

Ce : BaTiO₃ 中光折变光栅衍射效率上升现象及分析*

张明¹, 洪治², 张嘉文²

(1 浙江工业大学 理学院, 杭州 310023)

(2 浙江大学 现代光学仪器国家重点实验室光及电磁波研究中心, 杭州 310027)

摘 要:在对 Ce : BaTiO₃ 晶体进行双光束干涉光折变光栅暗衰减特性的实验研究中, 发现了暗条件下光折变光栅归一化衍射效率长时间上升的异常现象: 在 e 光偏振、大入射角度产生光折变光栅的实验中, 衍射效率在长逾 8 h 的时间内持续上升. 而在 e 光干涉、小入射角度和 o 光干涉时均未出现衍射效率长时间上升的现象. 分析认为: 由于自泵浦位相共轭光的产生和晶体中的两个深能级参与了光折变过程, 形成了衰减速度不同、光栅方向垂直的两个光栅, 导致了暗衰减时衍射效率的长时间上升.

关键词:非线性光学; 暗衰减; 光折变光栅; Ce : BaTiO₃

中图分类号: O734+.1

文献标识码: A

文章编号: 1004-4213(2007)04-0609-4

0 引言

在暗条件下, 光折变晶体中的光致空间电场以及由此引起的光折变光栅会因为热激发载流子的移动而衰减, 这种现象称之为暗衰减. 暗衰减时间常量是光折变数据存储^[1-2]和光折变自泵浦位相共轭应用^[3]的重要参量. 关于暗衰减的研究, 一方面研究者不断寻求具有更长暗衰减时间常量布喇格的光折变材料^[4-5], 另一方面暗衰减现象也促进了光折变动力学的发展^[6-8]. 利用暗衰减还可以测定晶体禁带中杂质能级的位置^[9].

测量光折变光栅的暗衰减一般采用“双光束干涉”^[10-12]的方法: 首先用由一束激光分束而成的两束互相干涉光在晶体内干涉, 写入光栅. 在光栅饱和之后, 关闭写入光; 在暗条件下将另外一束布喇格匹配的弱光(探测光)入射到光栅上, 通过不断监测光栅衍射光信号随时间的变化来获得光折变光栅的衰减特性^[4-5]. 一般而言, 暗条件下, 随着光折变光栅的衰减, 衍射信号必然越来越小, 但在文献^[13]和^[14]中报道了用于表征光折变光栅衰减的归一化衍射效率在短时间内(秒数量级)上升甚至大于 1(即在暗条件下, 随着时间的推移, 衍射光强大于其初始值)的实验现象. 利用 shallow-deep model(浅-深能级模型)分析可知^[7, 13-14], 上升现象是由于带有不同电极性载流子的浅能级和深能级上, 形成了相位相反的空间电场造成的.

本文报道了在 Ce : BaTiO₃ 晶体光折变光栅的暗衰减特性实验中, 首次观察到了衍射信号在较长时间内(小时数量级)不断上升的现象. 衍射信号上升的原因不是由于能级间电场的相互作用, 而是因为: 与 Ce : BaTiO₃ 晶体+c 方向成锐角的写入光在晶体中产生了位相共轭光, 该写入光及其位相共轭光均与另一束写入光发生干涉, 因此在晶体内形成了波矢方向互相垂直的两个光栅. 由于这两个光栅的衰减特性不同, 使得归一化衍射效率出现上升甚至大于 1. 另外, 如此长的上升时间则归因于是两个深能级参与了晶体的光折变过程, 而不是以前研究中所提到的一深一浅两个能级.

1 实验装置

光折变光栅暗衰减特性测量的实验装置如图 1. 写入光是 532 nm 的连续激光, 经分束片 BS 分成两

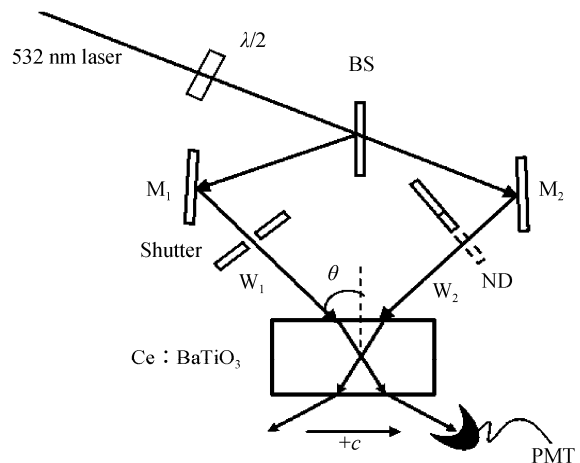
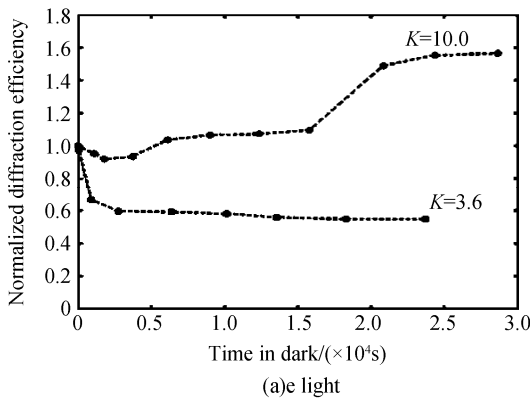


图 1 光折变光栅暗衰减特性测量的实验装置
Fig. 1 Experimental arrangement for measuring the dark-decay characteristics of photorefractive grating

*国家自然科学基金(60078002)和浙江大学现代光学仪器国家重点实验室开放课题(LMOI-0407)资助
Tel: 0571-88320044 Email: cim2046@zjut.edu.cn
收稿日期: 2005-12-21

束 W_1 和 W_2 , 再分别经过 M_1 和 M_2 反射后, 入射到 $Ce : BaTiO_3$ 晶体中. W_1 和 W_2 通过干涉形成了光强空间调制的条纹, 进而产生光折变光栅, 其波矢沿晶体 c 轴方向. 在光栅写入饱和后, 用 shutter 挡住其中一束写入光 W_1 , 用中性衰减片 ND 衰减后的另一束写入光 W_2 直接作为读出光来读取衍射信号, 读出光自动满足了布喇格匹配条件. 光栅衍射信号由光电倍增管 PMT 读取. 为减少读出光对原光栅的影响, 读出光必须很微弱并且读的时间尽可能短. 在本文的实验中, 读出光为 $0.07 \mu W$, 通过控制读出时间, 实验表明这样的读出光对原光栅的擦除效应可以忽略不计. 半波片 $\lambda/2$ 用来改变写入光的偏振方向, 产生寻常光(o光)干涉和非寻常光(e光)干涉.



各项实验中写入光强 I_{W_1} 均等于 I_{W_2} . 每次写入光栅前都先用均匀光照擦除原有光栅. 实验中使用的极化 $Ce : BaTiO_3$ 晶体, 0° 切割, 尺寸为 $7.09 \text{ mm} \times 6.42 \text{ mm} \times 4.14 \text{ mm}$, c 轴沿 7.09 mm 长的一边. 该晶体购于中国科学院物理研究所. 所有实验均在室温下完成.

2 实验结果与讨论

2.1 实验结果

在 e 光干涉产生光折变光栅的实验中, $I_{\text{total}} = I_{W_1} + I_{W_2} = 20 \text{ mW}$, 不同光栅波矢时的归一化衍射效率的衰减特性(初始时刻的衍射效率归一化为 1) 如图 2(a). 图中由虚线连接的是实验点. 光栅波矢

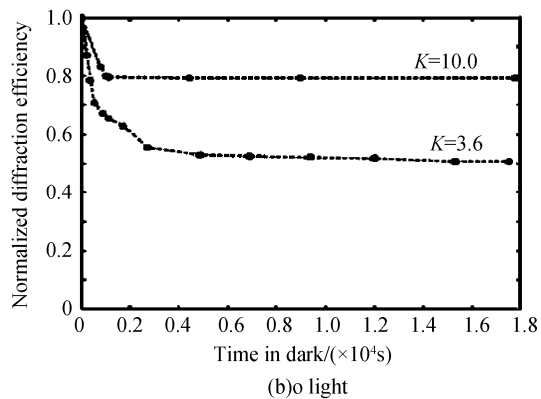


图 2 不同偏振光栅波矢时归一化衍射效率的暗衰减 ($I_{\text{total}} = 20 \text{ mW}$)

Fig. 2 Traces of dark decay on different grating wave vectors at $I_{\text{total}} = 20 \text{ mW}$ when the writing beams are both e or o polarized (normalized to its initial value at $t=0$)

$K = 2\pi/\Lambda$ (μm^{-1}), 其中 Λ 为写入光栅的间距: $\Lambda = \lambda/2\sin\theta$, λ 为写入光的波长(真空), 2θ 为两束写入光在晶体表面的夹角.

由图 2(a) 可见, 在大入射角度 ($\theta = 25^\circ$), 即 $K = 10.0 \mu\text{m}^{-1}$ 时, 衍射效率在经过很小的衰减后, 在其后的 8 个多小时的时间内始终上升. 实验中直到 19 h 后才观察到衍射信号开始下降. 而在小入射角度 ($\theta = 9^\circ$), 即 $K = 3.6 \mu\text{m}^{-1}$ 时, 没有出现衍射效率明显的长时间上升现象.

用 o 光干涉产生光折变光栅时归一化衍射效率的暗衰减特性如图 2(b). 其衰减时间特性与 e 光干涉小入射角度时相似, 即没有出现衍射效率明显长时间的上升现象.

2.2 讨论和分析

首先, shallow-deep 模型不能解释小时数量级的长时间上升现象. 原因如下: shallow-deep 模型适用于光折变晶体禁带中的一个深能级和一个浅能级同时参与光折变过程的情况. 此时, 由于深、浅能级上载流子的电极性不同, 并且两个能级间存在强耦合, 当深、浅能级上载流子电场出现反相时, 在暗

条件下会出现衍射效率上升甚至大于 1 的情况^[7,13-14]. 但由于 $Ce : BaTiO_3$ 晶体中浅能级的暗衰减时间常量一般在秒数量级, 与该能级相关的上升过程也在秒数量级内结束, 而这远远小于我们实验中的上升时间. 也就是说, 不是一深一浅两个能级参与光折变过程, 进而导致了上升现象. 事实上, 正如以前的研究中^[8] 所证实的, 本文使用的 $Ce : BaTiO_3$ 晶体中浅能级上的载流子光栅对整个晶体空间电场的贡献非常小且时间短, 主要是 Fe 离子和 Ce 离子两个深能级参与形成光折变光栅.

其次, 衍射信号长时间的上升现象也不是由于晶体禁带中两个深能级间的相互作用造成的. 原因如下: 根据在文献^[8] 中提出的 two deep-trap model (双深能级模型), 如果这两个深能级上的载流子极性相反, 那么类似于 shallow-deep 模型中那样, 衍射信号在暗环境中的一定条件下可以出现长时间上升的情况. 但是这种长时间上升的现象与写入光是 o 光或是 e 光偏振无关, 这又和实验中不同偏振入射时衍射信号的暗衰减特性存在着很大差异的情况相矛盾, 因此, 这两个深能级上的载流子极性必然相同.

在该条件下利用双深能级模型分析可知,暗衰减实验中的衍射效率只能按双指数和的形式衰减,不可能上升^[8].

注意到实验结果中,上升现象出现在 e 光偏振的较大入射角度时,而这个条件正有利于与晶体+c 方向成锐角的写入光 W_1 产生自泵浦位相共轭光. 因此,尝试从晶体内存在着自泵浦位相共轭光的角度对实验现象作出合理的分析.

自泵浦位相共轭光的产生首先同泵浦(入射)光的偏振方向有密切关系,对 Ce:BaTiO₃ 晶体来说,由于 e 光偏振泵浦时的有效电光系数远大于 o 光偏振的,这非常有利于前者产生位相共轭光. 其次,自泵浦位相共轭光的强度与泵浦光入射角度也有密切关系. 图 3 表示在入射到晶体的泵浦光功率 7 mW, e 光偏振时,测得的位相共轭反射率(位相共轭光功率与泵浦光功率的比值)与入射角度(当泵浦光与晶体+c 方向成锐角时,它和晶体表面法线方向的夹角,即图 1 中的 θ 角)的关系.

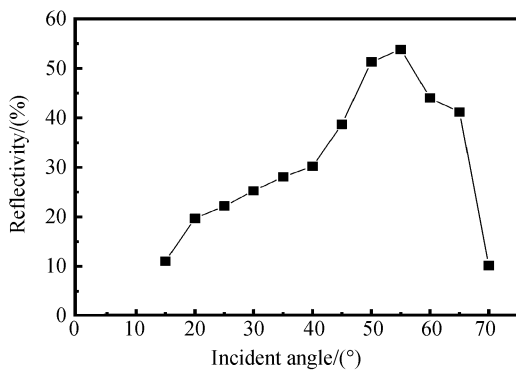


图 3 位相共轭反射率与入射角度关系

Fig. 3 Phase-conjugate reflectivity versus incident angle θ

从图中可以看出当入射角等于 55° 时,其位相共轭反射率达到最大 53.8% (即此时具有最大的有效电光系数). 当入射角等于 25° 时,其位相共轭反射率大于 20%; 而当入射角等于 9° 时,由于位相共轭光非常微弱而未能测量到其功率(负角度时没有位相共轭光出现,所以图 1 中的 W_2 不能产生位相共轭光). 另外,在 o 光入射时自泵浦位相共轭的建立要比 e 光入射困难得多.

从 e 光大角度写入时晶体中存在着写入光 W_1 的自泵浦位相共轭光的事实出发,衍射效率上升的作用机理可用图 4 所描述的情形来解释.

首先当写入光 W_1 入射晶体后,经过一定时间产生了自泵浦位相共轭光 PC; 写入光 W_2 同时与 W_1 及其位相共轭光 PC 产生干涉,因此在晶体中同时生成了两个光折变光栅: 光栅 1 是由两束写入光形成,光栅 2 则是由 W_2 和位相共轭光 PC 形成. 和

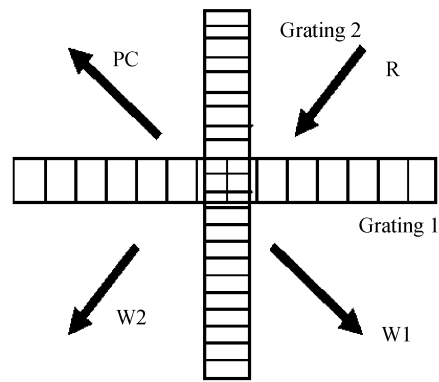


图 4 晶体内互相垂直的双光栅

Fig. 4 Mutually perpendicular gratings in the crystal

W_2 相同方向的读出光 R 入射时,同时满足这两个光栅的布喇格匹配条件,因此在 PC、 W_2 和 W_1 方向分别产生了光栅 2 的一级衍射、光栅 1 和 2 的零级衍射和光栅 1 的一级衍射. 暗条件下,在某段时间内,如果光栅 2 比光栅 1 衰减快,那么随着光栅 2 的衰减,更多的读出光能量将逐渐转移到光栅 1 的衍射中来; 对光栅 1, 当读出光能量的增加速度大于光栅的衰减速度,必将导致测得的衍射光信号出现上升. 而当在某段时间内,光栅 2 比光栅 1 衰减慢或者衰减速度相当时,测得的衍射光信号将呈下降趋势.

对于 o 光写入和 e 光小角度写入时的情况,由于此时 W_1 的有效电光系数非常小,位相共轭光没能形成或是很微弱,在晶体中没有光栅 2,因此测得它们的衰减曲线仅仅是光栅 1 的衰减,没有异常的上升现象(光栅 1 由写入光 W_1 和 W_2 干涉形成,光栅 2 由 W_2 和 W_1 的位相共轭光 PC 干涉形成).

3 结论

在 Ce:BaTiO₃ 晶体光折变光栅的暗衰减特性实验中,发现了用于探测光折变光栅衰减的衍射光信号出现了长时间异常上升的现象. 首先,上升现象并非以前的研究所认为的,是两个能级上载流子电场间的相互作用所造成,而是: 由于在与 Ce:BaTiO₃ 晶体+c 方向成锐角的写入光作用下产生了自泵浦位相共轭光,该写入光及其位相共轭光均与另一束写入光产生干涉,从而在晶体内形成了光栅方向互相垂直的两个光栅. 同时满足这两个光栅布喇格匹配条件的探测光,可分别在两个光栅上产生衍射. 随着其中一个光栅更快地衰减,探测光更多地逐渐转移到了另一个光栅的衍射光中,从而造成了后者测得的衍射效率上升甚至大于 1. 其次,如此长的上升时间是由于 Fe 离子和 Ce 离子两个深能级参与形成光折变光栅,而不是一深一浅两个能级. 对于作用机制的定量分析还在进一步研究中.

参考文献

- [1] SHELBY R, HOFFNAGLE J, BURR G, *et al.* Pixel-matched holographic data storage with megabit pages[J]. *Opt Lett*, 1997, **22**(19): 1509-1511.
- [2] DROLET J, CHUANG E, BARBASTATHIS G, *et al.* Compact integrated dynamic holographic memory with refreshed holograms[J]. *Opt Lett*, 1997, **22**(8): 552-554.
- [3] HONG Z, ZHANG M, ZHENG H, *et al.* Dark decay behaviors of photorefractive gratings in self-pumped phase conjugation with Ce : BaTiO₃ at 532 nm and 790 nm wavelengths[J]. *Opt Commun*, 2004, **238**: 157-162.
- [4] BACHER G, CHIAO M, DUNNING G, *et al.* Ultralong dark decay measurements in BaTiO₃[J]. *Opt Lett*, 1996, **21**(1): 18-20.
- [5] YANG Y, BUSE K, PSALTIS D. Photorefractive recording in LiNbO₃ : Mn[J]. *Opt Lett*, 2002, **27**(3): 158-160.
- [6] KUKHTAREV N, MARKOV V, ODULOV S, *et al.* Holographic storage in electro-optic crystals[J]. *Ferroelectrics*, 1979, **22**: 949-964.
- [7] TAYEBATI P, MAHGEREFTEH D. Theory of the photorefractive effect for Bi₁₂ SiO₂₀ and BaTiO₃ with shallow traps[J]. *J Opt Soc Am B*, 1991, **8**(5): 1053-1064.
- [8] ZHANG M, XU Y, HONG Z. Dark decay behaviors of photorefractive grating induced by two deep-trap levels in Ce : BaTiO₃[J]. *Chin Phys*, 2005, **14**(5): 995-998.
- [9] SONG H, DOU S, CHI M, *et al.* Studies of impurity levels in Rh-doped and Ce-doped photorefractive BaTiO₃ [J]. *Appl Phys B*, 2000, **70**(4): 543-548.
- [10] GUO Qing-lin, LI Pan-lai, ZHANG Jin-ping, *et al.* Improvement of holographic storage quality by pump beam modulation in Ce : KNSBN photorefractive crystal [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2004, **33**(10): 1226-1228.
郭庆林, 李盼来, 张金平, 等. 泵浦光调制对 Ce : KNSBN 光折变晶体全息存储质量的改善[J]. 光子学报, 2004, **33**(10): 1226-1228.
- [11] ZHENG Wei, ZHOU Yu-xiang, LIU Cai-xia. The study on the photorefractive properties of Ce : Co : LiNbO₃ crystal [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2003, **32**(12): 1492-1494.
郑威, 周玉祥, 刘彩霞. Ce : Co : LiNbO₃ 晶体光折变性能研究[J]. 光子学报, 2003, **32**(12): 1492-1494.
- [12] ZHAO Jian-lin, LI Bi-li, YANG De-xing, *et al.* Experiment of light writing planar waveguides array in LiNbO₃ : Fe crystal [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2003, **32**(4): 421-424.
赵建林, 李碧丽, 杨德兴, 等. LiNbO₃ : Fe 晶体中光写入阵列平面光波导的实验实现[J]. 光子学报, 2003, **32**(4): 421-424.
- [13] TAYEBATI P. The effect of shallow traps on the dark storage of photorefractive grating in Bi₁₂ SiO₂₀ [J]. *J of Appl Phys*, 1991, **70**(8): 4082-4094.
- [14] TAJ I A, XIE P, MISHIMA T. Anomalous temporal behavior of photorefractive wave mixing owing to the existence of both positive and negative charge carriers[J]. *J Opt Soc Am B*, 2000, **17**(10): 1740-1748.

Behaviors and Analysis of Diffraction-Efficiency Ascending of Photorefractive Grating in Ce : BaTiO₃

ZHANG Ming¹, HONG Zhi², ZHANG Jia-wen²

(1 College of Science, Zhejiang University of Technology, Hangzhou 310023, China)

(2 Centre for Optical and Electromagnetic Research, State Key Laboratory of Modern Optical Instrumentation, Zhejiang University, Hangzhou 310027, China)

Received date: 2005-12-21

Abstract: Anomalous long-time ascending of the diffraction efficiency is observed in dark-decay experiments of photorefractive gratings formed by interference of two writing beams in Ce : BaTiO₃. In the experiments with e-polarized and larger-angle writing beams, the diffraction efficiency kept rising over 8 hours. The diffraction efficiency, however, did not exhibit rising behaviors in the experiments of both e-polarized with smaller angle and o-polarized. It is deduced that the forming of two mutually perpendicular gratings with different decay rates and the long-time diffraction-efficiency ascending are caused by the self-pumped phase-conjugate beam and two deep traps involved in the photorefractive grating.

Key words: Nonlinear optics; Dark decay; Photorefractive grating; Ce : BaTiO₃



ZHANG Ming was born in 1975. He received his Ph. D. degree from Zhejiang University in 2004. Now he is an instructor at Zhejiang University of Technology. His current research interests are nonlinear optics and laser technology.