https://doi.org/10.3176/phys.math.1985.4.15

EESTI NSV TEADUSTE AKADEEMIA TOIMETISED.
FÜÜSIKA * MATEMAATIKA
ИЗВЕСТИЯ АКАДЕМИИ НАУК ЭСТОНСКОЙ ССР. ФИЗИКА * МАТЕМАТИКА
PROCEEDINGS OF THE ACADEMY OF SCIENCES OF THE ESTONIAN SSR.
PHYSICS * MATHEMATICS

1985, 34, 4

УДК 535.33

Инна РЕБАНЕ

ФОТОХИМИЧЕСКОЕ ВЫЖИГАНИЕ СПЕКТРАЛЬНОГО ПРОВАЛА КОРОТКИМ ИМПУЛЬСОМ

Inna REBANE. FOTOKEEMILINE AUGUPÕLETAMINE LÜHIKESE IMPULSIGA

Inna REBANE. PHOTOCHEMICAL HOLE BURNING WITH SHORT PULSE

(Представил В. Хижняков)

Метод фотохимического выжигания провала [1, 2] находит все более широкое применение в спектроскопии конденсированного состояния вещества [3, 4]. Используется не только выжигание квазимонохроматическим светом в стационарном режиме, но и свет сложного спектрального состава, а также световые импульсы [5]. В работе [6] развита классическая теория отклика селективной фотохромной среды на последовательность пикосекундных импульсов. Вместе с тем отсутствует квантовая теория взаимодействия одиночного импульса с селективной фотохромной средой, длительность которого сравнима или меньше характерных времен релаксации среды.

Моделируем процесс фотохимического выжигания провала следующим образом. Рассмотрим ансамбль двухуровневых систем $\{0, 1\}$ с неоднородным распределением $\varrho(\Omega_{01}, t)$ энергии Ω_{01} перехода $0\to 1$. Под действием светового импульса, содержащего резонансную с этим переходом частоту, система из состояния 0 переходит в возбужденное состояние 1, и далее с определенной вероятностью происходит превращение возбужденной системы, в результате чего она перестает поглощать на прежней частоте $0\to 1$ перехода. Это превращение будем описывать как переход на некоторый третий уровень 2.

В результате прохождения светового импульса через селективную фотохромную среду функция неоднородного распределения энергии [3] оптического перехода двухуровневых систем будет иметь вид

$$\varrho(\Omega_{01}, t) = \varrho_0(\Omega_{01}) \exp[-P(\Omega_{01}, t)] \simeq \varrho_0(\Omega_{01})[1 - P(\Omega_{01}, t)], \qquad (1)$$

где $\varrho_0(\Omega_{01})$ — первоначальная функция неоднородного распределения, $P(\Omega_{01}, t)$ — вероятность того, что к моменту времени t система испытывает переход в состояние 2.

При прохождении короткого импульса малой интенсивности разумно предположить, что $P(\Omega_{01}, t) \ll 1$ и тем самым пренебречь эффектами насыщения контура провала, существенными для стационарного возбуждения. В таком приближении возможно рассмотреть квантовомеханический процесс образования провала, используя теорию возмущений.

Используя формулы теории зависящего от времени вторичного свечения [7] можем написать

$$P(\Omega_{01}, t) = \int d\Omega\, W(\Omega_{01}, \Omega, t); \qquad (2)$$

где $W(\Omega_{01}, \Omega, t)$ — вероятность того, что к моменту t система оказалась в состоянии 2, испустив энергию Ω:

$$W(\Omega_{01},\Omega,t)=\int\limits_{-\infty}^{t}\!\!\int dt_1\,dt'_1\int\limits_{-\infty}^{t_1}dt_2\int\limits_{-\infty}^{t'_1}dt'_2\exp\left[i\Omega(t_1-t'_1)\right]S(t_2,t'_2)\times$$
$$\times a_{\Omega_{01}}(t'_1-t_1,\ t'_1-t'_2,\ t_1-t_2), \tag{3}$$

где $a_{\Omega_{01}}(t'_1-t_1,\ t'_1-t'_2,\ t_1-t_2)$ — корреляционная функция системы, $S(t_2,t'_2)$ — корреляционная функция импульса.

$$a_{\Omega_{01}}(t'_1-t_1,\ t'_1-t'_2,\ t_1-t_2)=\langle v^+_\omega\exp\left[i(H+i\gamma)(t_1-t_2)\right]v^+_\Omega\times$$
$$\times\exp\left[iH(t'_1-t_1)\right]v_\Omega\exp\left[-i(H-i\gamma)(t'_1-t'_2)\right]v_\omega\times$$
$$\times\exp\left[-iH(t'_2-t_2)\right]\rangle_0, \tag{4}$$

где v_ω и v_Ω — однофотонные матричные элементы, описывающие соответственно уничтожение фотона частоты ω и рождение фотона частоты Ω, ω — средняя частота возбуждающего излучения; H — гамильтониан системы, γ — оператор радиационного затухания. $\langle\ldots\rangle_0$ означает усреднение по начальным состояниям системы.

Из (2)—(4) получаем для $P(\Omega_{01},t)$:

$$P(\Omega_{01},t)=\int\limits_{-\infty}^{t}dt_1\int\!\!\int\limits_{-\infty}^{t_1}dt_2\,dt'_2\,S(t_2,t'_2)\,a_{\Omega_{01}}(0,\ t_1-t'_2,\ t_1-t_2) \tag{5}$$

или, используя новые переменные интегрирования $\tau=t_1-t_2$, $\tau'=t_1-t'_2$:

$$P(\Omega_{01},t)=\int\limits_{-\infty}^{t}dt_1\int\!\!\int\limits_{0}^{\infty}d\tau\,d\tau'\,S(t_1-\tau,\ t_1-\tau')\,a_{\Omega_{01}}(0,\tau',\tau). \tag{6}$$

Для получения выжженного провала перейдем к пределу $t\to\infty$ и, используя

$$S(t_1-\tau,\ t_1-\tau')=\int\!\!\int\limits_{-\infty}^{\infty}d\omega_1\,d\omega_2\,S(\omega_1,\omega_2)\exp\left[i\omega_1(t_1-\tau)-i\omega_2(t_1-\tau')\right], \tag{7}$$

получаем

$$P(\Omega_{01})\equiv P(\Omega_{01},\infty)=\int\limits_{-\infty}^{\infty}d\omega\,S(\omega,\omega)\int\!\!\int\limits_{0}^{\infty}d\tau\,d\tau'\exp\left[i\omega(\tau'-\tau)\right]a_{\Omega_{01}}(0,\tau',\tau).$$

Используя

$$\varkappa(\Omega_{01},\omega)\equiv\int\!\!\int\limits_{0}^{\infty}d\tau\,d\tau'\exp\left[i\omega(\tau'-\tau)\right]\langle v^+_\omega\exp\left[i(H+i\gamma)(\tau-\tau')\right]v_\omega\times$$
$$\times\exp\left[iH(\tau'-\tau)\right]\rangle_0 \tag{8}$$

— поглощение на частоте ω, $\alpha\equiv v_\Omega{}^+v_\Omega$ — вероятность превращения возбужденного светом системы и $J(\omega)\equiv S(\omega,\omega)$ — интенсивность возбуждающего света на частоте ω (квадрат модуля фурье-компоненты), получаем окончательно

$$P(\Omega_{01})=\alpha\int\limits_{-\infty}^{\infty}d\omega\,J(\omega)\,\varkappa(\Omega_{01},\omega). \tag{9}$$

Таким образом, в рассматриваемом случае однофотонного процесса образования провала, получаемый спектральный провал одинаков как при выжигании одиночным импульсом, так и при стационарном выжигании (в условиях отсутствия эффектов насыщения), если только дозы выжигания на каждой частоте одинаковы. (Здесь доза — это суммарное число фотонов за все время воздействия света на фотохромную пленку).

Отметим, что одиночный импульс здесь означает быстрое возбуждение любой формы, лишь бы длительность его была короче времени фазовой памяти среды. В частности, импульс может состоять из двух частей — опорного и сигнального импульса голографической записи [5, 6]. В этом случае $J(\omega)$ включает в себя должным образом интерференционный член.

Автор признательна К. К. Ребане за предложение темы исследования и В. В. Хижнякову за ценное обсуждение.

ЛИТЕРАТУРА

1. *Гороховский А. А., Каарли Р. К., Ребане Л. А.* Письма в ЖЭТФ, **20**, вып. 7, 474—479 (1974); Opt. Commun., **16**, № 2, 282—284 (1976).
2. *Kharlamov, B. M., Personov, R. I., Bykovskaya, L. A.* Opt. Commun., **12**, № 2, 191—193 (1974).
3. *Rebane, L. A., Gorokhovskii, A. A., Kikas, J. V.* Appl. Phys., **B29**, 235—250 (1982).
4. *Friedrich, J., Haarer, D.* Angew. Chem., **23**, № 2, 113—140 (1984).
5. *Ребане А. К., Каарли Р. К., Саари П. М.* Опт. и спектр., **55**, вып. 3, 405—407 (1983); Письма в ЖЭТФ, **38**, вып. 7, 320—323 (1983); *Саари П. М. Каарли Р. К., Ребане А. К.* Квантовая электроника, **12**, вып. 4, 672—681 (1985).
6. *Саари П., Ребане А.* Изв. АН ЭССР. Физ. Матем., **33**, № 3, 322—332 (1984).
7. *Хижняков В., Ребане И.* Изв. АН ЭССР. Физ. Матем., **26**, № 3, 260—280 (1977); *Хижняков В. В., Ребане И. К.* ЖЭТФ, **74**, вып. 3, 885—896 (1978).

Институт физики
Академии наук Эстонской ССР

Поступила в редакцию
18/IV 1985