

不同记录光强下辅助紫光对菌紫质薄膜 全息衍射效率的影响*

韩俊鹤^{1)†} 姚保利^{1)†} 郜 鹏¹⁾ 陈利菊¹⁾ 王英利¹⁾ 雷 铭¹⁾

1) 中国科学院西安光学精密机械研究所瞬态光学与光子技术国家重点实验室, 西安 710119)

2) 中国科学院研究生院, 北京 100049)

(2007 年 5 月 18 日收到, 2007 年 9 月 29 日收到修改稿)

具有光致变色效应的菌紫质薄膜可用作可擦重写型全息记录介质. 在全息记录过程中, 由于菌紫质薄膜对记录光的散射和反射引起记录光栅对比度下降, 当记录光较弱时, 这种影响较小, 可以忽略; 但当记录光较强时, 散射和反射光对记录光栅的影响很大, 必须考虑它们对光栅对比度的影响才能对实验结果进行合理的解释. 实验发现在不同的记录光强下辅助紫光对衍射效率动力学曲线的影响不同, 当记录光强较弱时, 加入辅助紫光可以提高衍射效率的稳定值、抑制峰值, 而当记录光强较强时, 加入辅助紫光除了提高衍射效率的稳定值外, 还可以提高衍射效率的峰值. 采用菌紫质光致变色的二能级模型, 对实验现象从理论上给出了很好的解释.

关键词: 菌紫质, 衍射效率, 干涉条纹对比度

PACC: 4240, 4240E, 4225K, 4225H

1. 引 言

菌紫质(bacteriorhodopsin, 简记为 BR)薄膜作为一种光致变色型全息记录介质, 具有稳定性好、灵敏度高、响应速度快、空间分辨率高、抗疲劳性好、可擦重写等优点^[1, 2], 在光电转换、光开关、光信息存储和处理等方面的应用已受到广泛关注^[3-10]. 有关 BR 薄膜的光信息处理^[7-9]和全息特性^[10-12]已有较多的研究. 近期研究发现, 在全息记录过程中加入适量的辅助紫光可以提高 BR 薄膜的全息衍射效率^[13, 14]. Hampp 等^[13]从 BR 光致变色的二能级理论出发, 通过求解动力学方程解释了辅助紫光对 BR 薄膜衍射效率的影响, 即辅助紫光可以提高 BR 薄膜全息衍射效率的稳定值, 抑制峰值. 王英利等^[14]根据双光束互补抑制效应, 提出加入辅助紫光提高 BR 薄膜对红光的饱和吸收光强, 使记录区域由非线性吸收区移至线性吸收区, 从而提高了 BR 薄膜全息衍射效率的稳定值. 我们最近在实验中发现, 在不同的记录光强下, 辅助紫光对 BR 薄膜衍射效率动力学曲线的影响是不同的. 在记录光强较弱时,

辅助紫光可以提高 BR 薄膜全息衍射效率的稳定值, 但会抑制其峰值; 在记录光强较强时, 辅助紫光不但可以提高衍射效率的稳定值, 同时也能提高衍射效率动力学曲线的峰值. 本文从 BR 光致变色的二能级理论模型出发, 通过求解动力学方程, 并引入干涉条纹对比度, 很好地解释了辅助紫光对不同记录光强下的衍射效率动力学曲线的影响, 得到了与实验结果一致的理论计算结果. 该理论对实验中选取最佳物参比、记录光强和辅助紫光光强具有指导作用.

2. 材料与方法

BR 薄膜样品 BR-D96N 由德国 Marburg 大学制备. BR 薄膜是从基因定点突变的嗜盐菌 (*Halobacterium salinarum*) 中提取出的紫膜经蔗糖梯度法纯化和超声破碎后, 以一定的浓度掺杂到高分子聚合物(如聚乙烯醇等)中, 然后将该聚合物密封到两片平行的光学玻璃中间形成均匀透明的聚合物薄膜. BR-D96N 薄膜的厚度约为 80 μm , 直径为 19 mm. 基态(B 态)的吸收峰在 568 nm 处, 光密度为

* 国家自然科学基金(批准号: 60337020, 60678023)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: yaobl@opt.ac.cn

1.32 其亚稳态 (M 态) 的吸收峰在 407 nm 室温下寿命 $\tau_M = 300 \text{ s}^{[15]}$.

实验采用四波耦合系统的实验光路,如图 1 所示. 由美国 Melles Griot 公司生产的 25-LHP-928 型氦氖激光器发出波长为 632.8 nm 的竖直线偏振光经消偏振分光棱镜 BS1 和 BS2 分光,分别形成物光 I_o 、参考光 I_r 和再现光 I_d ,它们都是沿竖直方向偏振的线偏振,光斑直径为 1.8 mm. 再现光与参考光共轲,衍射光 I_s 与物光共轲. 衍射光 I_s 经反射率为 47% 的分束镜 BS3 分束后,其反射光功率由数字功率计测量(美国 United Detector Technology 公司生产,11A

Photometer/Radiometer 型),数字功率计的模拟输出电信号送到由美国 Tektronix 公司生产的 TDS3032 型数字示波器,用来记录整个衍射动力学曲线. 辅助紫光 I_e 由波长为 405 nm 的线偏振半导体激光器(美国 Power Technology 公司生产,1Q2A18 型)产生,其偏振方向和记录光相同,光斑直径为 4.6 mm. 图 1 中的 S_1 和 S_2 为快门;NF1,NF2 和 NF3 为中性连续衰减片. 实验中物光和参考光的夹角 $\theta = 14.6^\circ$. 样品表面垂直于物光和参考光的夹角平分线. 记录光强定义为物光光强和参考光光强之和,即 $I_w = I_o + I_r$. 实验中物光、参考光和再现光的光强比 $I_o : I_r : I_d = 100 : 100 : 1$.

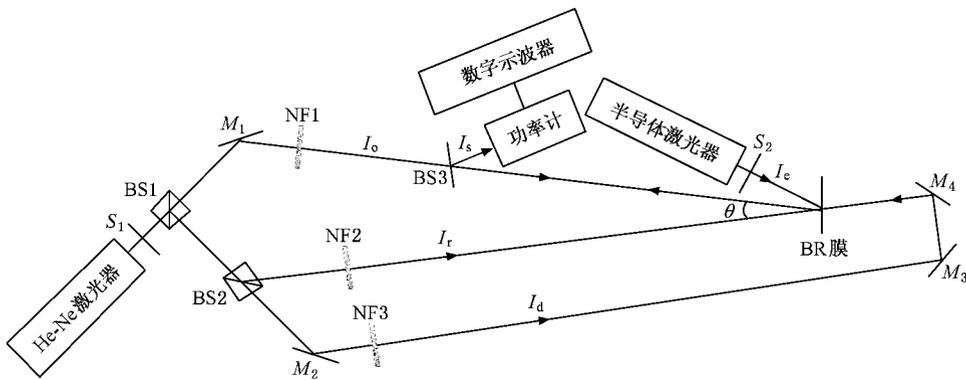


图 1 实时全息衍射效率测量光路

3. 结果及讨论

3.1. 实验结果

首先,我们测量了在不加辅助紫光时不同记录光强对全息衍射效率动力学曲线的影响,实验结果如图 2 所示. 从图 2 可以看出,不同记录光强下的衍射效率动力学曲线是不同的,记录光强越大,衍射效率动力学曲线峰值越低,达到稳定时的衰减速度越快. 当然,由于记录光强大,所使用的再现光也较强,所以记录光强大时对应的衍射效率动力学曲线的信噪比更高一些.

为了研究辅助紫光对衍射效率动力学曲线的影响,我们挑选了具有代表性的两种情况,即弱记录光强和强记录光强. 图 3 给出了两种记录光强下辅助紫光对全息衍射效率动力学曲线的影响,其中图 3(a)的记录光强为 30 mW/cm^2 ,图 3(b)的记录光强为 236 mW/cm^2 ,再现光的光强是记录光强的 $1/200$. 从图 3 可以看到,当记录光强一定时,随着紫光光强

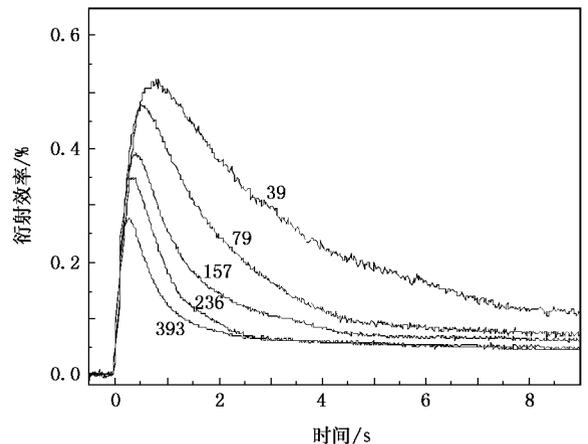


图 2 实验测得不同记录光强下的衍射效率动力学曲线. 图中标注的是记录光强值(单位为 $\text{mW} \cdot \text{cm}^{-2}$)

的增加,衍射效率稳定值先上升后下降,存在一个最佳辅助紫光光强,使衍射效率稳定值大幅度提高. 但是,在不同记录光强下,辅助紫光对衍射效率动力学曲线的影响是不同的. 当记录光强较小时,辅助紫光可以提高衍射效率的稳定值,但会抑制其峰值;

而记录光强较大时,辅助紫光可以同时提高衍射效率的稳定值和峰值.辅助紫光提高衍射效率稳定值的实验结果已有报道^[13,14],但对提高衍射效率峰值的实验还未见报道.

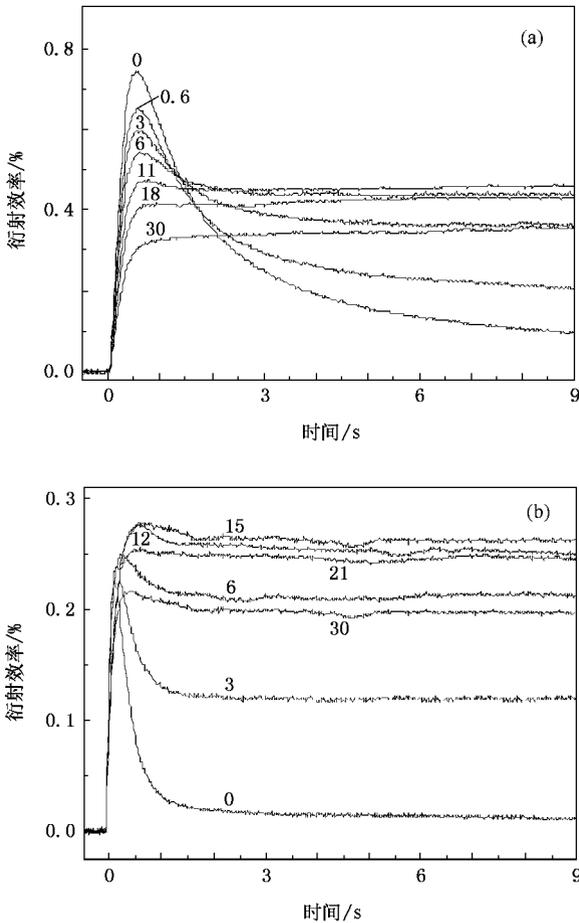


图3 实验测得不同记录光强下辅助紫光对衍射效率动力学曲线的影响.图中标注的是辅助紫光光强值(单位为 $\text{mW} \cdot \text{cm}^{-2}$) (a)记录光强为 $30 \text{ mW}/\text{cm}^2$, (b)记录光强为 $236 \text{ mW}/\text{cm}^2$

3.2. 理论分析

借鉴文献[13]结合本文工作的实验条件,我们从理论上分析了辅助紫光对衍射效率动力学曲线的影响. BR 光反应过程的二能级近似模型(图4)认为, BR 薄膜由基态 B 和亚稳态 M 构成, BR 分子在 B 态和 M 态之间循环的粒子数速率方程可表示为

$$\frac{dN_1}{dt} = -(k_1 + k_2)N_1 + (k_3 + k_r)N_2, \quad (1)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = (k_1 + k_2)N_1 - (k_3 + k_r)N_2, \quad (2)$$

$$N_1 + N_2 = N_0, \quad (3)$$

其中 N_0 为 BR 总分子数密度, N_1 和 N_2 分别表示 B

态和 M 态的分子数密度,

$$k_1 = C\varepsilon_B(\lambda_1)\phi_B(\lambda_1)\lambda_1 I_w = \alpha_1 I_w$$

表示记录光(波长为 λ_1)的光反应速率,

$$k_2 = C\varepsilon_B(\lambda_2)\phi_B(\lambda_2)\lambda_2 I_d = \alpha_2 I_d$$

表示再现光(波长为 λ_2)的光反应速率,

$$k_3 = C\varepsilon_M(\lambda_3)\phi_M(\lambda_3)\lambda_3 I_e = \alpha_3 I_e$$

表示辅助紫光(波长为 λ_3)的光反应速率,

$$k_r = 1/\tau_M$$

表示 M 态的热弛豫速率. 这里 ε_B 和 ε_M 分别为 B 态和 M 态的消光系数, ϕ_B 和 ϕ_M 分别为 B 态和 M 态的量子效率, 常数 $C = \ln 10(c h N_A)$, N_A 为阿伏伽德罗常数, c 为真空光速, h 为普朗克常数.

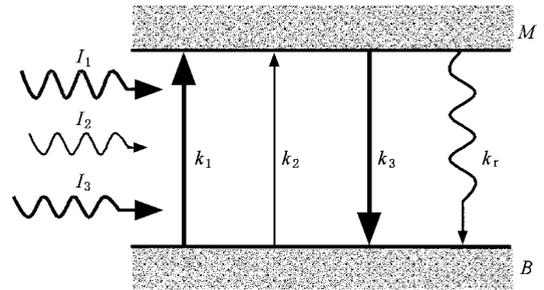


图4 BR 光致变色的二能级模型

设物光和参考光为平面波,它们在 BR 薄膜上干涉记录的一维光栅光强分布为

$$I(x) = I_o + I_r + 2\sqrt{I_o I_r} \cos(2\pi f x) \\ = I_w [1 + V \cos(2\pi f x)], \quad (4)$$

其中 $V = 2\sqrt{I_o I_r} / (I_o + I_r)$ 为干涉条纹的对比度; $f = 2 \sin(\theta/2) / \lambda_1$ 为干涉条纹的空间频率. 若在初时刻($t=0$)所有 BR 分子都处于基态,则 $N_1(0) = N_0$, $N_2(0) = 0$. 解由(1)–(3)式组成的方程组,并代入初始条件可得

$$N_2(t, x) = \frac{k_{12}}{k_{123r}} [1 - \exp(-k_{123r} t)] N_0, \quad (5)$$

其中 $k_{123r} = k_1 + k_2 + k_3 + k_r$, $k_{12} = k_1 + k_2$. k_1 的取值范围为 $[k_d, k_b]$, 其中 k_d 表示暗条纹处的光反应速率, k_b 表示亮条纹处的光反应速率. 由(4)式可知,当 $I_o = I_r$ 时, $V = 1$, 有 $k_b = 2\alpha_1 I_w$ 和 $k_d = 0$; 当 $I_o \neq I_r$ 时, 有 $k_b = (1 + V)\alpha_1 I_w$ 和 $k_d = (1 - V)\alpha_1 I_w$. 所以, BR 膜中形成的 M 态分子数密度光栅的最大值和最小值之间的差值为

$$\Delta N_2(t) = \left[\frac{(k_b - k_d)k_{3r}}{k_{123r} k_{d23r}} - \frac{k_{12}}{k_{123r}} \exp(-k_{123r} t) \right]$$

$$+ \frac{k_{d2}}{k_{d2r}} \exp(-k_{d2r} t) \Big] N_0. \quad (6)$$

同线偏振记录时在 BR 薄膜中形成的光栅既有振幅型光栅也有相位型光栅。在非倾斜记录光栅的情况下混合型光栅的衍射效率可由 Kogelnik 耦合波理论^[16]给出。对于给定的记录介质,在低衍射效率($\eta \ll 1$)情况下,衍射效率 $\eta \propto [(2\pi\Delta n/\lambda)^2 + (\Delta\alpha)^2]$, 其中 Δn 为折射率调制度, $\Delta\alpha$ 为吸收系数调制度。而折射率调制度和吸收系数调制度与光栅明暗条纹处 M 态分子数之差 $\Delta N_2(t)$ 成正比,故在低衍射效率近似下衍射效率 η 正比于 $[\Delta N_2(t)]^2$ 。因此,利用 (6) 式可以从理论上计算不同物参比、不同记录光强

和不同辅助紫光时的衍射效率动力学曲线。

3.2.1. 干涉条纹对比度对衍射效率动力学曲线的影响

实验中物光与参考光的光强比为 1:1,因此物光和参考光相干形成干涉条纹的对比度 $V = 1$,所以 $k_b = 2\alpha_1 I_w, k_d = 0$ 。应用 (6) 式,可以计算出在不加辅助紫光时不同记录光强下的衍射效率动力学曲线,如图 5(a) 所示。计算过程中选取 $\lambda_1 = \lambda_2 = 633 \text{ nm}, \lambda_3 = 405 \text{ nm}, \phi_B = \phi_M = 0.64, \epsilon_B(633 \text{ nm}) = 14280 \text{ L/molcm}, \epsilon_M(405 \text{ nm}) = 49400 \text{ L/molcm}, \tau_M = 300 \text{ s}$ 。

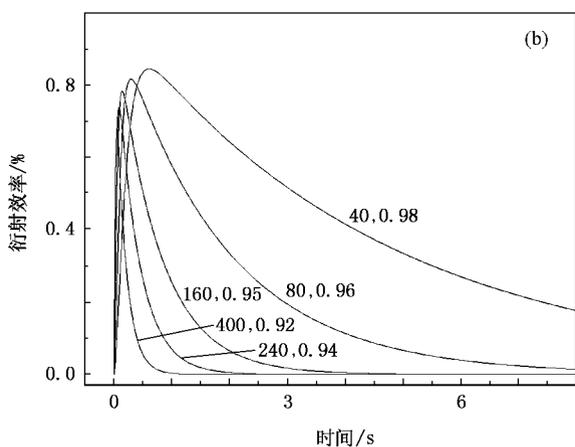
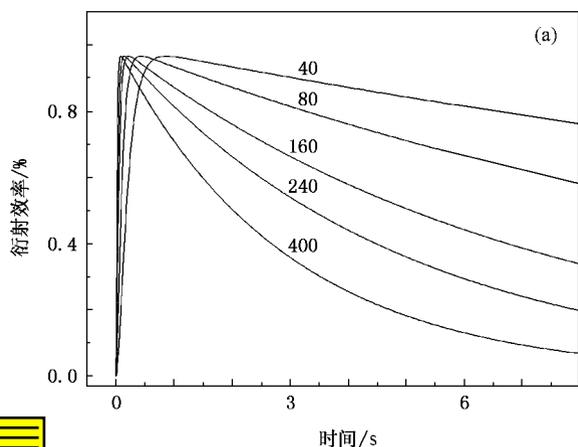


图 5 理论计算得到不同记录光强下的衍射效率动力学曲线 (a) 干涉条纹对比度 $V = 1$, 图中标注的是记录光强值(单位为 $\text{mW} \cdot \text{cm}^{-2}$); (b) 不同的干涉条纹对比度, 图中标注的是记录光强值(单位为 $\text{mW} \cdot \text{cm}^{-2}$) 和干涉条纹对比度值

从图 5(a) 可以看出,在理想情况下($V = 1$),衍射效率的最大值保持不变,记录光强只影响衍射效率动力学曲线的上升和衰减时间,记录光强越大,上升和衰减时间越短。但是,从图 2 的实验曲线中可以看到,衍射效率动力学曲线的最大值是随着记录光强的增大而减小的,与图 5(a) 的计算结果明显不同。我们认为,这是由于干涉条纹对比度随记录光强的增加而减小引起的。因为在实验过程中,虽然物光与参考光的光强比为 1:1,但由于 BR 薄膜自身的光散射以及 BR 薄膜夹在两块平行玻璃板之间引起的多次光反射,会使干涉条纹的对比度降低,而且随着光强的增大,这种影响会越来越严重。考虑到这种影响,我们改变了不同记录光强时干涉条纹的对比度,重新计算衍射效率动力学曲线,结果如图 5(b) 所示。该结果与图 2 的实验结果基本符合。这说明记录光强较大时,散射光和反射光的确实对干涉条纹对比度有较大影响。

3.2.2. 不同记录光强下辅助紫光对衍射效率动力学曲线的影响

对于衍射效率随时间先上升达到峰值,然后又下降衰减到一个较低的稳定值,这种现象主要是由于 BR 薄膜对记录红光的饱和吸收引起的。BR 薄膜对红光的饱和吸收光强很低(约为 5 mW/cm^2),通常全息记录光强都远大于此饱和光强,这使得 BR 薄膜中记录的光栅在达到稳态时由于吸收饱和而严重偏离余弦型光栅,因而衍射效率很低。加入辅助紫光的作用是可以提高 BR 薄膜对红光的饱和吸收光强,使记录光强从透过率的非线性区域移向线性区域,从而使 BR 薄膜中记录的光栅在达到稳态时仍然能保持与峰值时相似的余弦型光栅,因而衍射效率得到提高。我们称这种效应为紫光对光栅的稳定作用。对于图 3 中观察到的现象,我们可以作如下解释:当记录光强较弱时,样品本身的散射和反射光对干涉条纹对比度的影响较小,此时加入辅助紫光

一方面对光栅有一定的擦除作用,另一方面却提高了 BR 薄膜对红光的饱和吸收光强,对光栅起到了稳定的作用.因此,辅助紫光起到了抑制衍射效率曲线峰值,提高其稳定值的作用.当记录光强较大时,样品本身的散射和反射光导致干涉条纹对比度降低,此时加入辅助紫光可以明显提高干涉条纹的对比度,同时也起到稳定光栅的作用.所以,记录光强较大时加入辅助紫光可以同时提高衍射效率的稳定值和峰值.利用(6)式我们计算了不同记录光强下辅助紫光强度对衍射效率动力学曲线的影响,结果如图 6 所示.

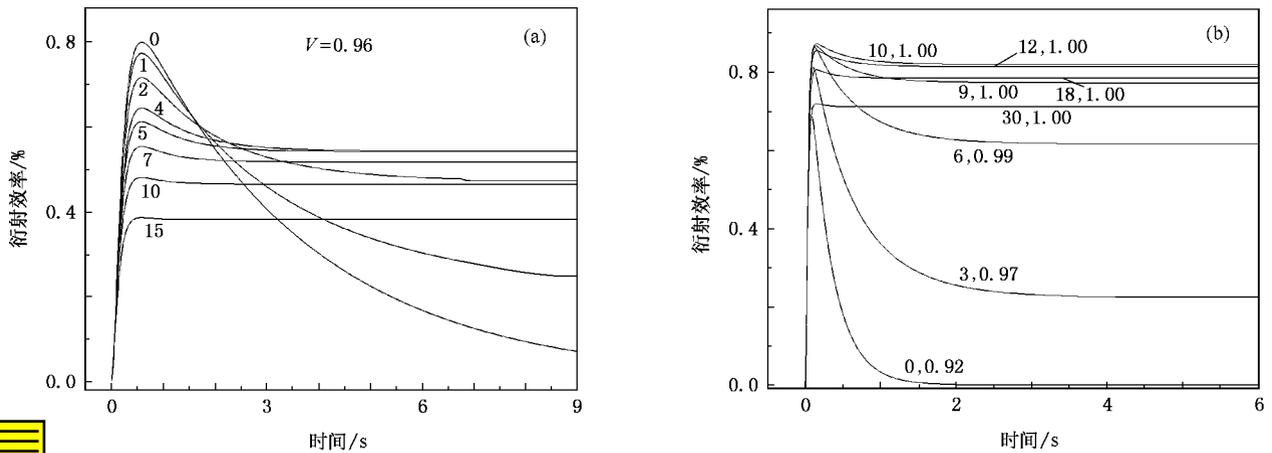


图 6 理论计算得到不同记录光强下辅助紫光强度对衍射效率动力学曲线的影响 (a) 记录光强为 30 mW/cm^2 , 图中标注的是辅助紫光光强值(单位为 $\text{mW}\cdot\text{cm}^{-2}$);(b) 记录光强为 236 mW/cm^2 , 图中标注的是辅助紫光光强值(单位为 $\text{mW}\cdot\text{cm}^{-2}$)和干涉条纹对比度值

4. 结 论

通过对 BR 薄膜全息衍射动力学的实验研究和理论分析得到如下结论:当记录光强较小时,BR 薄膜样品本身的散射和反射光对光栅干涉条纹对比度的影响很小,加入辅助紫光可以提高衍射效率的稳定值、抑制峰值.当记录光强较大时,BR 薄膜样品

把理论计算结果(图 6)和实验结果(图 3)进行比较可以看出(1)理论计算结果与实验测得的衍射效率动力学曲线的变化趋势完全一致,这说明利用二能级近似模型,引入干涉条纹对比度可以很好地解释不同记录光强下辅助紫光对衍射效率动力学曲线的影响.(2)理论计算得到的衍射效率动力学曲线的形状和最佳辅助紫光的光强与实验结果有所不同,我们认为这主要是由于所用激光为非均匀光斑、实验中光强测量存在一定误差所引起.另外,在理论计算中假设激光为平面波,这也使理论计算结果与实际情况之间产生一定偏差.

本身的散射和反射光降低了干涉条纹的对比度,导致峰值衍射效率下降.此时,加入适量的辅助紫光除了可以稳定光栅外,还可以增强干涉条纹的对比度,因此可以同时提高衍射效率的峰值和稳定值.

感谢德国 Marburg 大学 Norbert Hampf 教授提供 BR-D96N 菌紫质薄膜样品.

- [1] Hampf N 2000 *Chem. Rev.* **100** 1755
- [2] Oesterhelt D, Bräuchle C, Hampf N 1991 *Q. Rev. Biophys.* **24** 425
- [3] Birge R R 1990 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **41** 683
- [4] Chen G Y, Yuan Y Z, Liang X, Xu T, Zhang C P, Song Q W 2006 *Chin. Phys.* **15** 2007
- [5] Birge R R 1992 *Computer* **25** 67
- [6] Ming M, Liu J, Huang L, Liu J, Li Q G, Ding J D 2003 *J. Funct. Polym.* **16** 405 (in Chinese)[明明、刘嘉、黄力、刘坚、李庆国、丁建东 2003 功能高分子学报 **16** 405]
- [7] Clays K, Elshocht S V, Persoons A 2000 *Opt. Lett.* **25** 1391
- [8] Chen G, Zhang C, Guo Z, Wang X, Tian J 2005 *J. Appl. Phys.* **98** 044504
- [9] Gu L Q, Chen G Y, Guo Z X, Zhang C P, Tian J G, Zhang G Y, Song Q W 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 4236 (in Chinese)[顾立群、陈桂英、郭宗霞、张春平、田建国、张光寅、Song Q W 2004 物理学报 **53** 4236]
- [10] Zheng Y, Yao B L, Wang Y L, Menke N, Lei M, Chen G F, Hampf N 2003 *Chin. Phys. Lett.* **20** 671
- [11] Okada-Shudo Y, Jonathan J, Roosen G 2002 *Opt. Eng.* **41** 2083

- [12] Ren Z W , Yao B L , Menke N , Wang Y L , Zheng Y , Lei M , Chen G F 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 2699 (in Chinese) [任志伟、姚保利、门克内木乐、王英利、郑 媛、雷 铭、陈国夫 2005 物理学报 **54** 2699]
- [13] Hampp N , Juchem T 2004 *Opt. Lett.* **29** 2911
- [14] Wang Y L , Yao B L , Menke N , Ren Z W , Lei M , Ren L Y 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 5200 (in Chinese) [王英利、姚保利、门克内木乐、任志伟、雷 铭、任立勇 2006 物理学报 **55** 5200]
- [15] Yao B , Zheng Y , Wang Y , Lei M , Chen G , Hampp N 2003 *Opt. Commun.* **218** 125
- [16] Kogelnik H 1969 *Bell Sys. Tech. J.* **48** 2909

Influence of auxiliary violet light on holographic diffraction efficiency under different recording intensities in bacteriorhodopsin film ^{*}

Han Jun-He^{1,2)} Yao Bao-Li^{1)†} Gao Peng¹⁾ Chen Li-Ju¹⁾ Wang Ying-Li¹⁾ Lei Ming¹⁾

¹ *State Key Laboratory of Transient Optics and Photonics , Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics , Chinese Academy of Sciences , Xi'an 710119 , China)*

² *Graduate School of Chinese Academy of Sciences , Beijing 100049 , China)*

(Received 18 May 2007 ; revised manuscript received 29 September 2007)

Abstract

The photochromic bacteriorhodopsin (BR) film can be used as a rewritable holographic recording medium. Due to the scattering and the reflecting of light from the BR film , the grating contrast of the hologram is diminished during the hologram recording. When the intensity of the recording light is weak , the influence of the scattering and reflection on the grating contrast is low enough to be neglected. But in the case of intense recording light , this influence should not be overlooked. It is found that the influence of the auxiliary violet light on the holographic diffraction efficiency kinetics is distinct under different recording intensities. At weak recording light intensities , the steady diffraction efficiency are increased and the peak diffraction efficiency is suppressed by the auxiliary violet light. But for intense recording light , the steady diffraction efficiency as well as the peak diffraction efficiency are both increased by the auxiliary violet light. Based on the two-level model of BR photochromism , we give a good theoretical explanation to the above phenomena.

Keywords : bacteriorhodopsin , diffraction efficiency , contrast of interference fringe

PACC : 4240 , 4240E , 4225K , 4225H

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60337020 , 60678023).

[†] Corresponding author. E-mail : yaobl@opt.ac.cn