

Mn:KNSBN 晶体中背向光散射与 光学二极管效应

余卫龙 邬 起 李庆行 余振新

中山大学激光与光谱学研究所, 广州 510275

张庆伦 陈焕鑫

山东大学晶体材料研究所, 济南 250100

1991 年 10 月 16 日收到

用单束毫瓦级的 632.8nm He-Ne 激光入射到掺 Mn 的 KNSBN 晶体中, 观察到强烈的背向散射, 同时观察到一种与背向散射相联系的光学二极管效应. 在一定范围内, 光学二极管的时间响应常数 τ 与晶体表面的入射光强成反比. 以 K₂O 玻璃片作反馈镜, 可将 τ 降低一个数量级. 已取得 $\tau = 1.5\text{s}$ 及大于 15.3 的正、反向透过率比. 对实验结果给出理论解释.

PACC: 7820; 4265

一、引 言

用两束 632.8 nm 的 He-Ne 激光在掺 Mn 的 KNSBN 晶体中对撞, 已观察到一种诱导光学二极管效应^[1], 并发现反射光折变光栅在光学二极管效应中起着关键的作用. 那里的光折变光栅是由两束入射光的干涉场所诱导产生的. 本文报道另一种光学二极管效应: 当一束 He-Ne 激光以与晶体 c 轴正向成钝角并以 65° 的入射角入射到掺 Mn 的 KNSBN 晶体中时, 晶体中出现强烈的背向光散射. 随着背向散射的出现, 晶体的透过率随时间而变小, 最后达到稳定. 当入射光方向与晶体 c 轴正向成锐角时, 没有观察到背向光散射, 晶体的稳定透过率比前一种情况大, 即是说, 晶体的透过率具有方向性, 它起着一种光学二极管的作用. 原则上, 这种光学二极管效应也是起源于反射光折变光栅的作用, 但与双光束诱导光学二极管效应不同, 这里的光折变光栅是由晶体中缺陷上的散射光与入射光的干涉场所诱导产生的. 它类似于掺 FeLiNbO_3 中的光诱导光散射^[2], 不过文献 [2] 报道的是前向散射, 这里报道的是背向散射. 由于光散射的方向不同, 引起的物理效果也不同. 对相同的人射光强, 光从开始散射到稳定所用的时间, 文献 [2] 报道约为 1h, 而我们只需 15s 以下. 以一块 K₂O 玻璃片作为反馈镜, 我们发现光学二极管效应时间响应常数可降低一个数量级, 而且正、反向稳定透过率比也提高了.

二、实 验

实验装置如图 1 所示。其中光源为单横模的,输出功率为 6mW 的 He-Ne 激光器; P 为格兰棱镜,它使入射到晶体的光为 c 光; L_1 和 L_2 为凸透镜, L_1 跟晶体之间的距离可调, L_2 将晶体的透射光会聚到探测器 D_1 上; D_2 探测器监视光源功率的变化; F 为可调光衰减器, M 为无镜头照相机; BS_1 和 BS_2 为分束器, BS_2 的透过率为 50%,照相完毕即将其移去; G 为一块 K, 玻璃片,用它做反馈镜,在做有反馈实验时才将它放入光路,其双面反射率为 8%; C 为晶体,晶体上的箭头指示晶体的 c 轴正向。

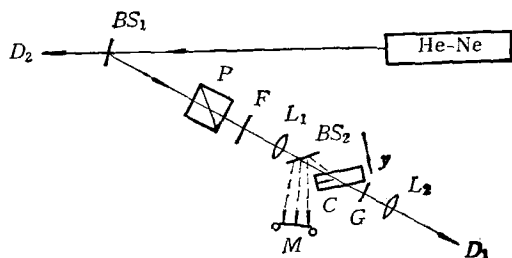


图 1 实验装置

1. 背向散射

暂不用衰减器 F , 这时光束入射晶体以前的功率 $I_0 = 1\text{mW}$ 。 L_1 选用一个焦距为 5.4cm 的凸透镜。让入射光方向与晶体 c 轴正向成钝角, 入射角为 65° 。改变晶体透光路径中点与透镜焦点的相对位置 L (相对位置是这样规定的: 以焦点为原点, 以入射光行进方向为坐标轴正向), 观察背向散射, 等其稳定后, 拍下背向散射光的照片, 结果如图 2 所示。各散射光斑所对应的 L 值及晶体透光路径中点对应的光束直径 ϕ (去掉晶体, 在空

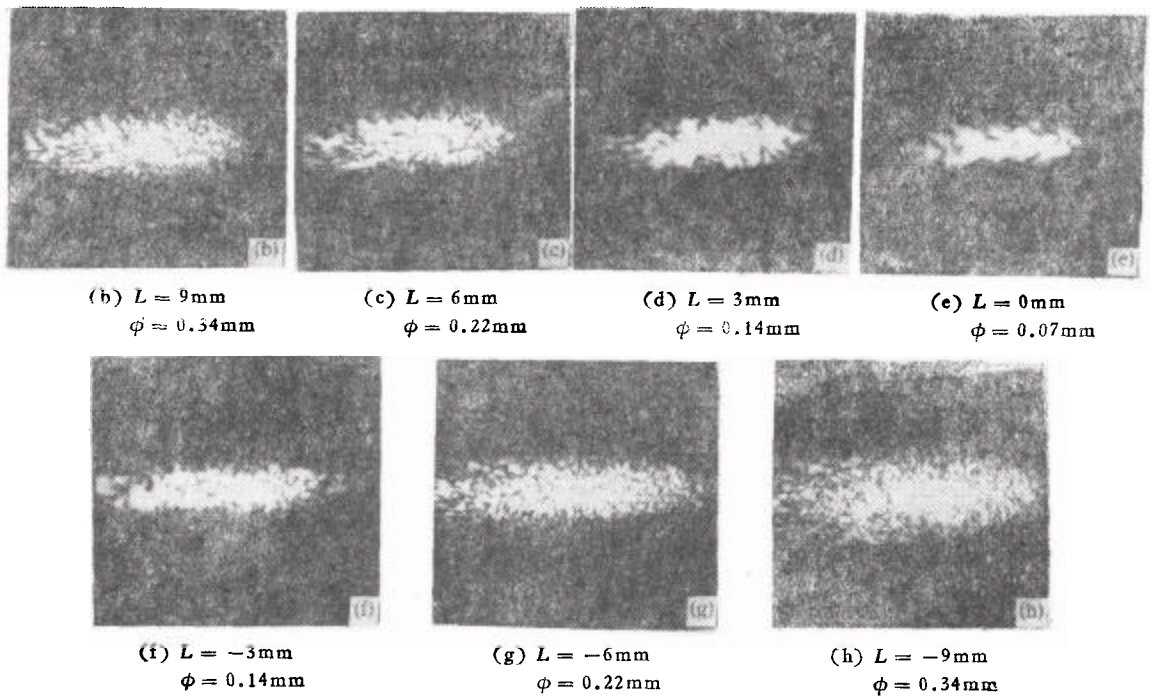


图 2 背向散射光斑图

气中测量)已在图2上标出。将晶体绕铅直轴转 180° ,重做实验,没有观察到上述的背向散射。应该提及,在二波耦合和四波混频实验中,无论晶体的 c 轴如何放置,均未观察到类似的背向散射。

2. 光学二极管效应

实验观察到一种与背向散射相联系的光学二极管效应。当背向散射光出现后,晶体的透过率 T 随时间而减小,最后达到稳定。图3(b)---(h)是相应于图2各个 L 值记录得

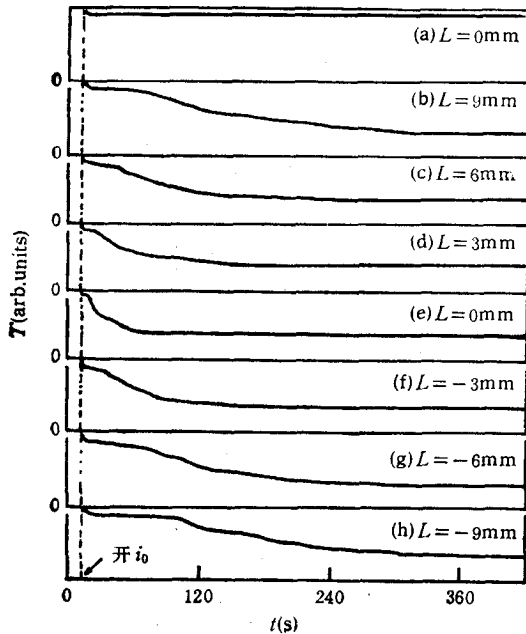


图3 无反馈镜时正向和反向透过率时间特性 $I_0 = 1\text{mW}$

到的 T 随时间变化的曲线。对每条曲线,在打开入射光束 I_0 以前,都将通光路径选在没有产生光折变的地方。为了叙述方便,以下将没有产生光折变的通光路径称为新鲜路径。图3为我们提供三方面的信息。(1)每条曲线都包含一个快过程,一个平缓过程和一个含指数衰减过程。(2)每条曲线的最小值和最大值之比 $T_{\min}/T_{\max} \approx 0.36$ 。(3)相应于各个 L 值,时间常数 τ [为了与后面有反馈镜的情况比较,定义 τ 为 T 从 $T_{\max}$ 变到 $e^{-1} \cdot (T_{\max} - T_{\min})$ 所用的时间]如表1所示。表1中 I 为晶体表面处的入射光强, $I = I_0 \cos i_1 / \cos i_2$, I_0 为移开晶体后 L 处的光强, i_1 和 i_2 分别为入射角和折射角。在做计算时近似取晶体折射率 $n = 2.20$,并忽略表面反射(因 $i_1 = 65^\circ$,处于布儒斯特角)。表1中 L

为负值时的 τ 值比 L 为正值时的 τ 值大,这是由晶体的折射作用引起的,因为对有相同绝

表 1

$L(\text{mm})$	-9	-6	-3	0	3	6	9
$I(\text{W/cm}^2)$	0.51	1.21	3.00	12.00	3.00	1.21	0.51
$\tau(\text{s})$	160	100	50	25	40	80	120

对值的 L 值,会聚光束(L 为负值)入射时晶体中光束的平均直径要比发散光束(L 为正值)入射时晶体中光束的平均直径大,所以 L 为负值时晶体中的光强要比 L 为正值时的低。后面将要看到,晶体中光强大的 τ 要小。在表1中我们忽略了会聚光束和发散光束在晶体中光强的差异。

为了证明晶体具有光学二极管的作用,在 $L = 0$ 处,我们将晶体绕铅直轴转 180° ,对一新鲜路径,记录透过率随时间的变化规律,结果如图3(a)所示。从图3(a)看到,该曲

线除了有一段与图 3 其它曲线相应的快过程外, 别的部分几乎不随时间而变化。这不随时间而变化的部分指示的透过率约为图 3 其它曲线最小透过率的 2.6 倍。这说明, 晶体确实起着一种光学二极管的作用。我们将稳定透过率大的方向称为正向, 而将透过率小的方向称为反向。

在实验中, 对图 3 各条曲线的快过程, 没有观察到背向散射。对一条已经产生稳定背向散射的通光路径, 先用正向光束进行洗栅, 然后去掉洗栅光束, 再打开反向光束, 发现透过率快过程不再存在, 而其它过程基本重复光束沿新鲜路径入射时的情况。另外, 先让一束光正向入射, 过一段时间后关闭, 再让另一束光沿这条被照射过的路径作反向传播, 也没有观察到快过程, 而其它过程也基本重复反向光束沿一新鲜路径传播的情况。实验时正向和反向光束的功率及聚焦情况保持基本相同。这说明, 快过程与背向散射无关。

为了观察时间常数与入射光强的关系, 我们固定 $L = 0\text{mm}$ 改变入射光功率, 测量时间常数 τ 与晶体表面处入射光强的关系。图 4 上的点是测量的结果。可见 τ 随晶体表面处入射光强 I 单调减小。用函数

$$\tau = C_1/I \quad (1)$$

拟合实验数据, 得 $C_1 = 322.7\text{W} \cdot \text{s} \cdot \text{cm}^{-2}$ 。拟合曲线为图 4 上的实线。将图 3 各个 L 值对应的 I 值代入(1)式进行计算, 发现当 $|L| > 0$ 时, 时间常数的计算值 $\tau_{\text{计}}$ 明显大于实验值 $\tau_{\text{实}}$, 而且 $|L|$ 值越大, 偏离越大。这个问题以后还要讨论。

实验发现, 对光束沿反向传播的情况, 在光路中加一反馈镜, 可使低透射率状态更快地建立起来, 即降低时间响应常数的值, 而且, 可消除平缓变化过程, 使透射率一开始就作含指数衰减, 最后达到更低的透射率。我们用一块 K₉ 玻璃作反馈镜, 对 $I_0 = 1\text{mW}$, 改变 L 的值, 记录透过率随时间变化的曲线, 结果如图 5 所示。应该指出, 这时反馈光与入

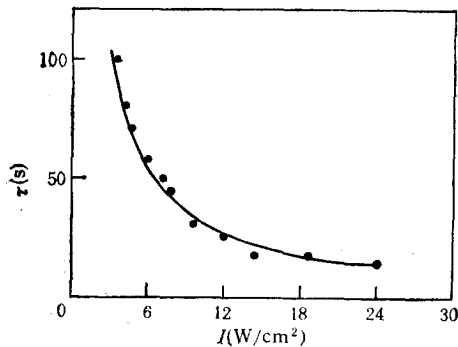


图 4 无反馈镜时反向透过率时间常数与晶体表面处入射光强的关系 $L = 0\text{mm}$

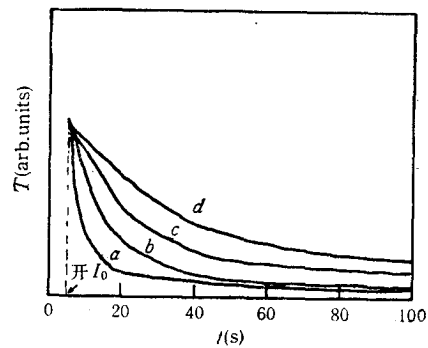


图 5 有反馈镜时反向透过率时间特性 $I_0 = 1\text{mW}$; 曲线 a 为 $L = 0\text{mm}$, $\tau_{\text{实}} = 3.2\text{s}$; 曲线 b 为 $L = 3\text{mm}$, $\tau_{\text{实}} = 11\text{s}$; 曲线 c 为 $L = 6\text{mm}$, $\tau_{\text{实}} = 20\text{s}$; 曲线 d 为 $L = 9\text{mm}$, $\tau_{\text{实}} = 47\text{s}$

射光产生双光束诱导光学二极管效应, 反射占优势, 背向散射被抑制。 $L = 0\text{mm}$ 时, 最小透过率和最大透过率之比 $T_{\text{min}}/T_{\text{max}} < 6\%$ 。扣除快过程的作用, 正、反向稳定透过率之比大于 15.3。再固定 $L = 0\text{mm}$, 改变入射光功率, 研究时间响应常数 $\tau_{\text{实}}$ 与晶体表面处入射光强的关系。实验结果如图 6 上各点所示。用函数

$$\tau = C_2/I \quad (2)$$

拟合实验数据,得 $C_2 = 37.1 \text{ W} \cdot \text{s} \cdot \text{cm}^{-2}$. 拟合的曲线为图 6 中的实线. 可见, (2) 式能较好地描述实验结果. 比较 (1) 式的 C_1 和 (2) 式的 C_2 的数值, 可知加反馈镜后, 时间响应常数 τ 降低了一个数量级. 由前面的叙述知道, 加反馈镜后, 正、反向稳定透过率之比也比未加反馈镜时大. 这说明, 有反馈镜装置应用潜力更大. 将与图 5 各曲线相对应的光强 I 代入 (2) 式进行计算, 发现当 $L > 0 \text{ mm}$ 时, 时间响应常数的计算值 $\tau_{\text{计}} > \tau_{\text{实}}$, 而且, L 的值越大, 偏离越大. 这与无反馈镜的情况相似. 后面将要讨论.

至此, 我们给出的实验数据, 都是从新鲜路径得到的. 图 7 则为对一给定的通光路

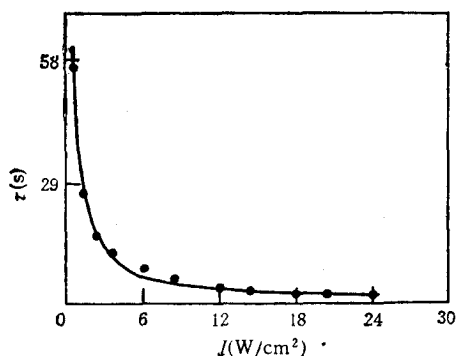


图 6 有反馈镜时反向透过率时间常数与晶体表面处入射光强的关系 $L = 0 \text{ mm}$

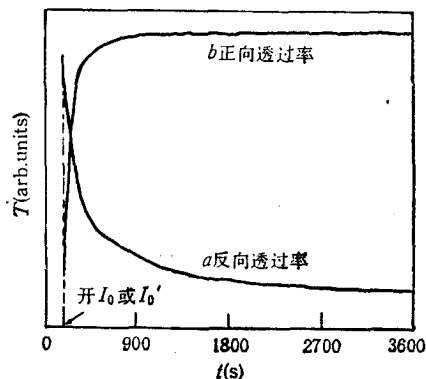


图 7 有反馈镜时光学二极管时间响应特性 先开反向光束 I_0 , 等 T 稳定后关 I_0 , 再开正向光束 I_0' ; $I_0 = 0.42 \text{ mW}$; $I_0' = 0.42 \text{ mW}$; $\phi = 0.71 \text{ mm}$

径, 依次打开反向和正向光束得到的结果. 实验装置类似于文献 [1] 的装置, 但多加一块 K₂ 玻璃做反馈镜. 实验时先开反向光束 I_0 , 建立低透射率状态, 关闭 I_0 , 再开正向光束 I_0' , 建立高透射率状态. 可见稳定的高透射率状态可更快达到.

三、解释与讨论

现对以上实验结果进行解释与讨论. 首先, 看图 3 各曲线的快过程. 如前所述, 对任一新鲜路径, 无论光束是正向通过还是反向通过, 都存在着快过程; 而对一条被光束照射过的路径, 无论光束是正向通过还是反向通过, 都不存在快过程, 而且, 在快过程中没有观察到背向散射. 这说明快过程只可能是与载流子的激发, 然后在激发点附近被陷阱俘获的过程相联系. 这过程只产生无光栅的光折变. 实验观察到, 当晶体被正向光束照射后, 晶体中留下一条深色的痕迹. 其次, 看图 3 (除曲线 (a) 外), 各曲线的平缓段. 我们认为, 这些平缓段起源于晶体中多组折射率光栅之间的竞争. 物理图像是这样的: 入射光在晶体缺陷上散射, 每个方向上的散射光都与入射光干涉, 诱导产生一组光折变光栅, 但是, 只有传播路径落在入射光束内的背向散射光才能被优先放大, 其诱导产生的光折变光栅的调制度才能不断得到加强, 直至稳定, 而其它方向的散射光与入射光的干涉场诱导产生的初始光折变光栅则被逐渐吞没. 在竞争过程中, 总体的光折变光栅的空间分布一直在变

动,背向散射不能得到最有效的放大,故透射光的衰减速度显得平缓.有反馈镜的实验曲线(图5)没有对应的平缓段这一事实支持了我们的看法.实际上,在有反馈镜的实验中,反馈光束的光强远远大于初始散射光光强.它与入射光的干涉场占有绝对的优势,光生载流子的空间分布乃至光折变光栅的空间分布基本上由此干涉场所决定,因此一开始反馈光就较有效地得到放大,透射光功率较快下降.最后看图3[除曲线(a)外]的含指数衰减过程.这个过程实际上是背向散射循环增强的过程.折射率光栅竞争基本结束后,被放大的背向散射光反过来提高了光折变光栅的调制度,调制度的提高又使背向散射光得到进一步的放大,如此循环,直到稳定.

我们再来解释光学二极管效应时间响应常数与入射光强的关系.由于无反馈镜条件下的光学二极管效应情况比较复杂,分析比较困难,因此我们把着眼点放在有反馈镜条件下的光学二极管效应.在有反馈镜条件下,低透过率状态的建立过程实际是一个含时的反射光折变光栅下的二波耦合过程.类似于文献[3]的分析,在连续光入射条件下,得到含时二波耦合方程组:

$$\begin{aligned}\partial E_1/\partial y &= -igR_{\text{eff}}E_{\text{sc}}E_2 - 1/2 \cdot \alpha E_1, \\ \partial E_2^*/\partial y &= -igR_{\text{eff}}E_{\text{sc}}E_1^* + 1/2 \cdot \alpha E_2^*, \\ \partial E_{\text{sc}}/\partial t &= -AE_{\text{sc}} - 2Bg/(i\epsilon K)E_1E_2^*,\end{aligned}\quad (3)$$

式中

$$|E_1|^2 = I, \quad (4)$$

$$|E_2|^2 = I', \quad (5)$$

$$g = \omega^2/(2K \cos \theta), \quad (6)$$

$$R_{\text{eff}} = e_2 \cdot \epsilon_\omega \cdot (R \cdot K/K) \cdot e_\omega \cdot e_1, \quad (7)$$

α 为晶体线性光强吸收系数除以 $\cos \theta$, θ 为折射角. $K = |K|$, $K = K_1 - K_2$, K_1 和 K_2 为二光波波矢. R 为电光张量. e_1 和 e_2 为二光场单位矢量. 假定扩散机制起主要作用,忽略热激发,有

$$A = I_s \sigma [(1 + N_D^0/N_A^0)DK^2 + e\mu N_D^0/\epsilon]/(DK^2 + \gamma N_A^0), \quad (8)$$

$$B = -\sigma DK^2 N_D^0/(DK^2 + \gamma N_A^0) \quad (9)$$

式中

$$I_s = I + I', \quad (10)$$

N_D^0 和 N_A^0 分别为初始施主和受主密度. σ 为激发截面, ϵ 为静电介电常数, e 为载流子电荷, γ 为线性复合系数, μ 为迁移率, D 为扩散系数. 易知,这时 E_1 和 E_2 皆为实函数. 由(3)式可导出

$$\begin{aligned}\partial/\partial t(1/I_s \cdot \partial \sqrt{II'}/\partial y) &= -Q \partial \sqrt{II'}/\partial y - P \sqrt{II'}, \\ \partial(I - I')/\partial y &= -\alpha(I + I'),\end{aligned}\quad (11)$$

式中

$$Q = A/I_s, \quad (12)$$

$$P = -2BgR_{\text{eff}}e/(\epsilon K). \quad (13)$$

方程组(11)的一般求解比较困难.为求得解析解,在(11)式的第二个式子中忽略吸收的影响,有

$$\partial(I - I')/\partial y = 0. \quad (14)$$

记 $P/Q = r$, 设反馈镜的反射率为 R , 由初始条件和边界条件:

$$I(0, t) = I(0, 0) = \text{常数}, \quad (15)$$

$$I'(0, 0) = RI(0, 0), \quad (16)$$

$$I'(l, t) = RI(l, t) \quad (17)$$

及(11)式的第1式和(14)式, 可解得

$$I(l, t) = 1/2 \cdot \{(1 - R)/R \cdot I(0, 0) \exp[-2rl(1 - \exp(-\beta t))] \cdot [\sqrt{1 + 4R/(1 - R^2)} \cdot \exp(2rl(1 - \exp(-\beta t))) - 1]\}, \quad (18)$$

式中 l 为晶体两通光面之间的距离.

$$\beta = (1 + R)P/rl \cdot I(0, 0). \quad (19)$$

现对(18)式进行讨论. 当 $t \rightarrow \infty$ 时, (18)式即为

$$I(l, \infty) = 1/2 \cdot \{(1 - R)/R \cdot I(0, 0) \exp[-2rl] \cdot [\sqrt{1 + 4R/(1 - R^2)} \cdot \exp(2rl) - 1]\}. \quad (20)$$

而当 $t = 0$ 时, $I(l, 0) = I(0, 0)$. 故减小最小透过率和最大透过率之比可从两个方面去努力, 一是增大 R , 一是增大 r . 但是, 增大反馈镜的反射率 R 会降低整个装置的正向透过率, 故增大耦合系数 r 即寻找有大的电光系数的材料应是努力的方向. 现分析时间响应常数 τ 与晶体表面处的入射光强 $I(0, 0)$ (上面文内记为 I) 的关系. 从(18)式还难以一目了然地看出 τ 反比于 $I(0, 0)$. 由(18)和(20)式, 有

$$\begin{aligned} I(l, t) - I(l, \infty) &= 1/2 \{(1 - R)/R \cdot I(0, 0) \exp[-2rl(1 - \exp(-\beta t))] \\ &\cdot [\sqrt{1 + 4R/(1 - R^2)} \cdot \exp(2rl(1 - \exp(-\beta t))) - 1]\} \\ &- 1/2 \{(1 - R)/R \cdot I(0, 0) \exp(-2rl) \\ &\cdot [\sqrt{1 + 4R/(1 - R^2)} \cdot \exp(2rl) - 1]\}. \end{aligned} \quad (21)$$

数值计算表明, 当 $2rl$ 的值落在 4—14 之间时, 函数

$$f(t) = (1 - R)/(2R) \cdot I(0, 0) \exp(-2rl\beta t/5.00) \quad (22)$$

是(21)式等号右边的较好近似. 而我们所用的晶体的 $2rl$ 的值则落在所设的值范围内^[4]. 图8为 $2rl = 6$ 时(21)和(22)式的计算曲线. 图8中的横坐标为 βt , 曲线的最大高度已归一化. 因此, 可以用(22)式代替

(21)式进行讨论, 由(19)和(22)式, 有

$$\tau = 2.50/[(1 + R)PI(0, 0)]. \quad (23)$$

就是说, 时间响应常数 τ 与晶体表面处的入射光强 $I(0, 0)$ 成反比, 这与我们的实验结果是一致的. 由(23)式知, 要减小 τ , 可增大 R , P 和 $I(0, 0)$, 但如前所述, 增大 R 会降低正向透过率. 故可行的办法是增大 P 和 $I(0, 0)$. $I(0, 0)$ 的物理意义很清楚, 这里不准备继续讨论. 至于 P 由(9), (13)式知, 增大激发截面 σ , 扩散系数 D , 初始施主密度 N_0^0 及有效电光系数

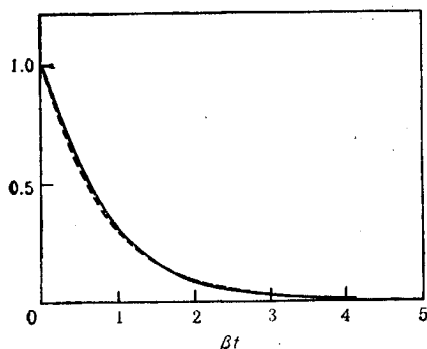


图8 (21)和(22)式的计算曲线 $2rl = 6$
——为 $I(l, t) - I(l, \infty)$; ---为 $f(t)$

R_{eff} 的绝对值, 或减小复合系数 γ , 受主初始密度 N_A^0 , 皆可增大 P , 提高时间响应速度. 而增大 N_A^0 和 R_{eff} 以及 D 可能是较为有效的方法. 选择有较大载流子迁移率的材料可增大 D . 因 $r = P/Q$, 故增大 P 有双重作用, 一是提高时间响应速度, 一是降低最小透过率和最大透过率之比, 即提高正、反向稳定透过率之比. 再分析光束直径对时间响应常数 τ 的影响. 前面已经提到, 当 $L > 0$ 时, (2) 式的计算值大于实验值, 即对相同的光强 $I(0,0)$, 光束直径小的 τ 大. 我们认为, 这是由横向扩散效应引起的. 由于光束光场呈横向高斯分布, 在光场作用下, 光生载流子既纵向朝干涉暗纹处扩散, 也横向朝光暗区扩散. 这种横向扩散可等效地看成是增大了复合系数 γ . 由前面的讨论知道, 增大 γ 会使 τ 增大. 这种横向效应应随光束直径的变小而增强, 就是说, 对相同的光强 $I(0,0)$, 光束直径小的 τ 大. 缩小光束直径可以增大光强, 减小 τ , 而缩小光束直径又会增强横向扩散效应, 增大 τ . 可以预料, 当光束直径达到某一数值后, 二者的作用会达到平衡. 因此, 不能通过无限缩小光束直径增大光强的方法来减小时间响应常数 τ .

对无反馈镜的情况来说, 若将初始背向散射光看成是多个方向上的反馈光束, 应可得到类似于上述的, 但为定性的结论.

在上面的讨论中, 我们已将 $I(l,t)$ 与反向透过率 $T(t)$ 等同. 实际上, 它们之间差一个常数因子, 但这不会影响我们的结论.

- [1] 余卫龙等, 物理学报, **41**(1992), 342.
- [2] Guangyin Zhang *et al.*, *Appl. Opt.*, **25**(1986), 2955.
- [3] 石顺祥等, 光学学报, **10**(1990), 306.
- [4] 余卫龙等, 光学学报, **11**(1991), 493.

BACKWARD SCATTERING AND OPTICAL DIODE EFFECT IN Mn DOPED KNSBN CRYSTAL

SHE WEI-LONG WU QI LI QING-XING YU ZHEN-XIN

Institute of Laser and Spectroscopy, Zhongshan University, Guangzhou 510275

ZHANG QING-LUN CHEN HUAN-CHU

Institute of Crystal Materials, Shandong University, Jinan 250100

(Received 16 October 1991)

ABSTRACT

When a He-Ne laser beam (632.8 nm) with the power of milliwatts or submilliwatts penetrates through a Mn doped KNSBN crystal, a phenomenon of strong backward scattering is observed. At the same time, an optical diode effect which is associated with the backward scattering is also observed. In a certain range, the response time constant τ of the optical diode effect is inversely proportional to the incident intensity on the surface of the crystal. The τ is decreased by one order of magnitude when a K_9 glass plate which serves as a feedback mirror is introduced. A time constant of 1.5s and a ratio of the forward transmissivity to the backward one, which is greater than 15.3, have been obtained. A theoretical explanation is given on the basis of the experimental results.

PACC: 7820; 4265