

Осцилляции интенсивности фотонного эха в импульсном магнитном поле — зеемановское расщепление в $\text{LiLuF}_4:\text{Er}^{3+}$

В. Н. Лисин¹⁾, А. М. Шегада, К. И. Герасимов

Казанский физико-технический институт им. Завойского, КазНЦ РАН, 420029 Казань, Россия

Поступила в редакцию 24 ноября 2011 г.

Предлагается и демонстрируется метод оптической спектроскопии ультравысокого разрешения во временной области, который использует осцилляции интенсивности фотонного эха в присутствии возмущения, расщепляющего оптические частоты переходов двух или более подгрупп ионов. Этот метод применяется к системам, в которых проявляется эффект Зеемана. Частоты переходов ионов переключаются импульсным магнитным полем. Осцилляции интенсивности фотонного эха наблюдались в $\text{LiLuF}_4:\text{Er}^{3+}$ и $\text{LiYF}_4:\text{Er}^{3+}$. Первый минимум, соответствующий аккумулятивной фазе электрического дипольного момента $\pi/2$, достигается в импульсном магнитном поле с амплитудой ~ 2 Гс при длительности 30 нс. В таком поле зеемановское расщепление составляет ≈ 10 МГц, что намного меньше спектральной ширины лазера ($0.15 \text{ \AA} \approx 9$ ГГц). В нулевом постоянном магнитном поле определен g -фактор возбужденного состояния $^4F_{9/2}(1)$ иона Er^{3+} , находящегося в матрице LiLuF_4 . Проведено сравнение с величиной g -фактора, полученной из измерения спектра поглощения в магнитном поле 8 кГс.

В работе [1] нами исследовалось влияние постоянного магнитного поля на поведение фотонного эха в $\text{LiLuF}_4:\text{Er}^{3+}$. Качественно зависимость интенсивности фотонного эха от величины и направления постоянного магнитного поля \mathbf{H}_{dc} можно объяснить следующим образом [1–5]. Первый возбуждающий лазерный импульс изменяет ориентацию магнитного поля на соседних ядрах. В результате переориентации соседние ядра, которые были поляризованы вдоль поля $\mathbf{H}_{dc} + \mathbf{H}_g$, начинают прецессировать вокруг нового направления, $\mathbf{H}_{dc} + (\mathbf{H}_g + \mathbf{H}_e)/2$. Здесь \mathbf{H}_g и \mathbf{H}_e — магнитные поля, создаваемые на ядре фтора магнитным моментом электрона Er^{3+} , находящегося в основном и возбужденном состояниях соответственно. Прецессия соседних ядер модулирует магнитное поле на ионе Er^{3+} и, следовательно, модулирует расстояние между энергетическими уровнями иона. В результате относительный фазовый сдвиг электрического диполя Er^{3+} после первого возбуждающего импульса становится не равным сдвигу после второго импульса, если период осцилляции не совпадает со временем задержки между лазерными импульсами. Это приводит к осцилляции огибающей эха. С ростом же числа соседних ядер с различными значениями частот прецессии (\mathbf{H}_{dc} перпендикулярно кристаллической оси C) сигнал эха уменьшается из-за деструктивной интерференции. В случае импульсного магнитного поля, приложенного в момент формирования эха (между первым и вторым лазерными импульсами или между вторым лазерным импульсом

и импульсом эха), уже не требуется, чтобы разница фаз была отлична от нуля. В этом случае ожидается значительное влияние слабых импульсных магнитных полей на параметры эха. Это и показали первые эксперименты [6], проведенные нами в $\text{LiLuF}_4:\text{Er}^{3+}$ для некоторых значений амплитуды и длительности импульсного магнитного поля \mathbf{h} , направленного перпендикулярно оси C кристалла ($\mathbf{h} \perp C$).

В данной работе измерения проводились в $\text{LiLuF}_4:\text{Er}^{3+}$ и $\text{LiYF}_4:\text{Er}^{3+}$ при параллельной ориентации ($\mathbf{h} \parallel C$). В такой ориентации значительное уменьшение интенсивности светового эха (СЭ) наблюдается уже для значений $h \sim 1.7$ Гс, на порядок меньших, чем при $\mathbf{h} \perp C$ (~ 12 Гс). С увеличением h , начиная с некоторого значения, обратно пропорционального длительности магнитного импульса, интенсивность эха начинает увеличиваться. Зависимость интенсивности СЭ от амплитуды h носит осциллирующий характер. Период осцилляций определяется площадью магнитного импульса. Физически это связано с тем, что оптические частоты ионов эрбия, основные состояния которых имеют проекцию спина $S_z = \pm 1/2$, расщепляются в поле магнитного импульса за счет эффекта Зеемана. Аккумулятивные фазы, т.е. фазы электрических дипольных моментов этих двух групп ионов, приобретаемые за время τ_h действия магнитного импульса, имеют разный знак и пропорциональны площади магнитного импульса. Величина результирующего электрического дипольного момента пропорциональна косинусу аккумулятивной фазы, а интенсивность эха — квадрату косинуса.

¹⁾ e-mail: vlisin@kfti.knc.ru

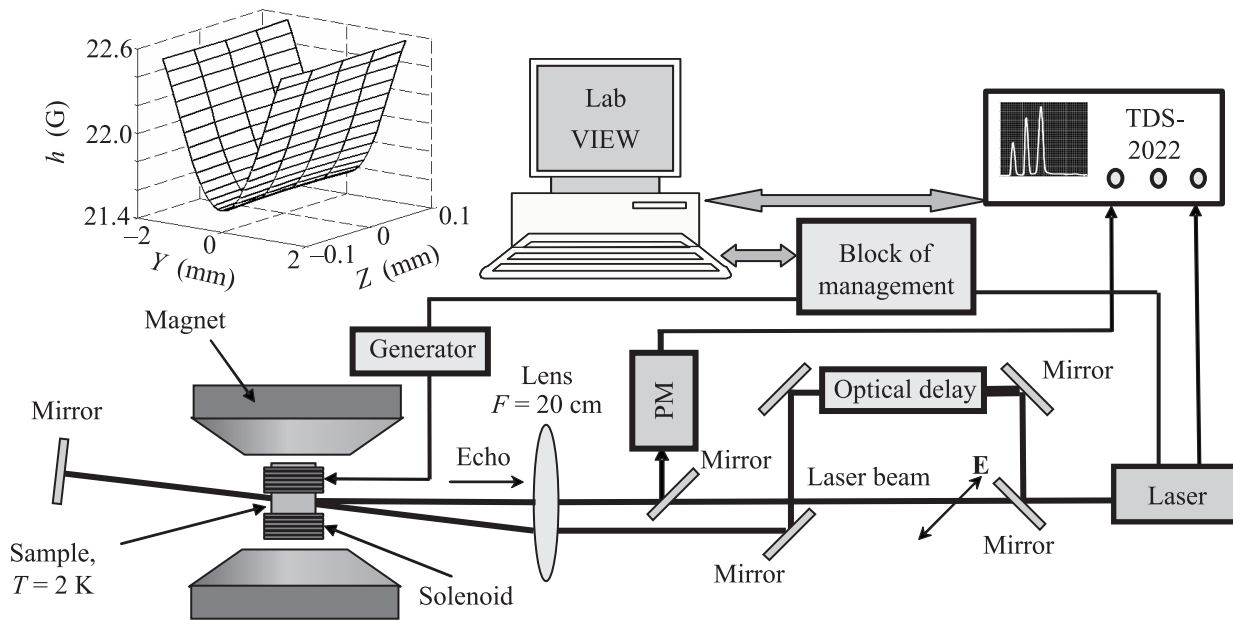


Рис. 1. Геометрия эксперимента. На вставке показано расчетное значение компоненты магнитной индукции h_z , параллельной оси C образца, в соленоиде диаметром 4.5 мм при токе через катушки соленоида 1 А. По оси Z показано изменение h_z вдоль оси соленоида в пределах диаметра 0.2 мм оптически возбужденной области, по оси Y – изменение h_z вдоль оптически возбужденной области образца $\text{LiLuF}_4:\text{Er}^{3+}$ толщиной 2.8 мм

Световое эхо в $\text{LiLuF}_4:\text{Er}^{3+}$ и $\text{LiYF}_4:\text{Er}^{3+}$ возбуждалось на переходе ${}^4I_{15/2} \rightarrow {}^4F_{9/2}$ иона Er^{3+} при температуре 2 К. Для возбуждения использовался импульсный перестраиваемый по частоте лазер на красителе (оксазин-17). Длительность импульсов составляла 15 нс, частота повторения 12 Гц, спектральная ширина на половине высоты $0.15 \text{ \AA} \approx 9 \text{ ГГц}$. Длина волны изучаемого перехода $\lambda = 6530.6 \text{ \AA}$ для $\text{LiLuF}_4:\text{Er}^{3+}$ и $\lambda = 6533.1 \text{ \AA}$ для $\text{LiYF}_4:\text{Er}^{3+}$. Сигналы двухимпульсного СЭ возбуждались в обратном режиме, когда первый импульс света является бегущей волной, а второй представляет собой стоячую волну. В этом случае СЭ наблюдается в направлении, противоположном первому импульсу. Угол между направлениями \mathbf{k}_1 и \mathbf{k}_2 распространения лазерных импульсов составлял приблизительно 5° . При этом направление k_1 распространения первого лазерного импульса было перпендикулярно оптической оси C кристалла ($\mathbf{k}_1 \perp C$). Ось кристалла C была направлена вдоль постоянного внешнего магнитного поля \mathbf{H}_{dc} , величину которого можно было устанавливать в пределах 0–900 Э. Электрическое поле лазерных импульсов было параллельно оси C (π -поляризация). Задержка t_{12} между лазерными импульсами менялась от 33 до 110 нс. Геометрия эксперимента представлена на рис. 1.

Исследуемый образец помещался в соленоид, состоящий из двух соосных катушек по 6 витков каж-

дая, намотанных медным проводом ПЭЛ-0.18 (диаметр провода 0.2 мм). Катушки были соединены параллельно, чтобы уменьшить индуктивность соленоида и улучшить тем самым форму импульса тока. Между катушками был зазор в 1 мм, в который заходило сфокусированное излучение первого и второго лазерных импульсов. Диаметр сфокусированного излучения в образце составлял 0.2 мм. Ось C образца была параллельна оси соленоида. Внутренний диаметр соленоида для образца $\text{LiLuF}_4:\text{Er}^{3+}$ был равен 5.4 мм, а для образца $\text{LiYF}_4:\text{Er}^{3+}$ – 6.4 мм.

Особое внимание уделялось ориентации образца. Соленоид с образцом помещался в ячейку, которую можно было вращать вокруг вертикальной и горизонтальной осей с минимальным шагом 0.04 градуса.

Магнитное поле в зазоре между катушками рассчитывалось с использованием закона Био-Савара. Расчетный диаметр витков с учетом толщины изоляции провода составлял 5.6 мм для образца $\text{LiLuF}_4:\text{Er}^{3+}$ и 6.6 мм для $\text{LiYF}_4:\text{Er}^{3+}$. На вставке к рис. 1 изображена компонента магнитного поля h_z , параллельная оси C , в оптически возбуждаемом объеме образца $\text{LiLuF}_4:\text{Er}^{3+}$ при токе через каждую катушку соленоида 1 А. В центре оптически возбуждаемого объема ($X = 0, Y = 0, Z = 0$) значение $h_{z0} = 21.57$ Гс. Среднее значение неоднородности поля

$$\langle \Delta \rangle = (\langle h_z \rangle - h_{z0}) / h_{z0} \quad (1)$$

определяется только геометрией катушек. Оно равно $1.26 \cdot 10^{-2}$ вдоль и $-3.12 \cdot 10^{-4}$ поперек оптически возбуждаемого объема. Треугольные скобки здесь обозначают усреднение по точкам оптически возбуждаемого объема. Подобным образом для $\text{LiYF}_4:\text{Er}^{3+}$ получаем, что $h_{z0} = 19.37$ Гс, $\langle \Delta \rangle = 1.39 \cdot 10^{-2}$ вдоль и $\langle \Delta \rangle = -3.19 \cdot 10^{-4}$ поперек возбуждаемого объема. Компоненты магнитного поля h_x , h_y , перпендикулярные оси соленоида, по величине на два порядка меньше, чем h_{z0} .

На соленоид синхронно с лазерными импульсами подавались импульсы тока, формируемые генератором на лавинных транзисторах. Длительность импульсов тока τ_h можно было установить равной 12, 16, 20 и 30 нс. Амплитуда тока менялась с шагом 1 дБ. Величина задержки между лазерными импульсами и импульсом тока менялась по заданной программе с минимальным шагом 1 нс. При каждой задержке записывались интенсивность и форма сигнала эха без подачи и с подачей импульсов тока на соленоид. Сигналы СЭ детектировались фотоумножителем и подавались на цифровой осциллограф Tektronix TDS 2022. Управление всеми экспериментальными измерениями было реализовано в среде LabVIEW.

На рис. 2 показаны зависимости интенсивности СЭ в образце $\text{LiLuF}_4:\text{Er}^{3+}$ от времени t_h включения магнитного импульса для нескольких значений амплитуды h_{z0} . Видно, что интенсивность СЭ перестает зависеть от времени включения t_h , а ее значение с увеличением h_{z0} сначала уменьшается, а затем начинает расти, если магнитный импульс действует в момент формирования эха, $t_1 < t_h < t_2$ или $t_2 < t_h < t_{\text{echo}}$, где t_1 , t_2 и t_{echo} – времена подачи лазерных импульсов и время появления СЭ соответственно. Зависимость среднего по двум временам включения, $t_{h1} = (t_1 + t_2)/2$ и $t_{h2} = (t_2 + t_{\text{echo}})/2$ значения интенсивности СЭ от амплитуды магнитного импульса показана на рис. 3. Эта зависимость имеет осциллирующий характер. Период осцилляций уменьшается с ростом длительности магнитного импульса. Если по оси X на графиках рис. 3 отложить не амплитуду, а площадь магнитного импульса, то сразу становится видно (см. рис. 4), что период осцилляций определяется площадью магнитного импульса.

Чтобы понять результаты эксперимента, надо учесть, что ионы Er^{3+} в матрицах LiYF_4 и LiLuF_4 являются кримерсовыми ионами. Поэтому нижние кристаллические уровни основного ($^4I_{15/2}(\text{I})$) и возбужденного ($^4F_{9/2}(\text{I})$) мультиплетов двукратно вы-

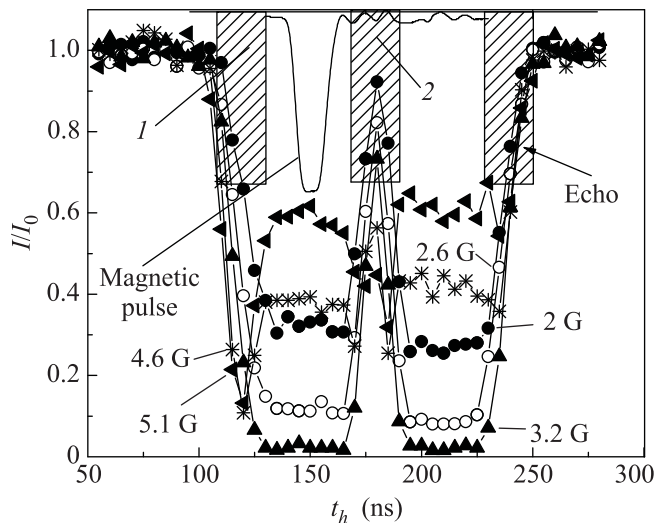


Рис. 2. Относительное изменение интенсивности светового эха в зависимости от времени включения импульсов магнитного поля длительностью 16 нс различной амплитуды (I_0 и I – интенсивности СЭ в отсутствие и при включении магнитного импульса). Заштрихованные прямоугольники схематично показывают положение на временной шкале лазерных импульсов и сигнала эха. Задержка между лазерными импульсами $t_{12} = 60$ нс. Там же приведена осциллограмма импульса тока, поданного на соленоид в момент времени 150 нс

рождены по спиновому числу. В нулевом постоянном магнитном поле возбуждаются обе группы ионов эрбия, имеющие в основном состоянии проекции как спина $S_z = 1/2$, так и $S_z = -1/2$. В магнитном поле \mathbf{h} , направленном параллельно оси C , оптические частоты переходов каждой из групп ионов изменяются на разную по знаку величину, зависящую от проекции спина:

$$\Delta\nu = \frac{S_z \beta}{2\pi \hbar} (g' - g) h, \quad (2)$$

где β – магнетон Бора, \hbar – постоянная Планка, g' и g – параллельные оси C компоненты g -тензоров возбужденного ($^4F_{9/2}(\text{I})$) и основного ($^4I_{15/2}(\text{I})$) состояний. Если магнитный импульс действует во время формирования эха, то дипольный момент, создаваемый каждой из групп ионов, приобретает дополнительную фазу

$$\alpha = \pm 2\pi \frac{\partial \nu}{\partial h} h_{z0} \tau_h, \quad (3)$$

где

$$\frac{\partial \nu}{\partial h} = \frac{\beta}{4\pi \hbar} (g' - g). \quad (4)$$

По аналогии с описанием осцилляции СЭ в импульсном электрическом поле [7] легко показать, что суммарный дипольный момент пропорционален $\cos \alpha$, а

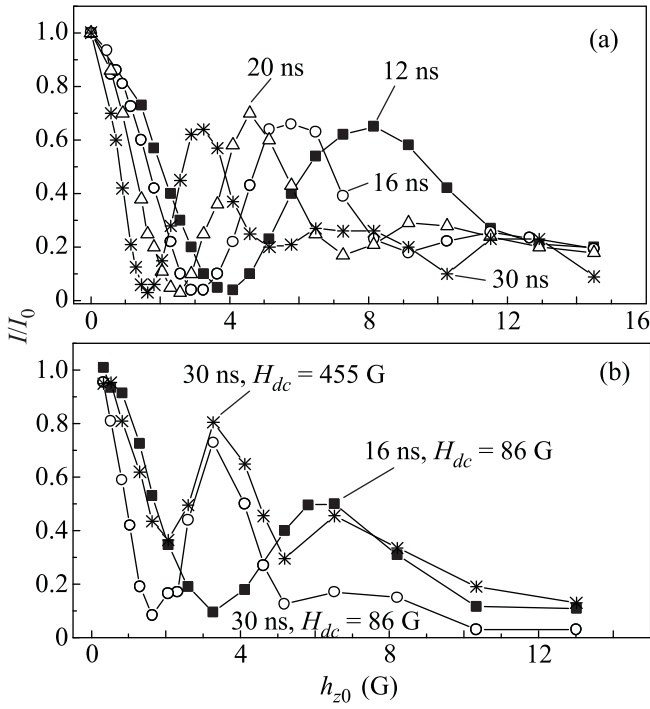


Рис. 3. Зависимость относительной интенсивности СЭ от амплитуды импульсного магнитного поля различной длительности (h_{z0} – амплитуда магнитного импульса в центре оптически возбуждаемого объема): (а) – $\text{LiLuF}_4:\text{Er}^{3+}$, $H_{dc} = 0$; (б) – $\text{LiYF}_4:\text{Er}^{3+}$, $H_{dc} = 86$ и 455 Гс

относительное изменение интенсивности фотонного эха равно квадрату косинуса угла:

$$I/I_0 = \cos^2 \alpha. \quad (5)$$

Положение первого минимума на рис. 4 соответствует $\alpha = \pi/2$. Оценим площадь магнитного импульса, при которой появляется первый минимум в системе $\text{LiYF}_4:\text{Er}^{3+}$, для которой известны g -факторы основного ($g = 3.137 + 0.003$ [8]) и возбужденного ($g = 9.84$ [9]) состояний, т.е. $\partial\nu/\partial h = 4.69 \cdot 10^{-3} (\text{Гс} \cdot \text{нс})^{-1}$. Приравнявая $\alpha = \pi/2$, из (3) находим, что первый минимум должен появляться при площади магнитного импульса, равной $h_{z0}\tau_h = (4\partial\nu/\partial h)^{-1} = 53.3 \text{ Гс} \cdot \text{нс}$. Значение искомой площади в эксперименте $(h_{z0}\tau_h)_{\text{exp}} = 50.1 \text{ Гс} \cdot \text{нс}$. Этому соответствовало бы значение $g = 10.27$, если бы мы определяли g -фактор из (3), при условии, что g -фактор для основного состояния установлен надежнее. Это значение завышено на 4.4%. Учтем, что среднее значение $\langle h_z \rangle = h_{z0}(1 + \langle \Delta \rangle)$ вдоль луча от центра к краям оптически возбуждаемого объема превышает h_{z0} на $\langle \Delta \rangle = 1.39\%$. Значение фазы в каждой точке определяется значением h_z в этой точке, $h_z = h_{z0}(1 + \Delta)$. Усредняя $\cos \alpha$ по

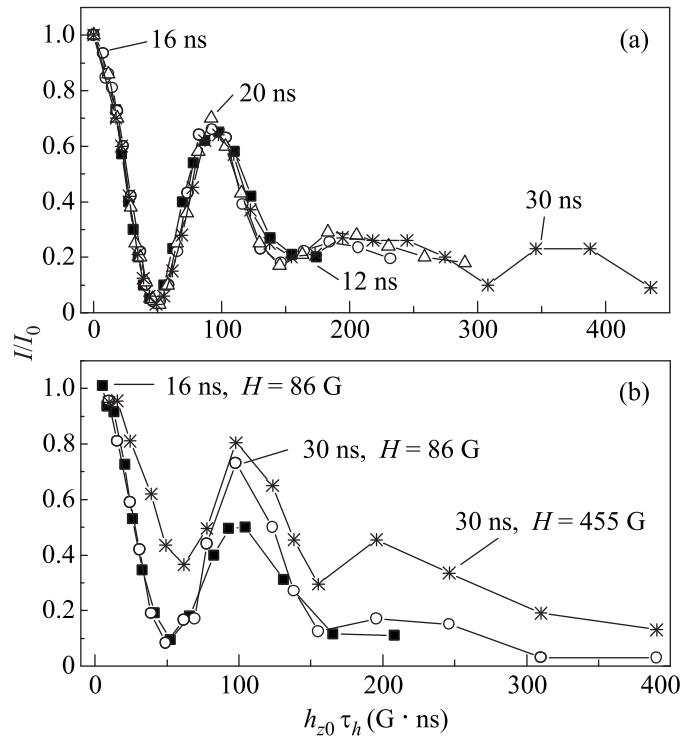


Рис. 4. Зависимость относительной интенсивности СЭ от площади импульсного магнитного поля (h_{z0} – амплитуда магнитного импульса в центре оптически возбуждаемого объема, τ_h – длительность импульса тока): (а) – $\text{LiLuF}_4:\text{Er}^{3+}$, $H_{dc} = 0$; (б) – $\text{LiYF}_4:\text{Er}^{3+}$, $H_{dc} = 86$ и 455 Гс

всем точкам оптически возбуждаемого объема вдоль центра оптического луча, для $\alpha = \pi/2 + \delta\alpha$ получаем

$$\begin{aligned} \langle \cos[\alpha(1 + \Delta)] \rangle &= \langle \cos(\alpha + \alpha\Delta) \rangle \approx \\ &\approx -\langle \sin(\delta\alpha + \alpha_0\Delta) \rangle \approx -(\delta\alpha + \alpha_0\langle \Delta \rangle) \approx \\ &\approx -\sin(\delta\alpha + \alpha_0\langle \Delta \rangle) \approx \cos(\alpha + \alpha\langle \Delta \rangle), \end{aligned} \quad (6)$$

где α выражается через амплитуду магнитного поля h_{z0} в центре оптически возбуждаемого объема по формуле (3), $\alpha_0 = \pi/2$. Нулевое значение достигается, как это видно из (6), при $\delta\alpha = -\alpha_0\langle \Delta \rangle$. Отсюда следует, что положение первого минимума находится из выражения

$$2\pi \frac{\partial\nu}{\partial h} h_{z0}\tau_h = \frac{\pi}{2}(1 - \langle \Delta \rangle), \quad (7)$$

что эквивалентно выражению

$$2\pi \frac{\partial\nu}{\partial h} \langle h_z \rangle \tau_h = \frac{\pi}{2}. \quad (8)$$

Величина площади, при которой достигается первый минимум, равна $53.3 \cdot (1 - 0.0139) = 52.6$. Это несколько ближе к эксперименту, но все еще на 3% больше,

чем 9.84. Если использовать экспериментальное значение площади $(h_{z0}\tau_h)_{\text{exp}} = 50.1 \text{ Гс}\cdot\text{нс}$ для определения g' из (7) с учетом (4), то получится значение $g' = 10.17$. Как показано на рис. 4, первому минимуму интенсивности СЭ в $\text{LiLuF}_4:\text{Er}^{3+}$ соответствует площадь магнитного импульса $(h_{z0}\tau_h)_{\text{exp}} = 48.6 \text{ Гс}\cdot\text{нс}$. Из (7) следует, что данному значению площади соответствует значение параллельной компоненты g -фактора возбужденного состояния ${}^4F_{15/2}(\text{I})$ в $\text{LiLuF}_4:\text{Er}^{3+}$

$$g' = g_{\parallel}({}^4F_{15/2}(\text{I})) = 10.35.$$

При этом мы учли, что значение параллельной компоненты g -фактора основного состояния ${}^4I_{15/2}(\text{I})$ в $\text{LiLuF}_4:\text{Er}^{3+}$ $g = 3.09$ [10].

Для определения знака g -фактора возбужденного состояния ${}^4F_{9/2}(\text{I})$ в $\text{LiLuF}_4:\text{Er}^{3+}$ было проведено измерение спектров поглощения в магнитном поле на многофункциональном спектрометре [11] при температуре $T = 1.8 \text{ К}$. Спектральное разрешение составляло 0.9 см^{-1} для области $6000\text{--}7000 \text{ \AA}$. Постоянное магнитное поле \mathbf{H}_{dc} было приложено параллельно оси C и перпендикулярно направлению распространения света \mathbf{k} ($\mathbf{H}_{dc} \parallel C$, $\mathbf{H}_{dc} \perp \mathbf{k}$). Амплитуда $H_{dc} \approx 8000 \text{ Гс}$.

Из величин зеемановских расщеплений $\pi(\mathbf{E} \parallel C)$ и $\sigma(\mathbf{E} \perp C)$ (компонент перехода ${}^4I_{15/2}(\text{I}) \Rightarrow {}^4F_{9/2}(\text{I})$, где \mathbf{E} – поляризация лазерного импульса) определены знаки и значения g -факторов для основного и возбужденного состояний в $\text{LiLuF}_4:\text{Er}^{3+}$ ($g({}^4I_{15/2}(\text{I})) = 3.05 \pm 0.13$, $g({}^4F_{9/2}(\text{I})) = 8.71 \pm 0.13$) и, для сравнения, в кристалле $\text{LiYF}_4:\text{Er}^{3+}$ ($g({}^4I_{15/2}(\text{I})) = 3.17 \pm 0.13$, $g({}^4F_{9/2}(\text{I})) = 9.42 \pm 0.13$).

Заметим, что значения g -факторов основного состояния ${}^4I_{15/2}(\text{I})$, определенные в нашей работе из величин расщеплений линий поглощения, находятся в согласии с результатами ЭПР в $\text{LiYF}_4:\text{Er}^{3+}$ [8] и в $\text{LiLuF}_4:\text{Er}^{3+}$ [10]. Что касается возбужденных состояний, то значение g (${}^4F_{9/2}(\text{I})$) = 9.42 ± 0.13 в $\text{LiYF}_4:\text{Er}^{3+}$ ниже приведенного в [9]. Значение $g({}^4F_{9/2}(\text{I})) = 8.71 \pm 0.13$ в $\text{LiLuF}_4:\text{Er}^{3+}$ сильно занижено по сравнению со значением, полученным из данных по осцилляции СЭ. Отметим, что в литературе существует разброс в значениях g -факторов, определенных оптическими методами даже в полях порядка 30 кГс . Так, для $g({}^4F_{9/2}(\text{I}))$ в $\text{LiYF}_4:\text{Er}^{3+}$ приводятся значения 9.84 [8], 9.84 ± 0.25 [12], 9.61 [13]. Значение g' , полученное в нашей работе с помощью осцилляции фотонного эха, близко к верхней границе значений из работы [12].

Следует отметить, что переключение оптической частоты под действием импульсного однородного

магнитного поля использовалось в [14] при исследовании затухания свободной индукции методом оптического гетеродинамирования. В работе [15] изучали действие импульсного неоднородного магнитного поля на фотонное эхо. В [14] и [15] измерения проводились при $H_{dc} \approx 30 \text{ кГс}$.

Влияние импульсного однородного магнитного поля на фотонное эхо впервые исследуется в нашей работе. Как было показано, использование осцилляции фотонного эха позволяет измерять в нулевом постоянном магнитном поле зеемановское расщепление оптической частоты порядка 10 МГц , в то время как спектральная ширина лазера на три порядка больше.

Отметим, что в стороне остались вопросы о зависимости амплитуды осцилляции от постоянного магнитного поля (рис. 4), о механизме затухания осцилляций. Данные задачи являются темой будущей работы.

Исследования поддержаны программой Отделения физических наук РАН “Фундаментальная оптическая спектроскопия и ее применение”.

1. V. N. Lisin, V. V. Samartsev, A. M. Shegeda et al., *Laser Phys. Lett.* **3**, 423 (2003).
2. I. D. Abella, N. A. Kurnit, and S. R. Hartmann, *Phys. Rev.* **141**, 391 (1966).
3. D. Grischkowsky and S. R. Hartmann, *Phys. Rev. B* **2**, 60 (1970).
4. L. Q. Lambert, *Phys. Rev. B* **7**, 1834 (1973).
5. L. G. Rowan, E. L. Hahn, and W. B. Mims, *Phys. Rev. A* **137**, 61 (1965).
6. В. Н. Лисин, А. М. Шегеда, *Казанский физико-технический институт им. Е. К. Завойского 2010. Ежегодник*, Казань: ФизтехПресс, 2011, с. 164.
7. Y. P. Wang and R. S. Meltzer, *Phys. Rev. B* **45**, 10119 (1992).
8. J. P. Sattler and J. Nemanich, *Phys. Rev. B* **4**, 1 (1971).
9. R. M. MacFarlane, R. Wannemacher, D. Boye et al., *J. Lumin* **48-49**, 313 (1991).
10. Р. Ю. Абдулсабиров, А. А. Антипин, С. Л. Кораблева и др., *Изв. ВУЗов. Физика* **2**, 24 (1988).
11. M. L. Falin, K. I. Gerasimov, B. N. Kazakov, and M. A. Yakshin, *Appl. Magn. Reson.* **17**, 103 (1999).
12. S. M. Kulpa, *J. Phys. Chem. Solids* **36**, 1317 (1975).
13. R. M. Macfarlane, A. Cassanho, and R. S. Meltzer, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 542 (1992).
14. R. Wannemacher, D. Boye, Y. P. Wang et al., *Phys. Rev. B* **40**, 4237 (1989).
15. Y. P. Wang, D. M. Boye, J. E. Rives, and R. S. Meltzer, *J. Lumin.* **45**, 437 (1990).