

掺 Fe 的钽铌酸钾钠晶体的电光及电控衍射性能

陈启珍 田浩 周忠祥* 胡程鹏 孟庆鑫

(哈尔滨工业大学物理系, 黑龙江 哈尔滨 150001)

摘要 报道了掺铁(Fe)的钽铌酸钾钠(KNTN)晶体的电光及电控衍射性能。利用顶部籽晶助溶剂法生长了高质量的晶体,居里温度为 15 °C;利用单光束椭圆偏法测量了晶体的有效二次电光系数 R_{eff} ,在居里温度附近, R_{eff} 高达 $1.05 \times 10^{-15} \text{ m}^2/\text{V}^2$,电光调制能力相当于铌酸锂的 19 倍(利用 LiNbO_3 的 $\gamma_{33} = 30.8 \times 10^{-12} \text{ m/V}$,偏压为 500 V/mm), R_{eff} 随着温度的升高而减小。利用二波耦合实验装置测量了晶体的电控衍射性能,当施加在晶体上的电场从 0 增加到 900 V/mm 时,晶体的衍射效率先增大后减小,并且在外加电场为 700 V/mm 时达到最大值 80%。结果表明,Fe:KNTN 是一种优异的电光晶体和电控衍射晶体。

关键词 非线性光学; 电控衍射; 二波耦合; 钽铌酸钾钠晶体

中图分类号 O734+.1 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL201239.0706002

Electro-Optic Property and Voltage-Controlled Diffractive Property of Fe-Doped Potassium Sodium Tantalate Niobate Crystal

Chen Qizhen Tian Hao Zhou Zhongxiang Hu Chengpeng Meng Qingxin

(Department of Physics, Harbin Institute of Technology, Harbin, Heilongjiang 150001, China)

Abstract Electro-optic and voltage-controlled diffractive properties of Fe-doped potassium sodium tantalate niobate (Fe:KNTN) crystal are presented. This crystal is grown by the top seeded solution growth (TSSG) method and the Curie temperature is 15 °C. Effective quadratic electro-optic (QEO) coefficient R_{eff} is measured with the one-beam ellipsometric setup, and its R_{eff} achieves as high as $1.05 \times 10^{-15} \text{ m}^2/\text{V}^2$ near the Curie temperature which is about 19 times that of LiNbO_3 under an electric field of 500 V/mm. R_{eff} declines with the increasing temperature. The voltage-controlled diffractive property is measured by a two-wave mixing setup. When the external electric field increases from 0 to 900 V/mm, the diffraction efficiency increases firstly and decreases afterward, and reaches the maximum value of 80% at 700 V/mm. These results show that Fe:KNTN is a promising electro-optic crystal and voltage-controlled diffractive crystal.

Key words nonlinear optics; voltage-controlled diffraction property; two-wave mixing; potassium sodium tantalate niobate crystal

OCIS codes 160.2100; 160.5320; 190.7070

1 引言

电控全息(EH)是一种利用外加电场控制体全息光栅高速波长选择的方法^[1~4],可应用于光开关以及光存储等领域^[5~8]。其基本原理是利用全息的方法在顺电相电控全息材料中写入全息光栅,然后

通过外加电场控制晶体内的光栅从而达到控制出射光束的目的。

顺电相钽铌酸钾锂(KLTN)晶体因为其二次电光(QEO)系数大、衍射效率高以及纳秒级的响应时间,已经成为电控全息器件研究的核心材料^[9,10]。

收稿日期: 2012-02-01; 收到修改稿日期: 2012-03-01

基金项目: 国家自然科学基金(50902034、11074059)和黑龙江省杰出青年基金(JC200710)资助课题。

作者简介: 陈启珍(1988—),男,硕士研究生,主要从事钽铌酸钾钠晶体电光及电控衍射等方面的研究。

E-mail: hgchenzhen@163.com

导师简介: 孟庆鑫(1972—),女,副教授,主要从事光电功能材料方面的研究。E-mail: mengqx@hit.edu.cn

* 通信联系人。E-mail: zhouzx@hit.edu.cn

但是大体积、高质量的 KLTN 晶体生长困难,而利用 Na 取代 Li 有利于得到高光学质量的晶体^[11]。目前,已有文献报道掺锰(Mn)的钽铌酸钾钠(KNTN)晶体电控衍射效率达到 80%^[12]。掺 Fe 通常也能大大提高晶体的电控衍射性能^[13],但是掺 Fe 的 KNTN 晶体的电控衍射性质未见报道。本文利用顶部籽晶助溶剂生长(TSSG)法生长了高质量的掺 Fe 的 KNTN 晶体,对其电光性能及电控衍射性能进行了系统的研究。

2 实验过程

实验中,利用 TSSG 法生长了高光学质量的掺 Fe(物质的量分数为 0.03%)的 KNTN 晶体,生长条件与 KLTN 晶体基本相似。将晶体沿[001]轴方向切成尺寸为宽 2.3 mm、高 3.9 mm、厚 1.5 mm 的薄片,并对其进行光学抛光以用于光学性质的测量。通过测量晶体的介电系数随温度的变化曲线确定晶体的立方相与四方相的相变温度(即居里温度 T_C)。

立方相 KNTN 晶体的电光系数矩阵可表示为

$$[R_{ij}] = \begin{bmatrix} R_{11} & R_{12} & R_{12} & 0 & 0 & 0 \\ R_{12} & R_{11} & R_{12} & 0 & 0 & 0 \\ R_{12} & R_{12} & R_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & R_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & R_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & R_{44} \end{bmatrix}. \quad (1)$$

在晶体的[001]方向施加电场 E ,当通光方向为[010]方向时,晶体的[001]与[100]方向折射率变化可表示为

$$\Delta n_x = \Delta n_y \approx -\frac{1}{2}n^3 R_{12} E^2, \quad (2a)$$

$$\Delta n_z \approx -\frac{1}{2}n^3 R_{11} E^2, \quad (2b)$$

式中 Δn_x 、 Δn_y 和 Δn_z 分别表示[100]、[010]和[001]方向的折射率变化。则[100]与[001]方向的折射率变化之差为

$$\Delta n = \Delta n_z - \Delta n_x = -\frac{1}{2}n^3 (R_{11} - R_{12}) E^2 = -\frac{1}{2}n^3 R_{\text{eff}} E^2, \quad (3)$$

式中 R_{eff} 即为有效电光系数。

在有效电光系数测量中,通过单光束椭偏法电光系数测量系统(PSCA)测量晶体由于电光效应引起的折射率变化^[14],如图 1 所示。激光的波长为 632.8 nm,起偏器 P 与晶体的主轴成 45°,波片 C

为 $\lambda/4$,与晶体的主轴成 45°,检偏器 A 与起偏器 P 垂直。频率为 f 的交流电压由锁相放大器(SRS SR830)输出,高压放大器放大后加在晶体上,变化的光强信号经过光电探测器转化为电压信号由锁相放大器探测。由于顺电相 KNTN 晶体具有二次电光效应,所以锁相放大器选择测量频率为 $2f$ 的信号,所有的实验数据均由计算机采集,经处理计算后得到有效电光系数 R_{eff} 。

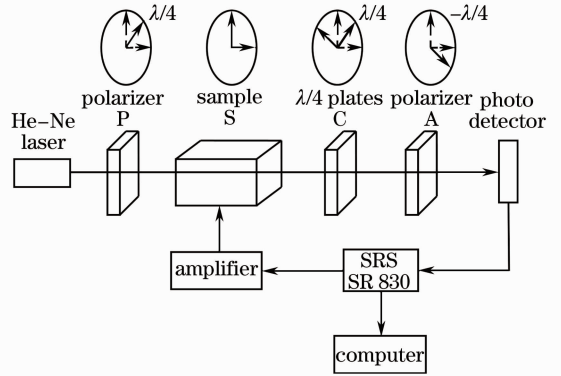


图 1 单光束椭偏法电光系数测量系统

Fig. 1 Schematic drawing of the setup of the PSCA for the electro-optic coefficients measurement

在衍射效率测量过程中,搭建了二波耦合实验装置,如图 2 所示。激光器的波长为 532 nm,激光经过分束镜(BS)后分成两束光在晶体内形成干涉写入光栅,写入光的夹角为 2θ ,且波矢和偏振方向均在 (y, z) 平面内。坐标轴的方向与晶体的主轴的方向一致,如图 2 中所示,外电场 E_0 与光栅波矢的方向 K 均沿晶体的 z 轴方向。在光栅记录过程中,快门均保持开通的状态,两束写入光光强均为 I_0 ,且外加电场为 0。光栅写好之后,同时关闭两个快门,在晶体上加外电场,只打开快门 1,则探测器探测到的光强即衍射光强为 I_d ,此过程即光栅读

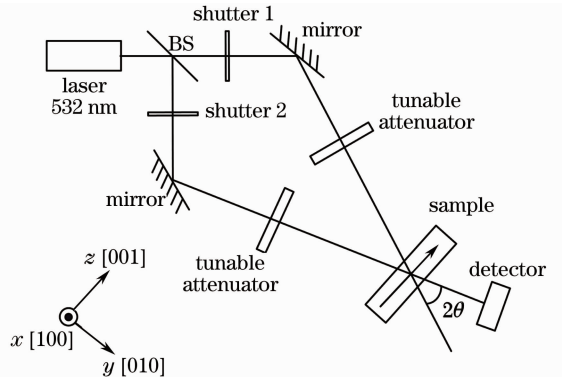


图 2 二波耦合实验装置

Fig. 2 Two-wave mixing measurement setup

取过程。光栅的衍射效率定义为

$$\eta = \frac{I_d}{I_0}. \quad (4)$$

3 实验结果及分析

实验得到了高光学质量的 Fe:KNTN 晶体,晶体的生长方向平行于晶体主轴[001]方向,晶体的组分为 $K_{0.95}Na_{0.05}Ta_{0.58}Nb_{0.42}O_3$ 。图 3 给出了晶体的相对介电系数随温度的变化曲线,当温度增加到居里温度(15 °C)时,晶体的介电系数达到最大值。当温度高于居里温度时,晶体处于顺电相。从介温谱可以看出在居里温度附近晶体有较大的介电系数,从而可以推断在居里温度附近晶体具有较大的二次电光系数。

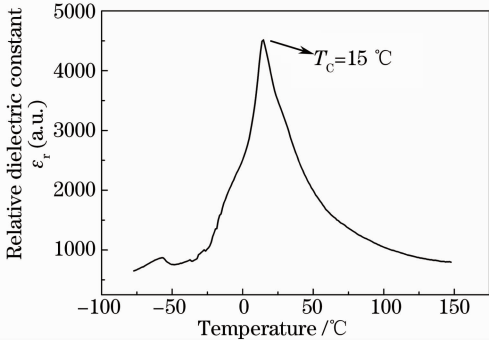


图 3 相对介电系数随温度的变化曲线,曲线峰值对应居里温度 $T_c = 15$ °C

Fig. 3 Temperature dependence of relative dielectric constant, the peak of the curve shows $T_c = 15$ °C

在电光系数测量过程中,外加电场的频率为 27.7 Hz,对于 KNTN 晶体这个频率远远小于其谐振频率,所以晶体可以看成是处于自由状态。图 4 给出了 17.5 °C 时折射率变化 $|\Delta n|$ 随外加电场的平方 E^2 的变化关系,可以看出 $|\Delta n|$ 随着 E^2 线性增大,图中的虚线为线性拟合得到的,通过计算可以得到晶体的有效电光系数为 $R_{\text{eff}} = 1.05 \times 10^{-15} \text{ m}^2/\text{V}^2$ 。图 5 给出了晶体的有效电光系数 R_{eff} 随外加电场的变化关系。从图中可以看出,在居里温度以上,当温度从 17.5 °C 增加至 35 °C 时,晶体的有效二次电光系数从 $1.05 \times 10^{-15} \text{ m}^2/\text{V}^2$ 减小至 $8.24 \times 10^{-17} \text{ m}^2/\text{V}^2$,而且在居里温度附近电光系数减小的幅度比较大。在居里温度以上,晶体的电光系数与介电系数的关系为

$$R = \epsilon_0^2 (\epsilon_r - 1) (\epsilon_r - 1) g, \quad (5)$$

式中 ϵ_0 为真空介电系数, ϵ_r 为相对介电系数, g 为极光系数。而根据 Wemple 等^[15]的理论,在不同温

度下晶体的极光系数 g 基本不变,结合图 3 的介温谱,可以得到晶体的电光系数随温度的变化主要是由于晶体的相对介电系数随温度的变化导致的,而且在居里温度附近相对介电系数减小的幅度较大导致电光系数变化较大。

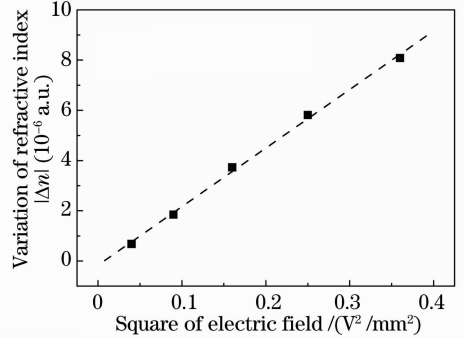


图 4 折射率变化随电场的平方变化,虚线为线性拟合的结果

Fig. 4 Variation of refractive index $|\Delta n|$ versus the square of external electric field E^2 , the dashed curve is the linearly fitting results

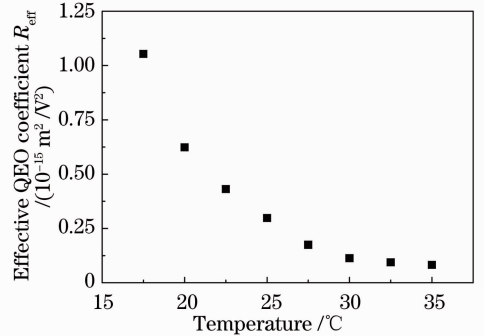


图 5 有效二次电光系数随温度的变化

Fig. 5 Variation of effective quadratic electro-optic coefficients versus temperature

电控衍射性质测量过程中,光栅写入时间为 240 s,两束光强均为 2 mW,从写入到读出的整个过程的光强变化如图 6 所示,此时两束光的夹角 2θ 为 15°,晶体上的外加电场为 700 V/mm,从图中数据可以计算得到衍射效率为 80%。图 7 给出了衍射效率随外加电场的变化曲线,当电压从 0 增加到 900 V/mm 时,衍射效率从 0 增加到 80%,然后逐渐减小;图中的虚线是基于衍射效率的理论公式

$$\eta = \sin^2 \left(\frac{\pi d}{\lambda \cos \theta} n_0^3 R_{\text{eff}} E_{\text{sc}} E \right) \quad (6)$$

拟合的,式中 d 为晶体通光方向的宽度, λ 为记录光栅的入射光波长, n_0 为晶体未加电场时的折射率, E_{sc} 为晶体的空间电荷场, E 为外加电场。

相比之前文献报道的最大衍射效率为 75% 的

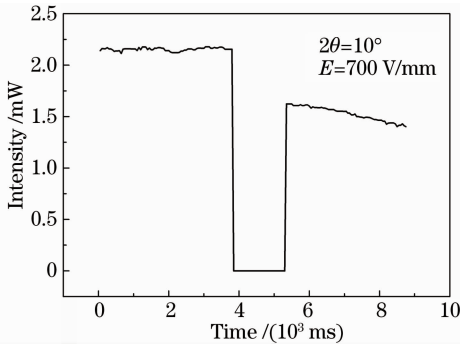


图 6 整个过程中光强随时间的变化

Fig. 6 Variation of the light intensity measured by the detector in the whole process

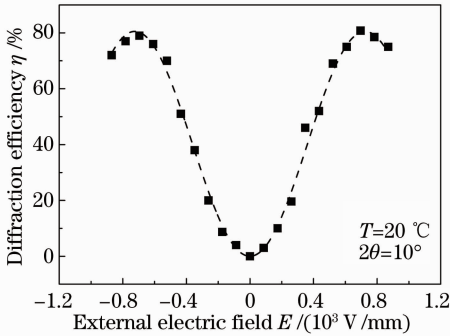


图 7 衍射效率随电场变化,虚线为拟合所得结果

Fig. 7 Diffraction efficiency versus external field, the dashed curve is the fitting result

Cu:KLTN 晶体(外加电场为 240 V/mm)和最大衍射效率为 60% 的 Cu, V:KTN 晶体(外加电场为 300 V/mm)^[1, 5], Fe:KNTN 晶体表现出来更好的电控衍射性能,其在电控全息器件上的应用将更有前景。

4 结 论

通过研究顺电相掺 Fe 的 KNTN 晶体的电光性能及电控衍射性能,得到晶体的有效二次电光系数在居里温度附近达到 $1.05 \times 10^{-15} \text{ m}^2/\text{V}^2$,晶体的电控衍射效率在外加电场为 700 V/mm 时达到最大值,约为 80%。由于其高衍射效率及纳秒级的响应速度,Fe:KNTN 晶体在电控全息器件上具有很大的应用潜力。

参 考 文 献

1 Aharon Agranat, Victor Leyva, Amnon Yariv. Voltage-controlled photorefractive effect in paraelectric $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$: Cu, V[J]. *Opt. Lett.*, 1989, **14**(18): 1017~1019

2 Ahron J. Agranat. Optical Lambda-Switching at Telecom Wavelengths Based on Electroholography in Infrared Holography for Optical Communications [M]. Berlin: Springer, 2003. 133~161

3 Zheng Jihong, Chen Gang, Gu Lingjuan *et al.*. A novel electrically switchable holographic polymer dispersed liquid crystal Bragg grating[J]. *Acta Optica Sinica*, 2003, **23**(4): 491~495

郑继红, 陈刚, 顾玲娟等. 新型聚合物分散液晶材料研制的电控体全息光栅[J]. *光学学报*, 2003, **23**(4): 491~495

4 Zhang Jian, Fang Yun, Wu Liying *et al.*. Liquid crystal beam steering technologies [J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **37**(2): 325~334

张健, 方运, 吴丽莹等. 液晶光束偏转技术[J]. *中国激光*, 2010, **37**(2): 325~334

5 Benny Pesach, Guy Bartal, Eli Refaeli *et al.*. Free-space optical cross-connect switch by use of electroholography [J]. *Appl. Opt.*, 2000, **39**(5): 746~758

6 Benny Pessach, Eli Refaeli, Aharon J. Agranat. Investigation of the holographic storage capacity of paraelectric $\text{K}_{1-x}\text{Li}_x\text{Ta}_{1-y}\text{Nb}_y\text{O}_3$:Cu, V[J]. *Opt. Lett.*, 1998, **23**(8): 642~644

7 Zheng Chuantao, Ma Chunsheng, Yan Xin *et al.*. Improved design of a polymer Mazh-Zehnder electro-optic switch with a wide spectrum of 110 nm[J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **37**(1): 136~141

郑传涛, 马春生, 闫欣等. 110 nm 宽频谱马赫-曾德尔电光开关的改进设计[J]. *中国激光*, 2010, **37**(1): 136~141

8 Feng Yuanming, Wang Xingping, Yang Huan *et al.*. Study of wavelength beam combining using off-axial holographic diffraction optical element[J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **33**(7): 1734~1738

冯远明, 王兴平, 杨欢等. 离轴型全息衍射光学元件多波长激光合束研究[J]. *中国激光*, 2010, **37**(7): 1734~1738

9 Aharon Agranat, Rudy Hofmeister, Amnon Yariv. Characterization of a new photorefractive material: $\text{K}_{1-y}\text{Li}_y\text{Ta}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$ [J]. *Opt. Lett.*, 1992, **17**(10): 713~715

10 Aharon J. Agranat, Lavi Secundo, Noam Golshani *et al.*. Wavelength selective photonic switching in paraelectric potassium lithium tantalate niobate[J]. *Opt. Mater.*, 2001, **18**(1): 195~197

11 Hao Tian, Zhongxiang Zhou, Dewei Gong *et al.*. Growth and optical properties of paraelectric $\text{K}_{1-y}\text{Na}_y\text{Ta}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$ single crystals[J]. *Appl. Phys. B*, 2008, **91**(1): 75~78

12 Hao Tian, Bo Yao, Zhongxiang Zhou *et al.*. Voltage-controlled diffraction modulation in manganese-doped potassium sodium tantalate niobate single crystals[J]. *Applied Physics Express*, 2012, **5**(1): 012602

13 Hao Tian, Zhongxiang Zhou, Dewei Gong *et al.*. Photorefractive properties of paraelectric potassium lithium tantalite niobate crystal doped with iron [J]. *Opt. Commun.*, 2008, **281**(6): 1720~1724

14 M. Aillerie, N. Theofanous, M. D. Fontana. Measurement of the electro-optic coefficients; description and comparison of the experimental techniques [J]. *Appl. Phys. B*, 2000, **70**(3): 317~334

15 S. H. Wemple, M. DiDomenico, I. Camlibed. Relationship between linear and quadratic electro-optic coefficients in LiNbO_3 , LiTaO_3 , and other oxygen-octahedra ferroelectrics based on direct measurement of spontaneous polarization [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1968, **12**(6): 209~211

栏目编辑: 韩峰