

СРАВНИТЕЛЬНЫЙ АНАЛИЗ ВЕРОЯТНОСТЕЙ ДВУХФОТОННЫХ И ДВУХСТУПЕНЧАТЫХ АБСОРБЦИОННЫХ ПЕРЕХОДОВ В СИСТЕМЕ ТРЕХ ЭКВИДИСТАНТНО РАСПОЛОЖЕННЫХ УРОВНЕЙ

**Корниенко А. А.¹, д.ф.-м.н., проф., Дунина Е. Б.¹, к.ф.-м.н., доц.,
Фомичева Л.А.², к.ф.-м.н., доц.**

¹*Витебский государственный технологический университет,
г. Витебск, Республика Беларусь*

²*Белорусский государственный университет информатики и радиоэлектроники,
г. Минск, Республика Беларусь*

Реферат. Взаимодействие системы трех эквидистантно расположенных уровней с электромагнитным излучением резонансной частоты исследовано с помощью метода матрицы плотности. Вероятность заселения третьего уровня с помощью двухступенчатых процессов возрастает с увеличением времени взаимодействия и достигает значения, равного вероятности двухфотонного поглощения. Вероятность двухфотонного поглощения от времени не зависит.

Ключевые слова: тулий, эрбий, резонансное двухфотонное поглощение.

Для целенаправленного выбора активной лазерной среды важно знать спектроскопические характеристики – интенсивности полос поглощения, времена жизни метастабильных уровней и коэффициенты ветвления люминесценции с них. Интенсивности полос поглощения наиболее просто измеряются экспериментально. После теоретической обработки экспериментальных результатов можно вычислить времена жизни уровней и коэффициенты ветвления люминесценции. Таким образом, корректность измерения интенсивностей полос поглощения влияет на точность расчетов других спектроскопических характеристик. Проблемы с правильным пониманием результатов по интенсивностям полос поглощения появляются в системе трех эквидистантно расположенных уровней. При измерении интенсивности полосы поглощения, по сути дела, определяется общее число поглощенных фотонов. В трехуровневой системе резонансные фотоны могут быть трех типов:

- а) фотоны, поглощенные на переходе 1->2 (собственно поглощение только этих фотонов и подразумевалось);
- б) фотоны, поглощенные в переходах 1->2->3 (двухфотонное поглощение);
- в) фотоны, поглощенные в двух последовательных переходах 1->2 и 2->3 (двухступенчатое поглощение).

Условия системы трех эквидистантно расположенных уровней могут реализоваться у иона тулия на мультиплетах 3H_6 , 3F_4 , 3H_4 и у иона эрбия на мультиплетах $^4I_{15/2}$, $^4I_{13/2}$, $^4I_{9/2}$. При некорректной интерпретации результатов по интенсивностям полос поглощения последующие расчеты спектроскопических характеристик плохо согласуются с соответствующими экспериментальными данными. В связи с этим в данной работе выполнен сравнительный анализ различных процессов поглощения фотонов в трехуровневой системе с целью корректной интерпретации данных по интенсивностям полос поглощения.

Основу энергетических уровней оптического центра составляют уровни энергии (мультиплеты) редкоземельного иона, расщепленные кристаллическим полем. Спектры поглощения обычно записываются при комнатной температуре и из-за термических эффектов дискретные уровни сливаются в разрешенные интервалы энергий (рис. 1). Как показывает спектральный анализ экспериментально измеренных полос поглощения, условие резонансного двухфотонного или двухступенчатого поглощения выполняется только для узкого набора энергий из каждого разрешенного интервала. Реальную ситуацию, изображенную на рисунке 1, в дальнейшем будем моделировать идеальным выполнением условий резонансного поглощения фотонов.

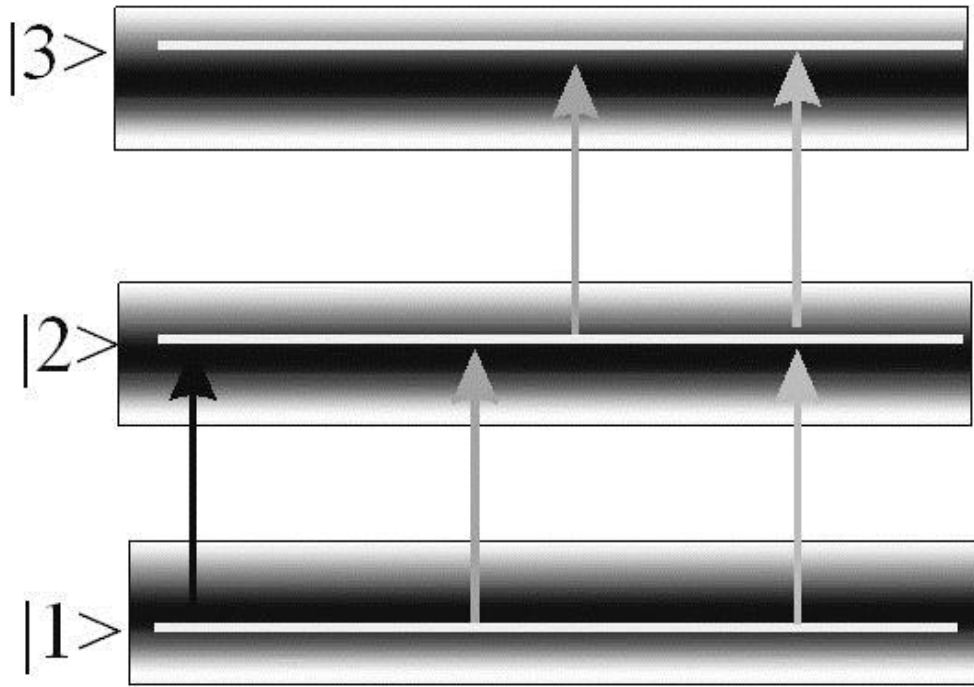


Рисунок 1 – Схема энергетических уровней оптического центра с учетом штарковского расщепления мультиплетов в кристаллическом поле

Гамильтониан электрона в поле излучения в дипольном приближении имеет вид:

$$\hat{H} = \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m} + U - (\vec{d} \cdot \vec{E}) + \hat{H}_{изл}. \quad (1)$$

где $\vec{d}$ – электрический дипольный момент, $\vec{E}$ – напряженность электрического поля электромагнитной волны излучения.

В качестве электрического дипольного момента $\vec{d}$ будем применять эффективный дипольный момент с учетом смешивания состояний конфигурации $4f^N$ с состояниями возбужденной конфигурации противоположной четности типа $4f^{N-1}5d$ и состояниями возбужденных конфигураций с переносом заряда. В связи с этим недиагональные матричные элементы электрического дипольного момента не равны нулю между любыми состояниями трехуровневой системы.

Матрица гамильтониана будет содержать

$$\hat{H} = \begin{pmatrix} E_1^0 & -E \cdot d_{12} & D_{13} \\ -E \cdot d_{21} & E_2^0 & -E \cdot d_{23} \\ D_{31} & -E \cdot d_{32} & E_3^0 \end{pmatrix} \quad (2)$$

невозмущенные энергии E_1^0 , E_2^0 , E_3^0 и операторы дипольного момента переходов между соседними уровнями d_{12} и между 1 и 3 уровнем – D_{13} .

Чтобы включить в рассмотрение двухфотонные процессы оператор D_{13} , необходимо записать во втором порядке теории возмущений

$$D_{13} = + \frac{d_{12} \cdot E \cdot d_{23} \cdot E}{E_3^0 - E_2^0 - \hbar\omega} = \frac{d_{12} \cdot d_{23} \cdot E \cdot E}{\hbar\omega_{32} - \hbar\omega}. \quad (3)$$

После подстановки выражений (2) и (3) в уравнение для матрицы плотности ρ

$$i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} = [\hat{H}, \rho]$$

получается система громоздких дифференциальных уравнений, решить которую можно в системе компьютерной математики «MAPLE».

В таблице 1 приведены результаты численного решения системы уравнений для матрицы плотности.

Таблица 1 – Значения заселенностей $n_2, n_3, (n_3/n_2) \cdot 100$ для трехуровневой системы

t, (период Раби)	n_2	n_3	$\frac{n_3}{n_2} 100$
0.05	0.0464	0.01292	27.8
0.10	0.0864	0.02645	30.62
0.15	0.1208	0.04035	33.40
0.20	0.1504	0.05440	36.17
0.25	0.1759	0.06842	38.90
0.30	0.1978	0.08228	41.60
0.35	0.2167	0.09588	44.25
0.40	0.2329	0.1091	46.85
0.45	0.2469	0.1220	49.39
0.50	0.2590	0.1343	51.88
0.55	0.2693	0.1462	54.29
0.60	0.2782	0.1576	56.64
0.65	0.2859	0.1685	58.92
0.70	0.2925	0.1788	61.12
0.75	0.2982	0.1886	63.24
0.80	0.3031	0.1979	65.28
0.85	0.3073	0.2066	67.24
0.90	0.3109	0.2149	69.12
0.95	0.3141	0.2227	70.92

Система уравнений решена при условии $n_1 + n_2 + n_3 = 1$. Поэтому n_1, n_2, n_3 – вероятности заселения соответствующего уровня. Надо иметь в виду, что n_2 пропорционально истинному поглощению на переходе 1-2, а $n_2 + n_3$ пропорционально суммарному наблюдаемому поглощению на этой частоте. Для корректной обработки результатов по интенсивностям полос поглощения, необходимо вклад пропорциональный n_3 исключить из наблюдаемого поглощения на этой частоте.

В создании заселенности n_3 участвует как двухфотонное так и двухступенчатое поглощение. Двухступенчатое поглощение известно, как поглощение из возбужденного состояния. Это поглощение тем больше, чем больше заселенность уровня 2. По этой причине оно зависит от времени. Прирост от 27 % до 71 % создан двухступенчатым поглощением. Поскольку при измерении интенсивностей полос поглощения, время сканирования маленькое, то в создании дополнительного поглощения участвуют только двухфотонные процессы.