

# Резонансное двухфотонное поглощение в антиферромагнетике $\text{Cr}_2\text{O}_3$

© С.И. Шаблаев, И.П. Аршев, Р.В. Писарев

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

(Поступила в Редакцию 28 февраля 2000 г.)

Исследованы спектры двухфотонного поглощения (ДФП) модельного антиферромагнетика  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  для двух поляризационных конфигураций в области энергий от 2.5 до 3.55 eV. В области от 2.7 до 3.1 eV, где расположен однофотонный  $d-d$ -переход  ${}^4A_2(F) \rightarrow {}^4T_1(F)$  иона  $\text{Cr}^{3+}$ , наблюдаются несколько сильных пиков ДФП с максимальным коэффициентом  $\beta \sim 0.08 \text{ cm/MW}$ . Анализ результатов позволил сделать вывод о том, что общий вид спектра ДФП в этой области в основном определяется резонансом на промежуточных уровнях  ${}^2E(G)$ ,  ${}^2T_1(G)$ . В области энергий выше 3.44 eV наблюдается резкое возрастание коэффициента ДФП до значений  $\beta \sim 0.1 \text{ cm/MW}$ , которое связано с переходами между валентной зоной и зоной проводимости.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 00-02-16946) и программы "Оптика лазеров".

Нелинейно-оптический метод двухфотонной спектроскопии широко используется при исследовании полупроводников (см., например, [1–3]), а также сегнетоэлектрических [4,5] и магнитоупорядоченных диэлектриков [6,7]. В этом методе изучается спектральная зависимость дополнительного поглощения зондирующего света с интенсивностью  $I_1$ , возникающего в момент прохождения через кристалл мощного лазерного импульса с интенсивностью  $I_2$ . При этом оба импульса по отдельности практически не поглощаются в кристалле, так как энергия зондирующего света  $\hbar\omega_1 < E_g$  и энергия "накачки"  $\hbar\omega_2 < (1/2)E_g$ . Эти условия дают возможность исследовать двухфотонное поглощение в области энергий порядка  $\hbar\omega_2$ . Более сложные правила отбора для двухфотонного поглощения [8,9] часто позволяют получать новую информацию об электронных состояниях кристаллов в сравнении со спектрами линейного поглощения. При этом точно определяется величина межзонного зазора  $E_g$ , характер оптических переходов, структура краевых зон (валентной и проводимости).

Оксид хрома  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  кристаллизуется в centrosymmetric тригональной структуре типа корунда, описываемой пространственной группой  $D_{3d}^6(R\bar{3}c)$ . В элементарной ячейке имеется четыре иона хрома  $\text{Cr}^{3+}$ , с незаполненной электронной оболочкой  $3d^3$ . Ниже температуры Нееля спины ионов хрома упорядочены антиферромагнитным образом (+ – + –) вдоль тригональной оси  $c$ . На протяжении многих лет  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  являлся модельным объектом физики антиферромагнетизма. Оптические спектры однофотонного поглощения  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  были исследованы в [10]. В последние годы  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  вновь привлек к себе внимание и недавно впервые было сообщено о наблюдении в  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  спектров второй оптической гармоники [11] и магнитоэлектрических спектров [12]. Эти исследования позволили доказать существование новых видов оптических восприимчивостей, связанных с упорядочением спинов.

В настоящей работе сообщается о результатах исследования двухфотонных переходов в антиферромагнетике  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  для различных ориентаций единичных векто-

ров линейной поляризации световых лучей лазера  $\mathbf{e}_2$  и лампы-вспышки  $\mathbf{e}_1$  относительно тригональной оси  $c$  кристалла. Полученные нами спектры ДФП в области  $d-d$ -переходов сильно отличаются от однофотонного спектра [10] и имеют отчетливый резонансный характер. Предлагается теоретическая модель, объясняющая основные особенности двухфотонных спектров.

## 1. Техника эксперимента

Спектры ДФП изучались на плоскопараллельной полированной пластинке  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  толщиной  $38 \mu\text{m}$  с осью  $c$  в плоскости пластинки.

Импульс  $I_2$  неодимового лазера (Nd:YAG) ЛТИПЧ-6 длительностью  $12 \text{ ns}$  с энергией  $\hbar\omega_2 = 1.17 \text{ eV}$  и зондирующий световой импульс  $I_1$  ксеноновой лампы-вспышки ИСШ-100-3М длительностью  $1.5 \mu\text{s}$  и энергией  $1.34 < \hbar\omega_1 < 2.38 \text{ eV}$  одновременно проходили во встречных направлениях через образец [4]. При этом на зондирующем импульсе возникал модуляционный сигнал в виде "провала" в момент прохождения через кристалл лазерного импульса. Зондирующий свет  $I_1$  через монохроматор SPM-2 поступал на фотоумножитель ФЭУ-79. Импульс лазера  $I_2$  контролировался фотоэлементом ФЭК-09. Сигналы с умножителя и фотоэлемента через линии задержки поступали на входы трехканального стробоскопического детектора и после расширения до  $7 \text{ ns}$  направлялись в вычислительный блок. В течение каждого цикла (частота циклов  $12.5 \text{ Hz}$ ) детектор измерял амплитуды импульсов лазера  $I_2$  и лампы  $I_1$  (длительность строба  $4.5 \text{ ns}$ ). При этом амплитуда зондирующего импульса  $I_1$  стробировалась дважды. Непосредственно перед провалом определялась величина  $I_1$  и в момент провала — величина  $I_1 - \Delta I$ . В вычислительном блоке выделялся сигнал  $\Delta I$  и после этого вычислялся коэффициент  $\beta$  по формуле  $\beta = \Delta I / (I_1 I_2 d)$ , где  $d$  — длина области взаимодействия лучей в кристалле. Полученные значения  $\beta$  усреднялись по примерно  $10^4$  импульсам.

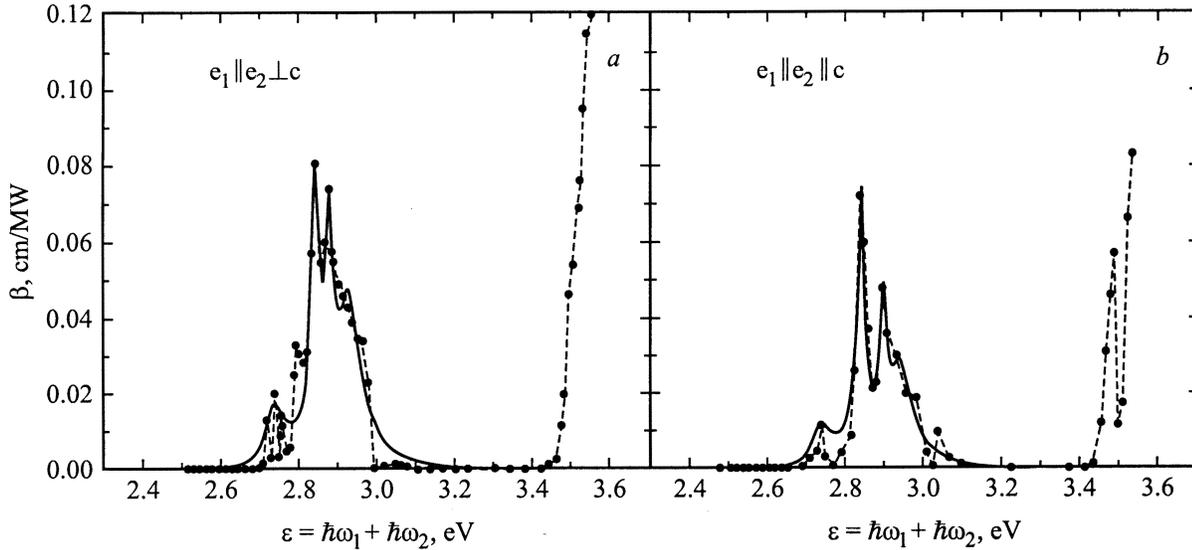


Рис. 1. Спектр двухфотонного поглощения монокристалла  $\text{Sr}_2\text{O}_3$  для перпендикулярной (а) и параллельной (б) поляризационных конфигураций.

## 2. Экспериментальные результаты

На рис. 1, а, б представлены спектры ДФП монокристалла  $\text{Sr}_2\text{O}_3$  (штриховые кривые). Для поляризационной конфигурации  $\mathbf{e}_1 \parallel \mathbf{e}_2 \perp \mathbf{c}$ , где  $\mathbf{e}_1$  и  $\mathbf{e}_2$  — орты линейной поляризации лампы и лазера соответственно, спектр состоит из ряда узких пиков разной интенсивности в области энергий 2.71–2.99 eV и области резкого возрастания поглощения около 3.466 eV (рис. 1, а). Три небольших узких пика имеются при энергиях 2.72, 2.74 и 2.75 eV, небольшая особенность — при энергии 2.79 eV. Два сильных узких пика наблюдаются при энергиях 2.845 и 2.88 eV. Кроме того, имеется пологое плечо в области энергий 2.9–2.99 eV и небольшая особенность около 3.05 eV. При повороте кристалла на  $90^\circ$  вокруг оси распространения лучей орты поляризации  $\mathbf{e}_1$  и  $\mathbf{e}_2$  ориентированы параллельно оси  $\mathbf{c}$  кристалла ( $\mathbf{e}_1 \parallel \mathbf{e}_2 \parallel \mathbf{c}$ ). В этом случае наблюдается спектр, показанный на рис. 1, б, который в общих чертах сходен с предыдущим спектром, но отличается в деталях. Вместо трех небольших пиков в начале спектра ДФП имеется только один средний пик при энергии 2.745 eV, отсутствует пик при энергии 2.795 eV и увеличивается интенсивность пика при энергии 3.05 eV. В области энергий от 3.1 до 3.41 eV двухфотонное поглощение практически равно нулю. Высокоэнергетический порог ДФП для параллельной ориентации начинается при более низкой энергии (3.445 eV), чем для перпендикулярной (3.466 eV). Узкий провал на этом пороге при энергии 3.51 eV связан, по нашему мнению, с генерацией второй оптической гармоники в кристалле, т.е. соответствует процессу, при котором импульс света на удвоенной лазерной частоте суммируется с импульсом зондирующего света той же энергии  $\hbar\omega_1 = 2.34$  eV. Это приводит к увеличению амплитуды

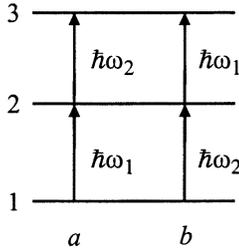
зондирующего света, прошедшего через монохроматор, а не к ее уменьшению, как в случае ДФП. В спектрах ДФП этот процесс соответствует провалу при энергии  $\varepsilon = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 = 2.34$  eV + 1.17 eV = 3.51 eV. Интенсивность спектра для параллельной ориентации существенно меньше, чем для перпендикулярной.

## 3. Теоретическая модель и обсуждение результатов

Для теоретического анализа спектров двухфотонного поглощения [1–3] обычно используется следующее выражение для коэффициента  $\beta$ , полученное во втором порядке теории возмущений в электродипольном приближении:

$$\beta = A \sum_{f,i} \left| \sum_m \left[ \frac{\langle f | \mathbf{e}_2 \mathbf{p} | m \rangle \langle m | \mathbf{e}_1 \mathbf{p} | i \rangle}{E_m - E_i - \hbar\omega_1} + \frac{\langle f | \mathbf{e}_1 \mathbf{p} | m \rangle \langle m | \mathbf{e}_2 \mathbf{p} | i \rangle}{E_m - E_i - \hbar\omega_2} \right] \right|^2, \quad (1)$$

где  $\sum_{f,i}$  — сумма по всем начальным ( $i$ ) и конечным ( $f$ ) состояниям,  $\sum_m$  — сумма по всем промежуточным состояниям, включая как начальные, так и конечные. Вероятность ДФП  $W^{(2)}$ , определяемая как число двухфотонных переходов в  $1 \text{ cm}^3$  кристалла за 1 секунду, связана с коэффициентом  $\beta$  для фотона в энергией  $\hbar\omega_1$  под воздействием фотона в энергией  $\hbar\omega_2$  соотношением  $W^{(2)} = \beta_{12} I_1 I_2 / \hbar\omega_1$ , где  $\beta$  имеет размерность  $[\text{cm}/\text{MW}]$ . Интенсивности световых пучков измеряются в  $[\text{MW}/\text{cm}^2]$ , а энергия фотона  $\hbar\omega_1$  в  $[\text{MJ}]$ . Общие зависимости коэффициента  $\beta$  от поляризации пучков для всех



**Рис. 2.** Схема оптических переходов для трехуровневой системы.

32 точечных групп даны в [8,9]. Слагаемые в квадратных скобках отвечают различной последовательности поглощения квантов зондирующего ( $\hbar\omega_1$ ) и лазерного ( $\hbar\omega_2$ ) пучков, как показано на примере простой трехуровневой схемы (рис. 2).

Вдали от резонансов все промежуточные уровни являются виртуальными и степень их заселенности не имеет никакого значения. Проблема анализа спектра модуляции зондирующего пучка в кристалле под воздействием лазерного значительно усложняется, если возникают промежуточные резонансы, так как при этом могут одновременно и независимо идти процессы двухступенчатого поглощения и резонансного двухфотонного поглощения. В работе [13] методом матрицы плотности были рассчитаны вероятности двухфотонных переходов для идеальной трехуровневой системы (рис. 2) в приближении времен поперечной  $\tau$  и продольной релаксации  $T$ . При выводе кинетических уравнений накладывалось условие  $\tau \ll T$ , т.е. релаксация недиагональных элементов матрицы плотности происходит до установления равновесия населенности энергетических уровней. Именно в этом случае имеется физическое различие между двухступенчатыми и резонансными двухфотонными процессами.

Для мощности  $Q(\omega_1)$ , поглощаемой трехуровневой системой на частоте  $\omega_1$  вблизи резонанса  $\hbar\omega_1 = E_2 - E_1$  под воздействием света на частоте  $\omega_2$ , получено следующее выражение [13]:

$$Q(\omega_1) = \hbar\omega_1 [W_{12}^{(1)}(\sigma_{11} - \sigma_{22}) + W_{13}^{(2)}(\sigma_{11} - \sigma_{33})] / N, \quad (2)$$

где  $\sigma_{ii}$  — населенность  $i$ -го уровня,  $W_{12}^{(1)}$  — вероятность однофотонного поглощения квантов  $\hbar\omega_1$  при переходах между уровнями 1 и 2,  $W_{13}^{(2)}$  — вероятность ДФП при переходах между уровнями 1 и 3. Для измеряемой в эксперименте величины  $\beta$  имеем

$$\begin{aligned} \beta &= \frac{1}{d} \frac{\Delta j_1}{j_1 j_2} = \frac{1}{d j_1 j_2 S N} [Q(\omega_1) - Q_0(\omega_1)] \\ &= \frac{\hbar\omega_1}{d j_1 j_2 S N} [W_{12}^{(1)}(\Delta\sigma_{11} - \Delta\sigma_{22}) + W_{13}^{(2)}(\sigma_{11} - \sigma_{33})], \quad (3) \end{aligned}$$

где  $\Delta\sigma_{11} = \sigma_{11} - \sigma_{11}^{(0)}$ ,  $\Delta\sigma_{22} = \sigma_{22} - \sigma_{22}^{(0)}$  — изменения населенностей начального и промежуточного уровней

под воздействием лазерного луча накачки с энергией  $\hbar\omega_2$ ,  $S$  — площадь сечения зондирующего пучка,  $N$  — концентрация трехуровневых систем.

Поскольку энергия кванта излучения  $\hbar\omega_2$  фиксирована, совпадение с разностью энергий ( $E_2 - E_1$ ) может быть только случайным. В нашем случае этого не происходит и резонансное поглощение на переходе  $E_1 \rightarrow E_2$  может осуществляться только для кванта зондирующего пучка с энергией  $\hbar\omega_1$  (вариант  $a$  на рис. 2). Плотность падающего на кристалл потока излучения зондирующего пучка  $I_1$  мала, поэтому  $\sigma_{11} \approx \sigma_{11}^{(0)} = 1$ , а  $\sigma_{22} \approx \sigma_{22}^{(0)} = 0$  в силу условия  $kT \ll E_2 - E_1$ . Таким образом, двухступенчатыми переходами, которые описываются первым слагаемым в круглых скобках, можно пренебречь. Полагая  $\sigma_{11} = 1$ ,  $\sigma_{33} = 0$ , получим для  $\beta$

$$\beta = \frac{\hbar\omega_1}{d j_1 j_2 S N} W_{13}^{(2)}, \quad (4)$$

где  $W_{13}^{(2)}$  — вероятность резонансного ДФП.

Попытки обобщений формулы (1) на резонансный случай в работах разных авторов обсуждались в [13]. Используя метод матрицы плотности, мы получили общее выражение для  $\beta$  в случае резонансного ДФП для многоуровневых систем в следующем виде:

$$\begin{aligned} \beta &= iB \sum_{f,n} \left\{ \frac{1}{E_f - E_n - \hbar(\omega_1 + \omega_2) + i\gamma_{f,n}} \right. \\ &\times \sum_l \left[ \frac{\langle l | \mathbf{e}_2 \mathbf{p} | f \rangle \langle n | \mathbf{e}_1 \mathbf{p} | l \rangle}{E_1 - E_n - \hbar\omega_1 + i\gamma_{l,n}} + \frac{\langle l | \mathbf{e}_1 \mathbf{p} | f \rangle \langle n | \mathbf{e}_2 \mathbf{p} | l \rangle}{E_1 - E_n - \hbar\omega_2 + i\gamma_{l,n}} \right] \\ &\times \sum_q \left[ \frac{\langle f | \mathbf{e}_2 \mathbf{p} | q \rangle \langle q | \mathbf{e}_1 \mathbf{p} | n \rangle}{E_q - E_n - \hbar\omega_1 - i\gamma_{q,n}} \right. \\ &\left. \left. + \frac{\langle f | \mathbf{e}_1 \mathbf{p} | q \rangle \langle q | \mathbf{e}_2 \mathbf{p} | n \rangle}{E_q - E_n - \hbar\omega_2 - i\gamma_{q,n}} \right] - C.C. \right\}, \quad (5) \end{aligned}$$

где  $B$  — вещественная константа, величина  $\gamma_{l,n} = \hbar/\tau_{l,n}$  определяет лоренцеву полуширину соответствующего перехода,  $\tau_{l,n}$  — времена поперечной релаксации,  $C.C.$  — комплексно-сопряженные члены. Из (5) видно, что основную роль в резонансном ДФП играют наиболее узкие промежуточные уровни.

Учтем, что резонансное поглощение на промежуточных уровнях может осуществляться только для кванта зондирующего излучения  $\hbar\omega_1$ . Ограничимся двумя конечными ( $3, 3'$ ) и тремя промежуточными состояниями ( $2', 2, 2''$ ), как показано на рис. 3. Тогда, пренебрегая в (5) интерференционными членами, поскольку в области резонансов они существенно меньше лоренцевых

Значения параметров

Направление	$a$	$E_3 - E_1$ , eV	$\gamma_3^2$	$b$	$E_{3'} - E_1$ , eV	$E_2 - E_1$ , eV	$\gamma_2^2$
$\perp$	$5.79 \cdot 10^{-8}$	2.73	0.001	6.47	3.04	1.71	$1.6 \cdot 10^{-4}$
$\parallel$	$4 \cdot 10^{-8}$	2.74	0.001	4.55	3.04	1.735	$1.6 \cdot 10^{-4}$

Направление	$c$	$E_{2'} - E_1$ , eV	$\gamma_{2'}^2$	$d$	$E_{2''} - E_1$ , eV	$\gamma_{2''}^2$
$\perp$	1.3	1.675	$1.6 \cdot 10^{-4}$	6.68	1.76	$1.3 \cdot 10^{-3}$
$\parallel$	1.8	1.69	$1.6 \cdot 10^{-4}$	4	1.79	$1.2 \cdot 10^{-3}$

слагаемых, получим для  $\beta$

$$\beta = B \left\{ \frac{\gamma_3}{(E_3 - E_1 - \varepsilon)^2 + \gamma_3^2} + \frac{\gamma_{3'}}{(E_{3'} - E_1 - \varepsilon)^2 + \gamma_{3'}^2} \right\} \times \left\{ \frac{G_{32}^2(2)G_{21}^2(1)}{(E_2 - E_1 + \hbar\omega_2 - \varepsilon)^2 + \gamma_2^2} + \frac{G_{32'}^2(2)G_{2'1}^2(1)}{(E_{2'} - E_1 + \hbar\omega_2 - \varepsilon)^2 + \gamma_{2'}^2} + \frac{G_{32''}^2(2)G_{2''1}^2(1)}{(E_{2''} - E_1 + \hbar\omega_2 - \varepsilon)^2 + \gamma_{2''}^2} \right\}, \quad (6)$$

где  $G_{32}(2) = \langle 3|\mathbf{e}_2\mathbf{p}|2\rangle$  и  $\varepsilon = \hbar(\omega_1 + \omega_2)$ . Для сокращения числа подбираемых параметров в (6) принято  $G_{32} = G_{3'2}$ ,  $G_{32'} = G_{3'2'}$ ,  $G_{32''} = G_{3'2''}$ .

Отбор промежуточных и конечных состояний для расчета спектра ДФП в  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  согласно (6) позволил нам путем численного подбора параметров получить хорошее согласие расчетных и экспериментальных ДФП

спектров (сплошные и штриховые кривые на рис. 1). Спектры ДФП сильно отличаются от спектров однофотонного поглощения в  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ , которые подробно обсуждались в работе [10]. Спектр однофотонного поглощения кристаллов  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  образован оптическими переходами между электронными состояниями незаполненной  $3d^3$ -оболочки иона  $\text{Cr}^{3+}$ , расщепленными кристаллическим полем [14,15]. В приближении сильного кристаллического поля кубической симметрии расщепление нижних термов иона с конфигурацией  $d^3$  показано на рис. 3 [15]. Широкие полосы однофотонного поглощения соответствуют переходам  ${}^4A_2(F) \rightarrow {}^4T_2(F)$  (около 2.1 eV),  ${}^4A_2(F) \rightarrow {}^4T_1(F)$  (около 2.6 eV). Кроме широких полос в спектре однофотонного поглощения при низких температурах наблюдаются узкие пики [10], соответствующие спин-запрещенным переходам  ${}^4A_2(F) \rightarrow {}^2E(G)$ ,  ${}^4A_2(F) \rightarrow {}^2T_1(G)$  (около 1.67–1.76 eV). На рис. 3 показано соответствие начальных (1), промежуточных (2, 2', 2'') и конечных (3, 3') энергетических уровней, принятых в расчетной схеме, реальным уровням в кристалле  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  в приближении кубической симметрии. Уровни  ${}^4T_2(F)$  и  ${}^2T_2(G)$  не учитываются в расчетах, так как не вносят заметного вклада в резонансное ДФП. Примерная ширина энергетических уровней, полученная при подборе параметров, также показана на рис. 3.

Запишем выражение для  $\beta$  в более удобном виде для подбора расчетных параметров

$$\beta = a \left\{ \frac{1}{(E_3 - E_1 - \varepsilon)^2 + \gamma_3^2} + \frac{b}{(E_{3'} - E_1 - \varepsilon)^2 + b^2\gamma_3^2} \right\} \times \left\{ \frac{1}{(E_2 - E_1 + \hbar\omega_2 - \varepsilon)^2 + \gamma_2^2} + \frac{c}{(E_{2'} - E_1 + \hbar\omega_2 - \varepsilon)^2 + \gamma_{2'}^2} + \frac{d}{(E_{2''} - E_1 + \hbar\omega_2 - \varepsilon)^2 + \gamma_{2''}^2} \right\}, \quad (7)$$

где  $a = B\gamma_3 G_{32}^2(2)G_{21}^2(1)$ ,  $b = \gamma_{3'}/\gamma_3$ ,  $c = \frac{G_{32'}^2(2)G_{2'1}^2(1)}{G_{32}^2(2)G_{21}^2(1)}$ ,  $d = \frac{G_{32''}^2(2)G_{2''1}^2(1)}{G_{32}^2(2)G_{21}^2(1)}$ .

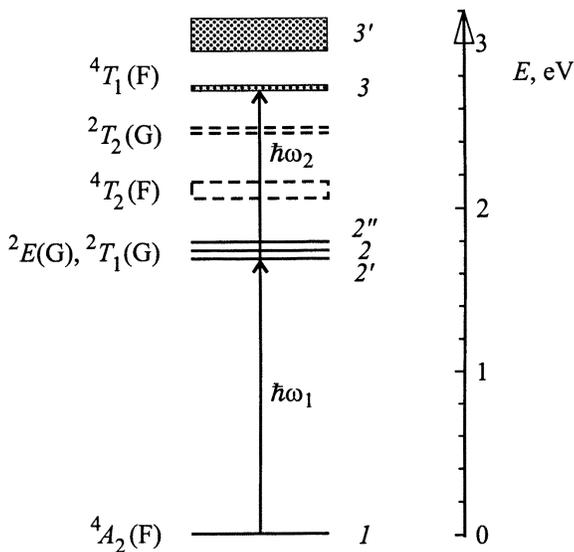


Рис. 3. Схема резонансного двухфотонного поглощения в кристалле  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ .

При расчете двухфотонного спектра начальные значения положений промежуточных уровней и конечного уровня 3, а также их ширины были взяты из спектра однофотонного поглощения [10]. Результаты расчета показаны на рис. 1 (сплошные кривые) для двух направлений поляризации световых пучков относительно оси  $c$ :  $\mathbf{e}_1 \parallel \mathbf{e}_2 \parallel c$  и  $\mathbf{e}_1 \parallel \mathbf{e}_2 \perp c$ . Значения параметров приведены в таблице. Видно, что за исключением некоторых деталей расчетные и экспериментальные двухфотонные спектры поглощения находятся в хорошем согласии. Следует отметить ряд существенных отличий двухфотонных спектров поглощения в  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  от однофотонных (линии двухфотонного поглощения значительно уже однофотонных, они расщеплены и сдвинуты в область больших энергий). Главное отличие состоит в том, что общий вид спектра двухфотонного поглощения  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  в области энергий 2.7–3.1 eV в основном определяется резонансами на узких промежуточных уровнях  ${}^2E(G)$  и  ${}^2T_1(G)$ .

В результате расчетов по нашей модели наилучшее соответствие с экспериментальными спектрами двухфотонного поглощения достигается для расщепленного конечного уровня  ${}^4T_1(F)$  (2.74 и 3.04 eV), хотя в спектре однофотонного поглощения максимум широкой полосы  ${}^4T_1(F)$  находится около энергии 2.63 eV. Расщепление уровня  ${}^4T_1(F)$  на два подуровня  $E^T$  и  $A_2^T$  объясняется совместным действием тригонального поля и спин-орбитального взаимодействия [14,15]. Полученная величина этого расщепления 0.3 eV по порядку величины совпадает с экспериментальными данными других авторов [16]. Однако положение резонансных уровней, участвующих в двухфотонном поглощении, соответствует по энергиям узким линиям  ${}^2E(G)$  и  ${}^2T_1(G)$  в спектре однофотонного поглощения. Меньшую интенсивность спектра для случая  $\mathbf{e}_1 \parallel \mathbf{e}_2 \parallel c$  можно объяснить правилами отбора для двухфотонных переходов [8,9], поскольку для этой поляризационной конфигурации двухфотонные переходы  $A_2^T \rightarrow E^T$  в поле тригональной симметрии  $C_3$  запрещены. Мы интерпретируем первый пик 2.74 eV переходами в узкое конечное отщепленное состояние 3, а три пика при 2.845, 2.88, 2.93 eV — резонансами на промежуточных уровнях 1.675, 1.71 и 1.76 eV при переходах во второе, более широкое конечное состояние 3'.

Отметим в заключение, что результаты расчетов доказывают сильное влияние узких энергетических уровней около 1.7 eV на двухфотонное поглощение в  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  при комнатной температуре, несмотря на то что в спектрах однофотонного поглощения эти уровни проявляются только при низких температурах.

## Список литературы

- [1] В.И. Бредихин, Н.Д. Галанин, В.Н. Генкин. УФН **110**, 1, 3 (1973).
- [2] J.M. Worlock. In: Laser Handbook / Ed. by F. T. Arecchi, E.O. Schulz-Dubois. North-Holland Publ. Comp., Amsterdam, **2**, 1324 (1972).
- [3] H. Mahr. In: Quantum Electronics / Ed. by H. Rabin, C.L. Tang. Academic Press, N.Y. **1**, 285 (1975).
- [4] С.И. Шаблаев, А.М. Данишевский, В.К. Субашиев, А.А. Бабашкин. ФТТ **21**, 4, 1140 (1979).
- [5] С.И. Шаблаев, А.М. Данишевский, В.К. Субашиев. ФТТ **26**, 1, 179 (1984); ЖЭТФ **86**, 6, 2158 (1984).
- [6] С.И. Шаблаев, Р.В. Писарев. Письма в ЖЭТФ **45**, 10, 490 (1987).
- [7] С.И. Шаблаев. ЖЭТФ **96**, 6, 1959 (1990); Письма в ЖТФ **19**, 9, 79 (1993).
- [8] T.R. Bader, A. Gold. Phys. Rev. **171**, 997 (1968).
- [9] M.N. Denisov, V.P. Makarov. J. Phys. **C5**, 2651 (1972).
- [10] D.S. McClure. J. Chem. Phys. **38**, 9, 2289 (1963).
- [11] M. Fiebig, D. Fröhlich, B.V. Krichevstov, R.V. Pisarev. Phys. Rev. Lett. **73**, 2127 (1994).
- [12] B.V. Krichevstov, V.V. Pavlov, R.V. Pisarev, V.N. Gridnev. Phys. Rev. Lett. **76**, 4628 (1996).
- [13] З.А. Демиденко. Квантовая электроника **6**, 7, 1416 (1979).
- [14] S. Sugano, Y. Tanabe, H. Kamimura. Multiplets of Transition Metal Ions in Crystals. Academic Press, N.Y. (1970). 331 p.
- [15] Д.Т. Свиридов, Ю.Ф. Смирнов. Теория оптических спектров ионов переходных металлов. Наука, М. (1977). 328 с.
- [16] D.S. McClure. J. Chem. Phys. **36**, 2757 (1962).