

近化学配比 LiNbO_3 晶体双色光全息记录的 实验研究

杨永梅^{1,2} 刘友文¹ 张艳丽¹

(¹ 南京航空航天大学应用物理系, 江苏 南京 210016)
(² 南京信息工程大学数理学院, 江苏 南京 210044)

摘要 实验用红光记录紫光敏化, 研究了几种不同掺杂浓度和氧化还原状态的近化学配比铌酸锂晶体的双色全息记录特性, 如其饱和衍射效率和记录灵敏度的变化规律。实验结果表明, 晶体的饱和衍射效率随透射光强与紫外光强比值的增加先增加后减小, 而记录灵敏度在不断减小。Mn 含量相同时, Tb 含量越高的晶体饱和衍射效率越高, 而记录灵敏度越低。Tb 含量相同时, 含 Mn 比不含 Mn 的晶体的饱和衍射效率低, 但记录灵敏度更高。还原晶体的饱和衍射效率和记录灵敏度均比氧化晶体高。记录光与敏化光的比值、掺杂浓度和氧化还原状态对晶体的全息特性产生影响。通过适当调整上述参数之间的关系, 可对材料的全息记录特性进行优化。

关键词 非线性光学; 双色光全息记录; 近化学配比 LiNbO_3 晶体; 饱和衍射效率; 记录灵敏度

中图分类号 O436 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS201232.0219003

Experimental Investigation of the Two-Color Holographic Recording in Near-Stoichiometric LiNbO_3 Crystals

Yang Yongmei^{1,2} Liu Youwen¹ Zhang Yanli¹

¹ Department of Applied Physics, Nanjing University of Aeronautics and Astronautics,
Nanjing, Jiangsu 210016, China

² College of Mathematics and Science, Nanjing University of Information Science Technology,
Nanjing, Jiangsu 210044, China

Abstract We investigate systematically two-color holographic recording properties such as the saturated diffraction efficiency and recording sensitivity in the near-stoichiometric LiNbO_3 crystals with different dopants and oxidation-reduction (O-R) states. In the two-color recording experiment, the volume holographic gratings is recorded by red light, simultaneously sensitized by violet light. The results show that the saturated diffraction efficiency increases and later decreases with the increase of the ratio of recording light intensity to sensitizing beam intensity, but the sensitivity decreases gradually. Higher Tb-doping density makes higher diffraction efficiency but lower sensitivity when the Mn-doping density keeps the same. Crystal doping with Mn makes higher sensitivity but lower diffraction efficiency when the Tb-doping density keeps the same. The saturated diffraction efficiency and recording sensitivity of the reduction crystal are higher than those of the oxidation crystal. The saturated diffraction efficiency and sensitivity depend on the ratio of recording light intensity to sensitizing beam intensity, the doping concentration and the O-R state. An optimization may be obtained by further modifying these conditions appropriately.

Key words nonlinear optics; two-color holographic recording; near-stoichiometric LiNbO_3 crystal; saturated diffraction efficiency; recording sensitivity

OCIS codes 190.5330; 210.2860; 210.4810

收稿日期: 2011-08-10; 收到修改稿日期: 2011-10-08

基金项目: 国家自然科学基金(11174147, 60608026)和江苏省自然科学基金(2009-366)资助课题。

作者简介: 杨永梅(1979—), 女, 硕士研究生, 主要从事光折变非线性光学方面的研究。E-mail: yongym@nuist.edu.cn

导师简介: 刘友文(1966—), 男, 博士, 教授, 主要从事信息光子学、微纳米光子学等方面的研究。

E-mail: ywliu@nuaa.edu.cn(通信联系人)。

1 引 言

光折变材料如铌酸锂晶体由于在体全息存储方面有着高存储密度和可擦除等优点而得到了广泛的应用^[1]。但是在实现全息存储读取信息的同时,也逐渐擦除了所存储的信息,即挥发性读取。针对这个问题,人们提出了热固定^[2]、电固定^[3]等方法,但它们都存在各种缺点而影响其使用性。1998年 Buse 等^[4]提出并实现了用双掺杂 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体进行非挥发性双色全息数据存储。晶体中铁为浅能级中心,锰为深能级中心,用来记录的红光只能激发浅能级中心的电子到导带,用来敏化的紫外光能同时激发深能级和浅能级中心的电子。用均匀的紫外光和空间干涉的调制红光同时照射晶体进行存储记录,它可以使调制光的信息同时存储在铁离子和锰离子的光栅之中。关闭紫外光,读取存储信息的红光擦除浅能级中心的光栅,使所有的电子都陷入到锰离子中去,从而保留了一部分对红光不敏感的锰离子光栅,实现存储信息的光固定。当用红光再进行读出时,存储在锰离子光栅的信息不会被擦除,从而实现信息的非挥发性存储。双色全息存储是一种基于双中心模型提出的完全以光学的手段来完成敏化、记录和固定过程的方法。

2000年, Lee 等^[5]对 $\text{LiNbO}_3:\text{Tb}$ 进行了双色全息记录,发现晶体有三种不同的能级,即紫外光吸收中心、浅能级中心和深能级中心,用 852 nm 作为记录光,313 nm 作为敏化光,结果衍射效率很小,灵敏度是 $0.01\sim 0.02\text{ cm}^2/\text{J}$,但连续 4 h 读出时,衍射效率并未下降。同年, Lee 等^[6]又对 $\text{LiNbO}_3:\text{Tb}:\text{Fe}$ 进行角度复用的双色全息的研究,在厚度 d 为 3.3 mm 的晶体中动态范围 $M/\#$ 可达到 1.73。2004年, Lee 等^[7,8]对 $\text{LiNbO}_3:\text{Tb}:\text{Mn}$ 晶体进行了研究,在实验中可观测到光致发光,在室温下利用傅里叶变换红外光谱分光光度计可观察到 OH^- 吸收带的红外吸收光谱。

本文以 405 nm 的紫光为敏化光、633 nm 的红光为记录光,保持记录光光强不变,通过衰减片改变敏化紫光光强,对几种不同掺杂浓度和氧化还原状态(O/R)的 $\text{LiNbO}_3:\text{Tb}:\text{Mn}$ 晶体进行了双色光全息记录的实验研究,并对实验结果进行了讨论。

2 实验装置和方法

实验中所用的晶体是采用 Czochralski 法在大气环境下生长,在熔液中 $\text{Li}:\text{Nb}$ 的浓度比保持 58:42 不变(原子数分数),掺杂量等基本参量如表 1

中所示,其中 SLN5 在 950 °C 下氧气气氛中氧化 15 h, SLN6 在 950 °C 下氩气气氛中还原 1 h。

表 1 所有晶体的基本参数
Table 1 Basic parameters of crystals

Crystal	Doping concentration / 10^{-6}	d / mm	O/R
SLN1	Mn50	2.00	As-grown
SLN2	Tb100, Mn50	2.00	As-grown
SLN3	Tb200, Mn50	2.00	As-grown
SLN4	Tb100	3.18	As-grown
SLN5	Tb200	4.15	Oxidized
SLN6	Tb200	4.20	Reduced

双色光全息记录实验光路如图 1 所示,一束功率约为 20 mW 的 He-Ne 激光(633 nm),通过光闸 S1 的开关来控制进入光路,用 1/2 波片旋转成水平偏振后,经分光棱镜分成光强基本相等的两束光,经平面镜反射对称入射到晶体上,光栅的波矢平行于晶体的水平光轴。同时用一个半导体激光器发出的 405 nm 的紫光进行敏化,敏化光的光强分别用 10%, 32% 和 50% 的衰减片或它们的组合来调节。

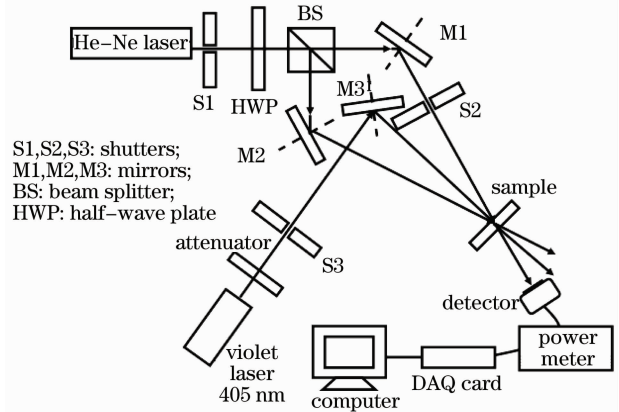


图 1 双色全息记录实验装置图

Fig. 1 Schematic of the experimental arrangement

本实验中未对晶体进行预敏化,首先用调制红光和均匀紫光同时照射晶体进行全息记录,通过快门 S2 间歇地挡住其中一束记录光测量光栅的衍射效率,记录达到饱和后关掉紫光和其中一束红光进行读出固定并测量衍射效率,最后用紫光和一束红光进行擦除。衡量光折变材料全息存储性能有两个重要指标,即衍射效率和记录灵敏度。为了不使晶体的反射和散射所造成的光强损失对结果产生影响,本文中的衍射效率定义为^[9]

$$\eta = I_d / (I_d + I_t), \quad (1)$$

式中 I_d 和 I_t 分别为衍射光和透射光的光强。衍射效率不仅直接影响信息页面重构时的亮度,而且决

定了在同一体积中可以存储的页面数目,决定全息存储的容量。记录灵敏度定义为^[10]

$$S = \left(\frac{d}{dt} \sqrt{\eta} \Big|_{t=0} \right) / (Id), \quad (2)$$

式中 I 是总的记录光强, d 是晶体的厚度。记录灵敏度描述了晶体利用指定光能量来建立光折变光栅的能力。

3 实验结果和讨论

实验中 Mn 含量相同, Tb 含量不同的三种晶体其饱和衍射效率和记录灵敏度随记录光光强和敏化光光强比值的关系如图 2 所示。从图 2 可以看出, 晶体的饱和衍射效率随着记录光与敏化光光强比值的增加先增加至一最大值, 然后又减小, 这是典型的双中心双色光全息记录的结果。其原因是当敏化光光强很小时, 激发深能级施主中心的电子进入导带

少, 只有很少的小极化子浅中心存在, 同时记录的红光激发浅能级施主中心也容易使大量的电子重新陷入深能级中心, 浅能级施主中心的数密度很小, 当敏化光太强时, 均匀的敏化紫光将擦除红光所记录的信息, 这两种情况均产生弱的空间电荷场, 导致低衍射效率。在记录光光强不变的情况下, 由于敏化光激发形成浅能级施主中心的数密度随敏化光光强增加而增加^[11], 因而记录灵敏度也随着增加, 如图 2(b) 所示。由当 Mn 含量相同时, Tb 含量越高的晶体全息记录的饱和衍射效率越高, 然而记录灵敏度并没有明显的区别。这可能是因为 Tb 含量越大, 小极化子含量越小, 电子可以在 Mn^{2+/3+} 和 Nb_L^{4+/5+} 之间直接交换, 并不仅仅是 Mn³⁺ 和 Nb_L⁵⁺ 从导带中直接捕获。所以随着 Tb 含量的增加, 晶体的饱和衍射效率增加, 灵敏度并未显示明显的区别。

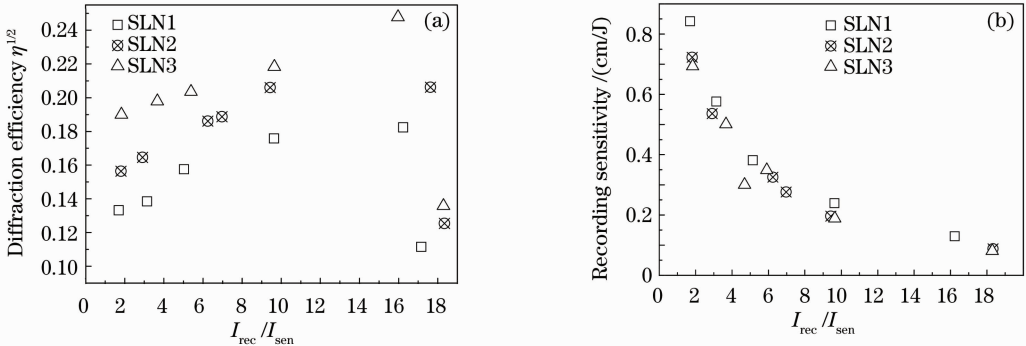


图 2 Mn 含量相同时, 不同 Tb 掺杂浓度晶体的 (a) 饱和衍射效率 $\eta^{1/2}$ 和 (b) 记录灵敏度随记录光与敏化光光强之比的变化
Fig. 2 (a) Saturated diffraction efficiency $\eta^{1/2}$ and (b) sensitivity versus ratio of recording intensity to sensitivity intensity for the same Mn-doping density and different Tb-doping densities

图 3 反映了晶体中 Tb 含量相同, Mn 含量不同的两种晶体其饱和衍射效率和记录灵敏度随记录光和敏化光光强比值的关系。从图 3 可以看出, 晶体

中掺杂 Mn 后, 其饱和衍射效率降低, 但记录灵敏度提高了。这里灵敏度提高是因为掺杂 Mn 后大大地增加了深能级施主中心, 导致光致吸收极大增加, 从

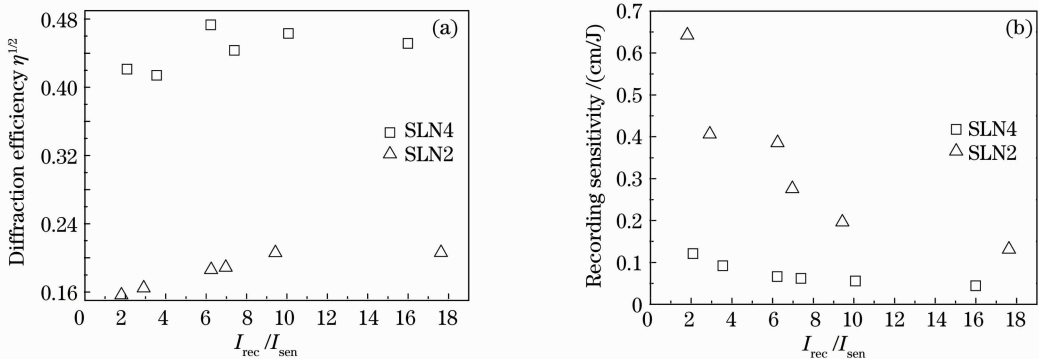


图 3 Tb 含量相同时, 不同 Mn 掺杂浓度晶体的 (a) 饱和衍射效率 $\eta^{1/2}$ 和 (b) 记录灵敏度随记录光与敏化光光强之比的变化
Fig. 3 (a) Saturated diffraction efficiency $\eta^{1/2}$ and (b) sensitivity versus ratio of recording intensity to sensitivity intensity for the same Tb-doping density and different Mn-doping densities

而灵敏度也得到了极大的改善。

图 4 是 Tb 掺杂浓度相同的晶体经氧化和还原后饱和衍射效率和记录灵敏度随记录光和敏化光光强比值的关系。从图 4 可以看出,还原晶体的衍射效率和记录灵敏度均比氧化晶体高。这两种晶体的全息记录是基于双极化子模型,晶体还原后可提高双极化子的吸收带,通过增加晶体的暗电导率从而限制信息存储的时间。用紫光照射这两块晶体时发

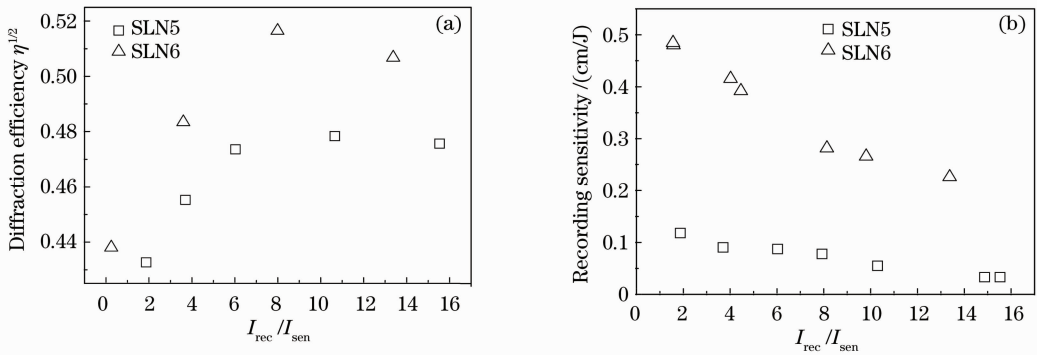


图 4 氧化晶体和还原晶体的(a)饱和衍射效率 $\eta^{1/2}$ 和(b)记录灵敏度随记录光与敏化光光强之比的变化

Fig. 4 (a) Saturated diffraction efficiency $\eta^{1/2}$ and (b) sensitivity of the oxidation/reduction crystals versus the ratio of recording intensity to sensitivity intensity

4 结 论

研究了近化学配比 LiNbO_3 晶体的双色全息记录特性,包括饱和衍射效率和记录灵敏度与 $I_{\text{rec}}/I_{\text{sen}}$ 、掺杂浓度、氧化还原状态之间的关系。实验结果表明,晶体饱和衍射效率随透射光与紫外光强比值的增加先增加后减小,而记录灵敏度不断减小。Mn 含量相同时,Tb 含量越高的晶体其饱和衍射效率越高,而记录灵敏度越低。Tb 含量相同时,含 Mn 比不含 Mn 的晶体的饱和衍射效率低,但记录灵敏度更高。还原晶体的饱和衍射效率和记录灵敏度均比氧化晶体高。晶体中掺杂会缩短小极化子的寿命,因而在研究掺杂晶体的双色全息记录时,可以控制掺杂浓度或掺杂离子的氧化还原状态提高双色全息记录特性。对全息记录过程进一步的理论分析,需要定量测量晶体的光致吸收和弛豫等光致电荷输运过程。

参 考 文 献

- 1 D. Psaltis, F. Mok. Holographic memories [J]. *Scientific American*, 1995, **273**(5): 52~58
- 2 J. J. Amodi, D. L. Staebler. Holographic pattern fixing in electro-optic crystals [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1971, **18**(12): 540~542
- 3 F. Micheron, G. Bismuth. Electrical control of fixation and

现有光色效应,说明两块晶体里都含有少量的 Fe。氧化晶体中 Fe^{2+} 离子含量小,能够被激发到导带的自由电子比较少,记录稳定时在 Fe 中形成的电场也比较小,饱和衍射效率就小。又由于自由电子的减少,致使电子的迁移距离变长,灵敏度也相应变小了。要优化晶体的双色全息记录特性,控制晶体的氧化还原状态比选择掺杂物更重要^[10, 12]。

- 4 K. Buse, A. Adibi, D. Psaltis. Non-volatile holographic storage in doubly doped lithium niobate crystals [J]. *Nature*, 1998, **393**(6686): 665~668
- 5 M. Lee, S. Takekawa, Y. Furukawa *et al.*. Nonvolatile two-color holographic recording in Tb-doped LiNbO_3 [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2000, **76**(13): 1653~1655
- 6 M. Lee, S. Takekawa, Y. Furukawa *et al.*. Angle-multiplexed hologram storage in $\text{LiNbO}_3 : \text{Tb}, \text{Fe}$ [J]. *Opt. Lett.*, 2000, **25**(18): 1337~1339
- 7 S. M. Lee, J. W. Shur, T. I. Shin *et al.*. Characteristic investigations of stoichiometric LiNbO_3 single crystal fiber coped with Tb and Mn [J]. *Materials Science Forum*, 2004, **449**(4): 985~988
- 8 H. J. Lee, T. I. Shin, S. M. Lee *et al.*. Hologram characteristics of Mn, Tb co-doped stoichiometric LiNbO_3 single crystals [J]. *Crystal Research and Technology*, 2005, **40**(4-5): 477~481
- 9 K. Polgar. Growth of stoichiometric LiNbO_3 single crystals by top seeded solution growth method [J]. *Cryst. Growth*, 1997, **177**(3-4): 211~216
- 10 L. Hesselink, S. S. Orlov, A. Liu *et al.*. Photorefractive materials for nonvolatile volume holographic data storage [J]. *Science*, 1998, **282**(5391): 1089~1094
- 11 Y. W. Liu, K. Kitamura, S. Takekawa *et al.*. Light-induced absorption and its relaxation under illumination of continuous wave ultraviolet light in Mn-doped near-stoichiometric LiNbO_3 [J]. *J. Appl. Phys.*, 2005, **97**(7): 073515
- 12 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