

## НАСЫЩЕНИЕ ПОГЛОЩЕНИЯ И ПОВОРОТ ПОЛЯРИЗАЦИИ ИЗЛУЧЕНИЯ ЛОКАЛЬНЫМИ КОЛЕБАНИЯМИ В КУБИЧЕСКИХ КРИСТАЛЛАХ

М. И. Дыкман, Г. Г. Тарасов

Методом квантового кинетического уравнения рассмотрено насыщение поглощения линейно поляризованного резонансного излучения ангармоническими локальными колебаниями кубической симметрии. Показано, что вследствие обусловленного симметрией вырождения энергетических уровней насыщение поглощения сопровождается поворотом поляризации излучения к одной из осей симметрии кристалла. Направление и скорость поворота определяются соотношением параметров релаксации локального колебания. Исследован аналогичный поворот в случае туннельных центров. Предельное направление поляризации в этом случае определяется ориентацией центров.

### 1. Введение

Поглощение резонансного излучения двухуровневой системой уменьшается с ростом интенсивности излучения вследствие выравнивания населенностей уровней [1]. Поскольку в отсутствие вырождения уровней насыщение поглощения определяется их временем жизни, то его часто используют для нахождения параметров релаксации примесных состояний в кристаллах. Ли и Фаустом [2] была предпринята попытка измерить этим методом время жизни локального колебания (ЛК) в системе  $\text{CaF}_2 : \text{H}$ .

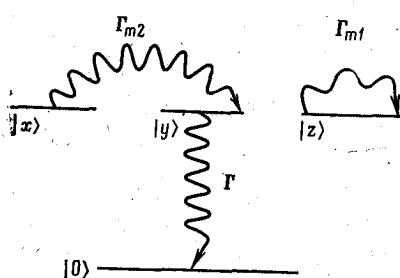


Рис. 1. Основной и первый возбужденный уровни локального колебания кубической симметрии. Волнистыми линиями показаны типы процессов релаксации

Это ЛК имеет кубическую симметрию [3], и в слабых полях кристалл изотропен. Однако вследствие вырождения уровней ЛК наблюдавшееся насыщение поглощения [2], как показано ниже, должно сопровождаться, вообще говоря, поворотом плоскости поляризации сильного<sup>1)</sup> резонансного излучения.

Самоиндукционный резонансный поворот поляризации (СРПП) обусловлен спецификой релаксации систем с вырожденным энергетическим спектром. Рассмотрим СРПП на примере ангармонического локального колебания кубической симметрии (ЛККС). Первый возбужденный уровень ЛККС трехкратно вырожден, его волновые функции преобразуются как

$x, y, z$  (рис. 1). Предположим, излучение распространяется в  $z$ -направлении,  $E_z=0$ . Если бы состояния  $|x\rangle$  и  $|y\rangle$  релаксировали независимо друг от друга, то их заполнение определялось бы соответственно  $E_x$ - и  $E_y$ -компонентами поля. Поскольку при этом сильнее поглощалась бы более слабая из компонент, то по мере распространения в кристалле вектор напряженности поля поворачивался бы к ближайшему из направлений  $x, y$ .

<sup>1)</sup> Поле является резонансным и сильным только для примеси; нелинейной поляризуемостью основного кристалла можно пренебречь.

В действительности вероятности индуцированных полем переходов при наличии вырождения зависят не только от чисел заполнения, но и от соотношения фаз волновых функций (ср. «парадокс» гармонического осциллятора [<sup>4, 5</sup>]). Поэтому скорость и направление СРПП определяются соотношением времен релаксации чисел заполнения состояний и их взаимной когерентности.

Рассмотрение взаимодействия ЛККС с излучением в рамках двухуровневой системы допустимо, если ангармонизм ЛК сравнительно велик, так что связанная с ним неэквидистантность уровней  $\Delta\omega \gg \gamma$  ( $\gamma$  — характерная ширина уровней). Частота поля  $\omega_f$  должна быть близка к частоте перехода с основного на первый возбужденный уровень  $\omega_0$ ,  $|\omega_f - \omega_0| \sim \gamma$ , и поле не должно быть слишком сильным, так что заполнением вышележащих уровней можно пренебречь.

Для описания релаксации в данной работе использована модель слабо-связанного локального (квазилокального) колебания [<sup>6, 7</sup>] (см. также [<sup>3</sup>]). Концентрация примесей считается малой, и их взаимодействие не учитывается. В разделе 2 получено и проанализировано квантовое кинетическое уравнение при  $T \ll \hbar\omega_0$ . Рассмотрено насыщение поглощения и интерференция состояний ЛККС. В разделе 3 исследован поворот поляризации сильного резонансного излучения в кубических кристаллах, содержащих ЛККС или туннельные центры. В разделе 4 проанализирован эксперимент по насыщению поглощения [<sup>2</sup>]. Показана возможность определения параметров релаксации ЛККС и ориентации туннельных центров с помощью СРПП.

## 2. Кинетическое уравнение. Насыщение поглощения

Известно несколько механизмов уширения спектрального распределения локальных колебаний. Для высокочастотных колебаний ( $\omega_0 > \omega_m$ ,  $\omega_m$  — максимальная частота колебаний непрерывного спектра кристалла) наиболее существенны [<sup>3, 6-9</sup>] распад ЛК с излучением фононов и уширение, обусловленное упругим или квазиупругим рассеянием фононов на ЛК (модуляционный механизм). Кинетическое уравнение для матрицы плотности ангармонического ЛККС  $\delta(t)$  во втором порядке по взаимодействию с фононами можно вывести, используя метод интегрального операторного уравнения [<sup>10</sup>], как это было сделано ранее для невырожденных по частоте ЛК [<sup>11, 12</sup>]. При  $T \ll \hbar\omega_0$  оно имеет вид

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho}{\partial t} = & -\Gamma \sum_x (n_x \rho + \rho n_x - 2a_x^* \rho a_x^+) - \hat{\Gamma}_m \rho - iV_1 \sum_x [n_x(n_x - 1), \rho] - \\ & - iV_2 \sum_{x \neq x'} [n_x n_{x'}, \rho] - iV_3 \sum_{x \neq x'} [a_x^{+2} a_{x'}^{-2}, \rho] + \\ & + i \sum_x [f_x^*(t) e^{-i\omega_0 t} a_x^+ + f_x(t) e^{i\omega_0 t} a_x^+, \rho]; \\ \rho = & \exp \left[ i\omega_0 t \sum_x n_x \right] \delta \exp \left[ -i\omega_0 t \sum_x n_x \right], \quad n_x = a_x^+ a_x^-. \end{aligned} \quad (1)$$

Здесь  $x=1, 2, 3(x, y, z)$  — нумерует нормальные колебания ЛККС;  $f_x = qE_x(2m\omega_0\hbar)^{-1/2}$  ( $q$  — эффективный заряд ЛККС). В дальнейшем поле считается линейно поляризованным:  $\text{Im}(f_x f_x^*) = 0$ .

Смысл параметров распадного  $\Gamma$  и модуляционного  $\hat{\Gamma}_m$  уширений ясен из рис. 1 (явное выражение для оператора  $\hat{\Gamma}_m$  приведено в Приложении).

$\Gamma_{m1}$  описывает рассеяние фононов, при котором начальное и конечное состояния ЛККС совпадают;  $\Gamma_{m2}$  описывает переброс возбуждения из одного состояния в другое (с той же энергией); слагаемое  $\Gamma_{m3}$  в (П.2) имеет интерференционную природу.

С точностью до членов  $V_{1,2,3}$  и  $\Gamma_m \rho$  уравнение (1) совпадает с уравнением релаксирующего гармонического осциллятора во внешнем поле [4]. Однако при рассмотрении ЛК четверной ангармонизм учитывать необходимо [3, 6-9] (перенормировка  $V_{1,2,3}$  и  $\omega_0$  из-за взаимодействия с фононами и членов  $(a_n + a_n^+)^3$  в гамильтониане изолированного ЛК считается произведенной). При выводе кинетического уравнения были отброшены малые поправки типа  $|V|/\omega_0$ ,  $(\Gamma + \Gamma_m)/\omega_0$ , а также  $|f_n|/\omega_0$  (при  $|\omega_f - \omega_0| \sim \Gamma + \Gamma_m$ ,  $|V|$ ). Уравнение (1) позволяет рассчитать как поглощение локальным колебанием сильного поля  $f_n$ , так и поглощению (или усиление) дополнительного слабого поля [11] в стационарном и нестационарном режиме и при произвольных

$$|V|/\Gamma, \Gamma_m/\Gamma, |f_n/(\omega_f - \omega_0 + i\Gamma)|.$$

Рассмотрим монохроматическое поле  $f_n(t) = f_n \exp(-i\omega_f t)$ . Будем считать неэквидистантность уровней ЛК относительно большой,  $|V| \gg \Gamma, \Gamma_m$  (но  $|V| \ll \omega_0$ ), а поле — резонансным,  $|\Omega| \ll |V|$ ,  $\Omega = \omega_f - \omega_0$ . Тогда при  $|f_n|^2 (\Gamma + \Gamma_m)/\Gamma V^2 \ll 1$  и  $T \ll \hbar \omega_0$  происходит заполнение только первого возбужденного уровня. В стационарном режиме отличные от нуля матричные элементы оператора  $\rho$

$$\rho_{0n} = e^{i\Omega t} \langle 0 | \rho a_n^+ | 0 \rangle, \rho_{nn} = \langle 0 | a_n \rho a_n^+ | 0 \rangle, \rho_0 = \langle 0 | \rho | 0 \rangle \quad (2)$$

не зависят от времени ( $|0\rangle$  — основное состояние ЛККС). Из (1), (2) для них получается система 10 линейных уравнений:

$$\begin{aligned} (\Gamma_0 + i\Omega) \rho_{0n} &= i \sum_{\kappa_1} f_{n\kappa_1}^* \rho_{n\kappa_1} - i f_n^* \rho_0; \\ \Gamma_0 &= \Gamma + \Gamma_{m1} + 2\Gamma_{m2}; \\ 2\rho_{nn} [\Gamma + 2\Gamma_{m2} + (\Gamma_{m1} - \Gamma_{m3}) (1 - \delta_{nn})] - 2\Gamma_{m2} \rho_{nn}^* (1 - \delta_{nn}) - \\ - 2\Gamma_{m2} \delta_{nn} \sum_{\kappa_2 \neq n} \rho_{n\kappa_2} &= i f_n \rho_{0n} - i f_n^* \rho_{00}; \\ \rho_0 + \sum_n \rho_{nn} &= 1. \end{aligned} \quad (3)$$

Система (3) существенно упрощается в случае, когда поле ориентировано вдоль одного из симметрических направлений. В частности, если  $f_n = f \delta_{nn}$ ,

$$\begin{aligned} \rho_{22} = \rho_{33} &= \Gamma_{m2} \rho_{11} / (\Gamma + \Gamma_{m2}); \quad \rho_{nn'} = 0, n \neq n'; \\ \rho_{11} &= \frac{\sigma |f|^2 (\Gamma + \Gamma_{m2})}{\Gamma (\Gamma + 3\Gamma_{m2}) + 2\sigma |f|^2 (\Gamma + 2\Gamma_{m2})}; \quad \sigma = \frac{\Gamma_0}{\Gamma_0^2 + \Omega^2}; \\ \operatorname{Re}(f \rho_{01}) &= + \frac{\Omega}{\Gamma_0} \operatorname{Im}(f \rho_{01}); \\ \operatorname{Im}(f \rho_{01}) &= - \sigma |f|^2 / \left[ 1 + \frac{2\sigma |f|^2}{\Gamma} \beta_{100} \right]; \\ \rho_{02} = \rho_{03} &= 0; \quad \beta_{100} = (\Gamma + 2\Gamma_{m2}) / (\Gamma + 3\Gamma_{m2}). \end{aligned} \quad (4)$$

При  $f_{\kappa} \sim \delta_{\kappa 1}$  поле индуцирует переходы только в одно из трех вырожденных возбужденных состояний ЛК. Однако взаимодействие с фононами приводит к тому, что возбуждение может перейти с одной степени свободы на другую (см. рис. 1); поэтому  $\rho_{22} = \rho_{33} \neq 0$  при  $\Gamma_{m2} \neq 0$ .

В пределе сильного поля

$$\rho_0 = \rho_{11} = \frac{\Gamma + \Gamma_{m2}}{2(\Gamma + 2\Gamma_{m2})}; \quad \rho_{22} = \rho_{33} = \frac{\Gamma_{m2}}{2(\Gamma + 2\Gamma_{m2})}; \quad \sigma|f|^2 \gg \Gamma. \quad (5)$$

Населенности состояний, между которыми поле вызывает переходы, равны,  $\rho_0 = \rho_{11}$ . Если  $\Gamma_{m2} \ll \Gamma$ , то  $\rho_0 = \rho_{11} = 1/2$  (невырожденная двухуровневая система). Если же  $\Gamma_{m2} \gg \Gamma$ , то  $\rho_0 = \rho_{11} = \rho_{22} = \rho_{33} = 1/4$ <sup>2)</sup>.

При несимметричной ориентации поле непосредственно индуцирует заполнение всех трех состояний возбужденного уровня ЛККС. В случае сильного поля уравнения детального равновесия без учета интерференции вырожденных состояний имеют вид  $\rho_0 = \rho_{\kappa\kappa}$ . При более строгом рассмотрении вероятности переходов, которые определяются матричными элементами  $\rho_{\kappa\kappa}$  в (3), зависят не только от населенностей  $\rho_0$ ,  $\rho_{\kappa\kappa}$ , но и от недиагональных матричных элементов  $\rho_{\kappa\kappa'}$ . Специфика распадного уширения заключается в том, что, как видно из (1), в отсутствие внешних сил разности фаз вырожденных состояний ЛККС не релаксируют при  $\Gamma_m = 0$ . Если на систему действует линейно поляризованное излучение, можно сделать каноническое преобразование координат так, чтобы одна из нормальных координат ЛККС была направлена вдоль поля. Поскольку оператор распадного уширения преобразуется как  $x^2 + y^2 + z^2$ , его вид не изменится и в новых координатах применимы формулы (4), (5). Отсюда ясно, что при  $\Gamma_m = 0$  все вырожденные состояния ЛККС когерентны и система изотропна. Вследствие когерентности уравнения детального равновесия для состояний не выполняются и в сильных полях  $\rho_0 = \sum_{\kappa} \rho_{\kappa\kappa}$  (это следует из

унитарности указанного выше преобразования координат). Модуляционное уширение приводит к расстройке фаз и при  $\Gamma_m \gg \Gamma$  в сильном поле  $\rho_0 = \rho_{\kappa\kappa}$  для всех  $\kappa$ . При произвольном  $\Gamma_m / \Gamma$  выражения для населенностей сложны. Например, при  $f_1 = f_2 = f/\sqrt{2}$  и  $\sigma|f|^2 \gg \Gamma$

$$\rho_{11} = \rho_{22} = \frac{\Gamma_{\varphi}(\Gamma + 2\Gamma_{m2})}{(3\Gamma + 8\Gamma_{m2})\Gamma_{\varphi} + \Gamma(\Gamma + 3\Gamma_{m2})}; \quad \rho_{33} = \frac{2\Gamma_{m2}}{\Gamma + 2\Gamma_{m2}} \rho_{11}; \\ \Gamma_{\varphi} = \Gamma + \Gamma_{m1} + \Gamma_{m2} - \Gamma_{m3}. \quad (6)$$

Параметр  $\Gamma_{\varphi}$  в (6) определяет затухание недиагональных элементов  $\rho_{\kappa\kappa'}$ .

В случае слабого поля поглощаемая ЛК мощность равна  $\sigma|f|^2$ . Параметр  $\Gamma_0$ , входящий в сечение  $\sigma$ , — полуширина слабополовой линии ИК поглощения. Насыщение поглощения при  $f_{\kappa} \sim \delta_{\kappa 1}$  описывается такой же зависимостью, как и для невырожденной двухуровневой системы, однако вместо продольного времени релаксации  $(2\Gamma)^{-1}$  в (4) входит  $(2\Gamma)^{-1} \cdot (\Gamma + 2\Gamma_{m2}) / (\Gamma + 3\Gamma_{m2})$ .

Если  $f_1 = f_2 = f/\sqrt{2}$  или  $f_1 = f_2 = f_3 = f/\sqrt{3}$  (поляризация вдоль осей [110] и [111]), нелинейная восприимчивость ЛККС имеет тоже только диагональную компоненту с мнимой частью  $\sigma/[1 + 2\sigma|f|^2\beta/\Gamma]$ , где

$$\beta_{111} = \frac{\Gamma + 2\Gamma_{\varphi}}{3\Gamma_{\varphi}}; \quad \beta_{110} = \frac{\Gamma_{\varphi}(3\Gamma + 8\Gamma_{m2}) + \Gamma(\Gamma + 3\Gamma_{m2})}{4\Gamma_{\varphi}(\Gamma + 3\Gamma_{m2})}. \quad (7)$$

<sup>2)</sup> Этим, по-видимому, объясняется наблюдавшееся в эксперименте [2] отсутствие поляризационной зависимости заполнения возбужденных состояний ЛККС (эксперимент [2] проводился при температурах, когда  $\Gamma_m \gg \Gamma$  согласно оценкам [8]).

Как при  $\Gamma \ll \Gamma_m$ , так и при  $\Gamma \gg \Gamma_m$  насыщение поглощения для разных симметричных поляризаций одинаково,  $\beta_{100} = \beta_{110} = \beta_{111}$ . Гораздо более чувствительным к соотношению между параметрами является поворот поляризации, рассмотренный в следующем разделе.

### 3. Самоиндуцированный поворот поляризации резонансного излучения

Если направление распространения плоской поперечной электромагнитной волны  $\hat{z}$  нормально к плоскости симметрии кристалла, то продольная компонента поля не возникает. Полагая  $E_s(\hat{z}, t) = \tilde{E}_s(\hat{z}) \exp(i\vec{k}\hat{z} - i\omega_s t)$  и считая вклад примесей  $P$  в поляризацию кристалла малым, получим в стационарном режиме

$$\frac{d\tilde{E}_s}{d\hat{z}} = i \frac{2\pi\omega_s}{c\sqrt{\epsilon}} P_s;$$

$$P_s = nq (\hbar/2m\omega_0)^{1/2} \sum_{\kappa} s_{\kappa} \rho_{\kappa 0}, \quad s=1, 2; \quad (8)$$

$$\left| \frac{d\tilde{E}_s}{d\hat{z}} \right| \ll \frac{\omega_s}{c\sqrt{\epsilon}} |\tilde{E}_s|,$$

где  $n$  — концентрация примесей,  $s_{\kappa}$  — косинус угла между направлениями  $E_s$  и  $\kappa$ ,  $\epsilon$  — диэлектрическая проницаемость основного кристалла.

В слабых полях тензор поляризуемости ЛККС имеет только диагональную компоненту,  $P_s \sim E_s$ , и свет распространяется так же, как в изотропной среде. Если же поле является сильным, направление вектора  $P$  не совпадает, вообще говоря, с направлением поля и, как видно из (8), по мере распространения излучения вектор  $E$  будет поворачиваться. Рассмотрим этот поворот в наиболее простом случае, когда  $E$  лежит в плоскости  $xy$  и  $|\Omega| \ll \Gamma_0$ ,  $\Omega = \omega_s - \omega$ , (точный резонанс).

Если  $\Omega = 0$  и излучение линейно поляризовано,  $\text{Im}(E_x E_y^*) = 0$ , то, как видно из (3),  $\text{Re}(f_1 \rho_{01}) = \text{Re}(f_2 \rho_{02}) = 0$ . Отсюда с учетом (8) следует, что соотношение фаз  $E_x$  и  $E_y$  не меняется, т. е. линейная поляризация сохраняется. Изменение интенсивности  $x$ -компоненты поля с расстоянием, согласно (8), равно

$$\frac{d|\tilde{E}_{\kappa}|^2}{dz} = \frac{4\pi\omega_s n \hbar}{c\sqrt{\epsilon}} \text{Im}(f_{\kappa} \rho_{0\kappa}), \quad \kappa=1, 2. \quad (9)$$

Решая систему (3) при  $E_z = 0$ ,  $\Omega = 0$ , получим

$$\begin{aligned} \text{Im}(f_{\kappa} \rho_{0\kappa}) &= -\{\Gamma(\Gamma+3\Gamma_{m2}) |f_{\kappa}|^2 [ |f|^2 + a |f_{\kappa'}|^2 + \\ &\quad + 2\Gamma_0 \Gamma_{\phi}] \} \{ (|f|^2 + 2\Gamma_0 \Gamma_{\phi}) [2(\Gamma+2\Gamma_{m2}) |f|^2 + \\ &\quad + \Gamma \Gamma_0 (\Gamma+3\Gamma_{m2})] + a |f_1|^2 |f_2|^2 (3\Gamma+8\Gamma_{m2}) \}^{-1}; \\ &\quad \kappa, \kappa' = 1, 2; \quad \kappa \neq \kappa'; \quad |f|^2 = |f_1|^2 + |f_2|^2; \\ &\quad a = 2(\Gamma_{m1} - 2\Gamma_{m2} - \Gamma_{m3}) / (\Gamma+3\Gamma_{m2}). \end{aligned} \quad (10)$$

Уравнения (9), (10) позволяют с помощью ЭВМ рассчитать распространение резонансного излучения в кристалле при произвольных значениях параметров ЛККС. Поворот поляризации можно, однако, исследо-

вать аналитически методом фазовых траекторий. Разделив уравнения (9) друг на друга, получим

$$\frac{du_2}{du_1} = \frac{u_2[u_2+u_1(a+1)+2\Gamma_0\Gamma_\phi]}{u_1[u_2(a+1)+u_1+2\Gamma_0\Gamma_\phi]}, \quad (11)$$

$$u_n = |f_n|^2 \propto |E_n|^2.$$

При  $a=0$   $u_2/u_1=\text{const}$  и плоскость поляризации не вращается. Решение уравнения (11) при  $a \neq 0$  имеет вид

$$u_1 = u_1(0) \left( \frac{1-v}{1-v_0} \right)^{-(a+2)/a} \left( \frac{v}{v_0} \right)^{1/a} + \frac{2\Gamma_0\Gamma_\phi}{a} \frac{v^{1/a}}{(1-v)^{(a+2)/a}} \int_{v_0}^v dx \frac{(1-x)^{2/a}}{x^{(a+1)/a}}, \quad (12)$$

$$v = u_2/u_1; v_0 = u_2(0)/u_1(0).$$

Изменение параметра  $v = |E_y(z)/E_x(z)|^2$  определяет поворот плоскости поляризации по мере распространения излучения в кристалле. При выводе уравнений (11), (12) предполагалось, что  $v_0 < 1$ , и использовалось условие  $a > -4/3$  (последнее следует из неравенства  $\Gamma_{m1} \geq |\Gamma_{m3}|$ , см. Приложение). Тогда, как видно из (12),  $v < 1$  и  $u_1+u_2(a+1)+2\Gamma_0\Gamma_\phi > 0$ , так что переход от (9) к (11) возможен (при  $v_0 > 1$   $u_2$  и  $u_1$  в (11), (12) нужно поменять местами).

Наиболее быстро поворот поляризации происходит в сильном поле:

$$\left( \frac{1-v}{1-v_0} \right)^{a+2} = \frac{v}{v_0} \left[ \frac{u_1(0)}{u_1} \right]^a,$$

$$\sum_n |f_n|^2 \gg \Gamma_0 \Gamma_\phi. \quad (12a)$$

Если  $a < 0$ , то  $v \rightarrow 1$  при  $u_1 \rightarrow 0$ , т. е. по мере распространения в кристалле поляризация поворачивается к ближайшей оси [110]. Если же  $a > 0$ , то  $v \rightarrow 0$  при  $u_1 \rightarrow 0$ , т. е. поляризация поворачивается к ближайшей оси [100]. Скорость поворота существенно зависит от параметра  $a$  и от начального угла между вектором поляризации и осью [100] (см. рис. 2).

Из (10), (12) видно, что поворот поляризации обусловлен модуляционными процессами (как уже отмечалось, если  $\Gamma_m = 0$ , то ЛККС изотропно при произвольном  $\Omega$ ). Направление поворота определяется соотношением параметров  $\Gamma_{m1} - \Gamma_{m3}$  и  $\Gamma_{m2}$ . При  $\Gamma_{m2} > \Gamma_{m1}$  ( $a < 0$ ) переброс возбуждения между вырожденными состояниями происходит быстрее, чем релаксация их фаз. Вследствие этого возникает поток энергии от состояния, которое возбуждается большей из компонент  $E_x, E_y$ , к состоянию, которое возбуждается меньшей компонентой. Соответственно меньшая компонента поля будет поглощаться слабее большей и вектор напряженности поля повернется к ближайшему направлению [110] (при  $a < -1$  интенсивность меньшей компоненты в определенном интервале углов растет, хотя в целом энергия поля, согласно (10), всегда поглощается). Если  $\Gamma_{m1} \gg \Gamma_{m2}$  и перебросом возбуждения можно пренебречь, ангармоническое ЛККС эквивалентно

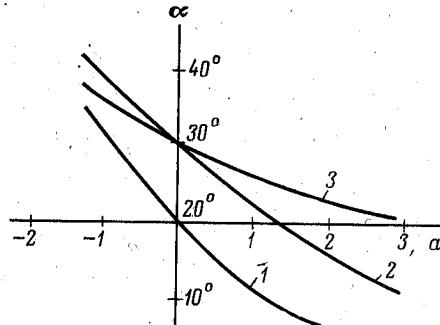


Рис. 2. Зависимость угла поворота поляризации от параметра  $a = 2(\Gamma_{m1} - 2\Gamma_{m2} - \Gamma_{m3}) / (\Gamma + 3\Gamma_{m2})$ . Кривые 1, 2 соответствуют уменьшению амплитуды большей из компонент поля  $E_x, E_y$  в 2 раза, кривая 3 — в  $\sqrt{2}$  раз. Направление поляризации падающего излучения определяется значением  $\alpha$  при  $a=0$

лентно совокупности трех невзаимодействующих двухуровневых систем. Как отмечалось во Введении, в этом случае напряженность поля поворачивается к ближайшему направлению [100].

Рассмотренный здесь СРПП качественно отличается от самоиндцированного поворота поляризации в жидкостях [13]. Последний имеет место только для эллиптически поляризованного света, не является резонансным и наблюдается в области прозрачности. СРПП имеет место для линейно поляризованного излучения и представляет собой не вращение, а поворот поляризации к определенному направлению в кристалле. Интересно отметить, что по мере распространения степень поляризации излучения при  $\Omega=0$  возрастает (если  $\Gamma \gg \Gamma_m$  или  $\Gamma \ll \Gamma_m$ , практически не меняется), при  $\Omega \sim \Gamma_0$  происходит деполяризация.

В заключение этого раздела укажем, что самоиндцированный поворот поляризации происходит и при взаимодействии излучения с локальными (квазилокальными) колебаниями туннельных центров (примесных молекул или нецентральных ионов [14]). Поскольку ангармонизм таких ЛК сравнительно велик, то в пренебрежении туннелированием взаимодействие с резонансным излучением можно описывать в рамках двухуровневой модели (время туннельного перехода в основном и в возбужденном состоянии предполагается большим по сравнению с временем релаксации энергии  $(2\Gamma)^{-1}$  и длительностью лазерного импульса). Рассмотрим случай, когда ориентация центра совпадает с направлением дипольного момента  $j$  его ЛК (например, нецентральные ионы или линейные молекулы). Для расчета вклада примесей  $P$  в поляризацию кристалла следует провести усреднение по эквивалентным направлениям  $j$ ,

$$P = \frac{\alpha n}{r} \sum_{ij} j_{ni} \frac{\sum_{ni} E_{ni} j_{ni}}{1 + (2 \operatorname{Im} \alpha / \hbar \Gamma) (\sum_{ni} E_{ni} j_{ni})^2}, \quad (13)$$

где  $\alpha$  — поляризуемость одного ЛК,  $r$  — число эквивалентных ориентаций  $j$ .

В случае точного резонанса  $\operatorname{Re} \alpha = 0$  и поворот плоскости поляризации излучения можно проанализировать методом фазовых траекторий, как это было сделано выше для ЛККС. Предельные направления, к которым поворачивается поляризация сильного поля ( $|E|^2 \gg \hbar \Gamma / \operatorname{Im} \alpha$ ), для разных ориентаций центров и разных направлений распространения излучения приведены в таблице.

#### 4. Заключение

Определение параметров распадного  $\Gamma$  и модуляционного  $\Gamma_{m1, 2, 3}$  уширения для высокочастотных ЛККС в широком интервале температур представляет значительный интерес, поскольку в настоящее время известно большое количество таких примесных колебаний [15]. Методы ИК поглощения и комбинационного рассеяния света не позволяют найти  $\Gamma$  и  $\Gamma_m$ , так как полуширина линий на основной частоте равна  $\Gamma_0 = \Gamma + \Gamma_{m1} + 2\Gamma_{m2}$ , а в полуширины обертонов могут давать вклад некоторые другие механизмы релаксации [3, 7]. Для измерения параметров  $\Gamma$  и  $\Gamma_m$  можно использовать нелинейные по полю резонансные эффекты — насыщение поглощения и СРПП, которые требуют сравнительно небольших интенсивностей ( $|E|^2 \sim m \hbar \omega_0 \Gamma_0^2 / q^2$ ), не влияющих на основной кристалл и не меняющих энергию взаимодействия локального колебания с колебаниями непрерывного спектра.

Насыщение поглощения ЛККС наблюдалось Ли и Фаустом [2]. Для описания распространения резонансного излучения в кристалле они

**Самоиндуцированный поворот поляризации излучения,  
обусловленный туннельными центрами**

Направление распространения излучения	Ориентация центров	Границы интервала, включающего направление поляризации падающего излучения	Предельное направление поляризации
[001]	[100]	[110], [140]	[100]
	[110]	[-α10]*, [α10]	[010]
	[111]	[α10], [1α0]	[110]
	[100]	[100], [010]	[110]
	[110]	[111], [001]	[001]
	[111]	[111], [140]	[110]
[110]	[100]	[110], [118]**	[111]
	[110]	[118], [001]	[001]
	[111]	[001], [111]	[112]
	[111]	[111], [110]	[110]

\*  $\alpha = (\sqrt{3} - 1)/\sqrt{2}$ .

\*\*  $\beta = \sqrt{13}$ .

использовали выражение для невырожденных двухуровневых систем

$$\frac{d|E|^2}{dz} = -\frac{4\pi\omega_f}{c\sqrt{\epsilon}} \left[ \alpha_0'' + \frac{n\alpha''}{1+w|E|^2} \right] |E|^2; \quad w = \frac{2\alpha''}{\hbar\Gamma}, \quad (14)$$

где  $\alpha_0''$  и  $\alpha''$  — мнимые части восприимчивостей основного кристалла и ЛК ( $n\alpha'' \gg \alpha_0''$ ). К ЛКС формула (14) применима, строго говоря, либо в случае, когда поле ориентировано вдоль одного из симметричных направлений кристалла (причем это должно быть устойчивое направление, т. е. то, к которому поворачивается поляризация), либо при отсутствии модуляционного уширения. В [2] при  $T=90$  К  $\Gamma_m > \Gamma$ . Однако (14) неплохо описывает экспериментальные зависимости пропускания кристалла от интенсивности падающего излучения, соответствующие двум соседним частотам мощного СО<sub>2</sub>-лазера. Считая максимальную мощность на обеих частотах одинаковой, мы получили  $\alpha''(\omega_1)/\alpha''(\omega_2) = w(\omega_1)/w(\omega_2)$  с погрешностью меньше 10% (для резонансной кривой  $|\omega_1 - \omega_0| < \Gamma_0/2$ ,  $w(\omega_1)|E|^2_{max} \approx 3,9$ , примерно в 11 раз больше значения, приведенного Ли и Фаустом [2], поэтому найденное ими [2] значение  $\Gamma$  нам представляется недостоверным). Применимость формулы (14) к кривым пропускания обусловлена, по-видимому, следующим: при резонансе ( $\omega_1 \approx \omega_0$ ) поглощение настолько сильное (>98%), что в большей части кристалла поляризация ориентирована в симметричном направлении; на нерезонансной кривой  $|\omega_2 - \omega_0| \approx 3\Gamma_0$  и  $w|E|^2 < 1/2$ ; поскольку при этом  $\Gamma_m > \Gamma$ , то, исходя из (3), можно показать, что поляризационная зависимость слаба.

Поворот поляризации сильного резонансного излучения при  $\Gamma_m \neq 0$ , как видно из рис. 2, должен происходить на длине поглощения. Метод СРПП очень чувствителен к соотношению между параметрами модуляционного уширения ЛКС. Измеряя зависимости угла поворота от поля и от направления поляризации падающего излучения, можно по формулам (12), (12a) найти  $\Gamma_0(\Gamma + \Gamma_{m1} + \Gamma_{m2} - \Gamma_{m3})$  и  $a = 2(\Gamma_{m1} - 2\Gamma_{m2} - \Gamma_{m3})/(\Gamma + 3\Gamma_{m2})$ . Величины  $\Gamma/\beta$  и  $\Gamma_0$  (см. (4), (7)) можно определить по частотной зависимости слабополевого ИК поглощения и полевой зависимости насыщения поглощения в симметричной конфигурации. Таким образом, совокупность перечисленных методов позволяет измерить все четыре параметра релаксации ЛКС.

Метод СРПП может быть применен также для определения ориентации туннельных центров в кубических кристаллах. Как видно из таблицы, предельное направление поляризации при медленном туннелировании однозначно определяется ориентацией центров. Для наблюдения поворота поляризации необходимо  $T < \hbar\omega_0$ , в то время как для наблюдения понижения симметрии центра вследствие приложения статического поля температура должна быть меньше расщепления уровней в поле.

Интегральная (по частоте) интенсивность линий ИК поглощения локальными колебаниями несколько изменяется с температурой из-за взаимодействия с колебаниями непрерывного спектра [3, 16]. В случае одномерного высокочастотного ЛК можно показать, что включение температурной зависимости в эффективный заряд описывает динамику ЛК как в слабом, так и в сильном поле. Для ЛКС это не имеет места вследствие перепутывания вырожденных состояний при релаксации.

Рассмотренный в данной работе самоиндцированный резонансный поворот поляризации вырожденными двухуровневыми примесями в кубических кристаллах может наблюдаться не только в случае локальных колебаний, но и в случае электронных центров. Для этого необходимо, чтобы отношение  $p/\hbar\gamma$  ( $p$  — дипольный момент электронного перехода,  $\gamma$  — ширина слабополевой линии поглощения) было по возможности большим и насыщающие поля ( $|E| \sim \hbar\gamma/p$ ) не разрушали бы кристалл.

Авторы благодарны М. А. Кривоглазу за обсуждение работы.

#### ПРИЛОЖЕНИЕ

Модуляционное уширение во втором порядке по взаимодействию обусловлено слагаемыми

$$H_i = \hbar \sum_{\mathbf{kk}'hh'} V_{\mathbf{kk}'hh'} a_n^+ a_{n'} a_{h'}^+ a_h^- \quad (\text{П.1})$$

в гамильтониане ЛКС, слабо связанного с колебаниями непрерывного спектра (последние нумерует индекс  $k$ ) [7]. С учетом симметрии соответствующий оператор в кинетическом уравнении (1) имеет вид

$$\hat{\Gamma}_m \rho = \Gamma_{m1} \sum_n \{ [n_n^2, \rho]_+ - 2n_n \rho n_n \} + \Gamma_{m2} \sum_{n \neq n'} \{ [n_n(n_{n'}+1), \rho]_+ + [a_n^{+2} a_{n'}^2, \rho]_+ - 2a_n^+ a_{n'} \rho (a_n^+ a_{n'} + a_{n'}^+ a_n) \} + \Gamma_{m3} \sum_{n \neq n'} \{ [n_n n_{n'}, \rho]_+ - 2n_n \rho n_{n'} \}, \quad (\text{П.2})$$

$$[A, B]_+ = AB + BA,$$

где

$$\begin{aligned} \Gamma_{m1} &= \sum_{hh'} V_{11hh'}^2 f_{hh'}; & \Gamma_{m2} &= \sum_{hh'} V_{12hh'}^2 f_{hh'}; \\ \Gamma_{m3} &= \sum_{hh'} V_{11hh'} V_{22hh'} f_{hh'}; & f_{hh'} &= \pi \bar{n}_h (1 + \bar{n}_h) \delta(\omega_h - \omega_{h'}). \end{aligned} \quad (\text{П.3})$$

Разные  $\Gamma_m$  обусловлены взаимодействием с колебаниями непрерывного спектра, преобразующимися по различным неприводимым представлениям группы симметрии. В силу неравенства Коши  $|\Gamma_{m1}| \geq |\Gamma_{m3}|$ .

Институт полупроводников  
Академии наук Украинской ССР

Поступила в редакцию  
22 декабря 1976 г.

### Литература

- [1] R. Karplus, J. Schwinger. Phys. Rev., **73**, 1020, 1948.
- [2] L. C. Lee, W. L. Faust. Phys. Rev. Lett., **26**, 648, 1971.
- [3] R. J. Elliott, W. Hayes, G. D. Jones, H. F. MacDonald, C. T. Sennett. Proc. Roy. Soc., **A289**, 1, 1965.
- [4] Б. Я. Зельдович, А. М. Переоловов, В. С. Попов. ЖЭТФ, **55**, 589, 1968; **57**, 196, 1969.
- [5] М. И. Дыкман, М. А. Кривоглаз. Phys. Stat. Sol. (b), **68**, 111, 1975.
- [6] М. А. Иванов, Л. Б. Квашнина, М. А. Кривоглаз. ФТТ, **7**, 2047, 1965.
- [7] М. А. Krivoglaz, I. P. Pinkevich. Cryst. Latt. Defects, **1**, 117, 1969.
- [8] М. А. Иванов, М. А. Кривоглаз, Д. Н. Мирилин, И. И. Репшина. ФТТ, **8**, 192, 1966.
- [9] И. П. Иштова, А. А. Ключкин. ЖЭТФ, **50**, 1603, 1966.
- [10] М. И. Дыкман, М. А. Кривоглаз. ЖЭТФ, **64**, 993, 1973.
- [11] М. И. Дыкман. ЖЭТФ, **68**, 2082, 1975.
- [12] М. И. Дыкман, М. А. Иванов. ФТТ, **18**, 720, 1976.
- [13] P. D. Maker, R. W. Terhune, C. M. Savage. Phys. Rev. Lett., **12**, 507, 1964.
- [14] V. Narayananamurti, R. O. Pohl. Rev. mod. Phys., **42**, 201, 1970.
- [15] A. S. Barker, Jr., A. J. Sievers. Rev. mod. Phys., **47**, Suppl. 2, 1975.
- [16] М. И. Дыкман, М. А. Кривоглаз. УФЖ, **19**, 125, 1974.

### ABSORPTION SATURATION AND ROTATION OF RADIATION POLARIZATION BY LOCAL VIBRATIONS IN CUBIC CRYSTALS

*M. I. Dykman, G. G. Tarasov*

Saturation of the absorption of linearly polarized resonant radiation by anharmonic local vibrations of cubic symmetry is considered by means of the quantum kinetic equation. It is shown that due to degeneracy of the energy levels caused by the symmetry, absorption saturation is followed by the turn of the radiation polarization toward one of the symmetry axes in the crystal. The direction and velocity of rotation depend on the relaxation parameters of the local vibration. Similar rotation is investigated in the case of tunnel centers. In this case the extreme direction of polarization is determined by the orientation of the centers.