

掺铜钾钠铌酸锶钡晶体自泵浦 相位共轭研究

吕新亮 岳学峰 宋永远 孙大亮 姜全忠 邵宗书 陈焕鑫

(山东大学晶体材料研究所, 济南 250100)

提 要

用掺铜钾钠铌酸锶钡晶体制成猫式(cat)自泵浦相位共轭器, 共轭光反射率高达 63%。增加掺铜量, 晶体在红光波段效应增强。本文研究了掺杂浓度、激光波段与该器件性能的关系。

关键词: 光折变效应, 钾钠铌酸锶钡晶体, 自泵浦位相共轭。

一、引言

自从人们首次在 BaTiO_3 晶体中实现自泵浦相位共轭^[1]以来, 相继在 KNbO_3 ^[2]、 SBN ^[3]、掺铈的 KNSBN ^[4, 5]等晶体中实现了这种效应。由于自泵浦相位共轭的实现仅需一束泵浦光, 其光路简单、反射率较高、共轭光束质量好且对周围环境如振动等不敏感, 所以这类器件在相位共轭激光器、图象处理、各类干涉仪及多台激光器特别是半导体激光器的模式锁定等方面有着广阔的应用前景^[6]。这些应用反过来也要求晶体器件性能的进一步提高与改善。

与 BaTiO_3 晶体相比, 钾钠铌酸锶钡晶体(KNSBN)生长, 加工简单方便, 性能稳定、成本低, 但目前报道的 KNSBN 自泵浦相位共轭器反射率较低^[4], 响应时间长^[7]。本文报道通过适量的铜离子掺杂, 发现其光折变性能明显改观, 其自泵浦相位共轭器反射率可超过 60%, 响应时间也与 BaTiO_3 晶体相当。而且通过掺杂增强了这类晶体在红光波段的效应, 其各种性能优于掺铈的同类晶体。

二、晶体样品与实验装置

实验所用样品为 $(\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{0.2}(\text{Sr}_{0.75}\text{Ba}_{0.25})_{0.9}\text{Nb}_2\text{O}_6$ 晶体, 选取 Cu^{2+} 离子作为掺杂剂, 以 CuO 的形式加入熔体。考虑到结构的稳定性, 掺杂量一般小于 0.1 wt%。晶体的居里点 $T_c = 140^\circ\text{C}$, 室温下介电常数 $\epsilon_{11} = 588$ 、 $\epsilon_{33} = 500$, 经 700 V/mm 的直流电场极化后, 加工成一定尺寸的长方体, 具体数据见表 1。

掺铜 KNSBN 晶体的透射谱如图 1 所示, 为便于比较, 图中还给出了纯的 KNSBN 晶体的透射谱。从图 1 可见, 掺入 Cu^{2+} 离子以后, KNSBN 晶体的吸收带变宽, 从蓝光到红光

Table 1. The doping concentrations of CuO and dimensions of KNSBN Crystals

No.	KNSBN-1	KNSBN-2	KNSBN-3	KNSBN-4
Doping Concentration	0.1 wt%	0.07 wt%	0.04 wt%	0.03 wt%
Dimension ($a \times b \times c$ mm 3)	5.8 × 6.5 × 7.0	4.1 × 4.0 × 8.1	5.1 × 5.8 × 7.4	5.3 × 4.5 × 6.7

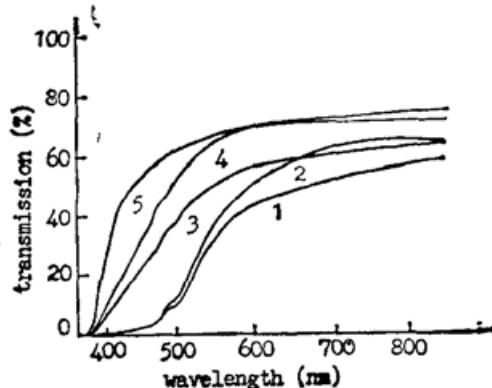


Fig. 1 The transmission spectra of undoped and Cu-doped KNSBN. Curves 1~4 correspond to KNSBN-1~4 and the thicknesses are 5.8 mm, 4.1 mm, 5.1 mm, 5.3 mm respectively. Curve 5 correspond to undoped KNSBN with the thickness of 5.6 mm

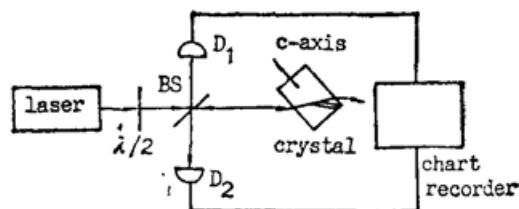


Fig. 2 Expeimental arrangement for measuring phase conjugate reflectivities and response time

甚至到近红外波段都有较强的吸收。这就有可能使这类晶体在较宽的波段范围内实现自泵浦相位共轭。

用于测量自泵浦共轭反射率及响应时间的实验装置如图2所示，光源为 Ar^+ 和He-Ne激光器，波长分别为488 nm、514.5 nm和632.8 nm。转动半波片可保证入射到晶体上的激光为e光，半反镜BS可同时将入射光和共轭光引出，以测量其光强并求得共轭光反射率。光束直径分别为2.5 mm(Ar^+ 激光)和1.2 mm(He-Ne激光)，光束均未经聚焦而入射到晶体上。在三种激光波长下，形成自泵浦相位共轭时晶体内部光路均清晰可见，基本的光路形式如图3所示。

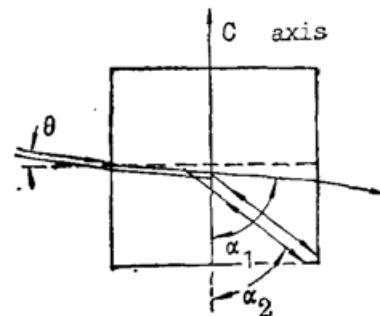


Fig. 3 Sketch of the internal beam configuration inside the crystal while it is self-pumping

三、实验结果

1. 角度响应

实验发现四种不同掺杂浓度的晶体器件均有较宽的角度响应范围。以KNSBN-3为例，以入射波长为514.5 nm测量了共轭光反射率随入射角度 θ 的关系，实验结果如图4所示。可见只要入射角 $\theta > -10^\circ$ 即可实现自泵浦相位共轭，且在很大的入射角范围内反射率均可超过30%，一般来说，随着掺杂浓度的增加，晶体具有更宽的角度响应范围。

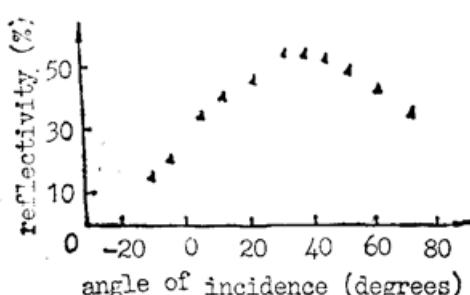


Fig. 4 The phase conjugate reflectivities versus incident angle for KNSBN-3 crystal
 $\lambda=514.5\text{ nm}$

nm 和 632.8 nm 两种波长下的最大共轭反射率, 结果列于表 3, 其中掺铜量为 0.03 wt% 的 KNSBN-4 晶体在 514.5 nm 处反射率高达 63%, 与报道的 45° 切割 BaTiO₃ 晶体所达到的数值相当^[9], 而比掺铈 KNSBN 晶体在相同波长下的反射率高出许多。

Table. 2 The measured phase conjugate reflectivities of KNSBN: Cu at different wavelengths

wavelength	488 nm	514.5 nm	632.8 nm
R_{\max} (KNSBN-1)	2%	17%	60%
R_{\max} (KNSBN-3)	33%	55%	40%

Table. 3 The measured maximum phase conjugate reflectivities of KNSBN: Cu crystals at 514.5 nm and 632.8 nm

No.	KNSBN-1	KNSBN-2	KNSBN-3	KNSBN-4
R_{\max} (514.5 nm)	17%	40.5%	55%	63%
R_{\max} (632.8 nm)	60%	42%	40%	<1%

4. 响应时间

定义从光束入射至晶体上到其共轭光达到最后稳态值的 $(1-e^{-1})$ 所需时间为自泵浦相位共轭的响应时间, 图 5 给出了 KNSBN-4 晶体在 514.5 nm 处响应时间与入射光功率密度的关系, 计算机拟合线的解析式为 $t=9I^{-0.55}$, 其中 I 为入射光功率密度, 单位为 $\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$, t 的单位为 sec, 当 $I=1\text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$ 时, $t=9\text{ sec}$ 与 BaTiO₃ 晶体的自泵浦共轭响应时间处于同一量级^[7], 但较掺铈的 KNSBN 晶体却要小得多^[4], 在相同的入射光功率密度下, 掺杂浓度为 0.04 wt% 的 KNSBN-3 晶体响应时间为 7.8 sec, 但波长增加至 632.8 nm 时, 其响应大为变慢, $t=90\text{ sec}$ (对 KNSBN-1 晶体), 而其他掺杂量小的晶体则具更长的响应时间。

2. 波段响应

在不同激光波段, 同一晶体其光折变响应也不同, 对 KNSBN-1 和 KNSBN-3 晶体实验测量了其在三种激光波段下的最大共轭反射率, 其结果列于表 2 中。可见在红光波段 $\lambda=632.8\text{ nm}$ 时, KNSBN-1 的共轭反射率可达 60%, 这大大超过了掺铈的 KNSBN 晶体在相同波长时的反射率^[8]。

3. 掺杂浓度的影响

从上面的结果可以看到, 掺杂浓度对晶体的光折变效应有较强的影响, 实验测量了这些晶体在 514.5 nm 和 632.8 nm 两种波长下的最大共轭反射率, 结果列于表 3, 其中掺铜量为 0.03 wt% 的 KNSBN-4 晶体在 514.5 nm 处反射率高达 63%, 与报道的 45° 切割 BaTiO₃ 晶体所达到的数值相当^[9], 而比掺铈 KNSBN 晶体在相同波长下的反射率高出许多。

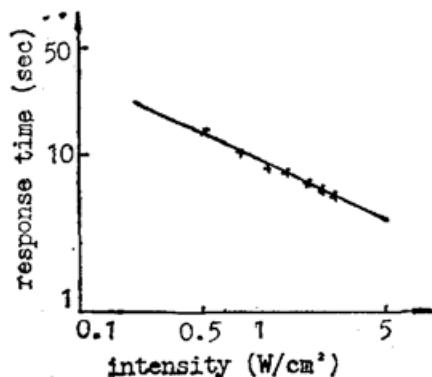


Fig. 5 The phase conjugate response time vs input intensity for KNSBN-4 crys. tal at 514.5 nm

四、讨论与结论

一般来说，掺杂离子不会导致晶体电光系数的变化，但在很大程度上会影响晶体中的光折电荷密度，光折变晶体的耦合系数为^[1]：

$$\tau = \frac{\omega}{2n_e c} \frac{r_{\text{eff}} \cdot E}{\cos[(\alpha_1 - \alpha_2)/2]}, \quad (1)$$

式中 ω 为入射光频率， n_e 为晶体折射率（对 e 光）， c 为光速， r_{eff} 是有效电光系数，对 KNSBN 晶体有

$$r_{\text{eff}} = \{n_e^4 r_{13} \cos \alpha_1 \cos \alpha_2 + 2n_e^2 n_e^2 r_{42} \cos[(\alpha_1 + \alpha_2)/2] \\ + n_e^4 r_{33} \sin \alpha_1 \sin \alpha_2\} \sin[(\alpha_1 + \alpha_2)/2], \quad (2)$$

E 为空间电荷场

$$E = \frac{k_B t}{q} \frac{k_g \cos(\alpha_1 - \alpha_2)}{1 + (k_g/k_0)}, \quad (3)$$

$$k_g = (2\pi/\lambda_q) = [4\pi \sin(\alpha_1 - \alpha_2)]/\lambda, k_0 = [N q^2 / \epsilon \epsilon_0 k_B T]^{1/2},$$

式中 $k_B T$ 是热能， k_g 为晶体内光束耦合形成光栅波矢的数值， q 为电荷载流子的电荷量， N 为晶体中的有效光折电荷密度。假定 $N \sim 5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 经计算得不同的 α_1 ，耦合系数 γ 随 α_2 的变化关系曲线，如图 6 所示。

对 KNSBN 晶体，散射光被晶体顶角全反射的条件是 $27^\circ < \alpha_2 < 63^\circ$ ，从图 6 可知在此范围内且 $\gamma > 1.5 (\text{mm})^{-1}$ 所对应的 α_1 的范围是 $35^\circ < \alpha_1 < 95^\circ$ ，对应入射角 $\theta > 11^\circ$ 。可见自泵浦相位共轭可在很宽的角度范围内实现，如图 4 所示。

不同掺杂的晶体在同一波段，以及同一晶体在不同波段自泵浦特性的差异，应主要归之于吸收系数的变化。假定晶体在可见光波段的吸收主要用于激发电荷，那么不同波段或不同掺杂浓度吸收系数的变化对应于其光折电荷密度的变化。光折电荷密度增加，计算表明其对应的最佳偶合系数 γ 也会增大，但同时吸收损耗也加大，总的效应却不一定增强。那么对一定掺杂浓度的晶体，其共轭光反射率会在一定波长处达到最佳值。而在一定波长下，其也会在适当的掺杂条件下达到最佳值。

作者认为自泵浦响应时间与晶体光折变响应时间常数 τ 成正比，假定电荷的复合时间很短，且晶体中只有一种电荷载流子， τ 可表示为^[10]

$$\tau = \frac{\epsilon}{\mu s} \cdot \frac{r_R N_A}{4\pi e (N_D - N_A)} \cdot \frac{1}{I}, \quad (4)$$

式中 ϵ 为介电常数， e 为电子电荷， μ 为迁移率， r_R 为复合速率系数， N_D 、 N_A 分别为晶体内杂质离子数密度和离子化施主数密度， I 为入射光强， s 为光电离截面，可见入射光强越大，响应时间越短，而光电离截面 s 与晶体的吸收系数成正比，由图 1 可知，波长越短，掺杂浓度

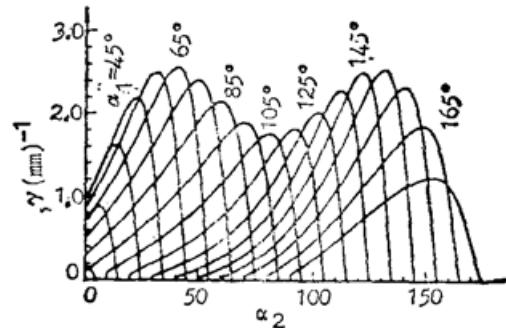


Fig. 6. Plot of coupling constant for KNSBN vs α_2 for various values of α_1 .

The curves are for 514.5 nm light and based on the following values:
 $N \sim 5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, $\epsilon_{11} = 588$, $\epsilon_{33} = 500$,
 $n_e = 2.30$, $n_o = 2.27$, $r_{13} = 50 \text{ pm/V}$,
 $r_{42} = 400 \text{ pm/V}$, $r_{33} = 270 \text{ pm/V}$

越大吸收系数也越大, 从(4)式知其响应也越快。

总之, 在我们掺铜的KNSBN晶体中实现了自泵浦位相共轭, 研究了掺杂浓度、波长等因素对其自泵浦响应特性的影响。通过适量的掺杂, 扩展了晶体的响应波段, 在红光处也实现了高反射率自泵浦相位共轭, 同时通过掺入Cu²⁺离子, 也使晶体的响应时间大为缩短, 为其实际应用提供了一定的依据。

本文作者对南开大学许京军、武原庆博士和刘思敏、张光寅教授在实验过程中提供的有益帮助深表感谢。

参 考 文 献

- [1] J. Feinberg; *Opt., Lett.* 1982, **7**, No. 10, (Oct) 486.
- [2] H. Zhang et al.; *Appl. Phys. Lett.*, 1990, **57**, No. 13, (Sept.), 1298.
- [3] G. Salamo et al.; *Opt. Commun.* 1986, **59**, No. 5, 6 (Oct), 417.
- [4] J. Rodriguez et al.; *Appl. Opt.* 1987, **26**, No. 19 (Oct), 1732.
- [5] S. R. Montgomery et al.; *J. Opt., Soc. Am. (B)*, 1988, **B5**, No. 8 (Aug), 1775.
- [6] J. Feinberg and K. R. Macdonald in "Photorefractive materials and their applications" II eds. P. Günter and J. P. Huignard, chapter 5, (Springer-Verlag, 1989)
- [7] M. J. Miller et al.; *Opt. Lett.*, 1987, **12**, No. 5 (May), 340.
- [8] X. Yue et al.; *Chinese Phys. Lett.* 1990, **7**, No. 7 (July), 304.
- [9] J. E. Ford et al.; *Appl. Opt.* 1989, **28**, No. 22 (Nov), 4808.
- [10] G. C. Valley and M. B. Klein, *Opt. Eng.*, 1983, **22**, No. 6 (Dec), 704.

Studies on self-pumped phase conjugation in Cu-doped KNSBN crystals

LÜ XINLIANG, YUE XUEFENG, SONG YONGYUAN, SUN DALIANG, JIANG QUANZHONG,
SHAO ZHNGSHU AND CHEN HUANCHU

(Institute of Crystal Materials, Shandong University, Jinan 250100)

(Received 5 April 1991; revised 7 June 1991)

Abstract

The use of Cu-doped $(\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{0.2}(\text{Sr}_{0.75}\text{Ba}_{0.25})_{0.9}\text{Nb}_2\text{O}_6$ as self pumped phase conjugators with internal reflection is reported. The reflectivities as high as 63% at 514.5 nm and 60% at 632.8 nm were realized. It was found that the photorefractive response changes significantly at different doping concentration. The responses of the crystals to the laser wavelength, incident angle and dopant concentration were studied.

Key words: photorefractive effect, KNSBN crystal, self-pumped phase conjugation,