

Измерение времен релаксации когерентной поляризации в конденсированных средах методом фемтосекундной интерференционной спектроскопии

В.О.Компанец, Ю.А.Матвеец, С.В.Чекалин

Описан сверхскоростной (с разрешением 20 фс) спектрометр для исследования интерференции волн поляризации при резонансном возбуждении конденсированных сред фемтосекундными лазерными импульсами. Измерены времена поперечной релаксации $T_2 < 20$ и 50 фс в оптических средах с существенно различающимися неоднородными уширениями.

Ключевые слова: фемтосекундные импульсы, интерференционная спектроскопия.

Для исследования как некогерентных (релаксация населенностей возбужденных состояний), так и когерентных (дефазировка наведенной макроскопической поляризации) быстропротекающих фотостимулированных процессов в твердом теле используются лазеры, генерирующие УКИ с длительностями, меньшими характерных времен соответствующих процессов. Расфазировка возбужденных диполей с частотами в пределах неоднородной линии уширения в твердом теле при комнатной температуре может происходить с характерными временами вплоть до 10^{-13} – 10^{-14} с. Быстропротекающие когерентные процессы исследуются различными методами, в частности методом возбуждение–зондирование (pump–probe), при помощи которого измеряется динамика изменения отражения или поглощения возбужденного образца [1]. Однако в последнем случае возникают экспериментальные трудности, связанные с появлением паразитного сигнала вблизи нулевой задержки [2], т. е. именно тогда, когда характерные времена исследуемых процессов сопоставимы с длительностью лазерного импульса, что очень важно в прямых измерениях характерных времен дефазировки T_2 .

Для исследования таких процессов применяются интерференционные методы с фемтосекундным временным разрешением, позволяющие получить фазовую информацию [3, 4]. Когерентные процессы могут быть легко и точно зарегистрированы при помощи оптической линейной корреляционной фемтосекундной техники. Этот вид эксперимента намного проще стандартного метода возбуждение–зондирование и может применяться в случае очень слабого сигнала или малой мощности возбуждения.

Метод интерференции волн поляризации при резонансном возбуждении конденсированных сред фемтосекундными лазерными импульсами состоит в следующем. Фемтосекундный импульс с помощью интерферометра Майкельсона разделяется на два идентичных коллинеарных импульса одинаковой интенсивности и поляризации. Эти два импульса, выходящие из интерферометра, падают на образец, индуцируя в нем две когерентные волны

поляризации, которые интерферируют между собой, если время задержки сравнимо с T_2 . Полученная интерференционная картина (зависимость интенсивности излучения от задержки между двумя импульсами, падающими на образец) регистрируется чувствительным детектором. Область измеряемых времен T_2 определяется длительностью используемого в эксперименте лазерного импульса. В предлагаемой схеме эта длительность не превышает 20 фс, что позволяет измерять на порядок меньшие времена, чем в работах [3, 4].

Для реализации описанного метода использовался лазер фемтосекундных импульсов на кристалле титаната сапфира, накачиваемый непрерывным излучением аргонового ионного лазера («Спектра-физикс») с мощностью 4 Вт и нестабильностью не хуже 1%. Частота следования определялась временем полного прохода импульса по резонатору генератора и составляла 82 МГц. Длительность импульсов на выходе была равна около 60 фс при полуширине спектра ~ 60 – 70 нм с максимумом на 800 нм. Для укорочения импульса использовался внешний двухпризмный компрессор, на выходе которого достигалась длительность импульса менее 20 фс при средней мощности излучения около 100 мВт.

После компрессора излучение в оптической схеме интерферометра Майкельсона делилось полупрозрачным зеркалом на два плеча, в одно из которых помещалась линия задержки (рис. 1). Линия задержки в свою очередь состояла из глухого зеркала, расположенного на микро-

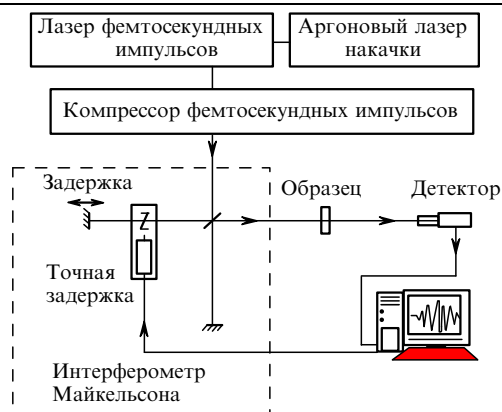


Рис. 1. Схема интерференционного спектрометра.

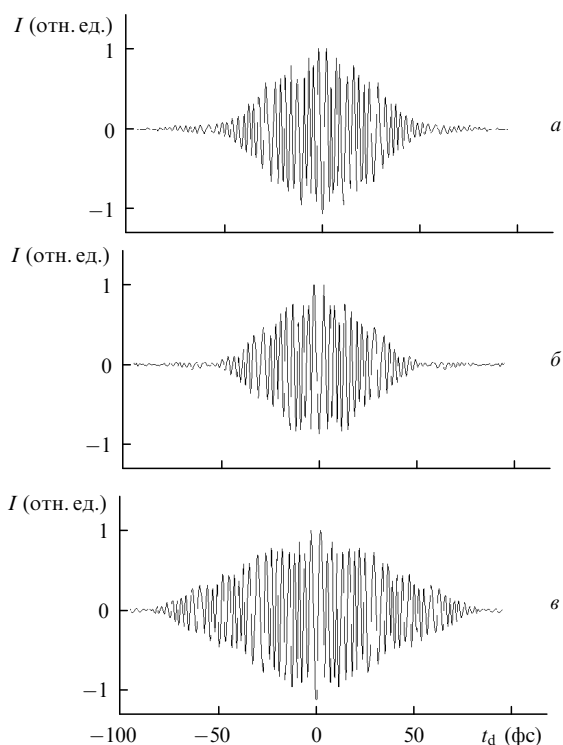


Рис.2. Экспериментальные интерферограммы без образца (а), для СЗС-21 (б) и для ПС-7 (в).

метрическом столике для грубого выравнивания плеч интерферометра, и устройства прецизионной задержки, выполненного в виде плоскопараллельной кварцевой пластинки толщиной 2 мм на поворотном столике. Поворот пластинки (плавное изменение задержки импульса) осуществлялся шаговым двигателем, управляемым компьютером, с погрешностью меньше 0.15 фс.

Исследуемые образцы помещались на выходе интерферометра непосредственно перед синхронным детектором, измеряющим зависимость интенсивности интерфе-

ренционной картины от задержки. В качестве контрольных образцов использовались стандартные оптические фильтры ПС-7 и СЗС-21 с максимумом поглощения на длине волны лазера (вблизи 800 нм), но существенно разным неоднородным уширением (полуширина полосы ПС-7 ~ 40 нм была намного меньше полуширины полосы СЗС-21, которая составляла ~ 500 нм).

Из полученных зависимостей (рис.2) можно заключить, что время T_2 для широкополосного фильтра СЗС-21 не превышает длительности лазерного импульса, т. к. вид интерференционной картины практически не меняется при помещении фильтра на выходе интерферометра (ср. рис.2,а и б). Противоположная ситуация наблюдается для образца ПС-7 (рис.2,в). Для оценки времени T_2 в этом случае можно воспользоваться решением оптических уравнений Блоха для двухуровневой системы при малых энергиях возбуждения и слабо меняющейся огибающей импульса [4]. Детектируемый сигнал как функция задержки t_d имеет вид

$$I(t_d) \sim 1 + \cos(\omega_0 t_d) \exp(-t_d/T_2), \quad (1)$$

где ω_0 – резонансная частота, т. е. наблюдаемая интерференционная картина представляет собой циклические осцилляции с частотой ω_0 , экспоненциально спадающие со временем T_2 . Принимая во внимание то, что в нашем случае $1/\omega_0 \approx 2.7$ фс, можно оценить T_2 для ПС-7 из спада огибающей интерферограммы рис.2,в как ~ 50 фс.

Авторы благодарны А.Л.Добрякову за полезные обсуждения и В.А.Кислянскому за помощь в работе.

1. Shank C.V. In: *Ultrashort laser pulses and application* (Berlin, Springer-Verlag, 1988, p.5).
2. Kovalenko S.A., Dobryakov A.L., Ruthmann J., Ernsting N.P. *Phys.Rev.A*, **59**, 2369 (1999).
3. Ceccherini S., Bogani F., Gurioli M., Colocci M. *Optics Comms*, **132**, 77 (1996).
4. Gurioli M., Bogani F., Ceccherini S., Colocci M. *Phys.Rev.Letts*, **78**, 3205 (1997).