

有机聚合物薄膜激光诱导相位孔衍射的实验和理论^{*}

任立勇¹⁾ 姚保利²⁾ 侯 洵²⁾ 易文辉³⁾ 汪敏强³⁾

¹⁾(西北大学物理系, 西安 710069)

²⁾(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)

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)

(2000 年 1 月 24 日收到; 2000 年 5 月 12 日收到修改稿)

实验发现当一束较强的抽运激光(526 nm)与一束较弱的探测激光(632.8 nm)相交通过非线性介质薄膜(聚吡咯甲烯/聚乙烯醇薄膜)时, 在探测光束的远场产生了中心为亮斑, 近场中心为暗斑的多个同心衍射环. 从菲涅耳-基尔霍夫衍射积分公式出发, 理论分析了产生这种现象的原因是抽运光在非线性介质中诱导的相位孔对探测光的衍射效应. 通过数值积分, 计算结果与实验结果符合.

关键词: 聚合物非线性光学薄膜, 抽运-探测, 激光诱导衍射

PACC: 4265J, 7820, 4280K

1 引 言

当一束平行光通过半径为 a 的微小圆孔时, 会产生圆孔衍射. 衍射光场的分布由菲涅耳-基尔霍夫衍射积分公式确定. 根据观察屏到衍射屏距离的远近, 理论上可作相应近似处理, 得到大家熟知的远场(菲涅耳数 $N \ll 1$)夫朗和费衍射及近场(菲涅耳数 $N > 1$)菲涅耳衍射公式^[1,2]. 但是对比较复杂的衍射屏函数及菲涅耳数较大的近场情况, 完全的数学分析几乎不可能, 必须从基本的衍射积分公式出发, 借助计算机进行数值求解.

强激光与新型非线性光学材料的发展为传统光学领域注入了新的活力. 近年来的研究发现, 有机聚合物非线性光学材料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, 因而有望在高速光开关、光存储、光计算和光通讯等领域获得重要应用^[3-5]. 本文报道了我们用抽运-探测法研究一种新合成的 π 共轭聚合物非线性介质薄膜(聚吡咯甲烯/聚乙烯醇薄膜)时发现的一种新现象, 即探测光的光场分布受抽运光的控制. 在探测光束的远场处产生了中心为亮斑的多个同心衍射圆环, 而近场处则是中心为暗斑的同心衍射环. 我们把这种现象归

因于强抽运光在非线性介质中诱导的相位孔对探测光的衍射行为. 从基本的菲涅耳-基尔霍夫衍射积分公式出发, 经过理论分析和数值积分, 得到了与实验现象符合的计算结果.

2 实验与结果

实验样品——聚吡咯甲烯(PPy)是我们新合成的一种 π 共轭聚合物, 具有较大的三阶非线性系数. 以聚乙烯醇(PVA)为成膜材料, 我们制备了 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 min, 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 h, 然后盖上另一片盖玻片, 垂直加力, 在室温下放置 24 h 固化成膜. 薄膜的厚度根据滴加制剂多少及垂直压力大小而不同, 估计在几十个微米量级. 在日本 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 和 632.8 nm 波长处的光密度分别为 0.474 和 0.283.

抽运光源为美国 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 CW、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 150 mm 的透镜会聚到样品上, 焦点处的激光束腰半径约 50 μm . 探测光为氦氖激光器输出的 632.8 nm 连续光, 功率约 1 mW, 准平行光, 光斑直径约 2 mm. 探测光与抽运光成 10°夹角的方向通过样品被激发区域.

当入射到样品上的抽运激光功率达到一定阈值之后 ($\sim 3\text{ mW}$), 探测光的出射光场分布便表现出衍射效应, 出现一系列的同心衍射圆环. 对于远场情况, 中心为亮斑, 各级衍射圆环强度依次减弱; 对于近场情况, 能量主要集中在第一级衍射环内, 中心相对为暗斑, 其余各级衍射环强度都比较弱. 图 1 给出了抽运光功率 10 mW 时拍摄到的探测光的远场和近场光场分布照片. 实验上为了能清楚地观察到近场的光场分布, 使用了一个透镜组将其放大后, 在样品后 2 m 处接收屏上观察. 实验发现, 抽运光功率越高, 出现的衍射环数目越多. 当抽运光被斩断时, 探测光的光场分布立即恢复到原来的高斯分布. 因此可以断定, 衍射环是由抽运光引起的.

3 理论与计算

对上述实验现象, 我们认为是强抽运光在非线性介质薄膜中引起的相位孔烧孔对探测光产生的衍射行为. 具体解释如下.

假设基模高斯光束(抽运光, 波长 λ_1)沿 z 轴方向传播通过非线性介质, 样品入射面位于距束腰 z_1 距离处. 设 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^[6]

$$E(r, z) = E(0, 0)e^{-\alpha(z-z_1)/2} \frac{\omega_0}{\omega(z)} \exp\left[-\frac{r^2}{\omega^2(z)}\right], \quad (1)$$

式中 $E(0, 0)$ 为束腰中心的电场强度, ω_0 为束腰半径, α 为样品的线性吸收系数, $\omega(z)$ 为 z 截面处的光腰半径, 由下式给出

$$\omega(z) = \omega_0 \sqrt{(1 + z^2/z_0^2)}, \quad (2)$$

其中 $z_0 = \pi\omega_0^2/\lambda_1$, 为高斯光束的共焦参数(或称瑞利长度). 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 是介质的线性折射率, c 是真空光速, ϵ_0 是真空介电常数.

将(1)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 有如下关系式:

$$I(0, 0) = \frac{2P}{\pi \omega_0^2}, \quad (5)$$

可得样品中的光诱导附加折射率分布为

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

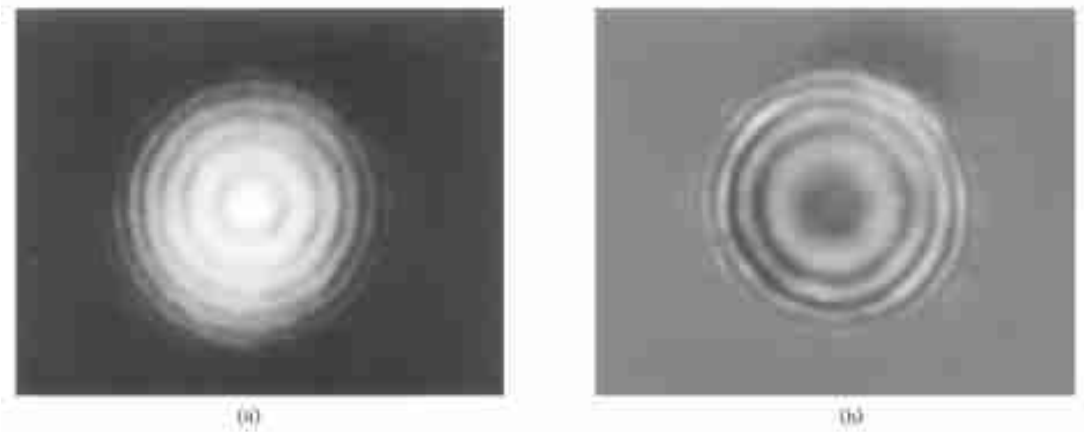


图 1 探测光通过抽运光激发的非线性介质薄膜(聚吡咯甲烯/聚乙烯醇薄膜)区域后, 在远场和近场的衍射光斑模式. 抽运光功率 10 mW (a)远场, (b)近场(照片(b)在从负片反转成正片时, 为了减小中心和外围亮环之间过大的反差, 经过了二次曝光处理).

当波长为 λ 的探测光束通过厚度为 d 的该区域时,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 $\omega(z) \approx \omega(z_1)$, (7)式可简化为

$$\begin{aligned} \Delta \Psi(r) &\approx \frac{4\gamma P}{\lambda} \cdot \frac{1}{\omega^2(z_1)} \cdot \frac{1 - e^{-\alpha d}}{\alpha} \exp\left[-\frac{2r^2}{\omega^2(z_1)}\right] \\ &= \Delta \Psi_0 \exp\left[-\frac{2r^2}{\omega^2(z_1)}\right]. \end{aligned} \quad (8)$$

这就是说当探测光通过抽运光作用区域时,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.这也相当于抽运光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,该微孔要对探测光产生类似标准圆孔的衍射,只不过这时的衍射屏函数为(Q 表示衍射屏上任意一点)

$$\tilde{U}(Q) = \exp\left\{i\Delta \Psi_0 \exp\left[-\frac{2r^2}{\omega^2(z_1)}\right]\right\}. \quad (9)$$

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^[1]

$$\tilde{U}(P) = \frac{-i}{\lambda} \iint_{\Sigma} F(\theta_0, \theta) \tilde{U}(Q) \frac{e^{ikD}}{D} d\Sigma, \quad (10)$$

这里将探测光在相位微孔上的光场分布近似当作平面波.式中 λ 和 k 分别为探测光的波长和波矢, $F(\theta_0, \theta)$ 为倾斜因子, D 是衍射屏上 Q 点到接收屏上 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 Q 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 的表示式为

$$D^2 = z_2^2 + (r \cos \phi - \rho)^2 + (r \sin \phi)^2. \quad (11)$$

倾斜因子的表达式为

$$F(\theta_0, \theta) = \frac{1}{2} (\cos \theta_0 + \cos \theta), \quad (12)$$

其中 θ_0 是入射光与次波源的方位角,本实验中 $\theta_0 \approx 10^\circ$; θ 为接收屏上场点 P 相对于次波源的方位角, $\cos \theta = z_2/D$.

对积分限的选取,由高斯函数性质可知,当 $r = \sqrt{2} \omega(z_1)$ 时,附加相移 $\Delta \Psi$ 即可忽略,因此积分限取为 $r = 0 \rightarrow \sqrt{2} \omega(z_1)$, $\phi = 0 \rightarrow 2\pi$. 将(9), (11), (12)式

代入(10)式,可得到接收屏距离样品 z_2 处的光强的径向分布:

$$\begin{aligned} I(\rho, z_2) &= \left| \frac{1}{2\lambda} \int_0^{2\pi} \int_0^{\sqrt{2} \omega(z_1)} \left[\frac{\cos \theta_0}{D} + \frac{z_2}{D^2} \right] \exp\left\{i \left[\frac{2\pi}{\lambda} D \right. \right. \right. \\ &\quad \left. \left. \left. + \Delta \Psi_0 \exp\left[-\frac{2r^2}{\omega^2(z_1)}\right] \right] \right\} r dr d\phi \right|^2, \end{aligned} \quad (13)$$

这就是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,取其平方和即为光强.

为了验证上述理论分析和计算程序的可靠性,首先计算了标准圆孔衍射.这时在(13)式中令 $\Delta \Psi_0 = 0$; 取 $z_1 = z_0$, 微孔半径 $a = 2 \omega_0 = 100 \mu\text{m}$. 图 2 给出了归一化数值计算结果.图 2(a)是光强的轴向($\rho = 0$)分布,光强极值点在 $z_2 = 15.8 \text{ mm}$, 7.91 mm , 5.27 mm 等处,正好对应于费涅耳数 ($N = a^2/\lambda z_2$) 为 1, 2, 3, ... 的情况,图中同时给出了以 $1/N$ 为坐标轴的刻度.该曲线与理论公式^[2] $I = 4 I_0 \sin^2\left[\frac{\pi}{2} N\right]$ 完全一致.图 2(b)计算远场 $z_2 = 2 \text{ m}$ 的径向光强分布与图 2(c)计算近场 $N = 2$ 的径向光强分布也与理论结果完全一致^[2].

对于激光诱导相位孔衍射情况,在(13)式中确定 z_1 和 $\Delta \Psi_0$ 后,我们也分别计算了光强的轴向分布及远场和近场的径向分布.图 3 给出的是 $z_1 = z_0$, 峰值非线性相移 $\Delta \Psi_0 = -4\pi$ 时的光强分布.从图中看出,对于远场情况,中心为亮斑,各级衍射环强度依次减弱;对于近场情况,主极强为第一级衍射环,其外围有三个较弱的衍射环,中心附近分布较复杂,但相对第一个亮环,总的效果为暗斑.这就从理论计算上完全解释了实验中观察到的现象.

4 结 论

根据上述实验和理论以及大量的数值计算,我们得出以下几个结论:

1. 激光诱导峰值非线性相移 $\Delta \Psi_0$ 的值受抽运激光功率,样品到束腰的距离,样品的光吸收系数和克尔常数的影响.对于正克尔效应($\gamma > 0$), $\Delta \Psi > 0$, 相位孔表现出附加折射率沿径向递减的微小正透镜衍射效应, $\Delta \Psi_0$ 越大,正透镜效应越明显,从而远场上光场的径向分布尺度越小.对于负克尔效应($\gamma < 0$), $\Delta \Psi < 0$, 相位孔表现出附加折射率沿径向递增的微小负透镜衍射效应, $\Delta \Psi_0$ 越负,负透镜效应越明显,从而远场上光场径向分布尺度越大.

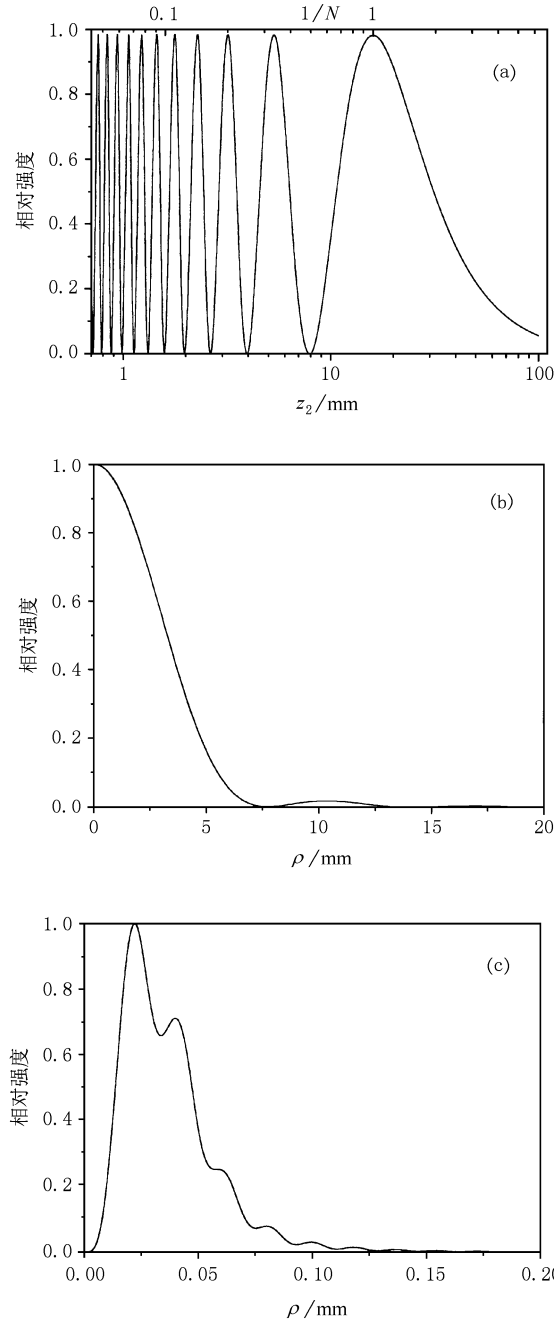


图2 标准圆孔衍射在轴向上和径向上相对光强分布的数值计算结果

(a)光强的轴向分布; (b)远场的径向光强分布($z_2=2\text{ m}$); (c)近场的径向光强分布(菲涅耳数 $N=2$)

2. 对 $\gamma>0$ 的样品, 不论是远场还是近场, 光强的径向分布都表现为中心最亮, 各级衍射环强度依次减弱. 对 $\gamma<0$ 的样品(本实验所用样品属于这种情况), 远场处光强的径向分布表现为中心最亮, 各级衍射环强度依次减弱; 近场处光强的径向分布表现为能量大部分集中在第一级衍射环内, 中心相对

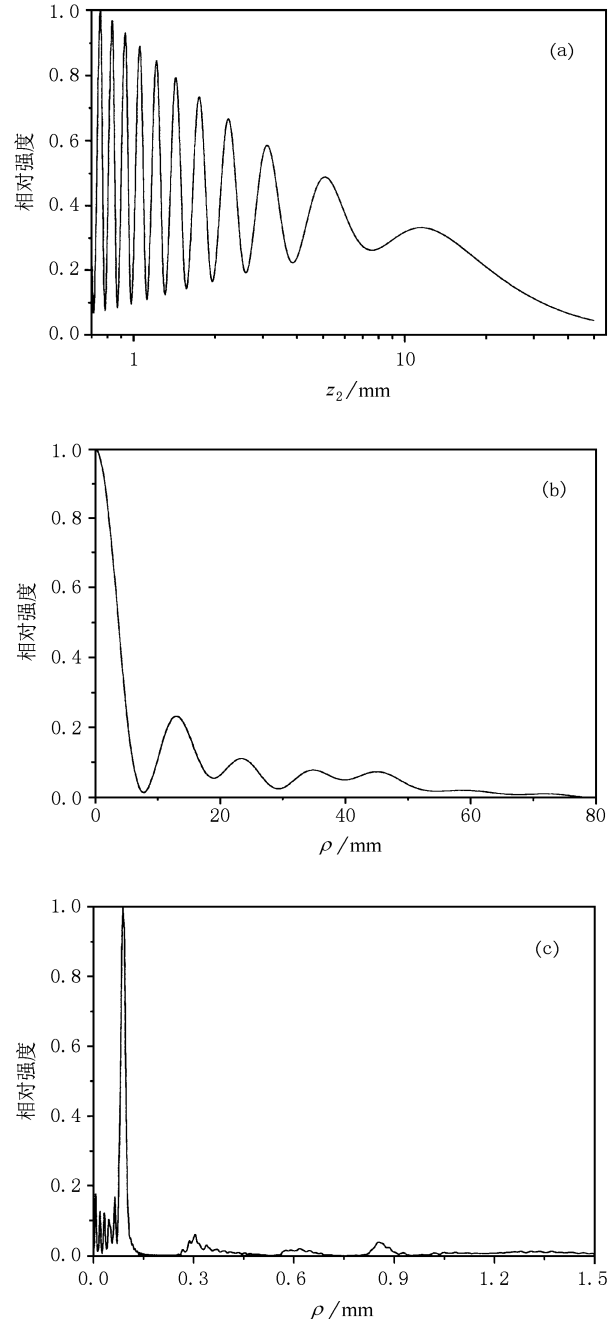


图3 激光诱导相位孔衍射在轴向上和径向上的相对光强分布
峰值非线性相移 $\Delta\Psi_0=-4\pi$, $z_1=z_0$

(a)光强的轴向分布; (b)远场的径向光强分布($z_2=2\text{ m}$); (c)近场的径向光强分布($z_2=2\text{ mm}$)

为暗斑.

3. 衍射环的个数等于 $|\Delta\Psi_0/\pi|$. 因而在实验条件给定时, 可以通过观察衍射环的个数来估测材料的克尔常数或非线性折射率的大小. 图 1(a)所示衍射环照片的条件是: 样品厚度约 $50\text{ }\mu\text{m}$, 位于焦点附近, 激光功率约 10 mW , 样品在波长 632.8 nm 处的

光密度为 0.283, 观察到了 6 个衍射环. 根据以上条件估算出聚吡咯甲烯/聚乙烯醇薄膜的克尔常数 $\gamma \sim 1.5 \times 10^{-8} \text{ m}^2/\text{W}$.

4. 当抽运光被挡住时, 探测光立即恢复为原来的高斯光斑. 对 $\gamma < 0$ 的非线性介质, 在近场情况下, 可以通过控制抽运光来实现对探测光的调制, 如果抽运光对非线性介质的相位烧孔过程和相位孔的恢复过程非常快, 有可能在高速光开关、光信号调制、光信息存储等方面得到应用.

- [1] Kai-hua Zhao, Xi-hua Zhong, *Optics*, 6th Edition (Beijing University Press, Beijing, 1998), p. 186—190, p. 225—228 (in Chinese) [赵凯华、钟锡华著, 光学, 第六版 (北京大学出版社, 北京, 1998), p. 186—190, p. 225—228].

- [2] Hiroshi Kubota, translated by Rui-xiang Liu, *Wave Optics* (Science Press, Beijing, 1983), p. 348—367 (in Chinese) [久保田广著, 刘瑞祥译, 波动光学 (科学出版社, 北京, 1983), p. 348—367].
- [3] K. S. Wong, S. G. Han, Z. V. Vardeny, *J. Appl. Phys.*, **70** (1991), 1896.
- [4] S. A. Jenekhe, W. Chen, S. Lo, S. R. Flom, *Appl. Phys. Lett.*, **57** (1990), 126.
- [5] C. L. Callender, L. Robtaille, M. Leclerc, *Opt. Eng.*, **32** (1993), 2246.
- [6] H. K. Chong, L. L. Yeung, G. K. Seong, *J. Opt. Soc. Am. B.*, **16** (1999), 600.

EXPERIMENT AND THEORY ON DIFFRACTION FROM LASER-INDUCED PHASE-HOLE IN POLYMER FILM*

REN LI-YONG¹⁾ YAO BAO-LI²⁾ HOU XUN²⁾ YI WEN-HUI³⁾ WANG MIN-QIANG³⁾

¹⁾ (Department of Physics, Northwest University, Xi'an 710069, China)

²⁾ (State Key Laboratory of Transient Optics and Technology, Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710068, China)

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

(Received 24 January 2000; revised manuscript received 12 May 2000)

ABSTRACT

Concentric diffraction rings with bright center in the far field and dark center in the near field of the probe beam were experimentally observed when a strong pump laser beam (526 nm) and a weak probe laser beam (632.8 nm) cross under the nonlinear medium film (Polypyrrylarylenemethine/polyvinyl film). Based on Fresnel-Kirchhoff diffraction integral equation, this phenomenon can be explained by the diffraction effect of the probe beam from the laser-induced phase-hole in the nonlinear medium caused by the pump beam. The numeric calculations give good agreement with the experimental results.

Keywords: Nonlinear optical polymer film, Pump-probe, Laser-induced diffraction

PACC: 4265J, 7820, 4280K