

文章编号: 0253-2239(2008)08-1450-07

连续光条件下对 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体全息存储性能的理论研究

申 岩^{1,2} 孙秀冬² 张国权³ 许京军³ 赵业权⁴

¹ 哈尔滨工业大学理学研究中心, 黑龙江 哈尔滨 150080
² 哈尔滨工业大学物理系, 黑龙江 哈尔滨 150006
³ 南开大学物理科学学院, 天津 300071
⁴ 哈尔滨工业大学光电信息中心, 黑龙江 哈尔滨 150080

摘要 以双中心模型为基础,在低光强连续光条件下研究了 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体在稳态情况下的非挥发双光双步全息存储性能。采用数值方法,通过比较双中心模型中深($\text{Mn}^{2+}/\text{Mn}^{3+}$)、浅($\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$)能级之间所有可能的电子交换过程,发现由隧穿效应引起的深浅能级之间直接电子交换过程对 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体总的空间电荷场大小起着决定性的作用。同时,这一电子交换过程对晶体非挥发全息存储性能也起着至关重要的作用。此外,通过相同实验条件下 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体与近化学比 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ 晶体总的空间电荷场的比较,显示 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体在低抽运光和高记录光光强条件下有着比近化学比 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ 晶体更佳的全息存储性能。

关键词 非线性光学; 全息存储; 空间电荷场; 隧穿效应

中图分类号 O438.1 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS20082808.1450

Theoretical Studies on Nonvolatile Holographic Recording with Continuous-Wave Lights for $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$

Shen Yan^{1,2} Sun Xiudong² Zhang Guoquan³ Xu Jingjun³ Zhao Yequan⁴

¹ The Research Center of Science, Harbin Institute of Technology, Harbin, Heilongjiang 150080, China

² Department of Physics, Harbin Institute of Technology, Harbin, Heilongjiang 150006, China

³ Photonics Center, College of Physics Science, Nankai University, Tianjin 300071, China

⁴ Center of Photoelectricity Information, Harbin Institute of Technology, Harbin, Heilongjiang 150006, China

Abstract Based on the two-center model, the steady-state nonvolatile two-step, two-color holographic recording performance with continuous-wave lights in the low intensity for $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ is studied theoretically. By use of numerical method, through comparing the contributions to the space-charge fields from the different electron transfer processes between the deep-trap centers ($\text{Mn}^{2+}/\text{Mn}^{3+}$) and the shallow-trap centers ($\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$), the direct electron exchange between the $\text{Mn}^{2+}/\text{Mn}^{3+}$ and the $\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$ levels through the tunnelling effect dominates the amplitude of the total space-charge field. This direct electron transfer process plays a key role on the two-step, two-color holography performance also. In addition, by comparing the amplitudes of the space-charge fields of the $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ with the near-stoichiometric $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$, the results show that the holographic recording performance in the $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ is much better than that in the near-stoichiometric $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ at low intensity of gating light and high intensity of recording light.

Key words nonlinear optics; holographic recording; space-charge field; tunnelling effect

收稿日期: 2007-10-29; 收到修改稿日期: 2007-12-26

基金项目: 国家自然科学基金 (60308005, 60678021, 10334010)、新世纪优秀人才支持计划、教育部科学技术研究重点项目 (104054)、教育部科技创新工程重大项目培育资金项目 (704012)、哈尔滨工业大学优秀青年老师培养计划 (HITQNJS. 2008. 058)、黑龙江省教育厅科学技术研究项目、哈尔滨市科技创新人才基金、哈尔滨工业大学优秀团队支持计划和黑龙江省博士后经费资助课题。

作者简介: 申 岩 (1978-), 男, 博士, 讲师, 主要从事光折变理论方面的研究。E-mail: yanshen@hit.edu.cn

1 引言

由于光折变材料在实现全息数据存储方面有着高存储密度,快速数据传输等优越的性能,近年来,用光折变材料实现非挥发双光双步全息存储已经被广为研究^[1-18]。对于 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体,存储过程中由一束抽运光激发晶体中深能级 Mn^{2+} 中心上的电子进入导带,导带上的电子分别被深能级 ($\text{Mn}^{2+}/\text{Mn}^{3+}$) 和浅能级 ($\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$) 上电子所俘获, Fe^{2+} 上的电子又分别被抽运光和另一束记录光激发到导带。最终电子在深浅能级上形成不均匀空间分布,从而形成空间电荷场。由于 Mn 中心上的电子不会被记录光的持续照射所激发,从而实现非挥发全息存储。非挥发双光双步全息存储的早期研究工作是用高强度激光研究同成份 LiNbO_3 晶体^[7]。Bai 等^[1]用低光强连续光证明了在非挥发双光双步全息存储中 LiNbO_3 晶体有着中间能级。Berben 等人^[9]通过研究小极化子的暗衰减证实了在深能级与浅能级之间确实存在直接电子交换过程。Jermann 等^[10]利用一种双中心模型来解释在强光下光强与光致折射率之间的变化关系,在模型中提到了由隧穿效应所引起的在深浅能级之间电子的直接交换过程。近来,Adibi 等在用双中心模型来研究 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ 晶体非挥发全息存储性能^[11]的基础之上又利用双中心模型来研究 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体全息存储性能^[12],并发现这种晶体能够得到更佳的全息存储性能。

本文以双中心模型为基础,从理论上研究了在稳态低光强连续光条件下 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体的非挥发双光双步全息存储性能。为了研究双中心模型中所有电子交换过程对晶体非挥发全息存储性能的影响,考虑了在晶体深能级 ($\text{Mn}^{2+}/\text{Mn}^{3+}$) 和浅能级 ($\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$) 之间所有可能的电子交换过程,包括深浅能级之间直接电子交换和电子经过导带进行交换。结果表明,在 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体里,由隧穿效应引起的深浅能级之间直接电子交换过程对总的空间电荷场大小起到了决定性的作用。同时,还对 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体与近化学比 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ 晶体空间电荷场进行了比较。

2 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体的电子输运过程

图 1 所示的能带图描述了用 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶

体实现全息存储时深能级 $\text{Mn}^{2+}/\text{Mn}^{3+}$ 与浅能级 $\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$ 之间所有可能的电子交换过程。我们假定这里边有两种可能的途径:一是电子要经过导带进行交换,另一种是由隧穿效应所引起的深浅能级之间直接进行电子交换。因此电子能够被抽运光从 Mn^{2+} 中心激发到导带或者直接到 Fe^{3+} 中心从而形成 Fe^{2+} 。在 Fe^{2+} 中心的电子能够被抽运光和记录光或是由热激发激发到导带。在 Fe^{2+} 中心,那些被俘获的电子也能够直接通过隧穿效应被 Mn^{3+} 俘获。导带上的电子通过扩散,漂移和光伏效应最终被 Mn^{3+} 和 Fe^{3+} 中心所俘获。这里需要指出的是抽运光能够激发 Mn^{2+} 和 Fe^{2+} 中心的电子,而记录光的光子没有足够的能量激发 Mn^{2+} 中心上的电子。

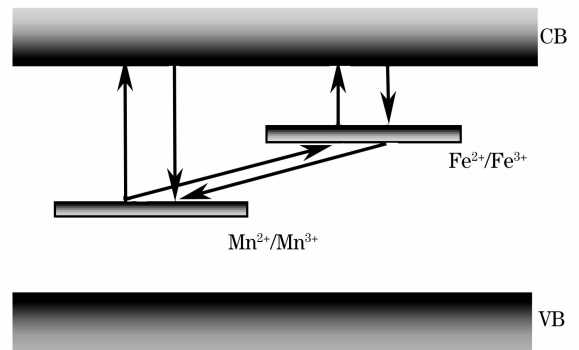


图 1 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体中双中心模型的能级图。其中 $\text{Mn}^{2+}/\text{Mn}^{3+}$ 和 $\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$ 能级分别表示深能级和浅能级, CB 和 VB 分别表示导带和价带。箭头表示的是在 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体中实现双光双步全息存储时所有可能的电子交换过程

Fig. 1 Energy level diagram of the two-center model for $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ crystals. $\text{Mn}^{2+}/\text{Mn}^{3+}$ and the $\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$ levels serve as the deep-trap and the shallow-trap levels, respectively. CB and VB represent the conduction band and the valence band, respectively. Note that the arrows indicate the possible electron transfer processes involved in the two-step, two-color holographic recording in $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$

下列方程描述了在 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体里双光双步全息存储的电子输运过程。这里需要指出的是由于在 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 的双光双步全息存储过程中没有外加电场,所以外加电场 E_0 设为零。此外,热激发与光激发参数在所计算的光强范围内相比较可忽略不计,因此热激发参数 β_s 和 β_D 设为零。

$$\frac{\partial N_D^+}{\partial t} = (S_{UD}I_U + \beta_D + S_{DS}I_UN_S^+)(N_D - N_D^+) - \gamma_D N_D^+ n_e - \gamma_{DS} N_D^+ (N_S - N_S^+), \quad (1)$$

$$\frac{\partial N_S^+}{\partial t} = (S_{US}I_U + S_{RS}I_R + \beta_S + \gamma_{DS}N_D^+)(N_S - N_S^+) - \gamma_S N_S^+ n_e - S_{DS}I_UN_S^+(N_D - N_D^+), \quad (2)$$

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = (S_{UD}I_U + \beta_D)(N_D - N_D^+) - \gamma_D N_D^+ n_e + (S_{US}I_U + S_{RS}I_R + \beta_S)(N_S - N_S^+) - \gamma_S N_S^+ n_e + \frac{1}{e} \nabla \cdot J, \quad (3)$$

$$J = e\mu_n E + k_B T \mu \nabla n_e + G_{UD} S_{UD} (N_D - N_D^+) I_U + G_{RS} S_{RS} (N_S - N_S^+) I_R + G_{US} S_{US} (N_S - N_S^+) I_U, \quad (4)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = \frac{e}{\epsilon \epsilon_0} (N_D^+ + N_S^+ - n_e - N_A), \quad (5)$$

式中 N_D , N_S 和 N_A 分别表示 Mn 和 Fe 的总的数密度及保持晶体在暗条件下电中性的不动补偿电荷数密度。 N_D^+ , N_S^+ 和 n_e 分别表示 Mn^{3+} , Fe^{3+} 和导带电子的数密度。 S_{UD} 和 S_{US} 是在抽运光作用下的吸收截面,与电子从 Mn^{2+} 和 Fe^{2+} 离子中心被激发到导带有关。 S_{RS} 是在记录光作用下的吸收截面,与电子从 Fe^{2+} 离子中心被激发到导带有关。 β_S 和 β_D 分别是电子从 Fe^{2+} 和 Mn^{2+} 离子中心被激发到导带的热激发速率。 γ_S 和 γ_D 分别是电子从导带到 Fe^{3+} 和 Mn^{3+} 离子中心的俘获系数。 S_{DS} 和 γ_{DS} 描述的是在抽运光激发下在 Mn^{2+}/Mn^{3+} 和 Fe^{2+}/Fe^{3+} 之间直接进行电子

交换的吸收截面和俘获系数。 μ , k_B , T , E , J , ϵ 和 ϵ_0 是迁移率、玻尔兹曼常数、绝对温度、晶体里的电场和电流密度及晶体的相对介电常数和真空介电常数。 G_{RS} 和 G_{US} 分别是 Fe^{2+} 在记录光和抽运光照射下的 Glass 系数, G_{UD} 是 Mn^{2+} 中心在抽运光照射下的 Glass 系数。 I_R 和 I_U 分别是记录光和抽运光光强。这里,我们考虑了扩散,漂移和光伏机制。这里分别用 365 nm 和 633 nm 的激光作为抽运光和记录光,因此,大部分选用的参数值是与 Adibi 等^[12]一样的,如表 1 所示。

表 1 LiNbO₃:Fe:Mn 实现双光双步全息存储所涉及到的参数

Table 1 Parameters of all quantities involved in the theoretical analysis of the two-step, two-color holographic recording in the LiNbO₃:Fe:Mn

Material parameters related with Mn							
Quantity /unit	N_D/m^{-3}	N_D^+/m^{-3}	$S_{UD}/(m^2/J)$	$\gamma_D/(m^3/V)$	$G_{UD}/(mJ/V)$	$N_A/(m^{-3})$	
Value	3.8×10^{24}	—	3.6×10^{-5}	2.4×10^{-13}	-3.05×10^{-28}	3.4×10^{24}	
Ref.	[12]	—	[12]	[12]	[12]	[12]	
Material parameters related with Fe							
Quantity /unit	N_S/m^{-3}	N_S^+/m^{-3}	$S_{US}/(m^2/J)$	$S_{RS}/(m^2/J)$	$G_{US}/(mJ/V)$	$G_{RS}/(mJ/V)$	$\gamma_S/(m^3/V)$
Value	2.5×10^{25}	—	3.8×10^{-5}	3.3×10^{-6}	-3.68×10^{-28}	-2.12×10^{-28}	1.65×10^{-14}
Ref.	[12]	—	[12]	[12]	[12]	[12]	[12]
Material parameters related with both Mn and Fe and other parameters							
Quantity /unit	$S_{DS}/(m^5/J)$	$\gamma_{DS}/(m^3/V)$	$\mu/(m^2/Vs)$	ϵ	m	q/m^{-1}	T/K
Value	3.22×10^{-29}	1.7×10^{-20}	7.5×10^{-5}	28	0.1	2.9×10^6	293
Ref.	this paper	this paper	[12]	[12]	—	—	—

在非挥发双光双步全息存储过程中,一般用一束均匀的抽运光和一束空间调制度为 m 的正弦调制记录光辐照晶体:

$$I_U = I_{U0}, \quad (6)$$

$$I_R = I_{R0} \{1 + m \text{Re}[\exp(iqx)]\}, \quad (7)$$

式中 $q = 2\pi/\Lambda$, Λ 为光栅间距。为了简化,只考虑一维情况。对于很小的光调制度 ($m \ll 1$), 经过线性化处理, N_D^+ , N_S^+ , n_e 和 E 表示如下:

$$N_D^+ = N_{D0}^+ + \text{Re}[N_{D1}^+ \exp(iqx)], \quad (8)$$

$$N_S^+ = N_{S0}^+ + \text{Re}[N_{S1}^+ \exp(iqx)], \quad (9)$$

$$n_e = n_{e0} + \text{Re}[n_{e1} \exp(iqx)], \quad (10)$$

$$E = E_0 + \text{Re}[E_1 \exp(iqx)]. \quad (11)$$

对于每个物理量,下角标“0” and “1”分别表示它的零阶项和 $\exp(iqx)$ 的一阶项。把(6)式~(11)式代到(1)式~(5)式中,就能得到描述零阶项和一阶项的两套方程组。在稳态情况下,这两套方程组是能够被解的,并且一阶项的量 N_{D1}^+ 和 N_{S1}^+ 能够被直接计算出来。由于在能达到的连续光强度范围内 n_{e1} 比 N_{D1}^+ 和 N_{S1}^+ 小的多,因此忽略了导带电子对总空间电荷场的贡献。在带运输模型中,对于很小的

调制度 m , 浅能级空间电荷场 E_{S1} 和深能级空间电荷场 E_{D1} 经过线性化处理后可分别表示为

$$E_{S1} = -mA/\Xi \text{ 及 } E_{D1} = -mB/\Xi.$$

这里 A, B 和 Ξ 分别表示为

$$A = \left(\frac{N_S}{N_{S0}^+} \frac{G_{RS}}{G_{US}} - 1 \right) E_{pUS} + \left(\frac{N_S}{N_{S0}^+} + \frac{N_S}{N_{S0}^+} \frac{\gamma_{DS} N_{D0}^+}{S_{RS} I_{R0}} + \frac{\gamma_{DS}}{\gamma_D} \frac{\gamma_S N_{S0}^+}{S_{RS} I_{R0}} - 1 \right) E_{pRS} + \frac{\gamma_S}{\gamma_D} \frac{(N_S - N_{S0}^+)}{N_{D0}^+} E_{pDS} +$$

$$i \frac{(N_S - N_{S0}^+)}{N_{D0}^+} \left[\frac{S_{DS} I_{U0} (N_D - N_{D0}^+) + \gamma_{DS} N_{D0}^+}{\gamma_D n_{e0}} \right] E_D + i \left[\frac{\gamma_{DS}}{\gamma_D} + \frac{S_{DS} I_{U0} (N_D - N_{D0}^+)}{\gamma_D N_{D0}^+} - 1 \right] E_{qS}, \quad (12)$$

$$B = \frac{(N_S - N_{S0}^+)}{(N_D - N_{D0}^+)} E_{pUD} + \frac{(N_S - N_{S0}^+)}{(N_D - N_{D0}^+)} \left[\frac{\gamma_S N_D}{\gamma_D N_{D0}^+} \frac{(S_{UD} + S_{DS} N_{S0}^+)}{S_{DS} N_{S0}^+} + 1 \right] E_{pDS} + \frac{\gamma_{DS} (N_S - N_{S0}^+)}{S_{RS} I_{R0}} E_{pRS} +$$

$$i \frac{(S_{UD} + S_{DS} N_{S0}^+) I_{U0}}{\gamma_D n_{e0}} \frac{(N_S - N_{S0}^+)}{N_{D0}^+} \frac{N_D}{N_{D0}^+} E_D + i \left[\frac{(S_{UD} + S_{DS} N_{S0}^+) I_{U0}}{\gamma_D N_{D0}^+} \frac{N_D}{N_{D0}^+} + 1 \right] E_{qS}, \quad (13)$$

$$\Xi = \frac{N_D - N_{D0}^+}{N_{D0}^+} \left\{ \frac{S_{UD} I_{U0}}{S_{RS} I_{R0}} \frac{\gamma_{DS} N_D}{\gamma_D n_{e0}} \frac{N_S}{N_{S0}^+} + \frac{S_{DS} I_{U0} N_{S0}^+}{S_{RS} I_{R0}} \frac{(\gamma_{DS} - S_{DS} I_{U0}) (N_D - N_{D0}^+)}{\gamma_D n_{e0}} + \right.$$

$$\left. \frac{(S_{DS} I_{U0} - \gamma_{DS}) (N_S - N_{S0}^+)}{S_{RS} I_{R0}} \frac{\gamma_{DS} N_{D0}^+}{\gamma_D n_{e0}} + \left(1 + \frac{S_{US} I_{U0}}{S_{RS} I_{R0}} \right) \frac{S_{UD} I_{U0}}{\gamma_D n_{e0}} \frac{N_S}{N_{S0}^+} \frac{N_D}{N_{D0}^+} \right\} \frac{E_D}{E_{qD}} +$$

$$\frac{S_{DS} I_{U0} N_S}{\gamma_D n_{e0}} \frac{N_D}{N_{D0}^+} \frac{(N_S - N_{S0}^+)}{N_{D0}^+} \left(1 + \frac{S_{US} I_{U0}}{S_{RS} I_{R0}} \right) \frac{E_D}{E_{qS}} -$$

$$- i \left\{ \left(\frac{S_{US} I_{U0}}{S_{RS} I_{R0}} + 1 \right) \frac{N_S}{N_{S0}^+} + \frac{\gamma_S}{\gamma_D} \left[\frac{\gamma_{DS} N_{S0}^+}{S_{RS} I_{R0}} + \frac{S_{DS} I_{U0} N_{S0}^+}{S_{RS} I_{R0}} \frac{(N_D - N_{D0}^+)}{N_{D0}^+} \right] \right\} \frac{E_{pUD}}{E_{qD}} -$$

$$i \frac{(N_D - N_{D0}^+)}{(N_S - N_{S0}^+)} \left[\left(1 + \frac{\gamma_S N_{S0}^+}{\gamma_D N_{D0}^+} \frac{N_D}{N_{D0}^+} \right) \frac{S_{DS} I_{U0} N_{S0}^+}{S_{RS} I_{R0}} + \frac{\gamma_{DS} (N_S - N_{S0}^+)}{S_{RS} I_{R0}} \right] \frac{E_{pUS}}{E_{qD}} -$$

$$i \frac{S_{UD} I_{U0}}{S_{RS} I_{R0}} \frac{\gamma_S N_{S0}^+}{\gamma_D N_{D0}^+} \frac{N_D}{N_{D0}^+} \frac{E_{pRS} + E_{pUS}}{E_{qS}} - i \frac{\gamma_S N_{S0}^+}{\gamma_D N_{D0}^+} \frac{N_D}{N_{D0}^+} \frac{E_{pDS}}{E_{qD}} -$$

$$i \frac{(N_S - N_{S0}^+)}{(N_D - N_{D0}^+)} \left(\frac{\gamma_{DS} N_{D0}^+ N_S}{S_{RS} I_{R0} N_{S0}^+} \frac{E_{pUD}}{E_{qS}} + \frac{E_{pDS}}{E_{qS}} \right) - i \frac{\gamma_{DS} (N_D - N_{D0}^+)}{S_{RS} I_{R0}} \frac{E_{pRS}}{E_{qD}} +$$

$$\frac{S_{UD} I_{U0}}{S_{RS} I_{R0}} \left[\frac{\gamma_S N_{S0}^+}{\gamma_D N_{D0}^+} \frac{N_D}{N_{D0}^+} + \frac{\gamma_{DS} N_D}{\gamma_D N_{D0}^+} \frac{N_S}{N_{S0}^+} \right] - \frac{\gamma_{DS} (N_S - N_{S0}^+)}{S_{RS} I_{R0}} \frac{\gamma_{DS}}{\gamma_D} +$$

$$\left(\frac{S_{US} I_{U0}}{S_{RS} I_{R0}} + 1 \right) \left[\frac{N_S}{N_{S0}^+} \left(1 + \frac{S_{UD} I_{U0}}{\gamma_D N_{D0}^+} \frac{N_D}{N_{D0}^+} \right) + \frac{S_{DS} I_{U0} N_S}{\gamma_D N_{D0}^+} \frac{N_D}{N_{D0}^+} \right] +$$

$$\frac{S_{DS} I_{U0} N_{S0}^+}{S_{RS} I_{R0}} \left[\frac{\gamma_S N_{S0}^+}{\gamma_D N_{D0}^+} \left(\frac{N_D}{N_{D0}^+} + \frac{N_D - N_{D0}^+}{N_{S0}^+} \right) - \frac{S_{DS} I_{U0} (N_D - N_{D0}^+)}{\gamma_D N_{D0}^+} + 1 \right] +$$

$$\frac{\gamma_{DS} N_{D0}^+}{S_{RS} I_{R0}} \left(\frac{N_S}{N_{S0}^+} + \frac{N_S - N_{S0}^+}{N_{D0}^+} \right) + \frac{\gamma_S N_{S0}^+}{S_{RS} I_{R0}} \frac{\gamma_{DS}}{\gamma_D} + \frac{S_{DS} I_{U0} N_{S0}^+}{S_{RS} I_{R0}} \frac{\gamma_{DS}}{\gamma_D} \left(\frac{N_D}{N_{D0}^+} + \frac{N_S}{N_{S0}^+} - 2 \right), \quad (14)$$

式中 $E_D = \frac{qk_B T}{e}$ 是扩散场, $E_{qS} = \frac{e(N_S - N_{S0}^+)}{q\epsilon\epsilon_0}$ 和

$E_{qD} = \frac{e(N_D - N_{D0}^+)}{q\epsilon\epsilon_0}$ 分别是浅能级和深能级的极限

空间电荷场。 $E_{pRS} = \frac{G_{RS} S_{RS} I_{R0} (N_S - N_{S0}^+)}{e\mu n_{e0}}$ 和 $E_{pUS} =$

$\frac{G_{US} S_{US} I_{U0} (N_S - N_{S0}^+)}{e\mu n_{e0}}$ 分别是浅能级上的电子分别

被记录光和抽运光激发到导带的光激发过程所对应

的光伏场, $E_{pUD} = \frac{G_{UD} S_{UD} I_{U0} (N_D - N_{D0}^+)}{e\mu n_{e0}}$ 是深能级

上的电子被抽运光激发到导带的光激发过程所对应

的光伏电场, $E_{pDS} = \frac{G_{RS} S_{DS} I_{U0} N_{S0}^+ (N_D - N_{D0}^+)}{e\mu n_{e0}}$, 也具有

电场的量纲。

3 LiNbO₃:Fe:Mn 内空间电荷场

为了研究在稳态非挥发双光双步全息存储中, 不同电子输运过程对 LiNbO₃:Fe:Mn 晶体总的空间电荷场的贡献, 除了考虑所有可能的电子交换过程之外, 还考虑两种特殊情况, 即 $S_{DS}, \gamma_{DS} = 0$ 和 $S_{UD}, S_{US} = 0$ 。其中 $S_{DS}, \gamma_{DS} = 0$ 对应电子经过导带

直接的电子交换);而 $S_{UD}, S_{US} = 0$ 对应于抽运光激发只引起深浅能级之间的直接电子交换过程。在后一种情况下,在 Mn^{2+} 离子中心上的电子被抽运光通过隧穿效应所导致的深浅能级之间的直接电子交换过程直接激发到 Fe^{3+} 中心,从而形成 Fe^{2+} 。然后 Fe^{2+} 离子中心上的电子被记录光激发到导带或者直接被附近的 Mn^{3+} 所俘获。导带上的电子经过漂移,扩散或者光伏效应被 Mn^{3+} 中心和 Fe^{3+} 中心俘获。这样,空间电荷场在深能级 Mn^{2+}/Mn^{3+} 和浅能级 Fe^{2+}/Fe^{3+} 上建立起来。

表 1 列出了在计算中用到的 $LiNbO_3:Fe:Mn$ 的材料参数,能够很好地描述大部分在连续光和脉冲光范围内 $LiNbO_3:Fe:Mn$ 的光折变性质。由于 $LiNbO_3:Fe:Mn$ 晶体中表征抽运光在深能级上的激发能力的参数 $G_{UD}S_{UD}$ (抽运光激发电子从 Mn^{2+} 到导带的体光伏系数)和浅能级上俘获导带电子能力参数 γ_s (电子从导带到 Fe^{3+} 离子中心的俘获系数)的值均比近化学比 $LiNbO_3:Fe$ 晶体中相应参数的值大一个量级左右^[11,12],因此有理由设定 $LiNbO_3:Fe:Mn$ 晶体中参数 S_{DS} ($LiNbO_3:Fe:Mn$ 中,在 Mn^{2+}/Mn^{3+} 和 Fe^{2+}/Fe^{3+} 之间直接进行电子交换过程所对应的在抽运光激发下的吸收截面)值比近化学比 $LiNbO_3:Fe$ 晶体中相应参数值大一个量级,为 $S_{DS} = 3.22 \times 10^{-29} m^5/J$ 。同样,由于 $LiNbO_3:Fe:Mn$ 晶体中表征深能级上俘获导带电子能力参数 γ_D (电子从导带到 Mn^{3+} 离子中心的俘获系数)与近化学比 $LiNbO_3:Fe$ 晶体相同参数值相比大 15 倍^[11,12],因此我们这里假定 $LiNbO_3:Fe:Mn$ 晶体中表征深能级上俘获浅能级电子能力参数 γ_{DS}

($LiNbO_3:Fe:Mn$ 中,在 Mn^{2+}/Mn^{3+} 和 Fe^{2+}/Fe^{3+} 之间直接进行电子交换过程所对应的在抽运光激发下的电子俘获系数)的值也相应增大 15 倍,为 $\gamma_{DS} = 1.7 \times 10^{-20} m^3/s$ 。

图 2 为不同电子交换过程在双光双步全息存储中对空间电荷场的影响。在图 2 分别描述了当 $I_U = 1.0 \times 10^4 W/m^2$ 时 $|E_{S1}|$, $|E_{D1}|$ 和 $|E_1|$ 随 I_R 的变化情况。曲线 1,2 对应的分别是 $S_{DS}, \gamma_{DS} = 0$ 即电子通过导带进行交换和 $S_{UD}, S_{US} = 0$ 即电子在深浅能级之间直接进行交换这两种情况,曲线 3 考虑了深浅能级之间所有可能的电子交换过程。可以看到曲线 2,3 都是线性增加,曲线 1 在低光强下先线性增加,在较高的记录光强下,其空间电荷场强度明显线性下降。通过曲线 2 的比较可以看到,这种情况下的 $|E_{S1}|$ 明显比 $|E_{D1}|$ 和 $|E_1|$ 小得多。从实验结果中我们知道,在 $LiNbO_3:Fe:Mn$ 里, $|E_{S1}|$ 与 $|E_{D1}|$ 和 $|E_1|$ 相比可以忽略不计,并且光致折射率的变化随着记录光强的增强而线性增加,直到记录光的光强达到 $10^5 W/m^2$ 以上。这是与曲线 2 和 3 描述的结果相一致的,但与曲线 1 却大不相同。此外,曲线 2 与 3 有着非常近似的数值并且与 I_R 有着相似的依赖性。因此可见,由隧穿效应所导致的在深浅能级之间的直接电子交换过程在 $LiNbO_3:Fe:Mn$ 晶体的全息存储过程中起到了决定性的作用,与之相关的参数在双光双步全息存储性能方面也起着关键的作用。此外,通过曲线 2 和 3 的比较发现,在相同的实验条件下以曲线 2 描述的电子输运过程为主导的晶体能够产生更好的非挥发全息存储性能。

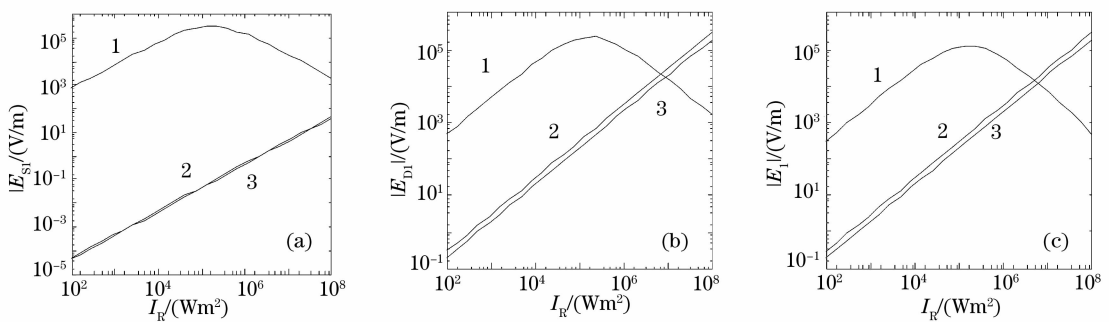


图 2 在 $LiNbO_3:Fe:Mn$ 晶体里,当 $I_U = 1.0 \times 10^4 W/m^2$ 时,由不同的电子输运过程所产生的 (a) $|E_{S1}|$, (b) $|E_{D1}|$ 和 (c) $|E_1|$ 随 I_R 的变化。这里,曲线 1 和 2 分别表示电子输运过程为 $S_{DS}, \gamma_{DS} = 0$ 和 $S_{UD}, S_{US} = 0$ 时的情况,曲线 3 表示的是考虑所有电子输运过程时的情况

Fig. 2 Dependences of (a) $|E_{S1}|$, (b) $|E_{D1}|$ and (c) $|E_1|$ on I_R with I_U of $1.0 \times 10^4 W/m^2$ for different electron transfer processes in a $LiNbO_3:Fe:Mn$ crystal. Curve 1 and 2 correspond to the special cases with $S_{DS}, \gamma_{DS} = 0$ and $S_{UD}, S_{US} = 0$, respectively, while curve 3 represents the results when all possible electron transfer processes are considered

4 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 与近化学比 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ 空间电荷场的比较

近化学比 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ 晶体比同成份 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ 晶体有着更好的全息存储性能^[13,14],因此,本文又都以双中心模型为基础,从理论上研究双掺与单掺 LiNbO_3 晶体全息存储性能的不同,图 3 对 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 与近化学比 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ 晶体的总的空间电荷场进行了比较.对于近化学比 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ 晶体,双中心模型中深浅能级分别由 $\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$ 与 $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}/\text{Nb}_{\text{Li}}^{5+}$ 构成,两种晶体在导带运输模型中的电子运输过程是相同的.近化学比 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ 晶体的各种参数值见文献^[13,14].图中虚线与实线分别对应近化学比 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ 晶体和 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体.图 3(a)是当 $I_R = 5.0 \times 10^4 \text{ W/m}^2$ 时,这两种晶体中总的空间电荷场 $|E_1|$ 随 I_U 的变化情况.在较低的抽运光强条件下,两种晶体的空间电荷场都基本维持定值,随着抽运光的增强,空间电荷场都单调下降.这些现象是由抽运光在双光双步全息存储中的两个相反的效果所造成的,这里以 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体为例说明:抽运光光强的增加导致了 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体中浅能级上 Fe 离子浓度增长,因此 $|E_1|$ 随之增加;另一方面,抽运光又部分地抹除了在 $\text{Mn}^{2+}/\text{Mn}^{3+}$ 能级和 $\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$ 能级上的光栅.后一方面的作用在高抽运光光强下体现得更加明显.图 3(b)是当 $I_U = 1.0 \times 10^4 \text{ W/m}^2$ 时,两种晶体中总的空间电荷场 $|E_1|$ 随 I_R 的变化情况.

$\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体的空间电荷场随记录光的增强线性增加,而近化学比 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ 晶体的空间电荷场在低记录光强下先线性增加,在空间电荷场的值达到饱和之后随着记录光光强的进一步增强而线性下降.这是因为对于近化学比 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ 晶体,记录光在小极化子 ($\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}/\text{Nb}_{\text{Li}}^{5+}$) 上的光激发速率 $S_{\text{RS}} I_R (N_{\text{S}} - N_{\text{S0}}^+)$ 在低光强下与浅能级上小极化子的暗衰减速率相比可以忽略不计,然而在高光强下它又变成了一个重要的因素.在高记录光强下,可见看到 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体的空间电荷场明显大于近化学比 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ 晶体的,这是由于在双中心模型中,这两种晶体的所有参数值除浅能级上电子的暗衰减速率外, $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体的其余参数均比近化学比 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ 晶体的相应参数大一个量级左右,而 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体中浅能级上电子的暗衰减速率这个参数比近化学比 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ 晶体的大四个量级左右^[11,12],这就造成 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体浅能级上的光激发速率 $S_{\text{RS}} I_R (N_{\text{S}} - N_{\text{S0}}^+)$ 在较高记录光强下与浅能级上电子的暗衰减速率相比仍可以忽略不计,同时这个大了四个量级的暗衰减速率造成 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体浅能级上电子与近化学比 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ 晶体浅能级上电子相比有较少的可能被记录光激发,因此这也是在较低光强下 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体空间电荷场比近化学比 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ 晶体空间电荷场小的根本原因.当 I_R/I_U 的比值固定为 5 时, $|E_1|$ 都是随着 I_R 的变化

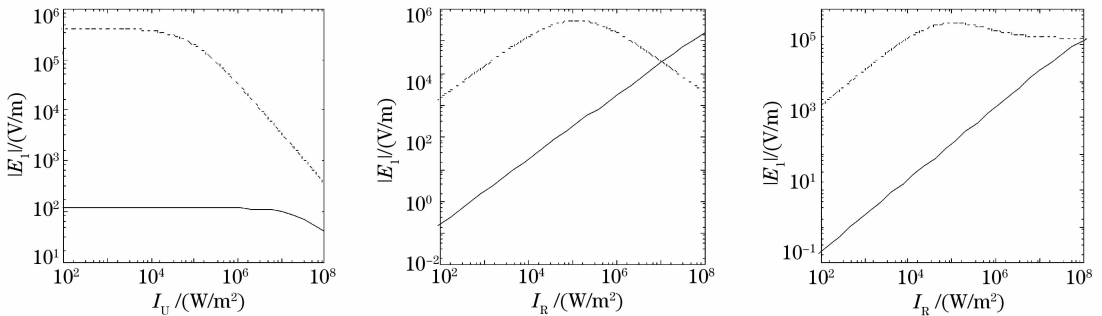


图 3 当所有电子运输过程都考虑的情况下, $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 与近化学比 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ 晶体空间电荷场的比较。(a) 当 I_R 为 $5.0 \times 10^4 \text{ W/m}^2$ 时, $|E_1|$ 随 I_U 增强的变化情况, (b) 当 I_U 为 $1.0 \times 10^4 \text{ W/m}^2$ 时, $|E_1|$ 随 I_R 增强的变化情况, (c) 把 I_R/I_U 的比例定为 5, $|E_1|$ 随 I_R 增强的情况。这里, $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 与近化学比 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ 晶体的情况分别用实线与虚线表示

Fig. 3 Comparison of the two-step, two-color holography performance between the $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ and the near-stoichiometric $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ when all possible electron transfer processes are taken into account. (a) Dependence of $|E_1|$ on I_U with I_R of $5.0 \times 10^4 \text{ W/m}^2$, (b) dependence of $|E_1|$ on I_R with I_U of $1.0 \times 10^4 \text{ W/m}^2$, (c) dependence of $|E_1|$ on I_R with I_R/I_U of 5. Note that the solid and the dashed curves are for the $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ and the near-stoichiometric $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$, respectively

情况如图 3(a)所示。LiNbO₃:Fe 晶体的空间电荷场随着 I_R 和 I_U 光强的同时提高而增加,最终趋于饱和,而 LiNbO₃:Fe:Mn 晶体的空间电荷场随着 I_R 和 I_U 光强的增强单调增加。

5 结 论

理论上研究了稳态情况下 LiNbO₃:Fe:Mn 晶体的非挥发全息存储性能。通过比较在深能级(Mn²⁺/Mn³⁺)和浅能级(Fe²⁺/Fe³⁺)之间不同的电子交换过程对晶体空间电荷场所造成的影响,推断深浅能级之间通过隧穿效应所引起的直接电子交换过程在双光双步全息存储过程中起到了决定性的作用。因此,与隧穿效应相关的材料参数对双光双步全息存储的表现也起着至关重要的作用。此外,通过 LiNbO₃:Fe:Mn 晶体与近化学比 LiNbO₃:Fe 晶体空间电荷场的比较,发现在低光强下近化学比 LiNbO₃:Fe 晶体有着更大的空间电荷场,而在较低的抽运光光强,同时记录光在 10⁷ W/m² 以上时 LiNbO₃:Fe:Mn 晶体的全息存储性能才会比近化学比 LiNbO₃:Fe 晶体表现得更佳。

参 考 文 献

- 1 Y. S. Bai, R. Kachru. Nonvolatile holographic storage with two-step recording in lithium niobate using cw Lasers[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1997, **78**(15): 2944~2947
- 2 Guo YuanJun, Liu Liren, Liu Dean *et al.*. Effect of wavelength of sensitizing light on holographic storage properties of (Fe,Ni):LiNbO₃ crystal[J]. *Acta Optica Sinica*, 2006, **26**(8): 1240~1244
郭袁俊,刘立人,刘德安等. 敏化光波长对(Fe,Ni):LiNbO₃晶体全息记录性能的影响[J]. *光学学报*, 2006, **26**(8): 1240~1244
- 3 L. Hesselink, S. S. Orlov, A. Liu *et al.*. Photorefractive materials for nonvolatile volume holographic data storage[J]. *Science*, 1998, **282**(5391): 1089~1094
- 4 H. Guenther, R. Macfarlane, Y. Furukawa *et al.*. Two-color holography in reduced near-stoichiometric lithium niobate[J]. *Appl. Opt.*, 1998, **37**(32): 7611~7623
- 5 Zhang Guoquan, Y. Tomita, Xu Wusheng *et al.*. Nonvolatile two-color holography in indium-doped lithium niobate[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2000, **77**(22): 3508~3510
- 6 Li Minghua, Jia Xiaolin, Qiang Liangsheng *et al.*. Characteristics

- of holographic memory and phase conjugate of Ce:Fe:LiNbO₃ crystal[J]. *Acta Optica Sinica*, 1993, **13**(3): 229~233
李铭华,贾晓林,强亮生等. Ce:Fe:LiNbO₃晶体的全息存储和相位共轭特性的研究[J]. *光学学报*, 1993, **13**(3): 229~233
- 7 D. vonder Linde, A. M. Glass, K. F. Rodgers. Multiphoton photorefractive processes for optical storage in LiNbO₃ [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1974, **25**(3): 155~157
 - 8 Zeng Jiyong, Wang Minqiang, Jin Guofan *et al.*. Design of volume holographic storage optical system with common optical axis for signal beam and reference beam[J]. *Acta Optica Sinica*, 2006, **26**(2): 244~248
曾吉勇,王民强,金国藩等. 物光参考光同光轴的体全息存储光学系统设计[J]. *光学学报*, 2006, **26**(2): 244~248
 - 9 D. Berben, K. Buse, S. Wevering *et al.*. Lifetime of small polarons in iron-doped lithium niobate crystals[J]. *J. Appl. Phys.*, 2000, **87**(3): 1034~1041
 - 10 F. Jermann, J. Otten. Light-induced charge transport in LiNbO₃:Fe at high light intensities[J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1993, **10**(11): 2085~2092
 - 11 A. Adibi, K. Buse, D. Psaltis. Theoretical analysis of two-step holographic recording with high-intensity pulses[J]. *Phys. Rev. A*, 2001, **63**: 023813-1~17
 - 12 A. Adibi, K. Buse, D. Psaltis. Two-center holographic recording[J]. *Appl. Opt.*, 2001, **18**(5): 584~601
 - 13 Shen Yan, Zhang Guoquan, Fu Bo *et al.*. Studies on nonvolatile holographic recording for LiNbO₃:Fe with different stoichiometry[J]. *J. Infrared and Millimeter Waves*, 2005, **24**(4): 269~272
申岩,张国权,付博等. 对不同组份 LiNbO₃:Fe 非挥发全息存储的研究[J]. *红外与毫米波学报*, 2005, **24**(4): 269~272
 - 14 Shen Yan, Zhang Guoquan, Fu Bo *et al.*. Nonvolatile two step, two-color holography with continuous-wave lights for both congruent and near-stoichiometric LiNbO₃:Fe [J]. *J. Appl. Phys.*, 2004, **96**(10): 5405~5414
 - 15 Shen Yan, Zhang Guoquan, Fu Bo. Theoretical studies on nonvolatile two-step, two-color holographic recording sensitivity for LiNbO₃:Fe[J]. *Opt. Commun.*, 2005, **256**(1~3): 24~34
 - 16 Liu Youwen, Liu Liren, Zhou Changhe. Experimental study of non-volatile holographic storage of doubly- and triply-doped lithium niobate crystals[J]. *Chin. J. Lasers*, 2001, **28**(2): 165~168
刘友文,刘立人,周常河等. 双掺杂和三掺杂铌酸锂晶体稳定全息[J]. *中国激光*, 2001, **28**(2): 165~168
 - 17 Liu Xuezhong, Chen Zhongyu. Photopolymer holographic recording material sensitized to two wavelength[J]. *Acta Optica Sinica*, 2004, **24**(8): 1099~1102
刘学璋,陈仲裕. 双波长敏感的光致聚合物全息存储材料[J]. *光学学报*, 2004, **24**(8): 1099~1102
 - 18 Zhang Jun, Han Shengyuan, Lu Guiwu *et al.*. Calculation for electronic structure and optical properties of LiNbO₃ crystals[J]. *Chin. J. Lasers*, 2007, **34**(9): 1227~1231
张军,韩胜元,卢贵武等. 铌酸锂晶体电子结构和光学性质计算[J]. *中国激光*, 2007, **34**(9): 1227~1231