

УДК 535.2

## ДВУХКАНАЛЬНЫЙ РЕЖИМ ИССЛЕДОВАНИЯ СИГНАЛОВ ФЕМТОСЕКУНДНОГО ФОТОННОГО ЭХА В ПОЛИМЕРНЫХ ПЛЕНКАХ, ДОПИРОВАННЫХ КРАСИТЕЛЕМ, ПРИ КОМНАТНОЙ ТЕМПЕРАТУРЕ

*А.В. Леонтьев, В.С. Лобков, К.М. Салихов,  
В.В. Самарцев, Г.М. Сафиуллин, В.А. Зуйков*

### Аннотация

С помощью двухканального режима детектирования экспериментально исследованы спектральные особенности сигналов фемтосекундного фотонного эха в пленке поливинилбутираля, допированной молекулами фталоцианина, при комнатной температуре. Обнаружено, что спектры сигналов эха сдвинуты в коротковолновую область по отношению к спектрам возбуждающих импульсов.

### Введение

Известно, что подавляющее число оптических эхо-экспериментов в твердых телах поставлено при температуре жидкого гелия [1]. Использование низких температур необходимо для того, чтобы устранить влияние необратимых релаксационных процессов с участием фононов, разрушающих фазовую память, лежащую в основе явления фотонного эха. Известно также, что фазовая память в резонансной среде существует в условиях, когда длительность возбуждающих лазерных импульсов ( $\delta t$ ) и временные задержки между ними ( $\tau_{12}$  и  $\tau_{23}$ ) были короче фазовой релаксации и времени жизни возбужденного состояния и времени. В наносекундном диапазоне длительностей эти условия выполняются лишь при низких температурах исследуемых образцов [1]. Существует еще один путь выполнения данных условий: перейти в фемтосекундный диапазон длительностей (когда  $\delta t = 10^{-13} - 10^{-14}$  с). В КФТИ впервые проведено исследование фемтосекундного стимулированного фотонного эха в полимерной пленке, допированной молекулами красителя [2, 3]. Поскольку именно стимулированное фотонное эхо и его многоимпульсные аналоги широко используются в функционировании оптических эхо-процессоров (см., например, [4]), то практическая значимость подобных фемтосекундных эхо-экспериментов [2, 3] для создания высокотемпературных эхо-процессоров не вызывает сомнений.

### 1. Результаты экспериментальных исследований и их обсуждение

Экспериментальная установка для исследования фемтосекундных эхо-сигналов описана в работе [2]. В этой же работе (см. также [3]) приведены кривые спада сигнала первичного фемтосекундного фотонного эха (ПФФЭ) в полимерной пленке с красителем при температуре жидкого азота и при комнатной температуре. Образец представлял собой краситель фталоцианин НВ 1009, допированный в пленку из поливинилбутираля (PVB) в концентрации  $10^{-3} - 10^{-4}$  моль/л. Толщина пленки составляла 65 мкм. Фемтосекундное лазерное возбуждение импульсами титан-сапфирового лазера длительностью 65 фс центрированными на длине волны 793 нм,

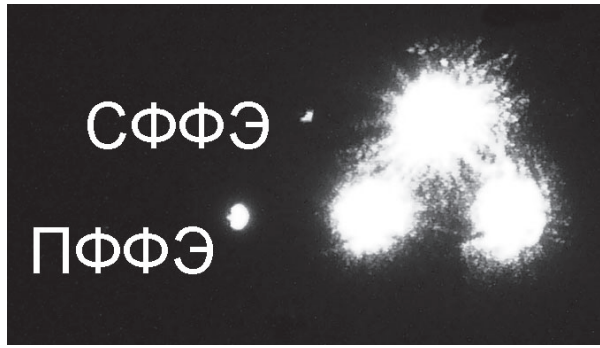


Рис. 1. Фотография изображений на экране (за образцом) трех возбуждающих импульсов (крупные изображения в центре) и сигналов ПФФЭ и СФФЭ

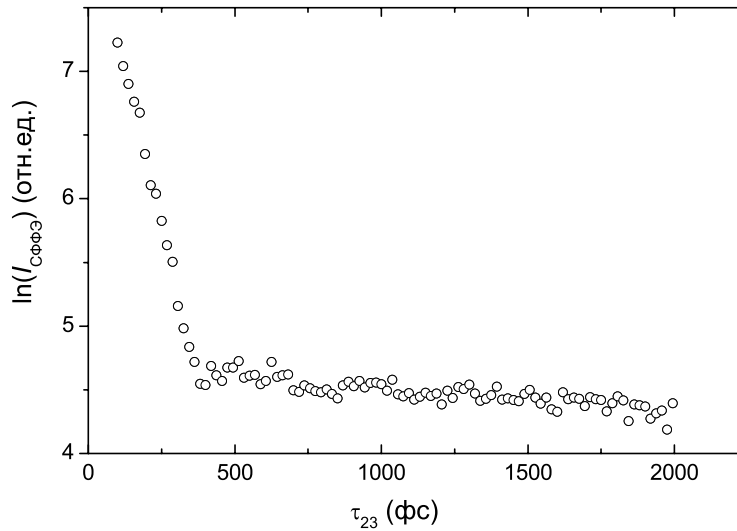


Рис. 2. Кривая временного спада сигнала СФФЭ при фиксированном значении  $\tau_{12} = 100$  фс при комнатной температуре исследуемого образца

соответствующей энергетическому переходу  $S_0 - S_1$ . Визуально наличие сигналов первичного (ПФФЭ) и стимулированного фемтосекундного фотонного эха (СФФЭ) можно проследить, наблюдая изображения на экране, помещенном за образцом (рис. 1).

Зарегистрирована кривая спада СФФЭ при комнатной температуре при фиксированном значении временного интервала  $\tau_{12} = 100$  фс (рис. 2). Видно, что она состоит из двух участков: «быстрого» (до значения  $\tau_{23} = 370$  фс) с характерным временем спада 100 фс и продолжительного спада (от 370 до 2000 фс и далее) с характерным временем 5 пс.

При анализе этого спада использовалась теория, развитая в работе [5]. В работе [3] мы отмечали, что сила электрон-фононного взаимодействия характеризуется фактором Пекара–Хуанга, который для нашего образца равен 0.67 (то есть меньше единицы). Поэтому электрон-фононная связь в исследуемом образце является слабой. Это позволяет упростить анализ кривой спада (по крайней мере, ее «быстрого» участка) и воспользоваться более простыми формулами, следующими из теории [5],

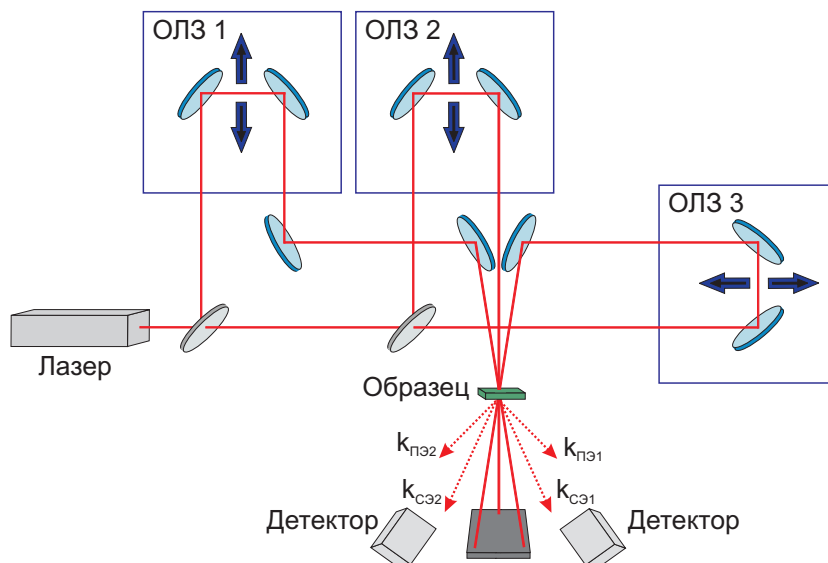


Рис. 3. Упрощенная оптическая схема экспериментальной установки по исследованию фемтосекундного фотонного эха в двухканальном режиме детектирования. Обозначения: ОЛЗ 1, ОЛЗ 2, ОЛЗ 3 – оптические линии задержек;  $k_{пэ1}$ ,  $k_{пэ2}$ ,  $k_{сэ1}$ ,  $k_{сэ2}$  – волновые векторы сигналов первичного эха и стимулированного эха. Возбуждение осуществлялось фемтосекундными импульсами титан-сапфирового лазера с длительностью импульсов 65 фс, их энергией 200 мкДж, частотой повторения 50 Гц, на длине волны 793 нм. Трехимпульсное возбуждение выполнялось при фиксированном значении  $\tau_{12} = 100$  фс

и результатами предыдущих исследований [6, 7]. Этот анализ показал, что «быстрый» спад обязан случайному взаимодействию примесных молекул красителя с квазилокальными низкочастотными колебательными модами [6, 7], энергия которых при комнатной температуре может достигать  $50\text{--}60\text{ см}^{-1}$ .

В наших экспериментах использовался двухканальный режим детектирования фемтосекундных эхо-сигналов. Этот режим известен как «методика некогерентного фотонного эха» (см., например, [7]). Для ее реализации требуется широкополосное импульсное оптическое излучение. Этому требованию соответствуют лазерные импульсы фемтосекундной длительности, используемые в нашей экспериментальной установке. Упрощенная оптическая схема экспериментальной установки по реализации этой методики изображена на рис. 3. В этой методике используется двухканальное детектирование, как и в методике четырехволнового смешения. При временном перекрытии возбуждающих импульсов фотодетекторы фиксируют отклик, состоящий из сигнала самодифракции [8] и эхо-сигнала, а при наличии временных задержек, превышающих длительность импульсов ( $\delta t$ ), эти фотодетекторы фиксируют только эхо-сигналы.

Хорошо известно (см., например, [8]), что если на систему примесных центров в твердотельной матрице одновременно и резонансно воздействуют в направлениях волновых векторов  $\mathbf{k}_1$  и  $\mathbf{k}_2$  два лазерных импульса (рис. 4, а), то в этой системе сформируется динамическая «решетка» неравновесной разности населенностей, на которой претерпевают самодифракцию возбуждающие импульсы.

В первом порядке сигналы самодифракции следует ожидать в направлениях  $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$  и  $2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$ . Зависимости интенсивности сигналов, зафиксированных отдельными фотодетекторами в соответствующих направлениях от времени задержки  $\tau_{12}$ , приведены на рис. 4, б. Для каждого из этих сигналов в направлениях

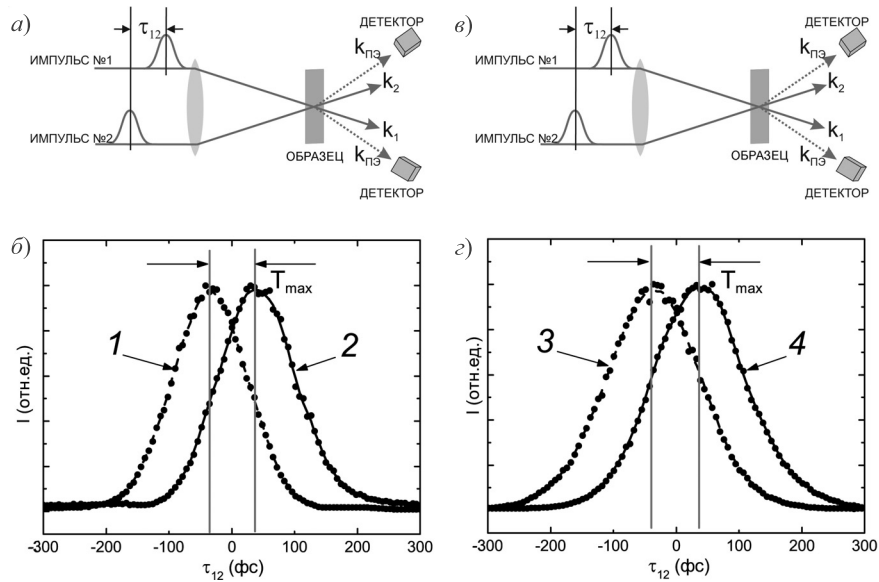


Рис. 4. Двухканальный режим детектирования фемтосекундных сигналов самодифракции и фотонного эха: *a* и *б* – упрощенные схемы возбуждения сигналов ПФФЭ и СФФЭ соответственно; *в* и *г* – экспериментальные зависимости относительной интенсивности откликов (самодифракции и эхо-сигналов) от интервала  $\tau_{12}$  при двухимпульсном и трехимпульсном возбуждениях соответственно;  $\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3$  – волновые векторы импульсов;  $\mathbf{k}_{ПФЭ}, \mathbf{k}_{СФЭ}$  – волновые векторы ПФФЭ и СФФЭ соответственно

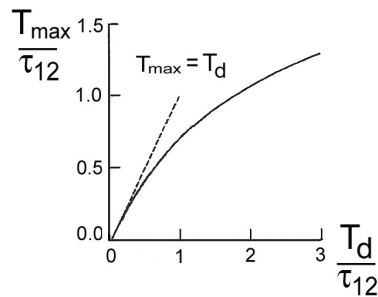


Рис. 5. Корректирующая зависимость времени оптической дефазировки  $T_d$  от расстояния между максимумами пиков  $T_{max}$  на рис. 4, *б*, *г*, [10]

$2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$  и  $2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$  мы в эксперименте получили контуры, максимумы между которыми раздвинуты на величину  $T_{max}$ . В серии фемтосекундных экспериментов [9, 10] показано, что, зная  $T_{max}$ , можно оценить время дефазировки  $T_d$ , найти по формуле  $\Gamma_{hom} = 1/(\pi T_d)$  однородную ширину линии  $\Gamma_{hom}$ . В работе [10] показано, что соотношение между временем дефазировки  $T_d$  и расстоянием между максимумами  $T_{max}$  зависит от условий эхо-эксперимента (неоднородной ширины, времен задержек). Для определения  $T_d$  воспользуемся корректирующим графиком [10] на рис. 5. Из него следует, что при  $T_{max}/\tau_{12} = 1$  имеет место соотношение:  $T_d = 1.8T_{max}$ . Оно при  $T_{max} = 75$  фс (см. рис. 4, *б*) приводит к значению  $\Gamma_{hom} = 3 \cdot 10^{12}$  Гц. Отметим, что измеренное в эксперименте [11] значение  $\Gamma_{hom}$  на аналогичном образце при 240 К равно примерно  $10^{12}$  Гц.

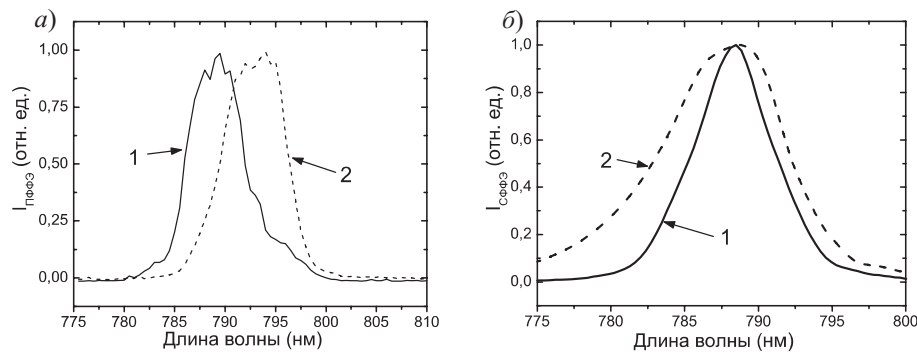


Рис. 6. Спектры фемтосекундных эхо-сигналов 1 на фоне спектра возбуждающих импульсов 2 при комнатной температуре образца. Спектр (а) относится к сигналу ПФФЭ, а спектр (б) – к сигналу СФФЭ

Теперь обсудим результаты аналогичных исследований при трехимпульсном режиме возбуждения (рис. 4, в). В этом случае сигналы самодифракции распространяются в направлениях  $-\mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_3$  и  $-\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3$ . Следуя [4], нами была исследована зависимость относительной интенсивности рассеянных сигналов (самодифракции + СФФЭ) от времени задержки  $\tau_{12}$ . Она приведена на рис. 4, г. Была измерена величина  $T_{\max}$  для трехимпульсной накачки, она оказалась равной 75 фс. Затем так же, как и в двухимпульсном режиме, было найдено значение  $\Gamma_{\text{hom}} = 3 \cdot 10^{12}$  Гц. В наших экспериментах исследовались спектры сигналов ПФФЭ и СФФЭ при комнатной температуре. Они приведены на рис. 6. Видно, что спектры фемтосекундных эхо-сигналов (особенно, ПФФЭ) характеризуются коротковолновым сдвигом по отношению к спектру возбуждающих импульсов. Это означает, что энергия эхо-фотона превышает энергию фотона возбуждающего лазера. Это может быть связано с участием, наряду с фононами, решеточных фононов в процессе возбуждения примесных молекул красителя в суперпозиционное состояние на энергетическом переходе из основного состояния в электронно-колебательное. Энергия этих фононов черпается из резервуара квазилокализованных низкочастотных колебательных мод аморфной матрицы. Таким образом, существуют перспективы реализации когерентного антистоксового режима лазерного охлаждения [12] подобных допированных пленок.

Возникает еще один вопрос: почему коротковолновый сдвиг спектра СФФЭ существенно меньше сдвига спектра ПФФЭ? Дело в том, что в процессе формирования сигнала СФФЭ почти не принимает участие фононное крыло линии поглощения, в отличие от сигнала ПФФЭ, где эта роль была доминирующей [11].

### Заключение

Таким образом, в работе исследованы сигналы ПФФЭ и СФФЭ в полимерной пленке поливинилбутирала, допированной молекулами фталоцианина, при комнатной температуре с использованием двухканального режима регистрации. Обнаружены коротковолновые сдвиги спектров фемтосекундных эхо-сигналов по отношению к спектру возбуждающих импульсов, свидетельствующие о возможности реализации фемтосекундного когерентного режима лазерного охлаждения. С другой стороны, эти допированные пленки могут быть использованы в качестве носителей информации высокотемпературных оптических эхо-процессоров.

Авторы благодарны профессору А.К. Ребане (США) за предоставление исследуемого образца.

Настоящие экспериментальные исследования были поддержаны грантом Президента РФ «Ведущие научные школы» (НШ-6213.2006.02), программами Президиума РАН «Квантовая макрофизика» и ОФН РАН «Оптическая спектроскопия и стандарты частоты», грантами РФФИ (№ 05-02-16003, 06-02-16491, 04-02-81009-Бел2004).

### Summary

*A.V. Leontiev, V.S. Lobkov, K.M. Salikhov, V.V. Samartsev, G.M. Safullin, V.A. Zuikov.* Two-channel regime of investigation of the femtosecond photon echo's signals in the a doped polymer films at room temperature.

The spectral peculiarities of the femtosecond photon echo's signals are experimentally investigated in the polyvinylbutyral dye-doped film at room temperature by mean of the two-channel regime and detection. It is established that the spectra of the primary and stimulated photon echoes are shifted towards shorter wavelengths relative to the spectrum of the exciting femtosecond laser pulses.

### Литература

1. *Калачев А.А., Самарцев В.В.* Когерентные явления в оптике. – Казань: Казан. гос. ун-т, 2003. – 281 с.
2. *Lobkov V.S., Leontiev A.V., Salikhov K.M., Samartsev V.V., Safullin G.M., Zuikov V.A.* Stimulated femtosecond photon echo in a dye-doped polymer film at room temperature // *Laser Phys. Lett.* – 2006. – V. 3. – P. 485–489.
3. *Lobkov V.S., Salikhov K.M., Samartsev V.V., Safullin G.M., Vorobyev A.Yu., Zuikov V.A.* Femtosecond primary and stimulated photon echoes in a dye-doped polymer film at room temperature // *Laser Phys.* – 2007. – V. 17, No 3. – P. 1–7.
4. *Lin H., Wang T., Wilson G.A., Mossberg T.W.* Experimental demonstration of swept-carrier time-domain optical memory // *Opt. Lett.* – 1995. – V. 20, No 1. – P. 91–93.
5. *Осадько И.С., Сташек М.В.* Теория фемтосекундного фотонного эха в твердых растворах // *ЖЭТФ* – 1994. – Т. 106, № 2(8). – С. 535–552.
6. *Наумов А.В., Вайнер Ю.Г.* Параметры квазилокальных низкочастотных колебательных мод в стеклах: измерение методами фотонного эха и спектроскопии одиночных молекул // *Изв. РАН. Сер. Физическая.* – 2006. – Т. 70, № 4. – С. 470–472.
7. *Вайнер Ю.Г.* Динамика неупорядоченных молекулярных твердотельных сред: исследование методами фотонного эха и спектроскопии одиночных молекул: Дис. ... д-ра физ.-мат. наук. – Троицк: ИС РАН, 2005. – 251 с.
8. *Штырьков Е.И., Лобков В.С., Моисеев С.А., Ярмухаметов Н.Г.* Характеристики обращенного фотонного эха при одновременном четырехволновом взаимодействии в рубине // *ЖЭТФ*. – 1981. – Т. 81, № 6(12). – P. 1977–1986.
9. *Smith R.* Photon echo and single molecule fluorescence measurements of organic dyes in thin polymer films: Ph. D. thesis – USA: Swartmore college, 2003. – 92 p.
10. *Kobayashi T., Terasaki A., Hattori T., Kurokawa K.* The application of incoherent light for the study of femtosecond-picosecond relaxation in condensed phase // *Appl. Phys. (B)*. – 1988. – V. 47. – P. 107–125.
11. *Rebane A.K., Gallus J., Ollikainen O.* Femtosecond photon echo spectroscopy in single laser shot // *Laser Phys.* – 2002. – V. 12, No 8. – P. 1126–1134.

12. *Петрушкин С.В., Самарцев В.В.* Лазерное охлаждение твердых тел. – М: Физматлит, 2005. – 223 с.

Поступила в редакцию  
22.01.07

---

**Леонтьев Андрей Владимирович** – аспирант Казанского физико-технического института им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН.

**Лобков Владимир Сергеевич** – кандидат физико-математических наук, заместитель заведующего лабораторией молекулярной фотохимии Казанского физико-технического института им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН.

**Салихов Кев Минуллинович** – доктор физико-математических наук, профессор, член-корреспондент РАН, директор Казанского физико-технического института им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН.

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

**Сафиуллин Георгий Маратович** – кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник Казанского физико-технического института им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН.

**Зуйков Владимир Александрович** – доктор физико-математических наук, старший научный сотрудник Казанского физико-технического института им. Е.К. Завойского КазНЦ РАН.

E-mail: *andery@inbox.ru*