

双掺杂 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 全息存储动力学^{*}

刘友文 刘立人 郭迎春 周常河

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

(1999 年 7 月 10 日收到; 1999 年 9 月 5 日收到修改稿)

建立了包括扩散、漂移和光伏打效应三种输运机制, 小信号光强、小调制度近似下描述双掺杂 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体用双色光进行全息存储的动力学的耦合微分方程组, 数值求解并解释了晶体光存储的时间动态发展过程. 在此基础上, 分析了晶体的氧化还原程度对全息存储过程的影响, 只有在晶体总的受主数密度 N_a (即 Fe^{3+} 和 Mn^{3+} 的数密度之和) 大于铁离子数密度 N_2 的条件下, 双掺杂 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体全息存储才能达到非破坏性存储的目的. 经过光固定的光栅的衍射效率随氧化增大, 光折变灵敏度随氧化而减小, 要获得高衍射效率就必须以降低光折变灵敏度为代价. 在掺铁浓度一定的情况下, 掺锰浓度越高, 能实现信息长期存储对应的氧化还原状态的有效动态范围越大.

PACC: 4240; 4265

1 引 言

光折变物质, 特别象 LiNbO_3 单晶铁电晶体, 作为潜在的全息储存介质已作了广泛的研究^[1]. 由于它们具有可重复性, 即能一次又一次被擦除和再记录, 使它们成为最具有吸引力的全息存储介质. 不幸的是, 铁电体的这种优点使它们所存储的信息极易破坏——在读取所存储的信息时它们很容易被抹除. 人们已采取了很多种方法, 例如热固定^[2]、电固定^[3]、二步记录法^[4]等, 并且在实验上也加以验证^[5-7], 但它们存在的缺点影响其实用性.

最近, Buse 等人^[8]提出了用双掺杂 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 来实现长期的全息存储, 并在实验上也加以验证, 它的存储过程分以下三个步骤. 首先, 用紫外光对晶体进行预照明处理, 利用晶体的光色效应, 通过导带把电子从锰离子转移到铁离子中去, 改变晶体对光的吸收, 使晶体对可见光产生吸收, 从而可以用可见光对晶体进行全息存储. 第二步, 用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. 第三步, 用红光去抹除铁离子光栅, 显现锰离子光栅, 实现储存信息的光固定. 由于锰离子对红光不敏感, 当用红光再进行读出时, 储存在锰离子光栅的信息不会被抹除, 从而达到信息的长期储存.

Kukhtarev 等人^[9]提出了描述光折变效应的带输运模型, 成功地解释了稳态和瞬态的光折变效应. 在此基础上人们提出了二中心模型理论, 解释了 BGO 和 BSO 晶体中光栅抹除时存在两个明显不同时间常数^[10], 解释了 BaTiO_3 晶体中光吸收的变化^[11], 以及 BaTiO_3 晶体中的非线性光电导^[12, 13], 系统求解了对 BSO 和 BaTiO_3 光折变晶体存在浅陷阱中心时电荷输运方程, 并且导出了在稳态时空间电荷场的一个普遍表达式等^[14]. 但这些模型都是建立在 BGO, BSO 和 BaTiO_3 等光折变晶体上, 光伏打效应并不包括在它们的带输运方程中, 而对 LiNbO_3 晶体来说, 光伏打效应是电荷的主要输运机制^[15]. 因此用它们的理论并不能描述双掺杂 LiNbO_3 中电荷输运特征, 况且用双掺杂 LiNbO_3 进行体存储时是用双色光同时照射记录. 因此, 本文的目的在于建立包括扩散、漂移和光伏打这三种输运机制的二中心模型, 来讨论小调制度线性近似下双掺杂 LiNbO_3 晶体在用双色光进行存储记录动力学过程. 本文的第二部分描述了用均匀紫外光对晶体预照明的动力学过程. 第三部分在小信号、小调制度近似下, 求出描述光栅记录(固定)过程的耦合微分方程组, 并用龙格-库塔方法进行了数值求解, 解释了用双掺杂 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体进行光存储记录的动态发展过程, 讨论了晶体的掺杂浓度、氧化还原程度对光折变灵敏度和稳态电场的影响. 第四部分解释了光记录

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 69837020)和中国科学院百人计划资助的课题.

后固定的动态发展过程,讨论了晶体的掺杂浓度、氧化还原程度对固定后光栅的内电场的影响,并提出了要实现非破坏性读出对晶体的氧化程度的要求,说明了固定后的内电场与光折变灵敏度之间的关系.

2 预照明

对于双掺杂LiNbO₃:Fe:Mn晶体,相对于价带来说,锰离子的杂质能级比铁离子能级深,它的能带结构如图1所示^[8].一般情况下,电子趋向于陷入深能级锰离子中,当用均匀紫外光照射晶体时,它对深、浅能级中心的光激发概率以及电子与它们的复合概率不相等,因而电子将会在深、浅能级中心通过导带交换并重新分布.电子的分布由下式决定,

$$\frac{dN_1^+}{dt} = S_1 I_1 (N_1 - N_1^+) - \gamma_1 N_e N_1^+, \quad (1)$$

$$\frac{dN_2^+}{dt} = S_{21} I_1 (N_2 - N_2^+) - \gamma_2 N_e N_2^+, \quad (2)$$

$$\begin{aligned} \frac{dN_e}{dt} = & S_1 I_1 (N_1 - N_1^+) + S_{21} I_1 (N_2 - N_2^+) \\ & - \gamma_1 N_e N_1^+ - \gamma_2 N_e N_2^+, \end{aligned} \quad (3)$$

式中的 N_1, N_2 为晶体内深能级(锰)和浅能级(铁)中心的掺杂的数密度, N_1^+, N_2^+ 为电离的施主(受主)数密度(即 Mn^{3+} 和 Fe^{3+} 的数密度), N_e 为电子在导带中的数密度, S_1 为紫外光对深能级的光激发常数, S_{21} 为紫外光对浅能级的光激发常数, γ_1 和 γ_2 为电子与受主的复合常数, I_1 为均匀紫外光的光强.由于铁和锰离子的能级比较深,热激发概率远小于光激发概率,因此在下面的讨论中将忽略热激发.

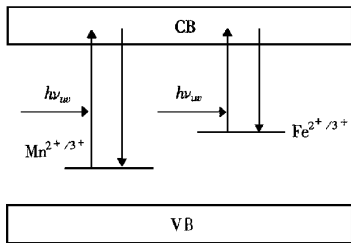


图1 LiNbO₃:Fe:Mn晶体的能带图

在连续的低能量光照下,导带中自由电子的浓度很低, $N_e \ll N_1^+, N_2^+, N_1 - N_1^+, N_2 - N_2^+$,根据电荷守恒原理, $N_1^+ + N_2^+ = N_a$ 为恒量, N_a 为无光照时总的受主数密度,它反映了晶体中杂质离子

的氧化的程度.其次,电子的寿命很短,在很短的时间内($10^{-9} \sim 10^{-7} s$),电子的浓度就达到了准平衡状态,因而在整个电子交换过程中,可认为 $dN_e/dt \approx 0$ (绝热近似).因而由(3)式解出 N_e ,并代入(1)和(2)式得

$$\begin{aligned} \frac{dN_1^+}{dt} = & S_1 I_1 (N_1 - N_1^+) \\ & - \gamma_1 N_1^+ \frac{S_1 I_1 (N_1 - N_1^+) + S_{21} I_1 (N_2 - N_2^+)}{\gamma_1 N_1^+ + \gamma_2 N_2^+}, \end{aligned} \quad (4)$$

$$\begin{aligned} \frac{dN_2^+}{dt} = & S_{21} I_1 (N_2 - N_2^+) \\ & - \gamma_2 N_2^+ \frac{S_1 I_1 (N_1 - N_1^+) + S_{21} I_1 (N_2 - N_2^+)}{\gamma_1 N_1^+ + \gamma_2 N_2^+}, \end{aligned} \quad (5)$$

它们为一耦合微分方程组,在 $\gamma_1 = \gamma_2 = \gamma$ 的条件下,利用 $N_1^+ + N_2^+ = N_a$ 为恒量使(4)和(5)式退耦合,可以得到关于 N_1^+ 和 N_2^+ 的一阶微分方程.它们的分析解为^[16]

$$N_1^+(t) = \frac{1}{\text{Hexp}(\alpha - Gt) - \frac{P}{G}} + F, \quad (6)$$

式中

$$\begin{aligned} P = & \frac{S_1 - S_{21}}{N_a} I_1, \\ Q = & \left[(S_{21} - S_1) - \frac{N_1 S_1 + N_2 S_{21}}{N_a} \right] I_1, \\ R = & N_1 S_1 I_1, \\ F = & \frac{-Q + \sqrt{Q^2 - 4PR}}{2P}, \\ G = & 2FP + Q, \\ H = & \frac{P(F - N_1^+(0)) - G}{G(F - N_1^+(0))}. \end{aligned} \quad (7)$$

对 N_2^+ 具有类似的表达式.若 $\gamma_1 \neq \gamma_2$,我们可以用龙格-库塔法数值求解耦合微分方程组(4)和(5)式.

对于实验中氧化的双掺杂LiNbO₃:Fe:Mn晶体^[8],取 $N_1 = 1.5 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$ (相当于掺杂0.01%的MnO), $N_2 = 1.0 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ (相当于掺杂0.075%的Fe₂O₃), $N_a = 1.05 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$, $I_1 = 200 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$, $N_1^+(0) = 6.0 \times 10^{23} \text{ m}^{-3}$, $S_1 = 3 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$, $S_{21} = 1 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ ^[17,18], $\gamma_1 = \gamma_2 = 1 \times 10^{-15} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ^[19],计算了 N_1^+ 和 N_2^+ 随时间的演化,如图2所示.从图中可见,经过一段时间的紫外光照明,电子从锰离子大量地转移到铁离子中去,从

而改变了晶体对光的吸收(光色效应),这大大地有利于用红光进行全息光存储.

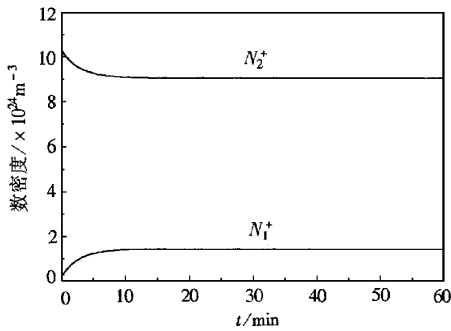


图2 用紫外光预照明, Mn^{3+} 和 Fe^{3+} 离子的数密度 N_1^+ 和 N_2^+ 随时间的变化

3 记 录

用双掺杂 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体进行体全息存储,二中心输运模型的能带图如图3所示^[8].由于 Mn^{2+} 离子的能级比 Fe^{2+} 离子的能级深,只有均匀紫外光能激发 Mn^{2+} 离子的电子进入导带(截止波长 $\sim 520 \text{ nm}$ ^[20]),而均匀紫外光和调制的红光都能

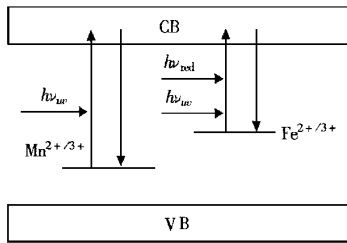


图3 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 的二中心输运模型的能带图

从 Fe^{2+} 离子(截止波长 $\sim 750 \text{ nm}$ ^[20])上激发电子进入导带.因此在二中心模型的一组 Kukhtarev 方程^[21]可写为

$$\frac{dN_1^+}{dt} = (N_1 - N_1^+)S_1I_1 - \gamma_1N_1^+N_e, \quad (9)$$

$$\frac{dN_2^+}{dt} = (N_2 - N_2^+)(S_{21}I_1 + S_{22}I_2) - \gamma_2N_2^+N_e, \quad (10)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{j} + \frac{\partial \rho}{\partial t} = 0, \quad (11)$$

$$\mathbf{j} = \mu k_B T \nabla N_e + e \mu N_e \mathbf{E} + \mathbf{j}_{ph}, \quad (12)$$

$$\rho = e(N_1^+ + N_2^+ - N_a - N_e), \quad (13)$$

$$\nabla \cdot (\epsilon \mathbf{E}) = \rho, \quad (14)$$

式中的 e 为电子的电量, μ 为迁移率, ϵ 为晶体的介电常数, E 为电场, j 为电流密度, j_{ph} 为光生伏打电流密度, ρ 为电荷密度, I_1 为紫外光的光强, I_2 为调制光的光强.对于(4)式中的光生伏打电流密度可表示成^[15,22]

$$j_{ph} = \kappa_1 S_1 h\nu_1 (N_1 - N_1^+) I_1 + \kappa_{21} S_{21} h\nu_1 (N_2 - N_2^+) I_1 + \kappa_{22} S_{22} h\nu_2 (N_2 - N_2^+) I_2, \quad (15)$$

κ_1 , κ_{21} 和 κ_{22} 为光生伏打 Glass 常数,它们分别对应于深杂质中心和紫外光、浅杂质中心和紫外光、浅杂质中心和红光, $h\nu_1$ 和 $h\nu_2$ 为紫外光和红光光子的能量.由于在实际的存储记录时 $I_2 \gg I_1$,浅杂质中心浓度高于深杂质中心浓度,掺铁离子的光伏打系数远大于掺锰离子的光伏打系数^[23],因而在(7)式中我们只考虑最后一项对光伏打电流的贡献.

正弦调制的红光可表示成

$$I_2 = I_{20} + \frac{m}{2} I_{20} (e^{ikz} + \text{c.c.}), \quad (16)$$

其中 I_{20} 为红光的平均光强, m 为红光的调制度, k 为光栅波矢, z 为坐标.由于光强只在 z 方向变化,方程就演化为一维问题.在记录过程中,紫外光和调制的红光把电子从 Mn^{2+} 和 Fe^{2+} 激发至导带,光伏打效应将产生非均匀的空间电流,导带电子不断与 Mn^{3+} 和 Fe^{3+} 受主复合,同时调制了铁离子和锰离子光栅,使调制光的信息同时储存在铁离子和锰离子光栅之中,因而锰离子光栅与调制光也具有相同的波矢.如果调制度足够小,则所有与光强相关的物理量都可表示为直流分量与基频分量(对应下标 0 和 1)之和,

$$N_1^+ = N_{10}^+ + \frac{1}{2} (N_{11}^+ e^{ikz} + \text{c.c.}), \quad (17)$$

$$N_2^+ = N_{20}^+ + \frac{1}{2} (N_{21}^+ e^{ikz} + \text{c.c.}), \quad (18)$$

$$N_e = N_{e0} + \frac{1}{2} (N_{e1} e^{ikz} + \text{c.c.}), \quad (19)$$

$$E = E_0 + \frac{1}{2} (E_1 e^{ikz} + \text{c.c.}). \quad (20)$$

连续光照射下,自由电子的浓度相对于电离的受主的浓度很低,因此可以忽略泊松方程中导带电子对电场的贡献.把(12)(13)和(15)–(20)式代入(9)–(11)和(14)式,展开得到 0 级方程

$$\frac{dN_{10}^+}{dt} = (N_1 - N_{10}^+)g_1 - \gamma_1 N_{e0} N_{10}^+, \quad (21)$$

$$\frac{dN_{20}^+}{dt} = (N_2 - N_{20}^+)g_2 - \gamma_2 N_{e0} N_{20}^+, \quad (22)$$

$$N_{e0} = \frac{(N_1 - N_{10}^+)g_1 + (N_2 - N_{20}^+)g_2}{\gamma_1 N_{10}^+ + \gamma_2 N_{20}^+}, \quad (23)$$

和 1 级方程

$$N_{e1} = \frac{N_{11}^+(g_1 + \gamma_1 N_{e0}) + N_{21}^+(g_2 + \gamma_2 N_{e0}) - \frac{e\mu}{\epsilon} N_d (N_{11}^+ + N_{21}^+) - ik \frac{S_{22} I_{20} \kappa_{22}}{e} \hbar \nu_2 [m(N_2 - N_{20}^+) - N_{21}^+] - m S_{22} I_{20} (N_2 - N_{20}^+)}{-\gamma_1 N_{10}^+ - \gamma_2 N_{20}^+ - Dk^2 + ik\mu E_0}, \quad (26)$$

式中的 $g_1 = S_1 I_1$, $g_2 = S_{21} I_1 + S_{22} I_{20}$, 内电场由泊松方程 (14) 式决定

$$E_1 = -i \frac{e}{\epsilon k} (N_{11}^+ + N_{21}^+). \quad (27)$$

(21)–(26) 式为描述光栅写入和固定的耦合微分方程组. 在给定的实验条件下, 可以用龙格-库塔法对其进行数值求解. 对于氧化的双掺杂的 LiNbO₃:Fe:Mn 晶体, 考虑第二部分给定的初始条件和参数, 其他参数取为 $\mu = 1.1 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$, $\epsilon = 2.568 \times 10^{-10} \text{ A} \cdot \text{s} \cdot \text{V}^{-1} [19]$, $\kappa_{22} = 1.4 \times 10^{-11} \text{ A} \cdot \text{m} \cdot \text{W}^{-1} [23]$, $m = 0.5$, $T = 300 \text{ K}$, $E_0 = 0$, $I_{20} = 6000 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$, $k = 1 \times 10^7 \text{ m}^{-1}$. 下面分几种实验条件进行数值求解并讨论.

3.1 没有用紫外光预照明, 同时用均匀的紫外光和调制的红光进行记录

图 4 为用紫外光(曲线 a)和没有用紫外光(曲线 b)

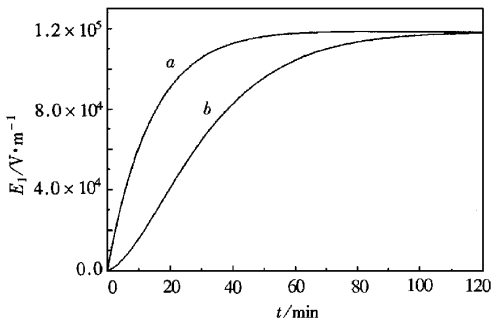


图 4 紫外光(曲线 a)和没用紫外光(曲线 b)预处理, 双色光记录过程中空间电场随时间的变化

线 b) 预处理, 同时用均匀的紫外光和调制的红光进行光存储记录过程中, 空间电场随时间的变化曲线. 从图中可以看出, 经过预处理的晶体进行光存储具有较高的光折变灵敏度, 这就是第二部分讨论的用均匀的紫外光预处理的晶体, 大大地增加了 Fe²⁺ 离

$$\frac{dN_{11}^+}{dt} = -N_{11}^+ g_1 - \gamma_1 (N_{10}^+ N_{e1} + N_{11}^+ N_{e0}), \quad (24)$$

$$\frac{dN_{21}^+}{dt} = (N_2 - N_{20}^+) m S_{22} I_2 - N_{21}^+ g_2 - \gamma_2 (N_{20}^+ N_{e1} + N_{21}^+ N_{e0}), \quad (25)$$

子的浓度, 对调制的红光具有较强的吸收而引起的. 但没有用紫外光进行预处理的晶体, 它一样可以用均匀的紫外光和调制的红光进行光存储记录, 只不过灵敏度较低.

3.2 用紫外光预照明, 只用调制的红光进行记录

图 5 为经过预照明的晶体, 用均匀的紫外光和

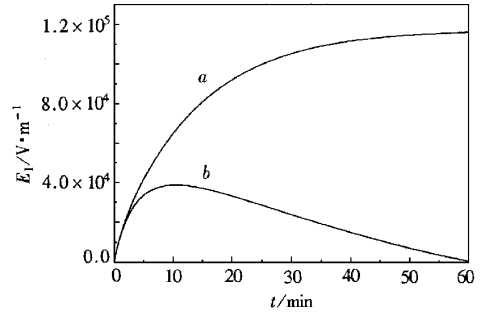


图 5 紫外光预处理, 双色光记录(曲线 a)和只用红光记录(曲线 b)过程中空间电场随时间的变化

调制的红光同时进行光存储记录(曲线 a)和只用调制的红光进行光存储记录(曲线 b)过程中, 空间电场随时间的变化曲线. 从图中可以看出, 只用调制的红光进行光存储记录, 内电场迅速增加达到一最大值后, 又慢慢地减小到零. 这是因为经过预照明的晶体, Fe²⁺ 离子吸收红光激发电子, 在扩散、漂移和光伏打效应的作用下, 迅速建立起空间电场, 但电子不断与 Mn³⁺ 离子复合陷入到锰离子中去而不能被红光激发. 在 $N_a > N_2$ 的情况下, 几乎所有的电子都陷入到锰离子中去. 由于在记录开始时, Fe²⁺ 离子的空间分布均匀, 光激发的电子在被 Mn³⁺ 俘获前它们沿同样的方向经过几乎相同的距离, 因此最终的 Mn²⁺ 离子的分布空间均匀, 空间电荷场趋近于零. 这正如 Buse 实验所表明的那样^[8], 这种方法不能进行有效的光存储.

3.3 用紫外光预照明,同时用均匀的紫外光和调制的红光进行记录

正如图 4 和图 5 所示,用紫外光预照明,同时用均匀的紫外光和调制的红光可以有效地把调制光的信息存储到介质中去^[8].

对于一定的掺杂浓度的晶体,杂质离子的氧化还原程度对信息的存储以及储存信息的固定具有关键的作用.图 6 描绘了对于一定的掺杂浓度, $N_1 =$

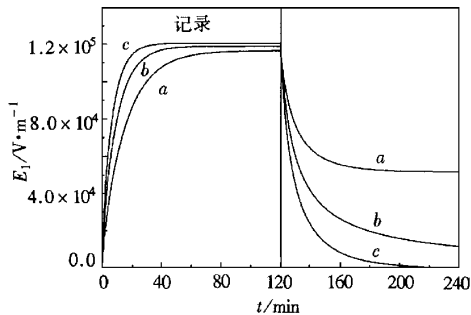


图 6 一定掺杂浓度 $N_1 = 1.5 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$, $N_2 = 1.0 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$, 三种不同氧化程度 $N_a = 1.05N_2$, N_2 , $0.95N_2$, 记录和固定过程中空间电场随时间的变化

$1.5 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$, $N_2 = 1.0 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$, 三种不同的氧化程度, 曲线 a 为 $N_a = 1.05N_2$, 曲线 b 为 $N_a = N_2$, 曲线 c 为 $N_a = 0.95N_2$ (其他条件不变), 空间电场随时间的演化过程. 从图中可以看出, 杂质离子的氧化还原程度对光折变灵敏度和稳态电场都有很大的影响. 图 7 描绘了不同掺杂浓度曲线 a 为 $N_1 = 8 \times$

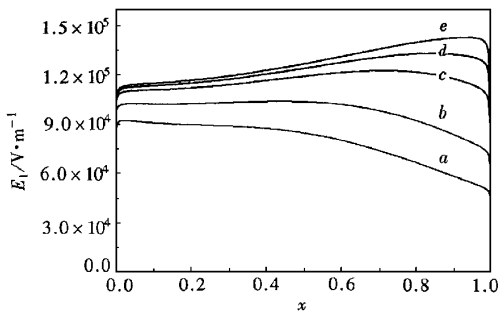


图 7 不同的掺杂浓度, 曲线 a 为 $N_1 = 8 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$, 曲线 b 为 $N_1 = 4 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$, 曲线 c 为 $N_1 = 1.5 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$, 曲线 d 为 $N_1 = 8 \times 10^{23} \text{ m}^{-3}$, 曲线 e 为 $N_1 = 4 \times 10^{23} \text{ m}^{-3}$, $N_2 = 1.0 \times 10^{25} \text{ m}^{-1}$ 保持不变, 记录后的稳态电场与晶体的氧化程度之间的关系

10^{24} m^{-3} , 曲线 b 为 $N_1 = 4 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$, 曲线 c 为 N_1

$= 1.5 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$, 曲线 d 为 $N_1 = 8 \times 10^{23} \text{ m}^{-3}$, 曲线 e 为 $N_1 = 4 \times 10^{23} \text{ m}^{-3}$, $N_2 = 1.0 \times 10^{25} \text{ m}^{-1}$ 保持不变, 记录的稳态电场与晶体的氧化程度(用 $x = N_a / (N_1 + N_2)$ 来表示)之间的变化关系. 随氧化程度的增加, 内电场从 0 (对应于完全还原 $x = 0$) 迅速增加, 然后在一较大的范围内小幅度变化, 最后又迅速减小到 0 (对应于完全氧化 $x = 1$). 图 8 描绘了图 7 中的五种不同掺杂浓度, 空间电场达到记录稳态值的 $1/e$ 所需的时间与氧化程度之间的变化关系. 随氧化程度的增加, 空间电场达到稳态的 $1/e$ 所需的时间逐渐增加, 灵敏度逐渐降低. 在较高的氧化程度 ($x > 0.9$ 左右) 所需的时间迅速增加, 灵敏度迅速下降. 这是由于高氧化的晶体, 参加输运的电子的浓度低, 从而降低了光折变的灵敏度. 对于掺铁浓度一定, 不同的掺锰浓度在 $x < 0.88$ 左右, 灵敏度没有明显的区别, 在 $x > 0.88$ 左右, 掺锰浓度越深, 灵敏度越低.

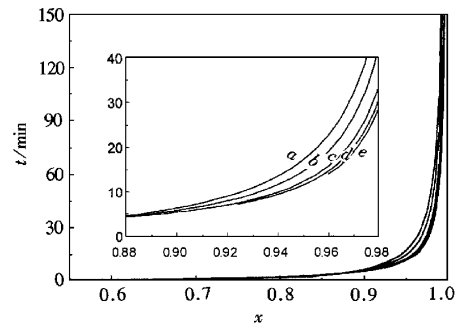


图 8 不同掺杂浓度(同图 7) 空间电场达到稳态的 $1/e$ 所需的时间与晶体的氧化程度之间的关系

4 光 固 定

当光栅的记录达到稳态, 关闭均匀紫外光, 用一束均匀的红光抹除铁离子光栅, 显现对红光不敏感的锰离子光栅. 图 6 描绘了 $I_1 = 0$, $I_{20} = 6000 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$, $m = 0$, $N_1 = 1.5 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$, $N_2 = 1.0 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$, 三种不同的氧化程度曲线 a 为 $N_a = 1.05N_2$, 曲线 b 为 $N_a = N_2$, 曲线 c 为 $N_a = 0.95N_2$ (其他条件不变), 空间电场随时间的演化过程, 从图中可以看出最后保留的锰离子光栅所产生的空间电场强烈依赖于晶体的氧化程度. 为了说明这种依赖关系, 图 9 描绘了不同掺杂浓度(同图 7), 光固定稳态电场与晶体的氧化还原状态之间的关系. 当 $N_a < N_2$ 对应

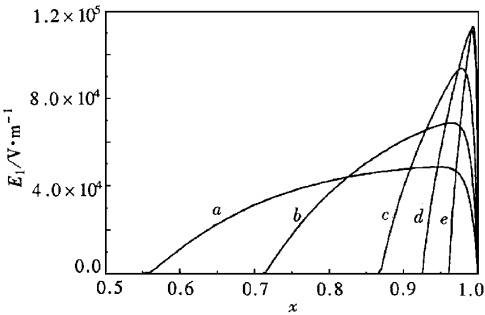


图9 不同的掺杂浓度(同图7)光固定20 h后空间电场与晶体的氧化程度之间的关系

于图中 $x < 0.556, 0.714, 0.869, 0.926, 0.962$), 红光在抹除铁离子光栅的同时也抹除了锰离子光栅, 这是由于晶体中有够多的电子被锰离子俘获, 使锰离子全部成为 Mn^{2+} 离子, 抹除了锰离子光栅, 同时 Fe^{2+} 离子也分布均匀, 光固定稳态电场为零。当 $N_a > N_2$ 随着 x 的增加, 空间电场 E_1 逐渐增加至最大值, 然后又减小到 0 (对应于完全氧化 $x = 1.0$, 此时晶体在记录阶段就没有写入光栅)。图中的下降部分虽然可以使光固定的稳态电场不为零, 但对照图 8 可以看出, 它对应的灵敏度很低, 因此我们只讨论图中的上升阶段, 其对应 x 的变化范围称为有效动态范围。从图中可以看出, 掺铁浓度一定时, 掺锰的浓度越深, 固定稳态电场的峰值越低, 但有效动态范围越大, 从晶体生长后的氧化还原处理来看, 较大的动态范围更容易实现, 掺锰的浓度越低, 虽然可以获得较大的稳态电场, 但对氧化还原状态要求严格(如图中的曲线 d, e)。

对于光存储材料来说, 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场)。对比图 8 和图 9 发现, 对于双掺杂的 $LiNbO_3:Fe:Mn$ 来说, 固定后的空间电场随氧化增大, 光折变灵敏度随氧化而减小, 高衍射效率是以降低光折变的灵敏度为代价的。在用双掺杂 $LiNbO_3:Fe:Mn$ 晶体进行实际光存储时, 可以根据不同的需要在晶体生长后进行不同的氧化还原的处理。

5 结 论

本文在考虑了扩散、漂移和光伏打效应三种输运机制, 用二中心模型理论分析了在小调制度近似下双掺杂 $LiNbO_3:Fe:Mn$ 晶体用双色光进行光存储

的动力学过程, 得出一组描述存储动力学的耦合微分方程组, 数值求解并解释了双掺杂 $LiNbO_3:Fe:Mn$ 晶体光存储的动态发展过程, 紫外光预照明可增加光存储的灵敏度, 只有用均匀的紫外光和调制的红光同时记录才可以有效地把调制光的信息存储到介质中去。分析了晶体中杂质离子的氧化还原程度对光存储过程的影响, 结果表明只有在 $N_a > N_2$ 的条件下, 双掺杂 $LiNbO_3:Fe:Mn$ 晶体光存储才能达到非破坏性存储的目的, 实现信息的长期存储, 且记录后经过光固定的光栅的衍射效率随氧化增大, 光折变灵敏度随氧化而减小, 即光折变灵敏度高, 固定后光栅的衍射效率低, 要获得高衍射效率就必须以降低光折变灵敏度为代价。在掺铁浓度一定的情况下, 掺锰浓度越高, 能实现信息长期存储对应的氧化状态的有效动态范围越大, 但固定稳态电场的峰值越低, 掺锰的浓度越低, 虽然可以获得较大的稳态电场, 但对氧化还原状态要求严格。

我们实验验证了晶体的氧化还原状态对全息存储的影响^[24]。用氧化和还原的双掺杂 $LiNbO_3:Fe:Mn$ 晶体进行全息存储, 对于氧化的 $LiNbO_3:Fe:Mn$ 晶体, 它的响应速度较慢, 但经过较长一段时间固定(读出), 它的衍射效率逐渐趋近于一个稳态值, 即能使存储的信息长期保存。对于还原的 $LiNbO_3:Fe:Mn$ 晶体, 它的响应速度较快, 但经过一段时间固定(读出), 它的衍射效率逐渐趋近于零, 也就是说, 用还原的 $LiNbO_3:Fe:Mn$ 晶体不能实现全息的长期存储, 强氧化处理的晶体存储的信息可实现非破坏性读出。

[1] P. Gunter, J. P. Huignard (eds.), Photorefractive Materials and Their Application I, Topics in Appl. Phys., Vol. 6 (Springer, Berlin, Heidelberg, 1989).

[2] J. J. Amodei, D. L. Steabler, *Appl. Phys. Lett.*, **18** (1971), 540.

[3] F. Micheron, G. Bismuth, *Appl. Phys. Lett.*, **20** (1972), 78.

[4] D. Von der Linde, *Appl. Phys. Lett.*, **25** (1974), 155.

[5] J. F. Heanue, M. C. Bashaw, A. J. Daiber, R. Snyder, L. Hesselink, *Opt. Lett.*, **21** (1996), 1615.

[6] J. Ma, T. Chang, R. Neurgaonkar, G. Barbastathis, D. Psaltis, *Opt. Lett.*, **22** (1997), 1116.

[7] D. Lande, S. S. Orlov, A. Akella, L. Hesselink, R. Neurgaonkar, *Opt. Lett.*, **22** (1997), 1722.

[8] K. Buse, A. Adibi, D. Psaltis, *Nature*, **393** (1998), 665.

[9] N. V. Kukhtarev, V. B. Markov, S. G. Odulov, M. S. Soskin, V. L. Vinetskii, *Ferroelectrics*, **22** (1979), 949.

- [10] G. C. Valley , *Appl. Opt.* , **22**(1983) , 3160.
- [11] G. A. Brost , R. A. Motes , J. R. Rotge , *J. Opt. Soc. Am.* , **B5**(1988) , 1879.
- [12] L. Holtmann , *Phys. Stat. Sol.* , **A113**(1989) , K89.
- [13] D. Mahgerefteh , J. Feinberg , *Phys. Rev. Lett.* , **64**(1990) , 2195.
- [14] P. Tayebati , D. Mahgerefteh , *J. Opt. Soc. Am.* , **B8**(1991) , 1053.
- [15] A. M. Glass , D. Von der Linde , T. J. Negran , *Appl. Phys. Lett.* , **25**(1974) , 233.
- [16] M. Carrascosa , F. Agullo - Lopez , *Appl. Opt.* , **27**(1988) , 2851.
- [17] H. Kurz , E. Kratzig , W. Keune , H. Engelmann , U. Gonser , B. Dischler , A. Rauber , *Appl. Phys.* , **12**(1977) , 355.
- [18] H. Kurz , *Ferroelectrics* , **8**(1974) , 437.
- [19] B. Liu , L. Liu , L. Xu , *Appl. Opt.* , **37**(1998) , 2170.
- [20] B. Dischler , J. R. Herrington , A. Rauber , H. Kurz , *Solid State Commu.* , **14**(1974) , 1233.
- [21] K. Buse , *Appl. Phys.* , **B64**(1997) , 273.
- [22] R. S. Cudney , R. M. Pierce , G. D. Bacher , D. Mahgerefteh , J. Feinberg , *J. Opt. Soc. Am.* , **B9**(1992) , 1704.
- [23] E. Kratzig , H. Kurz , *Optica Acta* , **24**(1977) , 475.
- [24] Y. W. Liu , L. R. Liu , C. H. Zhou , L. Y. Xu , *Acta Optica Sinica* , **19**(1999) , 1437 (in Chinese) 刘友文、刘立人、周常河、许良英、光学学报 , **19**(1999) , 1437]

THE DYNAMICS OF HOLOGRAPHIC STORAGE IN DOUBLY DOPED $\text{LiNbO}_3 \text{:Fe:Mn}$

LIU YOU-WEN LIU LI-REN GUO YING-CHUN ZHOU CHANG-HE

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

(Recieved 10 July 1999 , revised manuscript received 5 September 1999)

ABSTRACT

Considering the three transport mechanisms of diffusion , drift and the photovoltaic effect , we set up a set of coupling differential equations that describe the dynamics of the two-color holographic storage in doubly doped $\text{LiNbO}_3 \text{:Fe:Mn}$ in the case of small signal and modulation , and solve the equations to explain the time dynamic development process of holographic storage by using the numerical calculation method. On the basis of these results , we analyze the effect of oxidation-reduction on the process of holographic storage , the non-volatile holographic storage is realized only if the sum N_a of number density of the acceptors(Fe^{3+} and Mn^{3+}) is larger than the number density of iron ions N_2 . Diffraction efficiency of fixed grating increases with oxidation , photorefractive sensitivity decreases with oxidation , higher diffraction efficiency is at the cost of lower photorefractive sensitivity. When the concentration of doped iron is constant , the higher the concentration of doped manganese , the larger the effective dynamic range of state of oxidation-reduction is , in which holograph can be saved permanently.

PACC 4240 ; 4265

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China(Grant No. 69837020) and the Hundred Talents Program of Chinese Academy of Sciences.