

高信号背景比的持久性偏振光谱烧孔^{*}

赵有源 尹 榆 潘永乐 陈凌冰 李富铭

(复旦大学物理系, 三束材料改性国家实验室, 李政道物理研究室, 上海 200433)

摘 要 用偏振光谱方法对有机固体材料频域存贮材料进行单光子和双光子的选通光谱烧孔, 获得了高的信号背景(噪声)比(SBR)。文章介绍偏振光谱烧孔原理和实验上得到高信号背景比的方法和结果, 展示了偏振光谱烧孔技术在高分辨率光谱和频域信息存贮应用的良好前景。

关键词 偏振光谱, 光子选通光谱烧孔, 信号背景比。

1 引 言

从 1974 年发现持久性的固体光谱烧孔(PSHB)^[1]至今, 科学家们已在很多种材料中得到了持久性的光谱烧孔, 这些材料包括有机和无机的晶体材料, 聚合物薄膜和玻璃等。

对于持久性的固体光谱烧孔, 人们首先将它用来研究固体中迄今为止尚未明了的各种光物理过程, 如光致激发过程的动力学规律及反应的量子效率^[2], 各种消相机制及重要的光化学反应机制等。这方面的工作已显示了持久性的固体光谱烧孔技术作为一种固体高分辨率光谱手段的优势^[3]。

持久性的固体光谱烧孔技术另一种引人注目的应用是数据光存储^[4]。它是一种频率域光信息存储(FDOS), 它在原有传统的光盘二维空间存储上添加了一维频率域, 大大扩展了光信息存储密度而使得频率域光信息存储具有极大的发展前景。

固体持久光谱烧孔包括单光子烧孔和光子选通(双光子烧孔), 这方面经多年的研究已有很多报道^[5]。但许多结果并不十分令人满意, 主要是信号背景(噪声)比不高, 而在光信息存贮的读出中希望能有高的信号背景比, 因而固体持久光谱烧孔同气体光谱烧孔一样遇到了要提高信噪比的问题。有人将偏振光谱引入到固体的固体光谱烧孔中^[6], 作者曾用连续调谐激光作光源, 将偏振光谱烧孔技术用于有机单光子烧孔材料 THP/PMMA 和 TMP/PMMA 中^[7], 结果对于低吸收的情况, 用一般方法很难得到的烧孔, 而用偏振方法获得了很深的各向异性的光谱烧孔。本文在单光子偏振光谱烧孔的基础上, 进一步将偏振光谱烧孔用于光子选通光谱烧孔材料中。

2 原理简述

先了解一下单光子有机偏振光谱烧孔。烧孔过程可简化为三能级, 如图 1 所示的虚线左

* 国家自然科学基金资助项目。

收稿日期: 1995-11-03; 收到修改稿日期: 1996-05-02

用,但深度与选通光强度有关。

(3)式是假设样品池的窗口和样品的平行度很好、样品的应力效应很小的情况下成立,如果样品的平行度差或应力不均匀而引起较大的双折射,则此式需作修正。引入参量 ib 代表引入的双折射量和 ζ 表示由检偏器的消光不完全引起的量。此时(3)式为:

$$T(\omega) = I_p |e_p \cdot e_A + \zeta^{1/2} + ib + \frac{\omega}{c} \text{Im } H \cdot G - i \frac{\omega}{c} \text{Re } H \cdot G|^2 \quad (8)$$

为简略起见,定义 $e_p \cdot e_A = \cos(e_p, e_A) = \beta$ 。若仅考虑其中吸收的变化引起的信号与光背景的比值,则近似得:

$$SBR = \frac{(\omega^2/c^2) G^2 |H|^2}{\beta^2 + \zeta - b^2} \quad (9)$$

对于单光子烧孔材料,样品是厚度均匀的有机薄膜,如 THP/PMMA 样品类似塑料薄片,片厚约 0.5 mm,应力效应很小, b 可以忽略。另外偏振器的消光系数 ζ 也是很小的量,一般可达到 $10^{-3} \sim 10^{-4}$,所以对单光子偏振光谱烧孔,其最大的信号背景比应对应 β 接近于零的量,即探测光的起偏器与检偏器相互垂直时 $e_p \perp e_A$,得到的信号背景比最大。

对于选通光子烧孔材料,样品制备在玻璃基板上,样品厚度往往不均匀,且保存时间增长,样品应力效应有所增强,引起双折射率效应,因而 b 不可忽略,从(9)式可看出,当 $\beta^2 = b^2$ 时,可得最大的信号背景比,所以此时检偏器相对偏振光偏振方向成某一角度最好。

3 实验结果及分析

实验装置如图 2 所示,所测样品放在液氦杜瓦瓶内,温度为 4K。Ar⁺ 激光泵浦连续可调谐染料激光器(CR-599)用于烧孔和探测,波长落在 Rb B 染料波长范围内,染料激光通过 $\lambda/2$ 波片和格兰棱镜 P₁ 产生线偏振烧孔光 I_b ,偏振方向 e_b ,一部分被分束后经衰减和聚焦通过另一格兰棱镜 P₂ 后作为探测光 I_p ,偏振方向 e_p ,P₃ 是作为偏振检测用的格兰棱镜,偏振方向 e_A 。另外 Ar⁺ 激光束的一部分通过 P₄ 偏振作为选通光 I_g 。实验中改变 P₂、P₃、P₄ 相对于烧孔光的偏振方向 P₁ 的角度,可测出不同的探测信号背景比。

在单光子烧孔中不存在选通光,仅用 P₁、P₂、P₃。在烧孔材料 THP/PMMA 的烧孔实验

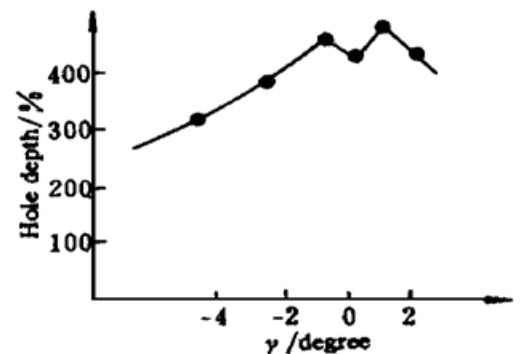
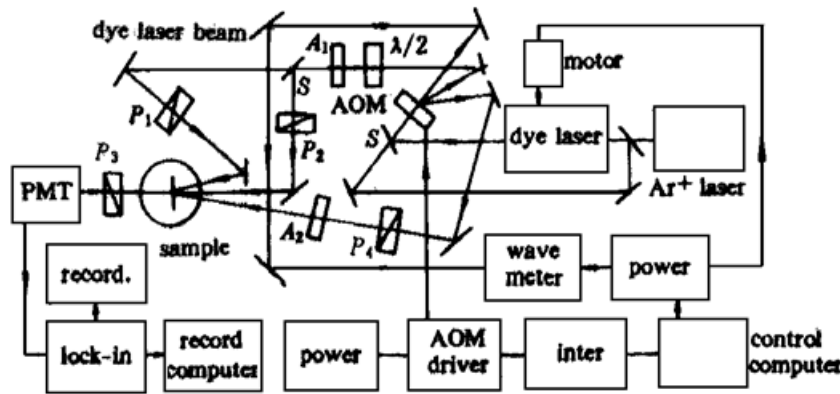


Fig. 2 Experimental apparatus for photon-gated persistent spectral hole-burning using polarization spectroscopy

Fig. 3 Modulation of hole depth by γ . The sample is THP/PMMA (8.06×10^{-8} mol/g) with burning time 20 s. Data have been normalized by probing time

中, 得到 P_2 、 P_3 相对 P_1 烧孔光偏振方向各呈 45 度角时(即 P_2 和 P_3 接近垂直约 89 度时), 孔深-透射光信号峰值高度与背景之比值约 400%, 而偏离这个角度(89 度)越大, 其信号背景比越小, 直至信号淹没在背景中。参看图 3, γ 表示 P_3 偏离垂直于 P_2 的角度。在单光子实验中可以看出, 对于吸收比较小难以烧孔的材料, 若用偏振光谱烧孔探测方法, 将大大优于普通光烧孔探测方法, 它可将普通烧孔方法难以检测出的孔深测出来^[7]。正如上面理论分析说明, 由于单光子材料的均匀性也, 应力效应小, 这时 b 值很小, 信号背景比主要是 $(\omega^2/c^2)G^2|H|^2(\beta^2 + \zeta)$, 因 ζ 很小, 故在 β 相当于 P_2 垂直 P_3 时其值最小, 得到的信号背景比最高。

在选通光谱烧孔实验中所用的烧孔材料是 ZnTBP/CA/PhR, 如上所述, 有时应力引起的双折射效应不能忽略, 当选通光和烧孔光的偏振方向保持不变, 改变 P_2 和 P_3 的不同方向, 这时不是 P_2 和 P_3 接近 90 度时的信号背景比最高。图 4 是在非均匀加宽吸收线的短波部分的 624.0 nm 波长位置烧孔的结果。选通光与烧孔光偏振方向一致, 烧孔光对探测光和检偏器各呈 45 度, 而 P_2 垂直 P_3 , 从图中(a) 曲线看出, 信号背景比约 15%, 图中(b) 曲线是对应 P_1 、 P_2 平行 P_3 的烧孔曲线, 如果是单光子烧孔的情形, 这时信号背景比是很差的, 但现在看到信号背景比值反而增大, 达到 43%; 这是因为不仅这时对应的 G 值最大, 而更主要的是(9) 式中的 b^2 不可忽略, 即 P_2 和 P_3 并非垂直是最好, 此时它们之间存在一个最佳角度使得它的余弦平方值 β^2 接近于 b^2 。现在因为 $\beta^2 = 1$ 的值比 $\beta^2 = 0$ 的值更接近 b^2 , 所以 P_2 平行 P_3 的烧孔曲线(b) 比 P_2 垂直 P_3 的烧孔曲线(a) 具有更大的信号背景比。需要指出的是曲线(a) 中非常有规律的随波长的起伏, 是平行度很好的格兰棱镜——类似标准具对光波的干涉效应引起的, 从曲线起伏的个数可清晰地显示出波长改变的数值及孔宽。

在工艺还未趋于成熟时, 各样品的应力效应可能会不一样, b 值有一个范围。当 P_1 的方向不变时, 根据(9) 式, 在 P_2 平行 P_3 时(即 $\beta^2 = 1$) 和 P_2 垂直 P_3 (即 $\beta^2 = 0$) 时, 它们对应的 G 不同, 在实验中可分别测出这两种情况的信号背景比, 在消光系数 ζ 相对可忽略时, 根据此式可求出 b^2 的大致值。在不同波长的多次测量表明, 这种材料 b^2 值约在 0.45~ 0.72 之间, 对应(P_2 、 P_3) 的角度约 $46^\circ \sim 30^\circ$ 之间, 这也说明了为什么当 P_2 平行 P_3 时, 得到的信号背景比 SBR 要大于 P_2 垂直 P_3 时的值, 如图 4 所示。

当 P_2 和 P_3 的交角约 $\pi/4$, 而 P_1 和 P_2 设定平行, 这时的 G 值介于上面两种情形之间, 但

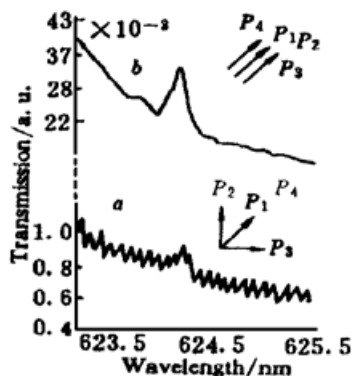


Fig. 4 Hole-burning in ZnTBP/CA/PhR with different angles. The burning time is 200 s at the wavelength 624.2 nm. Arrows of P_1 , P_2 , P_3 and P_4 represent polarization directions of burning, probing, analyzing and gating, respectively

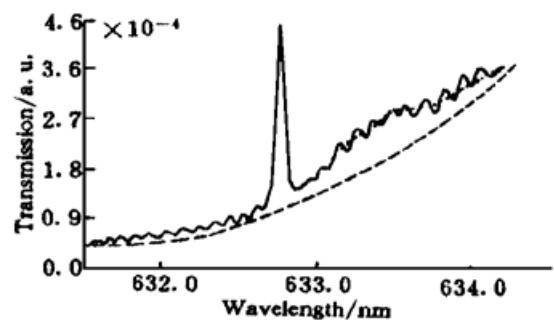


Fig. 5 A zero phonon hole and its sideband hole of the sample ZnTBP/PA/PhR with burning time 5 s using polarization spectroscopy. The angle of P_2 to P_3 is about $\pi/4$ and P_2 parallel with P_1 and P_4

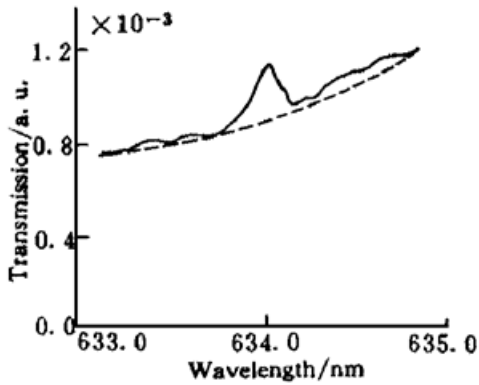


Fig. 6 A zero phonon hole and its sideband hole of the sample ZNTBP/PA/PhR with burning time 80 s by the non-polarized light hole burning

此时的 β^2 值更接近于 b^2 值, 信号背景比就相对比较高。图 5 就是这种情况下的测量结果, 烧孔波长为 632.8 nm, 烧孔光功率和选通光功率分别约 1 mW/cm^2 和 2 mW/cm^2 , 烧孔时间相对很短(5 s), 它的信号背景比达到了 283%, 另外它的背景噪声也很小, 波长调谐时由于平行的分析片引起干涉条纹起伏也显示清楚。图中实线表示未烧孔时的背景。在峰旁边的长波部分, 可清楚看出一个较宽的声子伴孔, 其中心与零声子线相差 0.6 nm。

图 6 是同样材料用非偏振光谱烧孔方法, 在波长 634.0 nm 位置进行选通光谱烧孔, 其烧孔光功率和选通光功率分别是 1.0 mW/cm^2 、 2.5 mW/cm^2 , 烧孔时间 80 s, 烧出的孔相对也是清晰的, 但其孔深与背景比 $SBR = 27.2\%$, 由此比较看出, 用偏振光谱烧孔方法比普通的光谱烧孔方法, 其信号背景比提高了一个量级。用偏振光谱方法, 若使 P_2 、 P_3 之间的交角放在最佳角度, 其信号背景比还会有很大的提高。以上的烧孔也都是持久性烧孔, 在低温下可长期保存。

在以前的工作中^[8], 曾分析偏振光谱烧孔的极化成孔过程中, 孔深与烧孔功率和烧孔时间 t 的平方值成正比, 因而孔的形成是极快的, 对 THP/PMMA 材料烧孔的动力学表明, 偏振光谱成孔要比非偏振光谱成孔快很多, 前者在 1 s 内可成孔, 后者要近百秒。在选通光谱烧孔过程中, 发现也有同样的情况。如图 5 用偏振光谱烧孔时间为 5 s(其实已足够长), 在基本同样的波长位置, 图 6 的非偏振光谱烧孔时间为 100 s, 若它用 5 s 的时间就很难看出孔了(保持功率同偏振光谱烧孔一样)。

选通光的偏振方向与烧孔光的偏振方向之相交角度的不同对烧孔结果有何影响呢? 在理论部分的分析中认为它们平行时最好, 实验的结果确也是平行最好, 但其它角度也有烧孔效应, 即使 P_1 和 P_4 垂直时也有。这样, 初步分析认为其原因有: 1) 烧孔光本身也有双光子效应, 即烧孔光也存在选通效应会形成孔; 2) 说明不仅存在 $S_1 \rightarrow T_1$ 的无辐射过程, 可能存在 $S_1 \rightarrow T_2$ 等无辐射过程, T_2 和 S_1 的电子结构不一样, 因而偏振状态也发生变化; 3) $S_1 \rightarrow T_1$ 无辐射弛豫, 在 T_1 中电子会和固体基质分子相互作用改变其状态, 也会产生消偏振作用。因此以上的过程较为复杂, 这有待于进一步实验和研究分析。

结 论 偏振光谱用于单光子烧孔和选通光谱烧孔中, 都大大提高了信号背景比, 而信号背景比的提高对于光谱信息存储的应用是十分重要的。在光子选通偏振光谱烧孔中, 选择适当的探测光的偏振方向和检偏器方向的相交角度是重要的, 最佳的角度下可获得最大的信号背景比, 即条件为 $\beta^2 = b^2$ 。

参 考 文 献

- [1] B. M. Kharlamov, R. I. Personov, L. A. Bykovskaya, Stable "Gap" in absorption spectra of solid solution of organic molecules by laser irradiation. *Opt. Commun.*, 1974, 12(2): 191~193

- [2] W. E. Moerner, A. R. Chraplyvy, A. J. Sievers *et al.*, Persistent nonphotochemical spectral hole dynamics for an infrared vibrational mode in alkali halide crystals. *Phys. Rev.*, 1983, **28**(12) : 7244~7259
- [3] R. I. Personov, E. I. Al' Shits, L. A. Bykovskaya, The effect of fine structure appearance in laser-excited fluorescence spectra of organic compounds in solid solutions. *Opt. Commun.*, 1972, **6**(2) : 169~173
- [4] R. AO, S. Jahn, L. Kummerl. R. Weiner *et al.*, Spatial resolution and data addressing of frequency domain optical storage materials in the ear IR regime. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 1992, **31**(2B) : 693~ 698
- [5] R. M. Macfarlane, J. -C. Vial, Photogated spectral hole burning in $\text{LiGa}_5\text{O}_8 \cdot \text{Co}^{2+}$. *Phys. Rev. (B)*, 1986, **34**(1) : 1~ 5
- [6] Bernhard Dick, High-contrast polarization spectroscopy of photochemically holes in amorphous solids: Potential for fast optical storage. *Chem. Phys. Lett.*, 1988, **143**(2) : 186~ 192
- [7] Lu Xiao, Zhao You-yuan, Chen Lingbing *et al.*, Anisotropic spectral holes in organic PHB materials. *Acta, Physica Sinica*, 1994, **3**(2) : 131~ 140
- [8] 赵有源, 罗 晓, 陈凌冰等, 频域存储偏振极化成孔动力学的研究. *中国激光*, 1994, **21**(7) : 593~598

Persistent Polarized Spectral Hole-Burning with High Signal-to-Background Ratio

Zhao Youyuan Yin Yu Pan Yongle Chen Lingbing Li Fuming

(Department of Physics, State Key Joint Laboratory for Material Modification by Laser Ion&Electron Beams, T. D. Lee Physics Laboratory, Fudan University, Shanghai 200433)

(Received 3 November 1995; revised 2 May 1996)

Abstract A high signal to background ratio in the persistent single photon and photogated spectral hole-burning materials using polarization spectroscopy was obtained. The polarization spectral hole-burning mechanism and high SBR method in experiments are reported. It shows that the polarization spectral hole-burning technique has widely prospects for the application in frequency-domain optical storage and high resolution spectroscopy in solids.

Key words polarization spectroscopy, photon-gated spectral hole-burning, signal-to-background ratio.