

05.2;07

©1993

## О СВЕТОИНДУЦИРОВАННОМ ДИХРОИЗМЕ В ИЗНАЧАЛЬНО ИЗОТРОПНЫХ СРЕДАХ

*И.И.Ганчеренок, П.Г.Жаврид, В.А.Гайсенюк*

Явление светоиндуцированной анизотропии (двулуче-  
преломление и дихроизм) в изначально изотропных средах  
к настоящему времени исследовано достаточно широко, од-  
нако существует ряд проблем, проанализированных весь-  
ма поверхностно. С другой стороны, сопоставление с экс-  
периментальными результатами указывает на недостаточ-  
ную адекватность предложенных теоретических моделей. В  
частности, при описании амплитудной анизотропии погло-  
щающей (усиливающей) среды в монографической литера-  
туре эллиптический дихроизм вообще не упоминается [1],  
либо вводится на уровне определения [2,3]. В настоящем со-  
общении в рамках стандартной схемы (накачка-опрос) рас-  
смотрено распространение зондирующего линейно поляри-  
зованного излучения через среду со светоиндуцированным  
эллиптическим дихроизмом и двулучепреломлением, и про-  
ведено сравнение теоретических зависимостей с экспери-  
ментальными данными [4] для частного случая многоатом-  
ных молекул (chlorophyll a in hexane).

В приближениях, сформулированных в работе [5], и по-  
лагая направления распространения взаимодействующих  
волн параллельными (вдоль  $z$ ), укороченное уравнение для  
векторной амплитуды зондирующей волны может быть за-  
писано в виде

$$\frac{d\mathbf{E}_2}{dz} = \hat{N}\mathbf{E}_2, \quad (1)$$

$$\hat{N} = i\frac{3}{4} \frac{\omega_2}{cn_2} \chi_{1221} |\mathbf{E}_1|^2 \hat{S} = (a + ib) |\mathbf{E}_1|^2 \hat{S}, \quad (2)$$

$$\hat{S} = \hat{I} + C_1 \mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{e}_1^* \Gamma + C_2 \mathbf{e}_1^* \cdot \mathbf{e}_1, \quad (3)$$

$$C_1 = \chi_{1122}/\chi_{1221}, \quad C_2 = \chi_{1212}/\chi_{1221}, \quad (4)$$

где  $\mathbf{E}_m = E_m \mathbf{e}_m$ ,  $\mathbf{e}_m$  и  $\omega_m$  — векторная амплитуда, единич-  
ный вектор поляризации и частота  $m$ -й волны ( $m = 1$  —  
волна накачки, 2 — зондирующая волна),  $n_m$  — показатель

преломления среды на частоте  $\omega_m$ ,  $\hat{N}$  —  $2 \times 2$  матрица, которую по аналогии с классической кристаллооптикой [2] будем называть дифференциальной матрицей распространения Джонса;  $\hat{I}$  — единичная матрица,  $\hat{S}$  — тензор светоиндуцированной анизотропии [6], который при эллиптически поляризованной накачке описывает анизотропные свойства среды, в общем случае обладающей эллиптическими двулучепреломлением и дихроизмом,  $\chi_{ijkl}$  — компоненты тензора кубической восприимчивости, точка и звездочка обозначают диадное произведение и комплексное сопряжение соответственно.

Используя формализм проективных операторов и решая уравнение (1) для случая эрмитового тензора  $\hat{S}$  [5], выражение для интенсивности пробного пучка, прошедшего через среду со светоиндуцированной анизотропией протяженностью  $l$ , имеет вид

$$I_2 = Sp(\mathbf{E}_2 \cdot \mathbf{E}_2^*) = \frac{\exp(-\sigma_2 l) \mathbf{E}_{20}^*}{\Delta \lambda} \times \\ \times \left[ I (\lambda_- e^{A_+} - \lambda_+ e^{A_-}) + \hat{S} (e^{A_-} - e^{A_+}) \right] \mathbf{E}_{20}, \quad (5)$$

$$\Delta \lambda = \lambda_- - \lambda_+, \quad A_{\pm} = 2\lambda_{\pm} a |\mathbf{E}_{10}|^2 f(l) = 2\lambda_{\pm} A,$$

$$f(l) = (1 - \exp(-\sigma_1 l)) / \sigma_1.$$

Здесь  $\sigma_m$  — линейный показатель поглощения среды на частоте  $\omega_m$ ,  $\mathbf{E}_{m0}$  — начальные векторные амплитуды взаимодействующих волн,  $I_{20} = Sp(\mathbf{E}_{20} \cdot \mathbf{E}_{20}^*)$ , собственные значения тензора  $\hat{S}$  определяются следующим образом:

$$\lambda_{\pm} = 1 + \frac{1}{2} \left\{ C_1 + C_2 \pm [(C_1 + C_2)^2 - 4C_1 C_2 \sin^2 2\varepsilon_1]^{1/2} \right\},$$

где  $\varepsilon_1$  — угол эллиптичности [2] волны накачки. При выводе соотношения (5) мы приняли во внимание лишь линейное поглощение возбуждающего среду излучения. Заметим также, что светоиндуцированное двулучепреломление ( $\sim b |\mathbf{E}_{10}|^2$ ) в рамках принятых допущений не оказывает влияния на  $I_2$ .

При эллиптически поляризованной накачке выражение (5) трудно обозримо аналитически, так что мы ограничимся рассмотрением случая достаточно слабого возбуждения, когда в (5) можно сохранить лишь первые два члена разложения экспонент в ряд. Далее, принимая оси эллипса поляризации накачки ориентированными вдоль декартовых осей, а азимут линейной поляризации пробной волны

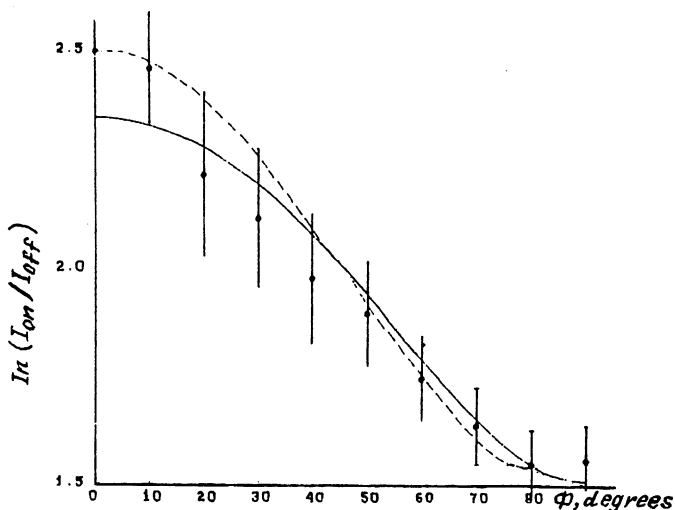


Рис. 1. Экспериментальная и теоретические зависимости  $\ln(I_{on}/I_{off})$  от угла  $\varphi$ . Все разъяснения даны в тексте.

равным  $\varphi$  по отношению к большой оси эллипса поляризации возбуждающего излучения, выражение (5) может быть трансформировано к виду

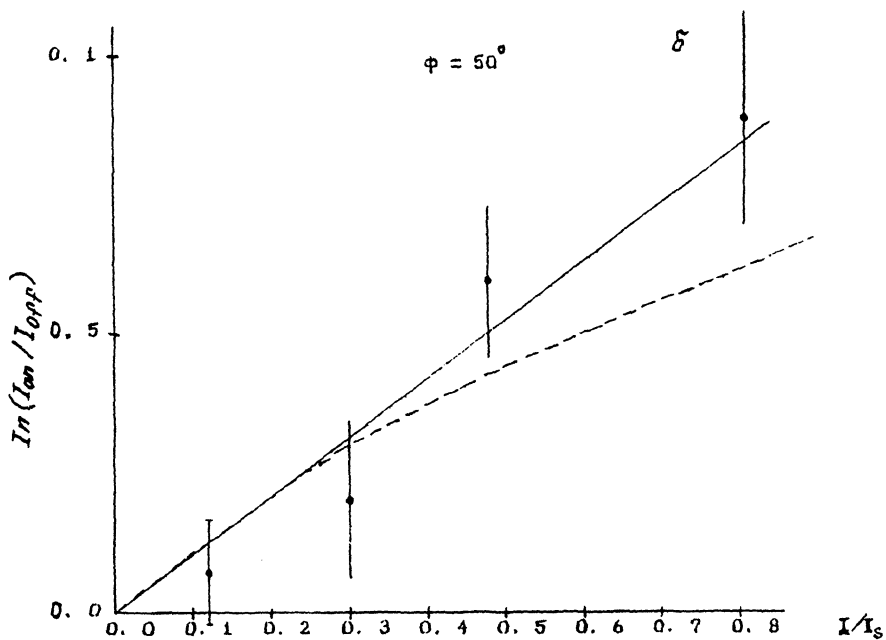
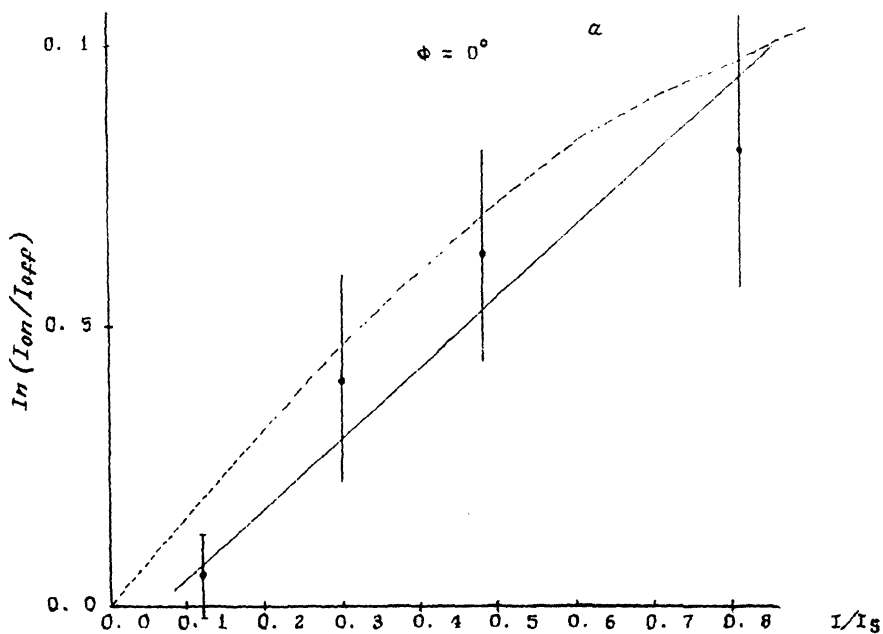
$$I_2 = I_{20} \exp(-\sigma_2 l) \times$$

$$\times \left\{ 1 + 2A \left[ 1 + (C_1 + C_2) \left( \cos^2(\varphi - \varepsilon_1) - \frac{1}{2} \sin 2\varphi \sin 2\varepsilon_1 \right) \right] \right\}. \quad (6)$$

Выражение (6) указывает на два специфических случая, когда при определенной исходной поляризации одной из взаимодействующих волн интенсивность  $I_2$  оказывается нечувствительной к состоянию поляризации другой волны:  $|\varepsilon_1| = \pi/4$  (т. е. поле накачки поляризовано по кругу), тогда  $I_2$  не зависит от  $\varphi$ , что вполне понятно из соображений симметрии;  $|\varphi| = \pi/4$ , тогда  $I_2$  не является функцией эллиптичности  $\varepsilon_1$ , что особенно важно, так как, например, позволяет снизить требования к точности задания исходной поляризации волны накачки.

Перейдем теперь к рассмотрению наиболее широко реализуемого экспериментально случая линейно поляризованных волн накачки ( $\varepsilon_1 = 0$ ) и опроса. В этом случае выраже-

Рис. 2. Экспериментальная и теоретические зависимости  $\ln(I_{on}/I_{off})$  от интенсивности излучения накачки для трех различных значений угла  $\varphi$ :  $\varphi = 0^\circ$  (а),  $50^\circ$  (б),  $90^\circ$  (в).



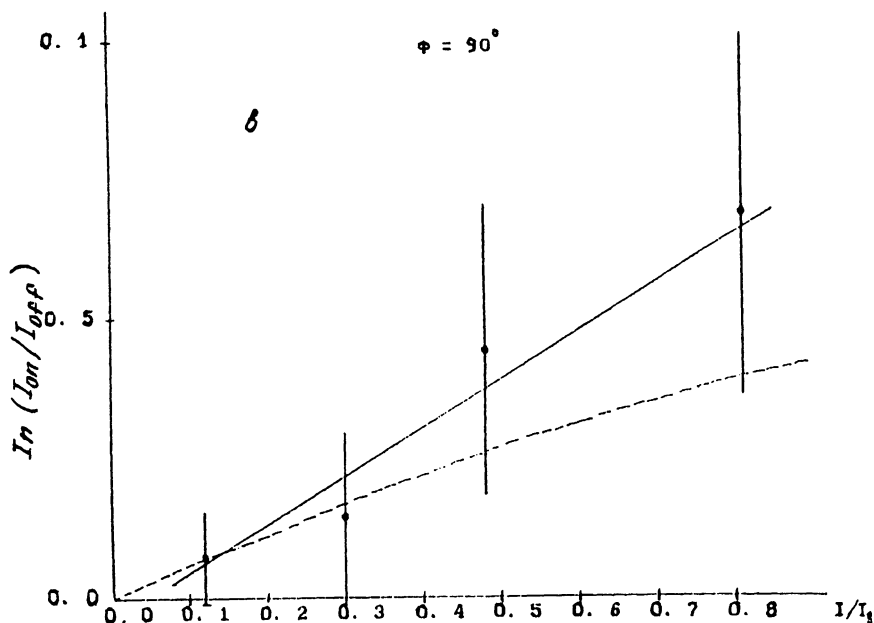


Рис. 2 (продолжение).

Значения  $F$ , рассчитанные в соответствии с критерием Фишера

	Работа <sup>[4]</sup>	Настоящее сообщение
Рис. 1	11	11
Рис.2, а	4.0	5.1
Рис.2, б	1.3	16
Рис.2, в	2.5	12

ние (5) может быть переписано следующим образом:

$$I_2 = I_{20} \exp(-\sigma_2 l) [e^{A+} \cos^2 \varphi + e^{A-} \sin^2 \varphi]. \quad (7)$$

На рис. 1 приведена экспериментальная зависимость относительной интенсивности  $I_{on}/I_{off} = I_2 / (I_{20} \exp(-\sigma_2 l))$  прошедшего среду (chlorophyll a in hexane) со световиндуцированной линейной анизотропией зонда <sup>[4]</sup>. Символы  $I_{on}$  и  $I_{off}$  использованы для обозначения интенсивности пробного излучения после нелинейной среды при наличии и отсутствии излучения накачки. Штриховая кривая построена в

соответствии с модельными расчетами [4], сплошной линией обозначена зависимость, полученная на основе уравнения (7) по методу наименьших квадратов с весами, так что  $q = (X_{1122} + X_{1212})/X_{1221} = 0.56 \pm 0.09$ . Аппроксимация экспериментальных данных по зависимости  $\ln(I_{on}/I_{off})$  от интенсивности накачки  $I = Sp(\mathbf{E}_{10} \cdot \mathbf{E}_{10}^*)$  (см. рис. 2, а-в, где символ  $I_s$  обозначает интенсивность насыщения, и мы ограничились рассмотрением только значений  $\ln(I_{on}/I_{off})$ , соответствующих отношению  $I/I_s < 1$ ) при фиксированных значениях угла  $\varphi$  приводит к  $q = 0.47 \pm 0.04$ . Очевидно, что оба результата непротиворечивы, и наилучшая оценка  $q$  равна 0.48, а ее погрешность  $\Delta q = 0.04$ . Кроме того, мы выполнили проверку адекватности теоретической модели из работы [4] и уравнения (7) результатам эксперимента с использованием  $F$ -критерия Фишера [7]. Полученные значения  $F$ , округленные до двух значащих цифр, собраны в таблице и указывают, что теоретические зависимости на рис. 1 одинаково значимо описывают результаты эксперимента, в то время как для описания зависимостей  $\ln(I_{on}/I_{off})$  от  $I/I_s$  при разных  $\varphi$  наш подход является более предпочтительным.

Резюмируя, в рамках формализма тензора кубической восприимчивости нами теоретически описано влияние светоиндуцированного эллиптического дихроизма на интенсивность зондирующего пучка и показано соответствие теоретических и экспериментальных результатов в частном случае светоиндуцированного линейного дихроизма в растворе многоатомных молекул.

Данная работа была частично поддержана грантом Фонда Сороса, присужденного Американским Физическим Обществом.

### Список литературы

- [1] Снопко В.Н. Поляризационные характеристики оптического излучения и методы их измерения. Минск: Наука і тэхніка, 1992. 336 с.
- [2] Аззам Р., Башара Н. Эллипсометрия и поляризованный свет. М.: Мир, 1981. 584 с.
- [3] Фотоанизотропные и фотогиротропные явления в конденсированных средах и поляризационная голография. Тбилиси: Мецниереба, 1987. С. 4-27.
- [4] Myslinski P., Yizhan Liu, Yizhong Shen, Koningstein J.A. // Chem. Phys. Lett. 1991. V. 177. N 1. P. 84-90.
- [5] Gancheryonok I.I. // Rev. Laser Eng. (Jap.). 1992. V. 20. N 10. P. 813-822.
- [6] Gancheryonok I.I. // Jap. J. Appl. Phys. 1992. V. 31. N 12A. P. 3862-3868.
- [7] Львовский Е.Н. Статистические методы получения экспериментальных формул. М.: Высш. школа, 1982. 224 с.