

П И С Ь М А
В ЖУРНАЛ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ
И ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ

ОСНОВАН В 1965 ГОДУ
 ВЫХОДИТ 24 РАЗА В ГОД

ТОМ 61, ВЫПУСК 10
 25 МАЯ, 1995

Письма в ЖЭТФ, том 61, вып.10, стр.781 - 786

© 1995г. 25 мая

**СВЕТОВОЕ ГАШЕНИЕ КОГЕРЕНТНОСТИ СОСТОЯНИЙ,
 ИНДУЦИРОВАННОЙ ПРИ ОПТИЧЕСКИХ ПЕРЕХОДАХ,
 НАСЫЩЕНИЕ СИГНАЛА ЧЕТЫРЕХФОТОННОГО РАССЕЯНИЯ**

Б.С.Непорент

*Государственный оптический институт им.С.И.Вавилова
 199034 Санкт-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 5 апреля 1995 г.

Предложено рассматривать насыщение четырехфотонного рассеяния, а также других явлений, связанных с участием когерентных состояний оптических центров, как следствие универсального эффекта светового гашения когерентности состояний (СГКС), то есть дефазировки когерентных состояний центров квантами того же светового поля, которое создает эту когерентность. На примере раствора родамина Б в этаноле показано, что насыщение четырехфотонного рассеяния в широкой области значений плотности мощности накачки I_p может быть количественно описано на основе гипотезы СГКС, позволяющей также определить значение оптического сечения СГКС σ_s . Для этанольного раствора родамина Б найдено $\sigma_s = 5,7 \cdot 10^{-12} \text{ см}^2$, что на 4 порядка превышает значение сечения поглощения $\sigma_a = 2,2 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2$.

Уже в первых исследованиях [1] скорости фазовых релаксаций в поглощающих центрах (молекулы в растворах) методами четырехфотонного рассеяния (ЧФР) было обращено внимание на насыщение эффективности процесса, выражающееся в уменьшении значений коэффициента преобразования K при увеличении плотности мощности накачки I_p . Коэффициент K связывает отношение интенсивностей сигнальной I_s и пробной I_q волн с плотностями мощности волн накачки I_{p1} и I_{p2} :

$$I_s/I_q \sim K^2 I_{p1} I_{p2}. \quad (1)$$

В области небольших плотностей мощности накачки I_{p1} и I_{p2} измеряемое значение коэффициента K_{exp} практически не зависит от I_{p1} и I_{p2} , оставаясь пропорциональным значению коэффициента ЧФР - K_{fps} , описывающего только процесс ЧФР, а также модулю нелинейной поляризуемости третьего порядка: $K_{exp} \sim K_{fps} \sim |\chi^{(3)}|$. Упрощенное по сравнению с имеющимися в литературе

(см., например, [1]) использованное в [2] соотношение (1) предназначено для исследований зависимости K от расстройки $\Delta\nu = \nu_1 - \nu_2$ в узкой области небольших значений плотности мощности накачки I_p . Для исследований же эффекта насыщения в широкой области значений I_p необходимо еще ввести рассмотрение зависящие от I_p параметры:

$$K_{exp} \sim K_{fp}, n_0/n(I_p)F(I_p). \quad (2)$$

Здесь n – концентрация центров в объекте, n_0 – концентрация центров в основном состоянии, принимающих участие в процессе ЧФР, а также определяющих коэффициент поглощения объекта $\epsilon = n_0\sigma_\alpha$. Функция распространения $F(I_p)$ выражает потери всех излучений I_s , I_q , I_{p1} и I_{p2} в оптически плотном объекте исследования. Зависимость отношения n_0/n от I_p , описывающая также насыщение поглощения (обратимое фотообесцвечивание), будет рассмотрена ниже.

В [1] и ряде других работ насыщение ЧФР приписывается развитию конкурирующих с ЧФР нелинейных процессов более высокого порядка. Представляется, однако, также вероятным механизм насыщения ЧФР, вызванный световым гашением когерентности состояний (СГКС) оптических центров, индуцированной в них при когерентной накачке. В процессе СГКС центр M_c^* , получивший при оптической накачке когерентную поляризацию, подвергаясь даже небольшому возмущению следующим квантом того же поля накачки, испытывает нарушение фазы индуцированного в нем цуга колебаний ($M_c^* \xrightarrow{h\nu} M^*$) и выпадает, таким образом, из когерентной волны поляризации, распространяющейся в объекте. Оптическое сечение σ_δ светового гашения когерентности состояния центра должно существенно превосходить сечения σ_α - и σ_γ -поглощения и вынужденного излучения. По своему проявлению СГКС сходно со световым тушением флуоресценции [3], а по механизму близко к полемому уширению спектральных линий, хотя сечения этого процесса и СГКС могут различаться. Подчеркнем, что явление СГКС по существу универсально и должно быть ответственным за влияние плотности мощности накачки на эффективность всех явлений, определяемых участием когерентных состояний оптических центров.

Предлагаемое сообщение содержит рассмотрение на примере раствора родамина Б (РБ) экспериментальных данных, которые не только проявляют полное согласие с предположением об ответственности СГКС за насыщение ЧФР, но также позволяют получить значение оптического сечения σ_δ светового гашения когерентности состояния центра.

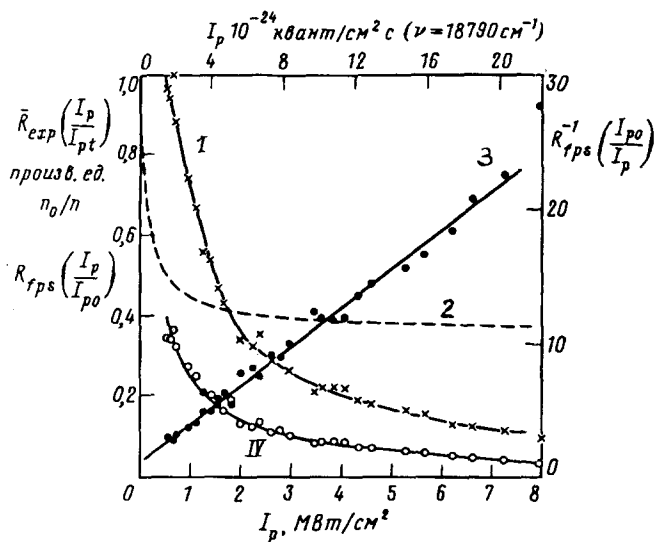
На рисунке насыщение ЧФР в растворе РБ в этаноле показано кривой I в виде зависимости отношения \bar{K}_{exp} измеряемых значений коэффициента преобразования:

$$\bar{K}_{exp} \left(\frac{I_p}{I_{pt}} \right) = \frac{\bar{K}_{exp}(I_p)}{\bar{K}_{exp}(I_{pt})}$$

от плотности мощности I_p излучения накачки (расшифровку обозначений см. ниже). Кривая I построена по данным, полученным Спиро в исследовании [2] внутренней структуры континуума в спектрах группы родаминов. Здесь приводятся некоторые необходимые сведения об условиях эксперимента. В этих опытах лазерные импульсы накачки создавали в объекте примерно одинаковые плотности мощности $I_{p1} \approx I_{p2}$, а также имели равные длительности $\Delta t_1 = \Delta t_2 =$

10 нс. При длительности возбужденного состояния РБ в растворе $\tau = T_1 = 3,35$ нс это позволяет приближенно рассматривать процесс ЧФР в исследуемой системе как квазистационарный. В качестве пробной I_q использовалась одна из волн накачки $I_q = I_{p1}$. Обозначение $I_q = I_{p1} = I_{p2}$ как I_p упрощает дальнейшее изложение. Значения K_{exp} определялись в эксперименте [2] и в расчетах как

$$K_{exp}^2 = \frac{I_s}{I_q I_{p1} I_{p2}} = \frac{I_s}{I_p^3}. \quad (3)$$



Родамин Б (РБ) в этаноле. Насыщение четырехфотонного рассеяния. Зависимости от плотности мощности накачки I_p . Кривая 1 – усредненные отношения экспериментальных значений суммарных коэффициентов преобразования $R_{exp}(I_p/I_{pt})$ в произвольных единицах; 2 – расчетные значения доли n_0/n молекул РБ в основном электронном состоянии (насыщение поглощения); 3 – обратные значения отношения коэффициентов ЧФР $R_{fps}^{-1}(I_{po}/I_p)$ в абсолютных единицах; 4 – значения отношения коэффициентов ЧФР – $R_{fps}(I_p/I_{po})$ в абсолютных единицах

Частота излучения накачки составляла $\nu_1 = 18790 \text{ см}^{-1}$, расстройка $\Delta\nu = 1 \text{ см}^{-1}$ была достаточна для пространственной селекции импульса I_s . Все четыре импульса I_{p1} , I_{p2} , I_q и I_s , тесно расположенные в области максимума полосы поглощения РБ, характеризуются практически одинаковыми значениями сечения поглощения $\sigma_\alpha = 2,2 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2$ и вынужденного излучения $\sigma_\gamma = 1,25 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2$. Исследуемый слой раствора имел оптическую плотность $D = 0,9$ при толщине $l = 0,1 \text{ мм}$. В этом оптически плотном слое по направлению луча развиваются три процесса: ЧФР, поглощение всех излучений и фотообесцвечивание, взаимодействуя сложным образом. Эти взаимодействия требуют некоторого рассмотрения.

Большая оптическая плотность слоя, и в первую очередь поглощение излучения в нем, приводит к появлению пороговой плотности мощности I_{pt} накачки, определяемой расходом энергии на поддержание соответствующего значению I_p отношения концентраций n_0/n в процессе фотообесцвечивания, а также необходимостью обеспечения генерации сигнальной волны с интенсивностью I_s , достаточной для обнаружения на фоне помех, и, наконец, формой начального участка кривой тушения (см. ниже). Поэтому кривая 1 на рисунке, начинаясь от пороговой плотности мощности $I_{pt} \approx 0,5 \text{ МВт/см}^2$ ($1,5 \cdot 10^{24}$ квант/см²·с), при которой появляется измеримый сигнал, представляет зависимость от плотности мощности накачки I_p экспериментальных значений усредненного по слою отношения: $\bar{R}_{exp}(I_p/I_{pt}) = \bar{K}_{exp}(I_p)/\bar{K}_{exp}(I_{pt})$ констант

\bar{K}_{exp} , определяемых по измерениям суммарного сигнала I_{ss} , генерируемого в оптически плотном слое. Сигнал I_{ss} можно рассматривать как сумму сигналов I_{si} , генерируемых в m тонких подслоях при значениях n_{0i} , I_{pi} и F_i в каждом i -м подслое. Очевидно, усредненные по интервалу $I_p - I_{pt}$ значения $\bar{R}_{exp}(I_p/I_{pt})$ здесь выражены в произвольных единицах, зависящих от значений пороговой плотности мощности I_{pt} и оптической плотности D -слоя.

Подчеркнем, однако, что для анализа исследуемых явлений необходима зависимость от I_p отношения

$$R_{fps} \left(\frac{I_p}{I_{p0}} \right) = \frac{K_{fps}(I_p)}{K_{fps}(I_{p0})},$$

выраженного в абсолютных единицах для оптически тонкого слоя при постоянных значениях n_0 , I_p и F . Здесь $K_{fps}(I_{p0})$ – значение коэффициента ЧФР при малой плотности мощности I_{p0} и практическом отсутствии СГКС.

Коэффициент $C(I_p)$ перехода от суммарных значений $\bar{K}_{exp}(I_p)$ для сложного сигнала от оптически плотного слоя к значениям $K_{fps}(I_p)$ для сигнала от оптически тонкого слоя

$$K_{fps}(I_p) = C(I_p) \bar{K}_{exp}(I_p) \quad (4)$$

зависит от распределения по лучу в оптически плотном слое концентрации n_0 молекул РБ в основном состоянии, которые (см. (2)) непосредственно участвуют в процессе ЧФР и, кроме этого, определяют значение функции $F(I_p)$, учитывающей потери на поглощение в объекте интенсивностей I_{p1} , I_{p2} и I_q от входной поверхности до i -го слоя, а также интенсивности I_{si} от i -го слоя до выходной поверхности. Значение n_0 , определяемое процессом фотообесцвечивания, зависит от I_p . Эта зависимость

$$\frac{n_0}{n} = \frac{2\sigma_\alpha I_p + T_1^{-1}}{2(\sigma_\alpha + \sigma_\gamma) I_p + T_1^{-1}}, \quad (5)$$

которая следует из простейших кинетических соотношений для двухуровневой схемы электронных состояний молекулы РБ в стационарных условиях, представлена кривой 2 на рисунке. Здесь учтено, что в некогерентном процессе фотообесцвечивания (как и в процессе СГКС) действует сумма мощностей накачки $I_b = I_{p1} + I_{p2}$.

Значения коэффициента перехода $C(I_p)$ были определены для каждого значения плотности мощности накачки I_p как отношение мощности I_{s1} сигнальной волны от первого по ходу луча тонкого подслоя к мощности $\sum_{i=1}^m I_{si}$ сигнала от всех m подслоев, образующих исследуемый оптически плотный слой. Значения I_{si} вычислялись по (3) и (2) с использованием (5) для определения n_{0i} , а следовательно, и оптических параметров процесса для i -го подслоя. Вычисления коэффициента $C(I_p)$ были проведены во втором приближении при $m = 5$.

Пользуясь (5), был реализован переход от набора усредненных значений $\bar{R}_{exp}(I_p/I_{pt})$ (кривая 1) к набору $R_{fps}(I_p/I_{pt})$ для l -го подслоя, который так же, как \bar{R}_{exp} , выражен в произвольных единицах. Набор обратных значений $R_{fps}^{-1}(I_{pt}/I_p)$ обнаруживает их вполне удовлетворительную линейную зависимость от I_p (точки на прямой 3 на рисунке), требуемую уравнением светового гашения когерентности (6б):

$$R_{fps} \left(\frac{I_p}{I_{p0}} \right) = \frac{K_{fps}(I_p)}{K_{fps}(I_{p0})} \sim \frac{n_c^*}{n^*} = \frac{T_2^{-1}}{2\sigma_\delta I_p + T_2^{-1}} \quad (6a)$$

$$R_{fps}^{-1} \left(\frac{I_{p0}}{I_p} \right) = 1 + 2\sigma_\delta T_2 I_p. \quad (66)$$

Выражения (6) получаются из простых кинетических соотношений в предположении, что коэффициент ЧФР $K_{fps}(I_p)$ линейно пропорционален концентрации $n_c^*(I_p)$ когерентно возбужденных центров¹⁾.

Переход от произвольных значений $R_{fps}^{-1}(I_{pt}/I_p)$ к абсолютным значениям $R_{fps}^{-1}(I_{p0}/I_p)$ реализуется путем замены произвольного масштаба, в котором была построена прямая 3 (см. рисунок), на абсолютный, принимая за новую единицу масштаба значение $R_{fps}^{-1}(I_{p0}/I_p)$ в точке пересечения продолжения этой прямой с осью ординат²⁾. Эта замена масштаба произведена для показанной на рисунке прямой 3 и по полученным абсолютным значениям $R_{fps}^{-1}(I_{p0}/I_p)$ построена кривая СГКС 4 (см. рисунок), представляющий уравнение (6а).

Основные результаты работы представлены, однако, прямой 3 на рисунке.

Во-первых, хорошее согласие экспериментальных данных с уравнением (66) доказывает, что именно световое гашение когерентности состояний служит основной причиной эффекта насыщения ЧФР. Более того, имея универсальный характер, СГКС является причиной влияния плотности мощности накачки на эффективность различных явлений, определяемых участием когерентных состояний. Процесс СГКС развивается, начиная от малых значений мощности накачки I_p до ее высоких значений, при которых появляется параллельное СГКС действие эффектов высших порядков, вызывающее отклонения от прямой 3 (см. рисунок), начинающиеся около $I_p = 7 - 8$ МВт·см².

Во-вторых, из прямой 3 непосредственно следует значение сечения СГКС для молекул РБ в этаноле, равное $\sigma_\delta \approx 5,7 \cdot 10^{-12}$ см², которое на 4 порядка превышает значение сечения поглощения $\sigma_\alpha = 2,2 \cdot 10^{-16}$ см². Следует здесь подчеркнуть перспективность исследований сечений световой дефазировки σ_δ для изучения деталей фотофизических процессов в молекулах.

Точность полученной оценки значения сечения σ_δ определяется главным образом упрощающими предположениями, принятыми при обработке экспериментальных данных. В их числе квазистационарность процесса ЧФР, двухуровневая схема состояний молекулы РБ, средние значения I_p , то есть П-образная форма импульсов накачки, линейная зависимость коэффициента ЧФР — K_{fps} от концентрации n_c^* когерентно возбужденных центров и, наконец, экстраполяция кривой 3 к оси ординат. Некоторые соображения об этих приближениях приведены выше в тексте. Приемы оценки точности и ее повышения для всех этих допущений достаточно разработаны, поэтому значения σ_δ могут быть, очевидно, изучены с достаточной точностью.

¹⁾ В пользу этого предположения свидетельствует согласие с экспериментом закономерности (66), основанной на предположении $K_{fps} \sim n_c^*$. Этот факт может быть полезен для выяснения механизма ЧФР. Как указывалось, в некогерентном процессе СГК действующая плотность мощности равна $I_\delta = I_{p1} + I_{p2}$.

²⁾ Такая линейная экстраполяция не передает хода нелинейной зависимости R_{fps}^{-1} от I_p в области $I_p < 0,5(\sigma_\delta T_2)^{-1}$, где интервал между встречами кванта накачки с оптическим центром превышает время T_2 существования когерентности центра. Можно, однако, показать, что рассматриваемая здесь точка пересечения представляет также начало сублинейной квадратичной зависимости, переходящей в прямую 3 около $I_p = 0,5(\sigma_\delta T_2)^{-1}$.

Что касается приведенной оценки значений σ_δ , можно утверждать, что даже при самых неблагоприятных оценках погрешностей порядок величины σ_δ определен правильно.

Главный же результат работы – формулировка и доказательство определяющей роли светового гашения когерентности состояний – в насыщении когерентных процессов сохраняет свое значение независимо от рассмотренных выше предложений, упрощающих обработку данных эксперимента.

Автор пользуется возможностью выразить признательность д.т.н. В.Б.Шилову за внимание и интерес к работе, а также к.ф.-м.н. А.Г.Спиро за предоставленные данные.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект 93-02-14330).

-
1. T.Yajima and H.Souma, Phys. Rev. A **17**, 309 (1987).
 2. Б.С.Непорент, А.Г.Спиро, Опт. и спектр **78**, (1995).
 3. М.Д.Галанин, Б.П.Кирсанов, З.А.Чижикова, Письма в ЖЭТФ **9**, 502 (1969).