1990 ФИЗИКА ТВЕРДОГО ТЕЛА Том 32, в. 1
1990 SOLID STATE PHYSICS Vol. 32, N 1

УДК 535.37

МОДУЛЯЦИОННОЕ УШИРЕНИЕ СПЕКТРАЛЬНЫХ ЛИНИЙ ПРИМЕСНЫХ ЦЕНТРОВ С ВЫРОЖДЕННЫМИ УРОВНЯМИ

М. И. Дыкман, М. А. Иванов

Рассмотрено модуляционное уширение для спектральных линий, отвечающих вырожденным высокочастотным локальным колебаниям и электронным переходам. Показано, что процессы, которые возникают в четвертом порядке теории возмущений по взаимодействию, линейному по фононным операторам и перепутывающему примесные состояния с одинаковой энергией, приводят к модуляционному уширению $\sim T^5$ при температурах, значительно меньших дебаевской (вместо T^7 для невырожденных уровней). Подробно рассмотрен случай трехкратно вырожденных дипольно-активных локальных колебаний. Найденные соотношения ширин линий на основной частоте и ее обертоне согласуются с экспериментом. Исследовано влияние рассмотренного механизма модуляционного уширения на самоиндуцированное изменение поляризации излучения, частота которого близка к собственной частоте примесного перехода.

Узкие линии в оптических спектрах примесных центров в кристаллах могут быть обусловлены как переходами между различными электронными состояниями [1], так и локализованными колебаниями [2]. Если частоты соответствующих переходов велики по сравнению с частотами фононов, то при низких температурах бесфононные линии оказываются чрезвычайно узкими (в отсутствие неоднородного уширения), причем их ширины быстро растут с повышением температуры. Основным механизмом уширения высокочастотных линий, как правило, является модуляционный [3-10], связанный с флуктуациями фазы волновой функции примесного центра, обусловленными рассеянием на нем фононов. Обычно модуляционное уширение связывают со слагаемыми в гамильтониане взаимодействия примесного возбуждения с фононами, квадратичными по фононным операторам.

Поскольку с ростом температуры числа заполнения рассеивающихся фононов быстро растут, то и модуляционное уширение также быстро растет: как $(T/\omega_D)^2$ при $T \geqslant \omega_D$ и как $(T/\omega_D)^7$ при $T \ll \omega_D$ [5, 6, 8, 10] (ω_D — дебаевская частота; $\hbar=k=1$). Для примесей с невырожденными уровнями линейное по фононным операторам взаимодействие не меняет температурную зависимость модуляционного уширения. Оно приводит лишь к перенормировке квадратичного взаимодействия, пропорциональной отношению квадрата константы линейного взаимодействия к расстоянию между уровнями примеси, что отвечает неадиабатическому приближению.

Для примесей с вырожденными уровнями роль линейного взаимодействия даже при слабой связи (когда энергия связи много меньше характерных энергий фононов) оказывается существенно более важной. Поскольку оно перемешивает квантовые состояния примеси с одинаковой энергией, то соответствующая перенормировка параметров квадратичного взаимодействия оказывается пропорциональной отношению квадрата константы связи к частоте фонона (которая значительно меньше расстояния между уровнями). В результате, как будет показано ниже, при $T \ll \omega_D$ модуляционное уширение ведет себя не как $(T/\omega_D)^7$, а как

$(T/\omega_D)^5$, т. е. оказывается значительно большим, чем в случае невырожденных уровней. Следует отметить также, что в результате указанной перенормировки число констант модуляционного уширения увеличивается по сравнению с обычно рассматриваемым случаем, когда гамильтониан квадратичного по фононным операторам взаимодействия примесного возбуждения с фононами зависит лишь от смещений атомов (и оказывается таким же, как при учете зависимости взаимодействия и от смещений, и от скоростей). Это обстоятельство отражается не только на значениях ширин линий, но и на соотношении между ширинами линий на обертонах локальных колебаний, оно проявляется также в нелинейном резонансном отклике примеси и в характере самоиндуцированного изменения поляризации распространяющегося в кристалле резонансного излучения.

1. Модуляционное уширение, обусловленное взаимодействием, линейным по фононным операторам

Рассмотрим вначале перенормировку модуляционного уширения для вырожденного локального колебания (ЛК). Гамильтониан системы ЛК+кристалл без учета внутреннего ангармонизма ЛК (см. ниже) имеет вид

$$H = H_0 + H_m + H_i, \quad H_0 = \omega_0 \sum_{\varkappa} a_{\varkappa}^{+} a_{\varkappa}, \quad H_m = \sum_k \omega_k b_k^{+} b_k, \tag{1}$$

$$H_i = H_i^{(3)} + H_i^{(4)}, \quad H_i^{(3)} = \sum_{\varkappa\varkappa' k} (V_{\varkappa\varkappa' k} a_{\varkappa}^{+} a_{\varkappa'} b_k + \text{э. с.}), \quad H_i^{(4)} = \sum_{\varkappa\varkappa' kk'} V_{\varkappa\varkappa' kk'} a_{\varkappa}^{+} a_{\varkappa'} b_k^{+} b_{k'}. \tag{2}$$

Здесь индекс $\varkappa$ нумерует степени свободы вырожденного ЛК; k — нумерует колебания непрерывного спектра; $a_{\varkappa}$, b_k — бозевские операторы для соответствующих колебаний. Поскольку рассматриваются высокочастотные ЛК, т. е. $\omega_0 \gg \omega_k$, то в гамильтониане ангармонического взаимодействия сохранены лишь «адиабатические» слагаемые, связывающие состояния ЛК с одинаковой энергией (с точностью до расщепления уровней в мультиплете). В случае, когда взаимодействие зависит лишь от смещений атомов, т. е. от операторов $a_{\varkappa} + a_{\varkappa}^{+}$, $b_k + b_k^{+}$, очевидно

$$V_{\varkappa\varkappa' k} = V_{\varkappa'\varkappa k} = V_{\varkappa\varkappa' k}^{*}, \quad V_{\varkappa\varkappa' kk'} = V_{\varkappa'\varkappa kk'} = V_{\varkappa\varkappa' k'k} = V_{\varkappa\varkappa' kk'}^{*}. \tag{3}$$

Форма оптического спектра ЛК вблизи основного пика, где $\omega \approx \omega_0$ и можно не учитывать фононные крылья, описывается функцией $\mathrm{Im} \ll a_{\varkappa}, a_{\varkappa}^{+} \gg_{\omega+i0}$, где $\ll a_{\varkappa}, a_{\varkappa}^{+} \gg_{\omega+i0}$ — Фурье-образ запаздывающей функции Грина. Уравнение движения для этой функции имеет вид

$$\langle\langle a_{\varkappa}, a_{\varkappa}^{+} \rangle\rangle (\omega - \omega_0) = 1 + \sum_{\varkappa' k} (V_{\varkappa\varkappa' k} \langle\langle a_{\varkappa'} b_k, a_{\varkappa}^{+} \rangle\rangle + V_{\varkappa'\varkappa k}^{*} \langle\langle a_{\varkappa'} b_k^{+}, a_{\varkappa}^{+} \rangle\rangle) + \\ + \sum_{\varkappa' kk'} V_{\varkappa\varkappa' kk'} \langle\langle a_{\varkappa'} b_k^{+} b_{k'}, a_{\varkappa} \rangle\rangle. \tag{4}$$

Слагаемые с $k=k'$ в последнем выражении приводят к перенормировке частоты ω_0, которую в дальнейшем будем считать произведенной, а члены с $k \neq k'$ во втором порядке теории возмущений определяют обычно рассматриваемое модуляционное уширение. Слагаемые в (4), обусловленные гамильтонианом $H_i^{(3)}$ (2) и пропорциональные $V_{\varkappa\varkappa' k}$, также приводят к модуляционному уширению, но в более высоких порядках теории возмущений. Оставляя в уравнениях для этих функций Грина лишь члены того же вида, что и последнее слагаемое в (4) (и отбрасывая слагаемые, приводящие к сдвигу линии и к распадным процессам), получим, что во втором порядке взаимодействие $H_i^{(3)}$ приводит к следующей перенормировке последнего слагаемого в (4)

$$\tilde{V}_{\varkappa\varkappa' kk'} = V_{\varkappa\varkappa' kk'} + \sum_{\varkappa_1}\left[\frac{V^*_{\varkappa_1\varkappa k}V_{\varkappa_1\varkappa' k'}}{\omega-\omega_{\varkappa_1}+\omega_k} + \frac{V_{\varkappa\varkappa_1 k'}V^*_{\varkappa'\varkappa_1 k}}{\omega-\omega_{\varkappa_1}-\omega_k}\right] = V_{\varkappa\varkappa' kk'} +$$

$$+\sum_{\varkappa_1}\left[\frac{1}{\omega_k}V_{\varkappa_1\varkappa k}V_{\varkappa_1\varkappa' k'} - \frac{1}{\omega_{k'}}V_{\varkappa\varkappa_1 k'}V_{\varkappa'\varkappa_1 k}\right]. \quad (5)$$

Здесь при записи второго равенства учтено, что модуляционное уширение значительно меньше частоты фононов и в знаменателе отброшены малые члены $\omega-\omega_{\varkappa_1}$ по сравнению с ω_k, $\omega_{k'}$.

В результате решения уравнения (4) во втором порядке по параметру $\tilde{V}_{\varkappa\varkappa' kk'}$ получим следующие выражения для функции Грина $\langle\langle a_\varkappa, a^+_\varkappa\rangle\rangle$ и модуляционного уширения $\Gamma^{(1)}$ на основной частоте

$$\langle\langle a_\varkappa, a^+_\varkappa\rangle\rangle_{\omega+i0} = [\omega-\omega_0 - i\Gamma^{(1)}]^{-1}, \quad \Gamma^{(1)} = \Gamma_{m1} + 2\Gamma_{m2}, \quad \Gamma_{m1} = \sum_{kk'} |V_{\varkappa\varkappa kk'}|^2 \mathscr{L}_{kk'},$$

$$\Gamma_{m2} = \frac{1}{2}\sum_{\substack{\varkappa'(\varkappa'\neq\varkappa),\\ kk'}} |\tilde{V}_{\varkappa\varkappa' kk'}|^2 \mathscr{L}_{kk'}, \qquad \mathscr{L}_{kk'} = \pi(1+\bar{n}_k)\bar{n}_k\delta(\omega_k-\omega_{k'}),$$

$$\bar{n}_k = [\exp(\omega_k/T) - 1]^{-1}. \quad (6)$$

Параметр Γ_{m1} описывает процесс рассеяния фононов, в результате которого сбивается фаза волновой функции колебания $\varkappa$, а параметр Γ_{m2} — такое рассеяние, в результате которого колебание $\varkappa$ превращается в колебание $\varkappa'$ ($\varkappa' \neq \varkappa$) с той же энергией.

Для взаимодействия с длинноволновыми акустическими фононами, которые вносят основной вклад в модуляционное уширение (6) при низких температурах, параметры взаимодействия $V_{\varkappa\varkappa' kk'} \sim (kk')^{1/2}$. Это и приводит к закону $\Gamma \sim T^7$ при $T \ll \omega_D$ [8]. Для взаимодействия с того же типа фононами $V_{\varkappa\varkappa' k} \sim k^{1/2}$. Соответственно второе слагаемое в $\tilde{V}_{\varkappa\varkappa' kk'}$ (5) при $\omega_k = \omega_{k'}$ не зависит от k (именно слагаемые с $\omega_k = \omega_{k'}$ вносят вклад в $\Gamma_{m1,\,2}$ (6)). В невырожденном случае ($\varkappa = \varkappa_1 = \varkappa'$) это слагаемое обращается в 0. В вырожденном же случае оно по модулю значительно превышает $V_{\varkappa\varkappa' kk'}$. В результате, как нетрудно видеть, температурная зависимость Γ_m для вырожденного ЛК при $T \ll \omega_D$ имеет вид T^5 и может быть легко обнаружена экспериментально (при $T \gg \omega_D$ $\Gamma_m \sim T^2$, как и в невырожденном случае). Такой же вид имеет температурная зависимость рамановского уширения низкочастотных двухуровневых систем с частотой перехода, значительно меньшей T, ω_D [11].

Гамильтониан (1) описывает также кинетику двухуровневого электронного перехода с вырожденным возбужденным уровнем, взаимодействующего с фононами, причем ω_0 имеет смысл частоты перехода, $a^+_\varkappa$, $a_\varkappa$ — проекционные операторы для возбужденного состояния $\varkappa$. При этом, вообще говоря, следует также учесть слагаемые в гамильтониане, отвечающие электрон-фононному взаимодействию в основном состоянии; их эффект, однако, сводится к перенормировке констант взаимодействия $V_{\varkappa\varkappa k}$, $V_{\varkappa\varkappa kk'}$ и к перенормировке ω_0. В случае, когда заполнением возбужденного состояния можно пренебречь, выражение для модуляционного уширения оптического спектра электронного перехода совпадает с выражением (6). Отметим, что для двумерных электронных систем с трансляционно-вырожденным дискретным энергетическим спектром в магнитном поле (уровни Ландау) релаксация за счет процессов рассматриваемого типа в четвертом порядке по $H^{(3)}_i$ обсуждалась в [12].

2. Модуляционное уширение для трехкратно вырожденных дипольно-активных ЛК с кубической симметрией

Одним из наиболее интенсивно исследованных типов ЛК являются трехкратно вырожденные ЛК с кубической симметрией [13]. В гармоническом приближении такие ЛК представляют собой совокупность колебаний с одинаковыми частотами и дипольными моментами, ориентированными вдоль осей кристалла типа $\langle 100 \rangle$. Гамильтониан изолированных ЛК в этом приближении описывается слагаемым H_0 в (1), причем $\varkappa$ принимает значения x, y, z. Энергетические уровни ЛК без учета ангармонизма вырождены $(n+1)(n+2)/2$-кратно, где n — главное квантовое число. При учете ангармонизма уровни ЛК расщепляются в мультиплеты [14]. Расстояние между уровнями в низколежащих мультиплетах обычно мало́ по сравнению с расстоянием между мультиплетами ($\approx\omega_0$) и дебаевской частотой кристалла ω_D.

Для описания формы пиков в оптических спектрах ЛК удобно использовать подход, развитый в работах [15, 16], в которых было получено квантовое кинетическое уравнение в операторной форме для матрицы плотности ρ ангармонического ЛК. Можно показать, что для вырожденных ЛК слагаемое в уравнении для ρ (в интеграле столкновений), описывающее модуляционное уширение, принимает вид

$$\partial\rho/\partial t = -\hat{\Gamma}_m \rho,$$
$$\hat{\Gamma}_m \rho = \sum_{\varkappa_1\varkappa_2\varkappa_3\varkappa_4} \Gamma_{\varkappa_1\varkappa_2\varkappa_3\varkappa_4} [a^+_{\varkappa_1} a_{\varkappa_2}, [a^+_{\varkappa_3} a_{\varkappa_4}, \rho]]. \tag{7}$$

Параметры релаксации $\Gamma_{\varkappa_1\varkappa_2\varkappa_3\varkappa_4}$ являются, как ясно из (7), компонентами тензора четвертого ранга, симметричного относительно перестановки пар индексов (но не индексов внутри пары). В рассматриваемом случае трехкратно вырожденного ЛК кубической симметрии такой тензор имеет 4 независимые компоненты, и оператор, описывающий модуляционное уширение, имеет вид

$$\Gamma_m \rho = \Gamma_{m1} \sum_{\varkappa} [(a^+_\varkappa a_\varkappa)^2 \rho - 2a^+_\varkappa a_\varkappa \rho a^+_\varkappa a_\varkappa + \rho (a^+_\varkappa a_\varkappa)^2] + \Gamma_{m2} \sum_{\varkappa\varkappa'}{}' [a^+_\varkappa a_\varkappa a_{\varkappa'} a^+_{\varkappa'} \rho - 2a^+_\varkappa a_{\varkappa'} \rho a^+_{\varkappa'} a_\varkappa +$$
$$+ \rho a^+_\varkappa a_\varkappa a_{\varkappa'} a^+_{\varkappa'}] + \Gamma_{m3} \sum_{\varkappa\varkappa'}{}' [a^+_\varkappa a_\varkappa a^+_{\varkappa'} a_{\varkappa'} \rho - 2a^+_\varkappa a_\varkappa \rho a^+_{\varkappa'} a_{\varkappa'} + \rho a^+_\varkappa a_\varkappa a^+_{\varkappa'} a_{\varkappa'}] + \Gamma_{m4} \sum_{\varkappa\varkappa'}{}' [(a^+_\varkappa a_{\varkappa'})^2 \rho -$$
$$- 2a^+_\varkappa a_{\varkappa'} \rho a^+_\varkappa a_{\varkappa'} + \rho (a^+_\varkappa a_{\varkappa'})^2], \tag{8}$$

где

$$\Gamma_{m3} = \sum_{kk'} \tilde{V}_{\varkappa\varkappa kk'} \tilde{V}_{\varkappa'\varkappa'k'k} \mathcal{L}_{kk'}, \quad \Gamma_{m4} = \sum_{kk'} \tilde{V}_{\varkappa\varkappa'kk'} \tilde{V}_{\varkappa\varkappa'k'k} \mathcal{L}_{kk'}, \quad (\varkappa \neq \varkappa'), \tag{9}$$

(штрих у суммы в (8) означает, что слагаемые с $\varkappa = \varkappa'$ следует исключить).

В частном случае $\Gamma_{m4} = \Gamma_{m2}$ выражение (8) совпадает с полученным в [16] (как видно из (5), (8), условие $\Gamma_{m4} = \Gamma_{m2}$ выполняется при $\tilde{V}_{\varkappa\varkappa'kk'} = \tilde{V}_{\varkappa'\varkappa kk'}$, что имеет место, когда не учитывается перенормировка (5) параметров $V_{\varkappa\varkappa'kk'}$, а взаимодействие ЛК с решеткой зависит лишь от смещений атомов).

Смысл параметров Γ_{m1} и Γ_{m2}, входящих в (8) и определенных в (6), объяснен выше. Слагаемые с Γ_{m3} и Γ_{m4} в (8) связаны с интерференцией процессов рассеяния фононов на разных изоэнергетических состояниях ЛК. Соответственно параметры Γ_{m3}, Γ_{m4} не являются знакоопределенными (но, как ясно из соображений симметрии, они действительны). Из (6), (9) с учетом неравенства Коши следует, что

$$\Gamma_{m3} \leqslant \Gamma_{m1}, \quad \Gamma_{m4} \leqslant \Gamma_{m2}. \tag{10}$$

Отметим, что в случае, когда взаимодействие ЛК с фононами зависит лишь от координат, так что выполнены условия (3), при низких температурах $\Gamma_{m2} = -\Gamma_{m4} \sim T^5$, согласно (5), а параметры Γ_{m1}, $\Gamma_{m3} \sim T^7$ и относительно малы (Γ_{m1}, $\Gamma_{m3} \ll \Gamma_{m2}$, $|\Gamma_{m4}|$).

Легко видеть, что в случае, когда заполнением возбужденного состояния ЛК можно пренебречь, из (8) следует выражение (6); вид функции Грина $\langle\langle a_\varkappa, a^+_\varkappa \rangle\rangle_{\omega+i0}$ определяется Фурье-образом:

$$\mathrm{Sp}\,(a_\varkappa \rho(t)) \sim \exp[-(\Gamma_{m1} + 2\Gamma_{m2})\,t].$$

Другие характеристики оптических спектров, доступные непосредственному экспериментальному измерению (наряду с шириной линии на основной частоте), определяются комбинациями параметров Γ_{mi} $(i=1...4)$.

Рассмотрим вначале соотношение ширин линий поглощения на основной частоте и обертонах высокочастотных ЛК, исследовавшиеся экспериментально в [14] для примесных центров с симметрией T_d (H^- — ионы в CaF_2). Полуширина линии дипольного поглощения на удвоенной частоте соответствующих ЛК определяется, как известно [13, 14], затуханием во времени квадратичного по координатам ЛК дипольного момента, т. е. затуханием величины $\mathrm{Sp}(a_\varkappa a_{\varkappa'}\rho(t))$, $(\varkappa\neq\varkappa')$, или, что то же, мнимой частью поляризационного оператора функции Грина $\langle\langle a_\varkappa a_{\varkappa'}, a^+_\varkappa a_{\varkappa'}\rangle\rangle_{\omega+i0}$.

Из (8) следует, что в пренебрежении заполнением возбужденных уровней ЛК соответствующая полуширина линии, отвечающей переходу в T состояние, равна

$$\Gamma^{(2T)}=2\Gamma_{m1}+6\Gamma_{m2}+2\Gamma_{m3}. \tag{11}$$

Выражение (11) совпадает с результатом [17].

Из (8) для спектральных линий, отвечающих дипольно запрещенным переходам на удвоенной частоте[1] в невырожденное полносимметричное состояние A и на двукратно вырожденный E-терм, получаем соответственно

$$\Gamma^{(2A)}=4(\Gamma_{m1}+\Gamma_{m2}+\Gamma_{m4}),\qquad \Gamma^{(2E)}=4(\Gamma_{m1}+\Gamma_{m2})-2\Gamma_{m4}. \tag{12}$$

Приведем также выражения для полуширин линий, отвечающих дипольно-разрешенным переходам на утроенной частоте ЛК. Они определяются затуханием величин $\mathrm{Sp}(a^3_\varkappa\rho)$ и $\mathrm{Sp}[a_\varkappa(a^2_{\varkappa'}+a^2_{\varkappa''})\rho]$, $(\varkappa'\neq\varkappa''\neq\varkappa)$.

В результате обусловленного внутренним ангармонизмом расщепления уровней ЛК в спектре имеются два дипольных перехода на частоте $\approx 3\omega_0$. Волновые функции соответствующих возбужденных уровней

$$\psi_{\varkappa i}=\frac{1}{\sqrt{6}}\cos\theta_i\,(a^+_\varkappa)^3\,|\,0\rangle+{}^1/_2\sin\theta_i a^+_\varkappa\,[(a^+_{\varkappa'})^2+(a^+_{\varkappa''})^2]\,|\,0\rangle,\qquad i=1,\ 2;\qquad \varkappa'\neq\varkappa''\neq\varkappa;$$

$$\varkappa=x,\ y,\ z;\qquad \theta_2=\theta_1+\frac{\pi}{2}, \tag{13}$$

где $|\,0\rangle$ — основное состояние. Параметры θ_i определяются из решения секулярного уравнения, возникающего при диагонализации гамильтониана изолированного вырожденного ЛК с внутренним ангармонизмом, и для конкретных значений параметров определялись в [14]. Для переходов в состояния $i=1$, 2 полуширины равны

$$\Gamma^{(3;\,i)}_m=3\cos^2\theta_i\,(3\Gamma_{m1}+2\Gamma_{m2})+2\sqrt{6}\sin 2\theta_i\Gamma_{m4}+\sin^2\theta_i\,(5\Gamma_{m1}+10\Gamma_{m2}+4\Gamma_{m3}+2\Gamma_{m4}). \tag{14}$$

Экспериментально измеренное [14] соотношение ширин линий поглощения ЛК в системе $CaF_2:H^-$ на частотах $\approx 2\omega_0$ и $\approx\omega_0$ при $T=100$ K составляет ≈ 2.5. Если считать, что основной вклад в ширины $\Gamma^{(1)}$ и $\Gamma^{(2T)}$ дипольноактивных переходов на основной и удвоенной частотах вносит модуляционный механизм, причем взаимодействие зависит лишь от смещений атомов и выполняется условие (3), так что Γ_{m1}, $|\Gamma_{m3}|\ll\ll\Gamma_{m2}\sim T^5$, из (6) и (11) сразу следует соотношение $\Gamma^{(2T)}/\Gamma^{(1)}=3$. Согласие с экспериментальными данными можно считать вполне удовлетворительным, особенно если учесть, что на эксперименте значение ширины линии поглощения на основной частоте завышено относительно сильнее вследствие приборного разрешения. Оно же не позволяет произвести со-

[1] Предполагается, что обусловленное ангармонизмом ЛК расщепление уровней в мультиплете значительно превышает ширины спектральных линий, так что линии, соответствующие отдельным переходам, хорошо разрешены. При этом выражения (7), (8) справедливы до тех пор, пока расстояния между уровнями в мультиплете меньше $\min(T,\ \omega_D)$.

поставление с экспериментом при более низких температурах. Еще более затруднено такое сопоставление для линии на частоте $\approx 3\omega_0$, поскольку в этом случае расстояние между уровнями в мультиплете [14] сравнимо с характерной частотой фононов, и поэтому существенный вклад в ширины линий вносят распадные процессы.

Для разделения вкладов различных механизмов в уширение спектральных линий и определения параметров модуляционного уширения ЛК и электронных центров с вырожденными уровнями удобно использовать нелинейно-оптические резонансные эффекты: насыщение поглощения [18] и самоиндуцированное изменение поляризации света (СИПС) в кристаллах [19]. Насыщение поглощения связано с выравниванием заселенностей уровней, между которыми происходят оптические переходы, а СИПС — с влиянием на распространение поляризованного излучения индуцированной им анизотропии (в частности, возникающего различного заполнения вырожденных по энергии примесных состояний). Для ЛК в системе $CaF_2 : H^-$ насыщение поглощения наблюдалось авторами [20].

Теория нелинейного резонансного отклика и СИПС для двухуровневой примеси, у которой основное состояние является полносимметричным, а возбужденное состояние преобразуется по векторному представлению кубической группы, была построена в [19] (эта теория относится и к высокочастотным ЛК с достаточно сильным ангармонизмом, когда переходы с уровня $n=1$ на уровни мультиплета с $n=2$ являются нерезонансными). При этом в [19] не учитывалось отличие Γ_{m4} от Γ_{m2}, обусловленное перенормировкой взаимодействия с фононами (5). Используя (8), можно показать, что качественные результаты и полученные в [19] общие выражения для нелинейных восприимчивостей, определяющих насыщение поглощения и СИПС, сохраняются. Однако входящие в эти выражения параметры a и Γ_φ перенормируются следующим образом

$$a = (\Gamma_{m1} - \Gamma_{m2} - \Gamma_{m3} - \Gamma_{m4})/(\Gamma + 3\Gamma_{m2}), \quad \Gamma_\varphi = (\Gamma + \Gamma_{m1} + 2\Gamma_{m2} - \Gamma_{m3} - \Gamma_{m4}). \quad (15)$$

(2Γ — обратное время жизни возбужденного состояния).

Параметр a определяет степень анизотропии нелинейной поляризуемости системы. При $a > 0$ по мере распространения линейно поляризованного резонансного излучения в примесном кристалле вдоль оси [001] вектор напряженности электрического поля $\mathbf{E}$ (плоскость поляризации) поворачивается к ближайшей к исходному направлению $\mathbf{E}$ оси [100] или [010], а при $a < 0$ — к ближайшей оси типа $\langle 110 \rangle$.

В случае, когда выполняются условия (3), при $T < \omega_D$, как уже отмечалось, $\Gamma_{m4} \approx -\Gamma_{m2}$ и $\Gamma_{m2} \gg \Gamma_{m1}$, $|\Gamma_{m2}|$ и, как видно из (15), $a \ll 1$. В результате поворот плоскости поляризации оказывается малым и быстро растет с повышением температуры ($\sim T^2$); при $T \sim \omega_D$ параметр a становится ~ 1 и выходит на насыщение.

Отметим, что знак и величина параметра Γ_{m4} могут быть измерены непосредственно в актуальном случае $\Gamma_{m2} \gg \Gamma$ по изменению степени поляризации эллиптически поляризованного излучения, распространяющегося вдоль оси [001]. Можно показать, что при $\Gamma_{m4} \neq 0$ изменение степени поляризации имеет место даже для излучения, частота которого попадает в центр линии примесного поглощения. При $\Gamma_{m4} > 0$ разность фаз компонент E_y, E_x (оси x, y направлены вдоль (100), (010)) приближается к ближайшему значению πn, $n=0$, ± 1. . . (такое значение разности фаз соответствует линейной поляризации излучения); при $\Gamma_{m4} < 0$ эта разность фаз приближается к $1/2\ \pi\ (2n+1)$, т. е. ось эллипса поляризации приближается к оси типа $\langle 100 \rangle$.

Таким образом, эффект самоиндуцированного изменения поляризации резонансного излучения обладает высокой чувствительностью к параметрам модуляционного уширения и позволяет в принципе определить все эти параметры. С этой точки зрения представляло бы интерес экспериментальное исследование СИПС для вырожденных слабосвязанных центров.

Авторы благодарны $\boxed{\text{М. А. Кривоглазу}}$ за обсуждение результатов, а также В. И. Перелю за указание на то, что число параметров, определяющих поперечную релаксацию двухуровневой примеси с трехкратно вырожденным возбужденным уровнем, равно 4.

Список литературы

[1] Кривоглаз М. А., Пекар С. И. // Тр. ИФ АН УССР. 1953. № 4. С. 37—70.
[2] Shaefer G. // J. Phys. Chem. Sol. 1960. V. 12. N 3—4. P. 233—244.
[3] Silsbee R. H. // Phys. Rev. 1962. V. 128. N 4. P. 1726—1733.
[4] McCumber D. E. // Phys. Rev. 1964. V. 133. N 1A. P. 163—165.
[5] Кривоглаз М. А. // ФТТ. 1964. Т. 6. № 6. С. 1707—1717; Автореф. канд. дис. Киев, 1954.
[6] Кривоглаз М. А. // ЖЭТФ. 1965. Т. 48. № 1. С. 310—326.
[7] Кривоглаз М. А., Левенсон Г. Ф. // ФТТ. 1967. Т. 9. № 9. С. 2693—2703.
[8] Иванов М. А., Кривоглаз М. А., Квашнина Е. Б. // ФТТ. 1965. Т. 7. № 7. С. 2047—2057.
[9] Ребане К. К. Элементарная теория колебательной структуры спектров примесных центров кристаллов. М., 1968. 232 с.
[10] Иванов М. А., Кривоглаз М. А., Мирлин Д. Н., Решина И. И. // ФТТ. 1966. Т. 8. № 1. С. 192—200.
[11] Blume M., Orbach R. // Phys. Rev. 1962. V. 127. N 5. P. 1587—1592.
[12] Dykman M. I. // Phys. St. Sol. (b). 1978. V. 88. N 1. P. 463—475.
[13] Barker A. S., Jr., Sievers A. J. // Rev. Mod. Phys. 1975. V. 47. P. S1—S179.
[14] Elliot R. J., Hayes W., Jones G. D., Macdomald H. F., Sennett C. T. // Proc. Roy. Soc. 1965. V. A289. N 1. P. 1—33.
[15] Дыкман М. И., Кривоглаз М. А. // ЖЭТФ. 1973. Т. 64. № 3. С. 993—1006; Dykman M. I., Krivoglaz M. A. // Sov. Phys. Rev. / Ed. I. M. Khalatnikov. N. Y.: Harwood Acad., 1984. V. 5. P. 265—441.
[16] Дыкман М. И., Иванов М. А., Тарасов Г. Г., Тхорик А. Ю. // ФТТ. 1979. Т. 21. № 5. С. 1489—1496.
[17] Krivoglaz M. A., Pinkevich I. P. // Cryst. Latt. Defects. 1969. V 1. P. 117—119.
[18] Karplus R., Schwinger J. // Phys. Rev. 1948. V. 73. P. 1020.
[19] Дыкман М. И., Тарасов Г. Г. // ЖЭТФ. 1977. Т. 72. № 6. С. 2246—2255; ФТТ. 1979. Т. 21. № 2. С. 371—376.
[20] Lee L. C., Faust W. L. // Phys. Rev. Lett. 1971. V. 26. N 11. P. 648—652.

Институт металлофизики АН УССР
Киев

Поступило в Редакцию
27 июля 1989 г.