

文章编号: 0253-2239(2001)09-1139-05

聚吡咯甲烯/聚乙烯醇薄膜对高斯光束的衍射行为^{*}

姚保利¹⁾ 任立勇²⁾ 侯 洵¹⁾ 易文辉³⁾ 汪敏强³⁾

- (1), 中国科学院西安光学精密机械研究所瞬态光学技术国家重点实验室, 西安 710068
- (2), 西北大学物理系, 西安 710069
- (3), 西安交通大学精细功能电子材料与器件国家专业实验室, 西安 710049

摘要: 制备了一种新型有机聚合物(聚吡咯甲烯)与聚乙烯醇的非线性光学复合薄膜,在该样品的激光纵向扫描实验中发现,随着样品相对于高斯光束束腰位置的不同,产生了两种不同结构的同心衍射环。理论分析表明,该现象可以用光克尔效应和热光非线性效应共同作用下的附加相位孔对入射光束的衍射行为来解释。从菲涅耳-基尔霍夫衍射积分公式出发,建立了非线性光学介质对高斯光束的衍射模型,通过数值积分,得到了与实验现象符合的计算结果。

关键词: 非线性光学薄膜; 光克尔效应; 高斯光束; 衍射
中图分类号: O437 文献标识码: A

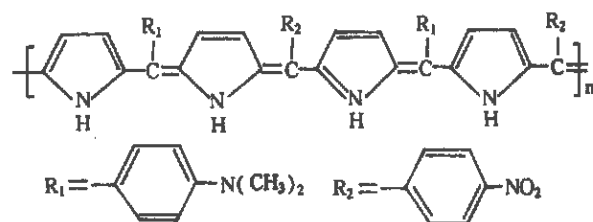
1 引 言

激光与非线性光学介质相互作用产生了许多新的光学现象,如光倍频、受激拉曼散射、双光子吸收等,其中光诱导折射率变化是影响光束传播特性(如自聚焦和自散焦)的重要非线性现象。这种现象主要来源于材料的三阶非线性。有机聚合物非线性光学材料因含有易离域化的共轭 π 电子结构,不仅具有非线性系数大、响应速度快等优点,而且可以通过分子设计改变主链或侧链的结构来优化材料的性能,因而近年来将其应用于高速皮秒光开关、光调制器、光存储介质的研究十分活跃^[1~4]。本文在研究一种新合成的 π 共轭聚合物——聚吡咯甲烯时发现,当高斯光束通过该聚合物与聚乙烯醇的复合薄膜时,随着样品相对于激光束腰位置的不同,在远场产生了两种不同结构的同心衍射环。一种表现为中心强度最大,向外逐渐减弱,分布尺度较小的细衍射环;另一种则是中央较暗,向外逐渐增强,分布尺度较大的粗衍射环。上述现象在向列液晶薄膜^[5]、细菌视紫红质薄膜^[6]以及中国茶溶液^[7]等非线性光学介质中都有报道,但对其产生的机理未给出详细的分析。Shen 等^[5]把这种激光诱导衍射环现象归

因于高斯光束的空间自相位调制,并通过定性分析认为衍射环的个数近似等于 $|\Delta\Psi_0/2\pi|$ 。我们把这种现象归因于非线性介质的光克尔效应和热光效应在介质中诱导的相位孔对激光束的衍射行为。根据菲涅耳-基尔霍夫衍射理论,建立了非线性光学介质对高斯光束衍射的数学物理模型,并通过数值模拟计算验证了实验观察到的现象,同时证明了 Shen 关于衍射环个数的推断只适用于粗衍射环的情况。

2 实验与结果

实验样品——聚吡咯甲烯(PPy)的合成与表征见文献[8],其分子式如下所示:



以聚乙烯醇(PVA)为成膜材料,制备了 PPy/PVA 复合薄膜,制备过程简述如下:首先分别配制 PPy 和 PVA 的 N-甲基-2-吡咯烷酮(NMP)溶液,然后将二溶液混合,在 50℃ 下电磁搅拌 30 分钟,得到粘稠透明的 PPy/PVA 复合制剂。取适量的制剂滴到水平放置的载玻片上,静置 2 小时,然后盖上另一片盖玻片,垂直加力,在室温下放置 24 小时固化成膜。薄膜的厚度根据滴加制剂多少及垂直压力大

^{*} 瞬态光学技术国家重点实验室基金与中国科学院院长基金资助课题。

收稿日期:2000-05-12; 收到修改稿日期:2000-08-08

小而不同,估计在几十个微米量级。在日本生产的 Shimadzu MPC-3100 型分光光度计上对薄膜的吸收光谱进行了测量,在 526 nm 波长处的光密度为 0.474。

激光光源为美国 Quantronix 公司生产的 Nd:YLF 激光器。输出为基模高斯光束,波长 1.053 μm ,束腰半径 0.4 mm,光束发散角 2 μrad 。该激光器可工作在连续、锁模、调 Q 等几种不同的工作方式。为了提高倍频转换效率,我们将激光器设置在锁模调 Q 状态,锁模重复频率 76 MHz,调 Q 重复频率 10 kHz,输出为准连续光。基频光经 KTP 倍频晶体倍频后,用 1.053 μm 45° 角全反镀膜镜 ($R = 99.9\%$) 分束。526 nm 的倍频光经过一个焦距为 120 mm 的透镜会聚到样品上,焦点处的激光束腰半径约 30 μm 。在样品后 2 m 处接收屏上观察衍射光强分布。

当入射到样品上的激光功率达到一定阈值之后(约 3 mW),出射光场在远场处便表现出衍射现象,出现一系列的同心衍射圆环。但衍射环的形状随着样品所处位置的不同,显示出两种完全不同的结构。当样品位于焦点内某一位置时,产生了中心强度最大、向外逐渐减弱、分布尺度较小的清晰细衍射环,如图 1(a)所示。当样品向焦点移动时,细衍射环逐渐变得模糊,尺度变大。进一步靠近焦点,将产生中心较暗、向外逐渐增强、分布尺度较大的粗衍射环,如图 1(b)所示。当样品移到焦点附近时,将产生分布尺度很大(直径约 400 mm)不稳定的衍射环。继续移动样品到焦点外时,又产生了粗衍射环。

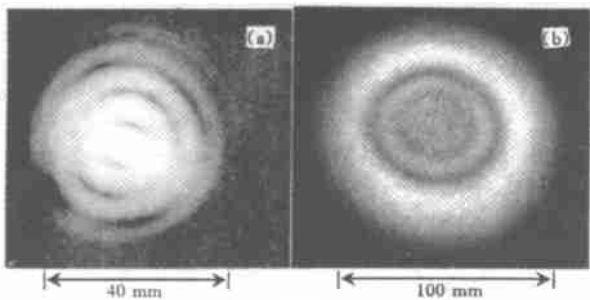


Fig. 1 Diffraction patterns in the far field after the Gaussian beam passes through the PPV/PVA film. Laser power ≈ 10 mW. (a) Thin diffraction ring; (b) Thick diffraction ring

3 理论与计算

设高斯光束沿 z 轴方向传播通过非线性介质,束腰取为坐标原点,样品入射面位于 z_1 处, r 表示光束横截面内任一点到轴心的距离,则样品中任一点

(r, z) 处的光场振幅可表示为^[9]:

$$E(r, z) = E(0, 0) \exp\left[-\frac{\alpha(z - z_1)}{2}\right] \frac{w_0}{w(z)} \exp\left[-\frac{r^2}{w^2(z)}\right], \quad (1)$$

式中 $E(0, 0)$ 为束腰中心的电场强度, w_0 为束腰半径, α 为样品的线性吸收系数, $w(z)$ 为 z 截面处的光腰半径,

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \frac{z^2}{z_0^2}}, \quad (2)$$

其中 $z_0 = \pi w_0^2 / \lambda$, 为高斯光束的共焦参数。根据光克尔效应,光强引起介质折射率的变化为:

$$\Delta n = \gamma I, \quad (3)$$

式中 γ 为非线性介质的克尔常数。光强与电场强度之间的关系为:

$$I = \frac{1}{2} \epsilon_0 c n_0 E^2, \quad (4)$$

其中 n_0 为介质的线性折射率, c 为真空光速, ϵ_0 为真空介电常数。

将(1)式和(4)式代入(3)式,并考虑到束腰中心处的光强与激光功率 P 有如下关系:

$$I(0, 0) = \frac{2P}{\pi w_0^2}, \quad (5)$$

可得样品中的光诱导附加折射率分布为:

$$\Delta n(r, z) = \frac{2\gamma P}{\pi} \frac{\exp\left[-\frac{\alpha(z - z_1)}{2}\right]}{w^2(z)} \exp\left[-\frac{2r^2}{w^2(z)}\right]. \quad (6)$$

当激光束通过厚度为 d 的样品时,在样品出射面处产生的横向附加相移分布可表示为:

$$\Delta \Psi(r) = \frac{2\pi}{\lambda} \int_{z_1}^{z_1+d} \Delta n(r, z) dz. \quad (7)$$

将(6)式代入(7)式,得到的函数不可积。但当样品为薄样品时(本实验满足此条件),即 $d \ll z_0$ 时,就有 $w(z) \approx w(z_1)$, (7)式可简化为:

$$\Delta \Psi(r) \approx \Delta \Psi_0 \exp\left[-\frac{2r^2}{w^2(z_1)}\right], \quad (8)$$

式中 $\Delta \Psi_0$ 表示非线性介质对高斯光束产生的峰值非线性相移,由下式给出:

$$\Delta \Psi_0 = \frac{4\gamma}{\lambda} \frac{P}{w^2(z_1)} \frac{1 - \exp(-\alpha d)}{\alpha}. \quad (9)$$

这就是说,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,只不过这时的衍射屏函数为(A 表示衍射屏上任意一点):

$$U(A) = \exp\left\{i\Delta\Psi_0\exp\left[-\frac{2r^2}{w^2(z_1)}\right]\right\}. \quad (10)$$

对于高斯光束,样品处与径向有关的入射场分布可表示为:

$$V(A) = \exp\left[-\frac{r^2}{w^2(z_1)}\right]\exp\left[i\frac{kr^2}{2R(z_1)}\right], \quad (11)$$

式中 k 为激光的波矢,光束参数 $R(z_1)$ 表示 z_1 处等相面的曲率半径,

$$R(z_1) = z_1\left(1 + z_0^2/z_1^2\right). \quad (12)$$

接收屏上任意一点 P 的衍射场分布由菲涅耳-基尔霍夫衍射积分公式表达^[10]:

$$U(P) = \frac{-i}{\lambda} \iint_{\Sigma} F(\theta_0, \theta) V(A) U(A) \frac{\exp(ikD)}{D} d\Sigma, \quad (13)$$

式中 λ 为激光波长, $F(\theta_0, \theta)$ 为倾斜因子, D 为衍射屏上 A 点到接收上 P 点的距离。由于衍射屏是圆对

称分布的,因而衍射场也是圆对称分布。对衍射屏和接收屏都采用极坐标系,设 A 点的坐标为 (r, ϕ) , 因为接收屏上同一半径 ρ 的圆周上的光场分布相同,所以取其代表性一点计算即可,我们取 P 点的坐标为 $(\rho, 0)$ 。设 z_2 表示接收屏到衍射屏的距离,则

$$D^2 = z_2^2 + (r\cos\phi - \rho)^2 + (r\sin\phi)^2, \quad (14)$$

倾斜因子的表达式为:

$$F(\theta_0, \theta) = \frac{1}{2}(\cos\theta_0 + \cos\theta), \quad (15)$$

其中 θ_0 是入射光与次波源的方位角,对于垂直入射 $\theta_0 = 0$; θ 为接收屏上场点 P 相对于次波源方位角, $\cos\theta = z_2/D$ 。

对积分限的选取,由高斯函数性质可知,当 $r = \sqrt{5}w(z_1)$ 时,振幅因子 $\exp[-r^2/w^2(z_1)]$ 及附加相移 $\Delta\Psi$ 都趋于 0, 因此积分限可取为: $r = 0 \rightarrow \sqrt{5}w(z_1)$, $\phi = 0 \rightarrow 2\pi$ 。将(9)式~(15)式代入(12)式,可得到距离样品 z_2 的接收屏上的光强径向分布:

$$I(\rho, z_2) = \left| \frac{1}{2\lambda} \int_0^{2\pi} \int_0^{\sqrt{5}w(z_1)} \left[\frac{1}{D} + \frac{z_2}{D^2} \right] \exp\left[-\frac{r^2}{w^2(z_1)}\right] \exp\left\{i\left[\frac{2\pi}{\lambda}D + \Delta\Psi_0\exp\left[-\frac{2r^2}{w^2(z_1)}\right] + \frac{kr^2}{2R(z_1)}\right]\right\} r dr d\phi \right|^2. \quad (16)$$

这就是我们进行数值计算的公式。式中被积函数由实部和虚部两部分构成,分别进行数值积分后,取其平方和即为相对光强。

在(16)式中,如果 $\Delta\Psi_0 = 0$, 即相当于无样品的情形。对取任意 z_1 值,按(16)式计算出接收屏处的相对光强径向分布应为高斯分布。图 2 同时给出了用衍射积分公式(16)的数值计算结果(圆圈)和直接用高斯光束传输公式(1)的计算结果(实线),二者完全重合。这说明上述理论分析和我们计算程序是正确和可靠的。

对于有非线性介质时的情况,在(16)式中确定 z_1 和 $\Delta\Psi_0$ 后,便可计算出接收屏处光强的径向分布。对于本实验所用的负克尔介质($\Delta\Psi_0 < 0$),图 3 分别计算出了样品位于不同位置和 $\Delta\Psi_0$ 取不同值时,接收屏处衍射环径向的相对光强分布。由图可见,理论计算结果与实验照片(图 1)符合得很好。

根据大量的数值模拟计算发现, $\Delta\Psi_0$ 与 z_1 的符号决定产生粗衍射环还是细衍射环。当 $\Delta\Psi_0$ 与 z_1

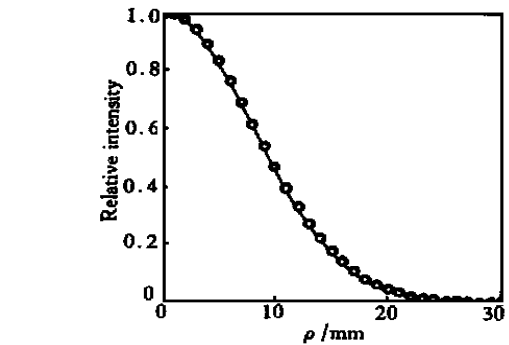


Fig. 2 Comparing calculations of the transverse field distribution of the Gaussian beam in the far field, when $\Delta\Psi_0=0$, z_1 assigned any values, respectively using the derived diffraction Eq. (16) (circles) and directly using the Gaussian beam transmission Eq. (1) (line)

符号相反时,产生粗衍射环;而要产生细衍射环,必须令 $\Delta\Psi_0$ 与 z_1 的符号相同,而且要得到对比度明显的细衍射环,样品存在一个最佳位置,在此位置之外,细衍射环的对比度逐渐下降,这也许是以往文献中没有提及细衍射环的原因之一。当样品靠近焦点时,细衍射环与粗衍射环两种情况的计算结果将趋

于一致,最终在焦点处收敛为中心最强、横向分布尺度很大的 $|\Delta\Psi_0/2\pi|$ 个峰,如图4所示。计算结果显示细衍射环的个数等于 $|\Delta\Psi_0/\pi|$,粗衍射环的个数

等于 $|\Delta\Psi_0/2\pi|$ 。

文献[5]中给出的亮环个数公式 $N = \Delta\Psi_0/2\pi$ 只适用于样品位于焦点附近或粗衍射环的情况。

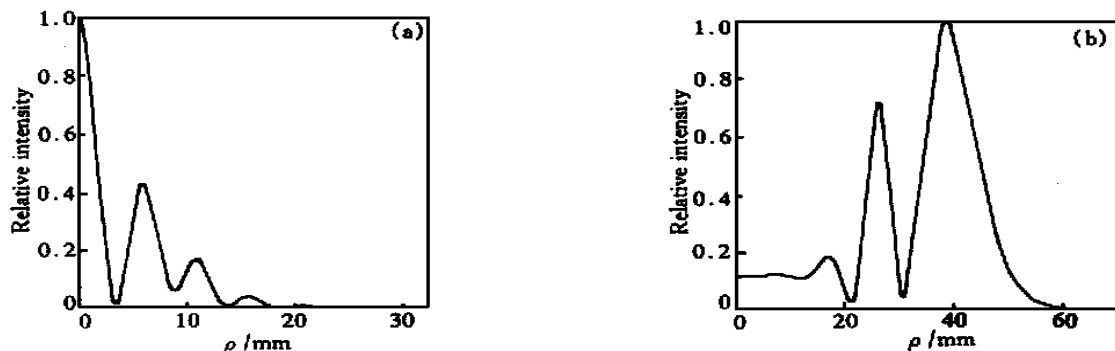


Fig. 3 Intensity versus radius distribution of the diffraction rings on the observing plan, calculated with different sample position z_1 and different $\Delta\Psi_0$. (a) $z_1 = -25$ mm, $\Delta\Psi_0 = -4\pi$; (b) $z_1 = -15$ mm, $\Delta\Psi_0 = 6\pi$

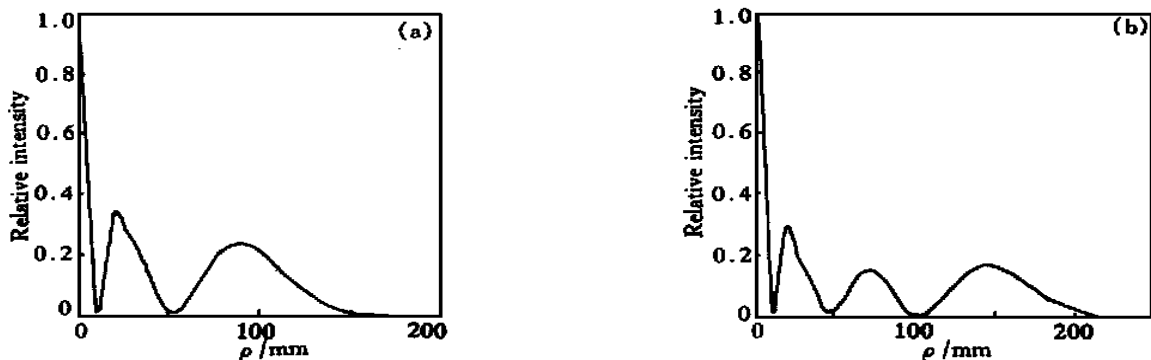


Fig. 4 Calculations of intensity versus radius distribution of the diffraction rings on the observing plan when the sample is located on the focus plan. (a) $|\Delta\Psi_0| = 4\pi$; (b) $|\Delta\Psi_0| = 6\pi$

根据上述数值模拟计算结果,对于本实验所用的负克尔样品, $\Delta\Psi_0 < 0$,在 $z_1 < 0$ 时不应产生粗衍射环,但实验上发现,当样品位于焦点之内时却形成了明显的粗衍射环[图1(b)]。为了解释该现象,必须考虑样品的热光非线性效应的影响。热光非线性引起的横向附加相移也具有与(8)式一样的高斯型分布,但式中的峰值相移 $\Delta\Psi_{0T}$ 的大小和符号是由介质的热光系数、热传导系数、吸收系数、功率密度等因素决定^[7,11]。这里必须假设 $\Delta\Psi_{0T} > 0$,并且在靠近焦点时热光非线性效应占优势,在远离焦点时克尔效应占优势。这样,在克尔效应与热光效应的相互竞争下,就会产生以克尔效应为主的细衍射环[图1(a)和图3(a)]和以热光效应为主的粗衍射环[如图1(b)和图3(b)]。实验上还发现,当样品位于焦点附近时,衍射环很不稳定。这主要是因为焦点处光斑尺寸很小,较小的功率波动就可能引起峰值非线性相移较大的变化,从而引起衍射环个数不稳定。

结论 当高斯光束通过具有较大三阶非线性光学

系数的介质时,在光克尔效应和热光效应的共同作用下,在远场处可以产生两种不同结构的衍射环。根据菲涅耳-基尔霍夫衍射理论,建立了非线性光学介质对高斯光束的衍射模型,并通过数值模拟计算发现,产生粗衍射环的条件是 $\Delta\Psi_0$ 与 z_1 符号相反;产生细衍射环的条件是 $\Delta\Psi_0$ 与 z_1 的符号相同。粗衍射环的个数等于 $|\Delta\Psi_0/2\pi|$,细衍射环的个数等于 $|\Delta\Psi_0/\pi|$ 。利用这种理论和计算方法还可以从一种新的角度来解释Z-扫描实验,这部分工作将另文发表。

参 考 文 献

- [1] Lee S S, Shin S Y. Polymeric digital optical switch incorporating linear branch with modified coupling region. *Electron. Lett.*, 1999, **35**(15): 1245~1246
- [2] Chen D, Fetterman H R, Chen A *et al.*. Demonstration of 110 GHz electro-optic polymer modulators. *Appl. Phys. Lett.*, 1999, **70**(2): 3335~3337
- [3] Quintero-Torres R, Thakur M. Picosecond all-optical switching in a Fabry-Perot cavity containing polydiacetylene. *Appl. Phys. Lett.*, 1995, **66**(11): 1310~1312

- [4] Wang C, Fei H, Xia J *et al.*. Optically controlled image storage in azobenzene liquid-crystalline polymer films. *Appl. Phys. (B)*, 1999, **68**(6):1117~1120
- [5] Durbin S D, Arakelian S M, Shen Y R. Laser-induced diffraction rings from a nematic-liquid-crystal film. *Opt. Lett.*, 1981, **6**(9):411~413
- [6] Werner O, Fischer B, Lewis A. Strong self-defocusing effect and four-wave mixing in bacteriorhodopsin films. *Opt. Lett.*, 1992, **17**(4):241~243
- [7] Tian J, Zhang C, Zhang G *et al.*. Position dispersion and optical limiting resulting from thermally induced nonlinearities in Chinese tea liquid. *Appl. Opt.*, 1993, **32**(33):6628~6631
- [8] 易文辉, 延卫, 王丽莉等. 聚吡咯衍射生物分子设计合成与结构性能表征. *西安交通大学学报*, 2000, **34**(3):5~8
- [9] 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
- [10] 赵凯华, 钟锡华著. 光学. 第六版, 北京: 北京大学出版社, 1998. 186~190
- [11] Kovsh D I, Yang S, Hagan D J *et al.*. Nonlinear optical beam propagation for optical limiting. *Appl. Opt.*, 1999, **38**(24):5168~5180

Diffraction Behavior of Polypyrrylarylenemethine/Polyvinyl Film to Gaussian Beam

Yao Baoli¹⁾ Ren Liyong²⁾ Hou Xun¹⁾ Yi Wenhui³⁾ Wang Minqiang³⁾

1), State Key Laboratory of Transient Optics Technology, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, The Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710068

2), Department of Physics, Northwest University, Xi'an 710069

3), State Laboratory of Fine Functional Electronic Materials and Devices, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049

(Received 12 May 2000; revised 8 August 2000)

Abstract: A new type of organic polymer nonlinear optical compound film — Polypyrrylarylenemethine/polyvinyl is prepared. In the Z-scan experiment, two different types of concentric diffraction rings are observed in the far field depending on the position of the sample relative to the Gaussian beam waist. This phenomenon can be explained by the diffraction effect of the Gaussian beam from the laser-induced phase-hole in the nonlinear medium caused by Kerr effect and thermo-optic effect. Based on Fresnel-Kirchhoff diffraction integral equation, a mathematical model on the diffraction of nonlinear optical media to Gaussian beam is established. The numerical calculations give good agreement with the experimental results.

Key words: nonlinear optical film; optical Kerr effect; Gaussian beam; diffraction