

УДК 535.2

СВЕРХБЫСТРАЯ ОПТИЧЕСКАЯ ДЕФАЗИРОВКА В ПРИМЕСНОМ ПОЛИМЕТИЛМЕТАКРИЛАТЕ: ИССЛЕДОВАНИЯ МЕТОДОМ НЕКОГЕРЕНТНОГО ФОТОННОГО ЭХА С ФЕМТОСЕКУНДНЫМ ВРЕМЕННЫМ РАЗРЕШЕНИЕМ

*К.Р. Каримуллин, Ю.Г. Вайнер, И.Ю. Ерёмчев,
А.В. Наумов, В.В. Самарцев*

Аннотация

Описан уникальный экспериментальный комплекс на основе широкополосного лазера на красителе, реализующий метод некогерентного фотонного эха. Комплекс позволяет исследовать сверхбыстрые процессы оптической дефазировки в конденсированных средах с временным разрешением вплоть до 20–30 фс. Характерными положительными особенностями развитой методики являются: а) отсутствие необходимости в использовании фемтосекундного лазера, б) «мягкий» режим освещения образца, когда вместо мощных световых импульсов фемтосекундной длительности исследуемый объем возбуждается существенно менее мощными импульсами света наносекундной длительности. Представлены результаты исследований процессов сверхбыстрой фазовой релаксации в аморфном полиметилметакрилате, легированном молекулами красителя rhodamine-101. Исследования выполнялись при комнатной температуре, методом четырехволнового смешения.

Ключевые слова: фотонное эхо, некогерентное эхо, широкополосный лазер, оптическая дефазировка, фемтосекундная релаксация, четырехволновое смешение, аморфная среда.

Введение

Понятия «однородная ширина» и «неоднородная ширина» спектральной линии широко используются при описании спектра излучения ансамбля излучающих центров. В случае разреженных газов или высокоупорядоченных примесных кристаллов основные вопросы, касающиеся этих понятий и их связи с динамикой среды, а также вопросы экспериментального определения параметров однородного или неоднородного уширений достаточно разработаны. Ситуация существенно усложняется в случае сред, неупорядоченных по своей внутренней структуре. К таким средам относятся жидкости, аморфные среды, включая стекла и полимеры, не полностью упорядоченные кристаллические структуры и кристаллы с большим количеством дефектов, биологические среды, кластеры и др. При изучении перечисленных неупорядоченных сред остро встает вопрос о том, как в таких случаях экспериментально определять параметры однородного и неоднородного уширения (в дальнейшем мы будем рассматривать только оптические спектры примесных хромофорных молекул). Ввиду большей сложности наблюдаемых в таких случаях явлений даже вопрос об определении понятий «однородная ширина» и «неоднородная ширина» в аморфных средах потребовал в свое время более тщательного рассмотрения. Не вдаваясь во все детали этого вопроса, отметим, что к настоящему времени под понятием «однородная ширина» спектральной линии в неупорядоченных примесных конденсированных средах подразумевают ширину, определяемую

на основе мысленного или реального эксперимента по двухимпульсному фотонному эху (ФЭ). Согласно этому определению, под однородной шириной следует понимать ширину, равную обратному времени оптической дефазировки, $\Gamma_{\text{одн}} = (2\pi T_2)^{-1}$, где $\Gamma_{\text{одн}}$ – однородная ширина, а T_2 – время оптической дефазировки, измеренное методом двухимпульсного ФЭ, длительность импульсов которого меньше времени T_2 . Введенное таким образом понятие однородной ширины спектральной линии существенно облегчило задачу разделения вкладов однородного и неоднородного уширений в случае изучения примесных конденсированных сред и сделало метод ФЭ одним из основных инструментов в изучении процессов формирования спектров в примесных конденсированных системах.

1. Фотонное эхо и его применение для исследования вещества

Оптическое ФЭ [1, 2] является типичным примером сигнала четырехволнового смещения, формирующегося в условиях резонансной примесной среды (прозрачной среды, в которую внедрены примесные центры), когда эта среда возбуждается короткими лазерными импульсами, задержанными относительно друг друга. В общем случае трехимпульсного фотонного эха «смешиваются» (то есть взаимодействуют со средой) фотоны каждого из трех возбуждающих импульсов. В результате этого взаимодействия в резонансной среде «рождается» четвертый фотон, который собственно и формирует сигнал ФЭ. Название «фотонное эхо» обязано задержке сигналов ФЭ по отношению к возбуждающим импульсам света. Однако на этом аналогия со звуковым эхом заканчивается. В случае двухимпульсного эха (иногда называемого первичным) два из трех возбуждающих импульсов полностью совпадают, а третий (называемый в этом случае вторым) задерживается на некоторое время – время задержки. Если между всеми тремя импульсами имеется задержка, такое эхо называют стимулированным. Здесь время между первым и вторым импульсами (τ_{12}) принято называть временем задержки, а время между вторым и третьим импульсами (τ_{23}) получило специальное название – время ожидания.

Оптическое ФЭ широко используется для изучения процессов релаксации в конденсированных средах. Поскольку характерные времена таких процессов обычно весьма малы, возникает проблема разделения возбуждающих и сигнальных импульсов. При изучении процессов, протекающих на временах короче наносекунд, когда использование методов временного разрешения становится проблематичным, эта задача решается путем пространственного разделения возбуждающих импульсов и сигналов ФЭ. Такая процедура возможна потому, что в случаях, когда возбуждающие импульсы направлены на образец под некоторым углом, сигналы ФЭ распространяются по отличному от них направлению, которое определяется условиями фазового синхронизма. Помещая на пути световых пучков соответствующие экраны, возбуждающие импульсы и сигналы эха можно легко разделить. В экспериментах измеряется зависимость интенсивности сигналов ФЭ от времени задержки между возбуждающими импульсами. Полученная зависимость называется кривой спада. Анализ ее формы дает информацию об изучаемых процессах релаксации. В случае трехимпульсного стимулированного ФЭ исследуется также зависимость сигналов от времени ожидания. Это позволяет получить дополнительную информацию о среде. В частности, таким образом получают информацию о временных параметрах спектральной диффузии.

Метод ФЭ привлекателен для исследователей возможностью непосредственного измерения времени оптической дефазировки T_2 (называемого также временем поперечной релаксации) и времени жизни возбужденного состояния T_1 (называемого временем продольной релаксации). Эти два времени характеризуют процесс

однородного уширения спектров в примесной системе при данной температуре: $\Gamma_{\text{одн}}(T) = (2\pi T_2(T))^{-1} = (2\pi T_1)^{-1} + (\pi T_2^*(T))^{-1}$, где время T_2^* определяется быстрыми динамическими процессами в среде и называется временем чистой фазовой релаксации. Кроме того, как уже упоминалось, ФЭ позволяет исследовать процессы спектральной диффузии. Согласно современному пониманию, к процессам спектральной диффузии относят процессы, приводящие к наблюдаемому уширению спектральной линии, дополнительному к однородному. На уровне отдельных элементарных излучателей это всевозможные скачки и дрейфы частоты их излучения, вызываемые взаимодействием излучателей с динамическим окружением. Важно отметить, что к процессам спектральной диффузии относятся лишь те процессы, которые вызывают такие временные изменения в спектре, которые могут быть, хотя бы, в принципе, экспериментально наблюдаемы. Это процессы, характерные скорости которых больше времени T_2 . Возможность экспериментального наблюдения временного хода процессов спектральной диффузии является принципиальным отличием этих процессов от процессов однородного уширения, которые не могут приводить к какому-либо иному эффекту, помимо однородного уширения при любом мысленном эксперименте (см., например, [3, 4] и ссылки в них).

Согласно простой модели процессов фазовой релаксации в резонансной среде, развитой еще Блохом при рассмотрении спинового резонанса, интенсивность сигналов двухимпульсного (2ФЭ) и трехимпульсного (3ФЭ) фотонного эха, пропорциональна следующим релаксационным множителям:

$$I_{2\text{ФЭ}} \propto \exp(-4\tau_{12}/T_2) \quad (1)$$

$$I_{3\text{ФЭ}} \propto \exp(-4\tau_{12}/T_2) \exp(-2\tau_{23}/T_1) \quad (2)$$

где τ_{12} – уже упоминавшееся время задержки между первым и вторым возбуждающими импульсами, а τ_{23} – время ожидания. Исследуя кривые спада 2ФЭ получают значение времени T_2 в исследуемых образцах. Аналогично, из зависимости кривой спада сигнала 3ФЭ можно определить время жизни возбужденного состояния T_1 . Как показывают эксперименты, уравнения (1) и (2) хорошо выполняются в случае высокоупорядоченных примесных кристаллов. В случае неупорядоченных сред величина T_2 сложным образом зависит от времени τ_{23} . Измеряя эту зависимость методом 3ФЭ, можно получать информацию о спектральной диффузии в изучаемой системе.

В данной статье рассматривается модификация метода ФЭ, а именно некогерентное фотонное эхо (НФЭ) [5–7], и применение его для исследования внутренней динамики аморфных примесных сред. Методика некогерентной фотонной эхоспектроскопии позволила исследовать релаксационные процессы в неупорядоченных средах в фемтосекундном диапазоне длительностей, используя стандартную экспериментальную технику когерентной спектроскопии (см. например, [8–10]). Отметим, что эксперименты по исследованию динамики неупорядоченных сред являются весьма актуальными и практически значимыми на сегодняшний день. Объектами исследования все чаще становятся разнообразные полимеры, широкий круг органических стекол, аморфные полупроводниковые структуры и структуры, а также разнообразные биологические среды и структуры, изучение и использование которых является одним из важных направлений современной науки и техники. К неупорядоченным органическим средам относится также большинство нанообъектов и наноструктур органической природы, интерес к которым в последнее время резко возрос, так как они являются одними из основных элементов бурно развивающихся в наше время нанотехнологий. Неупорядоченные органические среды являются перспективными объектами для создания новых материалов и приборов с необычными свойствами. Так, например, в настоящее время ведутся интенсивные

разработки в области молекулярной микроэлектроники на основе органических материалов.

Широкое применение на практике и необходимость в создании новых материалов и структур на основе неупорядоченных органических веществ делает актуальным глубокое изучение их фундаментальных свойств. Большинство из этих свойств определяется внутренней динамикой вещества, которая может быть исследована методом ФЭ. Одной из методик некогерентного ФЭ является исследование сигналов 2ФЭ и 3ФЭ [11, 12]. Временной интервал между максимумами сигналов самодифракции («левого» и «правого» эха), исследуемых в данном методе, определяется временем оптической дефазировки в образце. Таким образом, измеряя зависимость интенсивности эхо-сигналов от временного интервала между импульсами, можно оценить время фазовой релаксации. Метод НФЭ открывает возможности для подобных исследований с использованием удобной, недорогой и вместе с тем весьма эффективной и чувствительной экспериментальной техники. Дополнительным преимуществом некогерентного метода является реализация «мягкого» режима возбуждения исследуемых образцов. Разработанная экспериментальная методика позволяет измерять однородную ширину спектральной линии в изучаемой примесной системе и определять вклад неоднородного уширения, который, ввиду его малости по сравнению с вкладом однородной ширины, практически невозможно выделить традиционными методами.

2. Некогерентное возбуждение резонансной среды

Любой источник излучения можно охарактеризовать вполне определенным значением времени когерентности. В классической (когерентной) эхо-спектроскопии возбуждение среды производится, как правило, лазерами с шириной линии излучения, равной долям ангстрема. Во временной шкале это соответствует наносекундному разрешению. Время релаксации в примесных твердотельных средах (кристаллах) при температуре жидкого гелия имеет как раз такой порядок. По этой причине методами когерентной фотонной эхо-спектроскопии активно изучаются примесные кристаллы, допированные редкоземельными ионами, так называемые ван-Флековские парамагнетики. Между тем нередко возникает необходимость исследования неупорядоченных сред при различных температурах, вплоть до комнатных. Оценки показывают, что для такого рода задач необходимо субпикосекундное временное разрешение. Этого можно достичь использованием специальных широкополосных (шумовых) лазеров. В литературе для описания таких источников используется устоявшийся термин «некогерентные» [5, 6, 13, 14]. Некогерентные лазерные источники характеризуются прежде всего большой спектральной шириной излучения и шумовым характером распределения интенсивности по спектру. Принципы построения и физика некогерентных лазеров описаны, например, в [7, 15]. Основная идея заключается в том, что, если устранить подавление частотных компонент с низким коэффициентом усиления компонентами с более высоким усилением, то спектр лазерной генерации красителей будет значительно уширен. Известно, что органические красители имеют однородно уширенный спектр усиления, составляющий десятки нанометров (см., например, [16]). На практике же (при реализации небольших мощностей) используются в основном красители, спектр излучения которых намного более узок, чем спектр усиления. Например, спектр усиленного спонтанного излучения для rhodamine-6G обычно меньше, чем 5 нм [17]. Когда кювета с красителем помещается в резонатор и начинается лазерная генерация, спектр сужается, и его ширина обычно становится менее 2 нм [18]. Процессы сужения в условиях относительно слабой накачки (когда нет никакого насыще-

ния) идентичны для обоих случаев, как однородно, так и неоднородно уширенных линий. Они заключаются в том, что частотная компонента с самым большим коэффициентом усиления растет быстрее других. Когда достигается насыщение, в случае неоднородного уширения сужение обращается и восстанавливается оригинальная форма линии. В случае однородно уширенного контура продолжается сужение. Физическая основа явления заключается в том, что частотные компоненты с самым высоким коэффициентом усиления первыми достигают насыщения и уменьшают полную инверсию, поэтому подавляются другие компоненты. Для того чтобы устранить подавление частотных компонент с низким коэффициентом усиления используют специальные конструкции лазерных резонаторов. В них различные частотные компоненты генерируются в областях резонансной среды, которые расположены с небольшим поперечным сдвигом (вдоль высоты кюветы при поперечной накачке).

Несмотря на то что ФЭ в стандартной формулировке [4] представляет собой когерентное оптическое переходное явление, существуют работы, сообщающие о наблюдении некогерентного фотонного эха в условиях возбуждения с помощью двух независимых импульсов широкополосного оптического излучения. Первый эксперимент по НФЭ был выполнен в парах атомарного натрия в условиях возбуждения с помощью двух независимых лазерных импульсных источников с шириной полосы 10 ГГц [5]. В работе [6] был выполнен эксперимент по изучению НФЭ с широкополосным источником света на твердотельном образце – силикатном стекле, легированном ионами неодима. На сегодняшний день, наиболее адекватной физической моделью, описывающей явление НФЭ, является модель аккумулированного эха (см., например, работы [13, 14]). Временное разрешение методики ФЭ определяется временем когерентности излучения, а не длительностью возбуждающих импульсов. Два луча, которые получаются делением одного общего луча на полупрозрачной пластине, сохраняют взаимную когерентность при временах задержек, меньших, чем время когерентности источника возбуждения. При использовании широкополосного источника временное разрешение фотонной эхо-спектроскопии может достигать субпикосекундного диапазона.

Согласно модели НФЭ каждый широкополосный импульс можно «разбить» на последовательность независимых ультракоротких импульсов, длительность которых равна времени когерентности излучения τ_c . Поскольку число независимых подимпульсов велико, а индивидуальные задержки τ между ними совпадают, этот порядок аналогичен возбуждению аккумулированного ФЭ. Все остальные пары подимпульсов также приводят к генерации эхо-сигналов, однако из-за того, что временные интервалы для них случайные, они дают вклад в суммарный эхо-сигнал, не зависящий от времени задержки и проявляющийся в эксперименте в виде некогерентного фона. В итоге при возбуждении среды импульсами некогерентного излучения в условиях сохранения временного интервала между импульсами резонансная среда высвечивает сигналы ФЭ. Особенно наглядно это проявляется при наблюдении четырехволнового смешения при комнатной температуре (рис. 1, *а*), когда взаимодействие широкополосных (с фемтосекундными временами когерентности) наносекундных импульсов приводит к генерации целой серии сигналов в соответствии с условиями фазового синхронизма (см. рис. 1, *б*) (которые фактически являются следствием закона сохранения импульса).

3. Экспериментальный комплекс

Уникальная экспериментальная установка, позволившая не только наблюдать, но и активно использовать явление НФЭ для фундаментальных научных исследо-

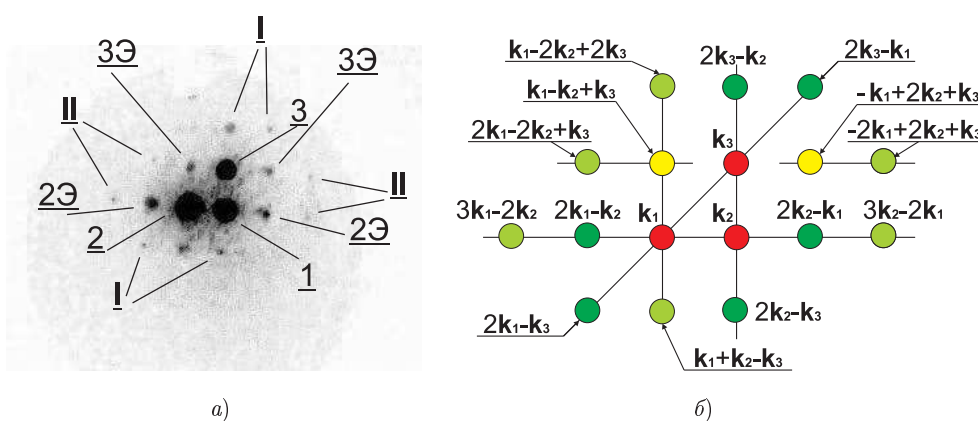


Рис. 1. Фотография следов на экране при четырехволновом смешении в полимерной пленке полиметилметакрилата с примесными молекулами rhodamine-101 при комнатной температуре: 1, 2 и 3 – возбуждающие импульсы, 2Э и 3Э – сигналы двухимпульсного и трехимпульсного эха, I и II – различные порядки самодифракции (а). Условия фазового синхронизма для сигналов самодифракции (б)

ваний была создана в научно-исследовательской группе под руководством доктора физико-математических наук Ю.Г. Вайнера в отделе молекулярной спектроскопии института спектроскопии РАН (ИСАН, г. Троицк) [7].

Основным элементом установки является широкополосный шумовой лазер (рис. 2). Это лазер на красителе с поперечной лазерной накачкой, построенный по безрезонаторной схеме. Спектр излучения такого лазера определяется спектром люминесценции используемого красителя и не имеет модовой структуры. Для накачки красителя (в данной работе – спиртовой раствор rhodamine-6G) используется излучение второй гармоники самодельного твердотельного $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ -лазера, работающего в режиме модуляции добротности и генерирующего импульсы наносекундной длительности. Этот лазер состоит из работающего на одной поперечной моде генератора, двух усилителей и удвоителя частоты на кристалле CDA. Усиленное излучение второй гармоники YAG-лазера делится на два луча. Первый луч с помощью цилиндрической линзы фокусируется на кювету с красителем в виде тонкой полоски. Лазерный пучок флуоресценции красителя, отраженный от зеркала и ограниченный диафрагмой, проходит через телескоп и попадает на дифракционную решетку. Здесь происходит дисперсионное расширение пучка, который затем направляется на сферическое зеркало и отражается им на узкую щель. Здесь же из широкополосного лазерного излучения «вырезается» область спектра нужной ширины. Прошедшее через щель излучение отражается от «глухого» зеркала и выводится из лазерной системы посредством сферического и плоских зеркал и дифракционной решетки. Далее, в следующем каскаде лазера на красителе происходит усиление спектрально ограниченного широкополосного лазерного импульса. Изменяя ширину щели, можно задать спектральную ширину излучения лазера в пределах полосы люминесценции красителя ($100\text{--}200\text{ см}^{-1}$). Таким образом, шумовой лазер генерирует импульсы с регулируемой шириной длительностью 15 нс и энергией в импульсе до 2 мДж.

Оптическая схема установки состоит из трех оптических линий («каналов») временных задержек. Первая и вторая – формируют соответственно первый и второй лазерные импульсы. Задержка между первым и вторым импульсами регулируется путем изменения оптической длины в первом канале; второй канал с фиксированной длиной. Прецизионный механизм, снабженный шаговым двигателем, позволяет

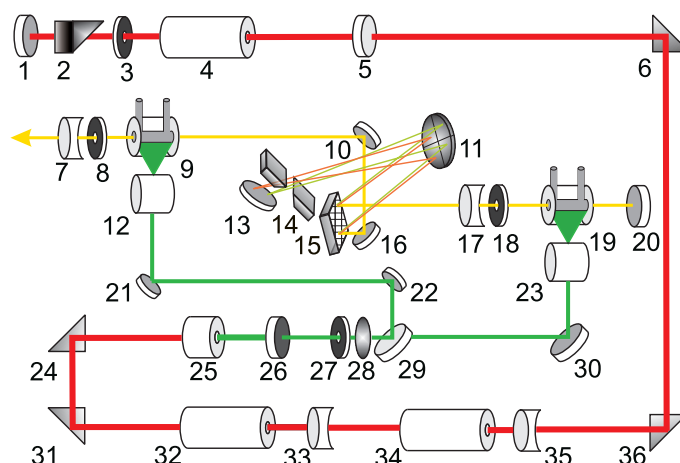


Рис. 2. Схема шумового лазера на красителе: 1, 10, 13, 16, 20, 21, 22, 30 – зеркала, 2 – оптический затвор, 3, 8, 18, 27 – задающие диафрагмы, 4, 32, 34 – квантроны излучателя и двух усилителей, 5, 29 – полупрозрачные зеркала, 6, 24, 31, 36 – поворотные призмы, 7, 17, 33, 35 – телескопы, 9, 19 – кюветы с красителем, 11 – сферическое зеркало, 12, 23 – цилиндрические линзы, 14 – металлические «ножи» (щель), 15 – дифракционная решетка, 25 – генератор второй гармоники, 26 – светофильтр, 28 – линза

регулировать задержку между первым и вторым импульсами в пределах до 4 пс с шагом, кратным 5.6 фс. Для настройки системы и проведения дополнительных измерений служит третий (калибровочный) канал. Для калибровки сигналов на образец направляется дополнительный луч с постоянной оптической задержкой, что приводит к формированию одновременно двух эхо-сигналов: ФЭ с переменной задержкой (основное эхо) и ФЭ с постоянной задержкой (калибровочное эхо). Нормировка интенсивности эхо-сигналов по калибровочному эху позволяет значительно компенсировать флуктуации мощности лазера. Практика показала, что такой способ нормировки дает значительно более воспроизводимые сигналы (особенно в случае регистрируемых сигналов с низкой интенсивностью), чем нормировка по измеренной величине энергии лазерных импульсов. Задержка калибровочного импульса подбирается поворотом микрометрического винта и меняется в пределах сотен фемтосекунд. Введением диафрагмы в фокус линзы за образцом удается подавить значительную часть рассеянного излучения. Специальная диафрагма с отдельными прорезями для разных сигналов эха позволяет защитить систему регистрации от засветки возбуждающими импульсами. Дополнительная развязка сигналов ФЭ и рассеянного лазерного излучения осуществляется за счет использования ортогонально поляризованных лазерных лучей при возбуждении ФЭ и соответственно ориентированных анализаторов при регистрации эхо-сигналов. В ряде случаев это существенно увеличивает отношение сигнал/шум. Кроме того, это практически исключает образование тепловой решетки в образце.

Процедура выделения полезного сигнала и интерпретации результатов представляет собой отдельную задачу. Эта проблема была решена созданием специальной системы регистрации. Она представляет собой автоматизированный многоканальный измерительный комплекс, позволяющий управлять линиями временных задержек и стробированием матрицы фотоприемников, регистрировать сигналы прямого, обратного, калибровочного ФЭ, а также сигнал шумового лазера. Помимо этого система производит обработку экспериментальных результатов (нормировку, калибровку и интерпретацию массива экспериментальных данных). Излучение из

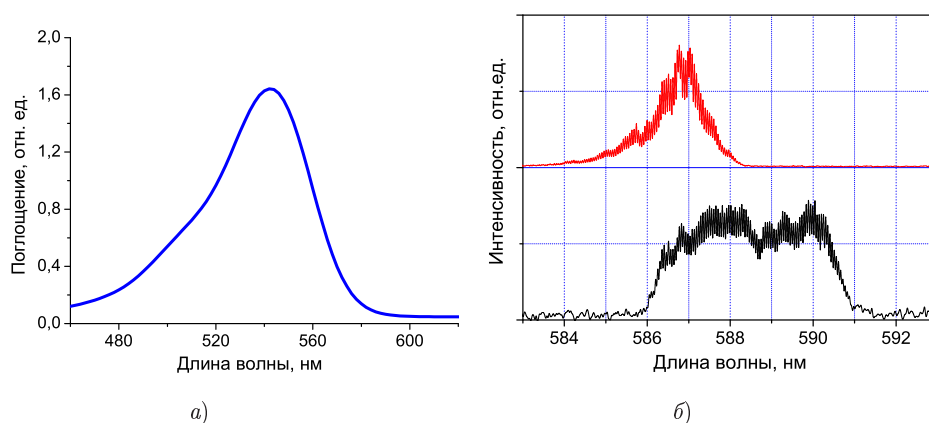


Рис. 3. Спектр поглощения красителя (раствор rhodamine-6G в этаноле) шумового широкополосного лазера (а). Примеры перестройки спектра излучения шумового лазера на красителе при двух значениях ширины и разных положениях щели (элемент 14 на рис. 2) (б)

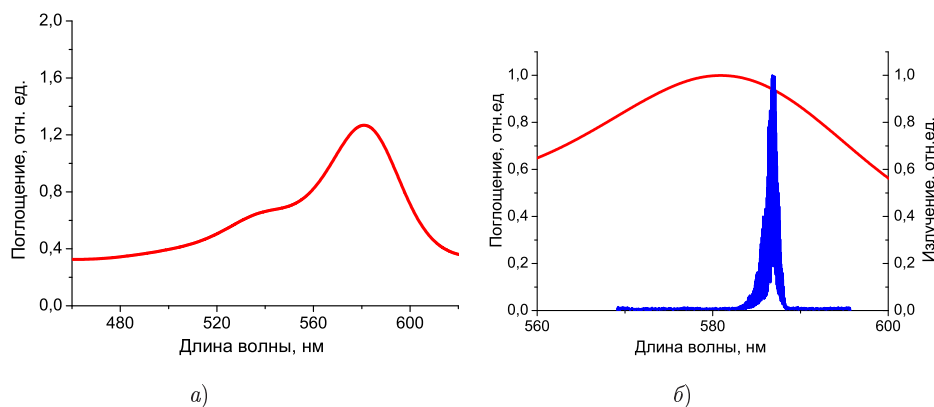


Рис. 4. Спектр поглощения исследуемого образца – полимерной пленки полиметилметакрилата, легированного молекулами rhodamine-101 (а). Спектр излучения лазера на фоне широкой полосы поглощения образца (б)

каждого канала поступает на детектор по оптоволокну и фокусируется на электронооптическом преобразователе (ЭОП). Для регистрации слабых сигналов эха используется чувствительная аппаратура, состоящая из ЭОП изображения на микроканальных пластинах, состыкованного с помощью оптоволоконной планшайбы с ФПЗС-матрицей. Поскольку интенсивность лазера сильно меняется не только по спектру, но и от вспышки к вспышке, введена процедура селекции сигналов по величине энергии лазерных импульсов. Устойчивая регистрация достигается при отбрасывании сигналов, энергия лазерного импульса которых не попадает в пределы заданного, довольно узкого (10% от общего значения) диапазона. Синхронное компьютерное управление лазером, линией задержки, системой регистрации и предварительной обработки измеряемых сигналов осуществлялось с помощью специально разработанного программного обеспечения.

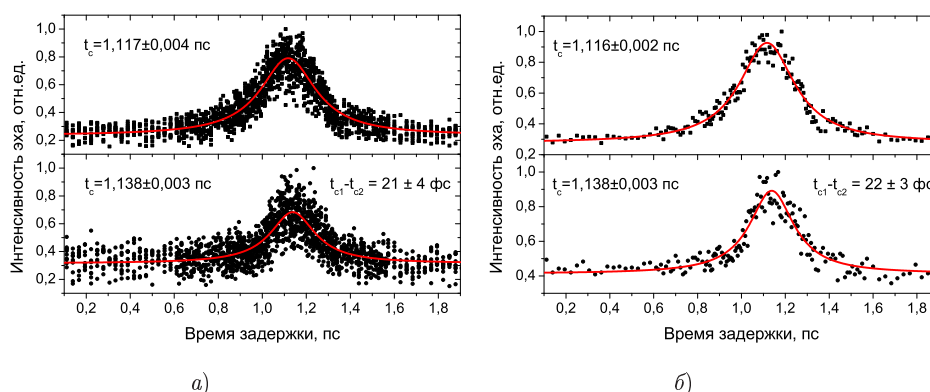


Рис. 5. Сигналы «прямого» и «обратного» четырехволнового смешения в зависимости от времени задержки между возбуждающими импульсами при «узком» диапазоне флуктуаций интенсивности лазера (120–146 отн. ед.). Образец – rhodamine-101 в ПММА. Температура 300К. (а) Без усреднения и нормировки относительно интенсивности лазера. (б) С накоплением по 10 точкам при каждом значении времени задержки, нормировкой относительно интенсивности лазера и усреднением по этим точкам. Сплошные линии представляют результат аппроксимации кривых функцией Лоренца

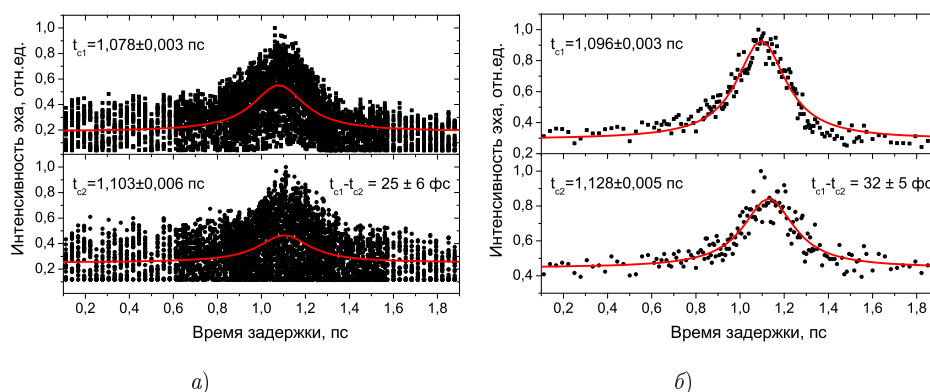


Рис. 6. Сигналы «прямого» и «обратного» четырехволнового смешения в зависимости от времени задержки между возбуждающими импульсами при «широком» диапазоне флуктуаций интенсивности лазера (28–197 отн. ед.). Образец – rhodamine-101 в ПММА. Температура 300 К. (а) Без усреднения и нормировки относительно интенсивности лазера. (б) С накоплением по 30 точкам при каждом значении времени задержки, нормировкой относительно интенсивности лазера и усреднением по этим точкам

4. Экспериментальные результаты

В данной работе в качестве лазерного красителя в широкополосном шумовом лазере использовался раствор rhodamine-6G в этаноле (спектр поглощения красителя при комнатной температуре приведен на рис. 3, а). Лазер настраивался на центральную длину волны 588.5 нм с шириной полосы излучения 5 нм (рис. 3, б). Усиленное излучение лазера поступало далее на систему оптических временных задержек.

Подбором соответствующего положения шагового двигателя и микрометрического винта достигалось равенство оптических путей для всех трех импульсов, то есть одновременное возбуждение образца тремя импульсами. Далее с использованием персонального компьютера и специального программного обеспечения

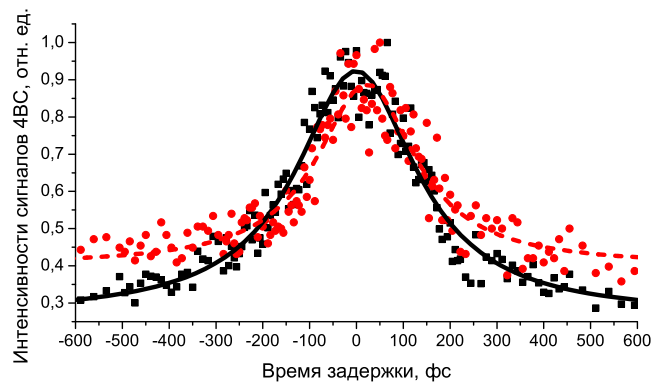


Рис. 7. Одновременная регистрация зависимости интенсивностей сигналов «прямого» (кружки) и «обратного» (квадраты) четырехволнового смешения от временного интервала между импульсами в полимерной пленке ПММА с красителем rhodamine-101 при комнатной температуре. Сплошная и штриховая линии отображают результат аппроксимации измеренных зависимостей функцией Лоренца

проводилось исследование зависимости интенсивности сигналов левого и правого эха от величины задержки между импульсами, а также их калибровка и нормировка.

В качестве образца была использована полимерная пленка – полиметилметакрилат (ПММА) легированный молекулами rhodamine-101. Толщина пленки 1 мм. Спектр поглощения образца приведен на рис. 4, *a*. На рис. 4, *б* приведен спектр лазерного излучения, использованного в экспериментах (на фоне широкой полосы поглощения образца).

В данной работе были зарегистрированы зависимости интенсивности эхосигналов (сигналов четырехволнового смешения) при комнатной температуре от величины задержки между первым и вторым импульсами в пределах $-0.6-0.6$ пс. Измерения проводились при двух значениях диапазона флуктуаций интенсивности лазера: 120–146 отн. ед. (рис. 5) и 28–197 отн. ед. (рис. 6), без накопления сигнала (рис. 5, *a* и 6, *a*) и с накоплением сигнала при каждом значении времени задержки по 10 и 30 точкам соответственно и нормировкой относительно интенсивности лазера (рис. 5, *б* и 6, *б*).

Рис. 6 отражает очевидные преимущества процедуры «сужения» диапазона флуктуаций лазера и большего количества усреднений. Обработанные результаты измерений приведены на рис. 7. Таким образом, используя технику эхоспектроскопии с некогерентным лазерным источником, мы отчетливо различаем два процесса, которые разделены временным промежутком порядка 20 ± 3 фс.

Заключение

Некогерентное фотонное эхо позволяет проводить исследования релаксационных процессов в конденсированных примесных средах в фемтосекундном диапазоне длительностей без использования фемтосекундной техники. Описанный комплекс экспериментальной аппаратуры обеспечивает уверенную регистрацию процессов, разделенных временным промежутком в десятки фемтосекунд. Меняя и комбинируя различные лазерные красители, можно реализовать широкополосное лазерное излучение в заданном спектральном диапазоне, перестраивая таким образом рабочий спектральный диапазон «шумового» лазера. Это дает возможность

исследовать различные быстропротекающие процессы в широкой спектральной области. Внося незначительные изменения в конструкцию установки, можно переходить от когерентного режима работы к некогерентному режиму и наоборот. В перспективе можно говорить о возможности создания единого комплекса экспериментальной аппаратуры, который позволит исследовать релаксационные процессы в масштабе длительностей от 10^{-9} до 10^{-15} с в широком спектральном и температурном диапазоне.

Выполнение данного исследования стало возможным при поддержке РФФИ (проекты № 08-02-00147, 08-02-00032-а, 08-02-90001-Бел_а, 07-02-90818-моб_ст (программа РФФИ «Мобильность молодых ученых»)), Фондом содействия развитию малых форм предприятий в научно-технической сфере (проект № 7763 по программе У.М.Н.И.К.), а также гранта Президента РФ для поддержки ведущих научных школ РФ (НШ-2965.2008.2). А.В. Наумов благодарит Министерство образования и науки РФ и Civilian Research and Development Foundation (проект BRHE) и грант Президента РФ (МК-239.2007.2).

Summary

K.R. Karimullin, Yu.G. Vainer, A.V. Naumov, I.Yu. Eremchev, V.V. Samartsev. Ultrafast Optical Dephasing in Doped Polymethylmetacrylate: Research by Means of Incoherent Photon Echo with Femtosecond Temporal Resolution.

The article describes a unique experimental arrangement based on broadband dye-laser, which allows to investigate ultrafast optical defasing processes in condensed matter with femtosecond (20–30 fs) time resolution by means of incoherent photon echo. The main advantages of this method are: a) femtosecond laser technique not being used; b) realization of “soft” sample excitation mode. The experimental results of ultrafast phase relaxation processes research performed by means of four-wave mixing technique in amorphous polymethylmethacrylate doped with rhodamine-101 molecules at room temperature are presented.

Key words: photon echo, incoherent echo, broadband laser, optical dephasing, femtosecond relaxation, four-wave mixing, amorphous medium.

Литература

1. *Hahn E.L.* Spin echoes // *Phys. Rev.* – 1950. – V. 80. – P. 580–594.
2. *Kurnit N.A., Hartmann S.R., Abella I.D.* Observation of a photon echo // *Phys. Rev. Lett.* – 1964. – V. 13, No 19. – P. 567–570.
3. *Osadko I.S.* Optical dephasing and homogeneous optical bands in crystals and amorphous solids: Dynamic and stochastic approaches // *Physics Reports.* – 1991. – V. 206, No 2. – P. 43–97.
4. *Калачев А.А., Самарцев В.В.* Когерентные явления в оптике. – Казань: Изд-во Казан. ун-та, 2003. – 281 с.
5. *Beach R., Hartmann S.R.* Incoherent photon echoes // *Phys. Rev. Lett.* – 1984. – V. 53. – P. 663–666.
6. *Asaka S., Nakatsuka H., Fujiwara M., Matsuoka M.* Accumulated photon echoes with incoherent light in Nd^{3+} -doped silicate glass // *Phys. Rev. A.* – 1984. – V. 29. – P. 2286–2289.
7. *Вайнер Ю.Г., Груздев Н.В.* Динамика органических аморфных сред при низких температурах: Исследования резорфина в d- и d6- этаноле при 1.7–35 К методом некогерентного фотонного эха. I. Эксперимент. Основные результаты // *Оптика и спектроскопия.* – 1994. – Т. 76, № 2. – С. 252–258.

8. *Bai Y.S., Fayer M.D.* Time scales and optical dephasing measurements: Investigation of dynamics in complex systems // *Phys. Rev. B.* – 1989. – V. 39. – P. 11066–11084.
9. *Vainer Yu.G., Kol'chenko M.A., Naumov A.V., Personov R.I., Zilker S.J.* Photon echoes in doped organic amorphous systems over a wide (0.35–50 K) temperature range // *J. Lumin.* – 2000. – V. 86. – C. 265–272.
10. *Vainer Yu.G., Naumov A.V., Kol'chenko M., Personov R.I.* The quasi-localized low-frequency vibrational modes of disordered solids: I. Study by photon echo // *Phys. Stat. Sol. B.* – 2004. – V. 241, No 15. – P. 3480–3486.
11. *Weiner A.W., Ippen E.P.* Novel transient scattering technique for femtosecond dephasing measurements // *Opt. Lett.* – 1984. – V. 9. – P. 53–55.
12. *Weiner A.M., De Silvestri S., Ippen E.P.* Three-pulse scattering for femtosecond dephasing studies: theory and experiment // *JOSA B.* – 1985. – V. 2, No 4. – P. 654–662.
13. *Golub J.E., Mossberg T.W.* Studies of picosecond collisional dephasing in atomic sodium vapor using broad-bandwidth transient four-wave mixing // *JOSA B.* – 1986. – V. 3, No 4. – P. 554–559.
14. *Samartsev V.V., Shegeda A.M., Shkalikov A.V., Karimullin K.R., Mitrofanova T.G., Zuikov V.A.* Incoherent backward photon echo in ruby upon excitation through an optical fiber // *Laser Phys. Lett.* – 2007. – V. 4. – P. 534–537.
15. *Danailov M.B., Christov I.P.* A novel method of ultrabroadband laser generation // *Opt. Commun.* – 1989. – V. 73, No 3. – P. 235–238.
16. *Schaffer F.P.* Dye lasers. – Berlin: Springer-Verlag, 1990. – 201 p.
17. *Ganiel U., Hardy A., Neumann G., Treves D.* Amplified spontaneous emission and signal amplification in dye-laser systems // *IEEE J. Quantum Electron.* – 1975. – V. 11. – P. 881–892.
18. *Atkinson J.B., Pace F.P.* The spectral linewidth of a flashlamp-pumped dye laser // *IEEE J. Quantum Electron.* – 1973. – V. 9. – P. 569–574.

Поступила в редакцию
28.02.08

Каримуллин Камиль Равкатович – аспирант кафедры оптики и нанофотоники физического факультета Казанского государственного университета, младший научный сотрудник лаборатории нелинейной оптики Казанского физико-технического института им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН.

E-mail: gamil@inbox.ru

Вайнер Юрий Григорьевич – доктор физико-математических наук, заведующий сектором электронных спектров молекул Института спектроскопии РАН.

E-mail: vainer@isan.troitsk.ru

Ерёмчев Иван Юрьевич – аспирант Московского физико-технического института, младший научный сотрудник сектора электронных спектров молекул Института спектроскопии РАН.

E-mail: eremchev@isan.troitsk.ru

Наумов Андрей Витальевич – кандидат физико-математических наук, заместитель заведующего отделом молекулярной спектроскопии Института спектроскопии РАН.

E-mail: naumov@isan.troitsk.ru

Самарцев Виталий Владимирович – доктор физико-математических наук, профессор, заведующий лабораторией нелинейной оптики Казанского физико-технического института им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН.

E-mail: samartsev@kfti.knc.ru