

ПОЛЯРИЗАЦИЯ СВЕТОВОГО ЭХА В $\text{Pr}^{3+} : \text{LaF}_3$

В.Н. Лисин

*Физико-технический институт Казанского научного центра РАН
420029 Казань, Россия*

Поступила в редакцию 25 февраля 1993 г.

Проведен расчет сигналов эха с учетом механизма электрических дипольных переходов, локальной симметрии места расположения иона в кристалле, структуры кристалла. Показано, что поляризация эха определяется простыми правилами отбора оптических переходов и равна сумме трех векторов, направленных соответственно вдоль трех кристаллографических осей. Относительная величина каждого из них зависит только от площадей лазерных импульсов и ориентации поляризации импульсов относительно соответствующей оси.

Кристалл $\text{Pr}^{3+} : \text{LaF}_3$ является классической модельной системой, изученной множеством методов. Поляризационные закономерности генерации эхоткликов в данной системе мало изучены и частично исследованы недавно только в одной работе ¹, результаты которой нам представляются спорными. В ¹ экспериментально обнаружено уменьшение до нуля интенсивности стимулированного эха, когда поляризации двух импульсов совпадают, а поляризация третьего импульса ориентирована нормально к ним. На первый взгляд кажется, что поляризация эха не должна зависеть от ориентаций поляризаций возбуждающих импульсов, так как уровни Pr^{3+} в LaF_3 являются простыми синглетами. Однако, как показано в настоящей работе, наличие трех различных по направлению локальной оси симметрии мест расположения ионов Pr^{3+} в элементарной ячейке кристалла LaF_3 с учетом простых правил отбора, обусловленных механизмом электрических дипольных переходов, приводит к угловой зависимости, качественно объясняющей экспериментальный результат работы ¹.

В настоящей работе проведен анализ поляризации первичного, стимулированного и долгоживущего стимулированного эха с учетом механизма электрических дипольных переходов в данной системе, локальной симметрии редкоземельного (РЗ) иона и структуры кристалла.

В работе ² из сравнения теоретически вычисленных значений вероятности спонтанных переходов с экспериментально наблюдаемыми установлено для $\text{Pr}^{3+} : \text{LaF}_3$, что оптические электронные переходы внутри $4f^2$ основной конфигурации иона Pr^{3+} , запрещенные в первом приближении как переходы между состояниями с одинаковой четностью, являются электрическими дипольными и обусловлены механизмом Джадда – Офельта. При низких температурах этот механизм заключается в том, что если место РЗ иона в кристалле не является центром симметрии, то статическая нечетная составляющая кристаллического поля добавляет к волновой функции иона состояние противоположной четности, разрешая, таким образом, электрический дипольный переход.

Статическая нечетная компонента кристаллического поля обладает локальной симметрией РЗ иона, поэтому существуют правила отбора ³ электрических дипольных переходов по кристаллическому квантовому числу. Эти правила отбора зависят от типа симметрии и в случае C_2 -симметрии, которая является

локальной симметрией ионов Pr^{3+} в LaF_3 ^{4,5}, их можно записать в следующем виде:

$$\langle m_f, f(\Gamma_1) | \mathbf{P}(\alpha) | m_g, g(\Gamma_1) \rangle = e_\alpha P_{fg} \langle m_f | m_g \rangle, \quad \alpha = \alpha, \beta, \gamma, \quad (1)$$

где g и f обозначают основное и возбужденное состояния,

$$|m_g, g(\Gamma_1)\rangle = |m_g\rangle |g(\Gamma_1)\rangle, \quad |m_f, f(\Gamma_1)\rangle = |m_f\rangle |f(\Gamma_1)\rangle;$$

$|m_g\rangle$ и $|m_f\rangle$ – собственные псевдоквадрупольные ядерные состояния в основном, $|g(\Gamma_1)\rangle$, и возбужденном, $|f(\Gamma_1)\rangle$, электронных состояниях, \mathbf{P} и P_{fg} – оператор и соответственно эффективный матричный элемент электрического дипольного момента, e_α – единичный вектор, направленный вдоль кристаллографической оси α . При выводе (1) было учтено, что в элементарной ячейке кристалла LaF_3 ионы Pr^{3+} могут замещать La^{3+} в трех различных типах мест (α, β, γ) ^{4,5}, локальные оси C_2 -симметрии которых направлены вдоль кристаллографических осей (α, β, γ) , которые расположены под углом $2\pi/3$ в плоскости, нормальной оси C_3 (оптической оси кристалла), поэтому правила отбора для ионов α, β и γ различны. Кроме того, было учтено, что в кристаллическом поле C_2 -симметрии мультиплеты Pr^{3+} в LaF_3 расщепляются на простые невырожденные уровни, состояния которых преобразуются по представлениям Γ_1 и Γ_2 , причем основными состояниями мультиплетов являются Γ_1 -состояния ⁶, и что из-за сильной электрон-фононной безызлучательной релаксации световое эхо наблюдается между основными состояниями только двух мультиплетов ${}^3\text{H}_4(\Gamma_1) - {}^3\text{P}_0(\Gamma_1)$ и ${}^3\text{H}_4(\Gamma_1) - {}^1\text{D}_2(\Gamma_1)$.

Из (1) видно, что направление вектора дипольного матричного элемента не зависит от m_f и m_g , то есть от того, между какими уровнями основного и возбужденного состояний происходит переход. В этом существенное отличие $\text{Pr}^{3+} : \text{LaF}_3$ от других систем. Поэтому описание эксперимента в работе ¹ с помощью феноменологической трехуровневой системы, когда направление поляризации эха зависит от псевдоквадрупольных ядерных состояний основного уровня, некорректно. Из (1) также следует, что поляризационные и модуляционные свойства эха факторизуются, так как модуляционные свойства определяются ядерными состояниями. Кроме того, из (1) вытекает, что поляризации долгоживущего и обычного стимулированного эха совпадают, так как длинная память определяется временем жизни ядерных состояний основного электронного уровня. Если бы ионы Pr^{3+} занимали в кристалле LaF_3 только один тип мест, то поляризация эха, как следует из (1), не зависела бы от поляризаций возбуждающих лазерных импульсов. Эта зависимость возникает от наличия трех различных типов мест (α, β, γ) иона Pr^{3+} в кристалле LaF_3 .

Для вывода выражения, описывающего эхо-отклик, воспользуемся техникой расчетов поляризации эха в газах ⁷ и модуляции стимулированного эха ⁸, учитывая при этом правила отбора (1). Считая ядерные уровни основного состояния ${}^3\text{H}_4(\Gamma_1)$ равнозаселенными, а поляризации импульсов – линейными, нетрудно получить для среднего дипольного момента системы следующее выражение:

$$\langle \mathbf{P} \rangle = \text{Im}[M \exp(i\omega t)] P_{fg} \mathbf{Q}, \quad (2)$$

где $\omega/2\pi$ – частота лазерного поля, одинаковая для всех импульсов, M – известный ⁸ модуляционный множитель, учитывающий фазы импульсов, ре-

лаксацию и модуляцию эха в зависимости от длительности интервалов между импульсами. Множитель M различен для первичного, стимулированного, долгоживущего стимулированного эха, прямого и обращенного эха, но он влияет только на амплитуду сигнала, а не на поляризацию, и поэтому выражение для M здесь не приводится. Выражение для Q имеет вид

$$Q_1 = \sum_{\alpha=\alpha,\beta,\gamma} e_{\alpha} \sin[\theta_1(e_{\alpha}e_1)] \sin^2[(\theta_2/2)(e_{\alpha}e_2)] \quad (3)$$

для первичного эха и

$$Q_2 = \sum_{\alpha=\alpha,\beta,\gamma} e_{\alpha} \sin[\theta_1(e_{\alpha}e_1)] \sin[\theta_2(e_{\alpha}e_2)] \sin[\theta_3(e_{\alpha}e_3)] \quad (4)$$

для стимулированного эха. В случае обращенного первичного эха, когда второй импульс является стоячей волной, в выражении (3) следует заменить $\sin^2[(\theta_2/2)(e_{\alpha}e_2)]$ на $1 - J_0[\theta_2(e_{\alpha}e_2)]$. Выражение для обращенного стимулированного эха, когда импульсы 2 и 3 – стоячие волны, совпадает с (4). Здесь $\theta_i = E_i \Delta t_i P_{fg}$ – площадь i -го импульса, Δt_i – его длительность, E_i и e_i – амплитуда и поляризация электрического поля лазерного импульса.

Из (3) и (4) следует, что если поляризации двух возбуждающих импульсов направлены нормально соответственно β и γ кристаллографическим осям, то возбуждаются только α -ионы и поляризация направлена вдоль α -оси, независимо от поляризации третьего импульса в случае стимулированного эха. Такое выборочное возбуждение может повысить плотность записи информации в три раза. Из (4) следует, что если ориентировать поляризацию каждого лазерного импульса нормально соответственно каждой из трех кристаллографических осей, то интенсивность стимулированного эха обращается в нуль, так как не возбуждается ни один ион. Интенсивность эха обращается в нуль еще в одном случае, когда поляризации импульсов расположены под углом $\pi/3$ в плоскости, нормальной оптической оси, и их площади равны, что следует из (4). В этом случае возбуждаются все ионы, но их поляризации взаимно компенсируются. При произвольной ориентации поляризаций возбуждающих лазерных импульсов, когда каждый импульс может возбуждать одновременно ионы, расположенные на всех трех типах мест (α, β, γ), поляризация и амплитуда эхо-откликов зависят от амплитуд и ориентаций поляризаций импульсов относительно кристаллографических осей, что можно использовать для определения этих осей. Например, если поляризации всех импульсов совпадают ($e_1 \parallel e_2 \parallel e_3$) и ориентированы вдоль одной из кристаллографических осей, то интенсивность эха увеличивается на 40%, когда поляризация импульсов составляет угол $\pi/6$ с данной осью в плоскости, нормальной оптической оси, если при этом $\theta_1 = \theta_2 = \theta_3 = \pi/2$. Зависимость поляризации и интенсивности эха от ориентации поляризаций импульсов относительно кристаллографических осей исчезает при малых площадях импульсов. Действительно, если в выражении (4) заменить синусы их аргументами и учесть, что

$$\sum_{m=1}^{m=3} \exp(i \cdot 2\pi m/3 + i\varphi) = 0$$

(сумма корней из единицы равна нулю), то не трудно получить

$$Q_3 = \frac{3}{8} \theta_1 \theta_2 \theta_3 (q^x e_x + q^y e_y) = \frac{3}{8} \theta_1 \theta_2 \theta_3 q, \quad (5)$$

$$q_x = \cos(-\varphi_1 + \varphi_2 + \varphi_3) + \cos(+\varphi_1 - \varphi_2 + \varphi_3) + \cos(+\varphi_1 + \varphi_2 - \varphi_3),$$

$$q_y = \sin(-\varphi_1 + \varphi_2 + \varphi_3) + \sin(+\varphi_1 - \varphi_2 + \varphi_3) + \sin(+\varphi_1 + \varphi_2 - \varphi_3),$$

где плоскость (X, Y) нормальна оптической оси, вдоль которой распространяются лазерные импульсы, φ_i — углы между поляризациями импульсов и осью X , e_x и e_y — единичные векторы, направленные соответственно вдоль осей X и Y . Рассмотрим случай, реализованный в работе ¹, когда поляризации двух импульсов совпадают, например $\varphi_2 = \varphi_3$. Из (5) следует

$$\mathbf{q} = e_1 + 2e_2(e_2e_1), \quad e_2 \parallel e_3, \quad \theta_i \ll 1. \quad (6)$$

Отсюда видно, что интенсивность стимулированного эха уменьшается в 9 раз (но не до нуля, как в ¹), когда поляризация третьего импульса нормальна поляризациям остальных двух импульсов. При конечных значениях площадей, как показывают оценки, интенсивность эха уменьшается слабее. Различие с ¹ связано, на наш взгляд, с погрешностью эксперимента, которая в ¹ не указана. Кроме того, из (6) следует, что при малых площадях импульсов, когда уменьшение интенсивности эха самое сильное, интенсивность эха, как функция от углов, не зависит от площадей, поэтому экспериментальное определение в ¹ значения эффективного матричного элемента электрического дипольного момента по данной угловой зависимости, на наш взгляд, некорректно.

В заключение отметим, что простота полученных результатов физически обусловлена простыми уровнями и механизмом электрических дипольных переходов редкоземельного иона в данной матрице.

Автор благодарит В.А.Зуйкова и Н.К.Соловарова за обсуждение результатов работы.

-
1. V.A.Zuikov et al. *Laser. Physics*, **2**, 747 (1992).
 2. M.J.Weber, *J. Chem. Phys.* **48**, 4774 (1968).
 3. М.А.Ельяшевич, *Спектры редких земель*, Гостехиздат, М.: 1953.
 4. A.Zalkin, D.H.Templeton and T.E.Hopkins, *Inorg. Chem.*, **5**, 1446 (1966).
 5. B.R.Reddy and L.E.Ericson. *Phys. Rev. B* **27**, 5217 (1983).
 6. S.Matthies and D.Welsh, *Phys. Stat. Sol. (b)* **68**, 125 (1975).
 7. J.R.Gordon et al. *Phys. Rev.* **179**, 294 (1969).
 8. M.Mitsunaga, R.Yano and N.Usegi. *Phys. Rev. B* **45**, 12760 (1992).