ДИФРАКЦИЯ ЗОНДИРУЮЩЕГО ЛУЧА НА НЕСТАЦИОНАРНЫХ ТЕПЛОВЫХ СТРУКТУРАХ В СИСТЕМАХ С НАСЫЩАЕМЫМИ ТРЕХУРОВНЕВЫМИ ЦЕНТРАМИ

Проведен анализ процесса оптической записи и распада нестационарных пространственных структур в системе с нелинейным откликом, обусловленным некогерентным насыщением трехуровневых центров. Основное внимание уделено тепловому механизму фазовой записи в средах с коэффициентом теплопроводности, не зависящим от температуры. Исследованы релаксация неоднородного температурного поля и дифракция зондирующего луча на нестационарной структуре.

Оптическая запись неоднородной картины освещенности означает изменение параметров среды в соответствии с локальной интенсивностью света [1-2]. Линейный отклик системы на фотовоздействие обеспечивает регистрацию изображения без искажений, и во многих случаях это свойство носителя записи молчаливо предполагается [3-8]. С другой стороны, безусловно, оно присуще лишь идеальной, в обсуждаемом смысле, матрице.

В данной работе мы рассматриваем случай, когда нелинейный отклик системы возникает в результате наличия у фотохромных центров ловушечного уровня, отвечающего метастабильному возбужденному состоянию. Мы покажем, что качество нестационарной оптической записи в системах, содержащих такие уровни, зависит от времени экспозиции таким образом, что в некотором диапазоне продолжительности освещенности фоточувствительной матрицы искажения в регистрации изображения увеличиваются.

Описание населенности уровней ограничим рассмотрением балансной схемы, полагая фазовую релаксацию системы завершенной на рассматриваемых временных масштабах. Выделим три активных уровня с энергиями E₀, E_s, Е_т, отвечающими состояниям 0 (основное), S (первое возбужденное синглетное) и Т (нижнее по энергии триплетное). Суммарную скорость спонтанной дезактивации S-состояния обозначим $1/\tau_S^* = 1/\tau_S + K_{ST}$, включив в нее скорость $1/\tau_{s}$ распада по синглетному каналу, объединяющего ветви излучательного (S->0) и безызлучательного (S~>0) распада, а также скорость К_{ST} интерконверсии (S~>T). Соответственно скорость спонтанной дезактивации Тсостояния обозначим как 1/т_т. Населенности состояний 0, S, T будем обозначать соответственно через n₀, n₅, n_т. В результате облучения фоточувствительного материала на его поверхности z = 0 и в толще матрицы (0 < z < 1) возникает картина неоднородной освещенности – в соответствии с поперечной пространственномодулированной интенсивностью светового потока I(r, t). Вектор r = r(x, y) лежит в плоскости, перпендикулярной оси z.

Кинетика населенностей

Для простоты анализа рассмотрим случай оптически тонкого слоя, и тогда г можем считать находящимся на поверхности образца (z=0) [9]. Сечение поглощения для перехода 0->S обозначим через σ . Тогда система балансных кинетических уравнений для населенностей n_0 , n_s , n_T может быть записана в виде

$$\frac{\partial \mathbf{n}_0}{\partial t} = -\sigma[\mathbf{n}_0(\mathbf{r},t) - \mathbf{n}_S(\mathbf{r},t)]\mathbf{I}(\mathbf{r},t) + \frac{1}{\tau_S}\mathbf{n}_S(\mathbf{r},t) + \frac{1}{\tau_T}\mathbf{n}_T(\mathbf{r},t)$$

$$\frac{\partial \mathbf{n}_{S}}{\partial t} = \sigma[\mathbf{n}_{0}(\mathbf{r},t) - \mathbf{n}_{S}(\mathbf{r},t)]\mathbf{I}(\mathbf{r},t) - \frac{1}{\tau_{S}}\mathbf{n}_{S}(\mathbf{r},t) - \mathbf{K}_{ST}\mathbf{n}_{S}(\mathbf{r},t)$$

$$\frac{\partial \mathbf{n}_{\mathrm{T}}}{\partial t} = \mathbf{K}_{\mathrm{ST}} \mathbf{n}_{\mathrm{S}}(\mathbf{r}, \mathbf{t}) - \frac{1}{\tau_{\mathrm{T}}} \mathbf{n}_{\mathrm{T}}(\mathbf{r}, \mathbf{t}) \,. \tag{1}$$

Причем в любой момент времени t выполняется условие интегрального баланса

$$n_0(r,t) + n_S(r,t) + n_T(r,t) = n, (n = const)$$
 (2)

отражающее факт отсутствия фотохимического (необратимого) расхода реагентов.

Если временная зависимость интенсивности I(r,t) имеет форму прямоугольного импульса продолжительностью t_0

$$I(r,t) = I_{\alpha}(r) = \begin{cases} I(r), & t < t_0 \\ 0, & t > t_0 \end{cases},$$
 (3)

система (1) сводится к системе линейных однородных уравнений с постоянными коэффициентами (зависимость от координаты r – параметрическая). Во время действия источника возбуждения ($t < t_0$) матрица А коэффициентов системы (1) и вектор-столбец n населенностей принимают вид

$$A = \begin{pmatrix} -\sigma I(r) & \tau_{S}^{-1} + \sigma I(r) & \tau_{T}^{-1} \\ \sigma I(r) & -[\tau_{S}^{-1} + K_{ST} + \sigma I(r)] & 0 \\ 0 & K_{ST} & -\tau_{T}^{-1} \end{pmatrix}, n = \begin{pmatrix} n_{0} \\ n_{S} \\ n_{T} \end{pmatrix}.(4)$$

Тогда система (1) может быть записана в виде $\dot{n} = An$, а формальное решение задачи n(t) = exp(At)n(0).

Одно из трех невырожденных собственных значений λ матрицы A – нулевое, а два других определяются следующим выражением

$$\lambda^{(\pm)} = -\frac{1}{2} \left(\tau_{\rm S}^{-1} + \tau_{\rm T}^{-1} + K_{\rm ST} + 2\sigma I(r) \right) \pm \\ \pm \frac{1}{2} \sqrt{\left(\tau_{\rm S}^{-1} - \tau_{\rm T}^{-1} + K_{\rm ST} + 2\sigma I(r) \right)^2 - 4K_{\rm ST}\sigma I(r)} .$$
(5)

Заметим, что в работе [10] при рассмотрении аналогичной балансной схемы не были учтены вынужденные переходы S \rightarrow 0, поэтому в выражении для λ у авторов [10] фигурирует слагаемое σ I, вместо 2σ I, как в (5). Кроме того, в физически разумной ситуации, когда $\tau_{s}^{-1} > \tau_{T}^{-1}$, комплексность λ не имеет места, даже при самых экзотических предположениях. Таким образом, собственные значения $\lambda^{(\pm)}$, представленные (5), – действительные и, как легко заметить, оба отрицательные, при любых значениях кинетических параметров и интенсивности накачки.

Стационарное решение системы $\dot{n} = An$, то есть системы An = 0, дает следующую картину населенностей

$$n_{S}^{\infty}(\mathbf{r}) = n \frac{\tau_{T}^{-1} \sigma I(\mathbf{r})}{\lambda^{(+)}(\mathbf{r}) \cdot \lambda^{(-)}(\mathbf{r})}; \ n_{T}^{\infty}(\mathbf{r}) = n \frac{K_{ST} \sigma I(\mathbf{r})}{\lambda^{(+)}(\mathbf{r}) \cdot \lambda^{(-)}(\mathbf{r})};$$
$$n_{0}^{\infty}(\mathbf{r}) + n_{S}^{\infty}(\mathbf{r}) + n_{T}^{\infty}(\mathbf{r}) = n.$$
(6)

Полагая, что $n_0(r,0) = n$, находим решение исходной системы (1) в виде

$$n_{S}(r,t) = n_{S}^{\infty}(r)$$

$$\begin{cases} 1 + \frac{\left[\left|\lambda^{(+)}(r)\right| + K_{ST}\tau_{T}\sigma I(r) - \tau_{T}^{-1}\right]}{\lambda^{(+)}(r) - \lambda^{(-)}(r)} \exp\left[-\left|\lambda^{(+)}(r)\right|t\right] - \\ - \frac{\left[\left|\lambda^{(-)}(r)\right| + K_{ST}\tau_{T}\sigma I(r) - \tau_{T}^{-1}\right]}{\lambda^{(+)}(r) - \lambda^{(-)}(r)} \exp\left[-\left|\lambda^{(-)}(r)\right|t\right] \end{cases}, (7)$$

$$n_{T}(r,t) = n_{T}^{\infty}(r) \cdot \left\{ 1 + \frac{\lambda^{(-)}(r) \exp\left[-\left|\lambda^{(+)}(r)\right|t\right] - \lambda^{(+)}(r) \exp\left[-\left|\lambda^{(-)}(r)\right|t\right]}{\lambda^{(+)}(r) - \lambda^{(-)}(r)} \right\}.$$
 (8)

Кинетика обеднения-восполнения населенности невозбужденного состояния определяется балансным соотношением (2).

Если наблюдение за перераспределением населенностей в трехуровневой системе осуществляется на временах t << τ_{T} , уравнения для n_{0} и n_{S} перестают зависеть от населенности n_{T} триплетного уровня. Порядок матрицы A в этом случае понижается до двух A \rightarrow Ã, а два собственных значения $\tilde{\lambda}^{(\pm)}$ редуцированной матрицы Ã соответствуют выражению (5), если положить в (5) скорость τ_{T}^{-1} равной нулю $\tau_{T}^{-1} = 0$:

$$\widetilde{\lambda}^{(\pm)} = -\frac{1}{2} \left(\tau_{\rm S}^{-1} + K_{\rm ST} + 2\sigma I(r) \right) \pm \\ \pm \frac{1}{2} \sqrt{\left(\tau_{\rm S}^{-1} + K_{\rm ST} + 2\sigma I(r) \right)^2 - 4K_{\rm ST}\sigma I(r)} .$$
(9)

Населенность $n_T(r,t)$ на этом кинетическом этапе монотонно растет, а населенность $n_0(r,t)$ монотонно убывает со временем. От общего решения (7)-(8) легко прийти к редуцированному варианту $t \ll \tau_T$ в результате предельного перехода $\tau_T^{-1} \rightarrow 0$:

$$n_{S}(\mathbf{r}, \mathbf{t} \ll \tau_{T}) =$$

$$= n\sigma \mathbf{I}(\mathbf{r}) \cdot \frac{\exp\left[-\left|\widetilde{\lambda}^{(+)}(\mathbf{r})\right| \mathbf{t}\right] - \exp\left[-\left|\widetilde{\lambda}^{(-)}(\mathbf{r})\right| \mathbf{t}\right]}{\widetilde{\lambda}^{(+)}(\mathbf{r}) - \widetilde{\lambda}^{(-)}(\mathbf{r})}, \quad (10)$$

$$n_{T}(\mathbf{r}, \mathbf{t} \ll \tau_{T}) =$$

$$= n \left\{ 1 + \frac{\widetilde{\lambda}^{(-)}(\mathbf{r}) \exp\left[-\left|\widetilde{\lambda}^{(+)}(\mathbf{r})\right|t\right] - \widetilde{\lambda}^{(+)}(\mathbf{r}) \exp\left[-\left|\widetilde{\lambda}^{(-)}(\mathbf{r})\right|t\right]}{\lambda^{\widetilde{(+)}}(\mathbf{r}) - \widetilde{\lambda}^{(-)}(\mathbf{r})} \right\}.(11)$$

Для часто встречающихся на практике случаев умеренной и слабой интенсивности накачки $K_{ST}, \tau_S^{-1} >> \sigma I_0$ решения (5)-(8) и (9)-(11) могут быть упрощены. Степенное разложение (5) с точностью до членов первого порядка приводит к следующему результату

$$\overline{\lambda}^{(+)} = -\tau_{\rm T}^{-1} - \frac{K_{\rm ST}\sigma I(r)}{\left(\tau_{\rm S}^{-1} - \tau_{\rm T}^{-1} + K_{\rm ST} + 2\sigma I(r)\right)}, \qquad (12)$$

$$\overline{\lambda}^{(-)} = -\left(\tau_{\rm S}^{-1} + K_{\rm ST} + 2\sigma I(r)\right) + \frac{K_{\rm ST}\sigma I(r)}{\left(\tau_{\rm S}^{-1} - \tau_{\rm T}^{-1} + K_{\rm ST} + 2\sigma I(r)\right)} (13)$$

На начальном этапе кинетики населенностей, при t << τ_T допустима дальнейшая редукция ($\tau_T^{-1} \rightarrow 0$) (12)-(13)

$$\overline{\lambda}_0^{(+)} = -\sigma \mathbf{I}(\mathbf{r})\boldsymbol{\varphi}_{\mathrm{T}}(\mathbf{r}) , \qquad (14)$$

$$\overline{\lambda}_{0}^{(-)} = - \left[\tau_{\rm S}^{-1} + K_{\rm ST} + \sigma I(r) (2 - \phi_{\rm T}(r)) \right], \qquad (15)$$

Естественные науки

где введена величина обобщенного квантового выхода $\phi_T(r)$ в T-состояние

$$\phi_{\rm T}({\rm r}) = \frac{{\rm K}_{\rm ST}}{\tau_{\rm S}^{-1} + {\rm K}_{\rm ST} + 2\sigma {\rm I}({\rm r})} \ . \eqno(16)$$

Анализ кинетики населенностей по завершению импульса воздействия, т. е. при $t > t_0$, проводится на основе сопряжения двух решений (в ходе накачки и после нее) в момент $t = t_0$.

В заключение этого раздела рассмотрим случай адиабатически медленного изменения интенсивности I(r,t) накачки по сравнению с характерным временным масштабом т_s перераспределения населенности в синглетной подсистеме уровней. Другими словами, будем считать, что малым параметром задачи является частота модуляции накачки: $(1/I)(\partial I/\partial t) \ll \tau_s^{-1}$. Если, кроме того, скорость K_{ST} интерконверсии $S \rightarrow T$ также мала по сравнению с эффективной скоростью $1/\tau_{s}^{*} + 2\sigma I(r,t)$ дезактивации S-состояния, проблема описания кинетики населенностей в трехуровневой системе указанного типа может быть решена на основе простых представлений о квазистационарном режиме населенностей в подсистеме S-уровней. Ограничимся рассмотрением «накопительного» этапа кинетики Т-центров ($\tau_{\rm T}^{-1} \rightarrow 0$). Решение системы (1) для населенности n_s(r,t) дает следующий результат

$$n_{S}(r,t) = \left[n_{0 \oplus S}(r,t)\right]_{ad} \frac{\sigma I(r,t)}{\tau_{S}^{-1} + K_{ST} + 2\sigma I(r,t)} , (17)$$

где $[n_{0\oplus S}(r,t)]_{ad}$ – адиабатически медленное изменение суммарной населенности синглетных уровней в результате необратимых интеркомбинационных переходов S \rightarrow T. Заменяя величину $[n_{0\oplus S}(r,t)]_{ad}$ в (17) разностью $n - n_T(r,t)$, а затем подставляя (17) в 3-е уравнение системы (1), получаем после интегрирования

$$n_{\rm T}(\mathbf{r},t) = n \left\{ 1 - \exp \left[-\sigma \int_{0}^{t} \Phi_{\rm T}(\mathbf{r},t') \mathbf{I}(\mathbf{r},t') dt' \right] \right\} . (18)$$

В (18) через Φ_{T} обозначен обобщенный квантовый выход в триплетное состояние T, который при больших интенсивностях I(r,t) накачки становится время- и координатнозависящей функцией

$$\Phi_{\rm T}({\rm r},{\rm t}) = \frac{{\rm K}_{\rm ST}}{\tau_{\rm S}^{-1} + {\rm K}_{\rm ST} + 2\sigma {\rm I}({\rm r},{\rm t})} \ . \tag{19}$$

При $K_{ST}, \tau_S^{-1} >> \sigma I_0$ функция $\Phi_T(r, t)$ вырождается в обычный числовой фактор, характеризующий спонтанные каналы распада S-состояния: $\Phi_T = K_{ST} / (\tau_S^{-1} + K_{ST})$.

Кинетика населенностей S-уровней в квазистационарном режиме определяется следующими выражениями, вытекающими из формул (17)-(18) и (2)

$$n_{0}(\mathbf{r}, \mathbf{t}) = n \left(1 - \frac{\sigma \mathbf{I}(\mathbf{r}, \mathbf{t})}{\tau_{s}^{-1} + \mathbf{K}_{sT} + 2\sigma \mathbf{I}(\mathbf{r}, \mathbf{t})} \right) \cdot \left| \exp \left[-\sigma \int_{0}^{t} \Phi_{T}(\mathbf{r}, \mathbf{t}') \mathbf{I}(\mathbf{r}, \mathbf{t}') d\mathbf{t}' \right], \qquad (21)$$

$$n_{S}(\mathbf{r}, \mathbf{t}) = n \frac{\sigma I(\mathbf{r}, \mathbf{t})}{\tau_{S}^{-1} + K_{ST} + 2\sigma I(\mathbf{r}, \mathbf{t})} \cdot \exp\left[-\sigma \int_{0}^{t} \Phi_{T}(\mathbf{r}, \mathbf{t}') I(\mathbf{r}, \mathbf{t}') d\mathbf{t}'\right].$$
(22)

Формулы для населенностей (18), (21)-(22) не учитывают спонтанного распада Т-состояния, поэтому они справедливы лишь при $t \ll \tau_T$. Заметим, что такого же рода выражения получаются из формул (10)-(11) с учетом (14)-(15) при нулевой частоте модуляции накачки (1/I)($\partial I/\partial t$) $\rightarrow 0$.

Подводя итог полученных в данном разделе результатов, можно говорить о времени $1/\lambda^{(+)}$ как времени записи неоднородной структуры – в случае возбуждения системы импульсом прямоугольной формы. При низкочастотной модуляции накачки и малом квантовом выходе $\Phi_{\rm T}({\rm r},{\rm t})$ время

$$\left[\frac{1}{T}\int_{0}^{T} \Phi_{T}(\mathbf{r},t')\sigma I(\mathbf{r},t')dt'\right]^{-1}$$

может быть интерпретировано как время формирования регистрационного отклика, совпадающее с $1/\lambda^{(+)}$ при $(1/I)(\partial I/\partial t) \rightarrow 0$.

На рис. 1-2 приведены результаты численных расчетов кинетики радиального распределения населенностей синглетного и триплетного уровней. При гауссовом распределении интенсивности накачки наблюдается нелинейный отклик в виде негауссовых профилей индуцированных S- и T-населенностей. С течением времени искажения профилей становятся все более отчетливо выраженными. При этом можно выделить две особенности:

а) некогерентное насыщение на уровне S проявляется уже при малых временах экспозиции в условиях высокой интенсивности накачки. В результате радиальный профиль населенности n_S искажается практически изначально, наблюдается характерное усечение его максимума, а поскольку населенность n_T пропорциональна интегралу по времени от населенности n_S , профиль $n_T(r)$ искажен соответственно;

б) при больших длительностях лазерного импульса возникает эффект неоднородного заселения Т-уровня из-за различия скорости «перекачки» населенности для разных г. В результате этого даже при слабой – ненасыщающей накачке профили населенностей искажаются более существенно в максимуме освещенности – вследствие более частых переходов $S \Rightarrow T$ в центре гауссова поля. По этой причине профиль населенности $n_S(r)$ с течением времени «проседает» в области малых г. На триплетном уровне искажения формы не столь заметны, но со временем нарастают и они.

Перераспределение населенностей $n_0(r,t)$, $n_S(r,t)$, $n_T(r,t)$ влечет за собой изменение оптических характеристик матрицы, содержащей фотоактивные центры. Таким образом, запись пространственной структуры освещенности I(r,t) может быть осуществлена на любой из трех подсистем состояний 0, S или T. Считывание



Рисунок 1. Населенность S-уровня как функция расстояния от оси лазерного пучка в моменты времени t: 10⁻⁸ (1), 4*10⁻⁸ (2) и 16*10⁻⁸ с.

Значения других параметров: $\sigma I_0 = 10^8 \, c^{-1}, n = 10^{18} \, cm^{-3}, K_{st} = \tau^{-1} = 10^8 \, c^{-1}.$



Рисунок 2. Населенность Т-уровня как функция радиуса освещенной зоны в моменты времени t: 10⁻⁸ (1), 4*10⁻⁸ (2) и 16*10⁻⁸ с. Значения остальных параметров – как и для рис.1.

зарегистрированного образа может быть произведено зондирующим лучом в полосе поглощения указанных состояний либо в результате его рефракции на прозрачном участке матрицы с пространственно-модулированным показателем преломления. В последнем случае наиболее универсальным механизмом фазовой записи является тепловая оптическая неоднородность.

Эволюция неоднородного теплового поля

Перераспределение населенностей $n_0(r,t)$, $n_S(r,t)$, $n_T(r,t)$ сопровождается безызлучательными процессами необратимой передачи энергии в решетку. Такое тепловыделение происходит при переходах $S \Rightarrow 0, S \Rightarrow T$, причем в первом случае величина кванта выделяемой энергии приблизительно в полтора-два раза выше, чем во втором. Однако в любом варианте мощности $q_{S0}(r,t), q_{ST}(r,t)$ объемной плотности тепловых источников определяются населенностью S-уровня, поскольку $q_{S0}(r,t) \sim (1/\tau_S^{rl})n_S(r,t)$ и $q_{ST}(r,t) \sim K_{ST}n_S(r,t)$. Через τ_{α}^{rl} здесь обозначено время перехода $\alpha \Rightarrow 0$.

При безызлучательных переходах T \Rightarrow 0 скорость соответствующего тепловыделения $q_{T0}(r,t) \sim (1/\tau_T^{rl})n_T(r,t)$. Вводя энергии квантов E_{S0}, E_{ST}, E_{T0} , для мощности тепловых источников синглетного $q_S(r,t)$ и триплетного $q_T(r,t)$ типа получаем

$$q_{S}(r,t) = [E_{S0} / \tau_{S}^{rl} + E_{ST}K_{ST}] n_{S}(r,t),$$
 (23)

$$q_{T}(r,t) = [E_{T0} / \tau_{T}^{rl}] n_{T}(r,t).$$
 (24)

Очевидно, что действие источников $q_T(r,t)$ начинает эффективно сказываться лишь при $t \sim \tau_T$.

Рассмотрим эволюцию температурного поля T(r,t) в матрице с трехуровневыми фотоактивными центрами при действии тепловых источников (23)-(24), инициированных лазерной накачкой интенсивности I(r,t).

Будем считать, что поглощающий образец представляет собой неограниченный по г оптически тонкий слой с теплоизолированными поверхностями. В этом случае T(r,t) не зависит от z, и $\partial T/\partial z = 0$. Тогда радиально-симметричный профиль освещенности будет порождать тепловое поле той же конфигурации. Уравнение теплопроводности в полярной системе координат записывается в виде

$$\frac{\partial T}{\partial t} = a^2 \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial T}{\partial r} \right) + f(r, t) , \qquad (25)$$

Естественные науки

где $a^2 = K/(c\rho)$, $a K, c, \rho$ – коэффициент теплопроводности, удельная теплоемкость и плотность матрицы соответственно. В данной работе будем считать все эти параметры постоянными. Функция f(r,t) в (25) имеет вид f(r,t) = q(r,t)/(c\rho), где q(r,t) = q_S(r,t) + q_T(r,t) – объемная плотность мощности эффективного теплового источника. Начальное условие для T(r,t) выбирается в виде T(r,0) = T₀, где T₀ = const – температура матрицы до фотоинициирования. Решение (25) определяет эволюцию температурного поля T(r,t) в виде

$$T(r,t) = T_0 + \int_0^t d\tau \int_0^{\infty} f(r',\tau) G(r,r'|t-\tau) 2\pi r' dr', \quad (26)$$

где функция Грина G(r,r'|t- τ) рассматриваемой краевой задачи [11]

$$G(\mathbf{r},\mathbf{r}'|t-\tau) =$$

$$= \frac{1}{4\pi a^{2}(t-\tau)} \exp\left[-\frac{\mathbf{r}^{2}+\mathbf{r}'^{2}}{4a^{2}(t-\tau)}\right] I_{0}\left[\frac{\mathbf{r}\mathbf{r}'}{2a^{2}(t-\tau)}\right], (27)$$

где $I_0(\xi) - функция Бесселя мнимого аргумента.$

На примере распределения $n_S(r,t)$, задаваемого (22), видим, что радиальный профиль интенсивности I(r,t) формирует неискаженный тепловой отклик $q_S(r,t) \sim I(r,t)$ лишь в случае малоинтенсивной накачки и отсутствия Т-уровня (либо $K_{ST} = 0$). В области значений параметров $rr'/(a^2t) >> 1$ (большая удаленность точки наблюдения r от центра освещенности и/или малое время после начала инициирования)

$$I_0\left[\frac{rr'}{2a^2(t-\tau)}\right] \approx \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{2a^2(t-\tau)}{rr'}} \exp\left[\frac{rr'}{2a^2(t-\tau)}\right],$$

и для гауссовой зависимости I(r) температурное поле (26) может быть приближенно представлено в аналитическом виде

$$T(\mathbf{r}, \mathbf{t}) = T_0 + \frac{E_{S0}n}{c\rho} \frac{\sigma I_0}{2\alpha\sqrt{\pi}} \frac{\tau_S}{\tau_S^{rl}} \cdot \frac{\int_{1/(1+\alpha t)}^1 \frac{\exp\left[-(r^2/R^2)\xi\right]}{\xi} d\xi, \qquad (28)$$

где $\alpha = 4a^2 / R^2$. Из (28) видно, что в начале процесса формируется гауссов профиль температурного поля, который затем деформируется со временем. Таким образом, даже в простейшем случае двухуровневой системы температурный отклик на световой импульс конечной продолжительности t_0 не сохраняет формы радиального распределения интенсивности I(r). При наличии T-уровня, но при t < $t_0 < \tau_T$, как следует из (22), даже при малых интенсивностях накачки распределение синглетных тепловых источников $q_S(r,t)$ не следует профилю I(r). Искажения отклика нарастают со временем, «срезая» верхушку гауссова «колокола».

При малых интенсивностях K_{ST} , $\tau_{S}^{-1} >> \sigma I_{0}$, но продолжительной накачке, когда $t_0 \ge \tau_T$, необходимо учитывать действие триплетных тепловых источников q_т(r, t). Для населенностей (7)-(8) используются собственные числа (12)-(13). Если накачка слаба настолько, что и $\tau_{\rm T}^{-1} >> \sigma I_0$, кинетика населенностей $n_S(r,t)$, $n_T(r,t)$ определяется показателем $\overline{\lambda}^{(+)}\approx \tau_T^{-1}$. В этом случае искажения отклика на «формирующий образ» I(r) вновь становятся минимальными, как и в случае очень малых времен для (28). Радиальное распределение мощности тепловых источников S- и Tтипа следует стационарной картине населенностей (6), т. е. становится пропорциональным I(r): $n_{\rm S}^{\infty}(\mathbf{r}) = n\sigma I(\mathbf{r})/(\tau_{\rm S}^{-1} + K_{\rm ST}), \ n_{\rm T}^{\infty}(\mathbf{r}) = n\phi_{\rm T}\tau_{\rm T}\sigma I(\mathbf{r}).$ Данные выводы подтверждаются результатами численного моделирования температурных полей на основе выражений (23)-(26).

Анализ тепловых полей в системе с некогерентным насыщением при возбуждении ее лазерным лучом с гауссовой формой импульса по радиусу показывает, что только при малых интенсивностях и малом времени накачки результирующее тепловое поле приближенно сохраняет профиль инициирующего излучения. При накачках $10^3 \le \sigma \cdot I_0 < 10^7 \text{ с}^{-1}$ и/или длительности импульса $\tau < 10^{-7}$ с искажения теплового поля малы, но они нарастают с увеличением τ (рис. 3).

При больших накачках (рис. 4), когда $\sigma \cdot I_0 \ge 10^8 \text{ c}^{-1}$, тепловое поле не гауссово изначально, и с течением времени распределение температуры приобретает форму все более близкую к прямоугольной.

Дифракция зондирующего луча на нестационарной тепловой структуре

«Считывание» записанного образа производится с помощью лазера малой мощности с малым поперечным сечением луча [12-15]. Неоднородное температурное поле в матрице, сформированное при записи («тепловая структура»), порождает градиент показателя преломления

$$\frac{\mathrm{dn}}{\mathrm{dr}} = \frac{\partial n}{\partial T} \frac{\partial T}{\partial r} \,.$$

При прохождении пробного луча через разогретый участок образца возникает различный набег фазы волны для точек с различными ко-

Кучеренко М.Г., Русинов А.П. Дифракция зондирующего луча на нестационарных тепловых структурах...

ординатами г. Прошедший пучок представляет собой результат интерференции вторичных волн от освещенной поверхности зондируемого слоя.

В качестве примера рассмотрим случай соосного расположения инициирующего и зондирующего пучков. Такая высокосимметричная конфигурация обеспечивает компактную форму выражений для наблюдаемых величин, сохраняя возможности для анализа исследуемых особенностей записи и распада в виде динамической тепловой структуры. Коаксиальный вариант оптической схемы снимает требование малости диаметра зондирующего пучка, заменяя его более «мягким» условием локализации освещенной зоны в области, прогретой инициирующим лучом.

Аксиально-симметричное поле напряженностей E(r',t) дифрагированной волны в плоскости наблюдения z = L имеет вид

$$E(\mathbf{r}', \mathbf{t}) = \frac{ik}{2\pi L} \int_{0}^{2\pi} d\phi \int_{0}^{\infty} r d\mathbf{r} E_{0}(\mathbf{r})$$
$$exp\left[-\frac{ik}{2L} \left(\mathbf{r}^{2} + \mathbf{r}'^{2} - 2r\mathbf{r}' \cos \phi\right) + i\Phi(\mathbf{r}, \mathbf{t})\right], \quad (29)$$



Рисунок 3. Радиальные профили температурного поля в моменты времени t < τ при слабой ($\sigma I_0 = 10^6 c^{-1}$) накачке: 10 (1), 20 (2) и 40 (3) мкс. Значения других параметров: n=10¹⁸ см⁻³, K_{ST} = $\tau^{-1} = 10^8 c^{-1}$, T₀=0.



Рисунок 4. Радиальные профили температурного поля в моменты времени $t < \tau$ при интенсивной ($\sigma I_0 = 10^8 c^{-1}$) накачке: 2 (1), 10 (2) и 20 (3) мкс. Значения остальных параметров такие же, как и для рис. 3.

где k = $2\pi/\lambda_p$; λ_p – длина волны излучения зондирующего лазера. Фазовый набег $\Phi(\mathbf{r}, t)$ для участка волны в области кольца (r,r+dr) разогретого l-слоя собственно и отвечает за термолинзовый эффект и определяется динамикой температурного поля $\Delta T(\mathbf{r}, t)$:

$$\Phi(\mathbf{r}, \mathbf{t}) = \mathbf{k} \frac{\partial \mathbf{n}}{\partial T} \int_{-1/2}^{1/2} \Delta T(\mathbf{r}, \mathbf{t} \mid \mathbf{z}) d\mathbf{z} = \mathbf{k} \frac{\partial \mathbf{n}}{\partial T} \mathbf{l} \Delta T(\mathbf{r}, \mathbf{t}) .$$
(30)

Изменения температурного поля $\Delta T(\mathbf{r}, \mathbf{t})$ могут содержать z-зависимость, если поглощающий слой нельзя считать оптически тонким, и/ или фронтальные поверхности $z = \pm 1/2$ не теплоизолированы. В (30) учтено, что оба условия выполнены. Напряженность поля падающей волны $E_0(\mathbf{r})$ в плоскости $z = -1/2 \approx 0$ в случае, когда область «перетяжки» зондирующего пучка вынесена за пределы слоя на расстояние z_1 , определяется известными выражениями

$$E_{0}(\mathbf{r}) = E_{00} \frac{w_{0}}{w(z_{1})} \exp\left[-r^{2}\left(\frac{1}{w^{2}(z_{1})} + \frac{ik}{2R(z_{1})}\right)\right]$$
$$w^{2}(z) = w_{0}^{2}\left(1 + z^{2}/z_{0}^{2}\right), \ R(z) = z\left(1 + z_{0}^{2}/z^{2}\right),$$
$$z_{0} = \pi w_{0}^{2}n/\lambda_{p}.$$
(31)

Интенсивность I(r',t) света в плоскости фотоприемника z = L определяется амплитудой (29): I(r',t) = $|E(r',t)|^2$. В качестве регистрируемого сигнала может выступать как локальная интенсивность I(r',t) в области узкой круговой полосы (r',r'+dr'), так и интегральная характеристика – энергия W(t) излучения в круговой области фиксированного радиуса R_0 :

$$W(t) = \int_{0}^{R_0} I(r', t) 2\pi r' dr'.$$

На рис. 5 и 6 представлены результаты расчета термолинзового сигнала при дифракции пробного луча на тепловых структурах, записанных в условиях линейного отклика, и в нелинейном режиме, обусловленном некогерентным насыщением в системе трехуровневых центров. В качестве характеристики фототермического отклика использовалась локальная интенсивность света в центре экрана наблюдения: I(t) = I(0, t). По сравнению с сигналом дифракции на гауссовом тепловом поле изменения интенсивности сфокусированного луча при детектировании искаженной (негауссовой) структуры меньше по амплитуде, но сложнее по форме, что обуславливает большую информативность измерений. Такой сигнал характеризует не только динамику релаксации теплового поля, но и

Естественные науки

позволяет судить о его форме и искажениях этой формы при записи.

Заключение

Проведенным исследованием показано, что некогерентное насыщение трехуровневой системы лазерными импульсами различной амплитуды и продолжительности приводит к нелинейному абсорбционному и фототермическому (фазовому) отклику. Это обстоятельство следует учитывать при анализе дифракционных сигналов, получаемых в ходе зондирования формирующихся пространственных неоднородностей - тепловых или концентрационных. Полученные выражения позволяют произвести описание процесса записи нестационарных структур, а также осуществить решение обратных задач при некоторых способах оптической регистрации и считывания сохраненной информации [16-17]. Выполненные в качестве иллюстрации расчеты подтверждают нелинейный характер оптической записи нестационарных тепловых и концентрационных структур в системе насыщаемых трехуровневых центров. Анализ полученных пространственно-временных распределений параметров фотоактивной матрицы позволяет сделать вывод об исключительности режимов, обеспечивающих линейный отклик при регистрации оптических образов. Увеличение времени экспозиции и интенсивности освещения увеличивает искажения при динамической записи.



Рисунок 5. Временная зависимость интенсивности термолинзового сигнала при дифракции на структуре с гауссовым профилем (1) и на слабо искаженном (рис. 3) тепловом поле в случае нелинейного фототермического отклика (2).



Рисунок 6. Временная зависимость интенсивности термолинзового сигнала при дифракции на структуре с гауссовым профилем (1) и на существенно искаженном (рис. 4) тепловом поле в случае нелинейного фототермического отклика (2).

Список использованной литературы:

- Ивахник В.В. Динамические голограммы в средах с керровской и тепловой нелинейностями и на обратимых фотохромных материалах. Самара: СамГУ, 2001. 98 с.
- 3. Перов А.Н. Молекулярные релаксации и дифракционная эффективность динамических голограмм в четырехуровневых жидкостях // Оптика и спектр. 1989. -Т. 66. - №1. -С. 195-199.
- A. Kucherenko M.G., Ketsle G.A., Ketsle E.G. Application holography to measuring static annihilation of excited centers // Proc. SPIE Nonlinear Spectroscopy and Ultrafast Phenomena. Eds.: V.V. Shuvalov, A.M. Zheltikov. 1996. V. 2797. P.63-68.
- 5. Kucherenko M.G. Relaxation of holographic record in the system with annihilating centers // Proc. SPIE Holographic and Diffractive Techniques. Ed.: G.J. Dausmann. 1996. V. 2951. – P. 80-90.
- 6. Kucherenko M.G. Holographic recording in the system with annihilating centers. Relaxation \& suppression of the transmission fluctuations of transient gratings // Optical Recording Mechanisms and Media. Ed.: Andrey L. Mikaelian. Proc. SPIE Optical Information Science and Technology (OIST'97). 1998, V. 3347, P. 302-313.
- 7. Кучеренко М.Г., Кецле Г.А. Дифракция света на решетке из аннигилирующих возбужденных центров // Опт. и спектр. 1998. T. 85. №2. – C. 265-272.
- Кучеренко М.Г. Голографическая запись в системе аннигилирующих центров. Релаксация и подавление флуктуаций про-пускания динамических решеток // Журнал научной и прикладной фотографии. М.: Наука, 1998. Т. 43. №5. С. 66-78.
- 9. Кучеренко М.Г. Динамика пространственного распределения возбужденных трехуровневых центров при некогерентном насыщении поглощения. Тез. докл. Международ. конфер. «Оптика полупроводников». Ульяновск: УГУ, 1998. – 2 с.
- Маркель В.А., Штокман М.И. Кинетика двухквантового сенсибилизироводников. У являювск: 919, 1990. 2 с. триплетном каналах // Оптика и спектр. 1989. Т. 67. №1.
 Будак Б.М., Самарский А.А., Тихонов А.Н. Сборник задач по математической физике. М.: Наука, 1972. 688 с.
 Глазов А.Л., Муратиков К.Л. Теория образования фотодефлекционного сигнала в рамках волновой оптики при лазерных
- термоволновых экспериментах с твердотельными объектами // Журнал технич. физики. 1994. Т. 64. -№1. С. 118-126.
- Лукьянов А.Ю., Новиков М.А. Сравнение чувствительности термолинзового и фазового (интерференционного методов) фототермической спектроскопии // Журнал технич. физики. 2000. Т. 70. №11. С. 99-104.
- 4. Муратиков К.Л., Глазов А.Л. Определение теплофизических характеристик и параметров трещин в керамиках лазерным фотодефлекционным методом // Журнал технич. физики. 2001. Т. 71. №6. С. 110-115.
- Лукьянов А.Ю., Погорелко А.А. Фазовый (интерфере нционный) фототермический метод для раздельного измерения поверхностного и объемного поглощения // Журнал технич. физики. 2002. Т. 72. №51. С. 72-77.
 Maniloff E.S., Johnson K.M. Dynamic holographic interconnects using static holograms // Optical Engineering. 1990. V.29. №3. Р.
- 225-229.
- 17. Микаэлян А.Л., Никанорова Е.А., Салахутдинов В.К. Динамика дифракционной эффективности периодически регенери-руемых голограмм в бактериородопсине // Квантовая электроника. 1994. Т. 21. №8. С. 781-784.

^{1.} Винецкий В.Л., Кухтарев Н.В. Динамическая голография. Киев, 1983. – 128 с.