 0$ 的非线性介质,将产生先峰后谷的闭孔 Z-扫描曲线;对 $n_2 > 0$ 的介质,将产生先谷后峰的闭孔 Z-扫描曲线. 若不加小孔光阑,远场开孔的透过率仍随 z 值而变化. 对于饱和吸收的样品,焦点处透过率达最大;而对于反饱和吸收和多光子吸收的样品,其焦点处透过率达到最小. 传统 Z-扫描的理论基础是“高斯分解法”,其数学推导很复杂,为了得到解析解,采用了很多近似条件,如慢变化包络近似,薄样品,小非线性相移等. 在闭孔和不考虑非线性吸收时,得到了测量非线性折射率的一个比较简单的归一化透过率表达式^[2]

$$T(z, \Delta\Psi_0) \approx 1 + \frac{4\Delta\Psi_0 x}{(x^2 + 9)(x^2 + 1)} \tag{1}$$

式中 $x = z/z_0$, $z_0 = \pi\omega_0^2/\lambda$. 对于 $|\Delta\Psi_0| > \pi$ 的情况,数学推导难以进行,用式(1)来描述实际的 Z-扫描曲线将产生较大的偏差.

在考虑非线性吸收(双光子吸收系数为 β)的情况下,得到开孔 Z-扫描的归一化透过率表达式为^[2]

$$T(z, s=1) = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{[-q_0/(1+z^2/z_0^2)]^m}{(m+1)^{3/2}} \tag{2}$$

式中 $q_0 = \beta I_0 L_{\text{eff}}$, $L_{\text{eff}} = (1 - e^{-\alpha d})/\alpha$. 若 β 值不是很大时,在式(2)中取一级近似,得到简化公式^[3]

$$T(z, s=1) \approx 1 - \frac{q_0/(1+z^2/z_0^2)}{2^{3/2}} \tag{3}$$

本文从衍射的角度出发,把高斯光束通过非线性介质的传播问题用衍射理论求解,此时非线性介质看作是一个相位调制的衍射屏,它对入射光束产生衍射,用菲涅尔-基尔霍夫衍射积分公式可以求出远场接收屏的光强分布,进而可求得闭孔和开孔的透过率.

1 理论模型

如图 1,假设 TEM₀₀ 模高斯光束沿 +Z 轴方向

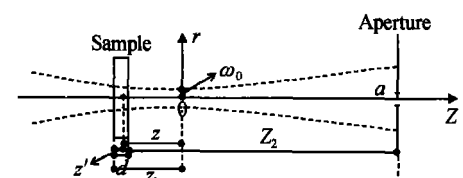


图 1 高斯光束通过非线性介质示意图
Fig. 1 Schematic diagram of the Gaussian beam passing through the nonlinear medium

传播,电场强度 $E_0(z, r, t)$ 由式(4)给出^[4]

$$E_0(z, r, t) = E_0(0, 0, t) \frac{\omega_0}{\omega(z)} \exp \left[-\frac{r^2}{\omega^2(z)} \right] \cdot \exp \left[\frac{ikr^2}{2R(z)} + i\phi(z, t) \right] \tag{4}$$

式中 ω_0 为束腰半径, $\omega(z)$ 为 z 截面处的光腰半径, $\omega^2(z) = \omega_0^2(1 + z^2/z_0^2)$, k 为激光波矢, $k = 2\pi/\lambda$, λ 为激光波长. $R(z)$ 为坐标 z 处的曲率半径, $R(z) = z(1 + z_0^2/z^2)$, 其中 $z_0 = \pi\omega_0^2/\lambda$, 为高斯光束的共焦参

^{*} 国家自然科学基金项目资助(批准号: 60337020)
^{**} Tel: 029-88472069, Email: yaopl@opt.ac.cn
中国知网 https://www.cnki.net
收稿日期: 2004-05-25

数 · $E(0,0,t)$ 为焦点处电场强度的时间包络, r 为径向坐标, $\exp[i\phi(z,t)]$ 为包含了与径向无关的所有相移.

当介质足够薄以至于在其中由于衍射和非线性引起的光束半径的变化可以忽略不计, 这种介质称为薄介质. 这时激光的光强作为 z' (光束在样品中传播的深度) 的函数, 可描述为

$$dI/dz' = -\alpha(I)I \tag{5}$$

式中 $\alpha(I)$ 为吸收系数, 包含了线性吸收和非线性吸收, 即 $\alpha(I) = \alpha + \beta$. α 为线性吸收系数, β 为双光子吸收系数(这里我们假定非线性吸收为双光子吸收). 假设 $\beta I \ll \alpha$, $z' = z - z_1$, 利用所给条件, 解此微分方程得近似解

$$I(z) = I(z_1) \exp \{ -[\alpha + \beta I(z_1)](z - z_1) \} \tag{6}$$

式中 z_1 为样品入射面距束腰的距离.

样品中任一点 (z, r) 处的光强可表示为

$$I(z, r) = I(z_1) \exp \{ -[\alpha + \beta I(z_1)](z - z_1) \} \cdot \exp \left[-\frac{2r^2}{\omega^2(z_1)} \right] \tag{7}$$

根据光克尔效应, 光场引起介质折射率的变化 $\Delta n = \gamma I$, 式中 γ 为非线性介质的克尔常数. 联立式(7)可得介质中产生的光诱导附加折射率分布为 $\Delta n(z, r) = \gamma I(z_1) \exp \{ -[\alpha + \beta I(z_1)](z - z_1) \} \cdot$

$$\exp \left[-\frac{2r^2}{\omega^2(z_1)} \right] \tag{8}$$

当激光束通过厚度为 d 的介质时, 在介质出射面处产生的横向附加相移分布可表示为

$$\Delta \Psi(r, z_1) = \frac{2\pi}{\lambda} \int_{z_1}^{z_1+d} \Delta n(r, z) dz \tag{9}$$

将式(8)代入式(9), 利用 z_1 位置处光强与激光功率 P 的关系 $I(z_1) = 2P/\pi\omega^2(z_1)$, 积分得

$$\Delta \Psi(r, z_1) = \Delta \Psi_0(z_1) \exp \left[-\frac{2r^2}{\omega^2(z_1)} \right] \tag{10}$$

式中 $\Delta \Psi_0(z_1)$ 表示非线性介质位于 z_1 位置时, 高斯光束产生的峰值非线性相移, 其表达式为

$$\Delta \Psi_0(z_1) = \frac{4\gamma}{\lambda} \frac{P}{\omega^2(z_1)} \cdot \frac{1 - \exp \left\{ -\left[\alpha + \beta \frac{2P}{\pi\omega^2(z_1)} \right] d \right\}}{\alpha + \beta \frac{2P}{\pi\omega^2(z_1)}} \tag{11}$$

上述推导说明当高斯光束通过样品时, 其相位发生了变化, 在出射样品时产生了一个近似高斯分布的横向附加相移. 这也相当于在非线性介质薄膜内诱导出了一个具有高斯分布的相位型微孔. 根据衍射理论, 该微孔要对入射光产生类似标准圆孔的衍射. 由菲涅尔-基尔霍夫衍射理论及参考文献[6]的理论推导, 我们可以得到距离样品为 Z_2 的接收屏

上的光强径向分布为

$$I(\rho, z_1, Z_2) = \frac{\exp \left\{ -\left[\alpha + \beta \frac{2P}{\pi\omega^2(z_1)} \right] d \right\}}{2\pi\lambda^2} \cdot \frac{P}{\omega^2(z_1)} \left| \int_0^{2\pi} \int_0^{\sqrt{\omega^2(z_1)}} \left[\frac{1}{D} + \frac{Z_2}{D^2} \right] \exp \left[-\frac{r^2}{\omega^2(z_1)} \right] \cdot \exp \left\{ i \left[\frac{2\pi}{\lambda} D + \frac{kr^2}{2R(z_1)} + \Delta \Psi_0(z_1) \exp \left[-\frac{2r^2}{\omega^2(z_1)} \right] \right] \right\} \cdot r dr d\varphi \right|^2 \tag{12}$$

式中 D 为衍射屏上任一点到接收屏上任一点的距离, ρ 为径向坐标, 这就是我们进行数值计算的公式.

接收屏 Z_2 处开孔半径为 a 的小孔光阑内收集到的激光功率为

$$P_A(z_1, Z_2, a, \Delta \Psi_0) = 2\pi \int_0^a I(\rho, z_1, Z_2) \rho d\rho \approx 2\pi \sum_{\rho_i=0}^a [I(\rho_i, z_1, Z_2) \rho_i] \Delta \rho \tag{13}$$

改变非线性介质相对于激光束腰的位置 z_1 , 由式(12)、(13)便可以计算出闭孔 Z-扫描曲线.

如果接收屏上的光被功率计完全收集, 则

$$P(z_1, Z_2, \Delta \Psi_0) = 2\pi \int_0^\infty I(\rho, z_1, Z_2) \rho d\rho \approx 2\pi \sum_{\rho_i=0}^\infty [I(\rho_i, z_1, Z_2) \rho_i] \Delta \rho \tag{14}$$

改变非线性介质相对于激光束腰的位置 z_1 , 由式(12)、(14)就可以计算出开孔 Z-扫描曲线.

2 计算结果与讨论

若不考虑非线性吸收, 令式(12)中 $\beta = 0$, 结合式(13)可以得出忽略非线性吸收的闭孔 Z-扫描曲线. 该理论已经被研究^[6], 这里不再赘述.

2.1 考虑非线性吸收的闭孔 Z-扫描

由式(12)和(13)可计算出在考虑非线性吸收情况下的闭孔 Z-扫描曲线. 在计算中, 取 $\lambda = 532 \text{ nm}$, $z_0 = 0.2 \text{ mm}$, $Z_2 = 1 \text{ m}$, $a = 2 \text{ mm}$, $\alpha = 190 \text{ cm}^{-1}$, $d = 20 \text{ }\mu\text{m}$. 由于式(12)是在 $\beta I_0 \ll \alpha$ 的前提条件下推导出的 (I_0 为激光束焦点处的强度), 取 $0.05\alpha \leq \beta I_0 \leq 0.5\alpha$. 图2的计算结果中, 取 $\Delta \Psi_0(0) = -0.5\pi$, βI_0 分别取 0 和 0.3α , 它显示了考虑非线性

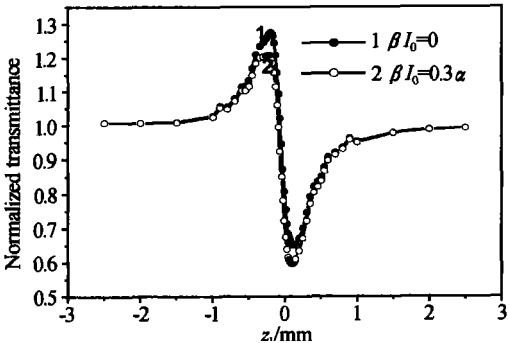


图2 忽略非线性吸收和考虑非线性吸收的闭孔 Z-扫描曲线
Fig.2 The closed-aperture Z-scan curve without and with considering nonlinear absorption

吸收和不考虑非线性吸收时计算的闭孔 Z-扫描曲线的差别. 从图 2 可以看出, 纯折射的 Z-扫描曲线(圆点线)的峰谷比较对称; 而考虑非线性吸收的闭孔 Z-扫描曲线(圆圈线)的峰点被抑制, 谷点被加深, 这与经典的 Z-扫描结论十分吻合.

2.1.1 考虑非线性吸收的闭孔 Z-扫描曲线与非线性相移的关系

由不考虑非线性吸收的 Z-扫描理论可知, 当 $|\Delta\Psi_0(0)| \geq 2\pi$ 时, Z-扫描曲线峰的高度随 $|\Delta\Psi_0(0)|$ 的增加而增加, 谷则趋于饱和^[6]. 而由于非线性吸收的存在, 峰被抑制, 谷被加深, 所以在这种情况下, 研究 Z-扫描曲线与非线性相移的关系, 应取小非线性相移 $|\Delta\Psi_0(0)| < 2\pi$, 以显示非线性吸收的影响.

表 1 给出了考虑非线性吸收 ($\beta I_0 = 0.3\alpha$) 时, $\Delta\Psi_0(0)$ 取不同值所得的闭孔 Z-扫描曲线的数值计算结果. 令谷的深度 ΔT_v 与峰的高度 ΔT_p (相对于归一化透过率为 1 的位置) 的差为 $\Delta(\Delta T_v - \Delta T_p)$. 在 $|\Delta\Psi_0(0)| \leq 1.25\pi$ 时, Δ 随着 $|\Delta\Psi_0(0)|$ 的增大而增大; 当非线性相移变得比较大时 ($|\Delta\Psi_0(0)| > 1.25\pi$), Δ 随着 $|\Delta\Psi_0(0)|$ 的增大而减小, 这是由于非线性相移的继续增大使得谷值趋于饱和. 峰值 T_p 随着 $|\Delta\Psi_0(0)|$ 的变大而增大, 其位置 z_p 随着 $|\Delta\Psi_0(0)|$ 的变大而减小. 谷值 T_v 随着 $|\Delta\Psi_0(0)|$ 增大而减小, 其位置 z_v 受 $|\Delta\Psi_0(0)|$ 的影响不大. 峰谷位置的距离 Δz_{p-v} 随着 $|\Delta\Psi_0(0)|$ 的变大而增大.

表 1 非线性相移对闭孔 Z-扫描曲线的影响
(考虑非线性吸收 $\beta I_0 = 0.3\alpha$)

$\Delta\Psi_0(0)$	T_p	z_p/mm	T_v	z_v/mm	$\Delta(\Delta T_v - \Delta T_p)$	$\Delta z_{p-v}/\text{mm}$
0.5π	1.2069	-0.2250	0.5960	0.0950	0.1970	0.3201
-0.75π	1.3253	-0.2550	0.4170	0.0850	0.2576	0.3401
$-\pi$	1.4376	-0.2850	0.2558	0.0750	0.3065	0.3601
-1.25π	1.5443	-0.3050	0.1340	0.0700	0.3216	0.3751
-1.5π	1.6465	-0.3200	0.0617	0.0800	0.2917	0.4001
-1.75π	1.7442	-0.3350	0.0286	0.1100	0.2271	0.4451
-2π	1.8375	-0.3500	0.0133	0.1500	0.1591	0.5001

2.1.2 闭孔 Z-扫描曲线与非线性吸收的关系

设 $\Delta\Psi_0(0) = -\pi$ 不变, 改变 βI_0 的大小, 计算结果如表 2. 从表中可以看出非线性吸收对闭孔 Z-扫描曲线的影响非常细微. 随着非线性吸收的增大, 峰被抑制, 谷被加深; $\Delta(\Delta T_v - \Delta T_p)$ 随着 βI_0 的增加而增大. 峰的位置 z_p 随着非线性吸收的增加而减小; 谷的位置 z_v 不随非线性吸收的变化而变化, 峰谷距离随着非线性吸收的增加而增大.

表 2 非线性吸收对 Z-扫描曲线的影响
($\Delta\Psi_0(0) = -\pi$)

βI_0	T_p	z_p/mm	T_v	z_v/mm	$\Delta(\Delta T_v - \Delta T_p)$	$\Delta z_{p-v}/\text{mm}$
0.05α	1.4857	-0.2600	0.2777	0.0750	0.2365	0.3351
0.1α	1.4755	-0.2650	0.2732	0.0750	0.2512	0.3401
0.2α	1.4559	-0.2700	0.2644	0.0750	0.2796	0.3451
0.3α	1.4373	-0.2800	0.2558	0.0750	0.3068	0.3551
0.4α	1.4200	-0.2950	0.2475	0.0750	0.3324	0.3701
0.5α	1.4038	-0.3050	0.2395	0.0750	0.3566	0.3801

2.2 开孔 Z-扫描

由式(12)和(14)可以计算出开孔 Z-扫描曲线. 计算中所用参量取值同上.

首先考虑的是: 若 βI_0 的值一定 (这里取 $\beta I_0 = 0.3\alpha$), 非线性相移 $\Delta\Psi_0(0)$ 对开孔 Z-扫描曲线是否有影响. 这里 $\Delta\Psi_0(0)$ 分别取 $0, -0.5\pi, -\pi, -1.5\pi, -2\pi$, 计算得到的开孔 Z-扫描曲线如图 3. 可以看出, 非线性相移的变化对于开孔 Z-扫描曲线没有影响. 这与经典的 Z-扫描理论完全吻合 (当小孔被移去, 即为开孔 Z-扫描时, Z-扫描的透过率对光束畸变不再敏感, 而仅仅为非线性吸收的函数^[3]). 因此, 在以下计算非线性吸收对开孔 Z-扫描曲线的影响时, 取非线性相移 $\Delta\Psi_0(0) = 0$.

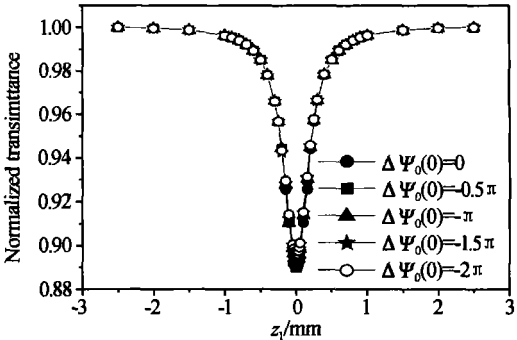


图 3 开孔 Z-扫描曲线与非线性相移的关系
Fig. 3 The relation between the open-aperture Z-scan curve and the nonlinear phase shift

我们对比用本方法计算的开孔 Z-扫描曲线与用式(3)计算的结果, 图 4 中(a)~(f)分别计算出了 $\beta I_0 = 0.05\alpha, 0.1\alpha, 0.2\alpha, 0.3\alpha, 0.4\alpha, 0.5\alpha$ 的 Z-扫描曲线(圆圈线), 同时还画出了由式(3)计算出的 Z-扫描曲线(圆点线). 可以看出两理论曲线不重合. 为了研究二者之间的关系, 我们以衍射理论为基础的开孔 Z-扫描曲线(圆圈线)为基准, 采用经典开孔 Z-扫描理论式(3)去拟合它, 可以得到一个新的 $\beta' I_0$ 值, 将该 $\beta' I_0$ 值代入经典 Z-扫描理论式(3)中, 所得曲线与圈线完全重合. 此时, $\beta' I_0$ 正好是 βI_0 的三倍. 如图 5, 横坐标表示的是以衍射理论为基础计

算开孔 Z-扫描中所取的 βI_0 值;纵坐标表示为了得到相同的开孔 Z-扫描曲线,在经典开孔 Z-扫描公式中,非线性吸收的相应取值.从图中可以看出, $\beta' I_0$ 与 βI_0 成正比关系, $\beta' I_0$ 是 βI_0 的三倍.这个结果说

明,对于一给定的开孔 Z-扫描曲线,用我们的理论算出的双光子吸收系数 β 是经典开孔 Z-扫描理论算得的 β 值的 1/3.至于二者之间为何会差三倍,我们还没有找到原因.

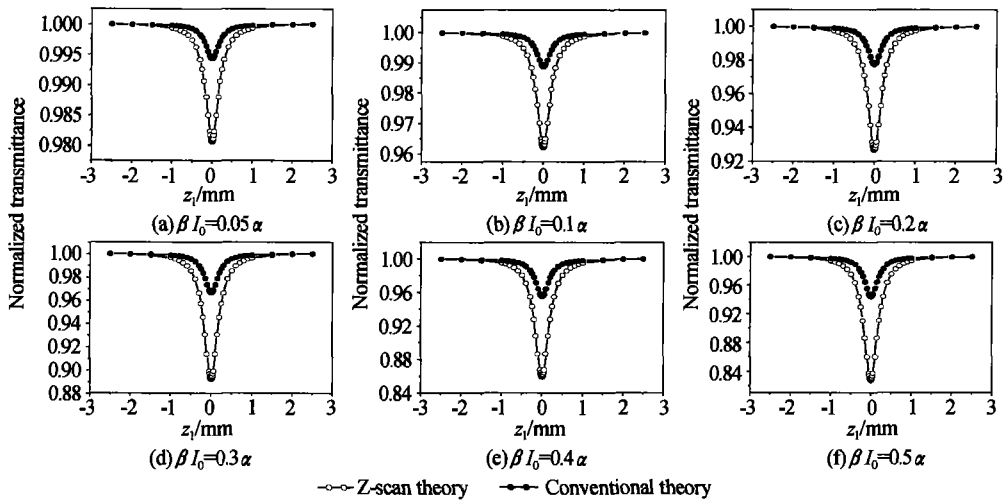


图 4 两种理论计算出的开孔 Z-扫描曲线的比较
Fig. 4 Comparison of the new Z-scan theory with the conventional theory

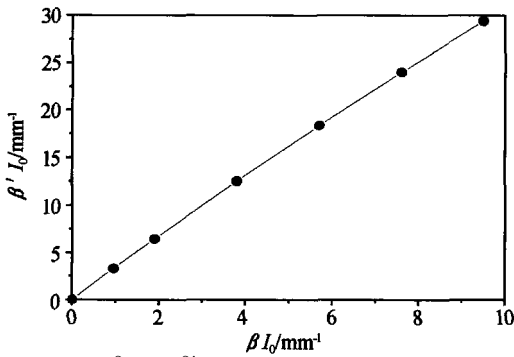


图 5 βI_0 和 $\beta' I_0$ 的关系
Fig. 5 The relation between βI_0 and $\beta' I_0$
最后,计算了开孔 Z-曲线形状与非线性吸收的关系,如图 6,我们取非线性相移 $\Delta \Psi_0(0)=0$, βI_0 分别取 0.05α 、 0.1α 、 0.2α 、 0.3α 、 0.4α 、 0.5α .从图中可以看出,随着非线性吸收 βI_0 的增大,开孔 Z-扫描曲线的谷点逐步加深,这与经典开孔 Z-扫描计算结果完全一致.

3 结论

以上是考虑双光子吸收的闭孔和开孔 Z-扫描,采用衍射理论进行了理论推导和数值计算,从一种新的角度解释了 Z-扫描现象.在式(12)中令 $\beta=0$,结合式(13)可以得出忽略非线性吸收的闭孔 Z-扫描曲线,本文没再赘述.由式(12)和式(13)可计算出考虑非线性吸收的闭孔 Z-扫描曲线,其结果与经典的 Z-扫描理论完全一致.由式(12)和式(14)可计算出开孔 Z-扫描曲线,对于已给定的开孔 Z-扫描曲线,用本理论计算出的双光子吸收系数 β 值是经典开孔 Z-扫描理论计算的 β 值的 1/3,其它结论与传统的 Z-扫描结论完全一致.本理论的近似条件只要求薄样品和小非线性吸收,比传统理论具有更好的准确性,而且得到了考虑非线性吸收的开孔和闭孔 Z-扫描曲线的统一公式,这是传统 Z-扫描理论无法给出的.这种理论方法也是研究高斯光束通过非线性介质后传输特性的一种很好的方法.

参考文献

- 1 Sheik-Bahae M, Said A A, Van Stryland E W. High sensitivity single beam n_2 measurement. *Opt Lett*, 1989, 14(17): 955~957
- 2 Sheik-Bahae M, Said A A, Wei T H, et al. Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam. *IEEE J Quant Electron*, 1990, 26(4): 760~769
- 3 王取泉,赵同云,熊贵光,等. Z-扫描技术及应用. *物理*, 1998, 27(9): 541~533
Wang Q Q, Zhao T Y, Xiong G G, et al. *Physics*, 1998, 27(9): 541~533

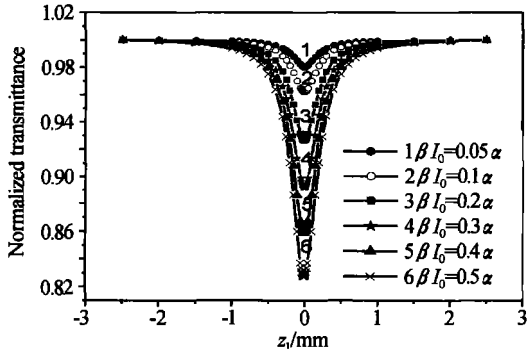


图 6 开孔 Z-扫描曲线形状与非线性吸收的关系
Fig. 6 The relation between the open-aperture Z-scan curve and the nonlinear absorption
中国知网 <https://www.cnki.net>

4

Chong H K, Yeung L L, Seong G K. Analysis of asymmetric Z-scan measurement for large optical nonlinearities in an amorphous As₂S₃ thin film. *J Opt Soc Am B*, 1999, **16**(4): 600~604

5

赵凯华, 钟锡华著. 光学. 第六版, 北京: 北京大学出版社, 1998. 186~190

6

姚保利, 任立勇, 侯洵. 基于衍射模型的 Z 扫描理论. *光学学报*, 2002, **22**(1): 19~23

Yao B L, Ren L Y, Hou X. *Acta Optica Sinica*, 2002, **22**(1): 19~23

A Z-Scan Theory Based on Diffraction Theory with Consideration of Two-photon Absorption

Li Xia^{1,2}, Yao Baoli², Hou Xun^{1,2}

1 College of Physics and Information Optic-electronics, Henan University, Kaifeng 475001

2 State Key Laboratory of Transient Optics and Photonics, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710068

Received date: 2004-05-25

Abstract Based on Fresnel-Kirchhoff diffraction theory, a diffraction model of a nonlinear optical medium to a Gaussian beam is built. The propagation behavior of the Gaussian beam passing through the nonlinear optical medium is theoretically deduced and numerically simulated, which can explain the Z-scan phenomenon from a new approach. From this theory, a unified equation is derived, which can describe both the closed-aperture Z-scan curve and the open-aperture Z-scan curve with consideration of the two-photon absorption. It provides a new way to calculate the nonlinear refraction index and the two-photon absorption coefficients. Numeric simulation shows that for the closed-aperture Z-scan considering the two-photon absorption, the simulation results are well consistent with the conventional theory. For a given open-aperture Z-scan curve, the two-photon absorption coefficient computed by the new Z-scan theory is 1/3 of the value fitted by the conventional Z-scan theory, whereas other conclusions are identical to the conventional Z-scan theory. This theory has better accuracy than the conventional Z-scan theory because the approximate conditions are only thin sample and small nonlinear absorption.

Keywords Z-scan; Nonlinear refractive index; Two-photon absorption; Diffraction; Optical Kerr effect



Li Xia was born in 1978. She received the B. S. degree in Physics Department of Henan University, Kaifeng, in 2001. Now she is working towards the M. S. degree in college of Physics and Information Optic-electronics of Henan University. Her research is focusing on the theory and the experiment of nonlinear optical properties of π -conjugated polymers.