

掺半导体玻璃中的简波四波混频

邱佩华 庄大奎 王文耀 立群 刘华 王之江

(中国科学院上海光机所, 上海 201800)

提要 本文报道了硼酸盐玻璃中掺杂半导体微晶 $\text{CdS}_x\text{Se}_{1-x}$ 的简并四波混频。当实验中采用波长 $\lambda = 0.532 \mu\text{m}$, 脉宽 $t_p = 8 \text{ ns}$ 和 $t_p = 6 \text{ ps}$ 的脉冲进行四波混频时, 测得 $\text{CdS}_x\text{Se}_{1-x}$ 的三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}$ 的值分别为 $\sim 10^{-9} - 10^{-8} \text{ esu}$ 和 10^{-11} esu , 瞬态光栅的衰减寿命为 30 ps 。实验装置的时间分辨率为 6 ps 。

关键词 简并四波混频, 时间分辨率, 非线性极化率

Degenerate four-wave mixing in semiconductor doped glasses

Qiu Peihua, Zhuang Dakui, Wang Wenyao, Li Qun, Liu Hua, Wang zhijiang

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

Abstract In this paper, degenerate four-wave mixing in borosilicate glasses doped with crystallites of the mixed semiconductor $\text{CdS}_x\text{Se}_{1-x}$ is reported. When the experiments were performed with the light pulse at wavelength $\lambda = 0.532 \mu\text{m}$, pulse-durations $t_p = 8 \text{ ns}$ and $t_p = 6 \text{ ps}$, these semiconductor-doped glasses exhibit third-order nonlinearities $\chi^{(3)}$ of $\sim 10^{-9} - 10^{-8} \text{ esu}$ and $\sim 10^{-11} \text{ esu}$ for DFWM with 10 ns and 6 ps laser pulses, respectively. The experimentally measured decay time of the gratings is 30 ps , with a time resolution of 6 ps .

Key words degenerate four-wave mixing, time resolution, nonlinear susceptibility

1 导论

介质的三阶极化率 $\chi^{(3)}$ 是非线性光学中很重要的物理量。近些年来, 围绕着光通讯光计算的研究, 人们正在研制和探索具有大的三阶非线性系数 $\chi^{(3)}$ 和快的响应时间的各种非线性光学材料。获得精确的三阶极化率 $\chi^{(3)}$ (或非线性折射率 n_2) 的方法很多。其中简并四波混频法^[1~3]的最大优点是: 它不但能给出介质的非线性参数 $\chi^{(3)}$ 和 n_2 , 同时能给出介质的快速时间响应特性。四波混频光线配置示于图 1。

A_1 和 A_2 是两个传播方向相反的强泵浦波, A_3 为物波(或称探测波)。物波与泵浦波成一小

的角度。这三个波在非线性介质中互相作用,引起非线性极化 P^{NL} ,从而产生第四个相位共轭反射波(或叫信号波) A_4 。 A_4 的传播方向与 A_3 相反。在下面的讨论中假设:泵浦光强 I_1 和 I_2 在与非线性介质作用中除被介质吸收之外,未被抽空,即损耗可忽略不计;且 $I_1 \approx I_2$,同时探测光强 $I_3 \ll I_1$ 。非线性介质为各向同性的仅存在于 $0 < z < L$ 空间。为了简单起见,设所有光波都是线偏振的,且偏振方向是互相平行的。于是便可导出非线性介质的三阶极化率的表达式^[4]

$$\chi^{(3)} = \frac{2\lambda n^2 \Gamma}{3\pi c \mu_0} \frac{1}{\sqrt{I_1 I_2}} \exp\left(\frac{1}{2}\alpha L\right) \quad (1)$$

其中 λ 为激光波长, n 为介质的线性折射率, c 为真空中光速, μ_0 为磁化率, I_1 和 I_2 为前向和后向泵浦光强, α 为材料的吸收系数, L 为介质厚度, Γ 为耦合波方程的耦合常数,它可以由简并四波混频的反射率 $R = I_4/I_3$ 求得^[3]。对于我们的实验情况下耦合常数 Γ 与反射率 R 的关系式可写成如下形式

$$R = \left| \frac{A_4(0)}{A_3^*(0)} \right|^2 = \left| \frac{2\Gamma \sin\left(\frac{1}{2}HL\right)}{H \cos\left(\frac{1}{2}HL\right) + \alpha \sin\left(\frac{1}{2}HL\right)} \right|^2 \quad (2)$$

其中
$$H = (4|\Gamma|^2 - \alpha^2)^{1/2} \quad (3)$$

对于各向同性介质,非线性折射率 n_2 与 $\chi^{(3)}$ 的关系为^[4]

$$n_2 = \frac{12\pi}{n} \chi^{(3)} \quad (4)$$

上式中 n 为样品的线性折射率的实部。

2 实验与结果讨论

实验上利用调 Q 和碰撞锁模 YAG 激光器产生的 ns 和 ps 红外脉冲,经 KDP 晶体倍频后波长 $\lambda = 0.53 \mu\text{m}$,脉宽分别为 $t_p = 8 \text{ ns}$ 和 $t_p = 6 \text{ ps}$ 的绿光脉冲作为简并四波混频光源。图 2 给出实验装置示意图。纳秒简并四波混频装置图与图 2 类似,只是由于光脉冲为 8 ns,光路调整不需要高精度,在整个光路中没有光延迟线。图 2 中符号分别表示: A_p 为光阑, BS 为分束器, M 为全反射镜, OD 为光延迟线, PD 为光电接收器, F 为滤光片, S 为样品。 A_1, A_2, A_3 和 A_4 分别为前向泵浦、后向泵浦、探测和信号光束的振幅。由于皮秒 DFWM 比纳秒

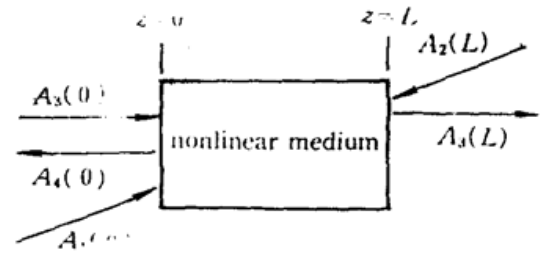


Fig. 1 Degenerate four-wave mixing geometry

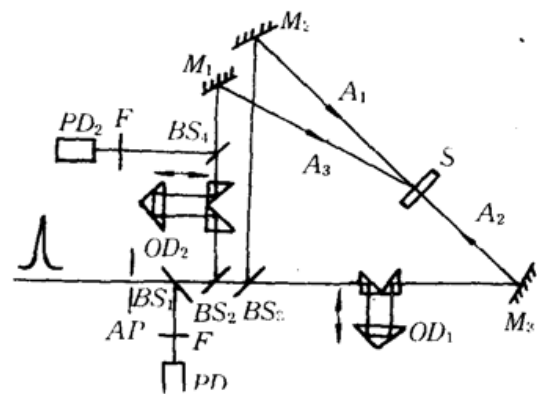


Fig. 2 Schematic of the experimental set-up of picosecond pulse DFWM

DFWM 要求高的调整精度,在样品 S 处不但要求 A_1, A_2 和 A_3 三束光在空间上重叠,而且时间上要精确同步。三束光中只要其中一束光的光程与另两束相差几 mm,四波混频信号就会骤然变小,甚至消失。为了高精度调整和时间分辨实验,我们在后向泵浦和探测光束的光路中分别放

置了光延迟线 OD_1 和 OD_2 。光延迟线的调整精度可达 0.03 ps 以上。光电接收器 PD_1 和 PD_2 分别监测入射光束总强度和信号光强。由于在样品 S 前后对光的光路损耗进行了标定,当已知总光强后,便可推知前向泵浦、后向泵浦和探测光束的光强。实验中前向泵浦光强 I_1 大约与后向泵浦光强 I_2 相等,即 $I_1 \simeq I_2$,而探测光束强度 $I_3 \ll I_1$ 或 I_2 。实验中 $I_3 \simeq 0.1 I_1$ 。信号光强 I_4 的大小,则因样品和所用脉冲宽度的不同而异。样品的四波混频反射率 $R = I_4/I_3$ 的值在 $10^{-1} \sim 10^{-4}$ 之间。 CdS_xSe_{1-x} 微晶通过光的散射与电子显微镜研究,其尺寸大小在 $10 \sim 100$ nm 之间。微晶本身是各向异性的,但由于微晶是均匀的掺杂在硼酸盐玻璃中,所以样品可视为是各向同性的。

实验中我们测出四波混频反射率 R ,又知样品的吸收系数和厚度,便可利用前面的公式求出 $\chi^{(3)}$ 和 n_2 。实验结果列于表 1。

Table 1 Experimental parameters and results

No.	Sample	L (mm)	α (cm^{-1})	R	$\chi^{(3)}$ (esu)	n_2 (esu)	t_r (ps)	t_p	λ (nm)
1	$CdS_{0.85}Se_{0.15}$	2	8.2	2.88×10^{-1}	4.7×10^{-8}	1.17×10^{-6}		8 ns	530
2	$CdS_{0.85}Se_{0.15}$	2	8.2	5.3×10^{-4}	5.31×10^{-11}	1.65×10^{-9}	30	6 ps	530
3	$CdS_{0.9}Se_{0.1}$	2	0.69	2.06×10^{-1}	8.93×10^{-9}	2.23×10^{-7}		8 ns	530
4	$CdS_{0.9}Se_{0.1}$	2	0.69	4.52×10^{-4}	1.05×10^{-11}	2.47×10^{-10}	30	6 ps	530
5	CS_2	2	0	1.94×10^{-4}	5.14×10^{-13}	1.17×10^{-11}		6 ps	530

表中 L 为样品厚度, α 为样品吸收系数, R 为 DFWM 反射率, λ 为激光波长, t_r 是实验中采用的激光脉冲宽度, t_p 为样品中光场引起的瞬态光栅的寿命。实验中材料在强光场作用下,产生 $\chi^{(3)}$ 的机制很多,如电子云畸变、电子振动、电子跃迁、分子取向、电致伸缩、分子天平动和热效应等。各种机制的响应时间是不尽相同的。例如热效应是一个较慢的过程,其响应时间在 10^{-6} s 到 10^{-2} s 之间;分子取向弛豫则与分子的质量大小、分子尺寸、温度 T 和溶液的粘度诸因素有关;而电子云畸变、电子振动和电子跃迁则是相当快的过程,一般在 10^{-12} s 到 10^{-15} s 之间;电致伸缩过程的响应时间在 10^{-8} s 左右。所以利用不同的时间分辨的实验装置,可以对产生 $\chi^{(3)}$ 和 n_2 的不同机制在时间上进行区分。

实验上对 CdS_xSe_{1-x} 玻璃样品,我们用 8 ns 和 6 ps 的脉冲进行了研究。所获得的 $\chi^{(3)}$ 和 n_2 值在用纳秒脉冲时要比皮秒脉冲时大两个多数量级。其关键原因就是当利用皮秒脉冲时,电致伸缩对非线性参数没有贡献,因为电致伸缩对于皮秒激光脉冲来不及响应,而它对 8 ns 的脉冲是可以响应的。当探测脉冲与前向泵浦脉冲在样品中干涉时,产生一个粗光栅。后向泵浦脉冲在粗光栅上散射,产生 $I_4(F)$ 。同样探测光束与后向泵浦光束干涉产生一个细光栅。前向泵浦光束在细光栅上散射产生 $I_4(c)$ 。用公式表示可写成

$$I_4 = I_4(c) + I_4(F) \quad (5)$$

在皮秒简并四波混频中,由于后向泵浦光束 I_2 相对于 I_1 和 I_3 有着时间延迟 t_b 。这样 $I_4(c)$ 对 I_4 的贡献大大小于 $I_4(F)$,即 $I_4(c) \ll I_4(F)$,所以在时间分辨实验中可将 $I_4(c)$ 忽略不计,认定 $I_4 + I_4(F)$ 。

讨论瞬态光栅寿命时,同样只需考虑粗光栅而不顾及细光栅。光的干涉造成掺半导体微晶 CdS_xSe_{1-x} 玻璃中等离子体(即电子-空穴)密度的差异,而形成瞬态空间光栅。光栅的寿命 t_r 就是电子空穴等离子体的寿命。它可以写成

$$t_r = \frac{\tau_r \tau_D}{\tau_r + \tau_D} \quad (6)$$

其中 τ_r 是电子空穴的复合时间, τ_D 为等离子体(载流子)扩散时间。由于 $\tau_D \gg \tau_r$, 所以

$$t_r = \tau_r \quad (7)$$

实验中, 当 I_1, I_2 和 I_3 在空间和时间上都完全同步时, 产生的四波混频信号 I_4 最强。此后保持 I_1 和 I_3 两光束的光程不变。通过调整光延迟线 OD_1 , 改变 I_2 的光程。所测出的时间分辨曲线示于图 3 中。曲线上每个点都是 10 次测量结果的平均值。

曲线的后沿可以直接给出瞬态光栅的寿命寿命。 t_r 是光栅对后向泵浦光散射的峰强度降到 $1/e$ 处时所需要的时间。表中列出的两种半导体微晶玻璃 $\text{CdS}_{0.85}\text{Se}_{0.15}$ 和 $\text{CdS}_{0.9}\text{Se}_{0.1}$ 所获得的寿命 t_r 均为 30 ps。这说明在皮秒脉冲光作用下, 产生的等离子体(电子空穴)的复合时间是很快的。实验装置的时间分辨率为 6 ps。

表中 CS_2 样品, 人们对其研究的很多, 可将其视为标准样品。我们所获得的有关 CS_2 的数据与国外报道的完全一致, 这说明我们的实验结果是可靠的。

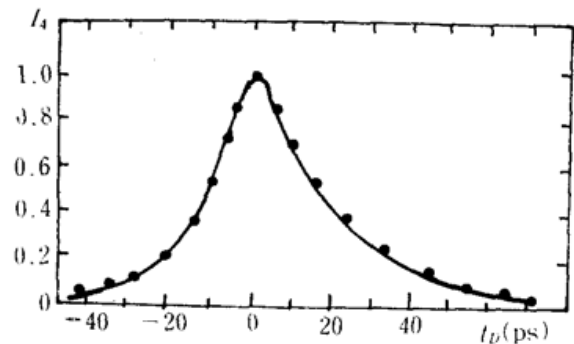


Fig. 3 Picosecond time response curve of the sample $\text{CdS}_x\text{Se}_{1-x}$. t_D is the time delay of the backward pump pulse I_2 to the probe pulse I_3 . I_4 is the normalized signal intensity. The size of the crystal $\text{CdS}_x\text{Se}_{1-x}$ doped in the glass is 10~100 nm

参 考 文 献

- 1 A. Yariv, D. M. Pepper, *Opt. Lett.*, **1**(1), 16(1977)
- 2 R. G. Caro, M. C. Gower, *IEEE J. Quant. Electr.*, **QE-18**(9), 1376(1982)
- 3 R. K. Jain, R. C. Lind, *J. Opt. Soc. Am.*, **73**(5), 647(1983)
- 4 Robert Adair, L. L. Chase *et al.*, *Phys. Rev. B*, **39**(5), 3337~3350(1989)