

利用双载流子四陷阱模型解释 Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体记录过程中的自擦除现象*

孟庆鑫 宫德维 张建隆 孙秀冬[†]

(哈尔滨工业大学应用物理系, 哈尔滨 150001)

(2003 年 9 月 9 日收到, 2003 年 10 月 30 日收到修改稿)

比较了掺 Fe 量相同的两种晶体 Fe:LiNbO₃ 和 Zn:Fe:LiNbO₃ 的光折变性能, 并且给出了 Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体光电导和衍射效率与入射总光强的关系. 在 Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体二波耦合实验中观察到衍射效率随记录时间的增长先增加, 达到饱和后又逐渐减小的自擦除现象, 并采用光折变双载流子四陷阱模型对该现象加以解释. 在此基础上选择合适的曝光时序, 利用角度复用技术在该晶体中进行体全息存储, 并在同一点上存入 30 幅图像.

关键词: 双载流子四陷阱模型, 自擦除, 电子-空穴竞争, 角度复用

PACC: 4240H, 4240D, 4230N

1. 引 言

LiNbO₃ 晶体是一种优良的人工电光晶体, 它具有较强的光生伏特场和光折变效应, 是一种很有发展潜力的光折变材料. 在 LiNbO₃ 晶体中掺入光折变敏感杂质 Fe²⁺/Fe³⁺ 可以大大改善晶体的光折变性能, 但 Fe:LiNbO₃ 晶体响应速度较慢, 易产生光感应“扇形”噪声散射^[1], 使光折变器件输出图像或数据产生严重的畸变, 这些性质是需要改进的. 近年来, 人们通过在 Fe:LiNbO₃ 晶体中掺入 Zn²⁺, Mg²⁺, In³⁺ 等抗光折变离子, 有效的解决了这些问题^[2]. Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体中, Zn²⁺ 取代了 Nb_{Li}⁴⁺ (反位铌), 使得晶体的本征缺陷减少, 提高了 Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体的响应时间和抗光散射能力^[3,4], 这使得 Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体很快成为人们关注的光折变材料.

本文比较了掺 Fe²⁺/Fe³⁺ 量相同的 Zn:Fe:LiNbO₃ 与 Fe:LiNbO₃ 晶体的光折变性质, 给出了 Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体光电导和光栅衍射效率与写入光强的关系, 发现了 Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体在二波耦合记录过程中出现衍射效率随记录时间的增加逐渐达到饱和, 后又随记录时间的增加而减小的自擦除现象, 并

利用光折变双载流子四陷阱模型对该现象进行了解释. 考虑该晶体在记录过程中的自擦除现象, 选择短曝光时序用角度复用的方法存入了 30 幅全息图.

2. 实验装置及结果

实验中采用的晶体分别为 Zn:Fe:LiNbO₃ 和 Fe:LiNbO₃, 以二极管全固态抽运激光器(λ = 532nm)为激光源, 633nm 的 He-Ne 激光束作为探测光进行实时探测. 两束记录光之间的夹角为 20°. 实验装置如图 1 所示.

从激光器(532nm)出射的一束光被偏振分光棱镜 BS 分成互相垂直的两束偏振光, 透射光为水平方向振动, 反射光为竖直方向振动. 为了达到最佳的耦合效果, 在反射光路上加入半波片, 将透射光转化为水平振动. 用 633nm 的红光作为探测光, 实时记录光栅随时间的变化规律. 在满足布拉格衍射的方向上, 利用由计算机控制的示波器采集探测光束经光栅衍射后的衍射光.

2.1. Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体性能测试

在相同的记录条件下(I₁ = 114mW/cm², I₂ = 58mW/cm²), 分别测出相同掺铁量的 Zn:Fe:LiNbO₃

* 教育部优秀青年教师资助计划, 黑龙江省留学归国基金(批准号: LC01C11) 和哈尔滨工业大学校基金(批准号: HIT2001.33) 资助的课题.

[†]E-mail: xdsun@hit.edu.cn; 电话: 0451-86414129.

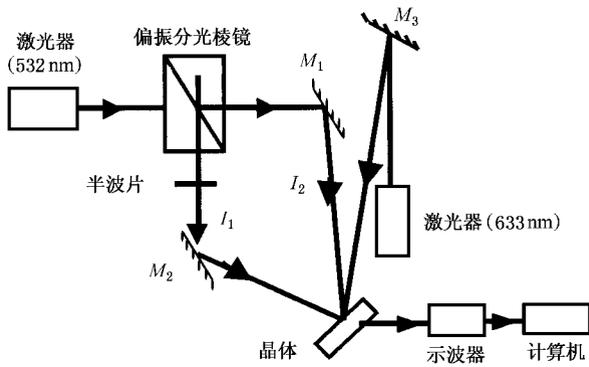


图1 实验装置

和 Fe:LiNbO₃ 晶体的一些光折变性能。实验结果表明,与 Fe:LiNbO₃ 晶体相比,Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体的抗光致散射能力、光电导率和响应速度(与响应时间成反比)均提高一个数量级,耦合系数降低。表 1 给出了两种晶体各项性能的比较结果。其中响应时间定义为衍射效率达到最大值(1 - 1/e)时所需要的时间,抗光致散射能力定义为晶体的透射光斑开始变形时的激光功率密度。

表 1 Zn:Fe:LiNbO₃ 和 Fe:LiNbO₃ 的光折变性能

	响应时间 τ_r/s	耦合系数 Γ/cm^{-1}	光电导 $\sigma/\Omega^{-1}\cdot cm^{-1}$	抗光致散射能力 $R/(W/cm^2)^{2.1}$
Fe:LiNbO ₃ (0.03wt% Fe)	180	37	1.3×10^{-15}	1.2×10^2
Zn:Fe:LiNbO ₃ (0.03wt% Fe, 3mol% Zn)	10	12	22.5×10^{-15}	9.2×10^2
Zn:Fe:LiNbO ₃ (0.03wt% Fe, 6mol% Zn)	13	11.8	17.3×10^{-15}	8.2×10^2

2.2. Zn:Fe:LiNbO₃ 的性质与写入光强的关系

在保证两束入射光光强比为 1 的条件下,改变总入射光强,可以得到不同入射光强下 Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体的响应时间。利用响应时间与光电导率的关系^[5]

$$\sigma = \frac{\epsilon_r \epsilon_0}{4\pi \tau_r} \quad (1)$$

可以得到 Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体的光电导率与总入射光强之间的变化关系,如图 2 所示。对实验数据进行拟合,得到光电导率与总入射光强之间的关系

$$\sigma \propto I^x = 8.8 I^{0.75} \quad (2)$$

拟合结果表明,Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体的光电导率随总

入射光强呈亚线性变化关系。这种亚线性关系说明在 Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体中存在着由于晶体本身缺陷引起的浅陷阱能级^[6]。实验中我们还发现,光栅的衍射效率先随光强的增加而增加,达到其最大值后随光强的增加而减小,如图 3 所示。这说明在 Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体中同时存在着两种不同的载流子^[7]:电子和空穴,并且在不同的入射光强下起主要作用的载流子类型不同。

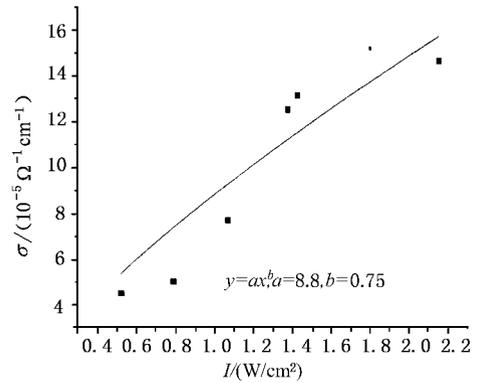


图2 光电导与入射光强的关系

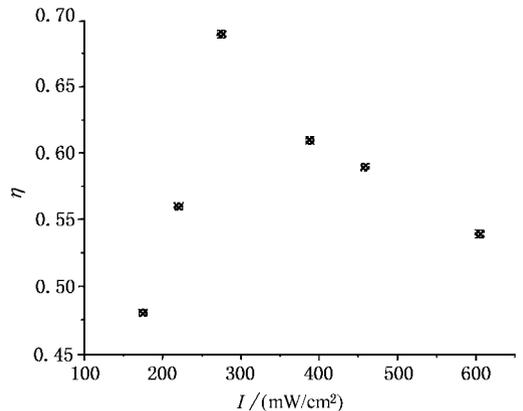


图3 入射光强与衍射信号的关系

2.3. Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体记录过程的自擦除现象

实验发现,Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体在记录过程中,衍射光栅会随时间的增加出现自擦除现象。这说明在光栅的记录过程中存在着一个最佳曝光时间,当曝光时间过长时,记录光栅不仅不会被加强,还会由于自擦除现象,导致衍射效率的降低。图 4 和图 5 分别给出了相同光强比及不同光强比下光栅衍射效率随记录时间的变化曲线。图 4 中两束记录光光强比相同($I_1:I_2=1$),总入射光强不同,随着记录时间的

增加,衍射信号最初迅速增加,达到一个饱和值后又出现了明显的下降趋势.可以看出,入射光强越高,光栅稳定的时间越短.图5表明不同光强比下衍射效率随记录时间的变化同样遵循先升高后下降的规律.

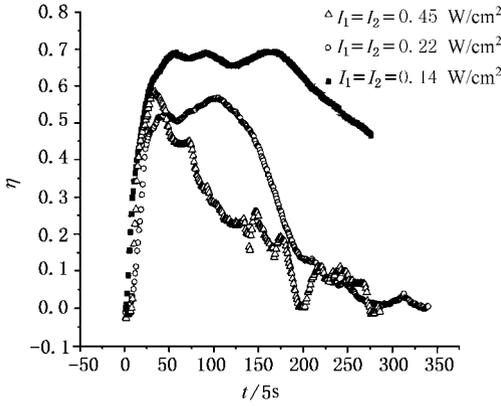


图4 相同光强比下衍射效率随记录时间的变化

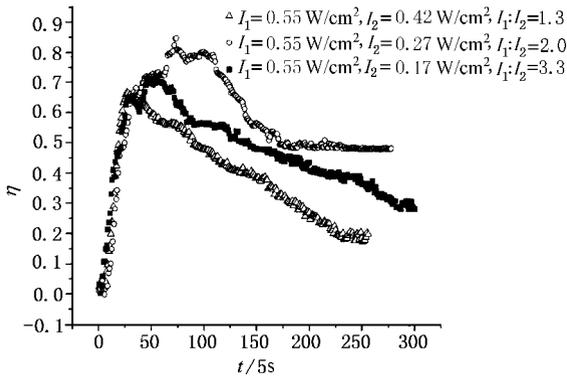


图5 不同光强比下衍射效率随记录时间的变化

3. 理论分析

Buse 等人^[8,9]利用单载流子-深、浅陷阱能级模型成功地解释了经过紫外光预照明后,还原态 Mn : Fe :LiNbO₃晶体在红光调制下内电场迅速增大到一最大值后,慢慢地减小到零的自擦除现象,但是单载流子-深、浅陷阱模型无法解释 Zn :Fe :LiNbO₃晶体中衍射效率随入射光强先增加后降低的实验现象.本文采用 Li 等人提出的双载流子四陷阱模型^[10]对 Zn :Fe :LiNbO₃晶体二波耦合过程中的自擦除现象加以解释.考虑到 LiNbO₃晶体中光生伏打效应在载流子迁移过程中起主要作用,对文献 [10] 中光衍变特

征方程进行修正,可以得到以下一组方程:

$$\frac{\partial N_j^i}{\partial t} = S_j(N_j - N_j^i) - \gamma_j n_j N_j^i, \quad (3)$$

$$\frac{\partial M_j}{\partial t} = -(S_j' I + \beta_j) M_j + \gamma_j' n_j (M_j - M_j^i), \quad (4)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (N_j^i - M_j - n_j) \pm \frac{1}{e} \nabla \cdot J_j = 0, \quad (5)$$

$$J_j = e \mu_j n_j E \pm k_B T \mu_j \nabla n_j + \kappa_j S_j h \nu (N_j - N_j^i) I, \quad (6)$$

$$\nabla \cdot E = \frac{e}{\epsilon} [(N_e^i - N_F - n_e - M_e) - (N_h^i - N_E - n_h - M_h)], \quad (7)$$

其中 $j = e$ 或 h 代表电子或空穴. N_j^i 为离化的施主(受主)数密度; N_j 为晶体内深能级和浅能级中心的掺杂数密度; M_j 为被载流子占据的浅陷阱密度; n_j 为自由载流子数密度; S_j 为载流子施主能级光激发截面; S_j' 为载流子浅陷阱能级光激发截面; γ_j 为载流子与深陷阱复合速率; γ_j' 为载流子与浅陷阱复合速率; J_j 为电流密度; μ_j 为载流子迁移率; N_F, N_E 为电子、空穴受主数密度; κ_j 为光生伏打 Glass 常数; ν 为入射光频率; E 为空间电荷场; T 为绝对温度; I 为入射总光强.

我们采用 Tayebati 的方法^[6],假定两相干光在晶体中干涉形成的调制光是正弦形式,光强只在 z 方向上变化,即

$$I = I_0 \text{Re} \{ 1 + m \exp(ikz) \},$$

那么所有因光强变化而变化的物理量都可以表示成空间均匀部分加上以 $\exp(ikz)$ 形式变化的空间调制部分,即

$$\begin{aligned} N_j^i &= N_F(N_E) + N_{0j} + \text{Re} \{ N_{1j} \exp(ikz) \}, \\ M_j &= M_{0j} + \text{Re} \{ M_{1j} \exp(ikz) \}, \\ n_j &= n_{0j} + \text{Re} \{ n_{1j} \exp(ikz) \}, \\ J_j &= J_{0j} + \text{Re} \{ J_{1j} \exp(ikz) \}, \\ E_j &= E_0 + \text{Re} \{ E_1 \exp(ikz) \}. \end{aligned} \quad (8)$$

在连续波照射下,自由载流子的浓度远远小于离化的施主数密度和占据浅陷阱能级的粒子数密度,即

$$n_{0j} \ll N_{0j}, n_{0j} \ll M_{0j}. \quad (9)$$

这样,电荷守恒方程 $N_{0j} = M_{0j} + n_{0j}$ 变成

$$N_{0j} \approx M_{0j}. \quad (10)$$

在假定自由电荷光栅和空间电荷光栅比较可以忽略的前提下有

$$|n_{1h}| \ll |N_{1h} - M_{1h}|, |n_{1e}| \ll |N_{1e} - M_{1e}|, \quad (11)$$

将方程 (8) (9) 代入到 (7) 式表示的 Poisson 方程中, 稳态时的空间电荷场可以表示为

$$ikE_1 = \frac{e}{\epsilon} [(N_{1e} - M_{1e}) - (N_{1h} - M_{1h})]. \quad (12)$$

当电子和空穴对光折变过程的贡献都较大时, 浅电子陷阱能级光栅 $(-e)M_{1e}$ 的相位在低光强时与干涉光场的相位相反, 在高光强时与干涉光场的相位相同, 其大小随光强的增加而增加, 达到最大值后开始减小. 浅空穴陷阱能级上的光栅 $(+e)M_{1h}$ 的相位始终和干涉光场的相位相反. 电子(空穴)深陷阱能级上的光栅 $(-e)N_{1e}((+e)N_{1h})$ 始终与干涉光场的相位相同(相反), 其大小也随光强的增加而增加. 综合考虑电子(空穴)的浅(深)能级光栅受入射光强的影响, 可知, 当写入光强较弱时, 空间电荷场随光强的增加而增加, 达到最大值后随光强的增加而减小.

在 Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体中载流子既有电子又有空穴, 除了电子和空穴各自的深陷阱能级(以 Fe²⁺/Fe³⁺ 为中心)外还存在着各自的浅陷阱能级(以 [Nb_L]⁺ 为中心). 在 Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体二波耦合开始时, 入射光子数较少, 光子大多数被处于施主能级的电子吸收, 电子被光子激发后, 一部分直接跃迁到导带, 另一部分跃迁到浅电子陷阱能级中, 再通过光激发和热激发到导带. 这些电子通过迁移, 被深电子陷阱和浅电子陷阱俘获. 此时, 电子的浅陷阱效应在光栅的形成过程中占主导地位, 被俘获电子形成的空间电荷场随着入射光子数的增加而增强, 光栅的衍射效率随时间的增加而增加. 随着入射光子数的增加, 施主能级中未被激发的电子数逐渐减少. 当入射光子数增加到一定值时, 施主能级中不再有能够被光子激发的电子, 空间电荷场也就不再增加. 记录光继续照射时, 大量的入射光子会激活施主能级中的空穴, 使得电子-空穴竞争变得激烈. 被激发的空穴通过迁移, 被深空穴陷阱和浅空穴陷阱俘获, 在晶体中形成空穴空间电荷场. 随入射光子数的继续增加, 由空穴形成的空间电荷光栅将会逐渐增强, 此时总的光栅应是电子空间电荷场和空穴空间电荷场共同作用的结果. 由于两种载流子的空间电荷光栅相位相反^[11], 总的空间电荷场应该比电子空间电荷场单独存在时的电荷场低. 所以随着入射光子数的增加(记录时间的延长), 总空间电荷场将减小, 光栅的衍射效率也降低. 入射光强越大, 相同时间入射的光子数越多, 施主能级中电子很快被激发, 电子

空间电荷场达到饱和所需的时间越短, 所以会出现随着入射光强的增大衍射效率达到饱和的时间缩短的现象.

4. 利用 Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体进行体全息存储

根据前面的分析可知, Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体进行全息存储时, 曝光时间除了受到写入时间和擦除时间的影响之外, 还要受到记录过程中自擦除效应的限制. 即在利用该晶体进行体全息存储时, 单幅全息图的记录时间和复用的总记录时间均不宜过长, 否则将会引起记录过程中衍射效率下降, 影响存储质量. 图 6 中分别给出了相同光强下 ($I_{\text{物}} = 44\text{mW/cm}^2$, $I_{\text{参}} = 180\text{mW/cm}^2$), 不同记录时间下的存储图像. 我们可以清楚地看到, 过长的曝光时间不但不能提高再现图像的衍射效率, 还会使衍射效率下降.

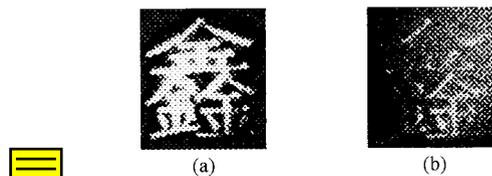


图 6 再现图像 (a)记录 80s (b)记录 500s

通过进一步的研究, 我们在 $I_{\text{物}} = 44\text{mW/cm}^2$, $I_{\text{参}} = 180\text{mW/cm}^2$ 下, 采用角度复用的方法在厚度 $d = 3\text{mm}$ 的 Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体的同一点上记录了 30 幅全息图. 角度复用间隔为 0.1° . 记录时, 最短的曝光时间为 16s, 最长的曝光时间为 28.8s, 达到的平均衍射效率为 5%. 图 7 给出了几幅再现图像. 可以看出, 再现图像中的散射噪声得到了有效抑制. 所以说 Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体是体全息存储的一种优良材料.

5. 结 论

Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体与相同掺 Fe²⁺/Fe³⁺ 量 Fe:LiNbO₃ 晶体相比, 光折变性能有了较大的改变, 抗光散能力和光电导率都提高了一个数量级, 响应时间缩短了一个量级. 入射光强与光电导率及衍射效率之间的关系说明 Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体存在电子和空穴两种载流子, 并且存在着各自的深、浅能级. 利用双载流子四陷阱模型解释了 Zn:Fe:LiNbO₃ 晶体记录过程中的自擦除现象. 从实验结果可以看出, 由于 Zn:

Fe :LiNbO₃ 晶体在记录过程中随记录时间的变化存在饱和值,所以在利用 Zn :Fe :LiNbO₃ 晶体进行存储时,应该避免过长的曝光时间. 由于 Zn :Fe :LiNbO₃

晶体的响应时间很短,所以,可以用较短曝光时序实现较好的体全息存储效果.

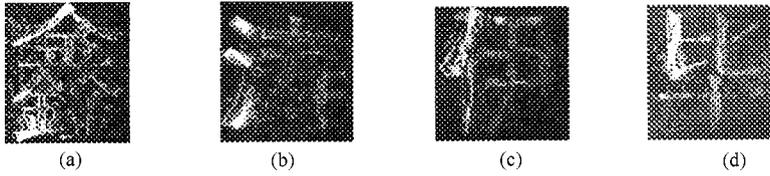


图 7 再现图像 (a)–(d)分别是第 1, 4, 13, 29 幅图像的再现图像

- [1] Li F F , Xu J J , Liu S M , Qiao H J and Zhang G Y 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 234(in Chinese) [李飞飞、许京军、刘思敏、乔海军、张光寅 2001 物理学报 **50** 234]
- [2] Zhang G Q , Zhang G Y , Liu S M , Sun Q and Zhang X Z 1998 *J. App. Phys.* **83** 4392
- [3] Xu Y L *et al* 1999 *Journal of Synthetic Crystals* **28** 155(in Chinese) [徐衍岭 等 1999 人工晶体学报 **28** 155]
- [4] Ki H K , Kwang B S and Keun H A 2002 *Materials Letters* **55** 116
- [5] Ewbank M D *et al* 1987 *J. App. Phys.* **62** 374
- [6] Tayebati P and Magerefeh D 1991 *J. Opt. Soc. Am. B* **8** 1053
- [7] Li Y Q , Liu S T , Hong J and Xu K B 1997 *J. Appl. Phys.* **81** 1752
- [8] Buse K , Adibi A and Psaltis D 1998 *Nature* **393** 665
- [9] Liu Y R *et al* 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 220(in Chinese) [刘友人 等 2000 物理学报 **49** 220]
- [10] Li Y Q , Hou F L , Liu S T , Sun W J and Xu K B 1997 *Opt. Comm.* **134** 591
- [11] Tayebati P 1992 *J. Opt. Soc. Am. B* **9** 415

Study of self-erasing of recording process in Zn :Fe :LiNbO₃ with the double-carrier four-trap model^{*}

Meng Qing-Xin Gong De-Wei Zhang Jian-Long Sun Xiu-Dong
(Department of Applied Physics , Harbin Institute of Technology , Harbin 150001 , China)

(Received 9 September 2003 ; revised manuscript received 30 October 2003)

Abstract

Photorefractive properties of Zn :Fe :LiNbO₃ crystals were compared with Fe :LiNbO₃ crystals. We described the photoconduction and diffraction efficiency as a function of incident light intensity. The self-erasing of recording process in the Zn :Fe :LiNbO₃ crystal is observed. We found that the diffraction efficiency of the crystal increased to a saturation value and then decreased as recording time increases. The phenomena were explained by the double-carrier four-trap model. A suitable exposure schedule is chosen to realize the angle-multiplexed volume holographic storage. We have stored 30 images in the same volume of the crystal.

Keywords : double-carrier four-trap model , self-erasing , charge-hole competition , angle multiplex

PACC : 4240H , 4240D , 4230N

^{*} Project supported by the Ministry of Education for Distinguished Young Teacher and the Foundation of Heilongjiang Province for the Returned Overseas Scholars (Grant No. LC01C11) , and the Scientific Research Foundation of Harbin Institute of Technology (Grant No. HIT2001.33) .