

# 对 Ce :BaTiO<sub>3</sub> 晶体两个各向异性 散射光锥的研究 \*

梁 洁<sup>1)</sup> 曾令祉<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup>(北京工业大学学报编辑部 北京 100022)

<sup>2)</sup>(北京工业大学研究生部 北京 100022)

(2001 年 12 月 20 日收到 2002 年 4 月 7 日收到修改稿)

对入射光沿 Ce :BaTiO<sub>3</sub> 晶体 - c 轴入射产生的两个各向异性散射光锥进行了报道. 给出了圆环 I 应满足的波矢匹配图, 而且入射面内圆环 I 的外部衍射角的实验值跟理论值基本一致. 通过对光路的观察, 对圆环 II 进行了解释, 分析同实验观测一致. 实验结果表明 Ce 的掺入使 BaTiO<sub>3</sub> 晶体的光折变性能得到了改善.

关键词: Ce :BaTiO<sub>3</sub> 晶体, 光折变效应, 各向异性散射光锥, 光感应光散射

PACC: 7820

## 1. 引言

自从光折变现象于 1966 年被观察到以来, 人们对这一新奇现象产生了极大兴趣, 进行了大量的研究工作. 众多的光折变晶体中, 人们对 BaTiO<sub>3</sub> 晶体特别感兴趣, 但未掺杂的 BaTiO<sub>3</sub> 晶体仍然存在着二波耦合响应速度不够快, 近红外波段光折变性能不理想、不稳定等缺点. 对 BaTiO<sub>3</sub> 晶体掺杂, 来改善其光折变性能和寻找新的光折变材料一直是国内外光折变材料研究工作者的一个重要研究课题. 中国科学院物理所在 1992 年用熔液顶部籽晶法成功生长出一种新的光折变晶体 Ce :BaTiO<sub>3</sub> 晶体. 近年来, 国内外对其进行了大量研究, 主要集中在吸收系数<sup>[1-3]</sup>、电光系数、二波耦合增益系数<sup>[1]</sup>、响应时间<sup>[1,4]</sup>及自抽运相位共轭波的产生<sup>[5-8]</sup>、反射率<sup>[9-11]</sup>、建立时间<sup>[3,6,9]</sup>等方面. 研究表明其光折变性能得到了很大的提高, 但对光感应光散射很少见报道. 作者对一块掺 Ce 量为  $43 \times 10^{-6}$  的 Ce :BaTiO<sub>3</sub> 晶体的光散射现象进行了全面的观察研究. 入射光沿 - c 轴入射时, 发现了两个各向异性散射光锥, 结合光路观察对其进行了解释.

## 2. 实验部分

### 2.1. 实验配置

实验用的晶体以富 TiO<sub>2</sub> 顶部籽晶法生长, 经单畴化, 定向, 切割成  $4.74\text{mm} \times 5.79\text{mm} \times 6.79\text{mm}$  的小块, 光轴沿 6.79mm 边. 实验使用的基本光路如图 1 所示.  $k_i$ ,  $k_s$  分别为入射光和散射光的波矢量;  $k_t$  为透射光的波矢量;  $\alpha$  定义为入射角(从法线开始, 逆时针方向为+, 顺时针为-); 晶体的光轴 c 的正方向如图 1 所示. 所用的直角坐标系 z 轴沿晶体光轴方向. 实验中先用一束经扩束的 o 偏振的激光照射晶体 20min, 以擦除晶体中原先存在的折射率相位栅, 再调整半波片, 使 e 偏振的激光以需要的功率入射到的 xy 面上.

### 2.2. 实验现象

图 2(a)(b) 是用 He-Ne 激光器(632.8nm)的 e 偏振光分别以小角和大角沿 - c 轴方向入射, 功率为 6mW, 得到的散射图样的照片. 通光片刻后, 在透射光接近 + c 轴一侧出现了一个各向同性扇形, 同

\* 北京市自然科学基金(批准号 2952008)资助的课题.

† liangjie820@sina.com

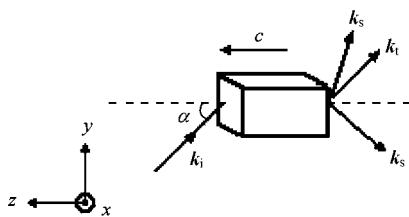


图 1 实验的几何配置图

时屏上出现一异性圆环 I ,此圆环随入射角变大而变大.当入射角等于 0 时没有圆环,入射角较小时,圆环 I 近似为圆,入射角较大时为椭圆.一定时间之后(同入射角有关),可明显发现晶体内逐渐形成一回路,如图 3 所示.正角入射,回路形成顺序按顺时针,负角入射,反之.回路出现同时,晶体变红,同性扇形中间部分光强开始减弱,然后两边部分也减弱,但一定时间后中间部分又开始变强.此时,在圆环 I 的外面逐渐出现另一异性圆环 II ,回路变模糊,只剩下一段圆弧清晰可见,在这段圆弧和透射光之间还能隐约看见两束扇形光,如图 4 所示.

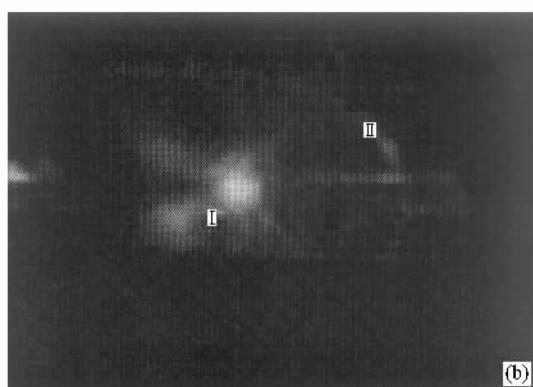
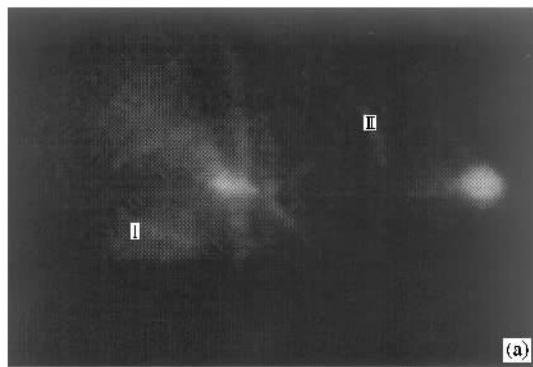


图 2 各向异性圆环的实验照片 (a) 沿 -c 轴小角度入射 (b) 沿 -c 轴大角度入射

沿 +c 轴方向正负角入射时,只看到圆环 I ,圆

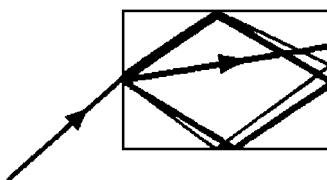


图 3 晶体内形成的回路图

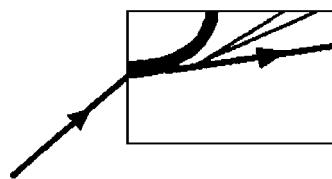


图 4 圆环 II 出现时晶体内的光路图

环 II 没有出现,并且在晶体内光路中没有形成一段圆弧.若用 o 光沿 ±c 轴入射,圆环 I 、圆环 II 都观察不到.

### 3. 圆环 I 的分析

圆环 I 图样的形成,可用三波混合的理论解释:一束偏振的入射光束与晶体中由不均匀性引起的同样偏振的散射光相互作用写入相位栅,这些噪声栅中只有满足图 5 所示的波矢匹配条件的那部分才能够各向异性地衍射入射光<sup>[12]</sup>.图中  $\alpha_i$  ,  $\theta_i$  分别为晶体内部入射角和衍射角;  $k_i$  为入射光波矢;  $k_f$  为同性散射光波矢;  $k_r$  为衍射光波矢.

可以根据入射角计算出圆环 I 的水平衍射角.由文献 13 可知

$$n_o^2 v^2 + n_e^2 w^2 = n_o^2 n_e^2, \quad (1)$$

其中

$$v \equiv 2n_1 \cos \alpha_i - n_o \cos(\theta_i + \alpha_i), \quad (2)$$

$$w \equiv 2n_1 \sin \alpha_i - n_o \sin(\theta_i + \alpha_i), \quad (3)$$

并且有

$$n_i(\alpha) = n_o n_e / \sqrt{n_e^2 \sin^2 \alpha_i + n_o^2 \cos^2 \alpha_i}, \quad (4)$$

式中  $n_i(\alpha)$  是沿入射角  $\alpha_i$  入射的 e 光的有效折射率,  $\alpha$  为晶体外部入射角.

当以外部入射角 30° 入射时,有  $\alpha_i \approx \frac{\sin 30^\circ}{2.632} \text{ rad} \approx 12.22^\circ$ .

经测量,在入射面内外部衍射角(即水平衍射

角)为  $4.276^\circ$ , 则晶体内部衍射角  $\theta_i \approx \frac{\sin 4.276^\circ}{2.412} \text{ rad} \approx$

$1.771^\circ$

由(4)式可得  $n_1(30^\circ) = 2.362$ ,  $v \equiv 2.277$ ,  $w \equiv 0.417$ , 代入(1)式, 左边 = 31.13, 计算得右边 = 32.40.

同时还测量了外部入射角为  $60^\circ$  和  $70^\circ$  时, 对应的入射面内外部衍射角分别为  $11.48^\circ$  和  $13.59^\circ$ . 同理, 计算得左式分别为 31.70 和 31.93.

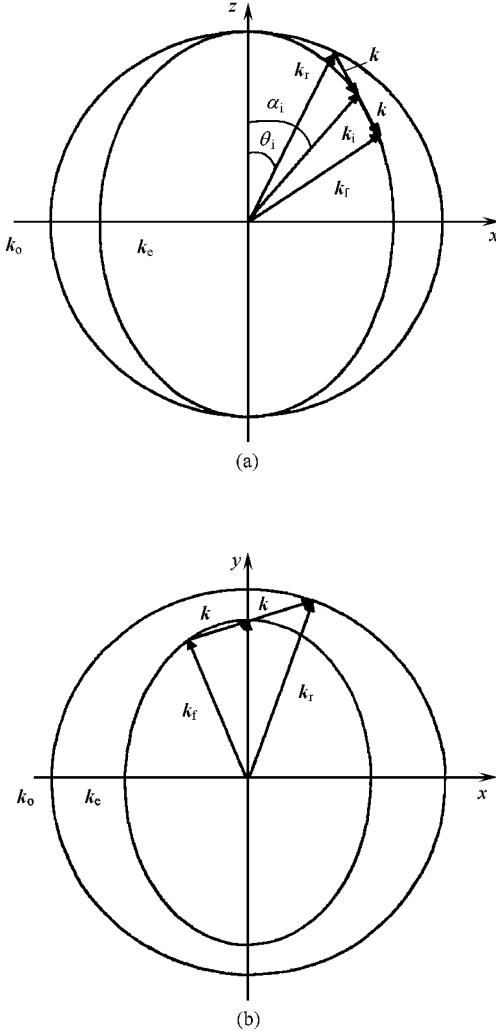


图 5 圆环 I 满足的波矢匹配图 (a) 过  $k_i$  的纵截面  
图 (b) 过  $k_i$  的横截面图

由上述结果可知, 实验观察到的圆环 I 基本满足(1)式, 其中的误差主要来自外部入射角和衍射角的测量, 另外来自于计算中采用的近似值. 因此, 对圆环 I 的解释是合理的. 同时通过实验也验证了文献 [13] 给出的椭圆环在入射面内内部衍射角所满足的一系列方程的正确性.

#### 4. 圆环 II 的分析和实验结果

通光片刻后, 光扇中部光强开始减弱, 经观察, 此时并无相位共轭光产生, 估计是扇形光束之间相互耦合的原因. 刚开始入射时, 由于缺陷、杂质等散射中心形成的扇形光强很弱, 不同扇形散射光之间的耦合可以忽略, 入射光和扇形散射光之间的耦合是主要的. 因为扇形散射光很弱, 所以开始增长的速度较慢. 当扇形光强增加到一定值可以跟入射光相比拟时, 它们之间的耦合非常大, 从而扇形光强得到了迅速增加. 一旦扇形光强到达了最大值, 入射光跟扇形散射光之间的耦合可以忽略, 而以不同方向扇形之间的耦合为主. 这样能量就会从耦合系数小的扇形光束向耦合系数大的扇形光束转移. 最终比较靠近  $+c$  轴一边的扇形光束得到了一定的放大, 光强较强. 但能量不可能总是连续向  $+c$  轴转移, 因为紧靠  $+c$  轴方向的扇形元素的耦合常数比较小, 并且有限的晶体长度也不允许足够的能量转移到紧靠  $+c$  轴方向的那些元素中去. 从而这束明显可见、光强可同晶体外入射光相比、弯曲的扇形光束, 在晶体内部经过多次反射, 形成一回路. 回路逐渐变细变亮, 然后光路又变粗, 而晶体外入射光束末端明显变细. 回路进行自我调整且逐渐模糊, 最终形成了弯曲程度接近  $1/4$  圆弧的扇形光束, 达到了稳定后, 回路的其他部分消失了. 这时的扇形光束如同一束  $e$  光, 以一定的入射角入射到晶体的  $a$  面, 圆环 II 开始建立起来. 它的形成完全可以用三波混合的理论来解释. 正是由于扇形之间的相互耦合使不对称同性扇形散射光光强逐渐减弱, 中间部分消失最快, 两边也逐渐消失(光波耦合主要在入射面内进行, 此平面内的散射光首先消耗, 然后才是其他方向的散射光). 没有观察到相位共轭光产生, 原因可能是扇形光束之间耦合太强, 一方面形成了一闭合回路, 严重消耗了入射光能量; 另一方面, 最终只留下了一束扇形光束, 并且指向  $a$  面, 因而不可能通过全内反射, 由 FWM-TIR (four-wave mixing and total internal reflection) 机制形成相位共轭光, 因为 FWM-TIR 必须依靠一个晶角.

由实验发现, 入射光沿  $-c$  轴方向的入射角越大, 圆环 II 越接近圆, 晶体内的扇形光束弯曲程度越大. 由此估计, 扇形元素之间的耦合跟入射角有关. 并且, 观察到当扇形中间部分光强减弱到一定程度后, 又渐渐变强, 发生弯曲的扇形光束又可作为入射

光跟其周围弱的散射光发生耦合,产生圆环Ⅱ的同时,使一定方向的同性散射光得到放大。

为了验证上述分析,在  $P = 6\text{mW}$ ,  $\omega = 0.6\text{mm}$  时分别对圆环Ⅰ、圆环Ⅱ及同性扇形的中间部分和两边部分的建立过程进行了测量,实验光路示意图见图 6,实验结果如图 7 所示。

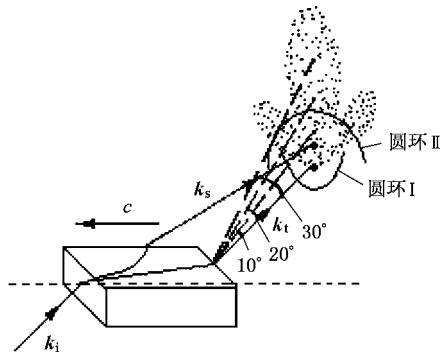


图 6 实验光路示意图

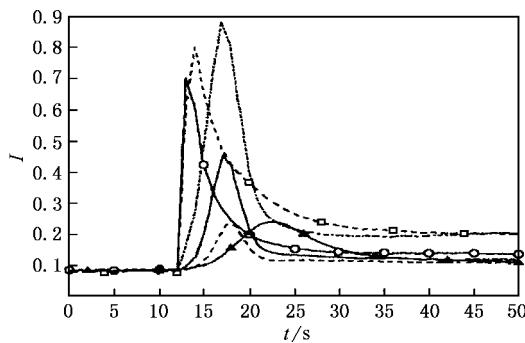


图 7 各类散射光光强随时间的发展变化

图 7 中空心圆圈的曲线是透射光的变化曲线;空心方框的曲线是圆环Ⅰ的变化曲线;实心三角的曲线是同性扇形两边部分变化曲线;点划线、实线和虚线分别是同性扇形中间部分距透射光  $10^\circ$ 、 $20^\circ$ 、 $30^\circ$  处的散射光的变化曲线。

由测量图可以看出,照射晶体 1s 后(对应图中的 13s),透射光迅速减弱,2s(对应图中的 14s)后新建立的圆环Ⅰ的光强也跟着减弱,这是因为入射光跟散射光开始进行耦合,向散射光转移能量,自身能量减少,从而影响圆环Ⅰ的光强;另外可能圆环Ⅰ本身也向散射光转移了能量。前 2s 内由扇形中间部分散射光建立曲线的斜率可以说明晶体中的杂质、缺陷等引起的散射光较弱,因而同入射光的耦合速度较慢,当扇形光强增加到一定值,如图中 15s 处,它们之间的耦合非常大,因而扇形光得到了迅速增长,

再过 2s 便达到最大值。此时,透射光和圆环Ⅰ的光强迅速减弱。

由图 7 中部扇形散射光的曲线能够看出,扇形散射光离透射光越远,光强越弱,也就是说,光强还未达到前一扇形散射光的光强,就已经开始减弱了。中部扇形散射光光强达到最大值时,对应图中 17s 处光强,两边部分的扇形才开始建立。由图可以看出 23s 处两边的扇形光强达到了最大值,而其他部分的光强已几乎减到最小值,从刚一照射开始(对应图中 12s),38s 后(对应图 50s 处),图中各曲线的光强均减到最小值。同性扇形中离透射光较远的中间部分散射光和两边的散射光几乎减到 0。

但是,图中中间部分的扇形光光强达到最大值的时间是相等的,是因为实验所取的数据最大只相隔  $20^\circ$ ,而实际的光束耦合的速度很快,实验中又是 1s 采一个数,其中的时间差没有反映出来。如果时间取的很短,测量又十分精确,不同位置处的扇形光达到最大值应该存在时间差。

在相同条件下,测量了圆环Ⅱ和离透射光  $30^\circ$  时同性扇形中间部分的散射光随时间的变化,如图 8 所示。

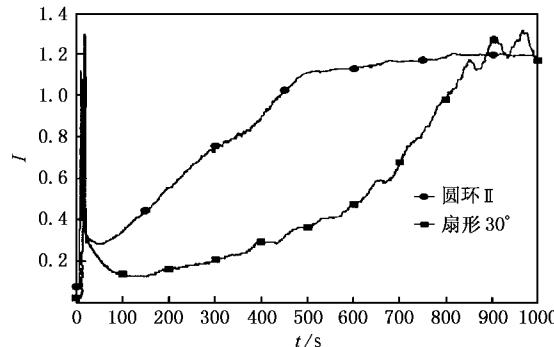


图 8 圆环Ⅱ和同性扇形中间部分散射光随时间的变化

由图 8 看出,500s 时圆环Ⅱ基本建立起来,此时中间部分的同性扇形光强已几乎从 0 开始增加了。到 1000s 时,圆环Ⅱ的光强达到最大值,同性扇形的光强也达到了最大值。

综上所述,实验结果同前面的分析基本相符合。

下面对圆环Ⅱ在不同条件下的建立性质进行研究。

当  $P = 7\text{mW}$ ,  $\omega = 0.6\text{mm}$ , 不同角度入射时,圆环Ⅱ的建立过程如图 9 所示。由图可知,圆环Ⅱ的光强随着入射角的增大而增大,是因为随着入射角的增大,入射光向扇形散射光,扇形散射光向扇形散射光

转移的能量增大。进一步工作应该将不同入射角入射时,透射光和不同位置处的散射光的变化曲线进行对比。

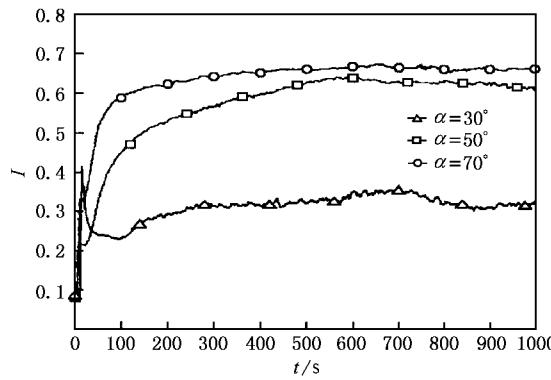


图 9 圆环Ⅱ在不同入射角时的建立过程

在入射角为 70°,  $P = 7\text{mW}$  时, 在不同入射光束宽度的情况下, 将圆环Ⅱ的建立过程进行了对比, 如图 10 所示。由图可知, 在宽光束入射时, 圆环Ⅱ的光强很快便能达到最大值, 并且最后的光强比窄光束入射时要强一些。同样说明, 宽光束入射, 由光斑尺寸效应<sup>[14]</sup>产生的扇形散射光更强, 使散射光中转移的能量增大, 最后形成一束较强的光束指向  $a$  面, 从而形成的圆环Ⅱ的光强也较强。

在不同入射功率的条件下, 在入射角为 70°时对圆环Ⅱ的建立过程进行了对比, 如图 11 所示。由图可见功率越大形成圆环的时间越短, 圆环的光强越大。因为随着入射光能量的增加, 会有更多的能量转移到扇形中去。

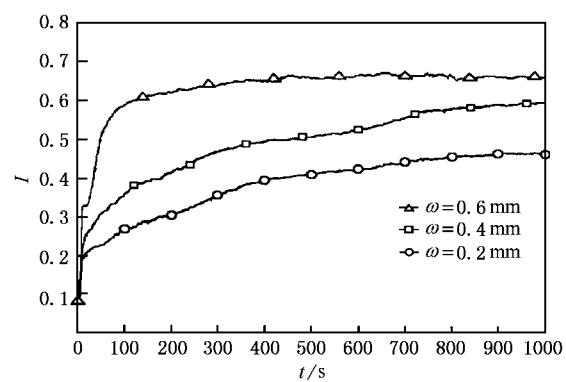


图 10 圆环Ⅱ在不同入射光束宽度时的建立过程

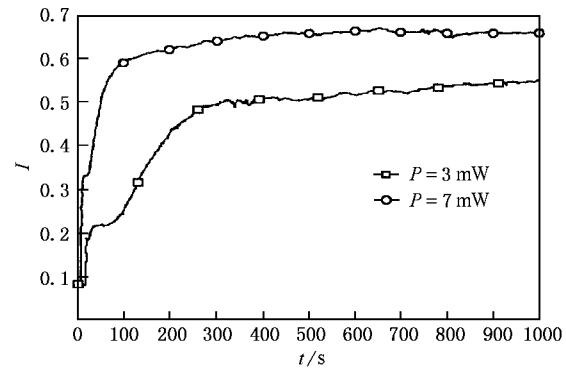


图 11 不同功率入射时圆环Ⅱ的建立过程

综上所述, Ce 的掺入使 BaTiO<sub>3</sub> 晶体的光折变性能得到了改善, 观察到了更丰富的光感应光散射现象。

- [1] Yang C X ,Zhang Y H ,Yeh Pochi et al 1995 *Opt . Comm.* **113** 416
- [2] Lian Y W ,Dou S X ,Zhang J S et al 1994 *Opt . Comm.* **110** 192
- [3] Dou S X ,Ding Y ,Eichler H J et al 1996 *Opt . Comm.* **131** 322
- [4] Zhang J S ,Dou S X ,Gao H et al 1995 *Appl . Phys . Lett.* **67** 458
- [5] Zhu Y ,Yang C X ,Hui M J et al 1994 *Appl . Phys . Lett.* **64** 2341
- [6] Gao H ,Dou S X ,Zhang J S et al 1996 *Appl . Phys . B* **62** 153
- [7] Lian Y W ,Dou S X ,Gao H et al 1994 *Opt . Lett.* **19** 610
- [8] Dou S X ,Gao H ,Zhang J S et al 1995 *J . Opt . Soc . Am . B* **12** 1048

- [9] Yang C X ,Zhu Y ,Hui M J ,Niu X J et al 1994 *Opt . Comm.* **109** 318
- [10] Lian Y W ,Lin S H ,Campbell S et al 1995 *Opt . Lett.* **20** 1683
- [11] Mu X D ,Shao Z S ,Zhang L M et al 1997 *Appl . Opt.* **36** 5888
- [12] Temple D A ,de War C. 1995 *J . Opt . Soc . Am . B* **3** 337
- [13] Ewbank M D ,Yeh Pochi ,Feinberg J 1986 *Opt . Comm.* **59** 423
- [14] Zhang G Y ,Li Q X ,Ho P P et al 1986 *Appl . Opt.* **25** 2955

# Study on two anisotropic scattering cones in Ce :BaTiO<sub>3</sub> crystal \*

Liang Jie<sup>1)</sup> Zeng Ling-Zhi<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup> Editorial Office of the Journal of Beijing Polytechnic University ,Beijing 100022 ,China )

<sup>2)</sup> Graduate Department of Beijing Polytechnic University ,Beijing 100022 ,China )

( Received 20 December 2001 ; revised manuscript received 7 April 2002 )

## Abstract

Two anisotropic scattering cones produced when the pump beam entered the Ce :BaTiO<sub>3</sub> crystal along the  $-c$  axis are reported. The wave-vector diagrams satisfied by the ring I are given. And the measured data of the external diffraction angle of ring I in the plane of incidence are in approximate agreement with the theoretical data. The ring II is explained according to the observations of the light path and the analysis is consistent with the observation and measurement in experiments. The photorefractive properties of the BaTiO<sub>3</sub> crystal doped by Ce are improved.

**Keywords :** Ce :BaTiO<sub>3</sub> crystal , photorefractive effect , anisotropic scattering cone , light-induced scattering

**PACC :** 7820

\* Project supported by the Natural Science Foundation of Beijing ,China ( Grant No. 2952008 ).