Изв. АН Эстонии. Физ. Матем., 1989, 38, № 3, 348—351
https://doi.org/10.3176/phys.math.1989.3.16

УДК 353.33

Инна РЕБАНЕ

ТЕОРИЯ ДВУХСТУПЕНЧАТОГО ИМПУЛЬСНОГО ФОТОВЫЖИГАНИЯ СПЕКТРАЛЬНЫХ ПРОВАЛОВ В ЧЕТЫРЕХУРОВНЕВЫХ СИСТЕМАХ

Inna REBANE. NELJANIVOOLISTES SÜSTEEMIDES TOIMUVA SPEKTRAALSÄLKUDE KAHE-ASTMELISE IMPULSSFOTOSÄLKAMISE TEOORIA

Inna REBANE. THEORY OF TWO-STEP PULSED PHOTOBURNING OF SPECTRAL HOLES IN FOUR-LEVEL SYSTEMS

(Представил В. Хижняков)

Фотовыжигание спектральных провалов (СП) [1–3] широко используется как метод устранения неоднородного уширения спектров. Оно имеет также многообещающие приложения в оптической информатике. Двухступенчатое выжигание СП позволяет освободиться от такого неприятного явления, как порча записанной ранее оптической информации при считывании. При двухступенчатом выжигании селективное возбуждение первой ступени «закрепляется» фотохимическим превращением через вторую ступень возбуждения [4–8]. В работе [9] было теоретически показано, что в трехуровневой системе при выжигании двумя импульсами с временной задержкой между ними можно получить провалы намного у́же, чем при выжигании монохроматическим светом (эффект компенсации ширин [10]).

Во многих случаях двухступенчатое выжигание осуществляется по четырехуровневой схеме [5–8]. Вначале (первым импульсом) селективно возбуждается уровень 1 (переход $0\rightarrow1$), далее система релаксирует на промежуточный уровень $1'$. Последующее поглощение второго импульса переходом $1'\rightarrow2$ индуцирует эффективное выжигание спектрального провала. В данном сообщении теоретически рассматривается двухступенчатое выжигание в этой системе и определяются условия получения эффекта компенсации ширин.

Кинетику образования провала удобно рассматривать как преобразование функции неоднородного распределения (ФНР) центров по частоте данного перехода $\varrho(\Omega, t)$ [11]. В рассматриваемом случае четырехуровневых систем необходимо ввести трехмерную ФНР, учитывающую неоднородное распределение частот Ω_{01}, $\Omega_{11'}$ и $\Omega_{1'2}$ переходов $0\rightarrow1$, $1\rightarrow1'$ и $1'\rightarrow2$. В результате выжигания трехмерная ФНР изменяется во времени по экспоненциальному закону, если выполняются некоторые условия [11]:

$$\varrho(\Omega_{01}, \Omega_{11'}, \Omega_{1'2}, t)=\varrho_0(\Omega_{01}, \Omega_{11'}, \Omega_{1'2}) \exp\left[-P(\Omega_{01}, \Omega_{11'}, \Omega_{1'2}, t)\right]. \quad (1)$$

Здесь ϱ_0 описывает трехмерное неоднородное распределение, существовавшее до взаимодействия центров со световыми импульсами, причем области частот Ω_{01}, $\Omega_{11'}$, $\Omega_{1'2}$ не перекрываются, P — вероятность выжигания, т. е. вероятность выхода центра из резонанса с возбуждающими импульсами к моменту t. При условии достаточно малой интенсивности возбуждения можно рассмотреть процесс двухступенчатого возбуждения в четырехуровневой системе в третьем порядке теории возмущений:

$$P(\Omega_{01}, \Omega_{11'}, \Omega_{1'2}, t) =$$

$$= \alpha \int_{-\infty}^{t} dt' \int\int_{-\infty}^{t'} dt_1\, dt'_1\, S_2(t_1, t'_1) \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \int_{-\infty}^{t'_1} dt'_2 \int_{-\infty}^{t_2} dt_3 \int_{-\infty}^{t'_2} dt'_3\, S_1(t_3, t'_3) \times$$

$$\times F(t', t_1, t'_1, t_2, t'_2, t_3, t'_3), \qquad (2)$$

где $S_1(t_3, t'_3)$ и $S_2(t_1, t'_1)$ — корреляционные функции первого и второго (селектирующего и закрепляющего) светового импульса, F — корреляционная функция четырехуровневой системы, α — квантовый выход фотопревращения центра с уровня 2. Переходя к пределу $t \to \infty$, вероятность выжигания $P(\Omega_{01}, \Omega_{11'}, \Omega_{1'2}) \equiv \lim_{t\to\infty} P(\Omega_{01}, \Omega_{11'}, \Omega_{1'2}, t)$ с помощью формулы (1) определяет окончательный провал в ФНР ϱ. Далее, как и в [9], рассмотрим случай короткого закрепляющего импульса:

$$S_2(t_1, t'_1) = S_{20}\delta(t_1 - \tau_2)\,\delta(t'_1 - \tau_2), \qquad (3)$$

где S_{20} — константа, τ_2 — момент прохождения центра закрепляющим импульсом. Получаем вероятность выжигания

$$P(\Omega_{01}, \Omega_{11'}) =$$

$$= \alpha S_{20} \int_{\tau_2}^{\infty} dt' \int\int_{-\infty}^{\tau_2} dt_2\, dt'_2 \int_{-\infty}^{t_2} dt_3 \int_{-\infty}^{t'_2} dt'_3 S_1(t_2, t'_2)\, F(t', \tau_2, \tau_2, t_2, t'_2, t_3, t'_3). \qquad (4)$$

Предположим, как и в [9], что селектирующий импульс когерентный и затухает по экспоненциальному закону:

$$S_1(t_3, t'_3) = \theta(t_3 - \tau_1)\,\theta(t'_3 - \tau_1)\,\Delta \exp\left[i\omega_0(t_3 - t'_3) - \frac{\Delta}{2}(t_3 + t'_3 - 2\tau_1) \right] \qquad (5)$$

($\tau_1 < \tau_2$), где τ_1 — начальный момент прохождения центра селектирующим импульсом, ω_0 и Δ — частота его максимума и спектральная ширина, т. е. полная ширина на половине высоты.

Для описания четырехуровневой системы используем модель, в которой релаксационные процессы на возбужденных уровнях 1 и 1′ описываются константами энергетической (продольной) γ_1 и γ_1' и чисто-фазовой (поперечной) релаксаций Γ и Γ', на уровне 2 — константой энергетической релаксации γ_2. Соответствующая корреляционная функция четырехуровневой системы следующая (для трехуровневой системы см. [9]):

$$F(t', t_1, t'_1, t_2, t'_2, t_3, t'_3) = C \exp\,[-\gamma_2(2t' - t_1 - t'_1)/2 - i\Omega_{1'2}(t_1 - t'_1) -$$

$$- i\Omega_{11'}(t_2 - t'_2) - i\Omega_{01}(t_3 - t'_3) - \gamma_1(t_2 + t'_2 - t_3 - t'_3)/2 - \qquad (6)$$

$$- \gamma'_1(t_1 + t'_1 - t_2 - t'_2)/2 - \Gamma(t_2 - t_3 + t'_2 - t'_3 + |t_2 - t'_2| + |t_3 - t'_3| -$$

$$- |t_2 - t'_3| - |t' - t_3|)/2 - \Gamma'(t_1 - t_2 + t'_1 - t'_2 + |t_1 - t'_1| + |t_2 - t'_2| -$$

$$- |t_1 - t'_2| - |t'_1 - t_2|)/2],$$

где C — константа, содержащая также константу, описывающую взаимодействие между уровнями 1 и 1′, приводящее к релаксации $1 \to 1'$.

При малых дозах облучения и после фотовыжигания ФНР ϱ будет иметь вид:

$$\varrho(\Omega_{01}, \Omega_{11'}) \approx \varrho_0(\Omega_{01}, \Omega_{11'})\,[1 - P(\Omega_{01}, \Omega_{11'})],$$

где

$$P(\Omega_{01}, \Omega_{11'}) = \varepsilon\{\exp(-\Delta T)\,[(\Gamma'+a')/|\alpha'_1|^2 + \Gamma(\Gamma+\Gamma'+a+a')/$$
$$/a|\beta_1|^2]/a'|\alpha_1|^2 + \exp(-\gamma_1 T)\,(\Gamma-a)\,(\Gamma+\Gamma'-a+a')/$$
$$/a(a-a')\,|\alpha_2|^2|\beta_2|^2 + \exp(-\gamma'_1 T)\,[F_0/|\alpha'_2|^2 +$$
$$+(\Gamma+\Gamma'+a-a')\,(\Gamma+a-2a')/(a'-a)]/a'|\alpha_3|^2|\beta_3|^2 + \qquad (7)$$
$$+\exp[-(\Gamma+\gamma_1+\Delta)T/2]\,[\exp(-ixT)F_1 + \text{c. c.}]/|\alpha_1|^2 +$$
$$+\exp[-(\Gamma'+\gamma'_1+\Delta)T/2]\,[\exp(-ix'T)F_2 + \text{c. c.}]/|\alpha_1|^2 +$$
$$+\exp[-(\Gamma+\Gamma'+\gamma_1+\gamma'_1)T/2]\,[\exp(-i\Omega_{11'}T)F_3 + \text{c. c.}]\}.$$

Здесь $\varepsilon = \alpha S_{20} C \Delta \gamma_2^{-1}$, $T = \tau_2 - \tau_1$, $a = \gamma_1 - \Delta$, $a' = \gamma'_1 - \Delta$, $x = \Omega_{01} - \omega_0$, $x' = \Omega_{01} + \Omega_{11'} - \omega_0$,

$\alpha_1 = ix + (\Gamma+a)/2$, $\qquad \beta_1 = i\Omega_{11'} + (\Gamma+\Gamma'+a+a')/2$,

$\alpha_2 = ix + (\Gamma-a)/2$, $\qquad \beta_2 = i\Omega_{11'} + (\Gamma+\Gamma'-a+a')/2$,

$\alpha_3 = ix + (\Gamma+a-2a')/2$, $\qquad \beta_3 = i\Omega_{11'} + (\Gamma+\Gamma'+a-a')/2$,

$\alpha'_1 = ix' + (\Gamma'+a')/2$, $\qquad \beta_4 = i\Omega_{11'} + (-\Gamma+\Gamma'-a+a')/2$,

$\alpha'_2 = ix' + (\Gamma'-a')/2$,

$F_0 = -2\,\mathrm{Re}\,(\alpha_3\alpha'_2\beta_3)$,

$F_1 = [1/\alpha'^*_1 + 1/\beta_4 - \Gamma(1/\alpha'^*_1 + 1/(\alpha'_1 - 2ix))/\alpha_2]/\alpha_3$,

$F_2 = [1/\alpha'_1 - 1/\beta_4]/\alpha'_2$ и

$F_3 = [1/\alpha'_1 + \Gamma(1/(\alpha'_1 - 2ix)\beta_1 - 2/|\alpha_2|^2)]/\alpha^*_1\beta_2\beta_3$.

При условии резонанса селектирующего импульса с переходом $0 \to 1$ $|x| \sim \gamma_1, \Gamma, \Delta, \gamma'_1, \Gamma'$ и $|x'| \sim |\Omega_{11'}| \gg |x|$, т. е. можно положить $|\alpha'_1|^2 \sim |\alpha'_2|^2 \sim |\beta_1|^2 \sim |\beta_2|^2 \sim |\beta_3|^2 \sim \Omega^2_{11'}$ и $\mathrm{Re}\,(\alpha_3\alpha'_2\beta_3) \sim (\Gamma+a-2a')\Omega^2_{11'}$. Таким образом, вероятность выжигания следующая:

$$P(\Omega_{01}, \Omega_{11'}) \simeq \varepsilon\{\exp(-\Delta T)\,[(\Gamma'+a') + \Gamma(\Gamma+\Gamma'+a+a')/a]/a'|\alpha_1|^2 +$$
$$+\exp(-\gamma_1 T)\,(\Gamma-a)\,(\Gamma+\Gamma'-a+a')/a(a-a')\,|\alpha_2|^2 + \exp(-\gamma'_1 T)\times$$
$$\times(\Gamma+\Gamma')\,(\Gamma+a-2a')/a'(a'-a)\,|\alpha_3|^2\}/\Omega^2_{11'} +$$
$$+ \text{интерференционные члены.} \qquad (8)$$

Анализ формулы (8) показывает, что с ростом времени задержки T между импульсами провал в ФНР по частоте Ω_{01} монотонно сужается и предельная (т. е. при $T \to \infty$) ширина провала σ определяется лоренцианами $|\alpha_1|^{-2}$, $|\alpha_2|^{-2}$ или $|\alpha_3|^{-2}$ в зависимости от того, какой из параметров Δ, γ_1 или γ_1' наименьший. Таким образом, при $\Delta < \gamma_1, \gamma_1'$ или $\gamma_1 < \Delta, \gamma_1'$ ширина $\sigma = \Gamma + |\gamma_1 - \Delta|$. Этот результат совпадает с полученным в [9] для трехуровневой системы. Для проявления эффекта компенсации, т. е. для того, чтобы ширина провала σ была бы существенно меньше ширины $\sigma_0 = \Gamma + \gamma_1$, получаемой при выжигании монохроматическим светом, нужно подобрать $\Delta \sim \gamma_1$ (а также должно выполняться условие $\Gamma \leqslant \gamma_1$).

К сожалению, в известных случаях двухступенчатого выжигания промежуточный уровень $1'$ является метастабильным (долгоживущим) состоянием (например, T_1-состояние в молекулярных примесях [6–8]), т. е. $\gamma_1' \ll \gamma_1$. Тогда предельная ширина провала при $\gamma_1' < \Delta$ $\sigma =$

$=\Gamma+\gamma_1+\Delta-2\gamma_1'$. Для того чтобы $\sigma<\sigma_0$, надо иметь $\Delta<2\gamma_1'$. Или при $\Delta<\gamma_1'$ ширина $\sigma=\Gamma+\gamma_1-\Delta$. К сожалению, из-за малости γ_1' σ отличается от σ_0 незначительно, и проявление эффекта компенсации ширин слабое.

Автор благодарен В. Хижнякову, Я. Кикасу и К. К. Ребане за обсуждение работы.

ЛИТЕРАТУРА

1. *Гороховский А. А., Каарли Р. К., Ребане Л. А.* // Письма в ЖЭТФ, 1974, **20**, 474—479; Opt. Commun., 1976, **16**, 282—284.
2. *Kharlamov, B. M., Personov, R. I., Bykovskaya, L. A.* // Opt. Commun., 1974, **12**, 191—193.
3. *Rebane, K. K., Rebane, L. A.* // Persistent Spectral Hole-Burning: Science and Applications (ed. W. E. Moerner). Berlin; Heidelberg, Springer Verlag, 1988, 17—77.
4. *Winnacker, A., Shelby, R. M., Macfarlane, R. M.* // Opt. Lett., 1985, **10**, 350.
5. *Friedrich, J., Haarer, D.* // Angew. Chim., 1984, **23**, № 2, 113—140.
6. *Коротаев О. Н., Донской Е. И., Глядковский В. И.* // Опт. и спектр., 1985, **59**, вып. 3, 492—494.
7. *Lee, H. W. H., Gehrtz, M., Marinero, E. E., Moerner, W. E.* // Chem. Phys. Lett., 1985, **118**, № 6, 611—616.
8. *Lenth, W., Moerner, W. E.* // Opt. Commun., 1986, **58**, № 4, 249—254.
9. *Rebane, I. K.* // Phys. stat. sol. (b), 1988, **145**, 749—757.
10. *Ребане И. К., Туул А. А., Хижняков В. В.* // ЖЭТФ, 1979, **77**, вып. 4, 1302—1312.
11. *Rebane, L. A., Gorokhovskii, A. A., Kikas, J. V.* // Appl. Phys. B, 1982, **29**, 235—250.

Институт физики
Академии наук Эстонской ССР

Поступила в редакцию
21/II 1989