

文章编号: 0253-2239(2006)08-1240-5

敏化光波长对(Fe,Ni):LiNbO₃晶体全息记录性能的影响*

郭袁俊 刘立人 刘德安 柴志方 朱 荣

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

摘要: 分别采用 514 nm 绿光、488 nm 蓝光和 390 nm 紫外光作为敏化光, 633 nm 红光作为记录光, 详细研究了敏化光波长对氧化(Fe,Ni):LiNbO₃晶体全息记录性能的影响。结果表明:随着敏化光波长的逐渐减小,氧化(Fe,Ni):LiNbO₃晶体的非挥发全息记录性能逐渐优化,390 nm 紫外光是这三种敏化光中最优的敏化光。考虑敏化光的吸收,为了在双中心全息记录中获得最优的性能,应当选择合适波长的敏化光:一方面短波长敏化光能有效地敏化深中心;另一方面短波长敏化光的吸收太强(如对光折变效应无用的基质吸收),不能沿厚度方向有效地敏化晶体,所以实际上需折衷考虑,并从理论上给予了解释。

关键词: 全息; 非挥发全息记录; (Fe,Ni):LiNbO₃晶体; 敏化光波长

中图分类号: O438.1 文献标识码: A

Effect of Wavelength of Sensitizing Light on Holographic Storage Properties of (Fe,Ni):LiNbO₃ Crystal

Guo Yuanjun Liu Liren Liu Dean Chai Zhifang Zhu Rong

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, the Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800)

Abstract: By sensitizing with 514 nm green light, 488 nm blue light and 390 nm ultraviolet light respectively, recording with 633 nm red light, the effect of wavelength of sensitizing light on holographic storage properties of oxidized (Fe,Ni):LiNbO₃ crystal is investigated in detail. It is shown that by shortening the wavelength of sensitizing light gradually, nonvolatile holographic recording properties of oxidized (Fe,Ni):LiNbO₃ crystal is optimized gradually, and 390 nm ultraviolet light is found to be the best among the three kinds of sensitizing light. Considering the absorption of sensitizing light, appropriate sensitizing light wavelength should be adopted to obtain the best performance in two-center holographic recording. On one hand the sensitizing light with short wavelength can sensitize the deep center effectively, on the other hand the absorption is too strong, for example the substrate absorption which is useless for photorefraction, to allow valid sensitization in the thickness direction. So in practice a trade-off is always needed. Explanation is also presented theoretically.

Key words: holography; nonvolatile holographic storage; (Fe,Ni):LiNbO₃; wavelength of sensitizing light

1 引 言

LiNbO₃晶体由于具有较大的电光效应及其它许多优良的特性,例如易于生长、尺寸大、物理化学性能稳定、易于掺杂改性等,在光折变效应的研究中占有重要地位^[1~3]。Buse等^[3]于1998年提出的用双掺杂(Fe,Mn):LiNbO₃晶体实现非挥发性全息存

储的方案,是解决光折变晶体全息数据存储破坏性读取的一种有效的技术途径。采用这种方法,人们又使用双掺杂的(Ce,Cu):LiNbO₃^[4,5]、(Ce,Mn):LiNbO₃^[6]和(Fe,Cu):LiNbO₃^[7]等晶体实现了非挥发性全息存贮,这种有效的技术途径将导致更加实用的全息存储系统的实现。

* 科技部重大基础研究前期研究专项(2002CCA03500)和国家自然科学基金(60177016)资助课题。

作者简介: 郭袁俊(1979~),男,四川南充市人,中国科学院上海光学精密机械研究所博士研究生,主要从事光学全息和光折变光学研究。E-mail: guoyuanjun@mail.siom.ac.cn

收稿日期: 2005-05-23; 收到修改稿日期: 2006-02-21

在双光记录方案中,选择合适波长的敏化光对优化全息记录有着重要的意义。(Fe,Ni):LiNbO₃ 晶体是一种新的高效率的非挥发全息存储材料^[8],本文分别采用 514 nm 绿光、488 nm 蓝光和 390 nm 紫外光作为敏化光,633 nm 红光作为记录光,系统地研究了敏化光波长对氧化(Fe,Ni):LiNbO₃ 晶体全息记录性能影响。同时,也讨论了敏化光的吸收对记录的影响。

2 实 验

实验所用的(Fe,Ni):LiNbO₃ 晶体(含质量分数为 0.147% 的 Fe₂O₃ 和 0.011% 的 Ni₂O₃;即 $N_{\text{Fe}} = 5.2 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$, $N_{\text{Ni}} = 3.9 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$)是采用丘克拉斯基(Czochralski)法在大气环境下生长的,Fe 作为浅陷阱中心,其化合价态为 Fe^{2+/3+},Ni 作为深陷阱中心,其化合价态为 Ni^{2+/3+}^[9]。生长出的晶体在氧气中作退火处理,温度为 900 °C,时间 20 h。切割抛光成大小为 12 mm×10 mm×2 mm,光轴平行于长的棱边。其透射谱如图 1 所示,光谱测量范围从 300 nm 到 1000 nm。为了比较,图 1 也给出了相同氧化条件下相同尺寸大小含质量分数 0.147% 的 Fe₂O₃ 的 Fe:LiNbO₃ 晶体的透射谱。由图 1 所示,(Fe,Ni):LiNbO₃ 晶体分别在 485 nm 和 730 nm 处存在一个吸收峰,相对于 Fe:LiNbO₃ 晶体的透射谱,其透射率有所降低,这是由于掺入的少量 Ni 离子与 Fe 离子相互作用所致。

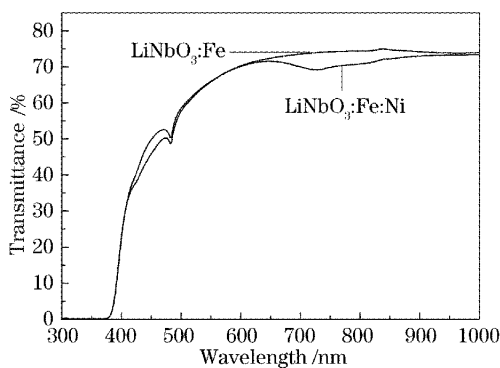


图 1 (Fe,Ni):LiNbO₃ 和 Fe:LiNbO₃ 晶体的透射谱

Fig. 1 Transmission spectral of (Fe,Ni):LiNbO₃ and Fe:LiNbO₃ crystals

全息记录采用传统的光折变二波混频方法,实验装置如图 2 所示。记录阶段,用干涉调制的 He-Ne 激光和均匀的短波长光同时照射晶体,He-Ne 激光由光束分束器分为强度相等的两束(每束光的强度为 290 mW/cm²,寻常偏振),分别经平面镜反

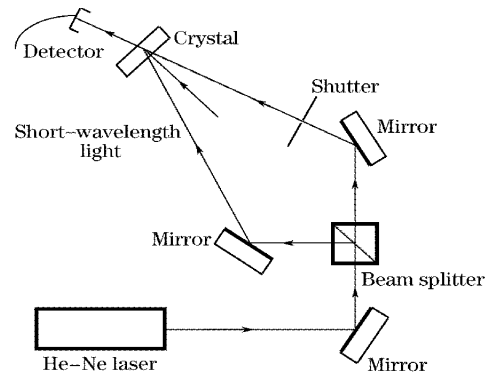


图 2 双掺杂全息记录的实验装置图

Fig. 2 Experimental setup of doubly doped holographic recording

射后对称地入射到晶体上,入射角为 15°,使得记录光栅的波矢平行于晶体的光轴,短波长光均匀照射样品中记录全息的部分,其传播方向平行于样品的表面法线,在深、浅陷阱中心记录全息光栅。记录过程中,用每隔 1 min 遮挡其中一束记录光的方法测量光栅的衍射效率。衍射效率 η 定义为衍射光强与入射记录光强的比值。待记录稳定后开始固定,撤去短波长光并挡住其中一束记录红光,用另一束红光进行读出固定。

图 3 为分别采用 514 nm 绿光、488 nm 蓝光和 390 nm 紫外光作为敏化光,633 nm 红光作为记录光,氧化(Fe,Ni):LiNbO₃ 晶体光栅的衍射效率 η 随时间的变化曲线。把三种不同实验条件下晶体的非挥发(固定后的)衍射效率 η 、饱和衍射效率 η_s 、动态范围 Δn_s 和全息记录灵敏度 S 的实验结果总结在

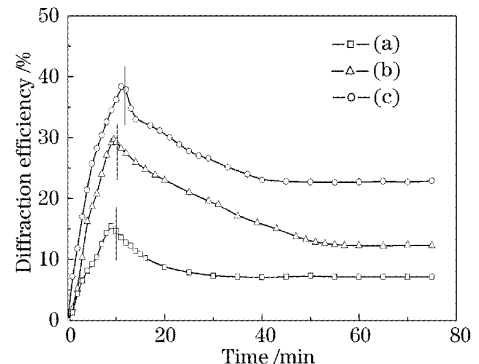


图 3 (Fe,Ni):LiNbO₃ 晶体 633 nm 红光记录,(a) 514 nm 绿光敏,(b) 488 nm 蓝光敏化,(c) 390 nm 紫外光敏化的记录和固定的曲线

Fig. 3 Recorded and fixed curves with red light (633 nm) for (a) 514 nm green light, (b) 488 nm blue light, and (c) 390 nm UV light sensitized (Fe,Ni):LiNbO₃ crystal

表 1 中,其中动态范围 Δn_s 是根据 Kogelnik 公式^[10] 计算出来的。记录灵敏度定义为衍射效率平方根的初始记录斜率对总的记录光强和样品厚度归一化,单位是 cm/J 。514 nm 绿光、488 nm 蓝光由氩离子激光器产生,光强为 $50 \text{ mW}/\text{cm}^2$,390 nm 紫外光由 75 W 的球形超高压汞灯,用透紫外的滤光片滤光后经汇聚透镜聚焦产生,光强 $20 \text{ mW}/\text{cm}^2$ 。从图 3(a)可知,氧化 (Fe,Ni):LiNbO₃ 晶体的饱和衍射效率 $\eta_s = 15.48\%$,固定衍射效率 $\eta = 7.11\%$,动态范围 $\Delta n_s = 4.05 \times 10^{-5}$,其记录灵敏度 $S = 1.47 \times$

表 1 三种记录方案中双掺杂 (Fe,Ni):LiNbO₃ 晶体全息存储的一些特征量

Table 1 Characteristic parameters of doubly doped (Fe,Ni):LiNbO₃ in the three recording experiments

Experiment wavelength /nm	Non-volatile diffraction efficiency $\eta / \%$	Saturation diffraction efficiency $\eta_s / \%$	Dynamic range Δn_s	Sensitivity / ($10^{-2} \text{ cm}/\text{J}$)
514	7.11	15.48	4.05×10^{-5}	1.47
488	12.28	29.66	5.76×10^{-5}	1.85
390	22.90	38.37	6.68×10^{-5}	3.25

由双光记录方案的机理可知,非挥发全息记录是通过光激发载流子电子在深、浅陷阱中的重新分布,光栅最终固定在深陷阱中心来实现的。在记录时用两种不同波长的光同时照射进行全息存储,能激发深浅中心的短波长的光(如紫外光)作为敏化光束或门光束,只能激发浅中心的长波长的两束光(如红光)作为记录光(一束为参考光,另一束携带信息的为信号光),可以使信息同时存储在深浅陷阱中心,只用长波长的光读取信息时,由于深陷阱中心对长波长的光不敏感而实现了非破坏性读取。因此,记录阶段短波长的敏化光能否有效地激发出深陷阱中心的电子经导带至浅陷阱中心,使浅陷阱中心的电子密度增大,从而对长波长的记录光有更快更强的响应,记录下比较强的光栅,是影响双中心掺杂晶体全息记录性能($\eta, \eta_s, \Delta n_s$ 和 S)的关键因素。在上述三个实验中,390 nm 紫外光激发深陷阱中心电子

$10^{-2} \text{ cm}/\text{J}$ 。从图 3(b)可知,氧化 (Fe,Ni):LiNbO₃ 晶体 $\eta_s = 29.66\%$, $\eta = 12.28\%$, $\Delta n_s = 5.76 \times 10^{-5}$, $S = 1.85 \times 10^{-2} \text{ cm}/\text{J}$,相对于 514 nm 绿光作为敏化光,全息记录性能有所提高。从图 3(c)可知,氧化 (Fe,Ni):LiNbO₃ 晶体 $\eta_s = 38.37\%$, $\eta = 22.90\%$, $\Delta n_s = 6.68 \times 10^{-5}$, $S = 3.25 \times 10^{-2} \text{ cm}/\text{J}$,390 nm 紫外光相对于 514 nm 绿光和 488 nm 蓝光作为敏化光,全息记录性能最好。

的能力最强,也就有最大的光激发系数和光伏打系数^[11],488 nm 蓝光次之,514 nm 绿光相对最弱。因此,就出现了与之对应的全息记录性能:即采用 390 nm 紫外光作为敏化光时, $\eta, \eta_s, \Delta n_s$ 和 S 最大,488 nm 蓝光次之,514 nm 绿光相对最弱。

为了验证以上分析,利用扩展物质波方程^[12],理论计算了双掺杂 LiNbO₃ 晶体深陷阱中心的光激发系数 $S_{D,H}$ 和光伏打系数 $K_{D,H}$ (下标 D,H 分别代表双掺杂中的深陷阱中心和双光记录中的高频光)的改变对记录饱和空间电荷场、固定结束空间电荷场以及记录灵敏度的影响,如图 4 所示。这里需要引入临界氧化-还原程度 χ_c 和氧化-还原程度 χ ,它们分别定义为 $\chi_c = N_s / (N_s + N_D)$ 和 $\chi = 1 - N_A / (N_s + N_D)$, N_s, N_D 分别为浅陷阱中心离子浓度和深陷阱中心离子浓度, N_A 为无光照时深浅陷阱中总的电子浓度。 $\chi_c = 0.93, \chi = 0.96$,为中等氧

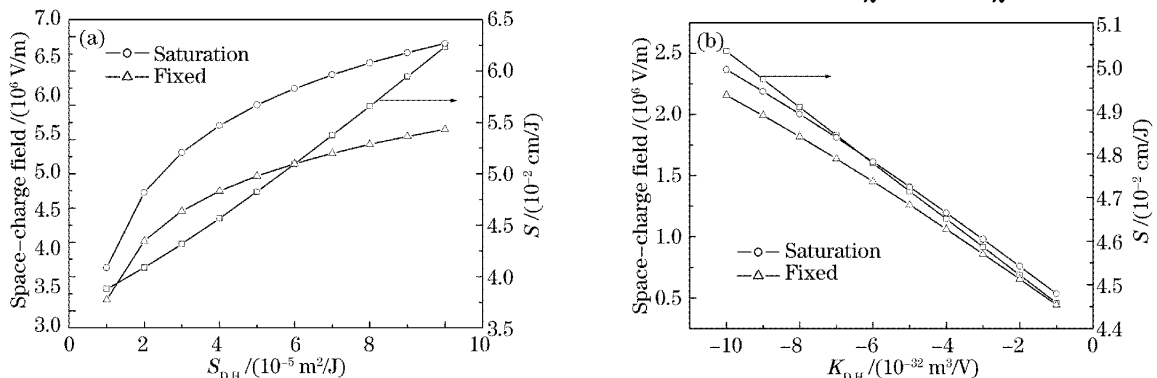


图 4 记录饱和及固定的空间电荷场和记录灵敏度对(a) $S_{D,H}$, (b) $K_{D,H}$ 的变化关系

Fig. 4 Dependence of saturation space-charge field, fixed space-charge field and recording sensitivity on (a) $S_{D,H}$, (b) $K_{D,H}$

化程度,这符合实际情况,其它计算参量参照文献[12]。由图 4 可知,随着 $S_{D,H}$ 和 $K_{D,H}$ 的增大,双掺杂 LiNbO₃ 晶体的饱和空间电荷场和固定空间电荷场增大,同时全息记录灵敏度也相应提高。所以,对于氧化 (Fe, Ni) : LiNbO₃ 晶体,在上述三种波长的敏化光中,当选择 390 nm 的紫外光作为敏化光时,深中心 Ni 有最大的光激发系数和光伏打系数,也就有最好的全息记录性能。

此外,对于氧化 (Fe, Ni) : LiNbO₃ 晶体,当用 390 nm 紫外光作为敏化光时,发现了全息记录过程中衍射效率也出现震荡的现象,如图 5 所示。记录了两个震荡周期,震荡周期约为 18 min。当用 488 nm 蓝光和 514 nm 绿光分别作为敏化光时,在记录过程中没有发现衍射效率的震荡行为。以上的实验现象可以通过如下理论解释:由双掺杂 LiNbO₃ 晶体光折变的时空动态理论^[12],在双掺杂 LiNbO₃ 晶体的全息记录过程中,在记录光和敏化光的共同作用下,经过电子的激发与复合,同时在深、浅两个陷阱中分别形成了全息光栅,总的光栅强度 Δn 是这两个光栅的叠加。在全息记录初始阶段,随着记录的进行, Δn 逐渐增大从而输出的(即实验上探测的)衍射效率 $\eta(t, d)$ (t 为时间, d 为输出端的位置,也是晶体的厚度)增大;在第一个衍射峰出现之后,继续记录将导致 Δn 的进一步加大,从而使得输出的衍射效率 $\eta(t, d)$ 减小,而最大的衍射效率将移向晶体内部 z' 处 ($z' < d$),即 $\gamma(t, z')$ 为最大衍射效率;当 $\eta(t, d)$ 降到最小之后, Δn 的继续增加又会导致 $\eta(t, d)$ 的增大,从而全息记录过程中输出衍射效率将出现震荡的现象。

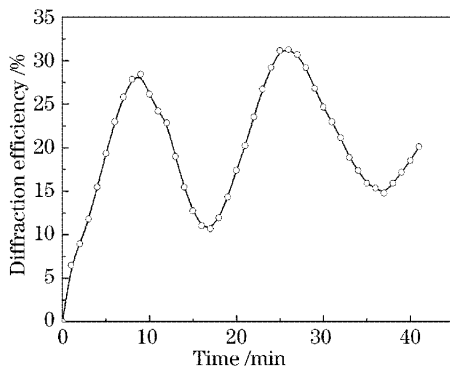


图 5 (Fe, Ni) : LiNbO₃ 晶体 633 nm 红光记录, 390 nm 紫外光敏化的记录曲线

Fig. 5 Recording curve with 633 nm red light recording and 390 nm UV light sensitizing for (Fe, Ni) : LiNbO₃ crystal

3 讨 论

在双中心全息记录过程中,铌酸锂晶体对于短波长敏化光表现出较强的吸收,尤其当敏化光光子的能量接近晶体的带隙能或者陷阱中总的电子数密度较大时^[13]。例如,同成分 (Fe, Mn) : LiNbO₃ 晶体对 365 nm 紫外光的吸收系数是 9 mm^{-1} ,其中大部分吸收来源于基质吸收和本征缺陷吸收,这部分吸收对光折变过程没有贡献。在这种情况下,就应当考虑敏化光在晶体中传播时的吸收效应。敏化光在晶体中传播时光强可以表示为

$$I_s = I_{s0} \exp(-\alpha_s z), \quad (1)$$

式中 I_{s0} 和 α_s 分别为敏化光的初始光强和吸收系数, z 为晶体的厚度。敏化光在晶体中传播时光强随厚度的变化如图 6 所示。由图 6 可知,吸收系数越大,敏化光光强沿晶体厚度衰减得越快,它不能透过厚度较大的晶体。

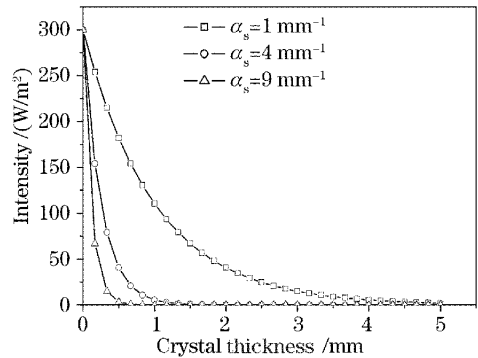


图 6 不同吸收系数的敏化光光强随晶体厚度的变化关系,假定敏化光初始光强为 300 mW/cm^2

Fig. 6 Variation of the intensity of sensitizing light with crystal thickness for different absorption coefficients.

In this calculation it is assumed that the initial intensity of sensitizing light is 300 mW/cm^2

因此,考虑敏化光的吸收,计算空间电荷场时把晶体分成厚度为 Δz 的很多薄层(一般而言,1 mm 的厚度分成 50~100 层),在每一薄层内假定敏化光光强不变,计算出该薄层的空间电荷场。这里,忽略了记录光的吸收,因为相对于敏化光的吸收而言,记录光的吸收小得多,它在晶体中的强度几乎不变^[13]。总的空间电荷场可以表示为

$$E_{\text{total}} = \frac{\Delta z}{d} \sum_i E_i, \quad (2)$$

式中 E_i 为每一薄层的空间电荷场。利用扩展物质波方程,总的空间电荷场随敏化光吸收系数的变化关系如图 7 所示。由图 7 可知,敏化光吸收系数越大,饱和及固定总的空间电荷场越小。这是由于沿晶体

厚度方向,敏化光光强逐渐减弱,到晶体厚度末端强度几乎减为 0,因而沿晶体厚度方向所记录的光栅强度逐渐减弱。敏化光吸收系数越大,敏化光光强沿晶体厚度方向衰减地越快,晶体中很多区域得不到充分的敏化,因而总的空间电荷场越小。

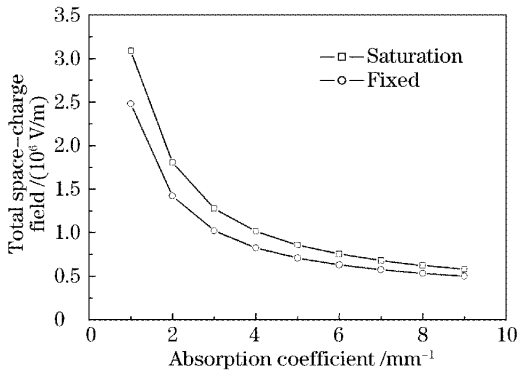


图 7 双中心全息记录中总的空间电荷场随敏化光吸收系数的变化关系 ($\chi_c=0.93$, $\chi=0.95$, 其他计算参量参考文献[12])

Fig.7 Variation of the total space-charge field with absorption coefficient of the sensitizing light in two-center holographic recording ($\chi_c=0.93$, $\chi=0.95$, and calculation material parameters are referred to literature [12])

在实际应用中,强的敏化光吸收限制了双中心记录晶体的最大厚度,即最大厚度取决于敏化光能穿透的厚度。为了避免敏化光不必要的吸收(如基质吸收),可以增加敏化光的波长。长波长敏化光引起较弱的基质吸收,因而记录晶体的有效厚度增加。然而,增加敏化光的波长又导致其对深陷阱中心的敏化作用减弱。所以,在双中心全息记录中为了获得最优的性能,应当选择合适波长的敏化光:一方面短波长的敏化光能有效地敏化深中心;另一方面短波长的敏化光的吸收太强(如对光折变效应无用的基质吸收),不能沿厚度方向有效地敏化晶体,所以实际上需折中考虑。

4 结 论

详细地研究了敏化光波长对氧化(Fe, Ni):LiNbO₃晶体全息记录性能影响。结果表明:在

514 nm绿光,488 nm蓝光和390 nm紫外光中,选用390 nm紫外光作为敏化光可以获得最好的非挥发全息记录性能。

参 考 文 献

- 1 Ren Liyong, Liu Liren, Liu Dean. Effect of microcosmic optical parameters of doubly doped LiNbO₃ on diffraction efficiency[J]. *Acta Optica Sinica*, 2004, **24**(7): 941~946 (in Chinese)
任立勇,刘立人,刘德安. 双掺杂LiNbO₃微观光学参量对衍射效率的影响[J]. *光学学报*, 2004, **24**(7): 941~946
- 2 Wan Yuhong, Yuan Wei, Liu Guoqing *et al.*. Study on the characteristics of scattering noise in photorefractive holographic storage[J]. *Chin. J. Lasers*, 2003, **30**(6): 529~532 (in Chinese)
万玉红,袁 桦,刘国庆等. 光折变体晶全息存储中散射噪声特性的研究[J]. *中国激光*, 2003, **30**(6): 529~532
- 3 K. Buse, A. Adibi, D. Psaltis. Non-volatile holographic storage in doubly doped lithium niobate crystals [J]. *Nature*, 1998, **393**(6686): 665~668
- 4 Youwen Liu, Liren Liu, Changhe Zhou *et al.*. Nonvolatile photorefractive holograms in LiNbO₃:Cu:Ce crystals[J]. *Opt. Lett.*, 2000, **25**(12): 908~910
- 5 L. Ren, L. Liu, D. Liu *et al.*. Optimal switching from recording to fixing for high diffraction from a LiNbO₃:Ce:Cu photorefractive nonvolatile hologram [J]. *Opt. Lett.*, 2004, **29**(2): 186~188
- 6 Xuefeng Yue, A. Adibi, T. Hudson *et al.*. Role of cerium in lithium niobate for holographic recording[J]. *J. Appl. Phys.*, 2000, **87**(9): 4051~4055
- 7 De'an Liu, Liren Liu, Changhe Zhou *et al.*. Nonvolatile holograms in LiNbO₃:Fe:Cu by use of the bleaching effect[J]. *Appl. Opt.*, 2002, **41**(32): 6809~6814
- 8 Guo Yuanjun, Liu Liren, Liu De'an *et al.*. Study of nonvolatile holographic storage properties in doubly doped LiNbO₃:Fe:Ni crystals[J]. *Chin. J. Laser*, 2005, **32**(9): 1243~1248 (in Chinese)
郭袁俊,刘立人,刘德安等. LiNbO₃:Fe:Ni晶体非挥发全息存储研究[J]. *中国激光*, 2005, **32**(9): 1243~1248
- 9 Deanna K. McMillen, Tracy D. Hudson, Julie Wagner *et al.*. Holographic recording in specially doped lithium niobate crystals [J]. *Opt. Exp.*, 1998, **2**(12): 491~502
- 10 H. Kogelnik. Coupled wave theory for thick hologram gratings [J]. *Bell Sys. Technol. J.*, 1969, **48**(9): 2909~2947
- 11 A. M. Glass, D. von der Linde, T. J. Negran. High-voltage bulk photovoltaic effect and the photorefractive process in LiNbO₃[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1974, **25**(4): 233~235
- 12 Liyong Ren, Liren Liu, De'an Liu *et al.*. Recording and fixing dynamics of nonvolatile photorefractive holograms in LiNbO₃:Fe:Mn crystals [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2003, **20**(10): 2162~2173
- 13 Omid Momtahan, Ali Adibi. Global optimization of sensitivity and dynamic range for tow-center holographic recording[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2003, **20**(3): 449~461