

Модель элементарных осцилляторов для центров окраски с вырожденными уровнями

© С.А. Зилов^{*,**}, Е.Ф. Мартынович^{*,**}

* Иркутский филиал Института лазерной физики Сибирского отделения Российской академии наук, 664033 Иркутск, Россия

** Научно-исследовательский институт прикладной физики Иркутского государственного университета, 664003 Иркутск, Россия

E-mail: filial@ilph.irk.ru

Исследована проблема описания с помощью классических электродипольных осцилляторов квантовых переходов между невырожденными и вырожденными по проекции момента импульса уровнями центров окраски в кристаллах.

Показано, что при поглощении возбуждающего излучения с эллиптической поляризацией рассматриваемая система переходит в определенное состояние и переход описывается в общем случае эллиптическим осциллятором. Электродипольный переход с испусканием фотона описывается случайным вектором, т.е. излучателем может быть произвольный эллиптический осциллятор, лежащий в соответствующей плоскости. Вместе с тем для ансамбля из n одинаково ориентированных центров с данным переходом интенсивность люминесценции описывается набором из $n/2$ правых и $n/2$ левых ротаторов. Полученные результаты имеют значение, в частности, для решения проблем, связанных с квантовой информацией.

PACS: 78.20.-e, 71.55.Ht

1. Введение

Моделирование электродипольных переходов в центрах окраски элементарными поглощающими и излучающими осцилляторами (линейными осцилляторами или ротаторами) является основой методов исследования поляризованной люминесценции кристаллов. Данное направление исследований было развито в работах Теофилова. В [1] показано, что переходам между невырожденными уровнями центра окраски могут быть сопоставлены классические осцилляторы или ротаторы. Однако если уровни вырождены, то такое сопоставление становится затруднительным. Недостаточность классической осцилляторной модели наглядно проявляется в случае, когда возбуждающий свет не является линейно поляризованным (т.е. имеет произвольную эллиптическую поляризацию).

2. Квантово-механическое описание модели линейных осцилляторов и ротаторов

В данном разделе используется полуклассическое приближение, т.е. электромагнитное поле рассматривается как плоская бегущая монохроматическая волна, распространяющаяся в направлении \mathbf{k} . Состояние поляризации описывается вектором Джонса (т.е. комплексным вектором, нормированным на единицу), а центр окраски — как квантовая система.

Гамильтониан взаимодействия центра с возбуждающим светом в дипольном приближении $\hat{H}' = \hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{E}$, где $\hat{\mathbf{d}}$ — оператор дипольного момента (в координатном представлении — er), \mathbf{E} — напряженность электрического поля. Матричный элемент H' перехода

из основного состояния ψ_1 в возбужденное состояние ψ_2 можно записать как скалярное произведение $\langle \psi_2 | (\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}) | \psi_1 \rangle = (\langle \psi_2 | \mathbf{d} | \psi_1 \rangle \cdot \mathbf{e}) E_0$, где \mathbf{e} — единичный вектор поляризации (вектор Джонса), E_0 — амплитуда электрического вектора возбуждающего света [2].

Правила отбора для электродипольных переходов, как известно, допускают переходы между состояниями квантовой системы при выполнении условия $\Delta J = \pm 1$; $\Delta J_z = 0, \pm 1$. Поскольку центры находятся в кристаллическом поле и имеет место штарковское расщепление уровней по модулю проекции момента импульса, электродипольные переходы возможны между уровнями с одинаковой проекцией момента импульса на направление электростатического поля, ориентированного вдоль оси z , т.е. между уровнями с $\Delta J_z = 0$ или между уровнями с $\Delta J_z = \pm 1$.

Для переходов между невырожденными уровнями с $\Delta J_z = 0, +1$ и -1 матричный элемент дипольного момента перехода можно привести к форме [1]:

$$\langle \psi_2(J_z) | \mathbf{d} | \psi_1(J_z) \rangle = \begin{pmatrix} d_x \\ d_y \\ d_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix} A,$$

$$\langle \psi_2(J_z \pm 1) | \mathbf{d} | \psi_1(J_z) \rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ \mp i \\ 0 \end{pmatrix} A, \quad (1)$$

где нормированные на единицу три вектора $\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$ и

$\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ \mp i \\ 0 \end{pmatrix}$ представляют „линейный осциллятор“ π , правый и левый „ротаторы“ σ^+ и σ^- соответственно; A — скалярная часть дипольного момента.

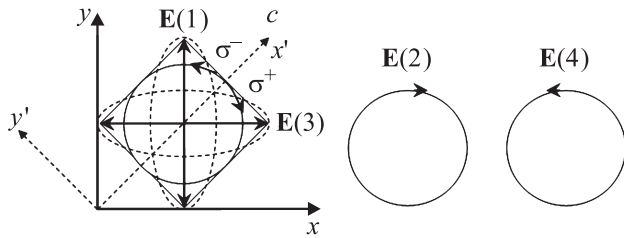


Рис. 1. Модель одноосного кристалла (оптическая ось c) с центрами окраски, поглощающий переход в которых происходит из основного синглетного состояния ($J_z = 0$) в дважды вырожденное состояние ($J_z = \pm 1$). Волновой вектор возбуждающего света \mathbf{k} направлен по оси z , начальная поляризация возбуждающего света линейная $\mathbf{E}(1)$. $\mathbf{E}(2)$ – $\mathbf{E}(4)$ — возможные состояния поляризации возбуждающего света при его распространении в кристалле.

Таким образом, при переходах между невырожденными состояниями осцилляторная модель строго соответствует квантово-механическому подходу, а линейный осциллятор или ротатор являются векторной частью электродипольного момента перехода между состояниями центра. Данным вектором и определяется характер взаимодействия центра с поляризованным возбуждающим светом, а также интенсивность и состояние поляризации люминесценции центра.

Сложнее обстоит дело с переходом $\Delta J_z = \pm 1$ между невырожденным и вырожденным уровнями. Так, если в центре происходит переход с невырожденного (основного) состояния $\psi_1(0)$ на дважды вырожденное по проекции момента импульса состояние $\psi_2 = a_1\psi_2(+1) + a_2\psi_2(-1)$ (где $a_1a_1^* + a_2a_2^* = 1$), которое является любой суперпозицией состояний с определенной проекцией момента импульса, то дипольный момент перехода

$$\langle \psi_2 | \mathbf{d} | \psi_1 \rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} a_1 + a_2 \\ i(a_2 - a_1) \\ 0 \end{pmatrix} A = \mathbf{d}_{12}A,$$

где

$$\mathbf{d}_{12} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} a_1 + a_2 \\ i(a_2 - a_1) \\ 0 \end{pmatrix}$$

— произвольный единичный комплексный вектор, лежащий в плоскости (x, y) . Таким образом, в отличие от перехода между невырожденными уровнями, где дипольный момент перехода — определенный вектор, в данном случае дипольный момент перехода не определен.

Рассмотрим поглощение фотона при переходе из состояния 1 ($J_z = 0$) в состояние 2 ($J_z = \pm 1$) на примере простой модели, показанной на рис. 1. Линейно поляризованный возбуждающий свет падает на кристалл с оптической осью c , направленной под углом 45° к вертикали. Кристалл содержит центры окраски с поглощающим переходом $\Delta J_z = \pm 1$, т.е. нормаль к плоскости правого

и левого ротаторов и волновой вектор возбуждающего света \mathbf{k} направлены по оси z . Возбуждающий свет в зависимости от расстояния, пройденного в кристалле, последовательно меняет состояние своей поляризации от линейной $\mathbf{E}(1)$ до правоциркулярной $\mathbf{E}(2)$, далее к линейной $\mathbf{E}(3)$, затем к левоциркулярной $\mathbf{E}(4)$ и далее — к исходной.

Из симметрии задачи *a priori* очевидно, что пространственной модуляции поглощаемой мощности по оси z наблюдаться не должно, т.е. вероятность поглощения света центром окраски в данном случае не зависит от состояния поляризации света.

Рассчитаем сечение поглощения центра. Если допустить, что переход возможен в любое из эквивалентных состояний $\psi_2 = a_1\psi_2(+1) + a_2\psi_2(-1)$ (т.е. сделать усреднение по всем возможным возбужденным состояниям), то сечение поглощения при любом состоянии поляризации возбуждающего света в данной модели будет $\langle \sigma \rangle \sim 1/2(AA^*)$. Данный результат противоречит принципу спектроскопической стабильности Гейзенберга [1]. Действительно, в точках на оси z , где возбуждающий свет имеет циркулярную поляризацию, можно ввести магнитное поле по оси z , не нарушающее симметрию задачи. Тогда в этих точках переход будет происходить на подуровень $\psi_2(+1)$ для правоциркулярного света и $\psi_2(-1)$ для левоциркулярного света, а сечение поглощения будет $\sigma \sim (AA^*)$.

Поэтому следует предположить, что при поглощении света центром окраски происходит переход в определенное возбужденное состояние ψ_2' , дипольный момент перехода на которое $\langle \psi_2' | \mathbf{d} | \psi_1 \rangle$ параллелен проекции комплексного вектора поляризации возбуждающего света \mathbf{e} на плоскость (x, y) . Тогда для рассматриваемой модели сечение поглощения для любого состояния поляризации возбуждающего света будет $\sigma \sim (AA^*)$.

Рассмотрим общий случай, когда ось z (нормаль к ротаторам) и комплексный единичный вектор поляризации \mathbf{e} ориентированы совершенно произвольно. Если перейти от базиса $\psi_2(+1); \psi_2(-1)$ (для упрощения обозначений $\psi(+); \psi(-)$ соответственно) к эквивалентному базису $\psi(\rightarrow) = \frac{1}{\sqrt{2}}(\psi(+) + \psi(-)); \psi(\uparrow) = \frac{i}{\sqrt{2}}(\psi(+) - \psi(-))$, то матричный элемент дипольного момента перехода в возбужденное состояние $|\psi_2\rangle = b_1|\psi(\rightarrow)\rangle + b_2|\psi(\uparrow)\rangle$ (где $|b_1|^2 + |b_2|^2 = 1$; поскольку b_1, b_2 определены с точностью до произвольного фазового множителя $\exp(i\theta)$, без потери общности можно полагать b_1 вещественным, а b_2 — комплексным) будет иметь вид:

$$\begin{aligned} \langle \psi_2 | \mathbf{d} | \psi_1(0) \rangle &= b_1 \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} + b_2 \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} b_1 \\ b_2 \\ 0 \end{pmatrix} A = \begin{pmatrix} b_1 \\ b_2^{(1)} + ib_2^{(2)} \\ 0 \end{pmatrix} A, \quad (2) \end{aligned}$$

где

$$\begin{pmatrix} b_1 \\ b_2^{(1)} + ib_2^{(2)} \\ 0 \end{pmatrix} = \mathbf{d}_{12}$$

— единичный комплексный вектор, $b_1, b_2^{(1)}, b_2^{(2)}$ — вещественные числа. Вследствие условия нормировки $b_1^2 + (b_2^{(1)})^2 + (b_2^{(2)})^2 = 1$ конец вектора \mathbf{d}_{12} всегда лежит на трехмерной сфере Блоха единичного радиуса (рис. 2). В системе координат x, y_1, iy_2 (рис. 2) дипольный

момент $\mathbf{d}_{12} = \begin{pmatrix} b_1 \\ b_2^{(1)} \\ b_2^{(2)} \end{pmatrix}$ — единичный трехмерный вектор. Проекция комплексного вектора поляризации света

$\mathbf{e} = \begin{pmatrix} e_x \\ e_y \\ e_z \end{pmatrix}$ на плоскость (x, y) , перпендикулярную оси z ,

в системе координат x, y_1, iy_2 можно представить в виде

$$\mathbf{e}' = \begin{pmatrix} e_x \\ e_y^{(1)} + ie_y^{(2)} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} e_x \\ e_{y_1}^{(1)} \\ e_{y_2}^{(2)} \end{pmatrix}, \text{ т.е. в виде трехмерного}$$

вектора с вещественными компонентами и $|\mathbf{e}'| \leq 1$.

Координаты x, y_1 и x', y_1' на рис. 2 обозначают вещественные компоненты векторов \mathbf{d}, \mathbf{e} и соответствуют вещественным x, y - и x', y' -компонентам векторов на рис. 1, а координата y_2 обозначает мнимую часть y, y' -компоненты векторов \mathbf{d}, \mathbf{e} . Например, в точке z_0 на оси z (рис. 1) вектор \mathbf{e} в координатах x', y' можно записать как $\mathbf{e} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ e^{i\varphi} \end{pmatrix}$, а в координатах x', y_1', iy_2 —

$$\text{как } \mathbf{e} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ \cos \varphi \\ \sin \varphi \end{pmatrix}, \text{ где набег фазы } \varphi = \frac{2\pi z_0}{\Lambda} \text{ (здесь}$$

$\Lambda = \frac{\lambda}{\Delta n}$; λ — длина волны возбуждающего света, $\Delta n = |n_0 - n_e|$ — величина двулучепреломления кристалла).

На рис. 2, *a* (в верхней полусфере слева) показан случай модели, представленной на рис. 1; волновой вектор \mathbf{k} возбуждающего света совпадает с осью z (нормаль к ротаторам). Точки 1, 3 соответствуют линейной поляризации возбуждающего света; окружность, проходящая через эти точки, показывает изменение направления вектора поляризации возбуждающего света \mathbf{e} (конец вектора поляризации лежит на окружности) в зависимости от z . Вектор \mathbf{e} в данной модели всегда полностью проецируется на плоскость (x, y) (т.е. $\mathbf{e}' = \mathbf{e}$, $|\mathbf{e}'| = 1$); вектор дипольного момента перехода \mathbf{d}_{12} направлен по \mathbf{e} .

На рис. 2, *b* (в нижней полусфере слева) показан случай, когда волновой вектор \mathbf{k} возбуждающего света не совпадает с осью z (нормаль к ротаторам); при поглощении вектор дипольного момента перехода \mathbf{d}_{12} направлен по проекции вектора поляризации возбуждающего света на плоскость (x, y) , т.е. по вектору \mathbf{e}' ($|\mathbf{e}'| \leq 1$).

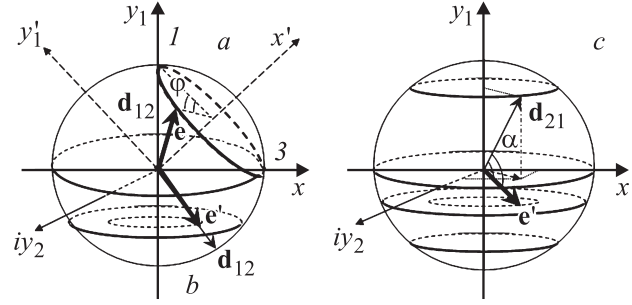


Рис. 2. Направления векторов дипольного момента перехода $\mathbf{d}_{12}, \mathbf{d}_{21}$ на сфере Блоха и проекций на плоскость (x, y) (на пространство x, y_1, iy_2) вектора поляризации света \mathbf{e} при поглощении (*a, b*) и люминесценции (*c*) в центре окраски с переходом $\Delta J_z = \pm 1$.

На сфере справа (рис. 2, *c*) показаны направления дипольного момента перехода \mathbf{d}_{21} и \mathbf{e}' — проекции вектора поляризации на плоскость (x, y) испущенного фотона при переходе $2 \Rightarrow 1$ в центре окраски. Таким образом, если в некотором направлении наблюдения R поставлен анализатор, пропускающий свет с поляризацией e , то вероятность регистрации испущенного фотона будет пропорциональна $(\mathbf{d}_{21} \cdot \mathbf{e}')^2 = |\mathbf{e}'|^2 \cos^2 \alpha$.

Сечение поглощения при электродипольном переходе из синглетного состояния ($J_z = 0$) в дважды вырожденное состояние ($J_z = \pm 1$) пропорционально квадрату скалярного произведения $|\langle \psi_2' | \mathbf{d} | \psi_1 \rangle \cdot \mathbf{e} \rangle|^2$, и из рис. 2, *a, b* нетрудно видеть, что выполняются следующие соотношения:

$$\begin{aligned} |\langle \psi_2' | \mathbf{d} | \psi_1 \rangle \cdot \mathbf{e} \rangle|^2 &= (|e_x|^2 + |e_y|^2) |A|^2 \\ &= (1 - |\mathbf{n} \cdot \mathbf{e}|^2) |A|^2, \end{aligned} \quad (3)$$

где \mathbf{n} — единичный вектор нормали к плоскости (x, y) , и

$$\begin{aligned} |\langle \psi_2' | \mathbf{d} | \psi_1 \rangle \cdot \mathbf{e} \rangle|^2 &= |\langle \psi_2(+) | \mathbf{d} | \psi_1(0) \rangle \cdot \mathbf{e} \rangle|^2 \\ &+ |\langle \psi_2(-) | \mathbf{d} | \psi_1(0) \rangle \cdot \mathbf{e} \rangle|^2. \end{aligned} \quad (4)$$

Смысл соотношения (4) в том, что при вычислении сечения поглощения центра с переходом с невырожденного на вырожденный уровень центр можно моделировать правым и левым ротатором. Аналогичное утверждение будет справедливым и для пары взаимно перпендикулярных линейных осцилляторов, лежащих в плоскости (x, y) , или для пары взаимно ортогональных эллиптических осцилляторов общего вида (в плоскости (x, y)). Выбор базиса в данном случае определяется удобством вычислений.

Таким образом, при поглощении в модели ротатора мы заменяем одну квантовую систему (с дважды вырожденным уровнем) на две с невырожденными уровнями (правым и левым ротаторами σ^+ и σ^-).

После акта поглощения, т.е. перехода системы в определенное возбужденное состояние ψ'_2 , происходит декогеренция возбужденного состояния. Таким образом, следует полагать, что все возбужденные состояния системы $\psi_2 = a_1\psi(+)+a_2\psi(-)$ становятся за время, меньшее времени жизни, равновероятными и не связанными с состоянием ψ'_2 , в которое первоначально перешла система при поглощении фотона. Из рис. 2, *c* видно, что скалярное произведение произвольного вектора \mathbf{d}_{21} и вектора поляризации испущенного фотона \mathbf{e} равно $|\langle\psi_1|\mathbf{d}|\psi_2\rangle\cdot\mathbf{e}|^2=|\mathbf{e}'|^2\cos^2\alpha$. При усреднении по всем возможным возбужденным состояниям ψ_2 , т.е. при излучении ансамблем одинаково ориентированных центров окраски света с поляризацией \mathbf{e} (в произвольном направлении наблюдения), выполняются соотношения

$$\begin{aligned} |\langle\psi_2|\mathbf{d}|\psi_1\rangle\cdot\mathbf{e}|^2 &= \frac{|e_x|^2+|e_y|^2}{2}|A|^2 \\ &= \frac{1-|\mathbf{n}\cdot\mathbf{e}|^2}{2}|A|^2, \end{aligned} \quad (5)$$

$$\begin{aligned} \langle|\langle\psi_2|\mathbf{d}|\psi_1\rangle\cdot\mathbf{e}|^2\rangle &= \frac{1}{2}|\langle\psi_2(+)|\mathbf{d}|\psi_1(0)\rangle\cdot\mathbf{e}|^2 \\ &+ \frac{1}{2}|\langle\psi_2(-)|\mathbf{d}|\psi_1(0)\rangle\cdot\mathbf{e}|^2, \end{aligned} \quad (6)$$

где в левых частях выражений (5), (6) берется среднее по ансамблю одинаково ориентированных центров (или по числу актов излучения).

Соотношение (6) показывает, что хотя отдельный центр окраски с излучающим переходом между вырожденным и невырожденным уровнями не описывается в рамках осцилляторной модели, однако ансамбль одинаково ориентированных центров n можно моделировать двумя ансамблями из $n/2$ правых и $n/2$ левых ротаторов (где n — полное число центров в ансамбле).

3. Заключение

Таким образом, при поглощении возбуждающего света с эллиптической поляризацией \mathbf{e} рассматриваемая система переходит во вполне определенное возбужденное состояние ψ'_2 из всех возможных $\psi_2 = a_1\psi(+)+a_2\psi(-)$, такое, что дипольный момент перехода системы направлен по проекции вектора \mathbf{e} на плоскость (x, y) , т.е. переход описывается в общем случае эллиптическим осциллятором \mathbf{d}_{12} (рис. 2, *b*). Сечение поглощения, как следует из (4), равно сумме сечений поглощений правого и левого ротаторов, лежащих в плоскости (x, y) .

В возбужденном состоянии происходит декогеренция состояния ψ'_2 (вследствие электрон-фононного взаимодействия и других факторов) и все состояния $\psi_2 = a_1\psi(+)+a_2\psi(-)$ становятся равновероятными. Поэтому электродипольный переход на основное состояние с испусканием фотона описывается случайным

(произвольным) вектором \mathbf{d}_{21} (рис. 2, *c*), т.е. излучателем может являться любой эллиптический осциллятор, лежащий в плоскости (x, y) . Однако интенсивность люминесценции (в некотором направлении R в состоянии поляризации \mathbf{e}) ансамбля n одинаково ориентированных центров окраски с данным переходом, согласно (6), описывается набором из $n/2$ правых и $n/2$ левых ротаторов.

Выбор модели правых и левых ротаторов (а не, допустим, двух взаимно перпендикулярных линейных осцилляторов, лежащих в плоскости (x, y)), что, согласно (3) и (5), возможно) обусловлен несколькими причинами. Прежде всего это чисто техническая причина: конфигурация экспериментов по исследованию аксиально-периодических зависимостей интенсивности люминесценции центров окраски в кубических кристаллах [3,4] обуславливают удобство применения для расчетов данной модели. Другая, физическая, причина заключается в том, что процесс декогеренции возбужденного состояния в данной системе, вероятно, будет происходить в две стадии.

1) Быстрая стадия поперечной декогеренции (т.е. матрица плотности в базисе $\psi(+); \psi(-)$ приводится к диагональному виду) и переход к модели населенности магнитных подуровней.

2) Более медленная стадия диагональной декогеренции, когда выравниваются населенности магнитных подуровней $\psi(+); \psi(-)$ и система описывается предлагаемой моделью.

Физически это должно проявляться в остаточной степени линейной поляризации люминесценции в направлении оси z в точках 1, 3 (рис. 1) (быстрая стадия) и остаточной степени циркулярности люминесценции в точках 2, 4 (более медленная стадия). Таким образом, описание процесса декогеренции удобнее проводить в базисе $\psi(+); \psi(-)$.

Еще одной физической причиной использования модели ротаторов является то, что в данном базисе естественно описывается двухфотонное и двухступенчатое поглощение с изменением проекции момента импульса $\Delta J_z = \pm 2$, или $\Delta J_z = 0$.

В заключение отметим, что рассматриваемая в работе модель необратима во времени в отличие от поглощения и испускания фотона при переходах между невырожденными уровнями. Также отметим, что необходимость более детального исследования элементарных актов взаимодействия квантовых систем со светом обусловлена сегодняшней актуальностью проблем, связанных с квантовой информацией. Так, в настоящей работе показано, какая часть квантового бита (кубита) — состояния фотона с эллиптической поляризацией $c_1|+\rangle+c_2|-\rangle$ (где $|c_1|^2+|c_2|^2=1$, а $|+\rangle; |-\rangle$ — состояния фотона с проекцией спина на волновой вектор $\mathbf{k}+1$ и -1 соответственно) — „транслируется“ на электронную подсистему центра окраски.

Список литературы

- [1] П.П. Феофилов. Поляризованная люминесценция атомов, молекул и кристаллов. Гос. изд-во физ.-мат. лит., М. (1959). 288 с.
- [2] Р. Пантел, Г. Путхов. Основы квантовой электроники. Пер. с англ. Мир, М. (1972). 384 с.
- [3] Е.Ф. Мартынович, В.П. Дресвянский, С.А. Зилов, Н.Т. Максимова, А.А. Старченко. Опт. и спектр. **96**, 933 (2004).
- [4] Е.Ф. Мартынович, В.П. Дресвянский, С.А. Зилов, Н.А. Бронникова, Н.Т. Максимова, А.А. Старченко. Опт. и спектр. **101**, 280 (2006).