

文章编号:1001-9014(2008)06-0421-04

LiNbO₃:Fe:Mn 晶体非挥发全息存储性能的理论研究

申岩^{1,2}, 孙秀冬², 赵业权³

(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. 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,研究了连续光条件下LiNbO₃:Fe:Mn晶体在稳态情况下的非挥发双色二步全息存储性能.在各种实验条件下通过比较双中心模型中深(Mn²⁺/Mn³⁺)、浅(Fe²⁺/Fe³⁺)能级之间所有可能的电子交换过程,发现由深浅能级之间直接电子交换过程所导致的隧穿效应对LiNbO₃:Fe:Mn晶体总的空间电荷场的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.

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

THEORETICAL STUDIES ON NONVOLATILE HOLOGRAPHIC RECORDING FOR LiNbO₃:Fe:Mn

SHEN Yan^{1,2}, SUN Xiu-Dong², ZHAO Ye-Quan³

(1. The Research Center of Science, Harbin Institute of Technology, Harbin 150080, China;
2. Department of Physics, Harbin Institute of Technology, Harbin 150006, China;
3. Center of photoelectricity information, Harbin Institute of Technology, Harbin 150080, China)

Abstract: The steady-state nonvolatile two-step, two-color holographic recording performance with continuous-wave lights for LiNbO₃:Fe:Mn was studied theoretically based on the two-center model. By comparing all of the different electron transfer processes between the deep-trap centers (Mn²⁺/Mn³⁺) and the shallow-trap centers (Fe²⁺/Fe³⁺), our results show that the direct electron exchange between the Mn²⁺/Mn³⁺ and the Fe²⁺/Fe³⁺ levels due to the tunneling effect dominates the amplitude of total space charge field under different experimental conditions in LiNbO₃:Fe:Mn. This direct electron transfer process also plays a key role in the two-step, two-color holography performance of the crystal.

Key words: nonlinear optics; holographic recording; space charge field; tunneling effect

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色二步全息存储已经被广为研究^[1-17].早期研究工作是用高强度激光脉冲研究同成份LiNbO₃和LiTaO₃^[7,8]. Bai等人^[1]用低光强连续光证明了在非挥发双色二步全息存储中在LiNbO₃晶体里有着中间能级. 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和Otten^[10]利用一种双中心模型来解释在高光强下光强与光致折射率的变化之间的关系,在模型中提到了在深浅能级之间电子的直接交换所引起的隧穿效应.近来, Adibi等人^[11]在用双中心模型来研究LiNbO₃:Fe晶体非挥发全息存储性能的基础之上又利用双中心模型来研究LiNbO₃:Fe:Mn晶体全息存储性能^[12].

本文中,以双中心模型为基础,从理论上研究了

收稿日期:2007-11-22,修回日期:2008-05-21

Received date: 2007-11-22, revised date: 2008-05-21

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、教育部留学回国人员启动基金(2003-406)、教育部科学技术研究重点(104054)、教育部科技创新工程重大项目培育资金(704012)和黑龙江省博士后基金、哈尔滨工业大学优秀青年教师培养计划和哈尔滨工业大学优秀团队支持计划资助项目

作者简介:申岩(1978-),男,黑龙江哈尔滨人,讲师,博士,主要从事光折变理论方面的研究.

低光强连续光条件下 LiNbO₃:Fe:Mn 晶体的非挥发双色二步全息存储性能。为了研究和了解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,考虑了在深能级(Mn²⁺/Mn³⁺)和浅能级(Fe²⁺/Fe³⁺)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,在各种实验条件下,在 LiNbO₃:Fe:Mn 晶体里,由深浅能级之间直接电子交换过程所导致的隧穿效应对晶体总空间电荷场的大小起到了决定性的作用。

1 LiNbO₃:Fe:Mn 晶体的电子输运过程

依据双中心带输运模型,下列方程描述了在 LiNbO₃:Fe:Mn 晶体里双色二步全息存储的电子输运过程:

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

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

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

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

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

这里, 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 Mn³⁺, Fe³⁺ 和导带电子的数密度; S_{UD} 和 S_{US} 是在泵浦光作用下的吸收截面,与电子从 Mn²⁺ 和 Fe²⁺ 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 Fe²⁺ 离子中心被激发到导带有关; β_S 和 β_D 分别是电子从 Fe²⁺ 和 Mn²⁺ 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 Fe³⁺ 和 Mn³⁺ 离子中心的俘获系数; S_{DS} 和 γ_{DS} 描述的是在泵浦光激发下在 Mn²⁺/Mn³⁺ 和 Fe²⁺/Fe³⁺ 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 Fe²⁺ 在记录光和泵浦光照射下的 Glass 系数, G_{UD} 是 Mn²⁺ 中心在泵浦光照射下的 Glass 系数; I_R 和 I_U 分别是记录光和泵浦光光强。这里,考虑了扩散,漂移和光伏机制。365nm 和 633nm 的激光分别作为泵浦光和记录光,大部分选用的参数值与 Adibi 等人[12]一致,在表 1 中列出。

在非挥发双色二步全息存储过程中,一般用一束均匀的泵浦光和一束空间调制度为 m 的正弦调制记录光辐照晶体

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

$$I_R = I_{R0} (1 + m \operatorname{Re}(\exp(iqx))) \quad (7)$$

其中, $q = 2\pi/\Lambda$, Λ 是光栅间距。对于很小的光调制度 ($m \ll 1$), 经过线性化处理,可用下角标“0” and “1” 分别表示 N_D^+ , N_S^+ , n_e 和 E 的零阶项和 $\exp(iqx)$ 的一阶项并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。由于篇幅的关系,这里就不给出详细的总空间电荷场 $|E_1|$ 的解析式。

表 1 LiNbO₃:Fe:Mn 实现双色二步全息存储所涉及到的全部量的单位和取值

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

LiNbO ₃ :Fe:Mn 晶体中与 Mn 有关的材料参数							
量(单位)	N_D (m ⁻³)	N_D^+ (m ⁻³)	S_{UD} (m ² /J)	γ_D (m ³ /V)	G_{UD} (mJ/V)		
数值	3.8×10^{24}	—	3.6×10^{-5}	2.4×10^{-13}	-3.05×10^{-28}		
文献	[12]	—	[12]	[12]	[12]		
LiNbO ₃ :Fe:Mn 晶体中与 Fe 有关的材料参数							
量(单位)	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)	γ_S (m ³ /V)
数值	2.5×10^{25}	—	3.8×10^{-5}	3.3×10^{-6}	-3.68×10^{-28}	-2.12×10^{-28}	1.65×10^{-14}
文献	[12]	—	[12]	[12]	[12]	[12]	[12]
LiNbO ₃ :Fe:Mn 晶体中与 Mn 和 Fe 有关的材料参数及其它参数							
量(单位)	S_{DS} (m ² /J)	γ_{DS} (m ³ /V)	μ (m ² /Vs)	ϵ	m	q (m ⁻¹)	T (K)
数值	3.22×10^{-29}	1.7×10^{-20}	7.5×10^{-5}	28	0.1	2.9×10^6	293
文献	本文	本文	[12]	[12]	—	—	—

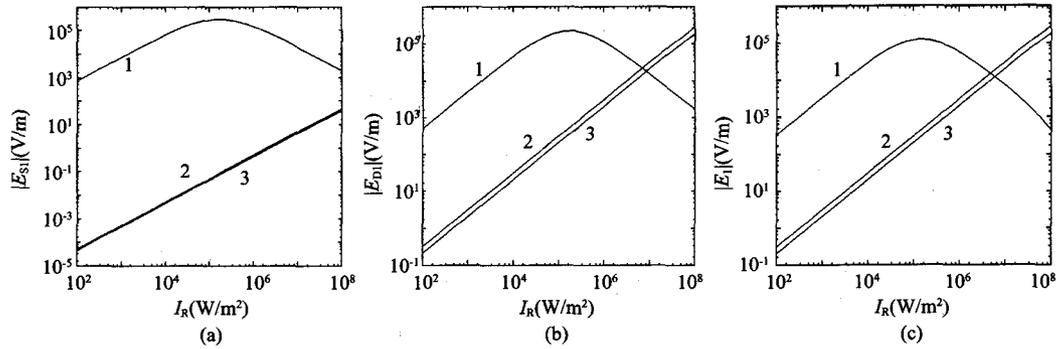


图1 在 LiNbO₃:Fe:Mn 晶体里,当 I_U 为 $1.0 \times 10^4 \text{ W/m}^2$ 时,由不同的电子输运过程所产生的 (a) $|E_{S1}|$, (b) $|E_{D1}|$ 和 (c) $|E_1|$ 随 I_R 的变化.

Fig.1 Dependences of (a) $|E_{S1}|$, (b) $|E_{D1}|$ and (c) $|E_1|$ on I_R with I_U set to be $1.0 \times 10^4 \text{ W/m}^2$ for different electron transfer processes in a LiNbO₃:Fe:Mn crystal.

2 LiNbO₃:Fe:Mn 内空间电荷场

为了研究不同电子输运过程对 LiNbO₃:Fe:Mn 晶体总空间电荷场的贡献,除了考虑所有可能的电子跃迁过程之外,还考虑了两种特殊情况,即 S_{DS} , $\gamma_{DS} = 0$ 和 S_{UD} , $S_{US} = 0$. 其中 S_{DS} , $\gamma_{DS} = 0$ 对应电子经过导带在深浅能级之间进行交换的过程;而 S_{UD} , $S_{US} = 0$ 对应于泵浦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泵浦光通过隧穿效应直接激发到 Fe^{3+} 中心,从而形成 Fe^{2+} . 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 $\text{Mn}^{2+}/\text{Mn}^{3+}$ 和浅能级 $\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$ 上建立起来.

由于在 LiNbO₃:Fe:Mn 的双色二步全息存储中没有外加电场,所以 E_0 设为零. N_D^+ 的值在暗条件下是由晶体的氧化-还原状态决定的,在这里设为 $0.9N_D$,这基本上与实际情况相一致. 假定在暗状态下 Fe 全部被电离,晶体的暗电导忽略不计,为了保持晶体在暗条件下的电中性,设定 $N_A = N_D^+ + N_S$. 热激发参数 β_S 和 β_D 设为零. 另外,由于我们以前曾研究的近化学比 LiNbO₃:Fe 晶体的能带系统与本文的 LiNbO₃:Fe:Mn 晶体是一致的,它的深浅能级分别由 $\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$ 和 $\text{Nb}_L^{4+}/\text{Nb}_L^{5+}$ 构成,因此在研究 LiNbO₃:Fe:Mn 晶体中表征隧穿效应的参数值时, LiNbO₃:Fe:Mn 晶体中表征泵浦光在深能级上的激发能力的参数 $G_{UD}S_{UD}$ 和浅能级上浮获导带电子能力参数 γ_S 的值均比近化学比 LiNbO₃: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 LiNbO₃:

Fe:Mn 晶体中参数 S_{DS} 值比近化学比 LiNbO₃:Fe 晶体中相应参数值大一个量级,为 $S_{DS} = 3.22 \times 10^{-29} \text{ m}^5/\text{J}$. 同理,由于 LiNbO₃:Fe:Mn 晶体中表征深能级上浮获导带电子能力参数 γ_D 与近化学比 LiNbO₃:Fe 晶体相同参数值相比大 15 倍[11,12],因此这里假定 LiNbO₃:Fe:Mn 晶体中表征深能级上浮获浅能级电子能力参数 γ_{DS} 的值也相应增大 15 倍,为 $\gamma_{DS} = 1.7 \times 10^{-20} \text{ m}^3/\text{s}$.

图1为不同电子交换过程对晶体空间电荷场的影响. 图1(a),图1(b)和图1(c)描述了当 $I_U = 1.0 \times 10^4 \text{ W/m}^2$ 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 $S_{DS}, \gamma_{DS} = 0$ 和 $S_{UD}, S_{US} = 0$ 这两种情况,曲线3对应的情况是考虑了深浅能级之间所有可能的电子交换过程. 可以看到 $|E_{S1}|$, $|E_{D1}|$ 和 $|E_1|$ 中的曲线2,3都是线性增加,在三幅图中的曲线1在低光强下先线性增加,在较高的记录光强下,其空间电荷场强度达到最值后线性下降. 这是因为在低光强下由记录光引起浅能级上电子的光激发速率 $S_{RS}I_R(N_S - N_{S0}^+)$ 与其暗衰减速率相比可以忽略不计,而在高记录光强下暗衰减速率又变成了一个重要的因素. 通过曲线2,3在这三幅图中进行比较可以看到, $|E_{S1}|$ 明显比 $|E_{D1}|$ 和 $|E_1|$ 小的多, $|E_1|$ 的数值与 $|E_{D1}|$ 差不多,这说明晶体中总空间电荷场的大小主要由深能级空间电荷场决定. 从实验结果中知道,在 LiNbO₃: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,这是与曲线2和3描述的结果相一致的. 曲线2,3数值相近的结果表明,考虑了所有电子输运过程所产生的空间电荷场与只考虑隧穿效应所产生的空间电荷场大小很接近.

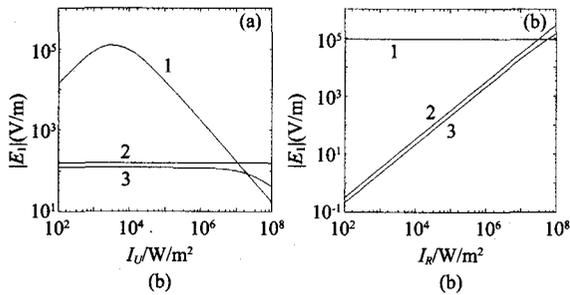


图2 在 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体里,在不同实验条件下总的空间电荷场 $|E_1|$ 的变化情况.

Fig. 2 Dependences of $|E_1|$ on different experimental condition for different electron transfer processes in a $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ crystal

图2是由不同输运过程所产生的总空间电荷场在两种实验条件下的变化情况.图2(a)描述的是由不同输运过程所产生的 $|E_1|$ 在 $I_R = 5.0 \times 10^4 \text{ W/m}^2$ 条件下随着 I_V 的变化情况,当 I_R/I_V 的比值固定为5时, $|E_1|$ 随着 I_R 的变化情况见图2(b).从这两幅图中仍可发现,曲线2和3的变化趋势非常接近.因此,可以得出一个结论,在 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 中,由深浅能级之间的直接电子交换过程所导致的隧穿效应在所有电子交换过程中起到了至关重要的作用,那么与之相关的参数在双色二步全息存储性能方面也必定起着关键的作用.

3 结语

从理论上研究了稳态情况下 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体非挥发全息存储性能.通过比较在深能级($\text{Mn}^{2+}/\text{Mn}^{3+}$)和浅能级($\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$)之间不同电子交换过程对晶体空间电荷场造成的影响,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色二步全息存储过程中起到了决定性作用.与隧穿效应相关的材料参数对双色二步全息存储的表现也起着至关重要的作用.此外,还发现 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}:\text{Mn}$ 晶体中总空间电荷场大小主要是由深能级上空间电荷场的大小所决定.

REFERENCES

[1] Bai Y S, Kachru R. Nonvolatile holographic storage with two-step recording in lithium niobate using cw Lasers[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1997, **78**(15):2944—2947.
 [2] YAN Bo-Xia, YAO Jiang-Hong, CHEN Ya-Hui, et al. Study on periodically poled characteristics of $\text{MgO}:\text{NbO}_3$ and second harmonic green light generation[J]. *J. Infrared*

Millim. Waves(颜博霞,姚江宏,陈亚辉,等.高掺镁铌酸锂晶体周期极化及倍频特性研究.红外与毫米波学报), 2005, **24**:213—216.
 [3] Hesselink L, Orlov S S, Liu A, et al. Photorefractive materials for nonvolatile volume holographic data storage[J]. *Science*, 1998, **282**(6):1089—1094.
 [4] Guenther H, Macfarlane R, Furukawa Y, et al. Two-color holography in reduced near-stoichiometric lithium niobate[J]. *Appl. Opt.*, 1998, **37**(32):7611—7623.
 [5] Zhang G, Tomita Y, Xu W, et al. Nonvolatile two-color holography in indium-doped lithium niobate[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2000, **77**(22):3508—3510
 [6] ZHANG Tian-Hao, LI Kun, SHAO Wei-Wei, et al. TE and TM mode photorefractive surface waves[J]. *J. Infrared Millim. Waves*(张天浩,李坤,邵伟伟,等. TE 和 TM 模式光折变表面波.红外与毫米波学报), 2008, **27**:35—39.
 [7] Linde D Vonder, Glass A M, Rodgers K F. Multiphoton photorefractive processes for optical storage in LiNbO_3 [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1974, **25**(3):155—157.
 [8] Vormann H, Kratzig E. Two step excitation in LiTaO_3 :Fe for optical data storage[J]. *Solid Stat. Commun.*, 1984, **49**:843—847.
 [9] Berben D, Buse K, Wevering S, et al. Lifetime of small polarons in iron-doped lithium niobate crystals[J]. *J. Appl. Phys.*, 2000, **87**(3):1034—1041.
 [10] Jermann F, Otten J. Light-induced charge transport in $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ at high light intensities[J]. *J. Opt. Soc. Am B*, 1993, **10**(11):2085—2092.
 [11] Adibi A, Buse K, Psaltis D. Theoretical analysis of two-step holographic recording with high-intensity pulses[J]. *Phys. Rev. A*, 2001, **63**:023813-1-17.
 [12] Adibi A, Buse K, Psaltis D. Two-center holographic recording[J]. *J. Opt. Am. B.*, 2001, **18**(5):584—601.
 [13] SHEN Yan, ZHANG Guo-Quan, FU Bo, et al. Studies on nonvolatile holographic recording for $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ with different stoichiometry[J]. *J. Infrared Millim. Waves*(申岩,张国权,付博,等.对不同组份 $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ 非挥发全息存储的研究.红外与毫米波学报), 2005, **24**(4):269—272.
 [14] YAO Jiang-Hong, XUE Liang-Ping, YAN Bo-Xia, et al. Optical parametric oscillator based on periodically poled $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ crystal[J]. *J. Infrared Millim. Waves*(姚江宏,薛亮平,颜博霞,等.周期极化掺镁铌酸锂晶体的光学参量振荡.红外与毫米波学报), 2007, **34**(2):209—213.
 [15] ZHOU Bin-Bin, CHEN Yun-Lin, YUAN Jian-We, et al. Quasi-phase-matched optical parametric oscillator and its optimal design[J]. *J. Infrared Millim. Waves*(周斌斌,陈云琳,袁建伟,等.准相位匹配光参量振荡器理论研究及优化设计.红外与毫米波学报), 2007, **26**(4):293—296.
 [16] SHEN Yan, Zhang Guo-Quan, Fu Bo, et al. Nonvolatile two step, two-color holography with continuous-wave lights for both congruent and near-stoichiometric $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ [J]. *J. Appl. Phys.*, 2004, **96**(10):5405—5414.
 [17] SHEN Yan, ZHANG Guo-Quan, FU Bo. Theoretical studies on nonvolatile two-step, two-color holographic recording sensitivity for $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ [J]. *Opt Commun.*, 2005, **256**/1-3:24—34.