

# Fe·LiNbO<sub>3</sub> 晶体光折变全息热固定 动力学特性分析\*

李建郎 刘立人 刘友文 王淮生 周常河  
(中科院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

**摘 要** 以 Fe·LiNbO<sub>3</sub> 晶体为例, 考虑了电子载流子热激发(强烈地依靠于温度), 通过对以扩散和光伏特效应为主导运输机制的带运输方程和耦合波方程进行数值求解, 分析了热固定过程初始光强入射比和固定温度对光栅空间电荷场的影响, 指出记录固定过程中内电场极值的出现来源于质子电场对施主光栅电场的部分补偿, 质子光栅电荷场可以导致晶体中记录光束之间能量耦合方向的变化, 得出了理论上的加热固定时间。

**关键词** 光折变全息光栅, 同时记录热固定, 数值解。

## 1 引 言

两波耦合被用来在光折变材料中写入体全息存储信息, 其主要机制是经由泡克耳斯效应在光折变材料内形成按照光强样式的折射率分布。为了避免读出光对折射率光栅的擦除或重布, 晶体需要被加热(100~200 °C 范围), 达到热固定, 以使热激发离子移动对载流子光栅复制补偿, 得到对光不敏感的离子光栅。

由于 Fe·LiNbO<sub>3</sub> 晶体等光折变材料具有全息光存储方面的潜在应用价值, 热固定过程和离子的作用被广泛地进行了研究, 且工作的焦点在于获得高的衍射效率。目前大部分工作仅涉及稳态条件下空间均匀<sup>[1,2]</sup>或不均匀<sup>[3]</sup>固定光栅(不一定是通过热固定)的衍射, 缺乏对热固定空间不均匀光栅动态过程的分析, 而全面的分析需要对带运输方程和二波耦合方程联立求解。根据带运输模型理论, 光折变效应有扩散、漂移和光伏特三种运输机制。以前的分析为了简化往往忽略光折变晶体(Fe·SBN、BaTiO<sub>3</sub>、或轻掺杂 Fe·LiNbO<sub>3</sub> 等)的光伏特效应<sup>[4]</sup>, 但对于实际用于光存储的掺铁铌酸锂由于较高掺杂浓度以及较大光伏系数, 这种简化不再成立。同时电子载流子的热激发是温度的函数<sup>[1]</sup>, 在一定范围高温下记录热固定时已不能被作为远小于电子载流子光激发几率的常数对待。

本文以 Fe·LiNbO<sub>3</sub> 晶体为例, 考虑载流子热激发和光伏特效应, 数值求解带运输方程和耦合波方程, 从耦合角度分析探讨在高温下记录热固定光折变全息光栅的动力学过程。

\* 国家自然科学基金(69837020)、中国科学院(KJ952-J1-T14)和上海应用物理中心(97JC14002)资助项目。  
收稿日期: 1999-05-24; 收到修改稿日期: 1999-08-30

## 2 理论模型

热固定光栅的动力学过程是光场与材料相互作用的过程。假定光折变材料只有一种杂质掺杂,光激发载流子为电子,热激发补偿离子为质子。

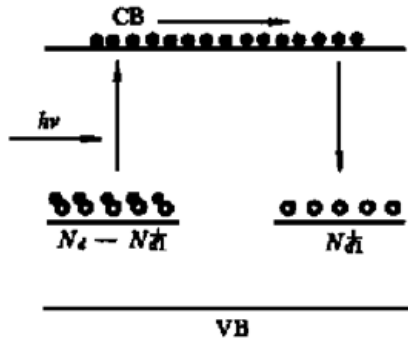


Fig. 1 Band transport model. CB: conduction band; VB: valance band; • stands for electron; ° trap;  $h\nu$ : the energy of incident light.

对图 1 所示光折变运输模型,入射光强

$$I = I_0 + \text{Re}[I_0 m \exp(-iKx)]/2 + C. C.]$$

式中  $I_0$  为总光强,  $K$  为干涉波矢。调制度  $m \leq 0.8$  (定义见后) 时,对各空间变量作一阶傅里叶近似,同时考虑慢变化复振幅近似和准稳态近似<sup>[5-7]</sup>, Kukhtarev 带运输物质方程可被线性化为热移动离子和电子载流子一阶光栅相互作用耦合及其合电场的一组偏微分方程<sup>[5,8,9]</sup>:

$$\frac{\partial N_{dl}^+}{\partial t} = C_1 N_{dl}^+ + C_2 n_{il} + C_3 m, \quad (1a)$$

$$\frac{\partial n_{il}^+}{\partial t} = C_4 N_{dl}^+ + C_5 n_{il}, \quad (1b)$$

$$E_{sc} = \frac{ie}{\epsilon\epsilon_0 K} (N_{dl}^+ + n_{il}), \quad (1c)$$

各系数定义如下

$$C_1 = \frac{-\omega \gamma_e N_a - (sI_0 + \beta)(N_{dl}/N_a)(D_e K^2 + i\mu_e K E_0) - iK s L_{ph} I_0 \gamma_e N_a}{\gamma_e N_a + D_e K^2 + i\mu_e K E_0}, \quad (2a)$$

$$C_2 = \frac{-\omega \gamma_e N_a}{\gamma_e N_a + D_e K^2 + i\mu_e K E_0}, \quad (2b)$$

$$C_3 = \frac{1}{2} \cdot \frac{sI_0(D_e K^2 + i\mu_e K E_0) + iK s L_{ph} I_0 \gamma_e N_a}{\gamma_e N_a + D_e K^2 + i\mu_e K E_0}, \quad (2c)$$

$$C_4 = -\omega, \quad (2d)$$

$$C_5 = -(\omega + D_i K^2 - i\mu_i K E_0), \quad (2e)$$

其中  $N_d$  是整个杂质掺杂浓度,  $N_{dl}^+$  是被电离的空的陷阱浓度,  $n_{il}$  为热移动离子(质子)浓度,  $n_{e0}$  为自由电子平均浓度,  $N_a$  为无光照时空陷阱浓度,  $n_{i0}$  为离子的平均浓度,  $E_{sc}$  为晶体内一阶空间电荷场电场强度,  $E_0$  为外加直流电场,  $K$  为干涉波矢,  $T$  为绝对温度,  $D_e = D_{e0} \exp(-\epsilon_e/K_B T)$  为电子扩散系数,  $D_i = D_{i0} \exp(-\epsilon_i/K_B T)$  为质子扩散系数,  $D_{e0}$  为质子的扩散系数的前置因子,  $D_{i0}$  为质子的扩散系数的前置因子,  $\mu_e = eD_e/K_B T$  为电子迁移率,  $\mu_i = eD_i/K_B T$  为质子迁移率,  $\beta = \beta_0 \exp(-\epsilon_d/k_b T)$  为热激发载流子系数,  $s$  为光电离横截面系数,  $\gamma_e$  为载流子复合系数,  $I$  为辐照光强,  $\epsilon$  为介质相对介电系数,  $\epsilon_0$  为真空中介电系数,  $L_{ph}$  为光伏打长度,  $K_B$  为玻耳兹曼常数,  $\epsilon_d$  为载流子热激活能,  $\epsilon_i$  质子激活能,  $\epsilon_e$  电子激活能,  $\omega_e = e\mu_e n_{e0}/\epsilon\epsilon_0$ ,  $\omega_i = e\mu_i n_{i0}/\epsilon\epsilon_0$  分别为导带中自由载流子和离子的介电弛豫率,  $n_{e0}$  为自由电子平均浓度,  $n_{i0}$  为离子的平均浓度。

对有效电光系数为  $r_{eff}$  的非线性介质,空间电荷场一阶分量  $E_{sc}(z)$  经由电光效应引起折射率变化为

$$n_p(z) \exp(i\phi) = \frac{1}{2} n_0^3 r_{eff} E_{sc}(z), \quad (3)$$

该折射率变化导致介质中信号光和参考光之间的耦合,于是有如下耦合波方程:

$$\frac{dA_1}{dz} = -i \frac{\pi}{\lambda \cos \theta} n_p(z) \exp[-i\phi(z)] A_2 - \frac{\alpha}{2} A_1, \quad (4a)$$

$$\frac{dA_2}{dz} = -i \frac{\pi}{\lambda \cos \theta} n_p(z) \exp[-i\phi(z)] A_1 - \frac{\alpha}{2} A_2. \quad (4b)$$

上式中  $\lambda$  为光波波长,  $\alpha$  为吸收系数,  $A_1$ 、 $A_2$  为光波振幅,  $n_p$  是实数,  $\phi$  是折射率光栅相对于干涉光场的相移。总光强  $I_0 = |A_1(0)|^2 + |A_2(0)|^2$ , 初始光强比  $r = |A_1(0)|^2 / |A_2(0)|^2$ , 相应地介质中光强条纹复调制度  $m(z) = 2A_1^*(z)A_2(z) / [|A_1(z)|^2 + |A_2(z)|^2]$ 。

### 3 数值计算

采用 Heaton 和 Solymar 建议的数值方法<sup>[10,11]</sup>, 对 (1a) ~ (1c) 和 (4a)、(4b) 组成的方程组求解。其物理思想如下: 在体全息同时记录固定过程, 晶体被加热到固定温度。初始条件认为  $t = 0$  时刻两束记录光光强未随晶体深度改变, 整个晶体内部电场为零。从  $t = t_0$  开始的极小时间间隔  $\Delta t$  内, 不同  $z$  处光强仍保持  $t_0$  时刻振幅, 由于光激发载流子按照光强分布, 离子对载流子进行补偿, 在材料内部形成内电场  $E_{sc}(t_0 + \Delta t, z)$  ( $t \geq 0$ ) 和折射率光栅, 折射率光栅导致两束光之间耦合, 根据耦合波方程 (4a)、(4b), 可确定一个新的光强随  $z$  的分布, 即新的调制度及其相位信息。新的调制度及其相位信息再次被用来决定下一个时间间隔  $\Delta t$  后的内电场和折射率。如此不断循环将得到直至稳态时的热固定光栅的动力学过程。

数值解的精确度依赖于步长和的幅度, 数值模拟过程中需要不断调节它们的大小同时采用这样一个简单的标准, 当结果独立于步长时即认为正确的结果已被获得<sup>[4,10]</sup>。

### 4 结果和讨论

数值模拟以 Fe·LiNbO<sub>3</sub> 晶体为例, Fe<sup>2+</sup>/Fe<sup>3+</sup> 分别充当施主和受主, 热激活离子为质子 (H<sup>+</sup>), 设定室温  $T_r$  为 300 K, 固定温度  $T_f$  取 350~480 K 的范围。对于图 2 记录结构, 两束寻常偏振 488 nm 的 Ar<sup>+</sup> 激光作为记录光,  $\theta = 10^\circ$ , 寻常光折射率  $n_o = 2.286$ 。 $z = 0$  处总光强  $I_0 = 6000 \text{ W/m}^2$ 。晶体厚度  $d = 3 \text{ mm}$ 。其它相关晶体参数选择如表 1。数值计算过程中始终设定外加电场  $E_o = 0$ , 同铌酸锶钡(SBN)晶体相比, Fe·LiNbO<sub>3</sub> 晶体的光伏打效应强烈依靠于掺杂浓度和光强, 光折变运输机制以扩散和光伏打效应为主。

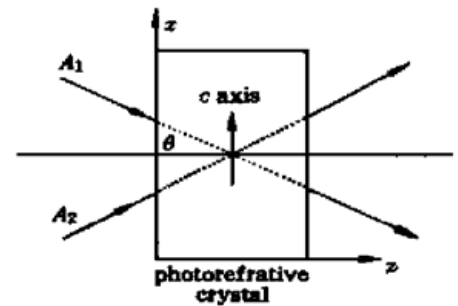


Fig. 2 The recording geometry

Table 1 Parameters used for LiNbO<sub>3</sub> in the analysis

Parameter	Value	References	Parameter	Value	References
$\gamma_e / (\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1})$	$1 \times 10^{-15}$	[12]	$N_{i0} / \text{m}^{-3}$	$1 \times 10^{25}$	[8]
$s / (\text{m}^2 \cdot \text{J}^{-1})$	$3 \times 10^{-15}$	[12]	$N_{e0} / \text{m}^{-3}$	$6.2 \times 10^{15}$	[8]
$L_{ph} / \text{m}$	$5 \times 10^{-10}$	[12]	$\epsilon$	20	
$N_a / \text{m}^{-3}$	$8 \times 10^{24}$		$\epsilon_t / \text{eV}$	1.0	[1]
$D_d / \text{m}^{-3}$	$1 \times 10^{25}$		$\epsilon_n / \text{eV}$	1.2	[1]
			$\epsilon_v / \text{eV}$	0.2	[1]

在  $T_f = 400\text{ K}$  时, 图 3(a)~ 图 3(c) 给出晶体深度  $z = 1.5\text{ mm}$  处全息光栅折射率调制度、施主光栅浓度、质子光栅浓度和内电场光栅的强度随时间的变化。在图 3(a) 中, 电子由于光照和热激发, 从施主能级迅速跃迁到导带, 并被  $\text{Fe}^{3+}$  离子俘获, 形成施主和受主光栅。而质子在高温下被激活, 在电子光栅电场作用下漂移或扩散对电子光栅进行补偿, 其弛豫频率比电子的弛豫频率慢得多。施主光栅浓度和质子光栅浓度随时间相应增大并在大约 30 min 左右趋于各自的稳态。这可被认为是在光折变晶体中利用加热方法充分记录固定一个体全息所需的时间, 这同大部分实验一致<sup>[5]</sup>。

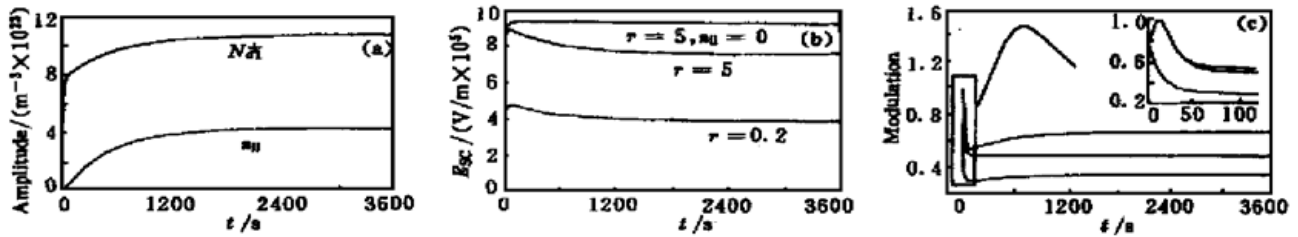


Fig. 3 (a) Amplitudes of donor grating and ion grating concentration versus simultaneous writing/fixing time  $t$  at 400 K under initial intensity ratios  $r = 5$ . (b) Internal space charge field versus simultaneous writing/fixing time  $t$  at 400 K. (c) Grating amplitude modulation  $m$  versus simultaneous writing/fixing time  $t$  under different initial intensity ratios  $r$  at 400 K.

图 3(b) 中对不同的光强初始入射比  $r$ , 全息光栅内部合电场在极短时间达到一个极大值后逐渐下降趋于稳态。令  $r = 5$ , 假定热激发质子浓度  $n_{il} = 0$ , 只有施主光栅对内部合电场有贡献时的退化还原(没有质子对电子光栅进行补偿)曲线也被给出(用  $n_{il} = 0$  标记), 它并没有极值。我们可以解释为电场极值的出现来源于慢弛豫频率热激发质子电场对快弛豫频率施主光栅电场(符号相反)的部分补偿。

图 3(c) 中给出晶体内部调制度随时间变化曲线。 $r < 1$  时折射率调制度  $m$  迅速下降, 发生从信号光到参考光的瞬态能量转移, 下降到极小值后能量开始从参考光向信号光转移直至  $m$  逐渐上升趋于稳定值。当  $r > 1$ , 调制度  $m$  在极短时间增大到 1(此阶段能量转移方向从参考光向信号光, 尽管瞬间有高调制度  $m > 0.8$ , 但因为外加直流电场  $E_0 = 0$ , 所以认为同小调制度近似的前提并不矛盾, 只有外加电场  $E_0 \neq 0$  而且相当大时它的影响才被认为是重要的<sup>[4]</sup>), 随之呈现同  $r < 1$  相同的变化。令  $r = 5$ , 假定质子浓度  $n_{il} = 0$ , 得到只有电子载流子输运时调制度的动态还原退化曲线, 极小值消失。这表明热固定全息时, 如同外加直流电场一样, 足够大的  $\text{H}^+$  光栅电荷场导致了晶体中记录光束之间能量耦合方向的变化<sup>[13]</sup>。

高温下同时记录固定达到稳态后, 迅速冷却晶体到室温 300 K(认为质子和电子在暗环境中冷却时幅度不变)。用均匀光强  $I_0$  擦除显影电子光栅后, 空间电荷场强度将主要取决于质子光栅强度。

在  $T_f = 400\text{ K}$  时, 显影后晶体空间内电场  $E_{sc}$  随深度  $z$  的变化如图 4 所示(实曲线  $I_0 = 6000\text{ W/m}^2$ ; 虚曲线  $I_0 = 1000\text{ W/m}^2$ )。当光强相同, 对于不同初始光强比, 空间内电场波包在不同  $z$  处获得相同峰值, 随  $r$  增大, 峰值向晶体深处移动。相同光强比情况下, 对同一晶体深度  $z$ , 较大光强对应较大空间内电场。

图 5 描述  $I_0 = 6000\text{ W/m}^2$  时, 显影后空间内电场  $E_{sc}(z = 1.5\text{ mm})$  随固定温度的变化。由图看出对不同的初始光强入射比, 曲线有相似的形状, 对任何光强比, 固定温度在 350~ 490 K

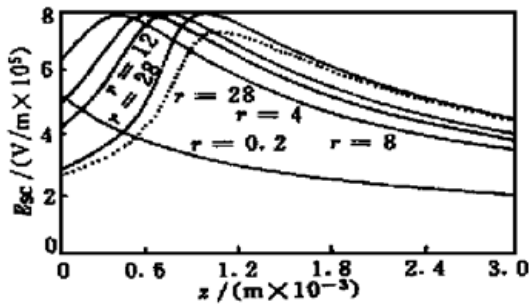


Fig. 4 Developed space charge field  $E_{sc}$  versus crystal depth  $z$  at  $T_f = 400$  K under different initial intensity ratios  $r$ . —  $I_0 = 6000$  W/m<sup>2</sup>, .....  $I_0 = 1000$  W/m<sup>2</sup>.

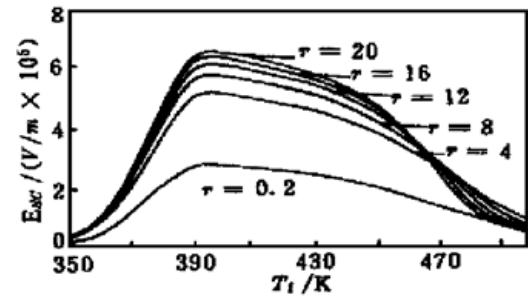


Fig. 5 Developed space charge field  $E_{sc}$  versus fixing temperature  $T_f$  at  $z = 1.5$  mm under different initial intensity ratios  $r$ .

的区间范围内都可固定全息,但在 390~ 440 K 的范围有较大值,据此可以确定同时记录固定光折变全息实验的最优温度, Meyer 的实验也给出这个结论<sup>[10]</sup>。在大于 460 K 或小于 350 K 时内电场强度明显减小,将只能固定一个微弱的全息,固定的全息光栅强度或固定效率同固定温度以及初始光强入射比有关。

**结 论** 掺铁铌酸锂光折变光栅记录热固定动力学过程展现施主( $\text{Fe}^{2+}$ )光栅、质子( $\text{H}^+$ )光栅以及光场在整个晶体中相互作用的过程。本文数值求解带输运方程和耦合波方程,分析了热固定过程光强、初始光强入射比和固定温度对光栅空间电荷场的影响,指出记录固定过程中内电场极值的出现来源于慢弛豫频率热激发质子电场对快弛豫频率施主光栅电场(符号相反)的部分补偿, $\text{H}^+$ 光栅电荷场可以导致晶体中记录光束之间能量耦合方向的变化。同时也得出理论上的加热固定时间。由于极大的数值计算量,这里给出的结论只是初步的。

本文暂时只涉及小调制度近似和无外加电场( $E_0 = 0$ )的情况,进一步更全面的工作还应当考虑存在外加电场( $E_0 \neq 0$ )和高光栅调制度( $m > 0.8$ ),此时载流子漂移和折射率光栅高阶分量的影响有可能在光折变热固定过程中扮演相当重要的角色。

### 参 考 文 献

- [1] Carrascosa M, Agullo-lopez F. Theoretical modeling of the fixing and developing of holographic gratings in LiNbO<sub>3</sub>. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1990, **7**(12): 2317~ 2322
- [2] Gu C, Yeh P. Diffraction properties of fixed gratings in photorefractive media. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1990, **7**(12): 2339~ 2346
- [3] Segev M, Kewitsch A, Yariv A *et al.*. Self-enhanced diffraction from fixed photorefractive gratings during coherent reconstruction. *Appl. Phys. Lett.*, 1993, **62**(9): 907~ 909
- [4] Jeganathan M, Hesselink L. Diffraction from thermally fixed gratings in a photorefractive media: Steady-state and transient analysis. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1994, **11**(9): 1791~ 1799
- [5] Yariv A, Orlov S. Holographic storage dynamics in lithium niobate: Theory and experiment. *J. Opt. Soc. Am. (B)*, 1996, **13**(11): 2513~ 2523
- [6] Hesselink L, Bashaw M C. Optical memories implemented with photorefractive media. *Opt. Quant. Electron.*, 1992, **QE-25**(3): s611~ s661
- [7] Buse K. Light-induced charge transport process in photorefractive crystal I: Models and experimental methods. *Appl. Phys. (B)*, 1997, **64**(3): 273~ 291
- [8] Liu B, Liu L, Xu L. Characteristics of recording and thermal fixing in lithium niobate. *Appl. Opt.*, 1998,

37(11): 2170~ 2176

- [9] 刘 波, 刘立人, 徐良瑛.  $\text{LiNbO}_3$  中光折变全息的热固定特性. 光学学报, 1999, **19**(7): 941~ 947
- [10] Heaton J M, Solymar L. Transient energy transfer during hologram formation in photorefractive crystals. *Opt. Acta*, 1985, **32**(4): 397~ 408
- [11] Meyer W, Eurfel P, Munster R *et al.*. Kinetics of fixation phase holograms in  $\text{LiNbO}_3$ . *Phys. Status. Solid (A)*, 1979, **53**(10): 171~ 180
- [12] Carrascosa M, Agullo-lopez F. Kinetics for optical erasure of sinusoidal holographic gratings in photorefractive materials. *IEEE J. Quant. Electron.*, 1986, **QE-22**(8): 1369~ 1375
- [13] Erbschloe D R, Wilson T. A single analytic solution for transient two-wave mixing in photorefractive materials. *Opt. Commun.*, 1989, **72**(1~ 2): 135~ 138

## Dynamics Characteristic Analysis of Thermal Fixing Photorefractive Hologram Grating in Lithium Niobate

Li Jianlang Liu Liren Liu Youwen Wang Huaisheng Zhou Changhe

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, The Chinese Academy of Science, Shanghai 201800)

(Revised 24 May 1999; revised 30 August 1999)

**Abstract** The standard band transport model with mobile ions and the coupled-wave equation under different initial intensity ratio and fixing temperature are solved by numeric method to study the dynamics of recording and thermal fixing photorefractive hologram at high temperature in  $\text{LiNbO}_3$  photorefractive crystal. The theoretical thermal fixing time and the temperature dependence of the space charge field are obtained. During of recording and fixing the partial cancellation of proton grating and the donor grating causes the emergency of the net charge field's extremum, and proton grating could also change the direction of the coupling between the reference light and the signal light.

**Key words** photorefractive hologram grating, simultaneous writing/fixing, numeric solution.