1988 ЖУРНАЛ ТЕХНИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ Том 58, в. 5
1988 JOURNAL OF TECHNICAL PHYSICS Vol. 58, № 5

МНОГОКРАТНОЕ СТИМУЛИРОВАННОЕ СВЕТОВОЕ ЭХО В НЕОРГАНИЧЕСКИХ КРИСТАЛЛАХ, ОБУСЛОВЛЕННОЕ СВЕРХТОНКОЙ СТРУКТУРОЙ

Н. Н. Ахмедиев, И. В. Мельников

В работах [1-3] рассматривалась возможность применения сравнительно недавно открытого [4, 5] явления долгоживущего стимулированного светового эха (ДСЭ) в оптических запоминающих устройствах. В частности, рассматривался вопрос о многократном считывании информации, записанной первыми двумя импульсами [6, 7]. Было показано [6], что для органических молекул в твердой матрице каждый считывающий импульс приводит к ослаблению сигнала эха на величину, зависящую от времен релаксации и площадей импульсов, причем эту величину можно сделать близкой к единице соответствующим выбором материала среды или интенсивности считывающих импульсов. Указывалось также [7], что для некоторых многоуровневых систем этот коэффициент можно сделать в точности равным единице. Однако вопрос о возможности многократного считывания информации в неорганических кристаллах, где впервые наблюдалось само явление ДСЭ [4, 5], до сих пор оставался открытым.

В данной работе на основе аналитических расчетов найдена величина поля сигналов многократного стимулированного светового эха (МСЭ) в ансамбле двухуровневых систем, основное и возбужденное состояния которых расщеплены из-за сверхтонкого взаимодействия. Мы ограничили наше рассмотрение простейшими ситуациями расщепления на два и три подуровня. Первая имеет место, например, в кристаллах рубина, обогащенного изотопом Cr^{53} [8, 9]. Расщепление оптических состояний на три подуровня имеет место в кристалле $LaF_3 : Pr^{3+}$.

Схема энергетических уровней, рассматриваемая нами, изображена на рисунке, *а*, *б*. Сплошными стрелками указаны разрешенные переходы, волнистыми — релаксационные процессы, k_{ij} — соответствующие скорости, причем предполагается, что релаксация между подуровнями как основного, так и возбужденного состояний протекает значительно медленнее релаксации между оптическими уровнями. Следствием этого и является эффект ДСЭ. По этой же причине мы пренебрегаем релаксацией между подуровнями возбужденного состояния.

Расчеты макроскопических дипольных моментов, наведенных в рассматриваемых средах на частоте ω_0, проводились нами в тех же приближениях и для той же последовательности оптических импульсов и сигналов эха, что и в работе [6], на основе методики, изложенной в [10]. Тогда выражение для поля сигнала МСЭ в дальней зоне после воздействия N-го импульса имеет вид

$$\mathbf{E}_{S_N} = E_0 \mathbf{p} \varkappa_N \exp(-\Gamma t_{2N}) [\sin\theta_2^{(1)} \sin\theta_1^{(1)} ((1+\gamma_1) \Phi \exp(-i\Delta_1 (t'-\tau)) + (1+\gamma_1) \times$$
$$\times F \exp(i\Delta_2 t' - i\Delta_1 \tau)) \rho_{11}(0) - (\gamma_0 - \gamma_2) \sin\theta_2^{(2)} \sin_1^{(2)} (\Phi \exp(-i\Delta_2 (t'-\tau)) +$$
$$+ F \exp(i\Delta_1 t' - i\Delta_2 \tau)) \rho_{33}(0)] \exp\left(i\omega_0 t - i\mathbf{k}_{S_N}\mathbf{r}\right), \qquad (1)$$

где

$$\varkappa_N = \prod_{j=3}^{N-1} (\{[(1-\gamma_1)+(1+\gamma_1)\cos\theta_j^{(1)}]+[(\gamma_0+\gamma_2)+(\gamma_0-\gamma_2)\cos\theta_j^{(2)}]\}/2(1+\gamma_0)),$$

E_0 — коэффициент, зависящий от размеров образца, концентрации ионов в кристаллической матрице и длины волны излучения; $\Delta_i=\omega_0-\omega_i$ — отстройка от резонанса,

$$\Phi = \exp[-\pi(t'-\tau)^2/(2T_2^*)^2]$$

— гауссов форм-фактор,

$$F=\exp[-\pi t'^2/(2T_2^*)^2],\ \Gamma=k_{31}+k_{13},\ \gamma_0=k_{31}/k_{13},\ \gamma_1=(\gamma_0 k_{23}-k_{21})/(k_{21}+k_{23}-\Gamma),$$
$$\gamma_2=(\gamma_0 k_{43}-k_{41})/(k_{43}+k_{41}-\Gamma),\ \mathbf{p}=(\mathbf{d}_1\sin\theta_N^{(1)}-\mathbf{d}_2\sin\theta_N^{(2)}),$$

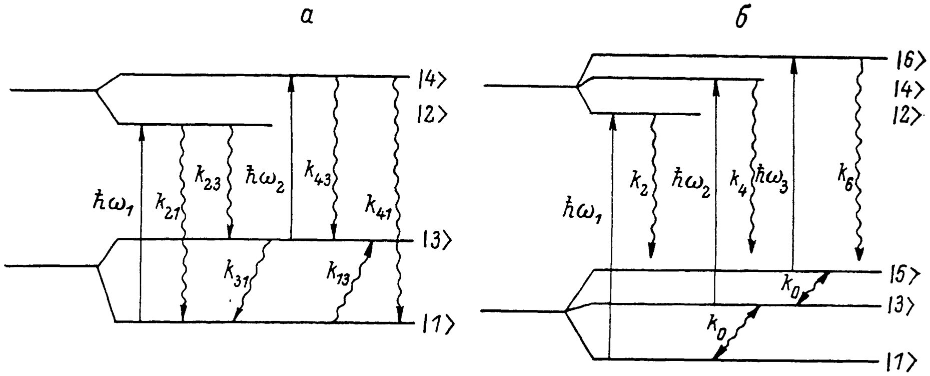

Схема энергетических уровней, используемая в расчетах, и соответствующие процессы релаксации.

$\mathbf{d}_1$ и $\mathbf{d}_2$ — дипольные моменты переходов $|1\rangle \to |2\rangle$ и $|3\rangle \to |4\rangle$ соответственно

$$\theta_j^{(i)} = (d_i\mathcal{E}_j\hbar^{-1}(\Delta t)_j$$

— «площадь» j-го импульса. Интегрирование по объему образца дает условие пространственного синхронизма

$$\mathbf{k}_{S_N} = -\mathbf{k}_1+\mathbf{k}_2+\mathbf{k}_N. \qquad (2)$$

Пользуясь формулой (1), легко перейти к выражению для интенсивности сигнала, которое мы опустим из-за его громоздкости.

Из формулы (1) видно, что помимо обычного экспоненциального ослабления сигналов эха во времени $\sim\exp(-\Gamma t)$, вызванного релаксацией, каждый импульс, начиная с третьего, уменьшает сигнал последующего МСЭ на множитель

$$\varkappa_j = \{[(1-\gamma_1)+(1+\gamma_1)\cos\theta_j^{(1)}]+[(\gamma_0+\gamma_2)+(\gamma_0-\gamma_2)\cos\theta_j^2]\}(2(1+\gamma_0))^{-1}. \qquad (3)$$

Проанализируем это выражение. При малых «площадях» считывающих импульсов $\cos\theta_j^{(i)}\simeq 1$ и коэффициент $\varkappa_j\simeq 1$. Этот случай является типичным для экспериментов, считывание можно производить многократно. Например, при $\theta_j\simeq 10^{-2}$ оценки, выполненные по формулам (1), (3), показывают, что можно наблюдать 10^4 сигналов МСЭ, прежде чем их интенсивность упадет в 2 раза.

Для более полного анализа несколько упростим формулу (3). Положим

$$k_{41}=k_{23}=k_\perp,\quad k_{43}=k_{21}=k_\parallel,\quad \gamma_0=1,\quad \theta_j^{(1)}=\theta_j^{(2)},$$

причем $k_{31}\ll k_{\parallel,\perp}$. Если, кроме того, положить $\alpha=k_\perp/k_\parallel$, то для коэффициента $\varkappa_j$ получим

$$\varkappa_j = (1+\alpha\cos\theta_j)/(1+\alpha). \qquad (4)$$

Из формулы (4) видно, что если использовать для считывания $\pi/2$-импульсы или близкие к ним, то сигналы МСЭ будут сильно зависеть от соотношения между временами релаксации. Для простоты положим $k_{43}^{-1}=k_{21}^{-1}=10$ нс, $k_{41}^{-1}=k_{23}^{-1}=100$ нс, $\gamma_0=1$. В этом случае имеем $\varkappa_j=0.9$. С ростом отношения $k_\parallel/k_\perp$ множитель $\varkappa_j$ также стремится к единице.

Отметим также, что амплитуда сигнала МСЭ зависит от интервала τ между первым и вторым импульсами по гармоническому закону $\sim\exp(i\Delta_k t'-i\Delta_l\tau)$. Следовательно, при использовании эффекта МСЭ в оптических запоминающих устройствах необходим оптимальный выбор времени задержки τ.

В случае, когда имеет место расщепление на три подуровня (например, в кристалле $LaF_3:Pr^{3+}$; см. рисунок, *б*), вычисления оказываются более сложными. Введем следующие упрощающие предположения: 1) скорость распада i-го подуровня ($i=2,\ 4,\ 6$) возбужденного состояния k_{ij} равна $\alpha_0 k_i$ при $i=j$, $\alpha_1 k_i$ при $j=i\pm1$, и $\alpha_2 k_i$ при $j=i\pm2$; 2) релаксация между подуровнями основного состояния происходит с постоянной скоростью k_0. Расчет, проведенный в этих предположениях, дает следующее значение поля N-го сигнала МСЭ в дальней зоне:

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_{S_N}&=E_0\exp\left(i\omega_0 t-i\mathbf{k}_{S_N}r\right)\left(\frac{1}{2}\mathbf{p}_1\varkappa_N\exp(-k_0t_{2N})\right)[(1-\beta_1)\sin\theta_2^{(1)}\sin\theta_1^{(1)}\rho_{11}(0)\times\\&\times(\Phi\exp(-i\Delta_1(t'-\tau))+F(\exp(i\Delta_3t'-i\Delta_1\tau))-(1-\beta_3)\sin\theta_2^{(3)}\sin\theta_1^{(3)}\rho_{55}(0)\times\\&\times\exp(-i\Delta_3(t'-\tau))+F(\exp(i\Delta_1t'-i\Delta_3\tau))]+\frac{1}{6}\mathbf{p}_2\chi_N\exp(-3k_0t_{2N})\times\\&\times[(1+\beta_1-\gamma_1)\sin\theta_2^{(1)}\sin\theta_1^{(1)}\rho_{11}(0)(\Phi\exp(-i\Delta_1(t'-\tau))+F(\exp(i\Delta_2t'-i\Delta_1\tau)+\\&+\exp(i\Delta_3t'-i\Delta_1\tau)))-2\gamma_2\sin\theta_2^{(2)}\sin\theta_1^{(2)}\rho_{33}(0)(\Phi\exp(-i\Delta_2(t'-\tau))+F(\exp\times\\&\times(i\Delta_1t'-i\Delta_2\tau)+\exp(i\Delta_3t'-i\Delta_2\tau)))+(1-\beta_3-\gamma_3)\sin\theta_2^{(3)}\sin\theta_1^{(3)}\rho_{55}(0)\times\\&\times(\Phi\exp(-i\Delta_3(t'-\tau))+F(\exp(i\Delta_1t'-i\Delta_3\tau)+\exp(i\Delta_2t'-i\Delta_3\tau)))]),\end{aligned}\tag{5}$$

где

$$\mathbf{p}_1=\mathbf{d}_1\sin\theta_N^{(1)}-\mathbf{d}_3\sin\theta_N^{(3)},\quad \mathbf{p}_2=\mathbf{d}_1\sin\theta_N^{(1)}-2\mathbf{d}_2\sin\theta_N^{(2)}+\mathbf{d}_3\sin\theta_N^{(3)},$$
$$\beta_1=k_2(\alpha_0-\alpha_2)/(k_2-k_0),\quad \beta_2=k_6(\alpha_0-\alpha_2)/(k_6-k_0),\quad \gamma_1=(\alpha_0k_2-(\beta_1+1)\times$$
$$\times k_0)/(k_2-3k_0),\quad \gamma_2=(\alpha_1k_4-k_0)/(k_4-3k),\quad \gamma_3=(\alpha_2k_6+(\beta_3-1)k_0)/(k_6-3k_0).$$

Условие пространственного синхронизма (2) остается неизменным.

Подобно рассмотренному выше случаю сверхтонкого расщепления на два подуровня из (5) следует, что зависимость амплитуд сигналов МСЭ от интервала между первым и вторым импульсами будет иметь осциллирующий характер со сложным составом гармоник.

В формулу (5) входят два слагаемых, описывающих долгоживущее эхо с различными временами жизни k_0^{-1} и $(3k_0)^{-1}$. В каждом из этих слагаемых присутствует множитель ($\varkappa_N$ и χ_N соответственно), описывающий ослабление сигнала, обусловленное действием считывающих импульсов

$$\varkappa_N=\prod_{j=3}^{N-1}\left(\left[\frac{1}{2}(1+\beta_1)+\frac{1}{2}(1-\beta_1)\cos\theta_j^{(1)}\right]+\right.$$
$$\left.+\left[\frac{1}{2}(1+\beta_3)+\frac{1}{2}(1-\beta_3)\cos\theta_j^{(3)}\right]\right)\Big/2,\tag{6}$$

$$\chi_N=\prod_{j=3}^{N-1}\left(\left[-\left(\frac{1}{2}+\frac{3}{2}\beta_1-3\gamma_1\right)+3\left(\frac{1}{2}+\frac{1}{2}\beta_1-\gamma_1\right)\cos\theta_j^{(1)}\right]+[3\gamma_2+\right.$$
$$\left.+(2-3\gamma_2)\cos\theta_j^2]+\left[-\left(\frac{1}{2}-\frac{3}{2}\beta_3-3\gamma_3\right)+3\left(\frac{1}{2}-\frac{1}{2}\beta_3-\gamma_3\right)\cos\theta_j^{(3)}\right]\right)\Big/4.\tag{7}$$

При малых «площадях» считывающих импульсов $\cos\theta_j^{(i)}\simeq1$ и коэффициенты $\varkappa_j$ и χ_j близки к единице, так что ослабление сигналов мало. Следовательно, затухание эхо-сигналов во времени будет определяться только процессами релаксации и реализация режима МСЭ возможна в типичных экспериментальных условиях.

Если $k_2=k_4=k_6=k$, $\theta_j^{(i)}=\theta_j$, $k_0 \ll \alpha_0 k$, $\alpha_1 k$, $\alpha_2 k$, то формулы (6)—(7) упрощаются и сводятся к следующим:

$$\varkappa_j = (1+\beta)/2 + (1-\beta)\cos\theta_j/2, \tag{8}$$

$$\chi_j = (1+\cos\theta_j/2)/4. \tag{9}$$

Из этих формул видно, что при $\theta_j=\pi/2$ коэффициент $\varkappa_j$ определяется отношениями вероятностей заселения сверхтонких подуровней основного состояния α_0 и α_2, а коэффициент χ_j не зависит от них и близок к 1/3 $\varkappa_j$ при $\alpha_1=0.1$ и $\alpha_2=0.01$.

Отметим, что коэффициент $\varkappa$ является множителем при слагаемом с большим временем жизни, поэтому именно он определяет ослабление сигналов эха.

Таким образом, явление МСЭ в неорганических кристаллах с парамагнитными примесями состоит в записи информации двумя импульсами с временны́м интервалом τ между ними с возможностью многократного считывания ее третьим и последующими импульсами, причем реально допустима оптимизация параметров считывающих импульсов и среды, так чтобы стирание информации в процессе считывания было минимальным.

Литература

[1] *Маныкин Э. А., Самарцев В. В.* Оптическая эхо-спектроскопия. М.: Наука, 1984, с. 270.
[2] *Ахмедиев Н. Н., Борисов Б. С., Зуйков В. А.* и др. Изв. АН СССР. Сер. физ., 1986, т. 50, № 8, с. 1488—1494.
[3] *Ахмедиев Н. Н., Борисов Б. С., Кокин А. А., Самарцев В. В.* Электронная промышл., 1984, № 9, с. 56—61.
[4] *Chen Y. C., Chiang K., Hartmann S. R.* Optics Commun., 1979, v. 29, N 2, p. 181—185.
[5] *Morsink J. B. W., Wiersma D. A.* Chem. Phys. Lett., 1979, v. 65, N 1, p. 105—108.
[6] *Ахмедиев Н. Н., Борисов Б. С.* Письма в ЖТФ, 1985, т. 11, № 9, с. 533—536.
[7] *Ахмедиев Н. Н., Борисов Б. С.* Микроэлектроника, 1986, т. 15, в. 1, с. 25—30.
[8] *Гешвинд С.* В кн.: Сверхтонкие взаимодействия в твердых телах. М.: Мир, 1970, с. 103—162.
[9] *Карлов Н. В., Маненков А. А.* Квантовые усилители. М.: ВИНИТИ, 1966, с. 334.
[10] *Morsink J. B. W., Hesselink W. H., Wiersma D. A.* Chem. Phys., 1982, v. 71, N 2, p. 289—294.

Поступило в Редакцию
29 января 1987 г.