

ОПТИЧЕСКАЯ КОГЕРЕНТНАЯ НЕСТАЦИОНАРНАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ ОПТИЧЕСКИ ПЛОТНЫХ ПРИМЕСНЫХ КРИСТАЛЛОВ

О.Х. Хасанов, Г.А. Русецкий*

Институт физики твердого тела и полупроводников НАН Беларуси,
220072, Минск, ул. П. Бровки, 17; e-mail: Grischika@tut.by

В настоящей работе рассматриваются особенности переходных процессов, таких как нестационарная оптическая нутация, затухание свободной поляризации (ЗСП) и сигнал одноимпульсного эхо (ОЭ) в примесных кристаллах с учетом локального поля, обусловленного межатомным диполь-дипольным взаимодействием (ДДВ) в зависимости от преобладающего характера уширения спектральной линии. В рамках теоретической модели учитывается как радиационный, так и безызлучательный вклады диполь-дипольного межатомного взаимодействия. Иными словами, учитывается динамический сдвиг резонансной частоты атомного ансамбля, пропорциональный частоте Лорентца и разности населенностей рабочих уровней. Более того, анализируется влияние на вышеуказанные переходные процессы такого канала релаксации, как ап-конверсия.

Как известно, ДДВ приводит к модификации известной системы уравнений Блоха для дипольного момента p и разности населенностей n резонансного атома:

$$\frac{\partial p}{\partial t} = iE_l n + i(\delta + \omega_L n)p - \gamma_2 p, \quad (1)$$

$$\frac{\partial n}{\partial t} = 2i(E_l^* p - p^* E_l) - \gamma_1 (n-1) + \Gamma (n-1)^2, \quad (2)$$

где E_l - амплитуда падающего импульса с учетом локального поля, Γ - скорость ап-конверсии. Здесь $E_l = E + \Lambda P$, где Λ - фактор Лорентца, определяющий локальное поле, а P - наведенная полем импульса поляризация. Отметим, что система уравнений (1)-(2) представлена в безразмерном виде.

Здесь $E = \mu \tilde{E} / \hbar \omega_p$, $\delta = (\omega - \omega_{21}^0) / \omega_p$, $\omega_L = \Omega_L / \omega_p$, $\omega_p^2 = 2\pi N \mu^2 \omega / \hbar n_0^2$, ω - несущая частота поля импульса, а ω_{21}^0 - центральная частота перехода, n_0 - нерезонансная часть показателя преломления среды, $k = \omega n_0 / c$ - волновое число, μ - дипольный момент резонансного перехода, $\Omega_L = 4\pi \mu^2 N / 3\hbar$ - частота Лорентца, N - концентрация активных центров, $t_2 = \gamma_2^{-1} = \omega_p T_2$, $t_1 = \gamma_1^{-1} = \omega_p T_1$, где $T_{1(2)}$ - время энергетической (необратимой фазовой) релаксации среды.

В численных расчетах использовались следующие значения параметров: концентрация активных центров $N = 1.80 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$, что соответствует частоте Лорентца

$\omega_L = \frac{4}{3} \pi \frac{\mu^2}{\hbar} N \approx 1.0 \cdot 10^9 \text{ Гц}$, а отстройка от резонанса $\delta = -\omega_L$. Скорость поперечной

релаксации $\gamma_2 = 1 \cdot 10^8 \text{ Гц}$, скорость продольной релаксации равна $\gamma_1 = 1 \cdot 10^6 \text{ Гц}$. Длительность возбуждающего импульса варьировалась и была порядка нескольких наносекунд.

Остановимся вкратце на характере нестационарной оптической нутации в средах с ДДВ. Как известно, данный эффект наблюдается во время действия импульса и состоит в осцилляциях коэффициента пропускания, возникающих в момент включения импульса. Колебания происходят с частотой Раби, постепенно затухая к стационарному значению. Сигнал нестационарной оптической нутации, время релаксации которого в слабом поле E составляет T_2 , может использоваться для измерения скорости необратимой фазовой

релаксации, а также силы осциллятора резонансного перехода [1]. Рассмотрим решение системы уравнений (1)-(2), которая в представленном виде характерна для однородно уширенных сред. В этом случае речь может идти о структурно совершенных кристаллах. Даже в условиях однородного уширения спектральной линии точное аналитическое решение системы уравнений (1)-(2) в момент действия импульса невозможно, поэтому при получении аналитических выражений мы будем считать импульс достаточно коротким, т.е. таким, что релаксации за время его действия не оказывают на сигнал нутации заметного действия. Более того, будем предполагать импульс слабым, так что разность населенностей уровней изменяется мало. Полученное с учетом этих приближений решение (1)-(2) имеет вид:

$$P(t) = Ee^{i\varphi} \left[\frac{\delta + \omega_L}{\Omega_R^2} (\cos \Omega_R t - 1) + \frac{i}{\Omega_R} \sin \Omega_R t \right], \quad (3)$$

где $\Omega_R = \sqrt{4E^2 + (\delta + \omega_L)^2}$ – обобщенная частота Раби. Как следует из приведенного решения, наведенная поляризация осциллирует с обобщенной частотой Раби. Говоря о скорости затухания сигнала, она, как и в отсутствие ДДВ, обусловлена необратимой фазовой релаксацией. Заметим, что при возбуждении системы связанных атомов достаточно сильным полем (с площадью, превышающей 2π ,) понятие частоты Раби ввести не удастся, поскольку смещение частоты перехода атомного ансамбля является динамической величиной, зависимой от разности населенностей (см. уравнений (1)). Поэтому можно ожидать, что осцилляции сигнала нутации происходят с переменной со временем частотой, что подтверждает численный анализ (см. рис. 1). Еще более сложный характер сигнал нестационарной оптической нутации будет иметь в средах с неоднородным уширением спектральной линии, поскольку каждый спектральный пакет атомов будет иметь свою частоту перехода. Их суперпозиция несомненно не только усложнит характер осцилляций, но и закон затухания последних.

В работе рассматривалось влияние такого канала релаксации, как ап-конверсия, которая становится заметной в кристаллах с достаточно высокой концентрацией примесных центров и обусловлена парными взаимодействиями атомов. На рис. 1 представлено поведение абсорбционной составляющей наведенной поляризации со временем, когда площадь

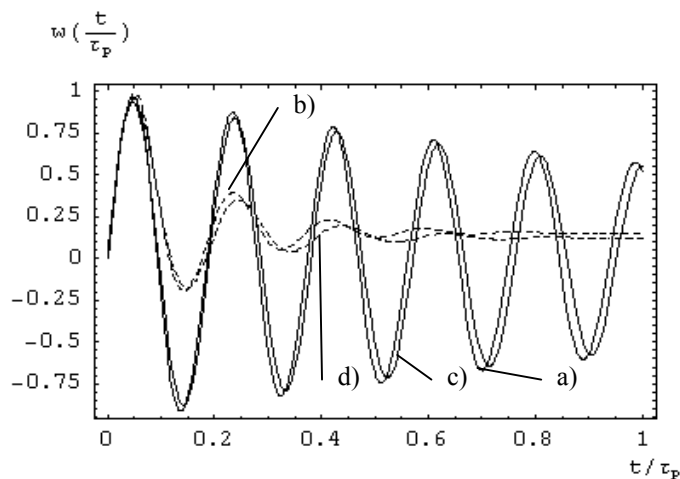


Рис. 1 Сигнал оптической нутации

- a) $\Gamma = 0, \omega_L = 1 \cdot 10^9 \text{ Гц}$; b) $\Gamma = 1 \cdot 10^8 \text{ Гц}, \omega_L = 1 \cdot 10^9 \text{ Гц}$;
 c) $\Gamma = 0, \omega_L = 0$; d) $\Gamma = 1 \cdot 10^8 \text{ Гц}, \omega_L = 0$.

возбуждающего импульса (ВИ) $\theta \ll 10\pi$, а длительность импульса больше времен необратимых релаксаций. Представленные кривые характеризуют нутационный сигнал в зависимости от величины скорости ап-конверсии и частоты Лорентца в средах с однородным уширением спектральной линии.

Из графиков рис. 1 видно, что локальное поле с учетом и без учета ап-коверсии приводит к некоторому небольшому изменению частоты и амплитуды нутации, в то время как ап-конверсия проявляется в значительном увеличении скорости затухания сигнала.

Рассмотрим особенности ЗСП в среде с ДДВ. Иными

словами, проследим, как ведет себя система связанных посредством локального поля резонансных атомов после действия ВИ. В случае однородного уширения система уравнений Блоха примет вид:

$$\frac{\partial P}{\partial t} = i(\delta + \omega_L n)P - \gamma_2 P, \quad (4)$$

$$\frac{\partial n}{\partial t} = -\gamma_1(n-1) + \Gamma(n-1)^2, \quad (5)$$

Решение системы (4)-(5) для разности населенностей уровней и поляризации при условии, что все каналы релаксации являются актуальными будет иметь вид:

$$n(t - \tau_p) = 1 - \frac{(n(\tau_p) - 1)\gamma_1}{(n(\tau_p) - 1)\Gamma + e^{(t - \tau_p)\gamma_1}(\gamma_1 + \Gamma(n(\tau_p) - 1))}, \quad (6)$$

$$P(t - \tau_p) = P(\tau_p)e^{-\gamma_2(t - \tau_p)} \exp \left[i \left\{ (\delta + \omega_L(1 + \frac{\gamma_1}{\Gamma}))(t - \tau_p) - \frac{\omega_L}{\Gamma} \ln((n(\tau_p) - 1)\Gamma + e^{\gamma_1(t - \tau_p)}(\gamma_1 - \Gamma(n(\tau_p) - 1))) + \frac{\omega_L}{\Gamma} \ln \gamma_1 \right\} \right] \quad (7)$$

Как следует из полученных решений (см. формулы (6) и (7)), частота осцилляций сигнала ЗСП явно зависит от скорости ап-конверсии. Причем, фазовая модуляция наведенной поляризации включает линейную и нелинейную составляющие, если скорость энергетической релаксации велика. Если скорость ап-конверсии намного превышает γ_1 , то, как следует из выражения (7), характер модуляции становится линейным. Таким образом, информацию о скорости ап-конверсии можно получить, анализируя частоту частоту осцилляций сигнала затухания свободной поляризации.

Остановимся на примесных кристаллах с неоднородно уширенной спектральной линией. Рассмотрим, как изменится система уравнений Блоха (1)-(2) в этом случае. Подставим вид огибающей импульса в среде с учетом поля диполей и проинтегрируем по неоднородной ширине линии. В результате получим

$$\frac{\partial P}{\partial t} = iEn + i\langle \delta p \rangle + \omega_L nP - \gamma_2 P, \quad (8),$$

$$\frac{\partial n}{\partial t} = 2i(E^*P - P^*E) - \gamma_1(n-1) + \Gamma(n-1)^2, \quad (9).$$

Здесь $\langle \delta p \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} \delta p(\delta)g(\delta)d\delta$. Где $g(\delta)$ -форм-фактор неоднородного уширения. Как

видно, учет неоднородного уширения приводит к тому, что система уравнений для поляризации и разности населенностей уровней становится не самосогласованной. Воспользовавшись методом, описанным в работе [2], приведем ее к самосогласованному виду. Согласно этому методу помимо разности населенностей и поляризации вводятся новые переменные U и S , связанные с первыми моментами разности населенностей и наведенного дипольного момента, а также параметр J , который связан с неоднородной шириной спектральной линии. В результате получаем систему из четырех дифференциальных уравнений для комплексных переменных, которая описывает поведение связанных посредством локального поля атомов в случае достаточно узкой неоднородной ширины линии поглощения.

$$\frac{\partial U}{\partial t} = -2(E^*S + ES^*) - \frac{n}{t_1} - 2\omega_L(P^*S + PS^*), \quad (10)$$

$$\frac{\partial S}{\partial t} = i\delta S + \omega_L U P + \frac{P-S}{t_2} - EU, \quad (11)$$

$$\frac{\partial n}{\partial t} = 2i(E^* P - EP^*) - \frac{n-1}{t_1}, \quad (12)$$

$$\frac{\partial P}{\partial t} = iEn + i(\delta + \omega_L n)P - \frac{P}{t_2} - \frac{J^2 S}{t_2}, \quad (13)$$

где $J^2 = \langle \Delta^2 \rho_{ss} \rangle / \langle \rho_{ss} \rangle$, $U = \frac{1}{J^2} \langle \Delta n \rangle$, $J^2 S = \langle i\Delta p \rangle$.

Характер ЗСП в условиях, описываемых уравнениями (10) – (13) детально, обсуждался нами в работе [3]. В предельном случае бесконечно узкой неоднородной ширины

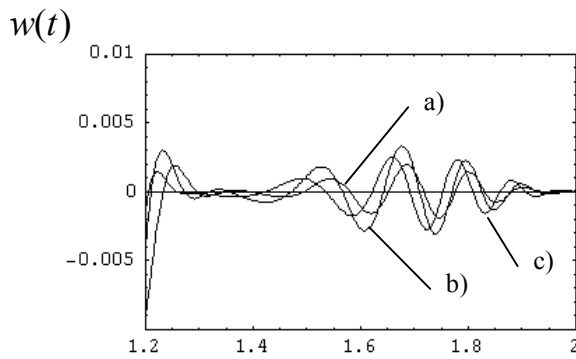


Рис. 2

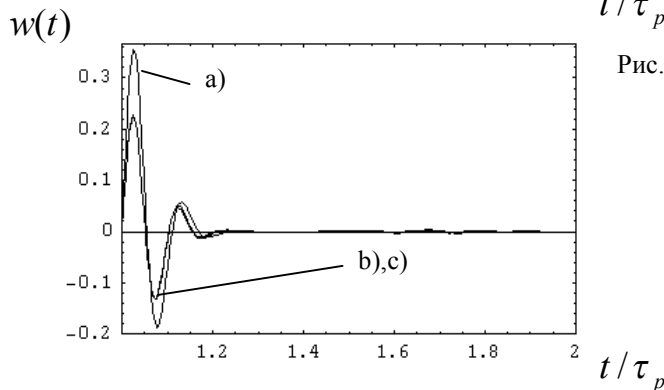


Рис. 3

Рис. 2, 3 Сигнал одноимпульсного эхо.

$\theta = 15\pi; \delta = -3 \cdot 10^9 \text{ Гц}; \tau_p = 20 \text{ нс}; \sigma = 10^9 \text{ Гц}$

а) $\Gamma = 1 \cdot 10^8 \text{ Гц}, \omega_L = 0$;

б) $\Gamma = 0, \omega_L = 0.5 \cdot 10^9 \text{ Гц}$

спектральной линии уравнения (10)-(13) переходят в (1) - (2) [4]. В случае произвольной неоднородной ширины линии нами численно решалась система уравнений (8)-(9).

Известно, что в средах с неоднородно уширенной спектральной в приближении конечной ширины линии ($\Omega_R \ll \sigma$, где σ – полуширина неоднородного уширения) может наблюдаться так называемое одноимпульсное эхо. Рассмотрим влияние ап-конверсии на сигнал ОЭ.

Рис. 2 представляет собой увеличенный фрагмент рис. 3 в области возникновения ОЭ. На рис. 2 видно, что сигнал ЗСП в среде с ап-конверсией имеет большую амплитуду и несколько меньшую частоту осцилляций, чем сигнал, полученный в аналогичных условиях, но без ап-конверсии. Также следует отметить тот факт, что в рассматриваемом случае сигналы ЗСП с учетом локального поля и без него ведут себя (в рассматриваемом масштабе)

идентично. В сигнале ОЭ (рис. 2) ап-конверсия приводит к уменьшению, а ДДВ к увеличению амплитуды когерентного эхо отклика.

1. И.Р. Шен. Принципы нелинейной оптики. Наука, М., (1989).
2. R. Graham, Y. Cho. Optics. Comm. **47**, 52 (1983).
3. O. Kh. Khasanov, G. A. Rusetsky, V. A. Zuikov*, V. V. Samartsev*, T. V. Smirnova, and O. M. Fedotova. Proc. of SPIE., **5402**, 347 (2004).
4. O.X. Хасанов, Г.А. Русецкий, А.А. Афанасьев, Р.А.Власов, Т.В.Смирнова, О.М.Федотова. Опт. и спектр., **95**, 4, 683 (2003).