

Mn:KNSBN 晶体中弱入射光高反射率 四波混频相位共轭

余卫龙 李庆行 余振新 高兆兰
(中山大学激光与光谱学研究所, 广州 510275)

张庆伦 陈焕鑫
(山东大学晶体研究所, 济南 250100)

提 要

功率为 1 mW 左右的 He-Ne 激光束在 Mn:KNSBN 晶体中实现四波混频相位共轭。入射光相对于晶体主光轴的取向及入射光偏振组态对相位共轭反射率都有很大的影响。当物光近于布儒斯特角入射时, 反射率可达 60%。建立时间约为 60 sec 的光折变光栅具有 18 hr 左右的寿命。晶体中观察到诱导四波混频相位共轭。

关键词: 四波混频, 相位共轭。

一、引 言

寻找用尽可能低功率的光源而获得尽可能大的相位共轭反射率的非线性介质, 是一个有重要实用价值的课题。KNSBN 晶体由于有较大的电光系数, 容易生长^[1]和掺杂^[2], 因而受到人们的重视。无掺杂的 KNSBN 晶体在可见光区只对波长短于 520 nm 的光有弱的吸收^[3], 为了做成共振型四波混频相位共轭, 一般只能用 Ar⁺ 激光作光源, 且反射率不高^[4]。掺 Mn 的 KNSBN 晶体对波长 560 nm 至 700 nm 的光有一个不陡的吸收边^[5], 故有多种可见区激光器可以作候选光源。其中, 采用兼价的, 低功率的 He-Ne 激光器就相当理想。本文报道以 mW 级 He-Ne 激光束入射到掺 Mn 的 KNSBN 晶体时观察到的四波混频相位共轭特性; 入射光相对于晶体主光轴的取向及入射光偏振组态对相位共轭反射率的影响; 相位共轭波的时间特性; 光折变光栅的寿命。同时对有关现象进行解释。

二、实验结果及其解释

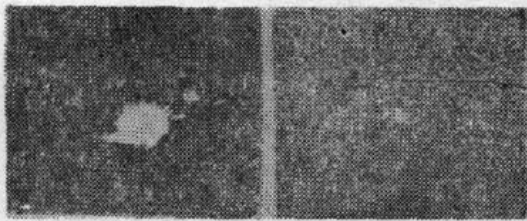
1. 相位共轭实验

简并四波混频相位共轭实验装置如图 1 所示。其中光源是单横模的, 输出功率为 7 mW 的 He-Ne 激光器; BS_1 、 BS_2 、 BS_3 为分束器; M 为反射镜; P_1 、 P_2 为偏振器; $\lambda/2$ 为二分之一波片($\lambda/2$ 片在需要 I_1 与 I_2 偏振正交时才放入); D_1 、 D_2 为探测器, D_1 测量共轭波信号, D_2 监视光源功率的变化; C 为晶体, 厚度为 3.92 mm, 实验前已用 1.5 kV/mm 的直流电场在

100°C 的硅油中极化。偏振器在必要时才插入光路。在整个实验过程中, I_1 和 I_3 共线, I_1 和 I_2 的夹角固定为 7.5° 。非偏振光入射情况下, $I_1=2.4 \text{ mW}$, $I_2=2 \text{ mW}$, $I_3=1.4 \text{ mW}$ 。偏振光入射情况下, $I_1=1 \text{ mW}$, $I_2=0.8 \text{ mW}$, $I_3=0.64 \text{ mW}$ 。图 2 是观察到的相位共轭现象照片。其中 (a) 是畸变了物光 I_2 的光斑; (b) 是修复后的 I_4 光斑。可见信号光与物光相位共轭。

2. 相位共轭反射率随 I_1 入射角和入射光偏振组态的变化

将晶体主光轴作水平放置并让主光轴平行于通光面。当 I_2 、 I_3 取水平偏振, I_1 取垂直偏振时, 未能观察到信号; 当 I_1 、 I_2 水平偏振, I_3 垂直偏振时, 先用 I_1 、 I_2 造成折射率光栅, 然后打开 I_3 读出, 发现只当 I_1 的入射角 θ 较小 (10° 前后) 时才观察到微弱的信号, θ 较大时观察不到信号; 当 I_1 、 I_2 、 I_3 均垂直偏振时, 相位共轭反射率小于 1%。



(a) (b)

Fig. 2 The photographs of phase conjugation
(a) The spot of distorted probe wave.
(b) the spot of phase conjugate wave

选定另三种偏振组态: (1) I_1 、 I_2 、 I_3 均非偏振光; (2) I_1 、 I_2 为水平偏振光, I_3 为非偏振光; (3) I_1 、 I_2 、 I_3 均为水平偏振光。使晶体绕垂直于水平面的轴转动, 改变 θ , 测量相位共轭反射率, 如图 3 所示。实验测定, 当 $\theta=57.5^\circ$ 时, 物光 I_2 的入射角处于布儒斯特角。可见, 当入射光均水平偏振时, 可获得较大的反射率, 而当物光 I_2 的入射角在布儒斯特角附近时, 反射率可达 60%, 因这时表面反射率很小, 故实际可用反射率也接近 60%。

现对图 3 现象作如下解释: 首先, 实验已证明三束入射光均为垂直偏振光时相位共轭反射率小于 1%, 而晶体存在着双折射, 它对 $\lambda=6328 \text{ nm}$ 光的 $n_o=2.162$, $n_e=2.223$ 。当 $\theta=70^\circ$ 时, 寻常光与非常光的波长差为 $[(1/n_o)-(1/n_e)]\lambda_0=0.0103\lambda_0=0.0225\bar{\lambda}$ ($\bar{\lambda}$ 为晶体中非常光和寻常光的平均波长), 故经 11 个 $\bar{\lambda}$ 时, 寻常光的干涉条纹和非常光的干涉条纹即可

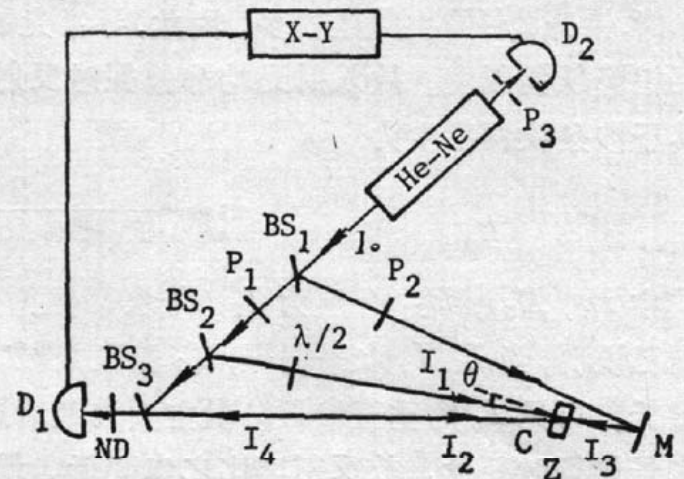


Fig. 1 Schematic of the experimental set-up for Degenerate Four-wave mixing Phase conjugation

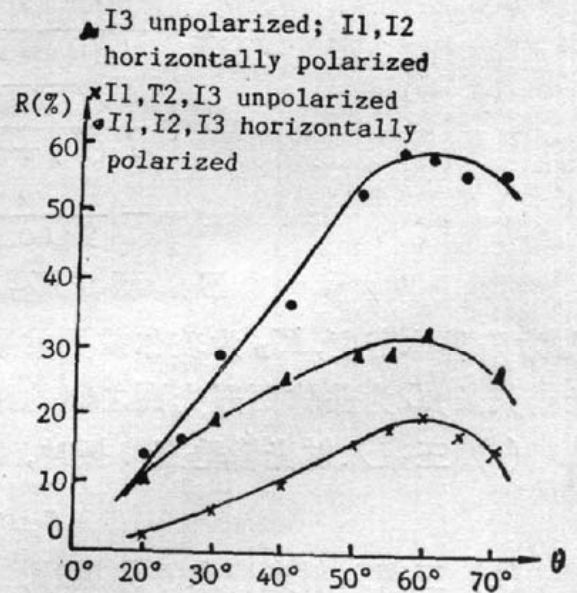


Fig. 3 The reflectivities of phase conjugation vs incident angle θ of I_1 under three different polarized arrangements of incident beams

错开 $\bar{\lambda}/4$ 。对厚度为 3.92 mm 的晶体, 两套干涉条纹错开 $\bar{\lambda}/4$ 的次数至少有 1234 次。当 θ 小时, 错开 $\bar{\lambda}/4$ 的次数还要多。因此, 寻常光的干涉条纹和非常光的干涉条纹前后互相错开, 互相降低调制度。故入射光均非偏振时反射率较低。再看 I_1 、 I_2 水平偏振, I_3 非偏振组态。其干涉条纹调制度为

$$m = \frac{2 E_2 E_{3//}^*}{|E_2|^2 + |E_{3//}|^2 + |E_{3\perp}|^2}, \quad (1)$$

式中 E_2 , $E_{3//}$, $E_{3\perp}$ 分别为 I_2 , I_3 水平偏振分量, I_3 垂直偏振分量光电场强度复数振幅。前面已说明, 当 I_1 、 I_2 水平偏振, I_3 垂直偏振时, I_3 在 I_1 、 I_2 造成的折射率光栅上的衍射效率很低。可见 I_3 的垂直偏振分量主要地起着降低干涉条纹调制度的作用。它比三束入射光均水平偏振时要低, 故反射率比之也要低。最后, 看 I_1 、 I_2 、 I_3 皆为水平偏振组态。后面将说明, 在本文的实验条件下, 共轭波主要是 I_1 在 I_2 和 I_3 造成的折射光栅上反射形成的, 所以, 当 I_1 和 I_2 在晶体中夹角较小情况下, 可借助文献[6]的结果对这个组态的结果作些解释。由波动方程

$$\nabla^2 E + K^2 E = 0, \quad (2)$$

及 Kukhtarev 速率方程, 在慢变振幅近似, 无吸收近似及折射率光栅相对于干涉条纹 $\pi/2$ 相移的假定下, 文献[6]求得在反射光栅情况下的相位共轭反射率为*

$$\left. \begin{aligned} R &= \frac{I_1(0)}{I_2(0)} \frac{W^2}{1+W^2}, \\ W &= \frac{\sqrt{I_3(L)I_2(0)} [1 - \exp(-\tau L)]}{I_3(L) + [I_1(0) + I_2(0)] \exp(-\tau L)}, \\ \tau &= -\frac{\omega}{2\sigma \cos \varphi} \cdot \frac{r_{\text{eff}} n_0^3 E_p E_d}{2[E_p + E_d]}, \\ E_d &= K_B T K_{II} / e, \quad E_p = e P_d / (\epsilon K_{II}), \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

P_d 为陷阱体密度, K_B 为玻尔兹曼常数, T 为绝对温度, e 为基本电荷 ϵ 为介电常数, K_{II} 为光栅矢长, L 为晶体两通光面之间的距离。因晶体属 4 mm 点群对称类, 对反射光栅当

(a) 三束入射光皆垂直偏振时,

$$r_{\text{eff}} = r_{13} \cos [(\alpha + \beta)/2], \quad (4)$$

(b) 三束入射光皆水平偏振时,

$$\begin{aligned} r_{\text{eff}} &= \{n_0^4 r_{33} \sin \alpha \sin \beta - 2 n_0^2 n_0^2 r_{42} \sin^2 [(\alpha + \beta)/2] \\ &\quad + n_0^4 r_{13} \cos \alpha \cos \beta\} \cos [(\alpha + \beta)/2] / n_0 n_0^3, \end{aligned} \quad (5)$$

式中 α , β 分别为 I_1 , I_2 与晶体主光轴的夹角, φ 近似为光栅矢量与晶体入射表面法线的夹角, 当 $\theta = 90^\circ$ 时, 算得 $\alpha = 63.097^\circ$, 这是 α 可取的最小值。实际上, α 很接近 β , $\sin \alpha \sin \beta$ 与 $\sin^2 [(\alpha + \beta)/2]$ 相差很小, 令 $\alpha = \beta = 90 - \varphi$, (5) 式简化为

$$r_{\text{eff}} = [n_0^4 r_{33} - 2 n_0^2 n_0^2 r_{42} + n_0^4 r_{13} \text{ctg}^2 \alpha] \cdot [\sin^2 \alpha \cos \alpha / n_0 n_0^3]. \quad (6)$$

由 I_1 、 I_2 、 I_3 皆垂直偏振时相位共轭反射率很小这一事实及(3)式、(4)式可知, r_{13} 相对于 $(-r_{33}) + r_{42}$ 来说很小。事实上, 由二波耦合实验已测得 $(r_{33}/r_{13}) = 0.499$, $(r_{13}/r_{42}) = 0.0583$ 。由(3)、(5)两式知 $r > 0$ 。可以证明, 当 $rL > 0$ 时, R 是 rL 的单调增函数, 从而也是

* 这里的记号与文献[6]略有不同。

$(-r_{eff}/\cos \varphi)$ 的单调增函数。在(6)式中略去含 r_{13} 和 r_{33} 的项并两边除以 $\cos \varphi$ 得

$$(r_{eff}/\cos \varphi) = -2 n_e^2 n_o^2 r_{42} \sin \alpha \cos \alpha / n_e n_o^3, \tag{7}$$

这时 $(-r_{eff}/\cos \varphi)$ 在 $\alpha=45^\circ$ 处有一极大值, 而当 $\alpha>45^\circ$ 时, $(-r_{eff}/\cos \varphi)$ 随 α 的增大而减小, 即 $(-r_{eff}/\cos \varphi)$ 随 θ 的增大而增大, 从而 R 随 θ 的增大而增大。但是, 在这组偏振组态下, 保持各入射光相对强度不变, $\theta=57.5^\circ$, 改变总入射光强 I_0 , 发现相位共轭反射率与 I_0 有关, 即与晶体中光功率密度有关, 实验结果如图 4 所示, 晶体中光功率密度为

$$J = \frac{1}{n} \left(\frac{2 \cos \theta'}{n \cos \theta' + \sqrt{1 - \sin^2 \theta' / n^2}} \right)^2 J_0, \tag{8}$$

式中 J_0 为光束在空气中的平均功率密度, n 近似取为 2.22, $\theta' = \theta + 3.75^\circ$ 。利用 (3)、(4)、(5) 各式及 $\alpha = 90^\circ - \varphi$ 关系和下式

$$\sin^2 \varphi = \frac{n_o^2 \sin^2 \theta'}{n_o^2 n_e^2 - (n_e^2 - n_o^2) \sin^2 \theta'} \tag{9}$$

再加上 $\theta=60^\circ$ 时测得的 $rL=3.259$, 可以算出 R 的值。利用 (8) 式又可以算出 J 的值 现将各个 θ 值下的 J 值, R 计算值和实验值如表 1 所列。可以看出, J 值在 θ 角小于布儒斯特角以前变化较慢, 当 θ 大于布儒斯特角后, J 值较快减小, 而 $R_{cal.}$ 值则在 θ 大于布儒斯特角后增大较慢, 结合图 4 就可以说明布儒斯特角附近实验反射率最大这一事实。这只是半定量的解释, 问题有待于进一步研究。

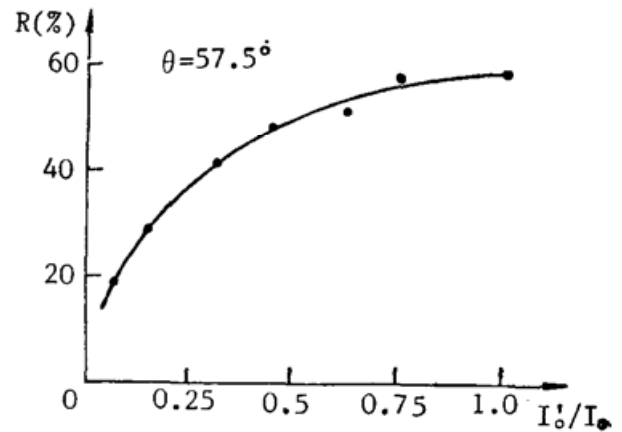


Fig. 4 The reflectivity of phase conjugation vs total intensity of incident beams I_0' ($I_0'=I_0, I_1=1 \text{ mW}$)

3. 相位共轭波的时间特性

在 I_1, I_2, I_3 皆垂直偏振及图 3 所示各偏振组态下, 当迅速关闭 I_1 时, 信号突变到一小

Table 1

$\theta(^{\circ})$	$J(J_0)$	$R_{cal}(\%)$	$R_{exp}(\%)$
20	0.1660	29.7	13.3
30	0.1573	44.1	28.5
40	0.1441	52.9	35.7
50	0.1251	57.9	53.1
57.5	0.1056	60.1	60.0
60	0.0979	60.6	58.2
70	0.0608	62.0	55.1

值, 故可判断共轭波主要是 I_1 在 I_2 和 I_3 造成的折射率光栅上反射形成的。当关闭 I_3 或同时关闭 I_2, I_3 时共轭波信号有一个缓慢的变化过程, 变化的情况与 θ 有关。图 5 是关闭 I_3 情况, 图 6 是关闭 I_2, I_3 情况。两图中(a)组曲线是 I_1, I_2, I_3 皆为水平偏振组态, (b)组曲线是 I_1, I_2 水平偏振, I_3 非偏振组态。先看 I_1, I_2, I_3 皆为水平偏振组态。在关闭 I_3 或同时关闭 I_2, I_3 时, 每条曲线都有较快下降的一小段, 然后缓慢单调下降, 而 θ 大时, 下降又更慢; 再看 I_1, I_2 水平偏振, I_3 非偏振组态。除了 $\theta=60^\circ$ 外, 各曲线在关闭 I_3 或同

时关闭 I_2 、 I_3 时也有一小段较快下降。而关闭 I_3 后, 曲线又有一个先上升后下降的过程。 θ 越大, 下降越慢。 $\theta=30^\circ$ 时, 关闭 I_2 、 I_3 后, 曲线单调下降。 $\theta=45^\circ$ 时, 关闭 I_2 、 I_3 后, 曲线先下降后再趋于稳定; $\theta=60^\circ$ 时, 关闭 I_2 、 I_3 后, 曲线先下降后上升, 再趋于稳定。实际上, 经长时间测量后, $\theta=45^\circ$ 及 $\theta=60^\circ$ 的 (b) 组曲线仍是单调下降的, 只不过下降较慢。

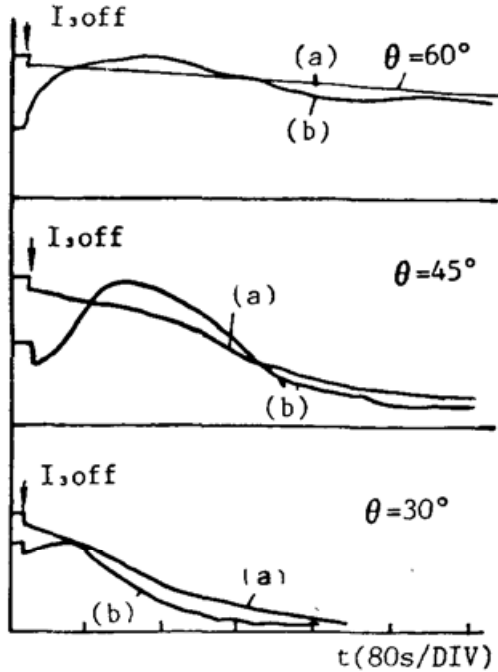


Fig. 5 The intensities of phase conjugate waves vs time when I_3 is cut off

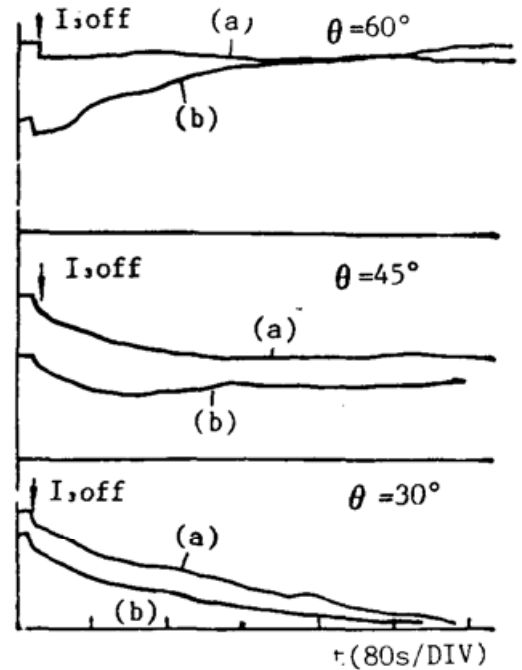


Fig. 6 The intensities of phase conjugate waves vs time when I_2 and I_3 are cut off

对图 5、图 6 作如下解释: 各曲线开始部分快速下降小段对应 I_3 水平偏振分量在 I_1 和 I_2 造成的折射率光栅上衍射形成的共轭光分量, 这已为实验所证实* (同时关闭 I_1 、 I_2 仍有弱的信号, 并与上述快速下降部分对应)。实验观察到, 在图 5 对应的两组偏振组态下, I_2 在 I_4 和 I_1 造成的折射率光栅上反射形成 I_1 的共轭波 I_5 而且关闭 I_1 后, I_5 仍存在。从前面的分析知道, 在 I_1 、 I_2 水平偏振, I_3 非偏振组态下, I_3 的垂直分量主要地起着降低折射率光栅调制的作用, 结合 I_5 存在这一事实, 可以解释图 5(b) 组曲线的上升部分; 未关闭 I_3 时, I_2 在 I_4 和 I_1 造成的折射率光栅上反射形成 I_5 , I_5 又增强了 I_3 水平偏振分量的作用, 反过来又使 I_4 增强, 如此循环。但受能量守恒定律的约束以及晶体吸收等因素的影响, I_4 、 I_5 不能无限增大, 到一定时候应处于某一最大值。而 I_3 垂直偏振分量的作用又降低了这一最大值, 即这时 I_4 的最大值应比 I_1 、 I_2 、 I_3 皆水平偏振组态的小。图 3 表明了这一点。关闭 I_3 后, I_3 垂直偏振分量的作用消除, I_4 、 I_5 的相互加强作用又使 I_4 上升, 直至达到某一最大值。这里应注意到, 由于晶体有较强的吸收^[5], I_5 的作用比 I_3 水平偏振分量的作用来得有效。图 5(a) 组曲线没有上升现象, 这一事实支持了作者的看法。因 I_4 和 I_5 互相依存, 一旦 I_1 和 I_2 之间的相位差受到扰动, 加上晶体中极化强度 \mathbf{P} 的垂直于光栅矢量方向分量与光诱导周期性分布空间电荷的相互作用, 平衡将受到破坏, 于是信号开始下降。图 6 中 $\theta=60^\circ$ 时 (b) 曲线的上升过程也可以进行类似解释。实验发现, 关闭 I_2 、 I_3 后, 在 I_1 的逆向有光束 I_5'

* $\theta=60^\circ$ 时没有观察到 (b) 曲线的快速下降段, 可能是上升过程太快而被掩盖了。

存在, I'_5 与 I_5 不同, 它不包括 I_2 的反射光。在 I_2 原来行进的方向上也有弱的透射光 I'_2 存在。 I'_2 起着 I_2 的作用, I'_5 起着 I_3 的作用, 这种现象称之为诱导四波混频相位共轭。关闭 I_2 、 I_3 后, I_3 垂直偏振分量的作用消除, 类似于前面的分析, I_4 将上升到某一最大值。所不同的是, 这时 I'_2 、 I'_5 都源自同一入射光束 I_1 , 它们之间的相位差容易保持稳定, 故信号较稳定。图 6 中 $\theta=45^\circ$ 和 $\theta=30^\circ$ 时 (b) 组曲线没有上升过程, 是由于 I'_2 太弱了。图 5 和图 6 中各曲线单调下降段下降速度随 θ 的增大而减小这一现象, 可由周期性空间分布电荷与晶体中极化强度 \mathbf{P} 的相互作用得到解释。 θ 大时, \mathbf{P} 的垂直于光栅矢量方向分量小, 对光诱导空间电荷的周期性分布破坏也小, 折射率光栅也越稳定。

4. 折射率光栅的建立时间与寿命

取 I_1 、 I_2 水平偏振, I_3 非偏振组态, 对折射率光栅的建立时间和寿命进行测量。当 I_1 入射角 θ 从 10° 变到 60° 时, 折射率光栅的建立时间从 10 sec 变到 60 sec。实验发现, 折射率光栅的寿命却随 θ 的增大而增大。图 7 是三个 θ 值下的测量结果。由图 7 可见, 当 $\theta=55^\circ$ 时, 折射率光栅的寿命可达 18 hr。这意味着该晶体可作较长时间的全息储存介质。折射率光栅寿命随 θ 的增大而增大这一现象, 与图 5、图 6 中各曲线的单调下降部分的下降速度随 θ 的增大而变慢是一致的, 同样可用晶体中极化强度 \mathbf{P} 与光诱导周期性空间电荷的相互作用进行解释。

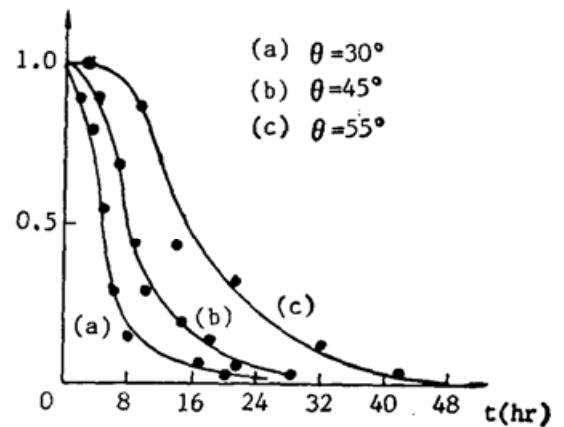


Fig. 7 The life-time of photorefractive grating

三、结 论

由实验结果和以上分析, 对掺 Mn 的 KNSBN 晶体中四波混频相位共轭过程, 可以得出如下结论:

在晶体主光轴水平放置且主光轴平行于通光面条件下:

(1) 入射光均垂直偏振时相位共轭反射率小于 1%。入射光均水平偏振且物光入射角在布儒斯特角附近时, 反射率可达 60%。由此可判断电光张量分量 $r_{13} \ll r_{42} + r_{33}$ 。由反射光栅起主要作用, 又可判断 $r_{33} \ll r_{42}$ 。

(2) 入射光均非偏振时, 由于晶体存在着双折射, 垂直偏振光的干涉条纹与水平偏振光的干涉条纹互相错开, 互相降低调制度, 故反射率较低。

(3) 晶体中存在着诱导四波混频相位共轭, 它使关闭记录光束后, 共轭波强度不全是单调下降。

(4) 已极化了的晶体中的极化强度 \mathbf{P} 与光诱导周期性分布空间电荷的相互作用, 使得折射率光栅的建立时间随 I_1 的入射角 θ 的增大而减小, 使得折射率光栅的寿命随 θ 的增大而增大, 折射率光栅的建立时间在 60 sec 到 100 sec 之间。 $\theta=55^\circ$ 时, 折射率光栅的寿命长达 18 hr。

参 考 文 献

- [1] R. R. Neurgonkar *et al.*; *J. Crystal Growth*, 1987, **84**, No. 4 (Oct), 629~637.
[2] R. R. Neurgonkar *et al.*; *Opt. Engng*, 1987, **26**, No. 5 (May), 392~404.
[3] Y. H. Xu *et al.*; *Ferrotelectrics*, 1989, **92**, No. 2, 211~217.
[4] Zhu Yong *et al.*; «1989 Conference on Laser & Electro-Optics, Digest: TUO 4, 25 April, 1989».
[5] 余卫龙等;《中山大学学报(自然科学)》,1990, **29**, No. 3, 49~53.
[6] Mark Gronin-Golomb *et al.*; *IEEE J. Quant. Electron.*, 1984, **QE-20**, No. 1 (Jan), 12~19.

Phase conjugation in Mn:KNSBN crystal with high reflectivity under weak incident beams

SHE WEILONG, LI QINGXING, YU ZHENXIN AND GAO ZHAOLAN

(*Institute for Laser & Spectroscopy, Zhongshan University, Guangzhou 510275*)

ZHANG QINGRUEN AND CHEN HUANCHU

(*Institute for Crystal, Shandong University, Jinan 250100*)

(Received 2 May 1990; revised 4 December 1990)

Abstract

Degenerate four-wave mixing phase conjugation in Mn doped KNSBN crystal is obtained by using 1 mW He-Ne laser beams. The reflectivities are significantly affected by polarized arrangements and by angles of incident beams. When the angle of the probe beam is near Brewster angle the reflectivity can reach up to 60%. The life time of photorefractive grating which takes 60 s for setting up is 18 hr. The induced degenerate four-wave mixing phase conjugation has been observed.

Key words: four-wave mixing; phase conjugation.