

在 Langmuir-Blodgett 膜中实现多重前向 光学相位共轭现象的研究*

杜卫冲** 章献民 陈抗生
(浙江大学信电系, 杭州 310008)

卢兆伦 郑殷东 吴剑钟
(杭州大学中心实验室, 杭州 310027)

提 要

本文报道一种新型的三次非线性光学薄膜——花青-花生酸(OY-AA)复合 Langmuir-Blodgett (LB) 膜以及采用 BOXCARS 结构的简并四波混频在 LB 膜中实现多重前向光学相位共轭波输出的现象。该输出的方法既是一研究介质三次非线性光学性质的有效手段, 而且可望在光学图象处理中有着其独特的应用。

关键词: 光学相位共轭、简并四波混频、LB 膜。

一、引 言

近年来由于 LB 膜技术在分子工程, 生物电子器件, 传感器技术及非线性光学薄膜器件中有着许多诱人的应用, 而成为研究的热点^[1]。已经证实具有大 π -电子共轭结构的有机分子体系具有很大的非线性效应^[2], 这几年, 有关采用 LB 膜技术将这类有机分子组装成具有精确厚度和确定分子取向的非线性光学膜的报道较多^[3~4]。象一些半(部)花菁类材料, 具有很高的二次非线性极化率^[5]。我们选择一种具有平面型 π -电子共轭对称结构的花菁染料 (Cyanine Blue), 采用 LB 技术与化学吸附法相结合^[6]成功地制备了一种具有较大光学三次非线性效应的花菁-花生酸(OY-AA)复合 LB 膜。

在非线性光学现象中, 简并四波混频反映了介质的三次非线性极化率 $\chi^{(3)}$, 这在自适应光学、光学图象处理中十分有用, 因此一直是人们感兴趣的课题^[7]。Carter 等人^[8]将 Eckbreth 和 Shirley^[9]报道的一种立体结构的相干反斯托克斯散射实验应用于简并的情况, 即所谓 BOXCARS 结构的简并四波混频实验。本文将这种方法应用于 LB 膜中, 报道了 OY-AA 复合 LB 膜的制备以及其中 BOXCARS 结构的简并四波混频实验的初步结果, 之后作了简单的理论分析。

二、样品、实验与结果

1. 样品的制备

图 1 所示为制备 LB 膜两种单体的分子式, 其中花生酸(AA)是非非线性光学活性的分

收稿日期: 1991年2月8日, 收到修改稿日期: 1991年5月28日

* 浙江省自然科学基金资助的项目。 ** 现在华南师范大学激光生命科学实验室, 广州 510631。

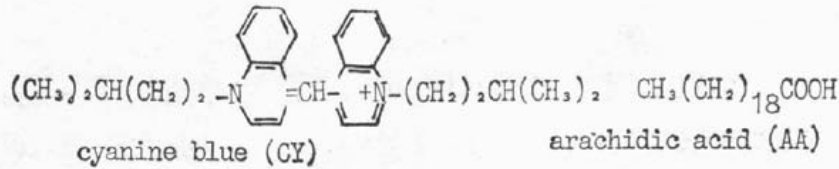


Fig. 1 Molecular Structures of the Film-forming Materials

子,它是 LB 膜典型成膜材料, CY 是水溶性很强的染料,被配制成浓度为 1×10^{-5} M/l 的水溶液,作为制备 LB 膜的亚相。把含有 1×10^{-3} M/l 的 AA 氯仿溶液滴入新配制亚相水面上, AA 是负离子型分子, CY 是正离子型的,亚相上 AA 单分子层会吸附亚相中的 CY 分子而形成 CY-AA 复合分子膜,再通过垂直提拉法转移到事先经过抗水处理的玻璃基片上,膜压设置在 30 dyne/cm,拉膜速度约 1 cm/min,这样可形成光学质量较好 Y 型 LB 膜。

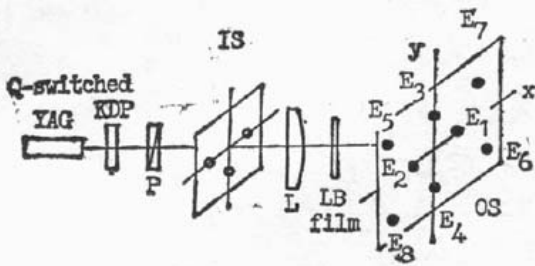


Fig. 2 Experimental arrangement of BOXCARS FPCW. P: Polarizer, IS: Input Screen, L: Lens, OS: Output Screen



Fig. 3 Photos taken on the output plane. (a) for the total input pulse energy $I_0 < 10 \mu\text{J}/\text{pulse}$, (b) $I_0 = 50 \mu\text{J}/\text{pulse}$, (c) for a water solution cell of CY dye was on the focal plane instead of a film sample

图 2 为 BOXCARS 结构的前向相位共轭实验的示意图,所用的光源为调 Q Nd:YAG 倍频脉冲激光(Quanta-Ray DCR-3)波长 532.0 nm 位于 CY-AA LB 膜的电子吸收带内,脉宽 8 ns,脉冲频率从 0~10 Hz 之间可调。激光束($\phi 1$ cm)垂直入射到一个不透明的屏上,屏上开有三个小孔($\phi 1$ mm),分别位于 x , $-x$, y 轴上,离开光轴的距离均为 2.5 mm,透过屏形成三束平行光,分别为 E_1 、 E_2 、 E_3 ,其中 E_1 、 E_2 为泵浦波, E_3 为信号波,再经过一焦距为 230 mm 的透镜聚焦在样品膜上,透过膜之后,除了三束入射光外,还存在几束新的激光输出,如图 2 所示,分别记作 E_4 , ..., E_8 。即在后面的观察屏上看到一光斑阵列输出。图 3(a)、(b)为在不同总脉冲能量下在观察屏处拍摄的照片,实验发现,当入射脉冲能量由小增大先观察到光斑 E_4 、 E_5 、 E_7 的输出,而在更高的能量下才会观察到 E_6 、 E_8 ,甚至很多的光斑输出。图 3(c)是将一含有 1×10^{-4} M/l 的 CY 水溶液的样品池(长度为 30 mm)置于焦平面上时拍摄的照片,这种情况下仅看到 E_4 光斑的输出。

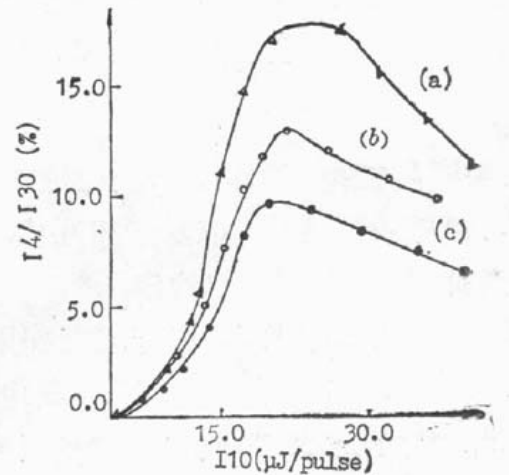


Fig. 4 Experiment covers of the conversions efficiency of a PCW I_4/I_{30} versus the pump pulse energy I_{10} ($\doteq 120$) with different values of I_{30}/I_{10} , .31 for (a), .52 for (b), 1 for (c)

图 4 为在含有 120 层 CY-AA 复合 LB 膜中, E_4 输出的转较效率 I_4/I_{30} 相对于泵浦脉冲能量 I_{10} 的变

化曲线, 实验中三个脉冲输入能量 I_{10} , I_{20} , I_{30} 同步增加, 其中 $I_{10} = I_{20}$, 图中三条曲线对应于不同值的情况。实验发现当 $I_{10} > 6 \mu\text{J}/\text{pulse}$ (总脉冲能量 $I_0 = I_{10} + I_{20} + I_{30}$ 约大于 $15 \mu\text{J}/\text{pulse}$) 时 E_4 的输出随 I_{10} 增加的速度很快, 而当 I_{10} 大于 $25 \mu\text{J}/\text{pulse}$ (I_0 约大于 $70 \mu\text{J}/\text{pulse}$) 时, E_4 的输出趋于饱和, 转换效率反而下降, 如果能量再继续增大 (I_0 约达 $150 \mu\text{J}/\text{pulse}$) 会出现膜损伤现象。

三、理论分析

假设三个输入场为水平偏振的平面单色波, 其场分布分别为

$$E_{1,2}(\mathbf{r}, t) = (1/2) \mathcal{E}_{1,2} \exp\{-i[\omega t - (k_z z \pm k_x x)]\} + \text{C.C.}, \quad (1)$$

$$E_3(\mathbf{r}, t) = (1/2) \mathcal{E}_3 \exp\{-i[\omega t - (k_z z + k_y y)]\} + \text{C.C.}, \quad (2)$$

式中 \mathcal{E}_i 为各个输入场的复振幅, ω 是输入场的频率, k_x, k_y, k_z 为各坐标轴上波矢分量, 这里 $k_x = k_y = \beta$, 实验中这是一个小量即 $(\beta/k_z) \ll 1$, C.C. 表示前一项的复共轭, (1) 式中的正负号分别对应于场 E_1, E_2 。假设样品三次非线性极化率的一个分量为 $\chi^{(3)}(\omega) = \chi_{1111}^{(3)}(\omega, \omega, \omega, -\omega)$, 由此在样品中感应一三次非线性极化强度, 其中频率为 ω 的分量为

$$\begin{aligned} P^{(3)}(\omega) = & (3/2) \epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega) [\mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_3^* \exp[i(k_z z - \beta y)] \\ & + \mathcal{E}_1^* \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_3 \exp[i(k_z z - 2\beta x + \beta y)] \\ & + \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^* \mathcal{E}_3 \exp[i(k_z z + 2\beta x + \beta y)], \end{aligned} \quad (3)$$

式中 ϵ_0 为真空的介电常数。从上式三项中的每一项在 x, y 轴的波矢分量分析, 它们分别对应于图 2 中新的输出光斑 E_4, E_5, E_7 , 而它们的复振幅 $\mathcal{E}_4, \mathcal{E}_5, \mathcal{E}_7$ 分别有

$$\mathcal{E}_4 \propto \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_3^*, \quad \mathcal{E}_5 \propto \mathcal{E}_1^* \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_3, \quad \mathcal{E}_7 \propto \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^* \mathcal{E}_3. \quad (4)$$

由此可以认为 $\mathcal{E}_4, \mathcal{E}_5, \mathcal{E}_7$ 分别为 $\mathcal{E}_3, \mathcal{E}_1, \mathcal{E}_2$ 的前向相位共轭波(FPCW)输出。其中只有 E_4 满足相位匹配条件, 而 E_5, E_7 都存在一个相位失配量 $\Delta\varphi$, 可证明

$$\Delta\varphi = (2\beta^2 d/k_z), \quad (5)$$

式中 d 为样品的厚度, 对于薄膜样品(尤其是 LB 膜), 这个相位失配量很小, 因此 E_5, E_6 是可以被观察到的, 但对于相互作用程较长的样品来说(如图 3(c)的情况), 较大的相位失配量抑制了 E_5, E_7 的输出。

如果再考虑 E_4 参予相互作用, 例如 E_4 和 E_1, E_2 相互作用又会产生三项, 它们分别为 $\mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_4^*, \mathcal{E}_1^* \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_4, \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^* \mathcal{E}_4$, 其中第一项是对 E_3 场的贡献, 而第二、三项分别对应图 2 中的 E_8, E_6 的输出, 因此它们的复振幅 $\mathcal{E}_6, \mathcal{E}_8$ 分别有

$$\left. \begin{aligned} \mathcal{E}_6 & \propto \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^* \mathcal{E}_4 \propto \mathcal{E}_1^2 |\mathcal{E}_2|^2 \mathcal{E}_3^*, \\ \mathcal{E}_8 & \propto \mathcal{E}_1^* \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_4 \propto |\mathcal{E}_1|^2 \mathcal{E}_2^2 \mathcal{E}_3, \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

由此可见 E_6, E_8 是五次非线性项产生的贡献, 所以它们所需的入射光强度要比产生 E_4, E_5, E_7 所需的要高一些, 同时 E_6, E_8 和 E_5, E_7 一样也存在一由(5)式表示的相位失配量。如果再考虑 E_4 和 E_1, E_3 或 E_2, E_3 的相互作用, 还可以产生另外新的输出, 实验中也观察到了这种现象。

四、结 论

根据上述初步的分析, 在 OY-AA 复合 LB 膜所观察的三次或更高次的非线性现象主要是 LB 膜中 OY 分子的近共振吸收引起的, 我们将在以后的文章中报道进一步的实验结果和有关的理论分析。

参 考 文 献

- [1] S. T. Kowel, R. Selfridge *et al.*; *Thin Solid Films*, 1985, **150**, No. 1/2 (Sept), 377.
- [2] G. D. Agrawal, C. Cojan and C. Flytzanis; *Phy. Rev. (B)*, 1987, **17**, No. 2 (Jan), 777.
- [3] F. Kajzar, I. R. Girling and I. R. Peterson; *Thin Solid Films*, 1988, **160**, (June), 209.
- [4] B. L. Anderson, J. M. Hoover *et al.*; *Thin Solid Films*, 1988, **179**, (Nov), 413.
- [5] S. T. Kowel, L. G. Ye *et al.*; *Opt. Eng.*, 1987, **26**, No. 2 (Feb), 107.
- [6] K. Saito, K. Ikegami *et al.*; *Thin Solid Films*, 1989, **179**, (Nov), 369.
- [7] R. A. Fisher; «Optical phase conjugation», (Academic Press Inc., New York, 1983), 30.
- [8] G. M. Carter; *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1987, **4**, No. 6 (June), 1018.
- [9] J. A. Shirler, R. J. Hall *et al.*; *Opt. Lett.*, 1980, **5**, No. 9 (Sept), 380.

Multi-forward optical phase conjugate wave outputs in Langmuir-Blodgett films

DU WEICHONG, ZHANG XIANMING AND CHEN KANGSHENG
(Zhejiang University, Hangzhou 310008)

LU ZHAOLUN, ZHENG YINDONG AND WU JIANZHONG
(Hangzhou University, Hangzhou 310028)

(Received 8 February 1991; revised 28 May 1991)

Abstract

A new kind of third-nonlinear optical Langmuir-Blodgett films is reported in this paper, And in which an interesting phenomenon, multiple forward optical phase conjugate wave (FPCW) outputs using BOXCARS degenerate four-wave-mixing technique has been observed, This way to obtain multiple FPCWs is considered as a simple method to investigate the third-nonlinearities of thin films and some special applications in optical image processing are expected,

Key words: optical phase conjugate, degenerate four-wave-mixing, Langmuir-Blodgett film.