

Реальные свойства поверхности дифракционной решетки и отражение излучения от элементов конструкции в монохроматоре создают определенный фон рассеянного излучения. Мы оценили, что при использовании водородной лампы доля рассеянного излучения при длине волны 160,8 нм составляет около 10^{-3} .

Заключение

Применение неклассической дифракционной решетки позволяет создать вакуумный монохроматор весьма компактной конструкции для широкого спектрального диапазона, который с успехом может применяться для решения многих задач спектроскопии.

Автор глубоко благодарен П. Паасмяе, А. Вахт, Х. Локко, Р. Рянкел и Н. Герулис за участие в работе при создании монохроматора.

ЛИТЕРАТУРА

1. Старцев Г. П., Савушкин А. В., Тверитинов М. П. // Сб. докладов II советско-французского симпозиума по оптическому приборостроению (Москва, 16—18 марта 1981 г.). Москва, 1982, 222—229.
2. Гладущак В. И., Шрейдер Е. Я. // ЖПС, 1967, № 6, 437—440.

Институт физики
Академии наук Эстонской ССР

Поступила в редакцию
23/XII 1988

Изв. АН Эстонии. Физ. Матем., 1989, 38, № 4, 449—452

УДК 535.33

М. РЯТСЕП

СТИМУЛИРОВАННОЕ СВЕТОВОЕ ЭХО В F-ЦЕНТРАХ КВr

M. RÄTSEP. STIMULEERITUD FOOTONKAJA KVr-KRISTALLI F-TSENTRITEL

M. RÄTSEP. STIMULATED PHOTON ECHO OBSERVED ON F-CENTRES IN KVr

(Представил П. Саари)

1. Стимулированное световое эхо (СЭ) проявляется в эксперименте как запаздывающий во времени оптический отклик на возбуждение системы примесных атомов или молекул последовательно тремя световыми импульсами [1, 2]. Механизм возникновения СЭ можно представить как результат модуляции спектра третьего импульса за счет его взаимодействия со спектральной решеткой, наведенной в неоднородно уширенной полосе поглощения совместным когерентным действием первых двух возбуждающих импульсов. Согласно преобразованию Фурье отмеченная модуляция спектра и проявляется во временной зависимости прошедшего сигнала (точнее, затухания свободной поляризации) в виде импульса СЭ. Если возбуждающие импульсы действуют в моменты времени $t_1=0$, $t_2>0$, $t_3>t_2$, то СЭ наблюдается как четвертый импульс в момент времени $t_4=t_2+t_3$. СЭ — когерентное явление, интенсивность которого зависит от процессов фазовой релаксации,

нарушающих когерентность возбужденных светом атомных или молекулярных состояний. Поэтому СЭ широко используется для изучения указанных процессов [2-7]. Один из видов СЭ — фотохимически аккумулярованное стимулированное СЭ — позволяет осуществлять пространственно-временную голографию сверхбыстрых процессов [8]. Достоинство метода СЭ — возможность исследовать как медленные, так и быстрые процессы релаксации при наличии неоднородного уширения. Особенно перспективным в этой связи является метод [5-7, 9-11], основанный на использовании спектрально широких лазерных импульсов света с малым значением времени когерентности τ_c и делителя луча совместно с линией задержки. Важно подчеркнуть, что в этом методе временно разрешение при исследовании процессов релаксации не ограничено длительностью самих импульсов τ_p , а определяется, скорее, временем когерентности возбуждающих импульсов, т. е. обратной величиной их спектральной ширины $\tau_c \sim \sigma^{-1}$. Например, при использовании импульсов, имеющих спектральную ширину в несколько сотен обратных сантиметров, время когерентности τ_c равно нескольким десяткам фемтосекунд. Поэтому метод СЭ с лазерными импульсами большой спектральной ширины может использоваться для изучения сверхбыстрых процессов в веществе, таких, например, как колебательная динамика молекулярных систем и кристаллов. В работе [12], где рассматривается влияние колебаний ядер молекулярных систем и кристаллов на СЭ в пико- и субпикосекундной области, показано, что в области очень малых времен t_2 и t_3 — гораздо меньших периодов колебаний — роль неоднородностей в системе могут играть колебательные смещения ядер. При сильном электронно-колебательном взаимодействии СЭ будет наблюдаться не только на неоднородно уширенных, но и на однородных полосах поглощения. Причина возникновения СЭ в следующем: на начальном этапе колебательной релаксации в области времени t , меньшем или порядка характерного времени дефазировки $\sim \bar{\omega}^{-1}s^{-1/2}$, электронная энергия изменяется гораздо меньше, чем ширина полосы поглощения $\sigma \sim \bar{\omega}s^{1/2}$ ($\bar{\omega}$ — средняя частота колебаний, s — безразмерные стоксовы потери). Поэтому при $s \gg 1$ в актуальной для дефазировки области времен $t \sim \sigma^{-1}$ колебания проявляются почти как статические флуктуации, а колебательное уширение полосы поглощения — как квазиоднородное. В результате СЭ имеет конечную, но малую в сравнении с характерным временем колебательной релаксации $t_r \gg \bar{\omega}^{-1}$ длительность. Целью данной работы является экспериментальное наблюдение СЭ в кристалле КВг с F-центрами — в типичной системе с сильным электронно-колебательным взаимодействием при резонансном оптическом переходе.

2. Источником широкополосного излучения служил лазер на красителе (ЛК), который накачивался эксимерным лазером на ХеС1. При этом для достижения максимально широкого спектра генерации в резонаторе ЛК дифракционная решетка была заменена на зеркало с высоким коэффициентом отражения. С использованием красителя родамин С получена спектральная ширина 11 нм при генерации на длине волны 604 нм. Такому спектру соответствует ширина пика автокорреляционной функции импульсов возбуждения $\tau_c \sim 100$ фс.

Импульсы ЛК направлялись в интерферометр типа Майкельсона, где формировалась пара импульсов с волновыми векторами \mathbf{k}_1 и \mathbf{k}_2 , которые посылались на объект под углом 2° относительно друг друга (рис. 1). Интервал между импульсами t_{12} изменялся при помощи регулируемой линии задержки. Поскольку длительность импульсов ($\tau_p \sim 10$ нс) была гораздо больше, чем времена t_{12} и t_r , то в качестве третьего зондирующего импульса выступала задняя часть второго импульса. Сигнальный импульс СЭ наблюдался в направлении $\mathbf{k}_3 =$

$=2k_2 - k_1$ (при $t_{12} > 0$) или в направлении $k_4 = 2k_1 - k_2$ (при $t_{12} < 0$). Односторонность сигнала позволяла отличать СЭ от явления самодифракции (подробно см. [8]). Объектом исследования служил монокристалл КВ с F-центрами толщиной $\sim 0,7$ мм и оптической плотностью $D=0,9$ при $\lambda=605$ нм. Объект погружали в гелиевый криостат, где температура поддерживалась около 2 К. Импульсы с частотой 10 Гц и пиковый интенсивностью ~ 1 кВт фокусировались на площадь ~ 1 мм². Распространяющиеся в направлениях k_3 и k_4 сигналы СЭ распределялись пространственной диафрагмой и попадали на фотоумножитель. Интенсивности сигналов в зависимости от задержки t_{12} регистрировались при помощи стробирующего усилителя и микроЭВМ [13].

3. На рис. 2 представлены сигналы СЭ, зарегистрированные в направлениях $k_3 = 2k_2 - k_1$ и $k_4 = 2k_1 - k_2$ в зависимости от временной задержки t_{12} между импульсами. При положительных значениях задержки $t_{12} = t_2 - t_1$ импульс в направлении k_2 поступал на образец после импульса в направлении k_1 , а при прохождении в ходе сканирования задержки точки $t_{12} = 0$ порядок поступления импульсов менялся на обратный, что соответствует отрицательной задержке на рис. 2. Сигналы в обоих направлениях сдвинуты относительно друг друга на

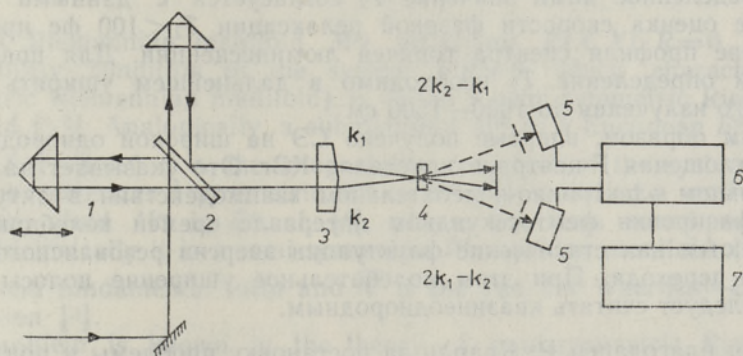


Рис. 1. Схема экспериментальной установки. 1 — линия задержки, 2 — светоделитель, 3 — призма Френеля, 4 — объект в криостате, 5 — фотоумножитель, 6 — стробирующий усреднитель, 7 — регистрирующее устройство.

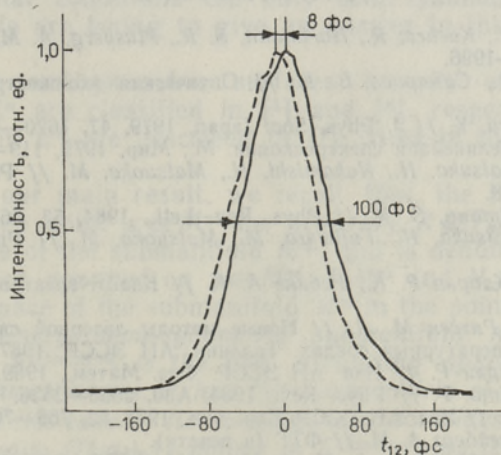


Рис. 2. Интенсивность СЭ в направлениях $k_3 = 2k_2 - k_1$ (сплошная линия) и $k_4 = 2k_1 - k_2$ (штриховая линия) в зависимости от задержки t_{12} между импульсами возбуждения k_1 и k_2 .

8 ± 4 фс. Ширина кривой СЭ ~ 100 фс, что совпадает в пределах точности измерения с шириной пика автокорреляционной функции лазерных импульсов, измеряемой по методике неколлинеарной генерации второй гармоники в кристалле КДР. Форма измеряемого сигнала оказалась примерно симметричной, что также является следствием очень короткого времени дефазировки $T_2 \ll 100$ фс в исследуемой системе. Отметим, что измеряемый в данном эксперименте сигнал отклика может, в принципе, помимо собственно СЭ содержать при $t_{12} \ll \tau_c$ определенный вклад простой самодифракции импульсов из-за наведенной светом пространственной интерференционной решетки. Однако, в этом случае вклад должен быть незначительным, так как при комнатной температуре сигнал самодифракции на данной резонансной среде не наблюдался. Признаком определяющего вклада СЭ в сигнал отклика является также наблюдаемый четкий сдвиг максимумов интенсивности сигналов в направлениях k_3 и k_4 относительно нулевого значения задержки t_{12} . По измеренной величине этого сдвига ~ 8 фс и, учитывая результаты теории [12], получаем оценку времени фазовой релаксации для F-центра в кристалле КВг ~ 10 фс.

Этот результат находится в хорошем согласии с теоретическими оценками [12], согласно которым $T_2 \sim \bar{\omega}^{-1} s^{1/3} \sim 10^{-14}$ с. Отметим также, что определенное нами значение T_2 согласуется с данными работы [14], где оценка скорости фазовой релаксации $T_2 < 100$ фс проведена на основе профиля спектра горячей люминесценции. Для повышения точности определения T_2 необходимо в дальнейшем уширить спектр лазерного излучения до $1000-1500$ см^{-1} .

Таким образом, впервые получено СЭ на широкой однородной полосе поглощения F-центра в кристалле КВг. Это указывает на то, что при сильном электронно-колебательном взаимодействии в актуальном для дефазировки фемтосекундном интервале времен колебания ядер проявляются как статические флуктуации энергии резонансного электронного перехода. При этом колебательное уширение полосы поглощения следует считать квазиоднородным.

Автор благодарен Р. Каарли за постановку проблемы и поддержку, П. Саари и В. Хижнякову за постоянный интерес и полезные обсуждения.

ЛИТЕРАТУРА

1. Mossberg, T. W., Kachru, R., Hartmann, S. R., Flusberg, A. M. // Phys. Rev., 1979, A20, 1976—1996.
2. Маныкин Э. А., Самарцев В. В. // Оптическая эхо-спектроскопия. М., Наука, 1984.
3. Yajima, T., Taira, Y. // J. Phys. Soc. Japan, 1979, 47, 1620—1626.
4. Брюер Р. // Нелинейная спектроскопия. М., Мир, 1979, 119—175.
5. Fujita, H., Nakatsuka, H., Nakamishi, H., Matsuoka, M. // Phys. Rev. Lett., 1984, 53, 974—978.
6. Beach, R., Hartmann, S. R. // Phys. Rev. Lett., 1984, 53, 663—666.
7. Asaka, S., Nakatsuka, H., Fujiwara, M., Matsuoka, M. // Phys. Rev., 1984, A29, 2286—2289.
8. Саари П. М., Каарли Р. К., Ребане А. К. // Квант. электроника, 1985, 12, 672—682.
9. Каарли Р. К., Рятсен М. Л. // Новые методы лазерной спектроскопии молекул в низкотемпературных средах. Таллинн, АН ЭССР, 1987, 39—40.
10. Рятсен М., Каарли Р. // Изв. АН ЭССР. Физ. Матем., 1989, 38, № 1, 58—66.
11. Morita, N., Yajima, T. // Phys. Rev., 1984, A30, 2525—2536.
12. Хижняков В. В. // Изв. АН СССР. Сер. физ., 1988, 52, 765—769.
13. Кукк П. Л., Фрейберг А. М. // ФТГ (в печати).
14. Савихин С. Ф., Фрейберг А. М. // Изв. АН СССР. Сер. физ., 1985, 49, 2049—2053.