

文章编号: 0258-7025(2001)02-0160-05

光折变晶体全息图的热固定特性优化的研究

江竹青 宋雪华 陶世荃

(北京工业大学应用物理系 北京 100022)

提要 采用红光对单、双掺铌酸锂晶体中全息光栅的热固定效率及光擦除和暗存储寿命的特性进行了深入的实验研究。实验中高掺杂和强还原晶体难以显影出离子光栅;对于较少掺杂的未还原晶体,获得离子光栅的热固定效率达 50%,高掺杂晶体中离子光栅的暗存储寿命达 4 个月,比热固定前电子光栅的暗存储寿命提高了十几倍。实验表明热固定效率和光栅的暗存储寿命不能同时提高,这与理论预期一致。

关键词 全息存储,光折变材料,热固定效率,存储寿命

中图分类号:TB 877 文献标识码:A

Study on Characteristics of Thermal Fixing of Holograms in Photorefractive Crystals

JIANG Zhu-qing SONG Xue-hua TAO Shi-quan

(Applied Physics Department, Beijing Polytechnic University, Beijing 10002)

Abstract In this paper, the factors of affecting thermal fixing efficiency, and lifetimes of fixed gratings under both illumination and dark conditions are analyzed theoretically. The characteristics of fixed reflection gratings in Fe:LiNbO₃ and Ce:Fe:LiNbO₃ crystals recorded using red wavelength have been extensively studied. The experimental results show that development of ionic gratings in crystals with high concentration and deep reduction is not available. For lightly doped unreduced crystals, the thermal fixing efficiency up to 50% has been achieved. The lifetime of the ionic grating under continuous illumination is up to 300 hours, which is one hundred times more than that of the electronic grating. The dark storage time can reach 4 months, ten times more than the lifetime of the electronic grating. The experimental results demonstrate that the conditions required for increasing thermal-fixing efficiency will decrease the lifetime of ionic gratings, as predicted by theory.

Key words holographic storage, photorefractive crystal, thermal fixing efficiency, lifetimes

1 引言

80 年代以来,对光折变晶体热固定技术的研究十分活跃,研究者普遍认同了光折变晶体 LiNbO₃ 中热固定的基本机制是空间电荷场导致的离子迁移引起的论点^[1]。在逐步完善光折变晶体中热固定理论模型^[2]的同时,人们也对热固定的定影、显影阶段进行了实验研究^[3,4]。1997 年 Rakuljic 指出高衍射效率和长寿命光栅不能同时达到最佳状态^[5]。1998 年,Arizmendi 详细地研究了固定后光栅的稳定性^[6,7],他认为热固定后光栅具有两种不同的寿命,

即光擦除下的存储寿命和暗衰减下的存储寿命。

研究热固定的目的在于增加全息光栅在光照和黑暗状态下的稳定性,我们将光栅的热固定效率和暗存储寿命作为热固定研究的重点。本文使用自行设计和制作的热固定设备,针对反射型光栅的后定影方式,在开路情况下,在红光波段记录光栅。并对单掺和双掺 LiNbO₃ 晶体中单光栅的热固定效率、热固定前后的光擦除和暗衰减特性进行研究,对影响这些特性的因素(如晶体参数和光栅间距)进行实验研究,并与理论结果相比较。

2 理 论

完整的热固定过程包括定影过程和显影过程两

个步骤。定影过程中,全息图记录进行之中或记录完成之后,将晶体加热到 $100 \sim 180^\circ\text{C}$ 。在此温度下,晶体中的离子(通常认为是 H^+ 离子)被热激活而运动,形成离子光栅,该离子光栅补偿了电子光栅。显影过程中,室温下对全息图用连续均匀光束照明,对光敏感的电子光栅被部分清除,留下一个部分消补偿的离子光栅,离子光栅就被显现出来,即实现了显影。

热固定效率定义为

$$\eta_F = \frac{\eta_D}{\eta_e} \quad (1)$$

其中 η_D 为经过定影和显影后离子光栅的衍射效率, η_e 为光栅未固定前的电子光栅的衍射效率。在小调制度近似下,光栅的衍射效率 $\eta_D \propto (E_1^{(2)})^2$, $\eta_e \propto (E_1^{(0)})^2$, 其中 $E_1^{(0)}$ 表示记录完成时光栅的空间电荷场强度, $E_1^{(2)}$ 表示显影后的光栅电场强度。显影后的光栅电场 $E_1^{(2)}$ 越接近于初始场 $E_1^{(0)}$, 热固定效率 η_F 就越高。

在 $\text{Fe}:\text{LiNbO}_3$ 晶体中要提高热固定效率,需要减少以下式表达的极限空间电荷场 $E_q^{[2]}$

$$E_q = \frac{d[\text{Fe}^{3+}][\text{Fe}^{2+}]}{\epsilon K([\text{Fe}^{3+}] + [\text{Fe}^{2+}])} \approx \frac{d[\text{Fe}^{2+}]}{\epsilon K} \quad (2)$$

式中 $[\text{Fe}^{2+}]$ 为 $\text{Fe}:\text{LiNbO}_3$ 晶体中的施主浓度,即填满的施主数密度 $[\text{Fe}^{3+}]$ 为陷阱电荷浓度,即已电离的施主数密度。上式表明,只有在高光栅空间频率 K , 强氧化 $[\text{Fe}^{2+}]$ 减小并产生大的光生伏打电场)弱掺杂 ($< 0.05 \text{ wt}\%$) 的晶体中才能得到较高的热固定效率,因为在其他条件下,极限空间电荷场大大超过了光生伏打电场和扩散场。

理论研究表明,热固定后光栅光擦除的衰减率 ω_{decay} 为^[2]

$$\omega_{\text{decay}}^{(\text{IV})} = \omega_i \left[\frac{E_d + iE_{p.v.}(N_d - N_a)/N_d}{E_d + E_q + iE_{p.v.}(N_d - N_a)/N_d} \right] + D_i K^2 \quad (3)$$

式(3)表明热固定后光栅光擦除的衰减率与离子的弛豫频率 ω_i , 离子的扩散系数 D_i 及光栅空间频率 K 等因素有关。括号中的扩散场 E_d , 极限空间电荷场 E_q 和光生伏打电场 $E_{p.v.}$ 均为电子光栅的特征场,因此括号项称为电子光栅的屏蔽项,反映电子光栅对离子光栅的屏蔽作用。由于电子光栅的屏蔽,光擦除的衰减率减小了,即光栅在光照下的寿命延长了。

室温时放置于黑暗处的光栅,在固定前后都会经受衰减,其存储的持久性用暗存储时间表征。对于

未固定的电子光栅而言,衰减主要是电子的迁移引起的,其衰减呈指数型

$$E = E_1^{(0)} \exp(-\Gamma_e t) \quad (4)$$

其中 E_0 为衰减开始时 ($t = 0$ 时) 电子光栅的幅度; Γ_e 为电子光栅的衰减常数,它部分依赖于材料的暗传导率^[8]。热固定后的光栅衰减,用衰减常数 Γ 来描述

$$\Gamma = \frac{1}{\tau} = D_i K^2 \left(\frac{n_{i0}}{N_i} + 1 \right) \quad (5)$$

其中 τ 为衰减时间常数; D_i 为离子扩散系数; n_{i0} 为离子浓度; $N_i = [\text{Fe}^{2+}] + [\text{Fe}^{3+}]$ 为有效陷阱浓度,对氧化晶体, $N_i \approx [\text{Fe}^{2+}]$, 最稳定的全息图相应于 τ 的最大值,即 $\tau = (D_i K^2)^{-1}$, 此时要求 $(n_{i0}/N_i) \ll 1$, 所以减少 H^+ 的含量可以提高固定后光栅的暗存储寿命。

方程(5)表明,通过:1)增加掺杂浓度 $[\text{Fe}^{2+}]$ 和 $[\text{Fe}^{3+}]$ 都会相应增加, N_i 随之增加;2)增强晶体还原水平,可减少离子浓度 n_{i0} ;3)减小光栅空间频率 K , 即增加光栅间距 Δ , 均可降低衰减常数 Γ 。因此,提高热固定效率要求减少晶体的掺杂浓度、提高晶体的氧化程度、减小光栅间距,而提高光栅的暗衰减时间常数却要求增加晶体的掺杂浓度、降低晶体的氧化程度及增加光栅间距。

3 实验

我们采用后定影方法,对反射型全息光栅热固定过程中,影响光栅热固定效率和固定后光栅寿命的因素进行实验研究。首先在室温下记录电子光栅,然后对所记录的光栅进行定影,即以恒定速率加热晶体,在升温过程中每隔几摄氏度用扫描方式读出加热过程中衍射光功率峰值。当峰值衍射光功率迅速减小时,可继续升温也可在此温度上进行保温。当峰值衍射光功率趋于明显的稳定值时,表明晶体内 H^+ 离子已最大限度地补偿了电子光栅,可以停止加热,此时完成定影过程。随后待晶体冷却到室温,开始显影过程,用均匀连续光束照明晶体,使对光敏感的电子光栅被擦除,光栅的总峰值衍射效率逐渐上升并达到稳定值,显影出离子光栅,此时可停止照射晶体。

实验中,采用不同掺杂浓度和氧化/还原处理的晶体 ($\text{Fe}:\text{LiNbO}_3$ 和 $\text{Ce}:\text{Fe}:\text{LiNbO}_3$), 以 He-Ne 激光器为光源,在红光波段记录光栅并进行热固定,单光栅的热固定实验光路如图1所示。光路中,利用半波

片 1 ,偏振分束镜及半波片 2 组成的光学系统 ,可以得到参考光与物光的强度比可调节的、具有相同偏振态的两束光 ,此实验均采用垂直偏振态。采用扫描振镜与 4f 系统(1 : 1 望远系统)的组合 ,便于用扫描方式读出衍射效率的峰值。温控器(精度为 ± 0. 1℃)可以控制加热炉升温的速度、达到的温度和保持温度的时间。

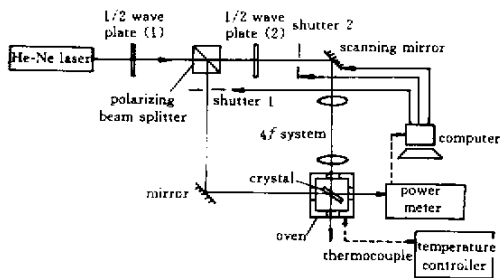


图 1 简单光栅后定影热固定光路

Fig.1 Optical set-up of postfixing of single grating

3.1 晶体参数的优化

理论分析已表明 ,热固定效率与暗存储寿命是互相制约的 ,对体全息光栅热固定必须考虑这两个

特性参量的均衡。晶体的掺杂浓度、氧化还原处理程度均对体全息光栅的热固定效率及存储寿命构成直接影响 ,因此对不同晶体样品进行热固定比较实验 ,可以优选出兼顾热固定效率及存储寿命的晶体。

3.1.1 热固定效率与晶体参数的关系

表 1 列出了实验得到的对于不同晶体样品的热固定效率(相应光栅间距为 0. 152 μm)

比较表 1 列出的几种晶体的热固定效率 ,可以看出 D2B 和 D3B 晶体均为双掺未还原晶体 ,只有掺杂量不同 ,D2B 晶体的热固定效率却比 D3B 晶体高得多 ,说明晶体的掺杂量对光栅的热固定效率影响很大 ,为了得到高的热固定效率 ,应该选用掺杂浓度小的晶体样品。

D2A 和 D2B 晶体的掺杂浓度相同 ,但还原处理不同。未还原 D2B 晶体可以得到 50% 以上的热固定效率 ,而还原晶体 D2A 却不能显影出离子光栅 ,可见对于 D2A 这种掺杂浓度的晶体 ,经过还原处理后不能用于热固定。No8 晶体虽为高掺杂晶体 ,但它是氧化晶体 ,故依然可显影出离子光栅 ,这表明晶体的氧化/还原态对热固定效率的影响是显著的。

D2A ,Ce2 和 Ce3 均为还原晶体 ,热固定过程中 ,陷获电子对离子空间电荷的屏蔽过强 ,离子光栅不能有效显影 ,均不宜用于热固定。

表 1 掺铁铈酸锂及掺铈、铁铈酸锂晶体样品的热固定效率

Table 1 Thermal fixing efficiency in Fe:LiNbO₃ and Ce:Fe:LiNbO₃ crystals

No. of crystals	Doping concentration/%	Oxidation/ reduction state	Diffraction efficiency of electronic gratings/%	Thermal fixing efficiency/%
D2A	Fe:0.03 ;Ce:0.05	500℃ reduction	3.2	nothing
D2B	Fe:0.03 ;Ce:0.05	Non-reduction	4.1	53.6
D3B	Fe:0.07 ;Ce:0.20	Non-reduction	11.9	9.6
No8	Fe:0.08	1050℃ , 20 h oxidation	7.9	5.6
Ce2	Fe:0.03 ;Ce:0.05	500℃ , 50 h reduction	76.6	nothing
Ce3	Fe:0.07 ;Ce:0.20	500℃ , 50 h reduction	26.7	nothing

3.1.2 存储寿命与晶体参数的关系

无论是电子光栅还是离子光栅 ,受到光照以后都会有一定程度的光擦除 ,室温时放置于黑暗处也会产生衰减。并且 ,形式上热固定前后光栅的光擦除及暗衰减均表示为

$$\eta = \eta_0 \exp(-t/\tau) \quad (6)$$

不同的是 :光擦除过程中 ,τ 表示光栅的光擦除时间常数 ,η₀ 为光栅光擦除前的衍射效率 ;而对于暗衰减过程 ,τ 表示光栅的暗衰减时间常数 ,η₀ 为暗衰减前光栅的衍射效率。

实验中依据(6)式对衍射效率的测量数据进行拟合 ,可以得到具体晶体样品热固定前后的光擦除时间常数及暗衰减时间常数 ,擦除光的功率密度为 14.3 mW/cm²。

表 2 给出了实验中得到的若干晶体的电子光栅和离子光栅的寿命(光栅间距 0. 152 μm)

表 2 表明 ,经过热固定后 ,光擦除时间常数得到增加 ,增加的幅度从十几倍到一百多倍。因此可以验证在光照时离子的传导率比电子的传导率小得多 ,经过热固定后光栅的读出次数得到增加。D2B

和 D3B 晶体只有掺杂量不同 ,D3B 晶体的暗衰减时间常数却较长 ,表明增加晶体的掺杂浓度可以提高离子光栅的暗衰减时间常数。因为根据(5)式 ,随着掺杂浓度的增加 ,晶体的有效陷获浓度 N_f 增加 ,使暗衰减时间常数增加。

表 1 与表 2 实验结果的对比表明 ,低掺杂的双掺 D2B 晶体比高掺杂的双掺 D3B 晶体的热固定效率高 ,但它的寿命却较短 ,与理论一致。对于未还原

晶体 D2B 和 D3B 以及氧化晶体 No8 而言 ,可以考虑牺牲一部分热固定效率来增加暗存储的寿命 ,使离子光栅更适合于长时间保存所存储的信息。Ce2 , Ce3 和 D2A 晶体均为强还原晶体 ,热固定效率极低 ,以致不能观察到离子光栅。如果降低这几种晶体的掺杂浓度 ,有可能获得可显影的且暗衰减时间常数很长的离子光栅。

表 2 若干晶体样品的电子光栅寿命与离子光栅寿命的比较

Table 2 Lifetimes of electronic gratings and ionic gratings for different crystal samples

No. of crystals	Lifetimes of electronic gratings		Lifetimes of ionic gratings	
	Optical erasure/h	Dark-decay/day	Optical erasure/h	Dark-decay/day
D2B	2.95	3.70	357.14	34.25
D3B	0.53	0.83	24.63	65.36
No8	1.29	10.35	23.64	112.36

3.2 光栅间距的影响

热固定效率和暗衰减寿命与电子光栅的光栅间距密切相关 ,光栅间距越大(光栅空间频率 K 越小)热固定效率越低 ,而暗衰减寿命越长。通过双掺 D3B 晶体在三种不同光栅间距下的热固定实验结果验证了此结论。

实验中 ,电子光栅的衍射效率均为 10% 左右 ;热固定条件均为 :升温速度为 $1^{\circ}\text{C}/\text{min}$,最高温度为 150°C ,采用非相干光显影。通过改变参考光和物光与晶体平面方向的夹角 θ_r 和 θ_s 改变光栅间距 , θ_r 和 θ_s 均为晶体外部角 ,如图 2 所示。

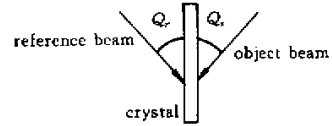


图 2 参考光与物光入射晶体方向示意图

Fig.2 Schematic diagram of incidence direction of reference and object beam

表 3 列出了不同光栅间距下 ,对双掺 D3B 晶体热固定实验所得到的热固定效率和暗衰减寿命。

表 3 不同光栅间距下的热固定效率和暗衰减时间常数

Table 3 Thermal fixing efficiency and the dark-decay time constant depending on the grating spacing

No. of experiments	No. one		No. two		No. three	
	35°	29°	49°	41°	61°	67°
Angles between a reference/object beam and crystal surface	0.160		0.152		0.145	
Grating spacing/ μm	0.110°		0.133°		0.219°	
External selecting angle/deg	5.9		11.8		15.2	
Thermal fixing efficiency/%	80.65		65.36		59.73	
Dark-decay time constant/day						

图 3 示出了以 $1/\Lambda^2$ (Λ 为光栅间距)为横坐标 ,近似反映双掺 D3B 晶体的暗衰减常数 ($1/\tau'$) 与光栅间距关系的拟合曲线。由此 ,D3B 晶体的暗衰减常数可近似表示为

$$\frac{1}{\tau'} = 0.0003 \frac{1}{\Lambda^2} [\mu\text{m}^2/\text{day}]$$

其中 , τ' 和 Λ^2 的单位分别为天和 μm^2 ,即暗衰减时间常数 $\tau' = 3333\Lambda^2$ (天) = $9.1\Lambda^2$ (年) 。提高光栅间距可增加离子光栅的暗衰减时间常数 ,而一般反射型全息图的光栅间距较小 ,若要获得大的光栅间距应采用透射型记录结构 ,可使离子光栅的暗衰减寿命达数年之久。

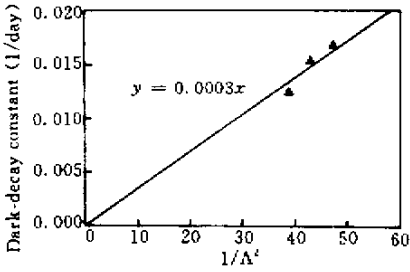


图 3 暗衰减常数与光栅间距的关系曲线

Fig.3 Dependence of the dark-decay constant on the grating spacing

根据表 3 中的数据,图 4 示出了热固定效率和暗衰减时间常数分别随光栅间距变化的曲线。

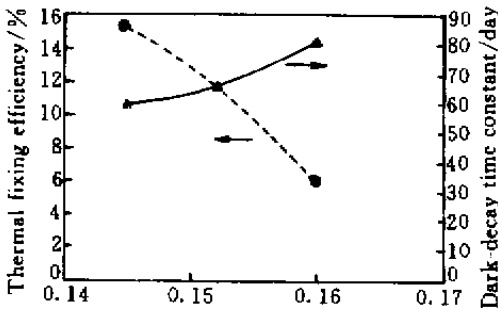


图 4 热固定效率、暗衰减时间常数和光栅间距的关系

Fig.4 Dependence of the thermal fixing efficiency and the dark-decay time constant on the grating spacing

图 4 清楚地表明,离子光栅的暗衰减时间常数与光栅间距近似成二次方关系,实验结果与(3)式的理论预期相符,并且光栅间距越大,暗衰减时间常数越大,而热固定效率却越低。要获得长寿命的光栅,必须以牺牲热固定效率为代价。因此在选择光栅的间距时,应该注意在高热固定和长寿命这两方面取得均衡。

值得指出的是,对反射型全息图而言,减小光栅间距会使光栅的选择角增大,对高密度全息存储不利。比较这三个实验结果,采用实验二的记录几何更利于存储密度和热固定效率的均衡。

4 结 论

本论文的实验结果表明,高掺杂和强还原晶体难以显影出离子光栅,对于较少掺杂的未还原晶体,

获得离子光栅的热固定效率达 50%。实验得到持续光照下离子光栅存储寿命为 300 多个小时,比热固定前电子光栅在相同光照下的存储寿命提高了 100 多倍,高掺杂晶体中离子光栅的暗存储寿命达 4 个月,比热固定前电子光栅的暗存储寿命提高了十几倍。

通过对各种晶体的热固定实验可知,提高热固定效率的途径为,减小晶体掺杂浓度和光栅间距及增加晶体的氧化程度;而提高光栅的暗存储寿命却要求增加晶体的掺杂浓度和光栅间距及降低晶体的氧化程度。这些实验结果与理论预期相一致,表明提高热固定效率和提高光栅的暗存储寿命不能同时实现。实际应用时,为了获得所必需的热固定效率及尽可能长的寿命光栅,应根据具体情况对晶体材料和记录条件进行权衡和优化。

参 考 文 献

- 1 H. Vormann, G. Weber, S. Kapphan *et al.*. Hydrogen as origin of thermal fixing in $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$. *Solid State Communications*, 1981, **40**(5) 543 ~ 545
- 2 Amnon Yariv, Sergei S. Orlov, George A. Rakuljic. Holographic storage dynamics in lithium niobate: theory and experiment. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1996, **13**(11) :2513 ~ 2523
- 3 R. Müller, L. Arizmendi, M. Carrascosa *et al.*. Time evolution of grating decay during photorefractive fixing processes in LiNbO_3 . *J. Appl. Phys.*, 1995, **77**(1) 308 ~ 312
- 4 S. Breer, K. Buse, F. Rickermann. Improved development of thermally fixed holograms in photorefractive LiNbO_3 . *Opt. Lett.*, 1998, **23**(1) :73 ~ 75
- 5 George A. Rakuljic. Prescription for long-lifetime, high-diffraction-efficiency fixed holograms in Fe-doped LiNbO_3 . *Opt. Lett.*, 1997, **22**(11) 825 ~ 827
- 6 L. Arizmendi, A. Mendez, J. V. Alvarez-Bravo. Stability of fixed holograms in LiNbO_3 . *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **70**(5) : 571 ~ 573
- 7 L. Arizmendi, E. M. de Miguel-Sanz, M. Carrascosa. Lifetimes of thermally fixed holograms in $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ crystals. *Opt. Lett.*, 1998, **23**(12) 960 ~ 962
- 8 Matthew C. Bashaw, John F. Heanue. Ouasi-stabilized ionic gratings in photorefractive media for multiplex holography. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1997, **14**(8) 2024 ~ 2042