

铟掺杂对 Fe:LiNbO₃ 晶体近红外光折变性能的影响

陈宝东¹ 温 静²

(¹ 内蒙古工业大学材料科学与工程学院, 内蒙古 呼和浩特 010051)
(² 内蒙古化工职业学院继续教育部, 内蒙古 呼和浩特 010010)

摘要 采用在 Fe:LiNbO₃ 中掺入了铟离子生长的双掺杂 In:Fe:LiNbO₃ 晶体, 以波长为 1064 nm 的近红外会聚光束作为记录光源, 通过数字观测装置, 对比研究了铟离子掺入前后 Fe:LiNbO₃ 晶体和 In:Fe:LiNbO₃ 晶体的光折变性能。实验研究结果表明, 铟离子掺入后晶体的光折变响应速度和抗光折变能力明显提高, 饱和折射率变化量降低。初步分析认为, In:Fe:LiNbO₃ 晶体光折变性能的增强是由于掺入的铟离子取代了部分光折变敏感中心, 降低了光敏中心的数量, 导致晶体光电导增大, 响应时间随之缩短。

关键词 非线性光学; 铟掺杂; Fe:LiNbO₃ 晶体; 近红外光; 光折变性能

中图分类号 O437 **文献标识码** A **doi:** 10.3788/AOS201232.0119001

Action of Indium Doping on Near Infrared Photorefractive Properties of Fe:LiNbO₃ Crystal

Chen Baodong¹ Wen Jing²

¹ School of Materials Science and Engineering, Inner Mongolia University of Technology, Hohhot, Inner Mongolia 010051, China

² Department of Continuing Education of Inner Mongolia Chemical Engineering Professional College, Hohhot, Inner Mongolia 010010, China

Abstract In:Fe:LiNbO₃ crystals have been grown by doping indium ions in Fe:LiNbO₃ crystals. Experimental demonstrations are performed by recording in Fe:LiNbO₃ and In:Fe:LiNbO₃ crystals with a focused near infrared laser beam of 1064 nm wavelength. The near infrared photorefractive properties of Fe:LiNbO₃ and In:Fe:LiNbO₃ crystals are comparatively studied by the digital observation device. The experimental research results show that the photorefractive response and the photorefractive resistance ability are improved highly, and the saturation refractive index change Δn decreases in the In:Fe:LiNbO₃ crystal. The enhancement mechanism of photorefractive properties is preliminary discussed in In:Fe:LiNbO₃ crystals. The modification of indium ions substitutes the sites of light sensitive centers in the In:Fe:LiNbO₃ crystal, and the number of light sensitive centers is decreased rapidly. It also induces the improvement of photoconductive property and cut the response time.

Key words nonlinear optics; indium doping; Fe:LiNbO₃ crystal; near infrared; photorefractive properties

OCIS codes 190.4400; 090.1995; 090.2880

1 引 言

光折变材料作为理想的全息记录材料在光存储、光信息处理和光子器件等领域具有潜在的应用价值, 近年来吸引了国内外研究者的广泛兴趣^[1~4]。Fe:LiNbO₃ 晶体记录保存时间长, 指数增益系数和衍射效率大, 具有优良的电光特性和光学非线性, 成

为目前最重要的光折变材料之一^[5~7]。由于其响应速度、抗光折变能力、近红外光折变效应等光折变性能较弱, 已不能满足飞速发展的光学应用领域的需要。尤其是光折变感应波长范围不断扩大, 大于 1000 nm 的近红外光辐照下光折变性能进一步降低, 因此, 对响应速度、记录光波长范围等参数的研

收稿日期: 2011-06-06; 收到修改稿日期: 2011-07-09

基金项目: 内蒙古工业大学科学研究项目(ZS201025)资助课题。

作者简介: 陈宝东(1981—), 男, 硕士, 讲师, 主要从事光折变非线性光学方面的研究。E-mail: baodongchen@yahoo.cn

究成为需解决的问题之一。近年来已有许多光折变参数的研究报道^[8~14],2004年杨立森等^[8]研究了快速响应的光致折射率变化,2006年Beyer等^[9]采用260 GW/cm²高光强研究了Fe:LiNbO₃晶体的光折变效应,2008年付博等^[10]研究了掺杂对铌酸锂晶体非挥发全息存储性能的影响。本文采用了在Fe:LiNbO₃晶体中掺入铟离子生长的In:Fe:LiNbO₃晶体,以波长为1064 nm的YAG近红外固体激光器作为记录光源,通过数字观测装置,对比研究了Fe:LiNbO₃和In:Fe:LiNbO₃晶体的响应速度、抗光折变能力和饱和折射率变化等光折变性能,讨论了铟掺杂对晶体光折变性能的影响及其形成机理,研究结果对双掺杂In:Fe:LiNbO₃晶体的制备及提高其光折变性能和应用范围具有一定意义。

2 实验方法

光折变性能数字观测实验装置示意图如图1所示。YAG近红外固体激光器($\lambda=1064\text{ nm}$)作为记录光源,激光束光强呈高斯分布,中心最大光强值约90 mW/cm²。记录光路中,近红外细激光束经偏振器P1、快门S'和凸透镜L1聚焦后,经分束器BS辐照在光折变晶体上并垂直透过晶体,再经透镜L2成像后,由CCD观测屏实时采集图像信息。实验装置中读出光源采用He-Ne激光器($\lambda=632.8\text{ nm}$),读出光路如图1中虚线框内所示。读出光经偏振器P、快门S、反射镜M和倒置望远镜T,通过BS读出晶体中被记录光辐照后的区域,实时观测晶体光致折射率变化情况。读出光强要求足够小,能够起到照射的效果即可,以免擦除已形成的折射率变化或带来干扰。读出光源经以上光学元件衰减后,进行扩束和准直,到达晶体前表面的光强能够满足要求。快门S,S'控制读出和记录光路的通断,记录时,断开S闭合S';读出时,断开S'闭合S。实验样品采用双掺杂的In:Fe:LiNbO₃晶体样品,晶体参数如表1所示。

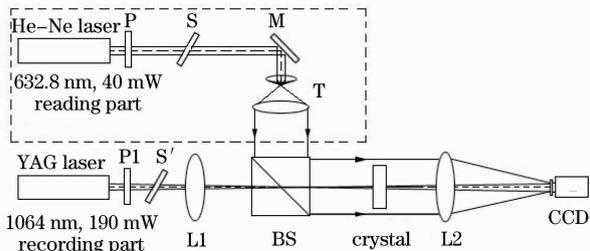


图1 数字观测实验装置

Fig. 1 Experimental setup of the digital observation

表1 不同In含量的In:Fe:LiNbO₃晶体参数表

Table 1 Essential parameters of In:Fe:LiNbO₃ crystals with different ratios of In

Number	Crystal	Atomic	Mass	Thickness / mm
		fraction of In / %	fraction of Fe / %	
S1	Fe:LiNbO ₃	0	0.03	4
S2	In:Fe:LiNbO ₃	2	0.03	4

将样品逐一放入装置中指定位置,开启CCD并通过计算机显示屏实时观测画面。调节P,P1,使记录光、读出光偏振态为正常偏振光(o光,记录光偏振态垂直于晶体c轴方向)。保持记录光功率密度恒定,延长记录时间,由于光折变效应透射光斑会由初始圆形斑沿晶体c轴慢慢拉长发生光感应散射,此时记录时间定义为光折变感应时间。随着晶体内部光感应散射逐渐增强,透射光斑发生畸变并分裂,所需时间定义为响应时间。畸变达到最大后,变化不太明显时光辐照达到饱和,此时记录时间定义为光辐照饱和时间,对应折射率变化为饱和折射率变化量。

3 结果与讨论

3.1 辐照区域投影

记录光垂直辐照在样品前表面,由于光折变效应晶体中辐照区域的光强分布随记录时间增加而发生变化。分别对样品S1,S2进行实验,逐渐延长记录时间,实验结果如投影图2,3所示。初始阶段辐照区域光强分布呈圆形光斑,随记录时间延长光斑沿晶体c轴慢慢拉长并发生分裂,时间延长分裂现象逐渐明显,辐照区域光强沿晶体c轴方向完全分

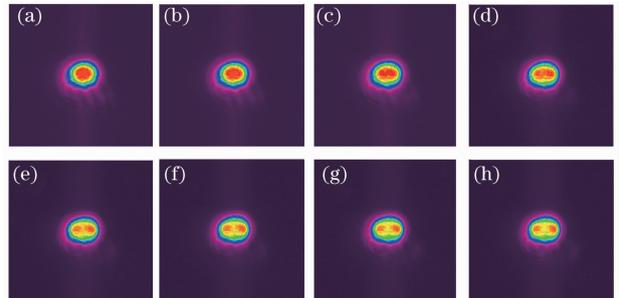


图2 不同记录时间样品S1辐照区域投影实验结果。

(a)~(h)记录时间为0, 45, 87, 129, 168, 207, 243, 284 min

Fig. 2 Experimental results of regional projection of the sample S1 irradiated with different recording time.

(a)~(h) Recording time of 0, 45, 87, 129, 168,

207, 243 and 284 min

裂后,继续延长记录时间,辐照区域光强投影图不再发生变化,如图 2,3 中(h)所示,此时样品 S1,S2 光辐照达到饱和。样品 S1,S2 不同之处在于发生光感应散射到光辐照饱和所需要的感应时间、响应时间和饱和时间不同,掺入钢离子的 S2 相对于 S1 各时间参数相应缩短,测量结果如表 2 所示。

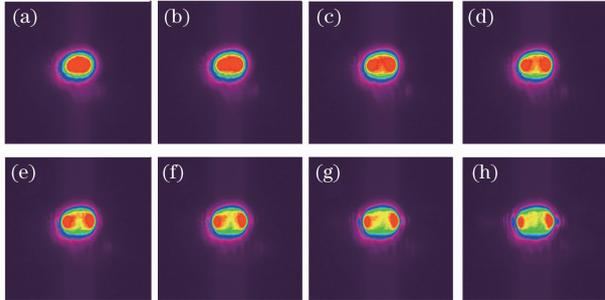


图 3 不同记录时间样品 S2 辐照区域投影实验结果。(a)~(h)记录时间为 0, 20, 35, 61, 92, 121, 157, 193 min
Fig. 3 Experimental results of regional projection of the sample S2 irradiated with different recording time.
(a)~(h) Recording time of 0, 20, 35, 61, 92, 121, 157 and 193 min

表 2 样品不同记录时间参数表

Table 2 Essential parameters of the samples with different recording time

Number	Sensitive time /min	Response time /min	Saturation time /min
S1	87	129	284
S2	35	61	193

3.2 透射光强

记录光透过样品后,光强透过率分布随记录时间变化如图 4 所示。S1,S2 辐照初始光强呈高斯分布[图 4(a)],图 4(b),(c)分别为 S1,S2 辐照达到饱和时光强透过率分布,图 4(d)为记录光透过样品后透射率随记录时间变化的实测曲线。高斯分布光源透过样品后,随着记录时间增加,辐照区域中心光强逐渐减弱,辐照饱和时光强达到最小值;辐照区域边缘沿 *c* 轴方向光强拉长并增强。

3.3 光致折射率变化

样品 S1,S2 分别经记录光辐照达到饱和后,读出的饱和折射率变化如图 5,6 所示。两图中(a)表示晶体辐照前,折射率尚未发生变化时读出的投影图;(b),(c)为辐照饱和时样品辐照区域饱和折射率变化量 Δn 的二维、三维空间分布情况。图 5,6 可以看出,样品 S1,S2 辐照区域中央读出光强低于其他区域(包括记录光未辐照区域),表明辐照区域中央折射率大幅度下降。在辐照区域中央左右沿 *c* 轴

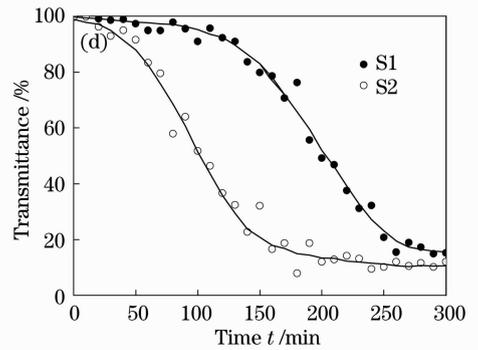
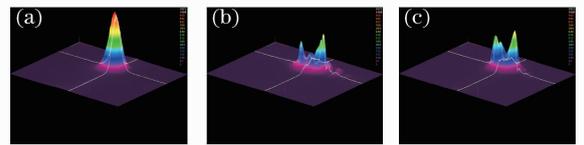


图 4 记录光透射率随记录时间变化的实测结果。(a), (b), (c)记录时间是 0, 284, 193 min; (d) S1,S2 透射率实测曲线

Fig. 4 Measured transmittance results of the recording light variation with different recording time of (a) 0, (b) 284 min and (c) 193 min; (d) S1, S2 measured transmittance curves

方向可以看出,读出光强明显高于其它区域,表明辐照区域边缘沿 *c* 轴方向折射率升高,且升高的幅度较大。

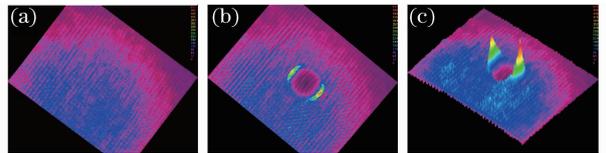


图 5 近红外光辐照后样品 S1 的光致折射率剖面图
Fig. 5 Refractive index change (Δn) profile of the sample S1 illuminated by near infrared light

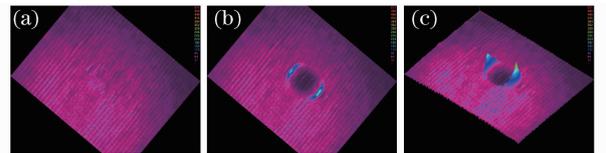


图 6 近红外光辐照后样品 S2 的光致折射率剖面图
Fig. 6 Refractive index change (Δn) profile of the sample S2 illuminated by near infrared light

采用马赫-曾德尔干涉光路^[15,16],测量了样品辐照区域饱和折射率变化。利用 CCD 记录下样品辐照前后的像面干涉图样,辐照前马赫-曾德尔干涉图样是一组明暗相间的平行直条纹,辐照后由于辐照区域折射率发生变化,平行直条纹发生了规律性弯曲。根据切片干涉法原理,已知样品的厚度 *l* 和测量光源波长 λ (532 nm),通过测量干涉条纹间距 *d*

和条纹的变化量 $s(r)$, 可由式 $\Delta n = \lambda s(r)/dl$, 得到样品饱和和折射率变化量 Δn 分布规律。测量结果如图 7 所示。

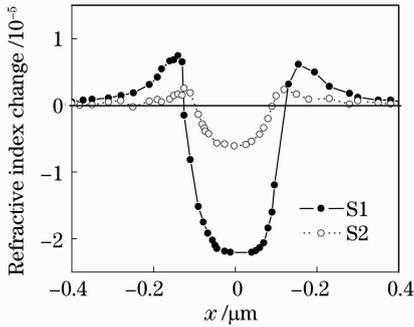


图 7 样品近红外光辐照区域饱和和折射率变化量实测曲线

Fig. 7 Measured curves of the saturation refractive index changes Δn of the samples' irradiated region with near infrared light

图 7 展示了记录光辐照达到饱和时根据实测数据得到的 Δn 剖面分布曲线, 实线、虚线分别表示 S1, S2 辐照区域饱和和折射率分布曲线。图中两个 Δn 剖面图都显示辐照区域折射率存在最大值和最小值, 曲线的最高点 Δn_{\max} 大于零, 最低点 Δn_{\min} 小于零, 这样看来两条曲线形状类似, 即辐照中央折射率大幅度下降, 沿 c 轴方向折射率明显升高。实验结果显示, Δn 实测结果同图 5(c) 和图 6(c) 分布规律相符; S1, S2 折射率升高的幅度 Δn_{\max} 约是降低的幅度 Δn_{\min} 的 1/3; 测得 S1, S2 的折射率整体变化最大幅度 ($\Delta n = \Delta n_{\max} + |\Delta n_{\min}|$) 约为 3.1×10^{-5} 和 0.9×10^{-5} , 通过比较可知, 近红外光辐照后 S1 饱和和折射率整体变化量高于 S2。

3.4 形成机理

研究结果显示, 通过对样品 S1, S2 的光辐照区域、透射光强及饱和和折射率变化的实验研究, Fe:LiNbO₃ 晶体掺入铟离子后响应速度明显提高, 如图 2, 3 所示。同激光功率密度辐照下, 掺入铟离子有助于提高 Fe:LiNbO₃ 晶体的抗光折变性能, In:Fe:LiNbO₃ 晶体的抗光折变能力明显高于未掺杂的同成分 Fe:LiNbO₃ 晶体, 如图 5, 6 所示。

在记录光辐照下光折变晶体中施主放出电子, 受主接受电子参与光折变效应电荷由禁带到导带的运输过程。Fe:LiNbO₃ 晶体中, 光敏杂质 Fe 在晶体中以 Fe²⁺ (施主) 和 Fe³⁺ (受主) 形式存在。在反位铈电荷运输过程基础上, Fe 杂质进一步参与了电荷运输过程, 形成两个光折变敏感中心, 增强了晶体的

光折变灵敏度。Fe:LiNbO₃ 晶体掺入铟杂质生长成 In:Fe:LiNbO₃ 晶体后, 使晶体光电导增大, 导致抗光折变能力提高。其原因在于铟杂质不参与光折变效应电荷运输过程, 并取代了光折变敏感中心, 使 In:Fe:LiNbO₃ 晶体中光折变敏感中心的数量大大降低, 造成了光电导增大。由于光电导同光折变响应时间成反比例变化关系, 当光电导增大时, 响应时间随之减小, 响应速度得到提高, 因此, 双掺杂的 In:Fe:LiNbO₃ 晶体响应速度、抗光折变等光折变性能得到了改善。

4 结 论

在功率为毫瓦级的近红外光辐照下, 保持记录光功率密度不变且逐渐延长记录时间, 通过数字观测装置对比研究了 Fe:LiNbO₃ 和 In:Fe:LiNbO₃ 晶体的光折变性能。研究结果显示, 相对于 Fe:LiNbO₃ 晶体, 掺入铟离子的 In:Fe:LiNbO₃ 晶体感应时间、响应时间及饱和时间明显缩短, 饱和和折射率变化量降低。铟杂质的掺入增强了 Fe:LiNbO₃ 晶体的光电导, 改善了晶体响应速度慢和抗光折变能力低的缺点, 有效地提高了其光折变性能, 可使 In:Fe:LiNbO₃ 晶体成为优良的光学存储材料。

参 考 文 献

- 1 E. Trias, J. J. Mazo, T. P. Orlando. Discrete breathers in nonlinear lattices: experimental detection in Josephson junctions [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2000, **84**(4): 741~744
- 2 S. F. Mingaleev, Y. S. Kivshar. Self-trapping and stable localized modes in nonlinear photonic crystals [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2001, **86**(24): 5474~5477
- 3 D. N. Christodoulides, E. D. Eugenieva. Blocking and routing discrete solitons in two-dimensional networks of nonlinear waveguide arrays [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2001, **87**(23): 233901
- 4 J. W. Fleischer, T. Carmon, M. Segev *et al.*. Observation of discrete solitons in optically-induced real-time waveguide arrays [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2003, **90**(2): 023902
- 5 Nan Zhu, Zhaohong Liu, Ru Guo *et al.*. A method of easy fabrication of 2D light-induced nonlinear photonic lattices in self-defocusing LiNbO₃:Fe crystal [J]. *Opt. Mater.*, 2007, **30**(4): 527~531
- 6 O. Matoba, T. Inujima, T. Shimura *et al.*. Segmented photorefractive waveguides in LiNbO₃:Fe [J]. *J. Opt. Soc. Am. A*, 1998, **15**(7): 2006~2012
- 7 Zhang Peng, Zhao Jianlin, Yang Dexing *et al.*. Analyses of guiding properties of light-induced planar waveguides in LiNbO₃:Fe crystals [J]. *Acta Physica Sinica*, 2004, **53**(10): 3369~3374
- 8 张 鹏, 赵建林, 杨德兴 等. LiNbO₃:Fe 晶体中光写入平面光波导的导光特性研究 [J]. *物理学报*, 2004, **53**(10): 3369~3374
- 9 Yang Lisen, Liu Simin, Zhang Gangyin *et al.*. Experimental study of a faster responsive effect of light induced refractive index change [J]. *Acta Physica Sinica*, 2004, **53**(2): 461~467
- 10 杨立森, 刘思敏, 张光寅 等. 快速响应的光致折射率改变效应的实验研究 [J]. *物理学报*, 2004, **53**(2): 461~467

- 9 O. Beyer, I. Breunig, F. Kalkum *et al.*. Photorefractive effect in iron-doped lithium niobate crystals induced by femtosecond pulses of 1.5 μm wavelength[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2006, **88**(5): 051120
- 10 Fu Bo, Zhang Guoquan, Liu Xiangming *et al.*. Influence of dopants on nonvolatile holographic storage in lithium niobate[J]. *Acta Physica Sinica*, 2008, **57**(5): 2946~2951
付博, 张国权, 刘祥明等. 掺杂对铌酸锂晶体非挥发全息存储性能的影响[J]. *物理学报*, 2008, **57**(5): 2946~2951
- 11 Chai Zhifang, Liu Dean, Zhi Yanan *et al.*. Photorefractive characteristics investigation in LiNbO₃:Ru crystals[J]. *Acta Optica Sinica*, 2006, **26**(8): 1245~1249
柴志方, 刘德安, 职亚楠等. LiNbO₃:Ru 晶体的光折变特性研究[J]. *光学学报*, 2006, **26**(8): 1245~1249
- 12 Dai Cuixia, Liu Liren, Liu Dean *et al.*. Improvement of sensitivity and refractive index changes in holographic recording in doubly doped LiNbO₃ with UV light[J]. *Acta Optica Sinica*, 2005, **25**(12): 1600~1605
戴翠霞, 刘立人, 刘德安等. 采用紫外光提高双掺杂铌酸锂晶体中全息记录的灵敏度和光栅强度[J]. *光学学报*, 2005, **25**(12): 1600~1605
- 13 Hou Peipei, Zhi Yanan, Sun Jianfeng *et al.*. Influence of polarization state on laser-induced domain nucleation in doped lithium niobate[J]. *Acta Optica Sinica*, 2011, **31**(2): 0216004
侯培培, 职亚楠, 孙建锋等. 诱导光偏振态对激光诱导掺杂铌酸锂晶体畴反转的影响[J]. *光学学报*, 2011, **31**(2): 0216004
- 14 Su Shida, Wan Lingyu, Zhou Yu *et al.*. Transversal electro-optic effect of light propagating in arbitrary direction in LiNbO₃[J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, **30**(10): 2972~2977
苏世达, 万玲玉, 周煜等. 任意传播方向下铌酸锂晶体的横向电光效应研究[J]. *光学学报*, 2010, **30**(10): 2972~2977
- 15 K. Peithmann, A. Wiebrock, K. Buse *et al.*. Low-spatial-frequency refractive-index changes in iron-doped lithium niobate crystals upon illumination with a focused continuous-wave laser beam[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2000, **17**(4): 586~592
- 16 Yang Dexing, Zhao Jianlin, Zhang Peng *et al.*. The index changes of waveguides fabricated by light irradiation in LiNbO₃:Fe crystals[J]. *Acta Physica Sinica*, 2003, **52**(5): 1179~1183
杨德兴, 赵建林, 张鹏等. LiNbO₃:Fe 晶体中光写入波导时折射率的变化规律[J]. *物理学报*, 2003, **52**(5): 1179~1183

栏目编辑: 韩峰