

ОБ ОТНОСИТЕЛЬНЫХ ВЕЛИЧИНАХ ДИПОЛЬНЫХ МОМЕНТОВ В ТЕОРИИ ДОЛГОЖИВУЩЕГО СВЕТОВОГО ЭХА

Н. Н. Ахмедиев, И. В. Мельников

1. Долгоживущее стимулированное световое эхо (ДСЭ), обусловленное большим (~ 1 мин) временем релаксации между сверхтонкими подуровнями основного состояния примесного иона, является одним из эффектов, которые могут найти применение в быстродействующих оптических запоминающих устройствах [1]. Теория этого явления к настоящему времени разработана далеко не полностью. В работе [2] было показано, что значительную роль в явлении ДСЭ играют взаимная ориентация и относительные величины дипольных моментов переходов между сверхтонкими подуровнями оптических состояний примесного иона. Расчет матричных элементов переходов между сверхтонкими подуровнями состояний 1D_2 и 3H_4 в кристалле $\text{LaF}_3 : \text{Pr}^{3+}$ привел в [3], однако для перехода ${}^3H_4 \rightarrow {}^3P_0$, используемого в эксперименте [4, 5], ни относительные величины, ни ориентация дипольных моментов до сих пор точно неизвестны. Поэтому количественный анализ явления ДСЭ оказывается затруднительным.

В данной работе мы сообщаем результаты расчета относительных величин дипольных моментов переходов между подуровнями сверхтонкой структуры состояний 3P_0 и 3H_4 трехвалентного иона празеодима в матрице LaF_3 в зависимости от ориентации фундаментальных осей ядерных гамма-квантов иона Pr^{3+} в основном 3H_4 и возбужденном 3P_0 состояниях. Проведение подобных расчетов представляется совершенно необходимым в связи с тем, что указанная ориентация при гелиевых температурах остается все еще неопределенной, несмотря на попытки установить ее экспериментально [6].

2. Для расчета дипольных моментов переходов между подуровнями сверхтонкого расщепления воспользуемся методикой, изложенной в работе [3]. Схема энергетических состояний приведена на рис. 1. Предположим, следуя [3], что собственные функции (СФ) основного и возбужденного состояний иона Pr^{3+} представимы в виде произведения электронных $|\varphi\rangle$ и ядерных $|\psi\rangle$ СФ. Тогда матричный элемент электродипольного перехода равен

$$\mu_{ij} = \langle \varphi^e | \hat{\mu} | \varphi^g \rangle \langle \psi_i^e | \psi_j^g \rangle,$$

где $\hat{\mu}$ — оператор дипольного момента; индексы «e» и «g» относятся к СФ основного и возбужденного состояний. Матричный элемент $\langle \varphi^e | \hat{\mu} | \varphi^g \rangle$ для всех i и j одинаков, и задача определения относительных величин дипольных моментов μ_{ij} и их взаимной ориентации сводится к определению скалярного произведения $\langle \psi_i^e | \psi_j^g \rangle$ СФ ядерного гамма-гамильтониана для основного и возбужденного состояний.

Кристалл LaF_3 принадлежит к кристаллографическому классу $R\bar{3}c - D_{3d}^3$ [7], обладающему тригональной структурой с шестью молекулами в элементарной ячейке и точечной симметрией C_2 каждого из трех неэквивалентных узлов иона La. Ось C_2 перпендикулярна оси c кристалла, а симметрия узла не меняется при замещении лантана ионом Pr^{3+} . Вследствие низкой симметрии этого узла вырождение электронных состояний иона Pr^{3+} частично снимается воздействием локальных полей. Поскольку ядро иона Pr^{3+} обладает полуцелым спином $I=5/2$, то каждое штарковски расщепленное электронное состояние оказывается дополнительно расщепленным из-за сверхтонкого (для состояния 3H_4) или квадрупольного (для состояния 3P_0) взаимодействия [8].

Гамильтониан, соответствующий сверхтонкому и/или квадрупольному взаимодействию для иона Pr^{3+} , имеет вид [8]

$$H = P \left(I_x^2 - \frac{1}{3} I(I+1) \right) + \frac{\eta}{3} (I_x^2 - I_y^2), \quad (1)$$

параметры $P=4.185$ МГц, $\eta=0.105$ для состояния 3H_4 и $P=0.312$ МГц, $\eta=0.5$ для состояния 3P_0 . Оси систем координат, в которых записываются гамильтонианы вида (1) для основного (X, Y, Z) и возбужденного (X', Y', Z') состояний, не обязаны совпадать, однако ось C_2 должна быть параллельна одной из осей каждой из этих систем, две другие оси одной из этих систем могут быть ориентированы относительно соответствующих осей другой под некоторым углом [8].

В гамильтониане (1) слагаемое, пропорциональное η , возникает вследствие нарушения аксиальной симметрии кри-

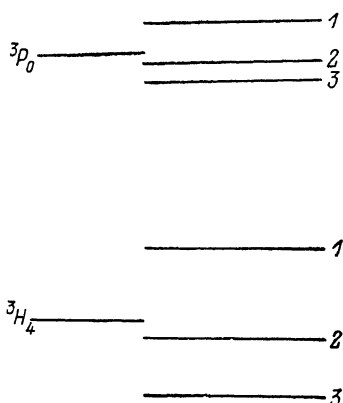


Рис. 1. Энергетическая диаграмма сверхтонкого расщепления уровней 3H_4 и 3P_0 иона Pr^{3+} в кристалле LaF_3 : $|\pm 5/2\rangle$, $i=1$ (1); $|\pm 3/2\rangle$, $i=2$ (2); $|\pm 1/2\rangle$, $i=3$ (3).

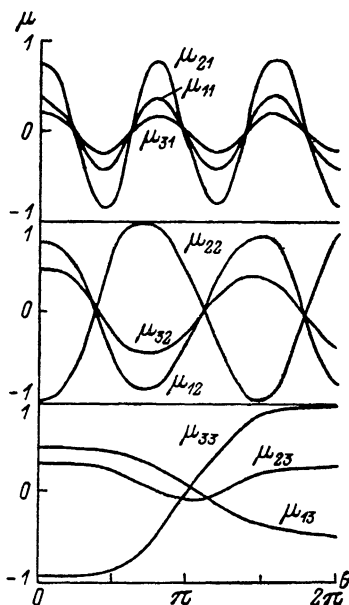


Рис. 2. Угловая зависимость дипольных моментов переходов между подуровнями сверхтонкой структуры.

сталлического поля. Следовательно, СФ оператора (1) уже не являются сферическими гармониками, а представляют собой их линейные комбинации

$$|\psi_i\rangle = \sum_m a_m^{(i)} |\pm m\rangle, \quad (2)$$

где $m=5/2, 1/2, -3/2$. В таблице приведены значения коэффициентов $a_m^{(i)}$, вычисленные по изложенной в [9] методике.

К дальнейшему перемешиванию состояний (2) приводит учет несовпадения двух систем координат. В системе координат (X, Y, Z) СФ для состояния 3P_0 выглядят следующим образом:

$$|\tilde{\psi}_i\rangle = \sum_{m, m'} a_m^{(i)} |\pm m'\rangle D_{m', m}^{5/2}(\alpha, \beta, \gamma),$$

где $D_{m', m}^{5/2}$ — матрица конечных вращений для системы с полным моментом $I=5/2$; α, β, γ — эйлеровы углы. Тогда для произведения $\langle \tilde{\psi}_i | \tilde{\psi}_j \rangle$ можно записать соотношение

$$\langle \tilde{\psi}_i | \tilde{\psi}_j \rangle = \sum_{m, m'} a_m^{(i)} a_{m'}^{(j)} D_{m', m}^{5/2}(\alpha, \beta, \gamma). \quad (3)$$

Взаимная ориентация фундаментальных осей в состояниях 3H_4 и 3P_0 точно неизвестна [6]. Будем считать, что оси Y' и Z параллельны,

Коэффициенты разложения СФ гамильтониана (1) в ряд по СФ оператора

$$I_z^2 - 1/3I(I+1): |\psi_i\rangle = a_{5/2}^{(i)} |\pm 5/2\rangle + a_{1/2}^{(i)} |\pm 1/2\rangle + a_{-3/2}^{(i)} |\mp 3/2\rangle$$

Состояние	$a_{5/2}^{(i)}$	$a_{1/2}^{(i)}$	$a_{-3/2}^{(i)}$
${}^3H_4 [^3]$	0.99982	0.01902	0.00073
	-0.01891	0.99695	-0.07575
	-0.00217	0.07573	0.99713
3P_0	0.99998	0.07692	0.01988
	-0.10713	0.95231	-0.35315
	0.00038	-0.00063	0.99987

а X' и Z' ориентированы в плоскости XU произвольным образом. Пусть θ — угол между осями X и Z' . В этом случае углы Эйлера равны $\alpha = \theta$, $\beta = \lambda = \pi/2$.

На рис. 2 приведены результаты расчета коэффициентов (3) ($i, j = 1, 2, 3$) в зависимости от величины угла θ . Из представленных здесь результатов следует, что в общем случае каждый из трех дважды вырожденных подуровней основного состояния связан с каждым из трех возбужденных подуровней одинаковым по порядку величины μ_{ij} переходом. Поэтому при анализе ДСЭ в кристалле $\text{LaF}_3 : \text{Pr}^{3+}$ необходимо учитывать все девять переходов.

Следует отметить, что расчеты были выполнены для иона Pr^{3+} , находящегося в одном из трех неэквивалентных узлов решетки. Так как для ионов Pr^{3+} , находящихся в любом из трех узлов, относительные величины матричных элементов одинаковы, то их вклад в выражение для интенсивности ДСЭ будет также одинаков.

3. Таким образом, измерение интенсивности сигналов ДСЭ при определенных выше зависимостях $\mu_{ij}(\theta)$ дает дополнительную возможность экспериментального определения взаимной ориентации фундаментальных осей гамильтониана (1) для основного и возбужденного состояний. Если же угол θ можно определить заранее из других экспериментов, то кривые рис. 2 позволяют провести количественное рассмотрение явления ДСЭ в заданной геометрии эксперимента.

Использованная нами методика расчетов позволяет также установить относительную величину и взаимную ориентацию дипольных моментов переходов и для других активных сред со сверхтонкой структурой оптических состояний (например, $\text{Y}_2\text{O}_3 : \text{Eu}^{3+}$ [10]), реализация ДСЭ в которых представляется более перспективной для практического использования.

В процессе работы авторы имели стимулирующие критические дискуссии с А. И. Поповым, которому выражается искренняя благодарность.

Список литературы

- [1] Ахмедиев Н. Н., Борисов Б. С., Зуйков В. А. и др. // Изв. АН СССР, сер. физ. 1986. Т. 50. № 8. С. 1488—1494.
- [2] Ахмедиев Н. Н., Мельников И. В. // Опт. и спектр. 1987. Т. 62. № 5. С. 969—975.
- [3] Mitzunaga M., Kintzer E. S., Brewer R. G. // Phys. Rev. B. 1985. V. 31. N 11. P. 6947—6957.
- [4] Ахмедиев Н. Н., Борисов Б. С., Зуйков В. А. и др. // Письма в ЖЭТФ. 1987. Т. 45. № 3. С. 122—124.
- [5] Kim M. K., Kachru R. // Opt. Lett. 1987. V. 12. N 6. P. 593—595.
- [6] Chiang K., Whittaker E. A., Hartmann S. R. // Phys. Rev. B. 1981. V. 23. N 11. P. 6142—6144.
- [7] Reddy B. R., Erickson L. E. // Phys. Rev. B. 1983. V. 27. N 9. P. 5217—5223.
- [8] Chen Y. C., Chiang K., Hartmann S. R. // Opt. Comm. 1978. V. 26. N 2. P. 269—272.
- [9] Карлов Н. В., Маненков А. А. Квантовые усилители. М., 1966. 332 с.
- [10] Babbitt W. R., Mossberg T. W. // Opt. Comm. 1988. V. 65. N 3. P. 185—188.

Поступило в Редакцию
15 ноября 1988 г.