

LiNbO₃:Fe,M(M=Mg²⁺,Zn²⁺,In³⁺,Sc³⁺) 晶体中的信号光与噪声光的竞争*

张国权 张光寅 刘思敏 许京军 张心正 孙 骞 温海东

摘要 分析了掺杂铌酸锂晶体的扇形噪声光的形成机制,讨论了信号光与扇形噪声光之间的光放大竞争问题,结果显示:由于信号光与扇形噪声之间光放大竞争,对于信号光的放大而言,存在一个最佳入射泵浦光光强,使得信号光具有最大的放大倍数,同时噪声很弱.

*#词 光放大, 影频壁, 光斯变. 品体 信号光 噪影光

铌酸锂作为集成光学、非线性光学及光子器件的基础材料,具有重要的实用价值.光折 变三维体全息存储是它的重要应用之一,但目前仍有许多问题尚未解决,噪声问题便是亟待 解决的问题之一.铌酸锂晶体的光折变性能可以通过调节掺入的杂质离子的种类和浓度得 到改变和优化.目前已经在双掺铌酸锂晶体(LiNbO3:Fe,M(M=Mg²⁺,Zn²⁺,In³⁺,Sc³⁺)) 中发现了一些对三维光折变体全息存储应用极为有利的效应,如光扇光强阈值效应^[1].利用 该效应已经在双掺铌酸锂晶体中实现了高衍射效率、高清晰度、快响应全息图像存储.本文 将讨论双掺铌酸锂晶体中信号光与噪声光之间的光放大竞争问题,这对于抑制光折变器件 中的噪声将是重要的.

1 掺杂铌酸锂晶体的噪声形成机制

由于强光生伏特电场的存在,掺杂铌酸锂晶体具有极强的对称扇形噪声(fanning noise),这种噪声在光折变存储应用中极为有害,因而必须首先去除.

我们认为掺杂铌酸锂晶体中的光放大现象实际上是通过多波耦合实现的,对称扇形噪 声是基于多对三波耦合机制^[2,3].当异常偏振的泵浦光 I,垂直于晶体的 C 轴入射,并沿 y 方 向传播时,根据多对三波耦合模型,铌酸锂晶体的对称扇形噪声可用下列方程描述:

$$\frac{\partial \Psi_i}{\partial x} = \frac{2\sigma_i L}{I_g} (2I_i \cos\theta_i - I_p) (1 + \cos\Psi_i) + \delta k_i L, \qquad (1)$$

$$\frac{\partial I_{\star}}{\partial x} = -2\sigma_{\star}L \frac{I_{\star}I_{\star}}{I_{0}} \sin\Psi_{\star}, \qquad (2)$$

■国家自然科学基金(编号 69678018 和 19734004)和 863 计划(编号 863-715-001-0102) 资助项目 稿件收到日期 1998-09-30,修改稿收到日期 1999-02-08

$$\frac{\partial I_{\rho}}{\partial x} = 4 \frac{I_{\rho}}{I_0} L_{r=1}^{m} \sigma_r \cos\theta', I_r \sin\Psi_r, \qquad (3)$$

$$I_{u} = I_{p} + 2\sum_{i=1}^{m} I_{i}.$$
 (4)

其中 0 $\leqslant x = y/L \leqslant 1$; L 为晶体的厚度; θ' , 为第 i 束噪声光 I, 与入射泵浦光 I, 之间在晶体内 的夹角; $\delta k_i = \xi 4\pi (n_e - n_e \cos \theta',)/\lambda$ 是相位失配参数; ξ 是用于描述晶体自散焦效应强弱的参数, ξ 值越小,表示晶体的自散焦效应越强, 当 ξ 等于 1 时,表示不考虑晶体的自散焦效应, 在本文中除非特别声明, ξ 都取为 0.15; n_e, n_0, n_i 分别是掺杂铌酸锂晶体的异常折射率、寻常 折射率及第 i 束噪声光所在方向的异常折射率; $\Psi_i(z) = 2g_i(z) - g_i(z) - g_{in}(z) + \delta k_i z,$ $g_i(z), g_i(z)$ 和 $g_{ost}(z)$ 分别是入射泵浦光、第 i 束噪声光及与第 i 束噪声光相对于 I, 对称分 布的噪声光的位相; σ_i 是耦合系数 7, 的虚部,其中

$$\gamma_{i} = j \frac{\omega_{2} n_{0} \delta n_{i}}{2k c^{2} \cos \theta'} \exp(-j\varphi_{i}).$$
(5)

这里 j是纯虚数单位, δn ,是由 I_{ρ} 和第 i 束噪声光引起的折射率变化, $k=2\pi n_{o}/\lambda$ 和 c是光在 晶体中的波矢和真空光速.在掺杂铌酸锂晶体中,一般情况下光折变光栅与相对应的光强分 布之间的相位移 $g_{i}=\pi^{[4]}$ 满足 $E_{q} \ge E_{\mu} \ge E_{a}$ 的条件, E_{q} 、 E_{μ} 和 E_{a} 分别是晶体的极限空间电荷 场、沿晶体 C轴的光生伏特电场和扩散电场.这里我们忽略了晶体的吸收,并只局限于讨论 两维情况.

$$\delta n_{t} = -\frac{n_{0}^{3} r_{eff} E_{\kappa}}{2} \approx -\frac{n_{0}^{3} r_{eff} E'_{ph}}{2} = -\frac{n_{0}^{2} r_{eff} E_{ph} \cos{(\theta'_{t}/2)}}{2}.$$
 (6)

其中 range为有效电光系数,可表示为

$$r_{eff} = -\frac{r_{33}n_e^4\cos\theta', \cos(\theta', 2) + n_e^2n_0^2r_{51}\sin\theta', \sin(\theta', 2)}{n_0^3n_e}.$$
 (7)

图 1 是用上述模型计算得到的对称扇形噪声光的角分布图(仅一例).其中曲线 1 是当 $E_{th}=1.0 \times 10^7 V/m, \xi=0.15$ 时的结果,全部噪声都集中在[$-20^\circ, 20^\circ$]之间,与实际的扇形 噪声的角分布符合得相当好;曲线 2 是 $E_{ph}=1.0 \times 10^7 V/m, \xi=1.0$ 时的结果.可以看到,当 $\xi 变大而 E_{ph}不变时,噪声光强分布的最强处向小角度方向移动,而且角分布变窄;曲线 3 是$ $<math>E_{ph}=1.0 \times 10^7 V/m, \xi=0.15$ 时的结果,它表明当 E_{ph} 变大而 ξ 不变时,噪声光强的最强处向 大角度方面移动,而且角分布变宽,表1列出了我们在计算图 1 时使用的其它参数.

2 信号光与噪声光之间的光放大竞争

当利用铌酸锂晶体进行光放大时,信号光与噪声光之间由于光放大机制相同而存在强 烈的竞争,当异常偏振的泵浦光 I,垂直于晶体 C 轴入射,异常偏振的信号光 I,与泵浦光成 θ,角(在空气中)斜入射,并在晶体中与 I,相互作用时,考虑信号光噪声之间的光放大竞争, 我们可以用方程(8)~(11)来描述泵浦光 I,、信号光 I,及噪声光 I,在晶体中的变化情况:

$$\frac{\partial \Psi_{r(s)}}{\partial x} = \frac{2L\sigma_{r(s)}}{I_0} (2I_{r(s)}\cos\theta_{r(s)} - I_p)(1 + \cos\Psi_{r(s)}) + \delta k_{r(s)}L, \qquad (8)$$

$$\frac{\partial I_{i(i)}}{\partial x} = - 2\sigma_{i(i)}L \frac{I_p I_{i(i)}}{I_0} \sin \Psi_{i(i)}, \qquad (9)$$

$$\frac{\partial I_{\rho}}{\partial x} = 4 \frac{I_{\rho}}{I_{0}} L \left[\sum_{i=1}^{m} \sigma_{i} \cos \theta_{i} - I_{i} \sin \Psi_{i} + \sigma_{i} \cos \theta_{i} I_{i} \sin \Psi_{i} \right], \qquad (10)$$

$$I_{0} = I_{p} + 2\sum_{r=1}^{\infty} I_{r} + 2I_{r} - I_{r}(0).$$
(11)

这里下标"i"表示所有与噪声光有关的物理量,下标"s"表示所有与信号光相关的物理量,如 计算与信号光相关的有效电光系数 r_{-//2}与耦合系数 Y,时,只要将式(5)~(7)中的下标"i"换 成"s"即可.





Fig. 1 The calculated angular distribution of fanning noise (one side) (the angle θ is the angle in air $\varphi = \pi$, $\psi_i(0) = 0$ and $I_i(0)/I_i(0)$ = 1. 0×10^{-6} , respectively, other parameters are listed in Table 1)





Fig. 2 The calculated angular dependence of the signal beam gain G and the ratio R vs signal incident angle θ_s in air

为了讨论方便起见,这里定义一个参数 R 表示噪声光 I_i 的总和与入射总光强 I_0 之比,即 $R = 2\sum_{i=1}^{n} \frac{I_i}{I_0} \times 100\%.$ (12)

图 2 是用方程(8)~(11)计算所得,在 ξ =0.15、I,(0)/I,(0)=1.0×10⁻⁴、I,(0)/I,(0) =1.0×10⁻⁶、 $E_{\mu\nu}$ =1.0×10²V/m时,信号光放大倍数 G(G=I,(L)/I,(0))的角分布及对应 角度下的 R 值. 从图 2 可以看到,信号光的放大与噪声光的放大之间存在着强烈的竞争,当 信号光得到很高的放大时,对应的总噪声强度就大大下降.这里必须注意到,对于信号光的 放大而言,初始位相 $\Psi_{r}(0) = -\pi/2^{[6]}$,对所有的噪声光而言,初始位相都是 $\Psi_{r}(0) = 0^{[2]}$.图 3 是在考虑到噪声光与信号光之间的竞争,在 $\xi = 0.15$, $I_{r}(0)/I_{\rho}(0) = 1.0 \times 10^{-6}$, $I_{r}(0)/I_{\rho}(0)$ =1.0×10⁻⁴,信号光入射角度 $\theta'_{r}=2.5^{\circ}$ (晶体内)时,信号光的放大倍数 G 随晶体光生伏特 场 E_{μ} 的变化,图中还同时表示出了 G 与 R 随 E_{μ} 的变化情况.从图 3 可以看到,R 随 E_{μ} 的 增加而单调上升,但对于信号光的放大来说,却存在着一个最佳光生伏特场,此时信号光的 放大倍数最大,同时噪声却很弱.这表明只要通过一定的手段将铌酸锂晶体的光生伏特场调 节到适当的值,就可以大大地改善晶体的光放大信噪比.计算图 2 和 3 时所用到的参数除文 中说明以外,均已列于表 1.

Table 1 Part of the parameters used to calculate the curves in Figs 1.2.3 and 4						
71.e	សក្	$r_{\rm il}({\rm m/V})$	r33(m/V)	λ/(nm)	¥,(0)	
2. 2	2.286	28. 0×10 ⁻¹²	30-8 <10 ^{−12}	632- 8	0	
Ψ ,(0)	m	$I_I(0)/I_p(0)$	$I_{t}(0)/I_{s}(0)$	L(mm)	위 い)	
$-\pi/2$	40	1.0×10-6	1.0×10-4	1,0		

表1 计算图 1、2、3 和4 使用的部分参数





Fig. 3 The calculated signal beam gain G and the corresponding ratio R vs photovoltaic field $E_{\mu\nu}$ at fixed incident signal angle θ , in crystal



图 4 考虑信号光与扇形噪声光的光放大及竞争 时,理论计算的双掺铌酸锂晶体的固定角度下G 与 R 随入射泵浦光光强 I_s 的变化 Fig. 4 The calculated signal beam gain G and the corresponding ratio R vs pump intensity I_s(0) at fixed incident signal angle θ , in crystal

3 双掺铌酸锂晶体中信号光放大的最佳泵浦光强

从图 3 我们可以看到, 铌酸锂晶体的光折变性能并不是光生伏特场越强越好, 适当降低 晶体的光生伏特场将有助于提高晶体的综合光折变性能. 一般掺铁铌酸锂晶体的光生伏特 场容易达到 10² V/m 的数量级,此时扇形噪声特别强,可消耗 90%以上的泵浦光能量,当在 掺铁铌酸锂晶体中掺入低于阈值浓度的抗光折变杂质离子,如 Mg²⁺,Zn²⁺,In³⁺和 Sc³⁺等 时,晶体的扇形噪声将大大下降,并且扇形噪声只有当入射泵浦光光强于一定值时才出 现^[1].

我们知道,在 LiNbO₃: Fe,M 晶体中,当 M 的掺杂浓度远低于它的阈值浓度时,绝大 多数的 M 离子和 Fe 离子将占据 Li 位而形成缺陷格点 M_L和 Fe_L. 随着 M 掺杂浓度的增 加,部分 Fe 离子受到 M 离子的排挤而占据 Nb 位并形成 Fe_{Nb},这可由 LiNbO₃: Fe,M 晶体 的 OH⁻ 的红外吸收峰的移动^[7]直观地看到;当 M 离子的掺杂浓度进一步增加而达到或超 过其阈值浓度时,一部分 M 离子和绝大多数 Fe 离子将进入 Nb 位而形成 M_{Nb}和 Fe_{Nb}. 研究 表明,当 M 离子的掺杂浓度超过其阈值浓度时,晶体的光折变效应比不掺 M 离子的光折变 效应将大大减弱,这意味着晶体中 Fe_{Nb}³⁺/Fe_{Nb}²⁺杂质中心的性质不同于 Fe_L³⁺/Fe_L²⁺杂质 中心的性质. 由于抗光折变杂质离子本身并不参与光折变效应的电荷输运过程,因此,当考 虑 LiNbO₃: Fe,M 晶体的电荷输运过程时,应当将 Fe_{Nb}³⁺/Fe_{Nb}²⁺和 Fe_L³⁺/Fe_L²⁺杂质 也应当将它们考虑进模型之中,但是它的作用只有在极高的光强下才显现出来^[8],而在这里 只考虑晶体在低光强端的效应,为简单起见,这里并没有将它们归入我们的模型). 假定电子 是 LiNbO₃: Fe,M 晶体中唯一的载流子,那么利用单载流子双光折变杂质中心模型就可以 解释双掺铌酸锂晶体的光扇光强阈值效应^[9].

C(m ⁻³)	氧化还原状态 (N击/C1)	$\Gamma_1(m^3/s)$	$s_1 = s_2 (m^2/J)$	$\beta_{2}(s^{-1})$	
2.0×10^{24}	0.9	1-65 - 10-14	1-4×10-5	7.6×10^{-3}	
$\Gamma_2(m^3/s)$	$\mu(\mathbf{m}^{2}\mathbf{V}^{-1}\mathbf{s}^{-1})$	e(C)	K(m ³ /V)	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	
4-125 × 10 ⁻¹⁵	7.4×10 ⁻⁵	1-6 < 10 ⁻¹⁹	6.0 • 10-32	<u>a-m-4</u>	

表 2 计算图 4 使用的部分参数,包括描述 Felt /Felt 中心和 Felt /Felt 中心的参数 Table 2 Part of the parameters used to calculate the curves in Fig. 4, including some parameters describing the properties of defect centers Felt /Felt and Felt /Felt

实验表明^[10~12], 铌酸锂晶体经过双掺处理后, 一方面晶体的光生伏特场 E_{μ} 随着掺入的 抗光折变杂质离子 M 的浓度的增大而减小; 另一方面, 晶体的暗电导却随着掺入的抗光折 变杂质离子 M 的浓度的增大而增大, 我们认为, 上述两方面分别是由 Fe_{L}^{3+}/Fe_{L}^{2+} 杂质中 心的数密度的减少和该中心的热激发速率 β_{1} 的增大而引起的^[3]. 表 2 列出部分描述 $Fe_{L}^{3+}/$ Fe_{L}^{2+} 中心和 Fe_{N}^{3+}/Fe_{N}^{2+} 中心的参数, 将在下文的计算中用到, 其中 C 为总的杂质中心的 数密度, C_{1} 为 Fe_{L}^{3+}/Fe_{L}^{2+} 杂质中心的总数密度, N_{L}^{*} 为 Fe_{L}^{3+} 的数密度, $\Gamma_{s,s}$, 和 $\beta_{s}(i=1,2)$ 分别是 Fe_{L}^{3+}/Fe_{L}^{2+} 中心(下标为 1)和 Fe_{N}^{3+}/Fe_{N}^{2+} 中心(下标为 2)的电子复合率, 光激发 截面和热激发速率, $\mu_{s}e_{s}K$ 分别是电子在晶体中的迁移率、电子电量和高斯系数.

理论计算^[5]与实验研究^[1]表明,随着抗光折变杂离子 M 的浓度的增大,LiNbO₃: Fe,M

晶体的饱和光生伏特场 E_{ph}将减小,光扇光强阈值效应的阈值光强将增大,同时晶体光伏特场 E_{ph}随入射光强的增大而增大的趋势变缓,晶体的暗电导增大.由于 LiNbO₃: Fe,M 晶体的光生伏特场 E_{ph}随泵浦光光强的增强,先是逐渐增强,然后趋于饱和值,如参考文献[9]中的图 1(a)和图 2(b)所示,从图 3 可知,当考虑信号光和扇形噪声光之间的光放大竞争时,对于信号光放大而言,存在一个最佳的光生伏特场,使得信号光能得到最大的放大,并且扇形噪声不强.从这些结果可以联想到,在双掺铌酸锂晶体中,必定存在这么一个入射泵浦光光强,在一定条件下可使信号光得到最大的放大,而扇形噪声并不强.

图 4 是我们在 β_1 =8.0×10⁻³s⁻¹, C_1/C =0.9, $I_1(0)/I_p(0)$ =1.0×10⁻⁴, $I_n(0)/I_p(0)$ = 1.0×10⁻⁶, ξ =0.15, 信号光入射角度 θ_1 =2.5°时, 晶体的信号光放大倍数 G 随入射泵浦光 光强 I_n 的变化情况, 这里仍然没有将晶体的吸收考虑进去. 从图 4 可知, 确实存在着这样一 个最佳入射泵浦光光强, 使得信号光具有最大放大倍数, 图中还同时标出了对应 I_n 下的 R值, 它随 I_n 的增大单调增长. 双掺铌酸锂晶体的这种光放大性质使得我们能够实现对信号 光进行选择性放大, 我们最近已在实验上证实了双掺铌酸锂晶体的这一光放大特性.

REFERENCES

- 1 ZNANG Guang-Yin, XU Jing-Jun, LIU Si-Min, et al. Study of resistance against photorefractive light-induced scattering in LiNbO₃: Fe. Mg crystals, SPIE.1995.2529:14-17
- 2 ZHANG Guo-Quan, TIAN Guo-Yun, LIU Si-Min, et al. The noise amplification mechanism in LiNbO₃ : Fe crystal sheets, J. Opt. Soc. Am. B, 1997, 14: 2823-2830
- 3 ZHANG Guo-Quan, ZHANG Guang-Yin, LIU Si-Min, et al. Theoretical study of resistance against light-induced scattering in LiNbO₁: M(M=Mg²⁺, Zn²⁺, In³⁺, Sc³⁺) crystals, Opt. Lett., 1997, 22: 1666-1668
- 4 Jermann F. Buse K. Light-induced thermal gratings in LiNbO3 : Fe. Appl. Phys. B, 1994, 59:437-443
- 5 LIU Si-Min, XU Jing-Jun, WU Yuan-Qing, et al. Light climbing effect in LiNbO₃ + Fe crystals, Appl. Opt, 1994, 33, 997-999
- 6 AU L B, Solymar L. Amplification in photorefractive materials via higher order wave, Appl. Phys. B. 1998.45:125-128
- 7 WANG H. WEN J. LI B.et al. Infrared absorption study of OH in LiNbO₃ + Mg and LiNbO₃ + Mg. Fe crystals, Phys. Stat. Sol. (a), 1990, 118: K47-50
- 8 Jermann F, Ottern J. Light-induced charge transport in LiNbO₃ : Fe at high light intensities, J. Opt. Soc. Am. B, 1993, 10: 2085-2092
- 9 ZHANG Guo-Quan, ZHANG Guang-Yin, LIU Si-Min, et al. The threshold effect of incident light intensity for the photorefractive light-induced scattering in LiNbO₃ + Fe, M(M=Mg²⁺, Zn²⁺, In³⁺) crystals, J. Apply. Phys., 1998, 83: 4392-4396
- 10 Sommerfeldt R, Holtmann L, Kratzig E, et al. Influence of Mg doping and composition on the lightinduced charge transport in LiNbO₃, *Phys. Stat. Sol.* (a) ,1988,106,89-98
- 11 Koppitz], Shirmer F O, Wohlecke M. et al. Threshold effects in LiNbO₅ : Mg caused by change of electron-lattce coupling, *Ferroelectrics*, 1989, 92:233-241
- 12 Simon M. Jermann F. Volk T R. et al. Influence of zinc doping on the photorefractive properties of lithium niobate, *Phys. Stat. Sol.* (a), 1995. 149:723-732

ZHANG Guo-Quan ZHANG Guang-Yin LIU Si-Min XU Jing-Jun ZHANG Xin-Zheng SUN Qian WEN Hai-Dong (Institute of Photonics, College of Physical Science, Nankai University, Tianjin 300071, China)

Abstract The light amplification mechanism of fanning noise in doped lithium niobate crystals was analyzed and the light amplification competition between the signal beam and the fanning noise was discussed. Results show that, due to the light amplification competition between the signal beam and the fanning noise, there exists an optimum photovoltaic field in doped lithium niobate crystals and an optimum pump intensity for the light amplification of signal beam. With such optimum conditions, the signal beam can be amplified maximally while the fanning noise is very weak.

Key words light amplification, lithium niobate, photorefractive.

The project supported by the National Natural Science Foundation of China and the National Advanced Materials Committee of China (NAMOC) Received 1998-09-30, revised 1999-02-08