

ТРЕХМЕРНАЯ ОПТИКА

УДК 535.37

Е. Е. Алфимов, В. К. Макуха, Ю. П. Мешалкин

(Новосибирск)

ПРОСТРАНСТВЕННОЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЕ
ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ ПРИ ДВУХФОТОННОМ ВОЗБУЖДЕНИИ

Рассматриваются вопросы, связанные с пространственным распределением сигнала двухфотонно-возбуждаемой люминесценции в пределах малой пространственной области. Анализируется использование сфокусированных и перекрещивающихся гауссовых пучков. Результаты могут быть использованы при тестировании рабочей среды для 3D оптической памяти на фотохромах с двухфотонной записью и чтением информации.

Нелинейные среды находят все большее применение для решения многих прикладных задач. К таким задачам относится, например, создание трехмерной оптической (3D) памяти с высокой плотностью записи информации [1–3]. Эта проблема является весьма актуальной в связи с тем, что в современных информационных технологиях параметры памяти играют ключевую роль. Одним из самых перспективных направлений для создания компьютерной 3D оптической памяти с параллельным доступом является использование в качестве запоминающей нелинейной среды молекул фотохромов [4–6], из которых в настоящее время наиболее широко используются спиробензопираны. Физически носитель информации представляет собой молекулы спиробензопирана, внедренные в полимерную матрицу. В исходном, «незаписанном» состоянии молекула спиробензопирана поглощает только в ультрафиолетовой области спектра. Однако если молекулу облучить достаточно мощным излучением второй гармоники лазера на ионах неодима (импульсами длительностью 30 пс при плотности энергии порядка 10 нДж/мкм^2 [5]), то за счет двухфотонного поглощения молекула перейдет с уровня S_0 на уровень S_2 и затем через изомеризацию в окрашенную «записанную» форму. В окрашенной форме молекулы спиробензопирана имеют сравнительно широкую полосу поглощения с максимумом в районе 600 нм. Таким образом, судить о записи информации можно было бы по поглощению на длине волны в диапазоне 600 нм. Но прямо воспользоваться лучом с такой длиной волны невозможно, так как он будет поглощаться в объеме образца. Выход из этого положения достигается за счет использования излучения с длиной волны 1,06 мкм. В незаписанной форме это излучение не будет поглощаться ни по однофотонному, ни по двухфотонному механизму. В запи-

санной форме при необходимой мощности излучения (достигаемой за счет фокусировки) имеет место двухфотонное поглощение. По наблюдению двухфотонно-возбуждаемой люминесценции (ДФВЛ) при воздействии сфокусированным излучением с длиной волны 1,06 мкм можно судить о наличии записанной информации (бита) в области фокусировки луча.

Теоретически достижимая объемная плотность информации для такой 3D памяти составляет величину порядка $1/\lambda^3$. На практике плотность будет определяться объемом, создаваемым взаимно перпендикулярными пучками, используемыми для адресации ячейки памяти в процессе двухфотонной записи. Здесь можно говорить о пространственном разрешении в нелинейной среде при возбуждении взаимно перпендикулярными пучками. При технологическом контроле образца материала для 3D памяти важно убедиться в том, что по всему рабочему объему будет обеспечена возможность двухфотонной записи и считывания бит информации с заданной объемной плотностью. Таким образом, анализ пространственного распределения сигнала двухфотонного возбуждения представляет значительный интерес при разработке и тестировании элементов оптической 3D памяти. Эти вопросы также представляются актуальными и в двухфотонной флуоресцентной микроскопии [7], где используется один сфокусированный луч.

В данной статье приводятся результаты оценки пространственного разрешения при измерении нелинейности путем измерения сигнала люминесценции, возбуждаемой за счет двухфотонного поглощения в объеме нелинейной среды.

Формально пространственную неоднородность нелинейности среды можно измерить, регистрируя с помощью фотоматрицы или ЭОПа пространственное распределение двухфотонно-возбуждаемой люминесценции при использовании пространственно однородного луча возбуждающего излучения. Однако из-за малых значений сечений двухфотонного поглощения невозможно обеспечить пространственно однородный возбуждающий пучок сечением в единицы квадратных миллиметров с интенсивностью, достаточной для возбуждения регистрируемой люминесценции. Кроме того, возникают определенные трудности при регистрации очень слабых сигналов ДФВЛ с помощью фотоматриц и ЭОПов.

Для решения поставленной задачи можно применить сфокусированный пучок. Обычно в таких экспериментах используются лазеры, работающие в одномодовом режиме, поэтому в дальнейшем мы ограничимся рассмотрением гауссовых пучков. В этом случае максимальная интенсивность возбуждающего излучения сосредоточена в области шейки каустики, и, следовательно, интенсивность ДФВЛ в основном будет определяться нелинейностью объема, определяемого областью перетяжки пучка. Таким образом, можно ввести понятие пространственного разрешения измерения неоднородности нелинейности, которое определим как характерный линейный размер, в пределах которого сигнал ДФВЛ уменьшается в 2 раза, что будет соответствовать объему, дающему существенный

(например, 50 %) вклад в сигнал ДФВЛ. Разрешение будет тем выше, чем меньше этот размер.

Экспериментальная реализация измерения возможна при пространственном сканировании исследуемого образца по трем координатам и при фиксированном расположении возбуждающего лазерного пучка и аппаратуры, регистрирующей сигнал ДФВЛ. Обычно эта аппаратура включает в себя монохроматор, ФЭУ, электронные схемы усиления и компьютер для сбора, обработки и отображения данных [8, 9].

Получим расчетные соотношения, позволяющие определить пространственное разрешение при измерении локальной нелинейности с помощью сфокусированного гауссова пучка. Пучок лазерного излучения, имеющий постоянную мощность (в силу малого значения сечения двухфотонного поглощения будем пренебрегать изменением мощности за счет двухфотонного поглощения в исследуемой среде) и распространяющийся вдоль оси z , будем описывать соотношением

$$I(x, y, z) = I_0(z) \exp\left(\frac{-2(x^2 + y^2)}{\omega^2(z)}\right), \quad (1)$$

где $I(x, y, z)$ – интенсивность пучка лазерного излучения, зависящая от пространственных координат x, y, z ; $\omega(z)$ – радиус пучка.

Удобно I_0 выразить через мощность лазерного пучка P_0 . В этом случае с учетом явной зависимости параметров пучка от z выражение (1) примет вид:

$$I(x, y, z) = \frac{P_0}{\pi \omega_0^2 \left(1 + \frac{z^2}{z_0^2}\right)} \exp\left(\frac{-2(x^2 + y^2)}{\omega_0^2 \left(1 + \frac{z^2}{z_0^2}\right)}\right), \quad (2)$$

здесь ω_0 – радиус шейки каустики; z_0 – конфокальный параметр: $z_0 = \pi \omega_0 n / \lambda$ (λ – длина волны излучения, n – показатель преломления среды).

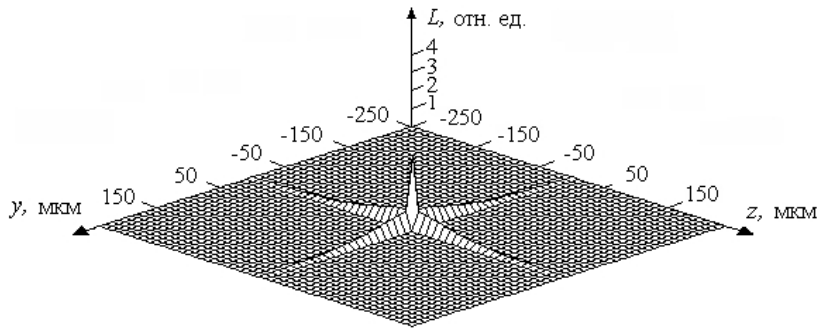
Сигнал двухфотонной люминесценции L определяется следующим образом:

$$L(x, y, z) = \eta \delta I(x, y, z)^2, \quad (3)$$

где η – квантовый выход; δ – сечение двухфотонного поглощения.

Параметры исследуемой среды заложены в η и δ . Таким образом, измеряя локальные вариации нелинейности, мы фактически измеряем изменения этого произведения (при постоянной интенсивности возбуждающего излучения).

Для получения пространственного разрешения измерения локальной нелинейности в соответствии с принятым определением необходимо найти размер, в пределах которого сигнал ДФВЛ составля-



Пространственное распределение ДФВЛ для случая перекрещивающихся сфокусированных пучков

ет не менее 0,5 от максимального значения. Пространственное разрешение определяется изменением сигнала ДФВЛ вдоль направления распространения пучка (вдоль оси z). Комбинируя выражения (2), (3) и интегрируя по x, y , можно записать:

$$L(z) = \frac{r\delta P_0^2}{2\pi} \left(\frac{1}{\omega_0^2 \left(1 + \frac{z^2}{z_0^2} \right)} \right) \quad (4)$$

Выражение (4) соответствует результатам, полученным в [10]. Из (4) видно, что пространственное разрешение составляет величину $2z_0$. При этом оказывается, что в области от $-z_0$ до $+z_0$ излучается половина всей люминесценции, возбуждаемой по двухфотонному механизму во всем объеме пучка.

Повысить пространственное разрешение можно при использовании скрещенных сфокусированных лазерных пучков. Здесь сигнал люминесценции будет пропорционален квадрату суммы интенсивностей пучков, распространяющихся по осям z и y . В этом случае характерный размер области возбуждения должен определяться не конфокальным параметром, а диаметром пучка. Соответствующее пространственное распределение ДФВЛ при $\omega_0 = 5$ мкм, $n = 1,5$ и $\lambda = 1,064$ мкм показано на рисунке. Оно имеет вид «креста». Для оценки зависимости интенсивности люминесценции от координат можно воспользоваться зависимостью сигнала ДФВЛ от координаты z в плоскости $x = y = 0$:

$$L(x = y = 0, z) = \frac{\eta\delta P_0^2}{\pi^2 \omega_0^4} \left(\frac{1}{\left(1 + \frac{z^2}{z_0^2} \right)^2} + \frac{2 \exp\left(\frac{-2z^2}{\omega_0^2} \right)}{1 + \frac{z^2}{z_0^2}} + \exp\left(\frac{-4z^2}{\omega_0^2} \right) \right) \quad (5)$$

Из (5) следует, что в центре «креста» интенсивность люминесценции в 4 раза выше, чем при однолучевом возбуждении. При малых значениях z сигнал ДФВЛ достаточно быстро падает. Численные оценки показывают, что уменьшение сигнала ДФВЛ в 2 раза происходит на расстоянии около $0,65\omega_0$, а на расстоянии z_0 сигнал падает в 4 раза.

Таким образом, можно говорить, что в случае скрещивающихся сфокусированных пучков пространственное разрешение составляет величину порядка $1,3\omega_0$, что в $4,8n\omega_0/\lambda$ раз выше, чем для возбуждения одним сфокусированным пучком. При возбуждении лазерным пучком на длине волны 1,06 мкм выигрыш в разрешении может достигать 40–100 раз при радиусе шейки каустики 5–15 мкм соответственно.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Kawata Y., Ishitobi H., Kawata S.** Use of two-photon absorption in a photorefractive crystal for three-dimensional optical memory // *Opt. Lett.* 1998. **23**, N 10. P. 756.
2. **Akimov D. A., Fedotov A. B., Koroteev N. I. et al.** Optimizing two-photon three-dimensional data storage in photochromic materials using the principles of nonlinear optics // *Jpn. J. Appl. Phys.* 1997. **36**, N 1B. P. 426.
3. **Cokgor I., McCormick F. B., Dvornikov A. S. et al.** Multilayer disk recording using 2-photon absorption and the numerical simulation of the recording process // *Proc. SPIE.* 1997. **3109**. P. 182.
4. **Pat. 07/342,978 USA.** 3-Dimensional optical memory /P. M. Rentzepis. Publ. 10.05.89.
5. **Hunter S., Kiamilev F., Esener S. et al.** Potentials of two-photon based 3-D optical memories for high performance computing // *Appl. Opt.* 1990. **29**, N 14. P. 2058.
6. **Dvornikov A. S., Rentzepis P. M.** Materials and methods for 3D optical storage memory // *Proc. SPIE.* 1993. **1773**. P. 390.
7. **Robertson G., Armstrong D., Dymott M. J. P. et al.** Two-photon fluorescence microscopy with a diode-pumped Cr : LiSAF laser // *Appl. Opt.* 1997. **36**, N 12. P. 2481.
8. **Алфимов Е. Е., Грошев Д. Е., Макуха В. К., Мешалкин Ю. П.** Метод двухквантового эталона для измерения сечения двухфотонного поглощения сложных органических молекул // *Оптика и спектроскопия.* 1995. **78**, вып. 3. С. 400.
9. **Алфимов Е. Е., Грошев Д. Е., Макуха В. К., Мешалкин Ю. П.** Плата расширения для автоматизированного двухфотонного лазерного спектрометра на базе компьютера IBM PC // *Приборы и техника эксперимента.* 1998. № 2. С. 163.
10. **Swofford R. L., McClain W. M.** The effect of temporal laser beam characteristics on twophoton absorption // *Chem. Phys. Lett.* 1975. **34**, N 3. P. 455.

Поступила в редакцию 28 октября 1998 г.