

双掺杂 Fe:Mn:LiNbO₃ 晶体双色全息存储性能分析

郭汝海¹ 郭 劲¹ 郭立红¹ 时红艳² 李殿军¹ 杨贵龙¹
(¹ 中国科学院长春光学精密机械与物理研究所, 吉林 长春 130033)
(² 哈尔滨工业大学物理系, 黑龙江 哈尔滨 150001)

摘要 基于带运输模型建立双掺杂 Fe:Mn:LiNbO₃ 晶体双色全息存储的耦合微分方程组,在此基础上用数值求解的方法讨论用锰多铁少型双掺杂铌酸锂晶体进行双色全息存储的时间动态过程,分析此种晶体氧化还原态对晶体内建空间电荷场的影响。只有氧化的 Fe:Mn:LiNbO₃ 晶体能通过双色存储实现全息图的非破坏性读出,氧化的 Fe:Mn:LiNbO₃ 晶体红光擦除后所保留的衍射效率随氧化而提高。在实验方面用同种杂质浓度的四种不同氧化还原态的晶体,进行了还原晶体之间、氧化晶体之间二波耦合对比实验,实验结果和理论分析的结果一致,同时利用实验曲线定量地计算了氧化晶体的全息动态范围参量 $M/\#$ 和各个晶体的记录灵敏度,得到了较大的 $M/\#$ 的值为 5.03(非寻常光,激光波长,632 nm),但是以较低的灵敏度为代价的。

关键词 全息术; 光折变; 衍射效率; 非破坏性读出

中图分类号 O438.1 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS20092912.3328

Analysis on Performance of Two-Color Holographic Storage Based on Fe:Mn:LiNbO₃ Crystal

Guo Ruhai¹ Guo Jin¹ Guo Lihong¹ Shi Hongyan² Li Dianjun¹ Yang Guilong¹
(¹ Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Changchun, Jilin 130033, China)
(² Department of Physics, Harbin Institute of Technology, Harbin, Heilongjiang 150001, China)

Abstract The paper established the coupling differential equations using the band-transport model. Using practical experiment's parameters, we numerically calculated and explained the time-dynamic developing process of the holographic storage, and analyzed how the oxidation-reduction degree of the crystal affects the space charge field within the crystal. Only the oxidative crystals can accomplish nonvolatile holographic storage, which its diffraction efficiency after red-light read-out increases with the increase of oxidative degree. Further more we measured the diffraction efficiencies of four specimens with different degree of oxidation-reduction and did comparable experiments of two-wave coupling between reductive crystals and oxidative crystals. The experimental results coincided with the theoretical analysis very well. At the same time, holographic dynamic range $M/\#$ and recording sensitivity of oxidative crystal was quantitatively calculated by using experimental curve in which value of $M/\#$ equaled to 5.03 (extraordinary light, wavelength, 632 nm), but trade off with lower sensitivity.

Key words holography; photorefraction; diffractive efficiency; nondestructive read-out

1 引 言

随着信息化时代的进程日益加快,对大容量的数据进行高速的存储和传输成为了人们迫切的需要,光学全息存储被认为是一种海量快速存储数据的有效

方法得到各国研究者的广泛重视^[1~3]。但是在很长一段时间里,光学全息存储都因为缺乏一种合适的材料而受到很大的制约。目前研究的记录材料主要分为:光折变晶体和光敏聚合物材料两类。光折变晶体

收稿日期: 2008-10-21; 收到修改稿日期: 2008-12-03

基金项目: 中国科学院知识创新工程领域前沿资助项目。

作者简介: 郭汝海(1976—),男,博士,助研,主要从事激光光学与信息光学等方面的研究。E-mail: hitgrh@163.com

由于其具有稳定性、可重复记录性和大的动态范围仍然是目前光全息存储的备选材料之一。

双掺杂的光折变晶体的双色固定法是 K. Buse 等^[4]率先提出的一种新型的光全息存储的方法,即在 LiNbO₃ 晶体中掺杂两种不同深度能级的离子(铁和锰),同时用非相干的紫外光和调制的红光照射晶体来记录。这种方法可以在缺少紫外光时读取信息而不抹除所存储的信息,从而实现全系存储的非破坏性读出。由于采用了全光学的方法,所以具有简单易行的特点。

带运输模型^[5]可以很好地解释由晶体的光折变效应所记录得全息图,现已有了包括扩散、漂移和光伏打效应的解析解^[6,7]。刘友文等^[8]利用 K. Buse 实验用的晶体的掺杂配比(掺杂质量分数为 0.01% 的 MnO, 掺杂质量分数为 0.075% 的 Fe₂O₃),数值求解了双掺杂 Fe:Mn:LiNbO₃ 晶体进行光存储的动态发展过程,预言了只有氧化的晶体才能达到非破坏性存储的目的。近些年来,基于此种类型晶体已经进行了广泛的研究,而对锰多铁少的晶体的全息存储性能分析报道很少。

本文基于带运输模型,采用锰多铁少的晶体配比参数(掺杂质量分数为 0.1% 的 MnO, 掺杂质量分数为 0.03% 的 Fe₂O₃),数值求解不同氧化还原条件下的双掺杂 Fe:Mn:LiNbO₃ 晶体进行全息存储的动态发展过程,并据此给出理论预测。然后用此种掺杂配比的不同氧化还原态的晶体进行二波耦合对比实验,定量地对此种类型的晶体进行全息存储特性分析研究,并对其存储机理进行解释说明。

2 双掺杂的光折变晶体的带运输模型

对于双掺杂的 Fe:Mn:LiNbO₃ 晶体,锰离子的能级比铁离子能级深,只有紫外光能激发 Mn²⁺ 离子的电子进入导带,而紫外光和调制的红光都能从 Fe²⁺ 上级发电子进入导带,它的能级结构如图 1 所示。

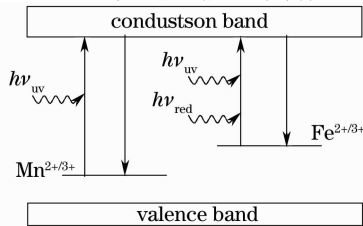


图 1 LiNbO₃:Fe:Mn 晶体的二中心运输模型的能带图

Fig. 1 Energy band diagram of two-center transport model in LiNbO₃:Fe:Mn crystal

根据文献^[10]所采用的带运输模型,取其中的参数为: $N_1 = 1.5 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ (相当于掺杂质量分数为 0.1% 的 MnO), $N_2 = 0.4 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ (相当于掺杂质量分数为 0.03% 的 Fe₂O₃), 所使用的汞灯的光强 $I_1 = 350 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$, $S_1 = 3 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$, $S_{21} = 1 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$, $S_{22} = 3 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$, $\gamma_1 = \gamma_2 = 1 \times 10^{-15} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ^[10], $\mu = 1.1 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$, $m = 0.5$, $T = 300 \text{ K}$, $E_0 = 0$, $\epsilon = 2.568 \times 10^{-10} \text{ A} \cdot \text{s} \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$, $\kappa_{22} = 1.4 \times 10^{-11} \text{ A} \cdot \text{m} \cdot \text{W}^{-1}$, $I_{20} = 5000 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$, $k = 1 \times 10^7 \text{ m}^{-1}$ 。

用汞灯发出的紫外光预照明,同时用均匀的紫外光和调制的红光进行记录,对于我们给定的掺杂浓度的晶体,晶体的氧化还原程度对信息的存储和固定具有关键的作用。我们用 $x = (N_1^+ + N_2^+)/N_2$ 定义晶体的氧化还原程度,当 $x > 1$ 时为氧化晶体, $x = 1$ 时为未经氧化还原处理的晶体,而 $x < 1$ 时则对应于还原晶体。图 2 描绘了对于一定的掺杂杂质的浓度 ($N_1 = 1.5 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$, $N_2 = 0.4 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$) 三种不同的氧化还原程度(曲线 A 为 $x = 4$, 曲线 B 为 $x = 1$, 曲线 C 为 $x = 0.5$), 其它条件不变时,空间电场随时间的演化过程,从图 2 可以看出晶体的记录灵敏度,所能达到的稳态的空间电荷场及最后保留的锰离子光栅所产生的空间电荷场强烈的依赖于晶体的氧化还原程度。氧化程度越高,它记录过程中的灵敏度就越低,所达到的稳态空间电荷场就越小,所保留的空间电荷场却越大。相反还原程度越高,记录过程中的灵敏度就越大,所达到的稳态空间电荷场就越大,但所固定的空间电荷场就越小。对于

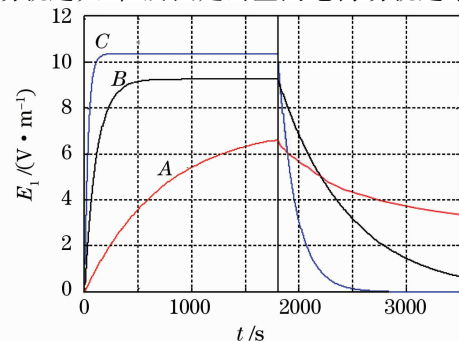


图 2 不同氧化还原程度 $x=4, 1, 0.5$ 时,记录和固定过程中空间电荷场随时间的变化

Fig. 2 For three oxidation-reduction degree with $x=4, 1, 0.5$ respectively, space-charge field versus time in recording and fixing processes

光存储材料来说,一方面需要材料具有较高的记录灵敏度,另一方面希望最后存入的光栅具有较高的衍射效率(即具有较大的空间电荷场)。对比图 2 的三条曲线可以看出,对于锰多铁少的双掺杂的 Fe:Mn:LiNbO₃ 晶体来说,固定后的空间电场随氧化而增大,光折变灵敏度随氧化而减少,高的衍射效率是以降低光折变灵敏度为代价的。用双掺杂 Fe:Mn:LiNbO₃ 晶体进行实际的光全息存储时,可以根据不同的需要

表 1 实验晶体的参数

Table 1 Parameter of experimental crystals

Number	Size /(mm×mm×mm)	Dopants concentration /%	Oxidation-reduction
1#	7.8×6.1×2.8	0.03Fe ₂ O ₃ 0.1MnO	Reductive process buried in Li ₂ O ₃ for 10 h with 550 °C
2#	7.8×6.1×2.8	0.03Fe ₂ O ₃ 0.1MnO	Oxidative process in O ₂ for 9 h with 1000 °C
3#	5.6×5.3×5.6	0.03Fe ₂ O ₃ 0.1MnO	Reductive process buried in Li ₂ O ₃ for 12 h with 500 °C
4#	10.4×10.2×2.6	0.03Fe ₂ O ₃ 0.1MnO	Oxidative process in O ₂ for 20 h with 1000 °C

分别利用上述晶体进行全息存储实验研究,并对各个不同晶体进行对比研究来说明用双掺杂的铌酸锂晶体进行全息存储的性能特点。实验中选用 He-Ne 激光器作为记录光源,波长为 632.8 nm,采用实验室用高压汞灯作为紫外光源,它的谱线为线光谱,作为开光光源,它的功率很高,方向性也很好,波长范围符合实验对紫外光的要求。

双掺杂 Fe:Mn:LiNbO₃ 的双色二波耦合的衍射效率测量的实验光路配置如图 3 所示。采用光强为 350 W/m² 的高压汞灯作为开关光源,双光束对称入射,单光束入射半角 $\theta=21^\circ$ 。实验方法为每经过一段时间挡住一束入射光(参考光),测量另一束光(物光)的衍射光强,从而得到衍射效率随记录时间的变化规律,当衍射效率达到最大值时,挡住物光进行读出实验,观察衍射效率随时间的变化。图中 Lamp 是高压汞灯,L 为会聚透镜,S 为光阑,BS 为分束镜,C 代表晶体的 C 轴,最后由 X-Y 记录仪来记录实验结果曲线。

1)还原晶体的二波耦合衍射效率的测量对比实验

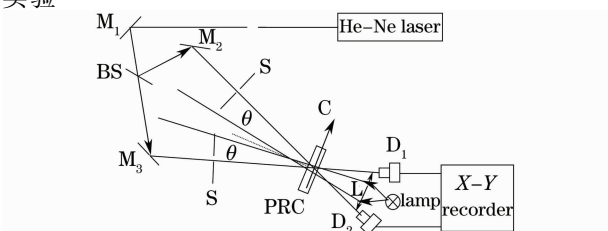


图 3 双色全息存储衍射效率测量的装置图

Fig. 3 Experimental configuration of two-color holographic storage for measuring diffraction efficiency

在晶体生长后进行一定的氧化还原处理。

3 二波耦合实验结果与讨论

实验中所采用四块 Fe:Mn:LiNbO₃ 晶体都是掺锰较多的晶体。这四块晶体掺杂浓度是一样的,但经过了不同的氧化和还原处理,晶体的大小也有差别。表 1 给出了实验用晶体的具体参数。

首先对 1# 还原晶体分别测量了单色光记录和双色光记录时,二波耦合衍射效率的变化曲线及擦除曲线。实验结果分别如图 4(a),(b)所示。再对 3# 还原晶体重复做同样的实验,实验结果分别如图 4(c),(d)所示。

图 4 曲线反映了在同一实验条件下,紫外灯关闭和打开两种情况下的光栅的记录和读出过程,为了更直观的表明实验对比的效果,图 4(b)和(d)的整个记录和读出过程由其上的小方框图表示。图 4(a)表明只用红光记录和读出的情况下光栅的衍射效率以单 e 指数形式上升,直至稳态的衍射效率 $(A_0)^2=77.1\%$,时间常数 $\tau_r=75$ s。读出时,衍射效率以单 e 指数形式下降,随读出时间逐渐趋于零,时间常数 $\tau_e=1600$ s,则晶体的记录灵敏度为 $S=0.084$ cm/J。

图 4(b)表明在红光和紫外光一起记录的情况下,光栅的记录过程与没有紫外灯时记录的趋势相类似,光栅的衍射效率也是单 e 指数形式上升,达到稳态衍射效率 $(A_0)^2=71\%$,然后只用红光进行读出,衍射效率同样随时间逐渐趋于零。记录时间常量和擦除时间常量分别为 $\tau_r=52$ s, $\tau_e=7750$ s,晶体的记录灵敏度为 $S=0.116$ cm/J。

同理可得,图 4(c)的稳态衍射效率 $(A_0)^2=40\%$, $\tau_r=200$ s, $\tau_e=3600$ s,晶体的记录灵敏度为 $S=0.011$ cm/J。图 4(d)的稳态衍射效率 $(A_0)^2=39\%$, $\tau_r=130$ s, $\tau_e=20280$ s, $S=0.017$ cm/J。3# 晶体记录的稳态衍射效率相比于 1# 晶体较小是因为它是一块较厚的晶体,由于光扇效应将使衍射光的光强下降。

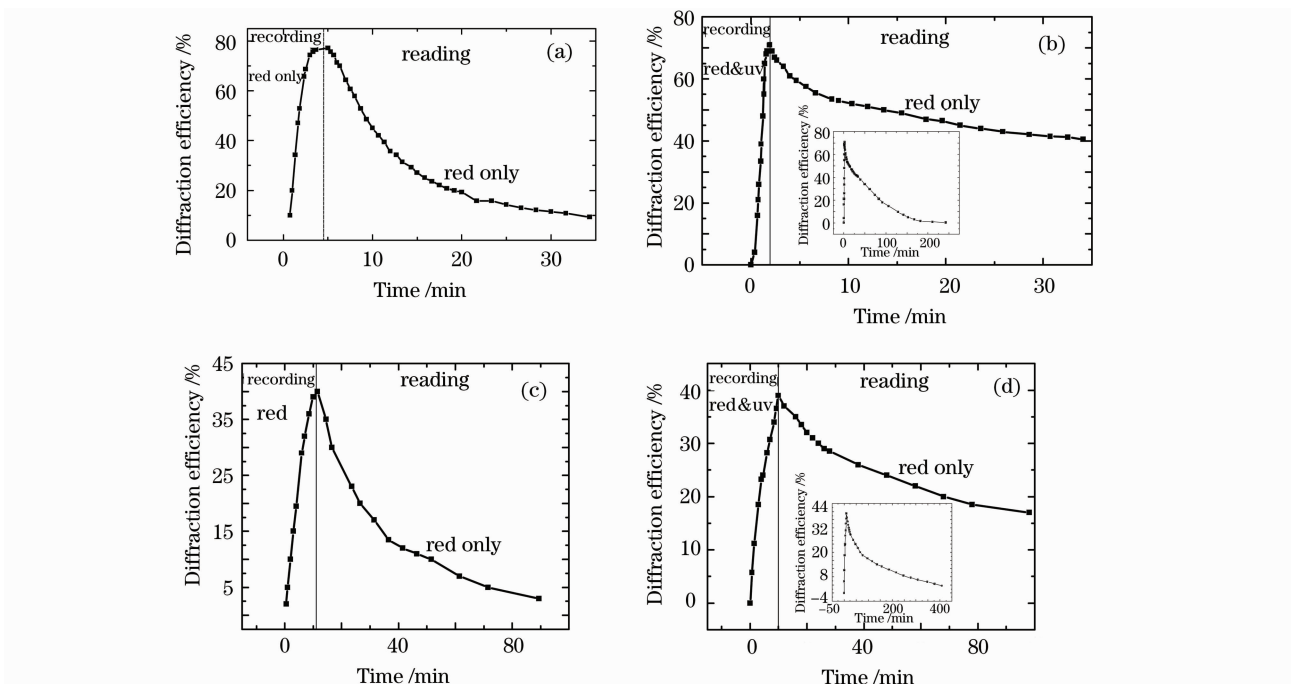


图 4 还原晶体单色与双色光全息存储的记录与读出曲线 (a) 1# 晶体单色光全息存储记录与读出曲线; (b) 1# 晶体双色光全息存储的记录与读出曲线; (c) 3# 晶体单色光全息存储记录与读出曲线; (d) 3# 晶体双色光全息存储记录与读出曲线

Fig. 4 Recording and read-out curves of single-color and two-color holographic storage for deoxidized crystals (a) single-color holographic recording and read-out curves for crystal 1 #; (b) two-color holographic recording and read-out curves for crystal 1 #; (c) single-color holographic recording and read-out curves for crystal 3 #; (d) two-color holographic recording and read-out curves for crystal 3 #

从这个对比实验可以看出,还原晶体无论是单色还是双色全息存储都不能实现非破坏性的读出。刘友文等已经在实验和理论上证明了铁多锰少的双掺杂的还原铌酸锂晶体不能实现非破坏性读出,同样我们所用的锰多铁少的双掺杂的还原铌酸锂晶体也不能实现非破坏性读出。

2) 氧化晶体的二波耦合衍射效率的测量对比实验

实验光路配置仍如图 3 所示,实验条件和还原晶体双色存储实验一样,采用 2# 和 4# 氧化晶体进行光双色全息存储对比实验。把 2# 和 4# 晶体用紫外灯进行 1 h 的预照明,再用调制的红光和紫外光一起记录,测量衍射效率随时间的变化。在读出过程中先用红光读出,经过一段时间不再下降以后,用红光和紫外光一起擦除,同样测量衍射效率随时间的变化。实验结果分别如图 5(a) 和 (b) 所示。从图中可以很明显的看出氧化晶体的记录和擦除过程是和前面所讨论的一致,即记录过程是单 e 指数形式,擦除过程是一个双 e 指数行为,从图中的实验数据计算可得:图 5(a) 稳态衍射效率为 $(A_0)^2 = 35.2\%$, $\tau_r = 2170$ s, 它的两个擦除时间常量分别为 $\tau_{e2} = 13260$ s, $\tau_{e1} = 4580$ s, 经过红光足够长时间读

出保留的衍射效率为 $(\beta A_0)^2 = 25.3\%$, 晶体 2# 的记录灵敏度为 $S = 0.00195$ cm/J。同理可得:图 5(b) 的稳态衍射效率 $(A_0)^2 = 22.4\%$, $\tau_r = 2080$ s, $\tau_{e2} = 25000$ s, $\tau_{e1} = 4600$ s, $(\beta A_0)^2 = 17.5\%$, 同理计算晶体 4# 的记录灵敏度为 $S = 0.00173$ cm/J。这表明晶体的记录灵敏度和稳态衍射效率随氧化程度的增加而减少,尽管这种降低不是很明显。擦除时间常数随氧化程度的增加而增加,而且可以看出随氧化程度增加所固定的衍射效率就越高。可以从图 5 得出结论,氧化的双掺杂 Fe:Mn:LiNbO₃ 晶体可以实现光全息图像的非破坏性读出,这和我们由带运输模型数值分析的结果一致。

3) 不同氧化还原态二波耦合衍射效率的测量对比实验

在前两个对比实验的基础上,对比图 4 和图 5 来讨论不同的氧化还原态对 Fe:Mn:LiNbO₃ 晶体衍射效率的影响。可以看出,还原晶体的稳态衍射效率要大于氧化晶体的稳态衍射效率,还原晶体的记录灵敏度也要大于氧化晶体的记录灵敏度。但氧化晶体的衍射效率在经过红光的一段时间的读出后,将得到固定的衍射效率,即可以实现非破坏性读

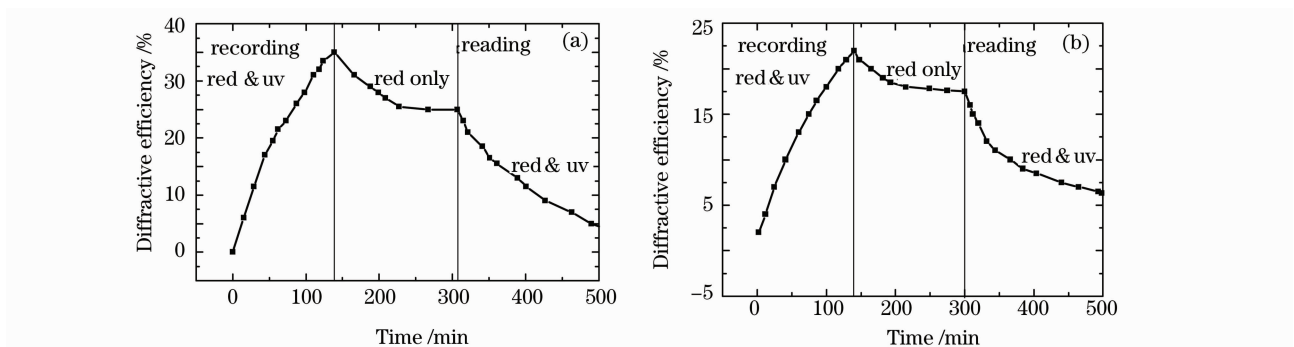


图 5 氧化晶体的双色光全息存储的记录与读出曲线(a)2#晶体双色光全息存储的记录与读出曲线;(b)4#晶体双色光全息存储的记录与读出曲线

Fig. 5 Two-color holographic recording and read-out curves for crystal 4# (a)two-color holographic recording and read-out curves for crystal 2#; (b)two-color holographic recording and read-out curves for crystal 4#

出,而还原的晶体的衍射效率将随时间的增加最终减少到零,不能实现双光子固定,这和第二部分的理论分析的结果吻合得很好。

下面将计算 2# 和 4# 氧化晶体的动态范围参量 $M/\#$ 。全息复用多个全息图时, $M/\# = \beta A_0 (\tau_{e2}/\tau_r)$, 我们把上面得到的 τ_{e2} 、 τ_r 和 βA_0 的值代入, 得到 2# 晶体的 $M/\# = 3.06$, 4# 晶体的 $M/\# = 5.03$ 。基于这两块晶体的 $M/\#$, 如果采用双色全息存储的方法, 并采用角度复用技术和顺序曝光方案复用 500 幅平面波全息图, 当记录完所有全息图后再用红光连续读出 2 h, 可以预期 2# 和 4# 晶体中每个全息图的衍射效率分别为 $\eta = (M/\#/M)^2 = 3.7 \times 10^{-5}$ 和 $\eta = (M/\#/M)^2 = 1.01 \times 10^{-4}$ 。可以看出氧化程度高的晶体的 $M/\#$ 越大, 基于它的全息系统性能越好。即不仅复用相同数目的全息图得到的每个全息图的衍射效率越高, 也可以在指定每个全息图衍射效率的基础上复用更多的全息图。

4 结 论

本文从理论和实验上对锰多铁少的双掺杂 $\text{Fe}:\text{Mn}:\text{LiNbO}_3$ 晶体进行全息存储和非破坏性读出的机理进行了分析, 可以得出以下结论:

1) 不管是铁多锰少还是锰多铁少的双掺杂 $\text{Fe}:\text{Mn}:\text{LiNbO}_3$ 晶体的记录灵敏度都随还原而增加, 随氧化而减少, 加紫外光的晶体记录灵敏度高于未加紫外光的记录灵敏度。而且氧化的晶体氧化程度越强, 所固定的衍射效率就越高。从实验中证明了氧化晶体的擦除过程为一个双 e 指数的过程, 氧化晶体的 $M/\#$ 值随氧化而提高, 而 $M/\#$ 值的提高是以牺牲晶体记录灵敏度为代价的。

2) 这种锰多铁少的还原型 $\text{Fe}:\text{Mn}:\text{LiNbO}_3$ 晶体

在有紫外光的情况下都不能实现全息图像的非破坏性读出, 而氧化的 $\text{Fe}:\text{Mn}:\text{LiNbO}_3$ 晶体在有紫外光记录的情况下能够实现全息图像的非破坏性读出。

综上所述, 用双掺杂晶体进行光双色全息存储时, 如果正确选择两个能及杂质及其数密度, 以及氧化还原原态, 就能够同时获得较高的记录灵敏度和较高的固定衍射效率, 因此这种方法可以根据实际情况灵活设计, 促进全息存储系统早日走向实用化领域。

参 考 文 献

- 1 P. Shouzhi, Y. Baoli, L. Gang *et al.*. Polarization multiplexing holographic optical recording of a new photo-chromic diarylethene [J]. *Opt. Eng.*, 2008, **47**(3): 030502
- 2 Z. Yu, L. Liren, L. Dean *et al.*. Holographic fixing with modulated light in two-center holographic recording[C]. *SPIE*, 2008, **6698**: 66981K
- 3 S. W. Chia, C. C. Yue, L. Y. Wen *et al.*. Polarization simultaneous readout for volume holographic storage in LiNbO_3 [C]. *SPIE*, 2008, **6994**: 69940Y
- 4 K. Buse, A. Adibi, D. Psaltis. Non-volatile holographic storage in doubly doped lithium niobate crystals [J]. *Nature*, 1998, **393**(18): 665~668
- 5 N. V. Kukhtarev, V. B. Markov, S. G. Odulov *et al.*. Holographic storage in electrooptic crystals [J]. *Ferroelectrics*, 1979, **22**: 949~955
- 6 M. G. Moharam, T. K. Gaylord, R. Magnusson. Holographic grating formation in photorefractive crystals with arbitrary electronic transport lengths [J]. *J. Appl. Phys.*, 1979, **50**(9): 5642~5651
- 7 H. J. Eichler, P. Günter, D. W. Pohl. Laser-induced dynamic grating [M]. Berlin: Spinger-Verlag, 1986, 187~195
- 8 Liu Youren, Liu Liren, Guo Yingchun *et al.*. The dynamics of holographic storage in doubly doped $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ [J]. *Acta Physica Sinica*, 2000, **49**(5): 880~886
- 9 刘友文, 刘立人, 郭迎春等. 双掺杂 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 全息存储动力学 [J]. *物理学报*, 2000, **49**(5): 880~886
- 10 K. Buse. Light-induced charge transport processes in photorefractive crystal I: model and experimental methods [J]. *Appl. Phys. B*, 1997, **64**(3): 273~291
- 11 R. S. Cudney, R. M. Pierce, D. Mahgerefteh *et al.*. Intensity dependence of the photogalvanic effect in barium titanate [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 1992, **9**: 1704~1713