УДК 535.33

БИСТАБИЛЬНОСТЬ В СРЕДЕ С ДИПОЛЬ-ДИПОЛЬНЫМ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕМ

С. В. Сазонов

Исследовано резонансное нестационарное поглощение когерентного оптического импульса средой в присутствии прямого диполь-дипольного взаимодействия между оптически активными центрами. В качестве конкретной среды рассмотрен сегнетоэлектрик типа порядок—беспорядок. Найдены два возможных значения интенсивности импульса, поглощаемого средой, при которых отсутствует его когерентное переизлучение.

Известно [1], что короткие лазерные импульсы позволяют исследовать когерентные эффекты, которые разрушаются процессами релаксации. Непременным условием их экспериментального наблюдения является: $\tau < T_1, T_2$, где τ — длительность когерентного поглощения; T_1, T_2 — времена продольной и поперечной релаксации соответственно. Обычно $T_2 < T_1$.

В настоящей работе в приближении вращающейся волны (ПВВ) [1] рассмотрен процесс поглощения резонансного лазерного импульса образцом сегнетоэлектрика типа порядок—беспорядок. В качестве резонансной двухуровневой системы используются переходы между четными и нечетными состояниями протона в эффективном кристаллическом потенциале [2]. В парафазе оба минимума потенциала заполнены с равной вероятностью. В сегнетофазе симметрия заполнения нарушается и кристалл поляризуется. Обычно используется представление функций заполнения правого и левого минимумов [2]. В этом представлении квантовый гамильтониан системы «сегнетоэлектрик—электромагнитное поле» имеет вид [3]

$$H = -\hbar\omega_0 \sum_{m=1}^{N} R_m^x + \hbar\omega c^+ c - \hbar \sum_{i\neq j} \mathcal{J}_{ij} R_i^z R_j^z + V,$$

$$V = \hbar \frac{g}{\sqrt{N}} \sum_{m=1}^{N} R_m^z (c + c^+). \qquad (1)$$

Здесь ω_0 — интеграл квантового туннелирования протона между минимумами кристаллического потенциала; ω — частота фотонного поля; $\mathcal{J}_{ij}$, $g=\sqrt{\rho/(2\varepsilon_0\hbar\omega)}\,\omega_0 d$ — константы диполь-дипольной и диполь-фотонной связей соответственно; $\hbar$ — постоянная Планка; ε_0 — электрическая постоянная; N — число оптически активных протонов; ρ — их концентрация; d — матричный элемент дипольного момента четно-нечетного перехода протона; c^+, c — операторы рождения—уничтожения фотонов; R^x, R^y, R^z — операторы Паули со спиновыми коммутационными соотношениями.

Для дальнейшего исследования перейдем к базису четных и нечетных квантовых состояний протона при помощи унитарного преобразования гамильтониана (1) вида [2]

$$\tilde{H} = UHU^{-1}, \quad U = \prod_{j=1}^{N} U_j, \quad U_j = (1 - 2iR_j^y)/\sqrt{2},$$

будем иметь

$$\tilde{H} = \hbar\omega_0 \sum_{m=1}^{N} R_m^z + \hbar\omega c^+ c - \hbar \sum_{i \neq j} \mathcal{J}_{ij} R_i^x R_j^y + \tilde{V},$$

$$\tilde{V} = \hbar \frac{g}{\sqrt{N}} \sum_{m=1}^{N} R_m^x (c + c^+).$$

Примем в дальнейшем, что $\omega_0 \gg g \gg |\mathcal{J}_{ij}|$. Вводя понижающий $R_m^- = R_m^x - iR_m^y$ и повышающий $R_m^+ = R_m^x + iR_m^y$ операторы и отбрасывая антирезонансные члены вида $R_m^+ c^+$, $R_m^- c$, $R_m^\pm R_l^\pm$ (ПВВ), получим

$$\tilde{H} = \hbar\omega_0 \sum_{m=1}^{N} R_m^z + \hbar\omega c^+ c - \hbar \sum_{i \neq j} \Gamma_{ij} R_i^+ R_j^- + \tilde{V},$$

$$\tilde{V} = \hbar \frac{g}{\sqrt{N}} \sum_{m=1}^{N} (R_m^+ c + R_m^- c^+), \quad \Gamma_{ij} = \mathcal{J}_{ij} + \mathcal{J}_{ji}^*. \tag{2}$$

Из (2), пользуясь представлением Гейзенберга, получаем систему операторных уравнений

$$dR_m^z/dt = i \frac{g}{\sqrt{N}} (R_m^- c^+ - R_m^+ c), \tag{3}$$

$$dR_m^+/dt = i\omega_0 R_m^+ - 2i \frac{g}{\sqrt{N}} R_m^z c^+ - 2i \sum_{j=1}^{N} \Gamma_{jm} R_j^z R_m^+, \tag{4}$$

$$dc^+/dt = i\omega c^+ + i \frac{g}{\sqrt{N}} \sum_{m=1}^{N} R_m^+. \tag{5}$$

Уравнения для R_m^-, c получаются соответственно эрмитовым сопряжением (4) и (5). Легко видеть, что

$$[H, \hat{E}] = [H, \hat{R}^2] = 0, \tag{6}$$

где

$$\hat{E} = c^+ c + \sum_{m=1}^{N} R_m^z, \quad \hat{R}^2 = \sum_l \left(\sum_{j=1}^{N} R_j^l \right)^2, \quad l = x, y, z.$$

Пусть в начальный момент времени $t = 0$ сегнетоэлектрик находится в парафазе. При этом все протоны принадлежат четному состоянию. Тогда $R(0) \equiv \sum_{m=1}^{N} \langle R_m^z(0) \rangle = -N/2$. Здесь $\langle \ldots \rangle$ — квантовое среднее по начальному состоянию. В этом состоянии $\langle R^\pm(0) \rangle = \sum_{m=1}^{N} \langle R_m^\pm(0) \rangle = 0$. Пусть на данную систему падает когерентный импульс, содержащий $n(0)$ фотонов. Воспользуемся в (3)—(5) приближением «молекулярного поля» [2-4]

$$\sum_{j=1}^{N} \Gamma_{jm} R_j^z \to \langle R_j^z \rangle \sum_{j=1}^{N} \Gamma_{jm} = N \langle R_j^z \rangle \alpha,$$

тогда из (3)—(6) для коллективной инверсии среды $R(t) \equiv \sum_{m=1}^{N} \langle R_m^z(t) \rangle$ получим замкнутое динамическое уравнение ($\omega = \omega_0$)

$$d^2R/dt^2 = -2\alpha^2 R^3 + 6\tilde{g}^2 (1 + \delta^2) R^2 - 4\tilde{g}^2 (E - \delta^2 R^2(0)) R - 2\tilde{g}^2 (1 + \delta^2) R^2(0),$$

$$\tilde{g} = g\sqrt{N}, \tag{7}$$

где

$$\delta^2=0.5\alpha^2/\tilde{g}^2,\quad E=\langle\hat{E}\rangle=n(0)+R(0),\quad \delta^2\ll 1.$$

Уравнение (7) содержит два механизма нелинейности. Первая нелинейность — оптическая, обусловленная обратной реакцией среды на поле фотонов. Вторая — «собственная» нелинейность среды, вызванная диполь-дипольным взаимодействием. В работе [4] учитывался последовательно только второй тип нелинейности. Общее решение (7) имеет вид

$$R(t)=\frac{\alpha_4(\alpha_1-\alpha_3)+\alpha_1(\alpha_3-\alpha_4)\operatorname{sn}^2(\Omega t,\ k)}{\alpha_1-\alpha_3+(\alpha_3-\alpha_4)\operatorname{sn}^2(\Omega t,\ k)},\tag{8}$$

где $\alpha_4<\alpha_3\leqslant\alpha_2<\alpha_1$ — корни полинома

$$Q(x)=-\alpha^2x^4+4g^2(1+\delta^2)x^3-4g^2(E-\delta^2R^2(0))x^2-4g^2(1+\delta^2)R^2(0)+A.$$

Здесь A определяется из условия, что $\alpha_4=R(0)$ — корень $Q(x)$; sn — эллиптический синус Якоби, k — его модуль,

$$\Omega=\frac{g\delta}{2k}\sqrt{(\alpha_1-\alpha_2)(\alpha_3-\alpha_4)},\quad k^2=\frac{(\alpha_1-\alpha_2)(\alpha_3-\alpha_4)}{(\alpha_1-\alpha_3)(\alpha_2-\alpha_4)}.$$

Выражение (8) описывает оптическую нутацию [1] в сегнетоэлектрике. Экспериментально этот эффект должен проявляться в виде модуляции интенсивности переизлученных фотонов, сопровождающейся динамической переполяризацией сегнетоэлектрика. Выражение (8) содержит в себе частные случаи безвозвратного поглощения фотонов средой. Соответствующие решения для числа фотонов имеют вид (инверсия находится из закона сохранения числа возбуждений (6))

$$n_{1,2}(t)=n_{1,2}(0)(1+B_{1,2}^2\operatorname{sh}^2\Omega_{1,2}t)^{-1},\tag{9}$$

где

$$n_1(0)=2|R(0)|=N,\tag{10}$$

$$n_2(0)=2|R(0)|(1+\lambda^{-1})/3,\quad \lambda=\delta^2|R(0)|,\tag{11}$$

$$B_1^2=(1-\lambda)^{-1},\quad B_2^2=(1+\lambda^{-1})/3,\tag{12}$$

$$\Omega_1=\Omega_0\sqrt{1-\lambda},\quad \Omega_2=\Omega_0\sqrt{(1+3)/3},\quad \Omega_0=g.\tag{13}$$

Пороговое условие (10) хорошо известно [5]. Оно существует также в системе без диполь-дипольной связи и связано с тем, что среда переходит в полностью инвертированное состояние с поглощением всех фотонов. Такое состояние может нарушить лишь продольная релаксация (например, спонтанное излучение), которая не учитывается в данной работе. Порог (11) должен проявляться лишь при наличии прямого диполь-дипольного взаимодействия. Он вызван «собственной» нелинейностью среды, а именно постепенным выходом ее из резонанса в процессе поглощения фотонов (см. (4)). Минимальное значение λ, при котором данный порог способен проявить себя, находится из того условия, что максимальному возбуждению среды соответствует $R=N/2$. Тогда из (6), (9), (11) найдем $\lambda_{\min}=0.5$. Порог (10) существует, пока $\lambda\leqslant 1$ (см. (13)). Следовательно, в интервале $0.5<\lambda\leqslant 1$ могут проявиться оба порога. Это вызвано двумя механизмами нелинейности, отмеченными выше. При $\lambda<0.5$ преобладает оптическая нелинейность, а при $\lambda>1$ «собственная». Из (11) следует, что при $\lambda\gg 1$ $n_2(0)/n_1(0)=1/3$. Это согласуется с основным результатом работы [6], где отмечалось, что при сильной межатомной связи нелинейные эффекты поглощения электромагнитного поля должны проявляться при его интенсивностях, в 3 раза меньших, чем в случае изолированных атомов. Таким образом, при $\lambda=0$ и $\lambda\gg 1$ наблюдаются совпадения с результатами работ [5, 6]. Подход, совершенный в данной работе, позволяет исследовать случай промежуточных значений λ. На рис. 1 представлена соответствующая (10) и (11) бифуркационная диаграмма в плоскости $F\equiv n(0)/N,\ \lambda$. Метастабильному состоянию, в которое переходит поглощающая среда при $n(0)=n_2(0)$, соответствует $R=-|R(0)|(1-2\lambda^{-1})/3$. Как видно из (4), (5), в этом случае $\langle R^+\rangle=\langle R^-\rangle=0$. Однако $\langle R^+R^-\rangle\neq 0$. Следовательно, данное метастабильное состояние является состоянием Дикке [1], при котором квантовое среднее дипольного момента среды равно нулю, а его квадрата — отлично от нуля и при $R=0$ пропорционально N^2 [1].

Отмеченная бистабильность инверсии экспериментально должна проявляться в том, что после поглощения сегнетоэлектриком электромагнитного импульса интенсивностей, определяемых (10) и (11), за времена $\tau_1\simeq\Omega_0^{-1}$, $\tau_2\simeq\Omega_2^{-1}$ соответственно в течение времени $\Delta t < T_1$ должно отсутствовать его переизлучение (рис. 2). При этом сегнетоэлектрик должен приближаться к парафазе, протоны в первом случае все, во втором ча-

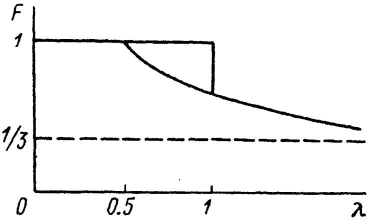

Рис. 1. Зависимость нормированного числа фотонов $F\equiv n(0)/N$ в падающем импульсе, при котором происходит его безвозвратное поглощение, от λ.

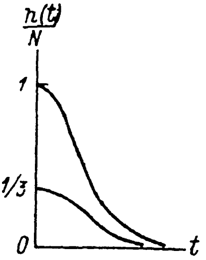

Рис. 2. Процесс поглощения импульса фотонов, задаваемый (9)—(13). Принято $\lambda=1$.

стично переходят в состояние с отрицательной четностью. Взяв для KDP сегнетоэлектрика $\omega_0\sim 10^{13}$ с$^{-1}$, $\rho\sim 10^{27}$ м$^{-3}$, $d\sim 10^{-30}$ А·с·м, найдем, что $\tau_1\sim 10^{-12}$ с, что на 2—3 порядка меньше времен релаксации T_1, T_2 [3]. Данным параметрам соответствует интенсивность лазерного импульса $\mathcal{J}=c\rho\hbar\omega\sim 10^{14}$ Вт/м^2 (c — скорость света).

Следуя методике, изложенной в работе [7], оценим параметр для конкретного образца кристаллической среды. Пусть образец имеет форму цилиндра радиуса r, длины L; импульс падает в направлении его длины. Пусть также среднее расстояние между соседними оптически активными протонами равно a. Энергия классического диполь-дипольного взаимодействия определяется выражением

$$\hbar\Gamma_{ij}=\frac{1}{4\pi\varepsilon_0}\left\{\frac{\mathbf{d}_i\mathbf{d}_j}{r_{ij}^3}-\frac{3(\mathbf{d}_i\cdot\mathbf{r}_{ij})(\mathbf{d}_j\cdot\mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^5}\right\},$$

$\mathbf{d}_i$, $\mathbf{d}_j$ — дипольные моменты i-го и j-го диполей; $\mathbf{r}_{ij}$ — радиус-вектор, соединяющий их. В нашем случае $\mathbf{d}_i=\mathbf{d}_j=\mathbf{d}\uparrow\uparrow\mathbf{e}$, где $\mathbf{e}$ — орт поляризации фотонов. Тогда в цилиндрической системе координат

$$\hbar\alpha=\hbar\sum_j\Gamma_{ij}\approx\frac{\hbar d^2}{4\pi\varepsilon_0 V}\int_a^L dz\int_0^{2\pi}d\varphi\int_a^r\frac{r_\perp dr_\perp}{(r_\perp^2+z^2)^{3/2}}\left\{1-\frac{3r_\perp^2\sin^2\varphi}{z_\perp^2+z^2}\right\},$$

V — объем цилиндра. Полагая, что $R\gg L\gg a$, найдем

$$\alpha\simeq\frac{d^2}{4\varepsilon_0\hbar V}\left(1+\frac{7}{4}\ln\frac{2L}{a}\right).$$

Тогда

$$\lambda\simeq\frac{d^2}{32\varepsilon_0\hbar\omega_0}\rho\left(1+\frac{7}{4}\ln\frac{2L}{a}\right)^2. \qquad (14)$$

Из (14) видна очень слабая (логарифмическая) зависимость параметра λ от длины цилиндра. Подбирая образцы с соответствующими параметрами можно достичь значений λ, при которых возможна отмеченная выше бистабильность.

Литература

[1] *Аллен Л., Эберли Дж.* Оптический резонанс и двухуровневые атомы. М.: Мир, 1978. 224 с.
[2] *Вакс В. Г.* Введение в микроскопическую теорию сегнетоэлектриков. М.: Наука, 1973. 328 с.
[3] *Боголюбов Н. Н.* (мл.), *Плечко В. Н., Шумовский А. С.* ЭЧАЯ, 1983, т. 14, № 6, с. 1443—1497.
[4] *Белоненко Б. М., Кессель А. Р., Шакирзянов М. М.* ФТТ, 1987, т. 29, № 11, с. 3345—3348.
[5] *G. Scharf.* Helf. Phys. Acta, 1970, vol. 43, N 8, p. 806—828.
[6] *Неркарарян Х. В.* ЖЭТФ, 1985, т. 89, № 5 (11), с. 1558—1563.
[7] *Ben- Aryeh Y., Bowden C. M., Englund J. C.* Phys. Rev., 1986, vol. 34, N 5, p. 3917—3926.

Калининградский государственный университет
Калининград

Поступило в Редакцию 18 января 1988 г.
В окончательной редакции 3 мая 1988 г.