

文章编号: 0258-7025(2008)07-1045-05

LiNbO₃:Ce:Cu 晶体中绿光非挥发全息记录优化

戴翠霞¹ 于瀛洁¹ 刘德安² 刘立人²

(¹ 上海大学机械自动化学院精密机械工程系, 上海 200072
² 中国科学院上海光学精密机械研究所信息光学实验室, 上海 201800)

摘要 为了对在 LiNbO₃:Ce:Cu 晶体中绿光作为记录光的非挥发全息记录进行优化, 联立求解了双中心物质方程和双光束耦合波方程, 数值分析了平均空间电荷场(SCF)和衍射效率随晶体的氧化还原态、记录光与敏化光的光强比以及深浅中心的掺杂浓度的变化。结果表明, 采用绿光作为记录光在 LiNbO₃:Ce:Cu 晶体中进行非挥发全息记录, 可以记录得到强光折变光栅, 其空间电荷场高达 10^7 V/m; 获得高达 80% 以上的固定衍射效率, 各相关参量都有较大的优化空间。

关键词 全息; 非挥发全息记录; 光折变光栅; LiNbO₃:Ce:Cu 晶体; 衍射效率

中图分类号 O 436.1; O 438.1 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/CJL20083507.1045

Optimization of Nonvolatile Holographic Recording in LiNbO₃:Ce:Cu with Green Light

Dai Cuixia¹ Yu Yingjie¹ Liu De'an² Liu Liren²

(¹ College of Mechatronics of Engineering and Automation, Shanghai University, Shanghai 200072, China
² Laboratory of Information Optics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics,
Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

Abstract In order to optimize the nonvolatile holographic recording in LiNbO₃:Ce:Cu crystal with green light, we solved the joint two-center material equations and the coupled wave equations. Variations of parameters were analyzed, such as average space charge field (SCF) and the diffraction efficiency with the crystal annealing state, the intensity ratio of green-to-ultraviolet (UV), and the concentration of shallow and deep traps in oxidized LiNbO₃:Ce:Cu crystal. The results show that strong photorefractive grating with the averaged space-charge field as high as 10^7 V/m and 80% high fixed diffraction efficiency can be obtained in LiNbO₃:Ce:Cu with green light recording. And much better performance can be obtained by changing the corresponding parameters.

Key words holography; nonvolatile holographic recording; photorefractive grating; LiNbO₃:Ce:Cu crystal; diffraction efficiency

1 引 言

非挥发全息存储最先是在掺杂了 Fe(浅能级)和 Mn(深能级)的 LiNbO₃ 晶体中实现的^[1], 由于其非挥发及全光特性, 此全息技术得到了广泛的关注, 并成为重要的研究热点, 与此同时, LiNbO₃:Fe:Mn 晶体的特性和应用也得到了广泛的研究^[2~8]。

此外, 人们还研究了铌酸锂晶体的一些新的掺杂体系^[9~15], 即用其他不同能级的掺杂元素代替 Fe 和 Mn 分别作为双中心记录的深浅能级以进行非挥发全息存储, 探讨了各掺杂体系相应的掺杂特点和记录性能。本小组生长了 LiNbO₃:Ce:Cu 晶体并发展了以红光记录蓝光或紫外(UV)光敏化的非挥发

收稿日期: 2007-08-15; 收到修改稿日期: 2007-12-03

基金项目: 中国博士后科学基金(20070410714)和上海市优秀青年教师科研专项资助课题。

作者简介: 戴翠霞(1973—), 女, 山东人, 博士后, 主要从事光学信息处理、光折变非线性光学、数字全息和光学检测方面的研究。E-mail: sdadai7412@163.com

导师简介: 于瀛洁(1969—), 女, 辽宁人, 博士, 研究员, 主要从事工程检测中光学方法方面的研究。

E-mail: yingjieyu@staff.shu.edu.cn

全息记录技术,发现 $\text{LiNbO}_3:\text{Ce}:\text{Cu}$ 晶体具有吸收少、光折变记录灵敏度高、衍射效率高、相干散射噪声低等优点^[9,13]。目前,此类晶体已被公认为是一种具有较大发展前途的光折变材料。

针对这种优良的光折变晶体,为了得到更强的光折变光栅和更高的固定衍射效率,运用了三种不同波长的记录光在强氧化 $\text{LiNbO}_3:\text{Ce}:\text{Cu}$ 晶体中进行了一系列的波长优化实验^[16],发现在使用的三种记录波长中绿光是最佳的记录波长,运用绿光在 $\text{LiNbO}_3:\text{Ce}:\text{Cu}$ 晶体中能够很快地记录得到强光折变光栅。在此基础上,为了获得更强的记录和固定效果,本文考虑对其光折变记录中的各相关参量作进一步的优化分析,探讨绿光作为最佳记录波长的非

挥发全息记录中其他的光折变参量对全息记录的影响,总结得出各参量的优化空间。

2 理论分析

假设两束记录光在 xz 平面内传播,对称入射到双掺杂 $\text{LiNbO}_3:\text{Ce}:\text{Cu}$ 晶体上,晶体的光轴沿 x 方向,光折变效应所形成的光栅波矢平行于光轴(外加电场平行于光轴方向), z 方向沿晶体法线方向(即厚度方向)。紫外光沿 z 方向垂直辐照晶体。采用一次谐波近似,将每一个与光强有关的物理量都近似为其直流分量和基频分量之和(分别用脚标 0, 1 表示),双中心物质方程组可表示为

$$\frac{\partial N_{D0}^-}{\partial t} = -g_D N_{D0}^- + \gamma_D N_{e0} (N_D - N_{D0}^-), \quad (1)$$

$$\frac{\partial N_{S0}^-}{\partial t} = -g_S N_{S0}^- + \gamma_S N_{e0} (N_S - N_{S0}^-), \quad (2)$$

$$N_{e0} = \frac{g_D N_{D0}^- + g_S N_{S0}^-}{\gamma_D (N_D - N_{D0}^-) + \gamma_S (N_S - N_{S0}^-)}, \quad (3)$$

$$\frac{\partial N_{D1}^-}{\partial t} = -g_D N_{D1}^- - S_{D,L} m I_{L0} N_{D0}^- + \gamma_D N_{e1} (N_D - N_{D0}^-) - \gamma_D N_{e0} N_{D1}^-, \quad (4)$$

$$\frac{\partial N_{S1}^-}{\partial t} = -g_S N_{S1}^- - S_{S,L} m I_{L0} N_{S0}^- + \gamma_S N_{e1} (N_S - N_{S0}^-) - \gamma_S N_{e0} N_{S1}^-, \quad (5)$$

$$N_{e1} = \frac{\left\{ (g_D + \gamma_D N_{e0}) N_{D1}^- + (g_S + \gamma_S N_{e0}) N_{S1}^- - \frac{e\mu N_{e0}}{\epsilon\epsilon_0} (N_{D1}^- + N_{S1}^-) - \frac{i\mathbf{K}}{e} [\kappa_D N_{D1}^- + \kappa_S N_{S1}^- + (\kappa_{D,L} N_{D0}^- + \kappa_{S,L} N_{S0}^-) m I_{L0}] + (S_{D,L} N_{D0}^- + S_{S,L} N_{S0}^-) m I_{L0} \right\}}{\gamma_D (N_D - N_{D0}^-) + \gamma_S (N_S - N_{S0}^-) + \frac{e\mu N_{e0}}{\epsilon\epsilon_0} + \frac{K_B T \mu \mathbf{K}^2}{e} - i\mathbf{K} \mu E_0}, \quad (6)$$

式中 $g_D = S_{D,L} I_{L0} + S_{D,H} I_H$, $g_S = S_{S,L} I_{L0} + S_{S,H} I_H$, $\kappa_D = \kappa_{D,L} I_{L0} + \kappa_{D,H} I_H$, $\kappa_S = \kappa_{S,L} I_{L0} + \kappa_{S,H} I_H$, 脚标 D 和 S 分别表示深中心和浅中心,脚标 H 和 L 分别表示敏化光(高频)和记录光(低频); S 为光激发常数, γ 为陷阱的电子俘获系数, I 为光强, κ 为体光生伏特系数, \mathbf{K} 为波矢, N 为陷阱浓度, N^- 和 N_e 分别为陷阱中的电子浓度和导带中的电子浓度; e 为电子电荷, u 为电子迁移率, ϵ 为介电常数, T 为温度, K_B 为玻尔兹曼常数, E_0 为外加电场(未加外电场时, E_0 取为零); $I_{L0} = A_1 A_1^* + A_2 A_2^*$, 为记录光总光强, A_1 , A_2 为两记录光束的振幅,* 为复共轭符号, $m = 2A_1 A_2^* / I_{L0}$, 为复调制度。

为了明确总光折变光栅效应和深浅中心中光栅的关系,耦合波方程写为深浅中心两光栅的组合形式

$$\cos \theta \frac{dA_1}{dz} = -\frac{i\pi}{\lambda} (n_D e^{i\phi_D} + n_S e^{i\phi_S}) A_2 - \frac{\alpha}{2} A_1, \quad (7)$$

$$\cos \theta \frac{dA_2}{dz} = -\frac{i\pi}{\lambda} (n_D e^{-i\phi_D} + n_S e^{-i\phi_S}) A_1 - \frac{\alpha}{2} A_2, \quad (8)$$

式中, n 和 ϕ 分别为折射率及其相位; λ 和 θ 分别为记录波长和入射角度; α 为吸收系数。根据线性电光效应,深浅中心的光栅折射率变化可以表示为

$$n_D \exp(i\phi_D) = \frac{1}{2} n_0^3 r_{13} \left(\frac{ie}{\epsilon\epsilon_0 \mathbf{K}} N_{D1}^- \right), \quad (9)$$

$$n_S \exp(i\phi_S) = \frac{1}{2} n_0^3 r_{13} \left(\frac{ie}{\epsilon\epsilon_0 \mathbf{K}} N_{S1}^- \right), \quad (10)$$

式中 r_{13} 和 n_0 分别为光电系数和晶体对 o 偏振光的折射率。

计算中,采用弱光(边界条件为 $A_1(0) = 1$, $A_2(0) = 0$) 作为探测光,再次单独求解耦合波方程就可得到晶体中任意 z 处的衍射效率 $\eta(z) =$

$A_2(z)A_2^*(z)$ 。

理论模拟过程中,相关参量取值见文献[6,9,13],绿光记录下部分参量如表1所示。

表1 LiNbO₃:Ce:Cu 晶体在514.5 nm 波长下的参量
Table 1 Parameters of the LiNbO₃:Ce:Cu crystal under the wavelength of 514.5 nm

S/(m ² /J)		κ /(m ³ /V)		α (m ⁻¹)	n
Cu	Ce	Cu	Ce		
1×10^{-5}	5×10^{-10}	3.8×10^{-33}	5×10^{-37}	1000	2.33

3 数值研究

联立求解双中心物质方程组和双光束耦合波方程组,对绿光作为记录光的非挥发全息记录中的相关参量进行优化分析(其中包括晶体的氧化还原态、记录光与敏化光的光强比以及深浅中心的掺杂浓度)。取晶体厚度为2 mm。为了使光折变光栅记录达到饱和并最终固定,采取的记录和固定时间分别为200 min和150 min。此外,由于紫外光和绿光在晶体中都有相当的吸收,取晶体内的平均空间电荷场(SCF)进行分析。

3.1 晶体氧化还原态的影响

在理论模拟过程中,选择深浅中心的掺杂浓度分别为 $N_D = 1 \times 10^{25}/\text{m}^3$ 和 $N_S = 5.2 \times 10^{25}/\text{m}^3$;两光强相等的记录光总光强为 $I_{\text{green}} = 5000 \text{ W}/\text{m}^2$;紫外光强为 $I_{\text{UV}} = 200 \text{ W}/\text{m}^2$ 。因为实现非挥发全息存储,必须满足总电子浓度小于深陷阱的浓度,所以可以用 N_A (最初电子数浓度 $N_A = N_{D_0}(0) + N_{S_0}(0)$)和深陷阱(深中心)浓度 N_D 之比 N_A/N_D 来表征电子的相对浓度或晶体的氧化还原态。

如图1(a)所示,在绿光为记录光的非挥发全息记录中,饱和空间电荷场总是随氧化程度不断增加,表明电子越多记录得到的光折变光栅越强;而对于固定空间电荷场,晶体氧化程度则有其最佳值: $N_A/N_D = 0.9$, 电子浓度太大使得大部分电子复合到深中心,最终固定在深中心的光栅中,因此总光栅强度变弱。而由图1(b)可知,当饱和空间电荷场的强度过高,则光栅的衍射效率会减小,当 $N_A/N_D = 1$ 时,光栅衍射效率基本为零。当 $N_A/N_D = 0.55 \sim 0.85$ 时,光栅的衍射效率均在60%以上,当 $N_A/N_D = 0.7 \sim 0.75$ 时,光栅的衍射效率则可高达88%。固定衍射效率在 $N_A/N_D = 0.6 \sim 0.95$ 时都大于60%,当 $N_A/N_D = 0.9$ 时达到最大值。由此可见,在氧化还原态较大的取值范围内,绿光非挥发全息记录可获得强光折变光栅和高衍射效率。

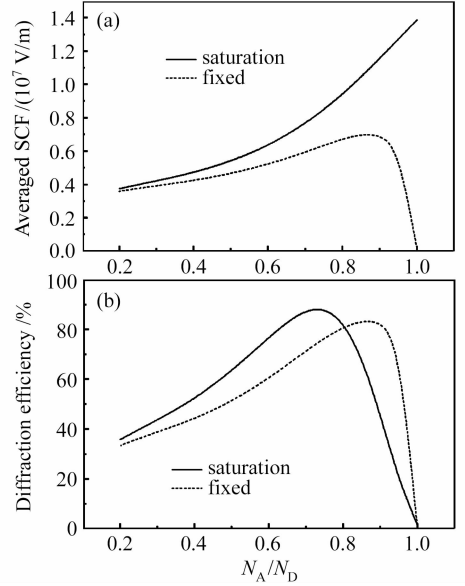


图1 平均空间电荷场(a)和光栅的衍射效率(b)随晶体氧化还原态的变化

Fig. 1 Variations of (a) average SCF and (b) diffraction efficiency of grating with crystal redox state

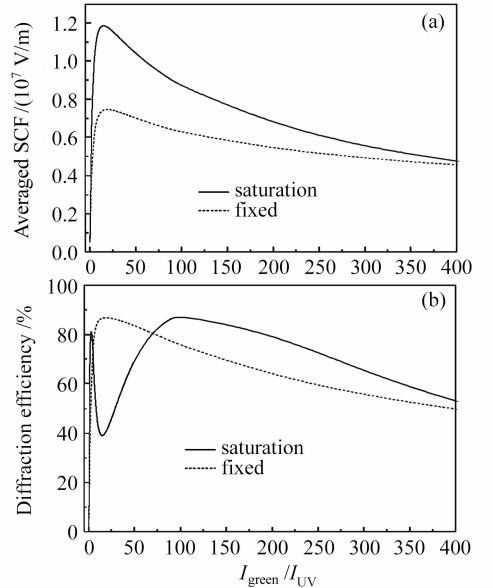


图2 平均空间电荷场(a)和光栅的衍射效率(b)随记录光与敏化光的光强比的变化

Fig. 2 Variations of (a) average SCF and (b) diffraction efficiency of grating with the intensity ratio of green-to-UV

3.2 记录光与敏化光光强比的影响

保持晶体掺杂浓度 $N_D = 1 \times 10^{25}/\text{m}^3$ 和 $N_S = 5.2 \times 10^{25}/\text{m}^3$ 不变,取 $N_A/N_D = 0.9$, 并固定紫外光强 $I_{\text{UV}} = 200 \text{ W}/\text{m}^2$ 不变,通过改变记录绿光的光强可达到改变记录光与敏化光的光强比。由图2可知,当采用绿光进行非挥发全息记录时,对于获得较

强的光折变光栅和固定衍射效率,记录光和敏化光的光强比的限定范围比较宽。在 $I_{\text{green}}/I_{\text{UV}} = 1 \sim 240$ 范围内,均可获得较强的空间电荷场,并获得高达 60% 的固定衍射效率,其中当 $I_{\text{green}}/I_{\text{UV}} = 16$ 时,可获得最强的饱和、固定空间电荷场,此时固定衍射效率高达 86%。当记录光栅非常强时,根据 $\eta = \sin^2\left(\frac{\pi\Delta nd}{\lambda \cos\theta}\right)$ (式中 Δn 为光栅强度,由空间电荷场 ΔE 决定, d 为晶体厚度),衍射效率曲线将出现振荡现象。

3.3 深中心掺杂浓度的影响

保持晶体浅中心的掺杂浓度 $N_s = 5.2 \times 10^{25} / \text{m}^3$ 和记录绿光总光强 $I_{\text{green}} = 5000 \text{ W}/\text{m}^2$ 不变,并取 $N_A/N_D = 0.9$, $I_{\text{UV}} = 250 \text{ W}/\text{m}^2$ 。由图 3 可知,当深中心的掺杂浓度在 $N_D = 8 \times 10^{23} / \text{m}^3$ 附近时,晶体中产生的饱和、固定空间电荷场最大。由于在很广的深中心掺杂浓度范围内晶体内产生的饱和空间电荷场都比较强,则光折变光栅的饱和衍射效率非常低,然而此时固定衍射效率则高于 80% 以上。由此可见,在浅中心掺杂浓度一定的情况下,可以在很大的范围内调整深中心的掺杂浓度,记录并固定得到强光折变光栅和高固定衍射效率。

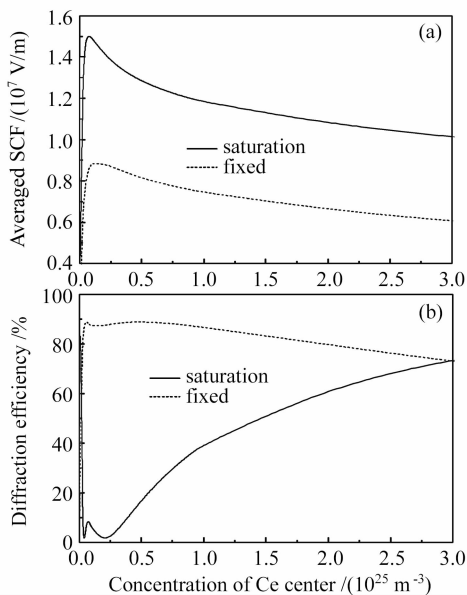


图 3 平均空间电荷场(a)和光栅的衍射效率(b)随深中心掺杂浓度的变化

Fig. 3 Variations of (a) average SCF and (b) diffraction efficiency of grating with the concentration of Ce center

3.4 浅中心掺杂浓度的影响

保持晶体深中心的掺杂浓度 $N_D = 1 \times 10^{25} / \text{m}^3$ 和记录绿光总光强 $I_{\text{green}} = 5000 \text{ W}/\text{m}^2$ 不变,敏化光

强 $I_{\text{UV}} = 300 \text{ W}/\text{m}^2$,取 $N_A/N_D = 0.9$ 。由图 4 可知,晶体中所记录和固定的空间电荷场都随浅中心的掺杂浓度的增大而增大,但由于空间电荷场较大,光栅的衍射效率会发生振荡。当 $N_s = 6 \times 10^{25} / \text{m}^3$ 时,饱和衍射效率降为最小值 12%,而此时的固定衍射效率则达到 87%。由此可知,可以增大浅中心的掺杂浓度来增强记录和固定光栅的强度,选取适当的掺杂浓度以满足固定光栅和固定衍射效率的实际要求。

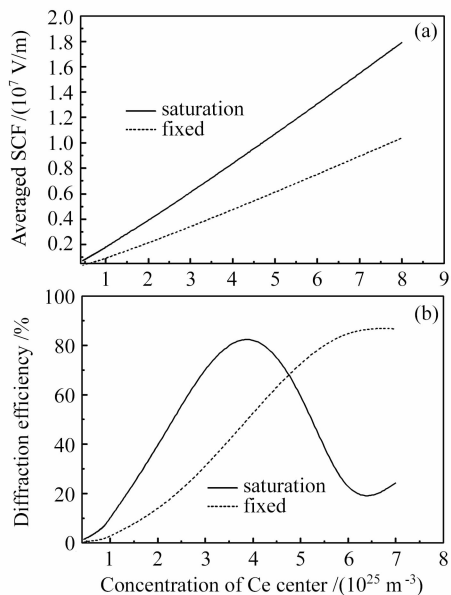


图 4 平均空间电荷场(a)和光栅的衍射效率(b)随浅中心掺杂浓度的变化

Fig. 4 Variations of (a) average SCF and (b) diffraction efficiency of grating with the concentration of Cu center

4 结 论

理论模拟了 $\text{LiNbO}_3:\text{Ce}:\text{Cu}$ 晶体中绿光的非挥发全息记录,分析了在绿光记录机制下各光折变参量对全息记录的影响。结果表明,绿光非挥发全息记录可得到强光折变光栅和高固定衍射效率;饱和空间电荷场总是随氧化程度的增加而增加,电子相对浓度在 0.6~0.95 较大范围内固定衍射效率都大于 60%;最佳的记录光和敏化光的光强比在 1~240 内均可获得较强的空间电荷场;深中心掺杂浓度在 $1 \times 10^{23} \sim 2 \times 10^{25} / \text{m}^3$ 范围内晶体内产生的饱和空间电荷场都比较强;晶体中记录和固定的空间电荷场都随浅中心的掺杂浓度的增大而增大,因此可以增大浅中心掺杂浓度来增强记录和固定空间电荷场。

参 考 文 献

- 1 K. Buse, A. Adibi, D. Psaltis. Non-volatile holographic storage in doubly doped lithium niobate crystals [J]. *Nature*, 1998, **393**(18):665~668
- 2 Youwen Liu, Liren Liu, Changhe Zhou. Prescription for optimizing holograms in $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ [J]. *Opt. Lett.*, 2000, **25**(8):551~553
- 3 A. Adibi, K. Buse, D. Psaltis. Two-center holographic recording [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2001, **18**(5):584~601
- 4 A. Adibi, K. Buse, D. Psaltis. Multiplexing holograms in $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ crystals [J]. *Opt. Lett.*, 1999, **24**(10):652~654
- 5 De'an Liu, Liren Liu, Youwen Liu *et al.*. Scattering-suppression in photochromic $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ nonvolatile holographic recording [J]. *Chin. Phys. Lett.*, 2001, **18**(8):1064~1066
- 6 Liyong Ren, Liren Liu, De'an Liu *et al.*. Recording and fixing dynamics of nonvolatile photorefractive holograms in $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ crystals [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2003, **20**(10):2162~2173
- 7 A. Adibi, K. Buse, D. Psaltis. Effect of annealing in two-center holographic recording [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1999, **74**(25):3767~3769
- 8 A. Adibi, K. Buse, D. Psaltis. System measure for persistence in holographic recording and application to singly-doped and doubly-doped lithium niobate [J]. *Appl. Opt.*, 2001, **40**(29):5175~5182
- 9 Y. Liu, L. Liu, C. Zhou. Nonvolatile photorefractive holograms in $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}:\text{Ce}$ crystals [J]. *Opt. Lett.*, 2000, **25**(12):908~910
- 10 X. Yue, A. Adibi, T. Hudson *et al.*. Role of cerium in lithium niobate for holographic recording [J]. *J. Appl. Phys.*, 2000, **87**(29):4051~4055
- 11 D. Liu, L. Liu, C. Zhou *et al.*. Nonvolatile holograms in $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Cu}$ by use of the bleaching effect [J]. *Appl. Opt.*, 2002, **41**(32):6809~6814
- 12 Y. Liu, L. Liu, D. Liu *et al.*. Intensity dependence of two-center nonvolatile holographic recording in $\text{LiNbO}_3:\text{Cu}:\text{Ce}$ crystals [J]. *Opt. Commun.*, 2001, **190**(6):339~343
- 13 Ren L., Liu L., Liu D.. Optimal switching from recording to fixing for high diffraction from a $\text{LiNbO}_3:\text{Ce}:\text{Cu}$ photorefractive nonvolatile hologram [J]. *Opt Lett.*, 2004, **29**(2):186~188
- 14 Chai Zhifang, Liu Dean, Zhi Yanan *et al.*. Photorefractive characteristics investigation in $\text{LiNbO}_3:\text{Ru}$ crystals [J]. *Acta Optica Sinica*, 2006, **26**(8):1245~1249
柴志方, 刘德安, 职亚楠等. $\text{LiNbO}_3:\text{Ru}$ 晶体的光折变特性研究[J]. *光学学报*, 2006, **26**(8):1245~1249
- 15 Li Dashan, Liu Dean, Zhi Yanan *et al.*. Near-infrared nonvolatile holographic recording in $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Rh}$ crystal [J]. *Chinese J. Lasers*, 2007, **34**(10):1398~1402
李大汕, 刘德安, 职亚楠等. $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Rh}$ 晶体近红外非挥发全息记录[J]. *中国激光*, 2007, **34**(10):1398~1402
- 16 Dai Cuixia, Yu Yingjie, Liu Dean *et al.*. Optimal recording wavelength for nonvolatile photorefractive holograms in $\text{Cu}:\text{Ce}:\text{LiNbO}_3$ [J]. *Chin. Phys. Lett.*, 2007, **24**(3):710~712