

BR-PVA 固体膜在四波混频相干场中的 光栅特性和位相共轭波的暂态行为*

汤国庆 岳增山 张桂兰 陈文驹

(南开大学现代光学研究所, 天津 300071)

(1995 年 4 月 3 日收到)

利用 Ar 离子激光简并四波混频(DFWM)技术, 对细菌视紫质(BR)-聚乙烯醇(PVA)固体膜的位相共轭波特性进行了理论和实验研究. 采用 BR 光循环的双态模型和粒子数速率方程, 以及全息光栅理论描述了该体系的 PC 波的衍射效率、时间响应和饱和特性, 给出了相应的表达式. 讨论了该体系在 DFWM 场中的光栅机制和上述特性对于输入波的偏振态、强度和强度比, 到达样品的时间和形成的初始浓度光栅等参数的依赖关系. 实验结果与理论分析相符.

PACC: 4265; 8750E

1 引 言

近年来, 光子学器件的迅速发展促进了人们对于光学非线性材料和性能的研究兴趣. 特别是近代光学通讯和光学信息处理以大容量和高速度为特征, 已使探索有机、高分子和生物分子的光学非线性研究成为当前的热门课题. 二十多年来对于细菌视紫质(BR)的广泛研究, 表明 BR 分子是最具有应用前途的光学非线性材料之一^[1]. BR 分子是优异的光能转换蛋白分子, 具有突出的光致变色, 光学非线性和光电特性. 这些性质产生于众所周知的 BR 分子的光循环特性. 光循环起始于高适应状态 BR₅₇₀ (最大吸收波长为 570 nm), BR₅₇₀ 吸收适当波长的光能量用以引发原初光反应而开始光循环, 经历一系列的中间(热弛豫)过程(态), 而返回初始态^[2,3]. 其中间态 M₄₁₂ (吸收极大值波长为 412 nm)是呈现 BR 分子的质子泵功能的状态, 也是发生最大电荷畸变的状态^[1], 因此 M₄₁₂ 态以赋予 BR 分子重要特性而受到特别关注. BR 分子的综合特性优于有机分子^[1,4-6], 特别是它具有快而可调节的光循环周期; 长的光循环次数(循环 10⁶ 次不降解); 低的非线性阈值(mW/cm² 级), 高的三阶光学非线性(约 10⁻⁴ esu), 高的光栅分辨率(在 514.5 nm 为 0.17 μm)和天然的耐久性而引入关注. 目前在发展高速光开关、空间光调制器, 实时全息相关记忆和光电器件等应用方面呈现了诱人的前景和潜力.

BR 分子的光学非线性特性研究已有许多报道, 多数集中在此类特性的演示和应用

* 国家自然科学基金资助的课题.

原理的探讨,衍射效率对于混频波夹角和强度的依赖等特性方面,有关非线性的时间响应和相关机制的研究正在掀起^[7,8].本文演示了 BR-PVA 固体膜在简并四波混频(DFWM)场中偏振态的光学逻辑功能,并利用简化模型,将全息光栅的衍射理论和 BR 光循环的速率方程结合起来,研究了该体系的位相共轭(PC)波的时间响应、衍射效率、偏振态和作用机制.

2 理论分析

2.1 BR 分子光循环的双态模型

BR-PVA 固态膜体系在 514.5 nm 激光作用下,呈现特大的稳态三阶光学非线性,无论是由于光致电荷畸变,还是光致变色而导致折射率的变化,都应当与 BR 光循环中间物的生成相联系,特别是要与 M_{412} 态相联系^[9].这不仅因为 M_{412} (包括 M_{412}^I 和 M_{412}^{II}) 态具有最大的电荷畸变(去质子化状态),而且也具有最长的衰减寿命^[11].在稳态条件下,所有短寿命的中间态,如 K 态和 L 态,不能产生稳态布居,唯有 M_{412} 态的布居占有优势. M_{412} 态对 514.5 nm 的光呈微弱吸收,并能以较高光量子效率(约 0.65)直接返回 BR_{570} 态^[10].在整个光循环周期内, M_{412} 态的布居是一个快过程(约 50 μ s),而其后的弛豫是一个慢过程.因此,在稳态条件下讨论 DFWM 特性,可将 $BR_{570} \xrightarrow{h\nu} K \rightarrow L \rightarrow M_{412}^I \xrightarrow{h\nu} M$ 的光过程;将 $M_{412}^I \rightarrow M_{412}^{II} \rightarrow N \rightarrow O \rightarrow BR_{570}$ 过程简化为 $M \rightarrow BR_{570}$ 的热过程.图 1 给出了简化的 BR 光循环双态模型,即二能级系统^[6,10].根据这一模型, M 态视为 BR_{570} 的激发态,整个光循环周期视为 M 态寿命.

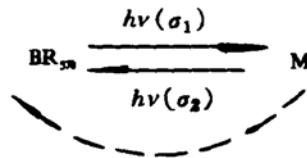


图 1 BR 光循环的双态模型 ——为光过程,----为热过程,σ为吸收截面

2.2 DFWM 的光栅分析

BR-PVA 薄膜在 Ar^+ 激光 514.5 nm 的相干场中按图 2 实现 DFWM(或实时全息). PC 波的输出模式与任一泵浦波或信号波的模式都不相同.因此,对于位相匹配的输出波($\Delta k = 0$),必定有 $k_4 = -k_3$, 与此相应的非线性极化强度可表示成

$$P_4^{(3)}(k_4 = -k_3, \omega) = \chi^3(\omega) E_1(k_1) E_2(k_2) E_3^*(k_3) \\ = A(E_1 E_3^*) E_2 + B(E_2 E_3^*) E_1 + C(E_1 E_2) E_3^*, \quad (1)$$

上式表示三个输入波中的两个相互干涉形成一个稳定光栅,散射第三个输入波,产生三个不同波矢的输出波. A, B 和 C 为强度因子,与 E_1 和 E_3 的夹角 θ 有关,而且 $B(\theta) = A(\pi - \theta)$. 按图 2 的配置, E_1 与 E_3^* 相干构成透射光栅,光栅周期 $\Lambda = \lambda / 2 \sin(\theta/2) = 1.481 \mu m$, 为粗光栅,衍射 E_2 波,在 $-k_3$ 方向满足位相匹配条件. E_2 和 E_3^* 相干形成反射光栅, $\Lambda = 0.261 \mu m$, 为细光栅,衍射 E_1 波,在 $-k_3$ 方向满足位相匹配. E_1 和 E_2 形

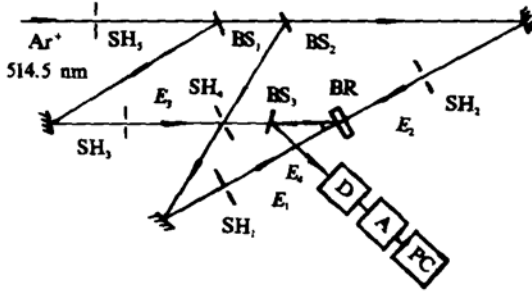


图2 DFWM光路 SH为快门;BS为分束器;D为光探测器;A为放大器;PC为计算机;BR为样品; $E_1(I_1)$ 和 $E_2(I_2)$ 为共轴泵浦光, $E_3(I_3)$ 为信号光, $E_4(I_4)$ 为PC波

率^[11,12].因此,可以用透射全息光栅的衍射理论,并近似以其二倍的衍射效率来描述DFWM的PC波.

2.3 全息光栅的衍射效率

以BR作为全息介质的光栅特性已有报道^[5],本文要以BR光循环的粒子数布居来阐明BR的激发态浓度光栅特性.BR-PVA薄膜置于 Ar^+ 激光514.5 nm的平面波相干场中,相干条纹的强度分布形成了相应的M态浓度布居的调制,明暗条纹区中具有不同M态与 BR_{570} 态的相对浓度分布,便构成了激发态的浓度光栅.

假定相干场形成正弦光栅,样品的吸收不会导致相干强度在整个薄膜(厚度为0.01 cm)内产生明显下降(为体光栅),在图2的设置条件下,透射(和反射)光栅的衍射效率 η 可用振幅光栅(η_A)和位相光栅(η_P)对其的贡献来描述^[13]:

$$\eta = C \times (\eta_A + \eta_P) = (\sinh^2 A + \sin^2 p) \exp(-D), \quad (2)$$

$$A = \frac{\pi \Delta k d}{\lambda \cos \theta_R}, \quad p = \frac{\pi \Delta n d}{\lambda \cos \theta_R}, \quad D = \frac{\alpha_a d}{\cos \theta_R},$$

其中 Δk 及 Δn 分别为干涉场中明暗条纹间介质光吸收 α 的差值和折射率 $\bar{n}$ 实部的差值. d 为光栅(即薄膜)厚度, α_a 为平均吸收系数, θ_R 为读出光与样品法线的夹角.因此, D 为被衍射光通过样品的有效光密度. α , β 和 $\bar{n}$ 满足下列关系,

$$\bar{n} = n + ik, \quad (3)$$

$$\alpha = 4\pi k / 2.303\lambda. \quad (4)$$

在低衍射效率($\eta < 0.01$)的情况下,方程(2)可近似为

$$\eta = \left(\frac{\pi d}{\lambda \cos \theta_R} \right)^2 (\Delta k^2 + \Delta n^2) \exp \left(\frac{-\alpha_a d}{\cos \theta_R} \right). \quad (5)$$

需要指出的是,读出光并非不影响光栅的调制,这些影响我们将连同写入光一起归入到 Δk 和 Δn 之中.利用阻尼谐振子模型近似,在近共振条件下,根据描述第一激发态对形成光栅产生贡献的双态模型假设,解振子的运动方程可以得到

成振荡频率为 2ω 的运动光栅,通常 2ω 是远离共振的,而且在 k_3 方向上没有输出.因此,在近共振的DFWM中,对PC波的贡献主要来自透射和反射光栅.

利用514.5 nm激光在相同线偏振条件下实现BR膜的近共振DFWM,其衍射效率并不明显依赖于 θ 角^[5,6],而且在BR固体膜中并不认为存在有清洗(细)光栅的平动扩散效应^[11],偏振全息光栅特性表明,反射和透射光栅几乎具有等同的衍射效率

$$\bar{n}^2 = 1 + \frac{4\pi e^2 B_0 f_0}{m(\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma_0 \omega)}, \quad (6)$$

其中 B_0 为 BR 基态分子数密度, ω_0 和 Γ_0 分别为吸收极大值频率和半峰宽度, f_0 为振子强度参数, m 和 e 分别为电子质量和电荷. 将上式写成标准复数形式, 并忽略某些小项, 与(3)式对比得到

$$n^2 = 1 + \frac{B_0 f_0 (\omega_0^2 - \omega^2)}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \Gamma_0^2 \omega^2}, \quad (7)$$

$$2nk = \frac{B_0 f_0 \Gamma_0 \omega}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \Gamma_0^2 \omega^2}, \quad (8)$$

$$f_0 = \frac{4\pi e^2 f_0}{m} = 8\pi c^2 \int \lambda(\nu) d(\nu), \quad (9)$$

f_0 为 BR₅₇₀ 吸收极大值的振子强度, ν 为波数. 在大多数情况下, $k \ll 1$, 可以忽略 k^2 项. 基态数密度 B_0 在相干光场中为干涉条纹所调制. 从(8)和(9)式可分别得到亮暗条纹间 n 和 k 的差值与粒子数密度间的关系:

$$\Delta n(\omega, M) = \frac{dn}{dB_0} \Delta B_0 = \frac{\Delta M}{B_0} \cdot \frac{B_0 f_0 (\omega_0 - \omega)}{n_0 \omega_0 [4(\omega_0 - \omega)^2 + \Gamma_0^2]}, \quad (10)$$

$$\Delta k(\omega, M) = \frac{dk}{dB_0} \Delta B_0 = \frac{\Delta M}{B_0} \cdot \frac{B_0 f_0 \Gamma_0}{2\omega_0 [4(\omega_0 - \omega)^2 + \Gamma_0^2]}, \quad (11)$$

其中 $\Delta B_0 = B_0 - B(t)$ 为亮暗条纹间 BR₅₇₀ 在 t 时刻分子数密度之差, 亦为亮暗条纹区中生成的 M 态分子数密度之差 ΔM (见(15)式). 将(10)和(11)代入(5)式得到

$$\eta(\omega, M) = K \left(\frac{\Delta M}{B_0} \right)^2, \quad (12)$$

$$K = \left(\frac{\pi dk_0(\omega_0)}{\lambda \cos \theta_R} \right)^2 \left(\frac{\Gamma_0^2}{4(\omega_0 - \omega)^2 + \Gamma_0^2} \right) \exp \left(\frac{-2.3ad}{\cos \theta_R} \right), \quad (13)$$

其中 $k_0(\omega_0) = \frac{B_0 f_0}{2n_0 \omega_0 \Gamma_0}$, 为吸收极大值处 ($\omega = \omega_0$) 的 $k(\omega)$ 值, 可取 $\lambda = 2\pi c / \omega_0$ 代入(4)式求得. 从(10)和(11)式可知, 在共振条件下, $\Delta n = 0$, 位相光栅对 η 的贡献为零; 在偏离共振的条件下, 位相光栅和振幅光栅都产生贡献.

2.4 M 态的布居密度

BR-PVA 薄膜在 DFWM 相干场中形成的光栅, 并非是严格的明暗条纹, 也就是说暗条纹区的光强不严格为零, 其原因是两束写入相干光不具有等强度 (E_1 和 E_3 ; 或 E_2 和 E_3); 另外, 对于被衍射的第三束光 (读出光束), 由于我们将 DFWM 场中的混合光栅分别进行处理, 因此它被近似视为不产生相干效应. 在反射光相中 E_1 为读出光, 在透射光栅中, E_2 为读出光. 这样, 在写入光和读出光的作用下, 在明暗条纹区皆可产生 M 态布居, 仅有的差异是 $[M]$ 布居数不同. 如果读出光相对于写入光被延迟作用到样品上, 那么对该读出光而言, 明暗条纹区中有不同的 M 态初始浓度条件 (称为初始浓度光栅). 基于这些考虑, 解 M 态的速率方程(14), 求出明暗条纹区内 M 态的相对布居数, 然后求得其差值.

$$\frac{dM(t)}{dt} = \sigma_1 \varphi_1 I' B(t) - M(t)/\tau - \sigma_2 \varphi_2 I' M(t), \quad (14)$$

其中 I' 为光子流密度, $I' = I/h\nu$, I 为光强度. $B(t)$ 和 $M(t)$ 分别为 t 时刻 BR_{570} 和 M 态的分子数密度. τ 为 M 态寿命, σ_1 和 σ_2 分别为 BR_{570} 和 M_{412} 在 514.5 nm 处的吸收截面. φ_1 和 φ_2 分别为 $\text{BR}_{570} \xrightarrow{h\nu} M_{412}$ 及其逆反应的光量子产率 ($\varphi_1 = \varphi_2 = 0.65$). B_0 表示样品在光照前 BR_{570} 的基态数密度, 则有

$$B(t) = B_0 - M(t). \quad (15)$$

利用(15)式, 解方程(14)得到非稳态解

$$M(t) = B_0 \left(\frac{\varphi I/I_s}{1 + \varphi I/I_s} \right) - \left[B_0 \left(\frac{\varphi I/I_s}{1 + \varphi I/I_s} \right) - M_0 \right] \exp \left[- (1 + \varphi I/I_s) \frac{t}{\tau} \right], \quad (16)$$

其中 $I_s = h\nu/(\sigma_1 + \sigma_2)\tau$, 为样品的饱和吸收参数, 在近似条件下^[10], $\sigma_2 \approx 0$, I_s 实为样品的饱和吸收强度. $I = I_1 + I_3 + 2(I_1 I_3)^{1/2} \cos \varphi$ (对于透射光栅), φ 为 E_1 和 E_3 到达样品上某点的位相差. 取极值条件, $\cos \varphi = \pm 1$.

在写入相干光产生的明暗条纹中, M 态的布居数分别为 $M_{wb}(t)$ 和 $M_{wd}(t)$ 皆可以从(16)式得到. 在二束光同时到达样品时, $M_0 = 0$, 则有

$$M_{wb}(t) = B_0 \left(\frac{\varphi I_a/I_s}{1 + \varphi I_a/I_s} \right) \left\{ 1 - \exp \left[- (1 + \varphi I_a/I_s) \frac{t}{\tau} \right] \right\}, \quad (17)$$

$$M_{wd}(t) = B_0 \left(\frac{\varphi I_b/I_s}{1 + \varphi I_b/I_s} \right) \left\{ 1 - \exp \left[- (1 + \varphi I_b/I_s) \frac{t}{\tau} \right] \right\}, \quad (18)$$

$$\text{其中} \quad I_a = I_1 + I_3 + 2\sqrt{I_1 I_3} = (1 + 2n + n^2)I_3, \quad I_1 = n^2 I_3 \quad (19)$$

$$I_b = I_1 + I_3 - 2\sqrt{I_1 I_3} = (1 - 2n + n^2)I_3, \quad I_1 = n^2 I_3 \quad (20)$$

读出光(I_2)加入后, 在明暗条纹中引起新的 M 态布居 $M_b(t)$ 和 $M_d(t)$, 设 $I_2 (= I_1)$ 相对于写入光被延迟 t_0 到达样品(t 从 t_0 开始), $M_0 \neq 0$, 则有

$$M_b(t) = B_0 \left(\frac{\varphi I_c/I_s}{1 + \varphi I_c/I_s} \right) - \left[B_0 \left(\frac{\varphi I_c/I_s}{1 + \varphi I_c/I_s} \right) - M_{0b}(t_0) \right] \times \exp \left[- (1 + \varphi I_c/I_s) \frac{t - t_0}{\tau} \right], \quad (21)$$

$$\text{其中} \quad M_{0b}(t_0) = M_{wb}(t = t_0), \quad I_c = I_a + I_2 \quad (22)$$

$$M_d(t) = B_0 \left(\frac{\varphi I_d/I_s}{1 + \varphi I_d/I_s} \right) - \left[B_0 \left(\frac{\varphi I_d/I_s}{1 + \varphi I_d/I_s} \right) - M_{0d}(t_0) \right] \times \exp \left[- (1 + \varphi I_d/I_s) \frac{t - t_0}{\tau} \right], \quad (23)$$

$$\text{其中} \quad M_{0d}(t_0) = M_{wd}(t = t_0), \quad I_d = I_b + I_2. \quad (24)$$

由(21)–(23)式得到透射光栅中明暗条纹间 M 态的相对布居数差:

$$\frac{\Delta M(t)}{B_0} = \frac{M_b(t)}{B_0} - \frac{M_d(t)}{B_0}. \quad (25)$$

2.5 DFWM 的衍射效率

根据前面的分析和高斯光束对于实测衍射效率的校正^[14], 则 DFWM 的衍射效率可

近似以透射光栅效率来表示:

$$R = 2\eta(\omega, M) \cdot (1 + 2 \cdot r_R^2/r_W^2), \quad (26)$$

其中 r_R 和 r_W 分别为读出和写入光束之半径. 在本实验条件下, 取 $r_R = r_W$. 由于 BR 分子进入非线性吸收的阈值很低, 因此我们对 $\eta(\omega, M)$ 中的常数因子 K 包括含平均吸收系数 α_a 的指数项和 $k_0(\omega_0)$ 项作校正. 利用非线性吸收系数 α_N 代替 α_a 和极大值 ($\omega = \omega_0$) 吸收系数, 并以 514.5 nm 处的小信号吸收系数 α 为起始值, 对非线性吸收 α_N 的表达式^[15] 进行迭代运算,

$$\alpha_N = \alpha [1 + 2Ie^{-\alpha_N d}/I_s] / [1 + 4Ie^{-\alpha_N d}/I_s]^{3/2}, \quad (27)$$

其中 I 取平均光强度, 即 $I = I_1 + I_2 + I_3$. 由 (4) 和 (27) 式, 以 $\lambda = \lambda_0$ 求得

$$k_0(\omega_0) = \frac{B_0 f_0}{2n_0 \omega_0 \Gamma_0} = \frac{\alpha_N \cdot 2.3 \cdot \lambda_0}{4\pi}. \quad (28)$$

3 数值计算

在计算衍射信号的时间特性和 R 随总光强 I 的变化时, 我们采用以 M 态的寿命 t , 光强度以饱和吸收强度 I_s , 取 $\theta_R = 10^\circ$, $\lambda = 514.5$ nm, $\lambda_0 = 570$ nm, $n_0 = 1.5$, $d = 0.01$ cm, $\alpha = 45$ cm⁻¹, $\varphi = 0.65$, $\Gamma_0 = 3809$ cm⁻¹, 其他参数在相应的图中给出. 图 3(a), (b) 示出了三束光束同时到达样品时衍射信号的时间行为. 图 4(a), (b) 示出了延迟后向泵浦光 E_2 到达样品时衍射信号的时间响应. 图 5 为 $I_1 = I_2$ 和不同 n 值的衍射信号相对总光强变化的饱和特性.

4 实验和测量

4.1 样品制备

按照 Chen 等^[16]发展的技术, 将定量的天然 BR 试剂(由复旦大学提供)和 PVA(分子量为 30000—70000, Sigma 产品)以一定配比分别在高纯水中(含缓冲剂, pH=7.5)制备成悬浮液和水溶液, 然后按一定比例混合并搅拌, 在得到均匀的乳浊液后, 在光学玻璃片上甩膜, 然后在洁净箱中缓慢干燥, 再在真空干燥器存放 24h. 膜厚约 100 μ m, 在 570 nm 处, 其光密度 OD=0.50.

4.2 实验装置

DFWM 的实验装置示于图 2, 利用 Ar⁺ 激光(514.5 nm)和标准化的三角型配置. E_1 和 E_2 为对泵浦光束, E_3 为信号光束, 其强度用中性减光板调整, θ 为 20° . 三束光到达样品的路径在激光的相干长度内达到匹配. 当将某一光束视为全息光栅的读出光束时, 其到达样品的时间延迟用联动快门来控制. 快门挡板的开启速度约 50 m/s, 两快门开启的最小时间间隔小于 10 ms, 共轭光经由二个准直小孔光阑, 投射到光电倍增管 R456 上, 经微电流放大器(Type RA 15T)设置在最快响应档测量, 计算机采集数据, 整个系统的响应时

间小于 1 ms.

4.3 测量

1. PC 光的响应特性 在三束光具有相同偏振方向的情况下, 通过快门 SH_5 控制总光束, 使三束光同时到达样品, 则 PC 波响应示于图 3(c). 用快门 SH_4 控制前向泵浦光 E_1 和信号光 E_3 , 用快门 SH_2 控制后向泵浦光 E_2 , SH_2 相对于 SH_4 迟打开, 观测 PC 光的上升沿. 前沿的过冲上升, 仅发生在 SH_2 相对 SH_4 或 SH_1 相对于 SH_2 和 SH_3 延迟到达样品的情况, 如图 4(c).

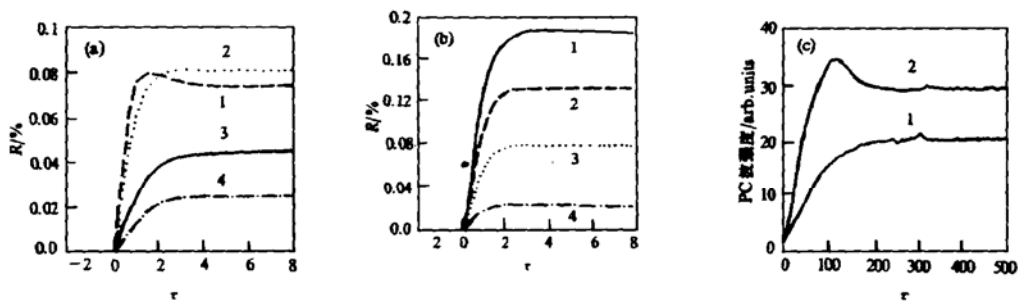


图 3 输入光同时到达 BR 时 PC 波的时间响应 ($I_1 = I_2$) (a) 理论曲线: $n=2$, 总光强 I 分别为 (1) $1.0 I_s$; (2) $0.5 I_s$; (3) $0.2 I_s$; (4) $0.1 I_s$. (b) 理论曲线: $I=0.5 I_s$, n 分别为: (1) 1.0 ; (2) 1.4 ; (3) 2.0 ; (4) 4.0 . (c) 实验曲线: $n=2$, (1) $I \approx 0.3 I_s$; (2) $I \approx 1.2 I_s$.

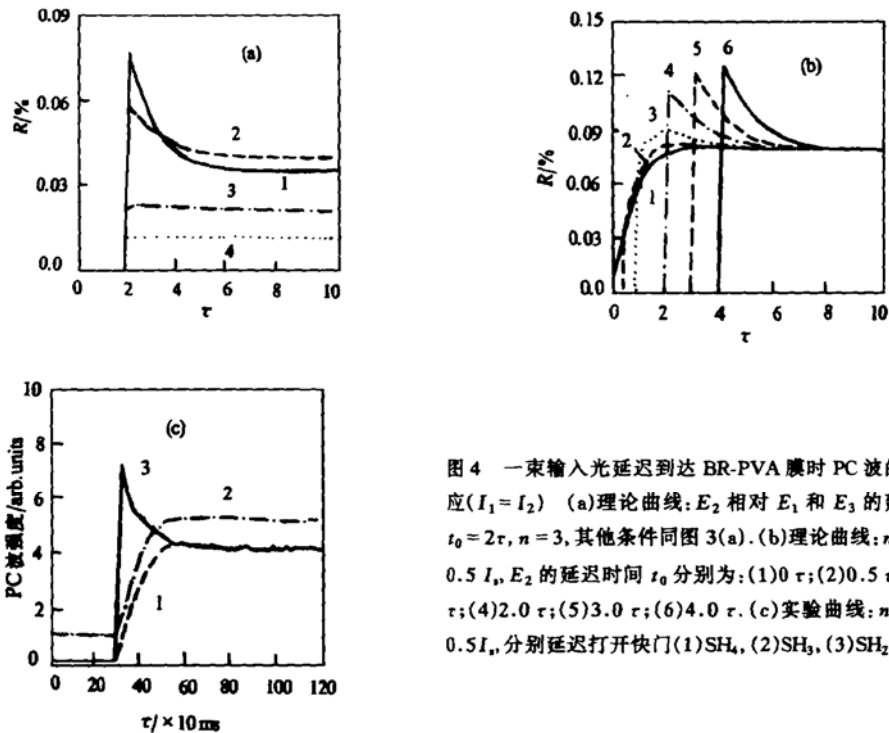


图 4 一束输入光延迟到达 BR-PVA 膜时 PC 波的过冲响应 ($I_1 = I_2$) (a) 理论曲线: E_2 相对 E_1 和 E_3 的延迟时间 $t_0 = 2\tau$, $n=3$, 其他条件同图 3(a). (b) 理论曲线: $n=2$, $I=0.5 I_s$, E_2 的延迟时间 t_0 分别为: (1) 0τ ; (2) 0.5τ ; (3) 1.0τ ; (4) 2.0τ ; (5) 3.0τ ; (6) 4.0τ . (c) 实验曲线: $n=2$, $I=0.5 I_s$, 分别延迟打开快门 (1) SH_4 , (2) SH_3 , (3) SH_2 .

2. PC 光的饱和特性 保持三束光的相对比不变, 改变总光强, 观测 PC 光的衍射强度(图 5(a)). BR-PVA 膜(同一样品)的饱和吸收特性示于图 5(b).

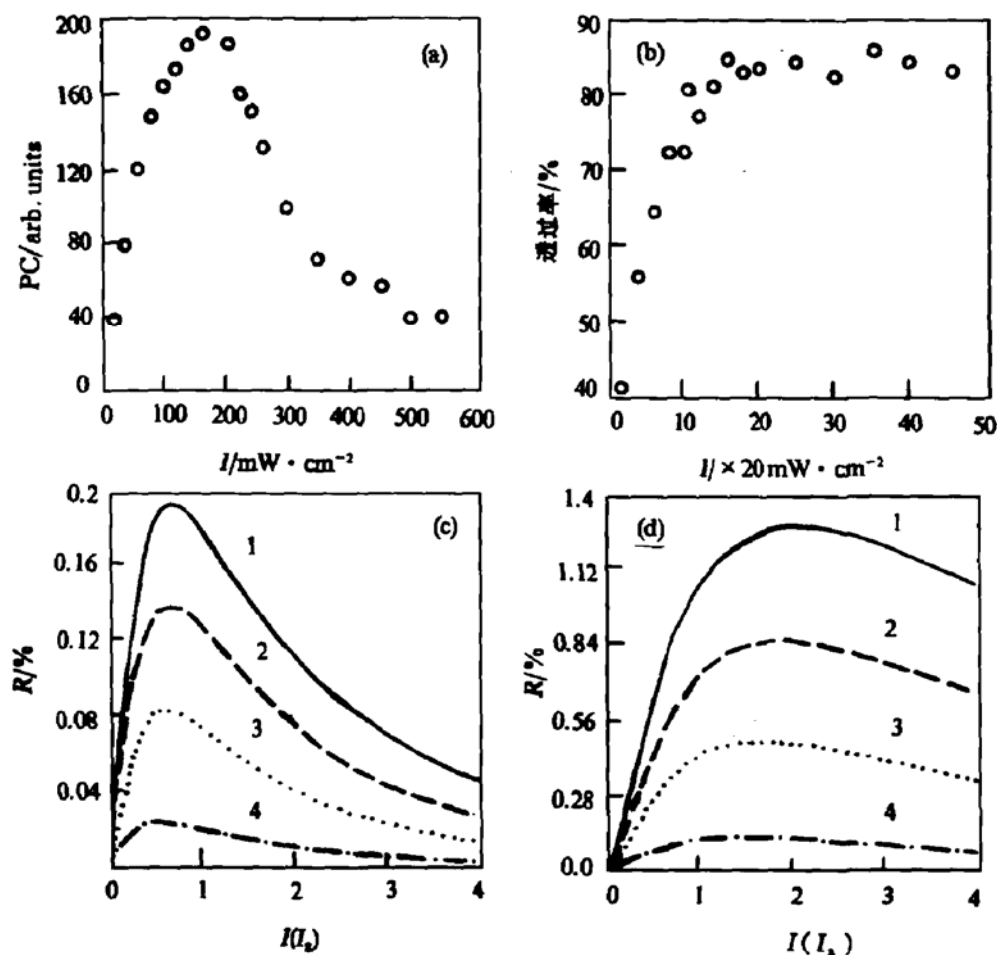


图5 BR-PVA 膜的饱和特性($\text{OD}_{570} = 0.50, I_1 = I_2$) (a)实验曲线: $n \approx 3$, PC 波强度 I_4 随总输入光强 I 的变化. (b)实验曲线: 非线性吸收($\lambda = 514.5 \text{ nm}$). (c)用 a_N 校正的 R - I 理论曲线, n 值分别为(1) 1.0; (2) 1.4; (3) 2.0; (4) 4.0. (d)未用 a_N 校正的 R - I 理论曲线, 其他条件同(c), I 以 I_0 为单位

3. 偏振态的测定 改变泵浦光和信号光的偏振方向, 彼此平行或垂直, 观测 PC 光的偏振态和强度, 结果示于图 6, PC 波的强度示于图下. 箭头表示在纸面内偏振, 圆点表示垂直纸面偏振, 全部测量是在等同实验条件下进行的.

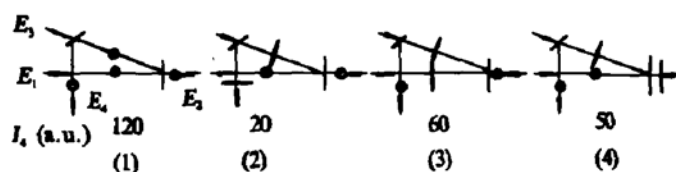


图6 配置 E_1, E_2 和 E_3 不同偏振态下的 PC 波 E_4 的偏振态和强度

5 结果与讨论

1. PC 波的响应 我们在理论处理中虽然作了一些近似,但所得之结果在规律性上完全与实验结果相符.在三束光同时到达样品时(图 3(a)),PC 信号逐渐上升反映了光栅的形成过程,然后能稳定在平衡值,形成了一个动态稳定光栅,这一过程实际上是光作用下 M 态粒子数布居的形成和平衡过程.上升或达到平衡的时间皆为 4τ 左右,仅与 M 态的寿命有关,上升的速度和平衡位置的高低与总光强 I 和 n 值有关.当 $I \geq I_s$ 时,上升最快,信号出现过冲(图 3(a)中曲线 1),与实验(图 3(c))一致,可解释为 M 态的生成速度超过了 M 态的衰减速度,但随着基态 BR_{570} 浓度降低和饱和吸收的产生,又缓解了 M 态的生成,同时 M 态以其固有寿命而衰减,使得过冲之后又下降达到其平衡位置,平衡值的大小,在一定范围内正比于写入和读出光强. I_1 与 I_3 的强度比(n^2)不同时,明显表现出平衡位置 R 值的差异(见图 3(b)).在以耦合波方程处理 DFWM 的 PC 衍射效率时,往往要求信号波 E_3 足够地弱,以免影响近似条件^[15],在利用衍射光栅方法处理时,可以发现, $I_3 \sim I_1$ (或 I_2) 时,才能形成质量较好的光栅, R 值可得到明显的改善.在 n 相同的条件下, I 的增强对 R 的贡献并非是线性的,当 $I = I_s$ 时,平衡位置的 R 值相对于 $I = 0.5 I_s$ 的 R 值,不但没有改善,反而明显下降,这与实验值所揭示的规律相一致(见表 1).显然,这与高光强下会导致擦除光栅(条纹反差降低)和读出光擦除光栅有关.与图 3(c)实验曲线对照,在干燥的 BR-PVA 膜中,取其 $\tau \approx 50$ ms 时,理论曲线的上升特性与实验一致.

图 4(c)示出了三束光不同时到达样品时,PC 波所呈现的过冲现象.曲线 3 的过冲现象可解释为在 E_2 到达样品前, E_1, E_3 已在样品内形成了光栅, E_2 作用到样品瞬间,主要是被衍射,随后重构光栅或擦除光栅,使光栅条纹间的反差降低,于是衍射光强度立刻下降,然后达到动态平衡.曲线 2 的零点被抬高是为了避免与曲线 3 相重叠,控制三条曲线起点的快门皆于光栅达到平衡后打开.曲线 1 和 2 呈现缓慢上升,如同三束光同时到达时 PC 所呈现的特性一样,这是由于先到达的光束 E_2 或 E_2 和 E_1 不形成对衍射有贡献的光栅.这些上升特性,可在理论上进行预测.图 4(a), (b)描述 E_2 光在不同滞后时间到达样品时,PC 波出现的理论过冲特性.在理论处理中,引进了初始浓度光栅,当 E_2 光在动态光栅(E_1, E_3)达到稳定后抵达样品时,则过冲达到最大值,而且总光强越强, n 值越接近于 1,则过冲峰也越高,远超过其平衡值.这一理论模型和方法能够相当好地描述此实验规律,并可近似预测 DFWM 混合光栅的衍射效率和时间响应行为.

2. PC 波的饱和行为 图 5(a)示出 PC 波强度在确定的 n 值条件下,随三束光总强度变化的测量结果,与图 5(b)测得的 BR-PVA 膜的饱和吸收行为相一致.图 5(c)是利用实验参数在不同 n 值下计算得到的理论曲线,图 5(d)是未对 α_s 作修正的理论曲线.取 $I_s \approx 250$ mW/cm²,图 5(c)的理论曲线与实验规律相当一致,而图 5(d)的峰值对 I_s 产生了较大的偏离,表明对 α_s 修正是必要的.对于 BR 分子,它的非线性阈值相当低,特别在干燥的固体膜中, M 态的寿命可以延长而降低饱和吸收阈值,图 5(d)的最佳 R 值对应的光强竟达到 I_s 的 2 倍是不符合实际的,而图 5(c)略小于 I_s 是由于采用的 α 较小($D \approx 0.5$)所致,与 Shigeki Miyayage^[17]的三能级和四能级体系的衍射极大的分布规律十分一致.

3. PC 波的偏振特性 我们的模型(至少对写入光而言)是以具有相同偏振态为前提的. 如果两束写入光互为垂直偏振时, 意味着不能产生相干光栅. 在图 6 给出的实验值中, 情况(1)的 PC 波强度几乎是(3)的二倍, 情况(3)和(4)几乎具有等值, 这种情况在文献[12]中有类似的报道. 这意味着(3)和(4)只形成单个(反射或透射)光栅, 同时也支持了我们的模型((26)式)假设. 在情况(2)中, PC 波仅有低的输出, 这一方面说明 E_1 和 E_2 的相干光栅对 PC 波的贡献确实很小, 另一方面, 由于 BR 同时具有偏振全息和强度全息的特性, 这一信号被归结为偏振全息^[12,14]. 因此并不能证明它产生于 E_1 和 E_2 的相干光栅. 然而不管怎样, 这一信号的存在, 表明我们的方法对于定量描述 BR-PVA 膜的偏振全息特性只具有粗略的近似性. 可是, 由于绝大部分非线性材料, 很少同时具有可比较的强度全息和偏振全息特性^[12], 因此 E_1 和 E_2 的相干光栅对于 PC 波的贡献可以忽略是具有普遍性的. 此外, 在 DFWM 中, PC 波的偏振态主要由被衍射束的偏振态所决定. 根据 BR-PVA 的偏振全息特性, 我们发现了具有光学逻辑: $C = A + B$ 和 $C = \overline{A \cdot B}$ 的功能, 本文不作详细报道.

6 结 论

1. 在 BR-PVA 薄膜中实现近共振 DFWM, 其 PC 波的特性可以用双态模型、全息光栅和粒子数速率方程来描述, 理论结果与实验结果相一致, 进一步阐明了该体系中 PC 波的时间响应规律, 光栅机制和饱和特性.

2. 引入初始浓度光栅, 揭示了 PC 波时间响应过冲现象的实质, 过冲后的衰减和平衡, 表明了读出光的擦除和重构光栅的混合效应, 上升速度正比于写入和读出光强度.

3. n 值描述了光栅的质量. 因此, 这一模型可以克服直接用耦合波方程来处理 DFWM 衍射特性的局限性, $n \simeq 1$ 时, 可得到最佳 R 值, n 值的选取不会明显影响饱和特性.

4. PC 波的偏振态主要由被衍射光束的偏振态所决定, 配置不同输入光之偏振态, 可实现光学逻辑功能. 偏振态的实验测定, 也支持了本理论模型的部分假设.

- [1] R. R. Birge, *Annu. Rev. phys. Chem.*, **41**(1990), 683.
- [2] R. R. Birge, *Biochim. Biophys. Acta*, **1016**(1990), 293.
- [3] A. Mathies Richard, *Annu. Rev. Biophys. Biochem.*, **20**(1991), 491.
- [4] Q. Wang Song, Chungping Zhang, Richard Gross and Robert Birge, *Optics Letts.*, **18**(1993), 775.
- [5] Norbet Hampp, Andress Popp, Christoph Brauchle and Dieter Oesterhelt, *J. Phys. Chem.*, **96**(1992), 4679.
- [6] Ofter Werner, Baruch Fischer, Aaron Lewis, Isaiah Nebenzahl, *Optics Letters*, **15**(1990), 1117.
- [7] Shuguang Wu, Chirstoph Brauchle and Mostafa A. El-Sayed, *Adv. Mater.*, **5**(1993), 938.
- [8] 刘颂豪、杜卫冲、章献民、李庆国, *光学学报*, **13**(1993), 649.
- [9] R. Thoma, N. Hampp, and C. Brachle, D. Oesterhelt, *Optics Letters*, **16**(1993), 651.
- [10] Q. Wang Song, Chungping Zhang, Robert Blumer, Richard B. Gross, Zhongping Chen, and Rober R. Birge, *Optics Letters*, **18**(1993), 13733.
- [11] E. Ya. Korchemakaya, M. S. Soskin and V. B. Taranenko, *Sov. J. Quantum Electron.*, **17**(1987), 450.
- [12] Yoshiko Okada, Ichirou Yamaguchi, Jun Otomo and Hiroyuki Sasabe, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **32**(1993), 3728.

- [13] H. Kogelnick, *Bell Syst. Tech. J.*, **43**(1969), 2909.
- [14] F. W. Deeg, J. Pinal, C. Brauchle and J. Voithlander, *J. Chem. Phys.*, **279**(1983), 1229.
- [15] Richard G. Caro and Malcolm C. Gower, *IEEE J. Quantum Electron.*, *QE.*, **18**(1982), 1376.
- [16] Zhongping Chen, Aaron Lewis, Hiroyuki Takei and Isaiah Nebenzahl, *Applied Optics*, **30**(1991), 5138.
- [17] Shigeki Miyana, Hiroaki Ohtatome, Kataunori kawano, and Hirofumi Fujiwara, *J. Opt. Soc. Am.*, **B10**(1993), 1069.

TEMPORARY RESPONSE OF PHASE CONJUGATION WAVE AND GRATING PROPERTIES IN BR-PVA FILM IN DFWM FIELD

TANG GUO-QING YUE ZHENG-SHAN ZHANG GUI-LAN CHEN WEN-JU

(*Institute of Modern Optics, Nankai University, Tianjin 300071*)

(Received 3 April 1995)

ABSTRACT

In this paper the theoretical and experimental studies on the properties of phase conjugate (PC) wave and the gratings formed as a result of degenerate four-wave mixing (DFWM) interference field of Ar^+ laser in bacteriorhodopsin-polyvinyl alcohol (BR-PVA) solid film are reported. The diffraction efficiency temporary response and saturation property of the PC wave are described by using a simplified double state model and the method of rate equation combined with a diffraction theory of holograph grating. The mechanism of forming grating in the film and the dependence of the properties mentioned above on polarization states, intensities are analysed. The time of arriving at the sample of three input beams and initial concentration of grating formed in the film are discussed. The theoretical results are in good agreement with the experimental observations.

PACC: 4265; 8750E