

07

© 1991 г.

НАСЫЩЕНИЕ ФОТООТКЛИКА ПРИ ГОЛОГРАФИЧЕСКОЙ ЗАПИСИ В БАКТЕРИОРОДОПСИНЕ

Ю. О. Барменков, Н. М. Кожевников

Экспериментально и теоретически рассмотрены особенности записи динамических фазовых голограмм в условиях насыщения поглощения полимерных пленок и водных суспензий, содержащих бактериородопсин (БР). Показано, что зависимость амплитуды фазовой решетки от интенсивностей световых пучков определяется в первую очередь механизмами релаксации фотовозбужденных молекул БР (линейная или квадратичная) и контрастом интерференционной картины. Кинетика формирования динамических голограмм в полимерных пленках, содержащих БР, зависит от начальных условий записи. В частности, предварительная темновая адаптация и одновременное включение интенсивных записывающих пучков приводит к существенному возрастанию амплитуды фазовой решетки на начальной стадии процесса записи и последующему ее уменьшению до стационарного значения.

Фоторефрактивные среды, содержащие бактериородопсин (ФСБР) [1], являются перспективными материалами для применения в динамической голографической интерферометрии [2, 3]. Нелинейный локальный фотоотклик ФСБР обусловлен различием дипольных моментов молекул БР, находящихся в исходном (транс) и фотовозбужденном (цис) состояниях. Ввиду того что изменение диэлектрической проницаемости среды пропорционально концентрации молекул БР в цис-состоянии, насыщение поглощения среды должно приводить к уменьшению стационарных амплитуд фазовых решеток, записываемых в ФСБР достаточно интенсивными световыми пучками [4]. В настоящей работе экспериментально и теоретически показано, что характер проявления эффектов насыщения фотоотклика при голографических процессах в различных ФСБР определяется механизмами релаксации возбуждения молекул и при определенных условиях позволяет реализовать высокие значения дифракционных эффективностей на начальной стадии формирования динамических голограмм.

Экспериментальное исследование голографической записи в ФСБР проводилось методом фазомодулированных пучков [5], заключающимся в изучении спектрального состава колебаний интенсивностей пучков на выходе из среды при высокочастотной ($\Omega \gg \tau^{-1}$, τ — время релаксации) гармонической модуляции взаимной разности фаз записывающих пучков. Как показано в [5], относительные амплитуды первых гармоник I_2/I_0 колебаний интенсивностей в рассматриваемом случае пропорциональны усредненной по длине взаимодействия пучков амплитуде записанной фазовой решетки. Схема двухлучевого интерферометра и методика проведения эксперимента описаны в [3, 4].

На рис. 1 приведены зависимости стационарных значений I_2/I_0 для полимерных пленок (сплошная кривая 1) и водных суспензий (сплошная кривая 2), содержащих БР. Начальный участок этих зависимостей является линейным и позволяет определить значения ненасыщенных фоторефрактивных коэффициентов β , характеризующих нелинейный фотоотклик среды [3^{-5}] — 0.05 мм²/мДж (полимерные пленки) и 0.015 мм²/мДж (водные суспензии). Поведение I_2/I_0 при больших I_0 обусловлено насыщением транс-цис-перехода молекул БР, а различный характер проявления этого насыщения в полимерных пленках и водных суспензиях, как будет показано ниже, можно объяснить различием

процессов рекомбинации фотовозбужденных молекул, на что, в частности, указывают экспериментально определенные зависимости времен релаксации τ от интенсивности I_0 (штриховые линии на рис. 1).

Кинетика формирования голографических решеток также зависит от агрегатного состояния ФСБР. В водных суспензиях, как правило, наблюдалось экспоненциальное увеличение амплитуды фазовой решетки к своему стационарному значению. В полимерных пленках, как показывают результаты эксперимента (рис. 2), кинетика голографической записи существенно зависит от начальных условий. Предварительная темновая адаптация пленок и одновременное включение интенсивных записывающих пучков приводит к достаточно резкому возрастанию амплитуды фазовой решетки на начальном этапе записи и последующему ее уменьшению до стационарного значения (сплошные кривые на рис. 2).

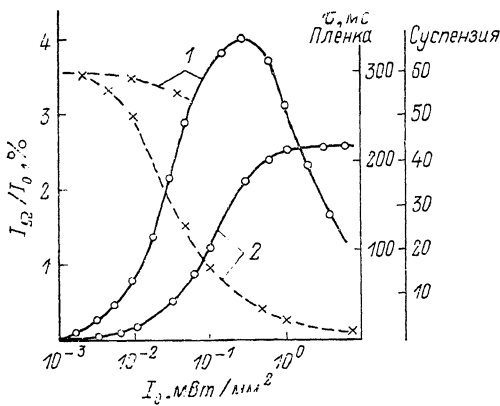


Рис. 1. Зависимости относительной амплитуды первой гармоники I_2/I_0 колебаний интенсивности выходного пучка (сплошные линии) и постоянной времени τ записи фазовой голограммы (штриховые линии) от интенсивности I_0 записывающих пучков для полимерных пленок (1) и водных суспензий (2), содержащих бактериородопсин.

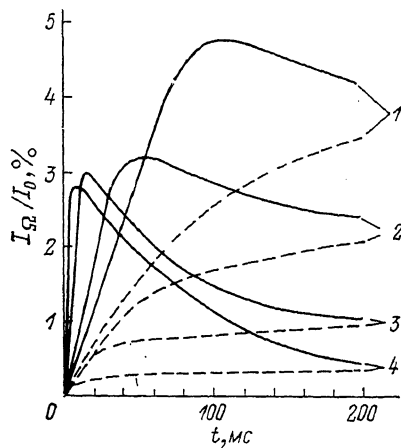


Рис. 2. Переходные процессы при записи фазовых голограмм в полимерных пленках, содержащих БР, в условиях предварительной темновой адаптации (сплошные линии) и однородной подсветки интенсивным световым пучком (штриховые линии).

$I_0 = 0.7$ (1), 8.6 (2), 14.2 (3), 33 мВт/мм² (4).

В то же время предварительное стирание голограммы одним из интенсивных пучков (однородная засветка) и последующее включение второго записывающего пучка обуславливают монотонный характер кинетики голографической записи (штриховые линии на рис. 2), правда, отличающийся от экспоненциального.

Переходя к теоретическому анализу отмеченных выше особенностей формирования голограмм в условиях насыщения ФСБР, отметим, что аналогичные вопросы для сильнонелинейных сред были недавно исследованы в [6], где приведены результаты численного интегрирования системы нелинейных дифференциальных уравнений, учитывающих «перекачку фазы» между записывающими пучками при формировании голограммы [7, 8]. В слабонелинейных ФСБР такая «перекачка фазы» становится несущественной, что позволяет получить аналитическое решение системы связанных уравнений, делающее анализ голографических процессов более простым и наглядным. Учитывая, что в этом приближении эффективность перекачки энергии между пучками пропорциональна мгновенной амплитуде фазовой решетки, которая в свою очередь определяется основной пространственной гармоникой распределения концентрации фотовозбужденных молекул БР, для интерпретации приведенных выше экспериментальных результатов ограничимся рассмотрением зависимости от времени концентрации молекул БР в цис-состоянии.

Запишем одномерное кинетическое уравнение для этой концентрации в случае линейной рекомбинации

$$\frac{\partial}{\partial t} N(x, t) = \frac{\sigma J(x)}{h\nu} (D - N(x, t)) - \frac{1}{\tau_0} N(x, t), \quad (1)$$

$$J(x) = J_0(1 + m \cos x), \quad (2)$$

где σ — сечение поглощения светового кванта молекулой БР, $D = \text{const}$ — исходная концентрация невозбужденных молекул, $\tau_0 = \text{const}$ — ненасыщенное время релаксации, $J(x)$ — распределение интенсивности света в интерференционной картине.

Для упрощения математических выкладок считаем вектор фазовой решетки $K = 2\pi/\Lambda$ (Λ — пространственный период) равным единице.

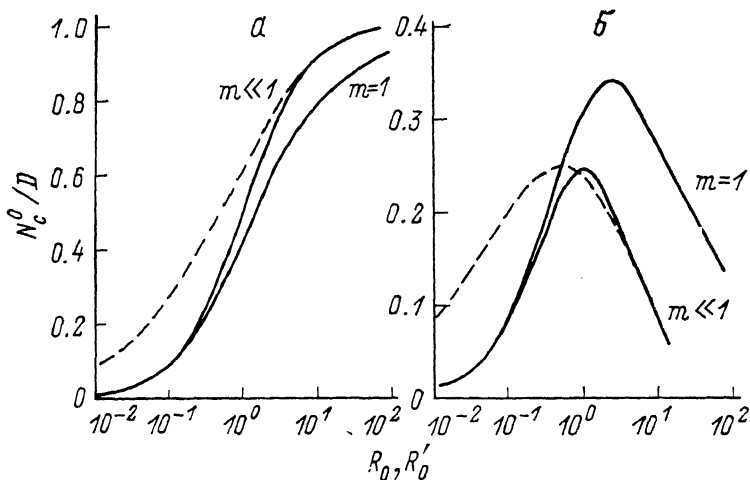


Рис. 3. Теоретические зависимости относительной постоянной составляющей N_c^0/D (а) и относительной амплитуды основной пространственной гармоники N_c^1/mD (б) стационарного распределения концентрации фотовозбужденных молекул БР от параметров насыщения $R_0 = J_0 \tau_0 / h\nu$ (сплошные линии) и $R_0^1 = J_0 \sigma / h\nu \gamma D$ (штриховые линии), соответствующих линейной и квадратичной рекомбинациям.

Решение уравнения (1) с начальным условием $N_0 = \text{const}$ при $t=0$ имеет вид

$$N(x, t) = N_c(x)(1 - \exp(-t/\tau_0)) + N_0 \exp(-t/\tau_0), \\ N_c(x) = DR/(1 + R), \quad \tau = \tau_0/(1 + R), \quad R = R_0(1 + m \cos x), \quad (3)$$

$R_0 = J_0/\mathcal{J}_\pi$, $\mathcal{J}_\pi = h\nu/\sigma\tau_0$ — интенсивность насыщения.

В стационарном состоянии ($t \rightarrow \infty$) постоянная составляющая N_c^0 и основная пространственная гармоника N_c^1 распределения концентрации $N_c(x)$ определяются выражениями

$$N_c^0 = D \left[1 - \frac{1}{\sqrt{(1 + R_0)^2 - m^2 R_0^2}} \right], \quad (4)$$

$$N_c^1 = \frac{2D}{mR_0} \left[\frac{1 + R_0}{\sqrt{(1 + R_0)^2 - m^2 R_0^2}} - 1 \right], \quad (5)$$

последнее из которых (5), как указывалось выше, определяет амплитуду запи- сываемой фазовой решетки. Графики зависимостей (4), (5), приведенные на рис. 3, а, б, показывают, что в отличие от хорошо известной монотонной зави- симости $N_c^0(R_0)$ амплитуда основной пространственной гармоники $N_c^1(R_0)$ имеет максимум, положение которого зависит от контраста m интерференцион- ной картины пучков. При малых m максимальное значение $N_c^1 = mD/4$ дости- гается при $R_0 = 1$, в то время как при $m=1$ максимуму $N_c^1 = 2D(\sqrt{2}-1)/(\sqrt{2}+1) = = 0.341 D$ соответствует значение $R_0 = \sqrt{2}+1$. При $R_0 \gg 1$ уменьшение N_c^1

аппроксимируется функциями $D/m\sqrt{R_0}$ и mD/R_0 , когда $R_0^2 \ll (1-m^2)^{-1}$ и $R_0^2 \gg (1-m^2)^{-1}$ соответственно.

Полученные теоретические зависимости качественно хорошо описывают экспериментальные результаты, полученные с полимерными пленками, содержащими БР (рис. 1, сплошная кривая 1). Для количественного сопоставления этих результатов необходимо учесть уменьшение интенсивности излучения при его распространении в глубь среды (вдоль оси z) $J_0(z) = J_0 \exp(-\alpha z)$, α — коэффициент поглощения ($\alpha \sim 10 \text{ см}^{-1}$ для полимерных пленок). В этом случае при $m \ll 1$ легко получается выражение для эффективного значения N_c^1 , определяющего самодифракцию пучков в слое толщиной l ,

$$N_c^1 = \frac{1}{l} \int_0^l N_c^1(z) dz = \frac{mDR_0}{al} \frac{\text{sh}(al)}{1 + 2R_0 \text{ch}(al) + R_0^2}. \quad (6)$$

С учетом поглощения в среде значение интенсивности насыщения в рассмотренных пленках составляет $J_n \sim 0.06 \text{ мВт/мм}^2$.

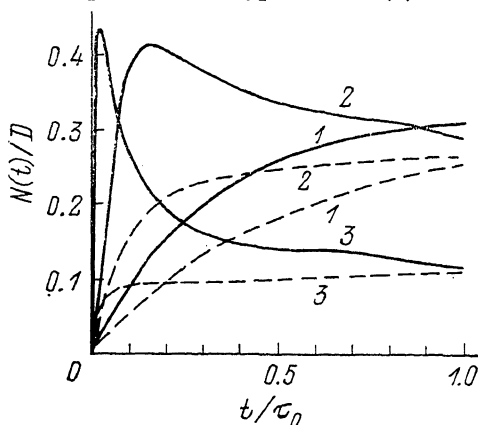
Отсутствие максимума зависимости I_s/I_0 от I_0 для водных суспензий БР можно объяснить, предположив, что рекомбинация фотовозбужденных молекул БР является квадратичной, т. е. второй член в правой части уравнения (1) имеет вид $\gamma N^2(x, t)$. Тогда в стационарном состоянии ($t \rightarrow \infty$)

$$N_c(x) = \frac{DR'}{2} [\sqrt{(4/R') + 1} - 1], \quad (7)$$

где $R' = J/J_n'$, $J_n' = h\nu\gamma D/\sigma$.

Рис. 4. Кинетика изменения относительной амплитуды основной пространственной гармоники распределения концентрации фотовозбужденных молекул БР в условиях предварительной темновой адаптации среды (сплошные линии) и предварительного насыщения среды интенсивной однородной подсветкой (штриховые линии).

$R_1 = 1$ (1), 10 (2), 100 (3).



При малых m ($m \ll 1$) зависимость $N_c^0(R_0')$ описывается формулой (7) с $R' = R_0' = J_0/J_n'$. График этой функции приведен на рис. 3, а штриховой линией. В этом же приближении ($m \ll 1$), считая, что постоянная времени τ определяется выражением $(\gamma N_c^0)^{-1}$ (квазилинейная рекомбинация), можно получить зависимость

$$N_c^1(R_0') = \frac{2mD[\sqrt{(4/R_0') + 1} - 1]}{[\sqrt{(4/R_0') + 1} + 1]^2}. \quad (8)$$

Максимум функции (8), показанной на рис. 3, б штриховой линией, соответствует $R_0' = 0.5$. Очевидно, $R_0' \gg R_0$, так что в рассматриваемом случае насыщение достигается при значительно больших интенсивностях световых пучков. Физически это объясняется значительным уменьшением времени релаксации при увеличении интенсивности засветки.

Для анализа кинетики формирования фазовых голограмм в полимерных пленках, содержащих БР, рассмотрим уравнение (3), решение которого существенно зависит от начальных условий записи. При $N_0 \sim D$ (предварительная засветка среды одним из записывающих пучков с интенсивностью, много большей J_n) графики зависимостей амплитуд основных пространственных гармоник $N^1(t)$ представляют собой монотонные кривые, приближающиеся к соответствующим значениям $N_c^1(R_0')$ (на рис. 4 эти кривые, полученные численным интегрированием уравнения (3), показаны штриховыми линиями). Одновременное включение ($N_0 = 0$) достаточно интенсивных пучков ($R_0 \gg 1$, $m \ll 1$) приводит

с быстрому возрастанию и последующему медленному спаду амплитуды $N^1(t)$ до соответствующего стационарного значения $N_c^1(R_0)$ (рис. 4, сплошные линии).

Для объяснения отмеченного влияния N_0 и $R_0 \gg 1$ на кинетику формирования $N^1(t)$ представим $\exp(-t/\tau)$ в виде

$$\exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) = \exp\left(-\left(1 + R_0\right)\frac{t}{\tau_0}\right) \left[I_0\left(\frac{mR_0t}{\tau_0}\right) - 2I_1\left(\frac{mR_0t}{\tau_0}\right) \cos x + \dots \right], \quad (9)$$

где I_0, I_1, \dots — модифицированные функции Бесселя.

Пусть $N_0=0, m=1$, тогда, подставив (9) в (3), с учетом (4), (5) имеем

$$N^1(t) = N_c^1 \left[1 - I_0\left(\frac{R_0t}{\tau_0}\right) \exp\left(-\left(1 + R_0\right)\frac{t}{\tau_0}\right) \right] + 2N_0^0 I_1\left(\frac{R_0t}{\tau_0}\right) \times \\ \times \exp\left(-\left(1 + R_0\right)\frac{t}{\tau_0}\right). \quad (10)$$

Первое слагаемое в (10) описывает монотонное возрастание $N^1(t) \rightarrow N_c^1$, в то время как второе слагаемое отражает показанный на рис. 4 «всплеск» $N^1(t)$ на начальной стадии процесса записи фазовой голограммы. Действительно, при $R_0 \gg 1$ $N_c^0 \sim D$, а функция $I_1(R_0t/\tau_0) \exp(-(1+R_0)t/\tau_0)$ имеет максимальное значение ~ 0.22 при $R_0t/\tau_0 \sim 1.5$ (корень уравнения $I_0(x) = (1+x)I_1(x)/x$). Если же $N_0 \sim D$, то второе слагаемое в (10) «компенсируется» вторым слагаемым в (3), а функция $N^1(t)$ становится монотонной (первое слагаемое в (10)). При $R_0 \gg 1$ и $N_0 \sim D$ характер функции $N^1(t)$ значительно отличается от $1 - \exp(-t/\tau_0)$: в частности, при $t \leq \tau_0/R_0$ происходит быстрое нарастание $N^1(t)$, которое затем сменяется относительно медленным приближением к стационарному значению N_c^1 ($I_0(x) \sim e^x/\sqrt{x}$ при $x \gg 1$). Полученные теоретические зависимости полностью соответствуют результатам, приведенным на рис. 2.

В заключение отметим, что проведенный теоретический анализ имеет общий характер и может быть использован для исследования голографических процессов при насыщении других сред со слабой керровской нелинейностью. Применительно к ФСБР результаты этого анализа, подтвержденные экспериментально, позволяют оптимизировать режим записи динамических голограмм с целью повышения их дифракционных эффективностей.

Список литературы

- [1] Всеволодов Н. Н. Биопигменты-фоторегистраторы: фотоматериал на бактериородопсине. М.: Наука, 1988. 224 с.
- [2] Барменков Ю. О., Зосимов В. В., Кожевников Н. М. и др. // Акуст. журн. 1987. Т. 33. № 3. С. 568—569.
- [3] Барменков Ю. О., Зосимов В. В., Кожевников Н. М. и др. // Опт. и спектр. 1988. Т. 64. Вып. 6. С. 1339—1343.
- [4] Абдулаев Н. Г., Барменков Ю. О., Зайцев С. Ю. и др. // ЖТФ. 1988. Т. 58. Вып. 4. С. 833—836.
- [5] Барменков Ю. О., Кожевников Н. М., Липовская М. Ю. // Опт. и спектр. 1988. Т. 64. Вып. 1. С. 225—228.
- [6] Капитанов А. В. // ЖТФ. 1989. Т. 59. Вып. 11. С. 169—173.
- [7] Грозный А. В., Дуловный А. М., Лещев А. А. и др. // Оптическая голография. Л.: Наука, 1979. С. 92—122.
- [8] Винецкий В. Л., Кухтарев Н. В., Соскин М. С. // Квантовая электрон. 1977. Т. 4. № 2. С. 420—425.

Ленинградский государственный технический университет

Поступило в Редакцию
20 сентября 1990 г.