

BaTiO₃ 晶体中体全息栅的高效热定影

李承祥 张道范 张玉河 朱 镛 陈岩松

(中国科学院物理研究所, 北京 100080)

摘 要 报道了对 BaTiO₃ 晶体中体全息栅的热定影过程的研究结果, 对 BaTiO₃ 晶体中离子补偿栅形成的临界温度, 离子栅的形成与衍射光振荡间的关系, 离子栅的形成速度与温度的关系, 降温方式对热定影效率的影响进行了仔细的研究, 并实现了高效率的热定影。发现了高温擦除过程的有趣现象, 并对实验结果进行了分析。

关键词 全息栅, 衍射光, 热定影。

1 引 言

光折变材料是一种前景良好的光学存储与记录介质, 由于它独特的体全息栅记录方式, 使得它的存储量大、无失真、衍射效率高, 这对于许多光学信息处理和存储是非常理想的介质。另一方面由于它易被光擦除的特点, 也严重影响了它的应用。因此, 光折变晶体的体全息栅定影引起了国内外许多学者浓厚的兴趣, 早在 1971 年, Amodei 等人就利用加热的方法在 LiNbO₃ 晶体中实现了栅定影^[1], 他们把晶体加热到一定的温度, 使其中产生的离子栅补偿空间电荷栅, 降温以后用均匀光照射晶体, 将电子栅擦除而剩下离子栅即可实现体全息栅的定影, 其后 Micheron 及其合作者采用外加交流电场的方法在铌酸锶钡(SBN)中^[2]、McCahon 等采用外加交流电场和加热的方法在钛酸铋(BTO)中^[3]都实现了栅定影, 而作为性能优良的光折变晶体, 钛酸钡(BaTiO₃)中一直未能很好地实现栅定影, 直到近期, Feinberg 等才在两块由我所生长的 BaTiO₃ 晶体中观察到可固定栅并实现了栅定影^[4]。本文在此基础上, 对 BaTiO₃ 中热固定栅的形成与固定过程进行了进一步的研究, 观察到了一些有趣的新现象, 实现了高效率的栅定影, 并对实验结果进行了分析。

2 热固定理论

BaTiO₃ 光折变晶体中热定影栅的形成主要是由于高温条件下可移动离子对空穴电荷栅的补偿引起的。考虑这两种空间电荷的一维动力学方程为^[5, 6]

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial n}{\partial t} &= (s + \sigma I)D - \gamma n A + \frac{1}{e} \frac{\partial J_e}{\partial x}, & \frac{\partial D}{\partial t} &= -\frac{\partial A}{\partial t} = (s + \sigma I)D - \gamma n A, \\ \frac{\partial E}{\partial x} &= \rho/e, & \frac{\partial J_e}{\partial x} &= \frac{\partial H}{\partial x}, \\ J_e &= e\mu_n E + D_e \left(\frac{\partial n}{\partial x} \right), & J_h &= e\mu_p H E - D_h e \left(\frac{\partial H}{\partial x} \right) \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

式中 J_v 为空穴电荷电流密度, J_i 为离子电荷电流密度, D_v 为空穴电荷扩散常数, D_i 为离子电荷扩散常数, μ_v 和 μ_i 分别为空穴电荷和离子迁移率, H 为离子数密度, n 为载流子密度, D 、 A 分别为空间电荷施、受主数密度, s 为热激发率, σ 为光激发截面, γ 为复合常数, I 为光强, ρ 为总的电荷密度。

将样品加热到一定的温度 T_f 后, 其中产生可移动的离子。这时用写束在晶体中写入体相位栅, 由它引起离子栅补偿空穴电荷栅, 这一过程达到稳态时, 空穴电荷施、受主和离子数密度可表示为:

$$D = D_0 + M_s \cos(Kx + \Phi), \quad A = A_0 - M_s \cos(Kx - \Phi), \quad H = H_0 - h_s \cos(Kx + \Phi), \tag{2}$$

式中 M_s 、 h_s 分别为空穴电荷栅和离子栅稳态幅值, 在准平衡态近似 $(\partial n / \partial t) = 0$ 下^[5], 将方程组(2)代入方程组(1)可得稳态电子数密度表达式为:

$$n(t) = n_0 + (n_0 \beta M_s \cos \Phi + n_0^2 m) \cos Kx - n_0 \beta M_s \sin \Phi \sin Kx \tag{3}$$

式中 $n_0 = n_0^p + n_0^d$, $n_0^p = sD / \gamma A$, $n_0^d = \sigma ID / \gamma A$, Φ 为位相, m 为光强调制度, $\beta = (1/D_0) + (1/A_0)$ 。将(2)式和(3)式, 代入方程(1), 经过一些代数运算可得:

$$h_s = M_s [1 + (K_b T e / e^2) (K^2 / H_0)]^{-1} \tag{4}$$

式中 K_b 为波尔兹曼常数, $K = 2\pi / \Lambda$ 为光栅波矢, Λ 为光栅间距。高温产生了固定栅, 冷却到室温后用均匀光擦除空穴栅, 即可得到固定栅调制幅度为^[6]:

$$\rho_D = h_s [1 + e^2 / e \beta K_b T K^2]^{-1} \tag{5}$$

3 实验结果及分析

3.1 实验装置

实验使用的两块 $BaTiO_3$ 晶体为我所生长, 其尺寸分别为 $c \times a \times a = 5.19 \times 5.20 \times 5.07 \text{ mm}^3$ 和 $5.92 \times 6.25 \times 6.20 \text{ mm}^3$ 。将晶体置于一个由 Eurotherm 818p 温控仪控制的加热炉中(控温精度为 $\pm 0.1 \text{ C}$); 两束功率分别为 6.3 mW 和 6.9 mW、 $\lambda = 514.5 \text{ nm}$ 的寻常偏振 Ar^+ 激光入射到晶体上, 作为写入束, 两束光之间晶体外的夹角为 28° , 任一束写光均可作为擦束以观察离子栅形成过程之用; 一束 $\lambda = 633 \text{ nm}$ 的异常偏振 He-Ne 激光以布拉格匹配角入射到晶体上。作为读出光束, 体全息栅衍射光由探测器 P_1 (Newport M835) 接收信号输入到计算机, He-Ne 激光器的功率和透过晶体的光分别由探测器 D_2 和 D_1 监测, 整个实验系统置于一个防震平台上, 光路示意图如图 1 所示。

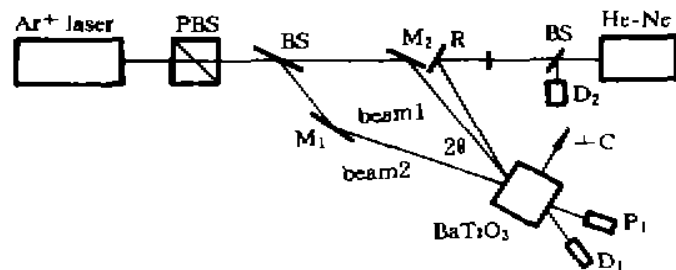


Fig. 1 Schematic of the experimental setup
 PBS-polarized beam splitter, BS-beam splitter, M_1 , M_2 and R-Mirrors, D_1 , D_2 -power meters, P_1 -power meter (Newport M835)

3.2 高温可固定栅的形成

将 $BaTiO_3$ 晶体加热到一定的温度 T_f 后并恒温, 保持写束照射在晶体上(由于高温时电荷栅的热弛豫速率较快, 这样能够更好地观察到可固定栅的形成), 从 He-Ne 光的衍射输出可以观察到补偿空穴电荷栅的离子栅的形成过程。改变 T_f 的值, 记录不同温度条件下的衍射强

度 $I(t)$ 的时间演变, 即不同 T_f 条件下可固定栅的形成过程, 实验结果如图 2 所示, 从图 2 不难看出, 当温度低于 65°C 时, $I(t)$ 基本保持不变, 表明没有离子栅形成; 当温度高于 78°C 时, $I(t)$ 随时间逐渐衰减, 这表明有离子栅形成, 由于离子栅补偿空穴电荷栅, 从而导致衍射强度 $I(t)$ 的衰减; 通过对两块晶体的多次实验, 作者发现 BaTiO₃ 中离子补偿栅的形成速度是相当缓慢的, 并且随着温度的提高, $I(t)$ 的衰减速率加快, 也就是说离子栅的形成速率随温度的提高而加快, 以 $I(t)$ 变化曲线的下包络线(振荡现象下面讨论)达到稳态作为离子栅补偿空穴栅的形成时间, 实验结果显示当 T_f 从 78°C 变化到 100°C 时, 离子补偿栅的形成时间从大约 30 min 减小到大约 10 min(见图 2(b)和 2(c))。

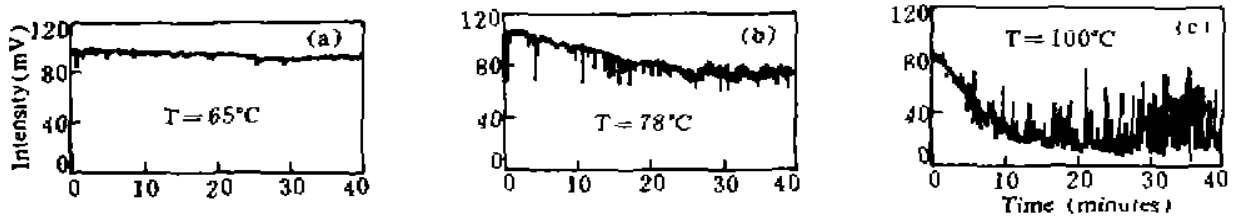


Fig. 2 Time evolution of diffraction intensity $I(t)$ at different T_f

在离子栅的形成过程中, 作者发现衍射光有明显的振荡抖动, 并且随着时间的演化, 衍射光的平均光强越来越低, 抖动的振幅变大, 直到离子补偿栅完全形成。这时衍射光的平均强度达到稳定, 其抖动的振幅也达到稳定状态, 抖动的周期大约为 3 秒(参见图 3)。经过作者多次实验观察与分析, 认为形成这一振荡的主要原因是晶体中写束的空间位置随机漂移(引起这种激光束空间位置随机漂移的原因有待进一步研究, 作者认为很可能是加热炉内的热湍流), 在热固定过程中晶体内存在着两种相差 π 位相的栅, 即空穴电荷栅和离子栅, 由于前者的弛豫时间非常短(约为几百毫秒), 而后者的弛豫时间相当长(约为几分钟), 这样, Ar⁺ 激光束空间位置漂移就导致空穴电荷栅随之发生漂移, 而离子栅却几乎不移动, 从而导致这两种栅之间的位相差不再固定为 π , 而是随着激光束的位置漂移而改变, 这样就导致了衍射光随时间的无规飘移。

为了进一步证实作者的分析, 在离子栅形成达到稳态后, 关闭两束 Ar⁺ 写光, 观察栅的时间演变情况, 实验结果如图 3 所示。从图 3 可以看到, 关闭 Ar⁺ 写束后, 衍射光的随机抖动立即消失, 并开始一个比较缓慢的衰减过程(主要是由高温条件下空穴电荷栅的热弛豫及由此引起的离子栅衰减造成的), 这从另一方面有力地支持了上述结论。

比较图 2(b)和 2(c)还可以发现, 随着 T_f 的增大, 离子栅的最终补偿率明显提高。为了对这一现象有更好的理解, 可以考虑衍射光强度 $I(t)$, 它正比于固定栅调制幅度 ρ_D 的振幅的平方,

$$\rho_D = M(t) \cos(Kx + \theta(t)) + h(t) \cos(Kx + \pi) \tag{6}$$

$$I(t) = F \{ M^2(t) [1 - a(t)]^2 + 2a(t)M^2(t)[1 - \cos(t)] \} \tag{7}$$

其中 $M(t)$ 和 $h(t)$ 分别为空穴电荷栅和离子栅的幅度, K 为体全息栅的波矢, $\theta(t)$ 为激光束位置漂移引起的两种栅之间的相位差, $a(t) = h(t)M(t)$ 为离子栅的补偿率, F 为比例系数, 与晶

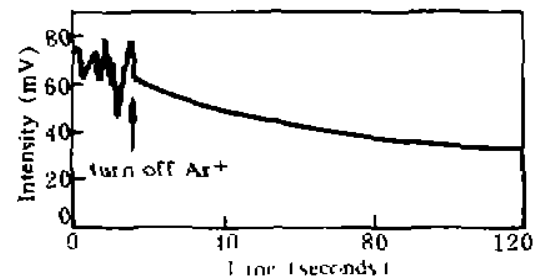


Fig. 3 Light intensity versus time at 95°C

体参数和接收器灵敏度等有关。(7)式右边第二项为随机飘移项,第一项为理想补偿的衍射强度,以 I_0 表示之:

$$I_0 = FM^2(t)[1 - \alpha(t)]^2 \quad (8)$$

根据上面的讨论,以 $I(t)$ 的下包络线即(8)式作为离子栅补偿的表达式,并利用 $\alpha(0) = 0$,当 T 从 78°C 增大到 100°C 时,从图 2(b)和 2(c)的实验数据可计算出,离子栅的最终补偿率 α 从 20% 提高到 43%,作者认为这主要是由于离子平均密度 H_0 随 T_f 的变化引起的,将图 2(b)和 2(c)的 α 值代入(4)式可得到: $r = H_0(T = 100^\circ\text{C})/H_0(T = 78^\circ\text{C}) = 3.2$ 。考虑到探测器 P_1 的响应时间因素, r 的值可能比计算的还要大。

3.3 高温擦除与两波耦合

为了解离子栅和空穴电荷栅的高温弛豫特性,在离子补偿栅达到稳态以后,进行了光擦除过程的研究。根据理论分析^[4,7],擦除过程中的衍射光强 $I(t)$ 为:

$$I(t) \propto |A_f \exp(-t/\tau_f) - A_s \exp(-t/\tau_s)|^2 \quad (9)$$

式中 A_f 、 A_s 分别为电荷栅和离子栅的振幅, τ_f 、 τ_s 分别为电荷栅和离子栅的时间常数。作者在实验中观察到一有趣的现象:分别用光束 1 和光束 2 擦除时,衍射光的擦除曲线明显不同,图 4(a)和图 4(b)所示为同次实验中分别用光束 1 和光束 2 擦除时的实验曲线,从中可以看到,两个方向的擦除曲线都呈先下降再回升然后再缓慢下降的特性。不同之处在于当用束 1 擦时,曲线的回升幅度明显比用束 2 擦时要大。通过多次实验重复,证实上述现象的存在。对于上述现象,作者认为可能是由于 Ar^+ 擦束的透射光与衍射光之间的二波耦合造成的。在擦除过程中,初始空穴栅很快就被擦除了,所以影响上述两个不同方向擦除的主要因素是离子栅和耦合栅。当用束 1 擦时,衍射光与透射光之间发生耦合,透射光能向靠近晶体 +C 方向的衍射光耦合,耦合栅与离子栅同位相,使晶体内栅得到加强;而当用束 2 擦除时,衍射光能向靠近晶体 +C 方向的透射光耦合,耦合栅与离子栅位相差 π ,使晶体内栅减弱,这样就导致束 1 擦时回升幅度比用束 2 时回升幅度大的实验现象。按照以上的定性解释,并对二波耦合过程按准指数过程近似,可用下式描述这一擦除过程:

$$I(t) = \{A_f \exp(-t/\tau_f) - A_s \exp(-t/\tau_s) \pm A_c(t) (1 - \exp[-t/\tau_c(t)])\}^2 \quad (10)$$

式中 $A_c(t)(1 - \exp[-t/\tau_c(t)])$ 表示二波耦合项, $A_c(t)$ 和 $\tau_c(t)$ 分别为其振幅与时间常数, \pm 对应两个不同方向的擦除过程。由于擦除过程中衍射光的动态特点,使得对这一过程的精确描述与拟合有困难,有待于进一步的研究。

作者做了 BaTiO_3 晶体常温下的擦除实验,其结果如图 5 所示,与高温擦除结果比较,常温条件下擦除曲线是一单调指数衰减曲线,这是由于不存在离子栅的原故。用 $I(t) = A \exp(-t/\tau_f)$ 进行了拟合,结果为:用束 1 擦时 $\tau_1 = 1.21 \text{ s}$,用束 2 擦时 $\tau_2 = 0.61 \text{ s}$ 。

3.4 栅定影

在离子栅补偿空穴电荷栅达到稳定后,将晶体冷却到室温即可实现栅定影。在实验过程中,作者尝试了几种定影方式以比较它们的定影效率:(a)高温下关闭写束,以 $1^\circ\text{C}/\text{min}$ 的速度降至室温;(b)高温下关闭写束,以 $2^\circ\text{C}/\text{min}$ 的速度降至室温;(c)保持写束,以较快的速度 ($2^\circ\text{C}/\text{min}$) 降至 78°C ,然后关闭写束,以 $1^\circ\text{C}/\text{min}$ 的速度降至室温。实验结果表明,方式(c)的定影效果是最好的,方式(b)比(a)的效果要好一些。对此,作者解释是,方式(a)和(b)在高温下关闭写束降温,在降温过程中空穴电荷栅的衰减引起离子栅的减弱,从而降低了定影效率,而方式(c)在降温过程中保持写束照在晶体上,晶体内一直维持空穴电荷栅的存在,

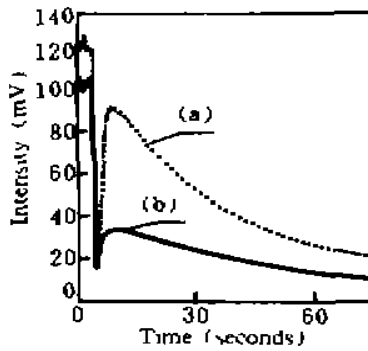


Fig. 4 Time evolution of the intensity for grating erasure at 95 C

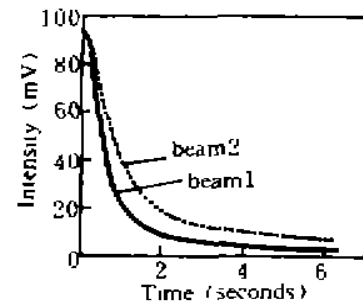


Fig. 5 Grating erasure curve at room temperature

直到离子栅的定影温度以下才关闭写束,这样就有效地防止了降温过程中离子栅的衰减,从而提高了定影效率。

冷却后的晶体用均匀 Ar⁺ 激光照射,擦除其中空穴栅,即得到定影栅。有趣的是,用 He-Ne 激光沿 -C 方向读出定影栅的衍射强度随着时间有自增强效应,读出的被定影强度的自增强曲线如图 6 中曲线(a)所示,作为对比,曲线(b)示出了沿 -C 方向的读出呈缓慢的自衰减结果。引起这一现象的原因可能是读出束的透射光与衍射光之间的二波耦合^[4, 6, 9]。对于上述(c)的定影方式,自增强固定效率 $\eta = I_f/I_0$ 可高达 50%,其中 I_f 为被定影的自增强衍射极限强度, I_0 为同样条件下常温电荷栅的衍射强度。

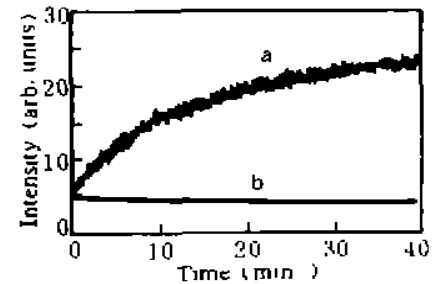


Fig. 6 The self-enhancement and self-depletion effects in BaTiO₃

结 论 利用本所生长的晶体,对 BaTiO₃ 中体全息栅的热定影过程进行了仔细的实验研究。通过实验研究与分析,发现 BaTiO₃ 晶体中离子补偿栅形成的临界温度大约为 78 C,低于此温度条件下没有离子栅形成,高于此温度时可观察到离子补偿栅的形成,并且离子栅的形成速率与温度有关,温度低时速率较慢,温度高时较快;由于热湍流的存在,在离子栅的形成过程中可以观察到明显的衍射光的抖动现象,这可以作为离子补偿栅形成的一个有力判据;离子补偿栅的存在使得用不同的写束擦除过程明显不同,作者多次观察并记录了这一现象,对它的进一步研究正在进行中。在对热定影的 BaTiO₃ 进行读出的过程中,发现了固定栅的自增强效应,自增强的定影效率高达 50%。

参 考 文 献

- [1] Juan J. Amodei, David L. Staebler, Holographic pattern fixing in electro-optic crystals. *Appl. Phys. Lett.*, 1971, 18(12): 540~545
- [2] F. Micheron, G. Bismuth, Field and time thresholds for the electrical fixation of holograms recorded in (Sr_{0.75}Ba_{0.25})Nb₂O₆ crystals. *Appl. Phys. Lett.*, 1973, 23(2): 71~72
- [3] S. W. McCahon, D. Rytz, G. C. Valley et al., Hologram fixing in Bi_{1/2}TiO₂₀ using heating and an ac electric field. *Appl. Opt.*, 1989, 28(11): 1967~1969
- [4] D. Kirillov, J. Feinberg, Fixable complementary gratings in photorefractive BaTiO₃. *Opt. Lett.*, 1991, 16(19):

1520~1522

- [5] N. V. Kukhtarev, V. B. Markov, S. G. Odulov *et al.*, Holographic storage in electrooptic crystals. I. steady state, *Ferroelectrics*, 1979, **22**(3/4): 949~960
- [6] M. Carrascosa, F. Agullo-Lopez, Theoretical modeling of the fixing and developing of holographic gratings in LiNbO_3 . *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1990, **7**(12): 2317~2322
- [7] M. Carrascosa, F. Agullo-Lopez, Kinetics for optical erasure of sinusoidal holographic gratings in photorefractive materials. *J. Quant. Electron.*, 1986, **QE-22**(8): 1369~1375
- [8] M. Segev, A. Kewitsch, A. Yariv, Self-enhanced diffraction from fixed photorefractive gratings during coherent reconstruction. *Appl. Phys. Lett.*, 1993, **62**(9): 907~909
- [9] C. Gu, P. Yeh, Diffraction properties of fixed gratings in photorefractive media. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1990, **7**(12): 2339~2346

High Efficiency Thermal Fixing of Holographic Grating in BaTiO_3

Li Chengxiang Zhang Daofan Zhang Yuhe Zhu Yong Chen Yansong

(*Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080*)

(Received 22 January 1995; revised 25 July 1995)

Abstract This letter reports the results of thermal fixing of holographic grating in BaTiO_3 crystal, predicating the critical temperature of the formation of complementary ionic grating, the relation between the speed of ionic grating formation and temperature, the relation between the ionic grating formation and the diffractive light oscillation and the effect of different cooling ways on the efficiency of thermal fixing. Thermal fixing of holographic grating with high efficiency is also achieved. We have also observed some new interesting features of erasing in high temperature and present explanations of the experimental results.

Key words holographic grating, diffracted light, thermal fixing.