

溶胶 CdS 毫微晶的自聚焦和自位相调制

沈琪敏 张伟清 梁培辉

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

提 要

本文首次报道了氩离子激光在溶胶 CdS 半导体毫微晶中产生的自聚焦、热自散焦及自位相调制, 实验测得此种材料具有很大的克尔 (Kerr) 非线性系数 n_2 , 比 CS_2 大 10^5 倍。并且, 文中还分析了这种具有弱吸收的半导体溶胶毫微晶的非线性自位相调制机理及其与热自位相调制的差别。

关键词: 溶胶 CdS 毫微晶, 自聚焦, 热自散焦, 自位相调制。

一、引 言

近几年来, 随着光信息处理, 全光学器件研究的发展和深入, 探索低功耗、大光学非线性材料变得非常迫切和具有实际意义。1982年, Ashkin^[1]、Smith^[2]等人首次报道了 Ar^+ 连续激光在透明电介质微粒悬浮液中由激光的辐射压力引起的自聚焦和自陷, 测得其克尔折射率 n_2 比 CS_2 大 10^5 倍, 并由此发展了双稳器件。

同时, 半导体零维材料由于其非线性大、响应快等特点, 玻璃掺杂半导体毫微晶和溶胶半导体毫微晶引起了人们的极大关注。迄今, 已有大量的文章报道了这类材料的光学和非线性光学特性研究^[3]。在这些研究中, 多种不同的方法已被用来测量其非线性, 包括四波混频、干涉法和非线性吸收光等^[4~7]。然而, 其中大部分非线性测量都必须用到高功率、短脉冲激光。因此, 对于在可见范围内有弱吸收的半导体毫微晶, 在低功率连续激光下探测其非线性, 区分产生非线性的不同机制, 并将透明介电微粒的光克尔效应^[1]推广到弱吸收的半导体毫微晶中, 这对半导体量子点在低功耗、全光学逻辑器件等方面的探索将有实际意义。

本文利用 Ar^+ 激光在连续和调制状态下研究了溶胶 CdS 毫微晶的自聚焦和自位相调制。通过分析自位相调制干涉环结构及其形成时间过程, 分析了弱吸收悬浮液中激光力学效应和热效应所产生的自位相调制干涉图样的差别。并且, 本文从理论上分析了吸收对激光力学效应引起的克尔非线性的影响。

二、实 验 装 置

实验装置如图 1 所示。一束 Ar^+ 激光经一焦距为 30 cm 的正透镜 L 后, 聚焦在样品 M 的前表面上, 然后在距样品 64 cm 处放置一观察屏 S , 用照相机拍摄自位相调制图样。样品池为厚 1 cm 的石英比色皿, 经透镜 L 聚焦后的激光腰斑直径为 $40 \mu m$ 。测量时间过程时, 在透镜 L 前加上一速度可变的照相机快门, 其最短曝光时间为 $1/250 \text{ sec}$ 。在观察屏 S 处

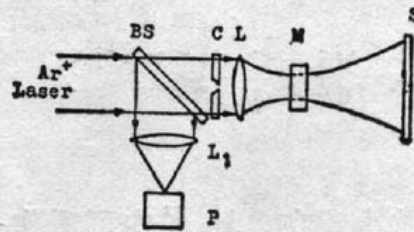


Fig. 1 Experimental arrangement of self-focusing and self-phase modulation
(BS—beam splitter; C—chopper; L, L₁—lens; P—powermeter; S—screen; M—sample)

换上一个快响应的 PIN 光电二极管, 其输出信号连接至示波器。另外, 用快门斩波产生脉宽为 4 ms 的单个光脉冲时, 为避免视觉误差, 可用二极管列阵 (Reticon 1024 G) 代替 S。

三、实验结果

实验中所用样品是采用化学“凝析法”制备的 CdS 丙三醇溶胶液体, 不同条件下制备的样品在室温下的吸收光谱显示出明显的量子尺寸效应^[8]。实验用 Ar⁺ 激光 488 nm 波长作为光源, 光束经透镜 L 后聚焦在样品 M 上, 焦斑在样品池内靠近前表面处。在激光功率较低时 (2 mW), 观察屏 S 上的光斑直径为 ~20 mm, 如图 2(a) 所示。逐渐增加激光功率 P_{in} 发现, 当 $P_{in} > 9$ mW 时, 光斑直径变小, 并出现一个直径小于 10 mm 的中心亮核, 即出现自聚焦现象, 如图 2(b) 所示。从自聚焦的阈值激光功率很容易得出 $n_2 \sim 4.5 \times 10^{-6}$ esu。当 P_{in} 超过 22 mW 时, 则可观测到一种结构较精细的自位相调制环。随着功率继续增加 ($P_{in} = 32$ mW), 干涉环级数也逐渐增多, 但环结构仍然比较精细, 并且最外圈亮环的直径仍然小于 20 mm, 如图 2(c)、图 2(d) 所示。称这种环为自位相调制“细环”。

进一步增大入射光功率, 发现当 P_{in} 大于 46 mW 时, 屏上出现一个较粗的亮环和一个中心亮斑, 称这种环结构为自位相调制“粗环”。同时, 细环仍然存在, 但这时细环的级数更多, 且对比度大大下降。图 2(e) 为 $P_{in} = 68$ mW 时的干涉图样。当功率增大至 154 mW 时, 粗环级数增多且光斑尺寸大大增加, 而细环几乎不可见, 如图 2(f) 所示。

通过对干涉图样的分析 (如下所述), 作者认为图 2(c) 所示的细环是由于高斯光束在弱吸收悬浮粒子上产生的梯度力所引起的自聚焦, 并导致自位相调制; 图 2(e)、图 2(f) 所示的粗环是由于激光的热效应产生了自散焦, 并引起热自位相调制。

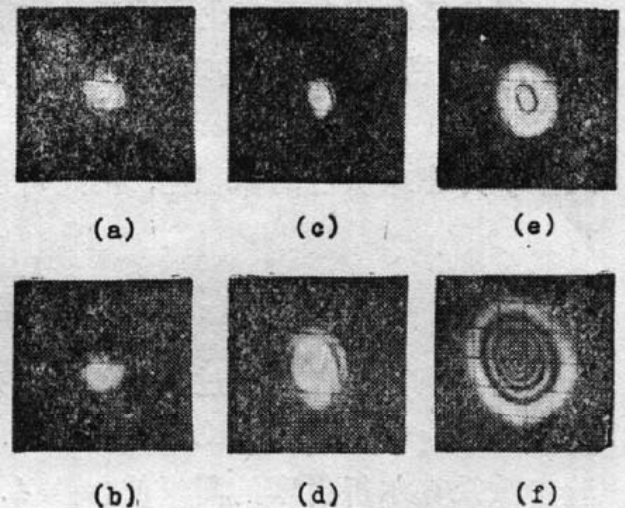


Fig. 2 Photos of beam pattern at different laser power P_{in} , (a) 2 mW, (The original spot); (b) 9 mW; (c) 32 mW; (d) The enlargement of fig. 2(c); (e) 68 mW; (f) 154 mW.
10 mm/div

四、分析与讨论

1. 克尔非线性

众所周知, 一个有吸收的电介质小球在电场 \mathbf{E} 中可看作一个电偶极子, 假定周围介质没有吸收, 其极化强度 \mathbf{P} 为^[9]

$$\mathbf{P} = n_b^2 \left| \frac{\tilde{n}^2 - 1}{\tilde{n}^2 + 2} \right| R^3 \mathbf{E} = p \mathbf{E}, \quad (1)$$

式中 n_b 为周围介质的折射率, $\tilde{n} = \tilde{n}_a/n_b$ 为介质小球对于周围介质的相对复折射率, $\tilde{n}_a = n_a + iK_a$ 为电介质小球的复折射率, R 为小球半径, p 为小球的有效极化率。在具有强度梯度的光场中, 小球受到一个沿梯度方向的力, 其大小为^[1]

$$\mathbf{F}_{\text{grad}} = (\mathbf{P} \cdot \nabla) \mathbf{E} = (1/2) p \nabla E_0^2, \quad (2)$$

式中 E_0 为光波的电场强度振幅。由于 F_{grad} 正比于场强的梯度, 因此它可以用一个势能函数 ϕ 表示

$$\phi = -(1/2) p E_0^2 = -(4\pi p/n_b c) I, \quad I = n_b c E_0^2 / 8\pi, \quad (3)$$

式中 I 为光强, c 为真空中光速。在溶胶悬浮液中, 半导体微粒在梯度力的作用下其密度将随光强的径向分布而变化, 从而导致悬浮液的有效折射率随光强径向分布而不同。在平衡态下, 微粒密度随势能的玻耳兹曼分布, 而溶胶悬浮液的有效复折射率可表示为

$$\tilde{n}_{\text{eff}} = n_b^2 + 3f n_b^2 [(\tilde{n}^2 - 1)/(\tilde{n}^2 + 2)], \quad f = (4/3) \pi R^3 N, \quad (4)$$

式中 f 为小球所占的体积比, 由此可以得出弱吸收溶胶悬浮液的有效非线性克尔折射率 n_2 为

$$n_2 = \frac{8\pi^2 n_b^2 N_0 R^6}{ckT} \left| \frac{\tilde{n}^2 - 1}{\tilde{n}^2 + 2} \right| \text{Re} \left(\frac{\tilde{n}^2 - 1}{\tilde{n}^2 + 2} \right). \quad (5)$$

当一束高斯光束通过一个具有克尔非线性的介质后, 其光强分布可用汉克尔-克希霍夫-夫朗和斐(Hankel-Kirchhoff-Fraunhofer)衍射积分描述^[10]。利用此积分和本文的实验参数及克尔折射率的测量值($n_2 = 4.5 \times 10^{-6}$ esu), 算得光强的径向分布如图 3 所示。可见, 对于克尔非线性引起的自位相调制, 当平行光入射时(入射光束腰在样品的前表面上), 衍射图样为中心有一很强的亮斑, 而外围的亮环的强度随级数增大迅速减小, 并且亮环的间距基本不变, 与图 2(d)的实验结果基本符合。

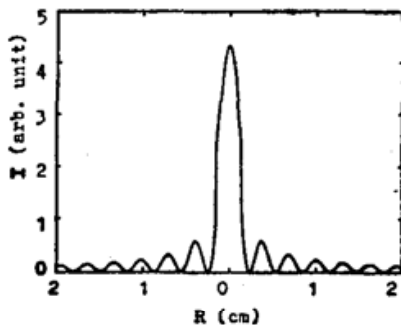


Fig. 3 Calculated beam pattern of nonlinear self-phase modulation with $P_{1\omega} = 32$ mW and $n_2 = 4.5 \times 10^{-6}$ esu

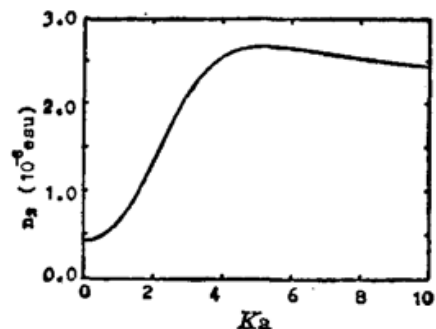


Fig. 4 Dependence of optical Kerr coefficient n_2 on absorptive index

另外, (5)式表示的克尔折射率显然与介质小球的折射率虚部(相应于材料的吸收)有关。若考虑无吸收的情况, 即 $K_a=0$, 并近似认为有折射率为 $n_{eff}=n_b+f(n_a-n_b)$ 时, 则(5)式与 Smith 等人的结果完全一致^[1]。对于有吸收的情况, 图 4 给出了(5)式中 K_a 与 n_2 的关系。很明显, 在弱吸收情况下, n_2 随吸收增大略有增大。表 1 给出了在 Ar^+ 激光的几个波长下, 样品 M 的线性透过率和两种自位相调制环的激光阈值。从表 1 中可看出, 随着透过率的降低(吸收的增大), 自位相调制细环的激光阈值略有降低, 相应于 n_2 略有增大, 这与图 4 的结果定性相符。

Table 1 The linear transmission, critical laser power for fine ring pattern and for coarse ring pattern at different wavelength

WAVELENGTH $\lambda(\text{\AA})$	TRANSMISSION $T(\%)$	CRITICAL POWER $P_{cr}(\text{mW})$	
		Fine Pattern	Course Pattern
5145	95.9	31	68
4965	86.7	25	—
4880	77.4	23	46
4765	58.7	6	18

2. 热自位相调制

对于 $(dn/dT) < 0$ 的介质, 当一束高斯光束通过时, 会产生热自散焦及热自位相调制。李淳飞等人利用光线偏转的观点详细分析了激光热自散焦的环形结构^[11]。分析表明, 对于热非线性, 无论入射光是平行、会聚还是发散, 出射光线都存在着一个最大偏转角。在最大偏转角附近, 由于光线具有相近的半径及光强, 因而形成明亮而较粗的干涉环; 在近轴方向上, 当平行光入射时, 位相相同的光束半径相距较远, 高斯分布又使其强度相差很大, 因而干涉条纹较暗且对比度较差, 形成图样中心部分的模糊不清, 如图 2(e)、图 2(f)及文献[11]所示。同样, 热自位相调制的光强分布也可用克希霍夫积分描述, Dabby 等人的计算结果同样表明了上述两个特征^[12]。

另外, 热自位相调制显然与材料的吸收有关。当吸收增大时, 热自位相调制的激光阈值将明显降低^[11], 表 1 中粗环的阈值体现了这一结果。

3. 自位相调制的时间过程

对于图 2(c)所示的细环及图 2(e)所示的粗环, 可以用调制 Ar^+ 激光测量了其中心亮斑的形成过程, 分别如图 5(a)和图 5(b)所示。从图 5(a)可看出, 细环的形成时间为 ≤ 100 ms, 这与 Ashkin 等人在无吸收悬浮粒子中由激光力学效应引起克尔非线性的理论和实验结果完全一致^[1]。众所周知热效应是一种响应较慢的过程, 图 5(b)表明粗环的形成时间为 ≥ 400 ms; 同样, 也测量了图 2(f)所示粗环的形成时间, 其结果为 ~ 2 sec。

另外, 当用 4 ms 的单脉冲观察时, 用二极管阵列同样观测到类似的细环结构, 但此时所

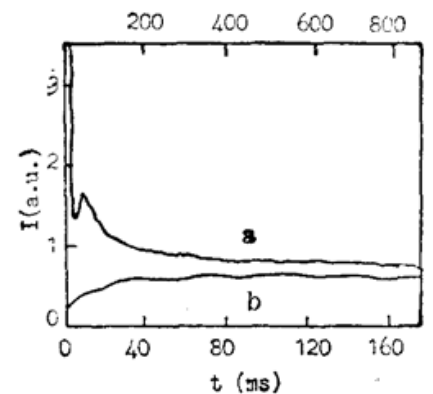


Fig. 5 Oscillographic traces of time evolution of different ring pattern

a—for fine pattern of fig. 2(c),
b—for coarse pattern of fig. 2(e)

需的激光功率较大。这表明当较高的光功率时存在比激光力学效应更快的克尔非线性。

综上所述,通过对激光在溶胶 CdS 毫微晶中的自位相调制激光阈值,环状结构及其形成时间过程的分析,作者认为,图 2(c)、图 2(d)所示的细环是由于激光在弱吸收溶胶微粒中的力学效应引起克尔非线性所造成的;图 2(e)、图 2(f)的粗环结构是由于激光的热效应产生的热自位相调制。

作者衷心感谢王文江教授对本工作的支持和关心。

参 考 文 献

- [1] A. Ashkin, J. M. Dziedzic *et al.*; *Opt. Lett.*, 1982, **7**, No. 6 (Jun), 276~278;
P. W. Smith, P. J. Maloney *et al.*; *Opt. Lett.*, 1982, **7**, No. 8 (Aug), 347~349.
- [2] P. W. Smith, A. Ashkin *et al.*; *Opt. Lett.*, 1985, **10**, No. 3 (Mar), 131~133.
- [3] B. Van Wousterghem, S. M. Saltiel *et al.*; *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1989, **6**, No. 10 (Oct.), 1823~1827; and references therein.
- [4] R. K. Jain and R. C. Lind; *J. Opt. Soc. Am.* 1983, **73**, No. 5 (May), 647~653.
- [5] G. R. Olbright, N. Peyghambarian; *Appl. Phys. Lett.*, 1986, **48**, No. 18 (May), 1184~1186.
- [6] D. W. Hall, N. F. Borrelli; *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1988, **5**, No. 8 (Aug), 1650~1654.
- [7] E. Canto, E. Miesak *et al.*; *Dig. of CLEO'88*, (Opt. Soc. Am., Washington DC, 1988), paper WM41, p. 234.
- [8] L. E. Brus; *IEEE J. Quant. Elect.*, 1986, **QE-22**, No. 9 (Sep), 1909~1914.
- [9] M. Born and E. Wolf; *«Principles of Optics, 5th ed»*, (Pergamon Press, London, 1975), Chap. 13.
- [10] E. Santamato and Y. R. Shen; *Opt. Lett.*, 1984, **9**, No. 12 (Dec), 564~566;
I. C. Khoo, J. Y. Hou *et al.*; *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1987, **4**, No. 6 (Jun), 886~891.
- [11] 李淳飞,周平;《光学学报》,1986, **6**, No. 10 (Oct.), 885~893.
- [12] F. W. Dabby, T. K. Gustafson *et al.*; *Appl. Phys. Lett.*, 1970, **16**, No. 9 (May), 362~365.

Self-focusing and self-phase modulation in colloidal CdS microcrystallites

SHEN QIMIN, ZHANG WEIQING AND LIANG PEIHUI

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Shanghai 201800)

(Received 12 December 1990; revised 26 February 1991)

Abstract

The self-focusing, thermal self-defocusing and self-phase modulation of argon ion laser in colloidal CdS semiconductor microcrystallites are first reported in this paper. The large nonlinear optical Kerr coefficient, n_2 , is measured, and is found to be $\sim 10^5$ times the value for CS₂. The differences between nonlinear self-phase modulation and thermal self-phase modulation in the colloidal semiconductor microcrystallites, which are of weak absorption, are analysed.

Key words: colloidal CdS microcrystallites, self-focusing, thermal self-defocusing self-phase modulation.