

Пространственно-периодическая модуляция населенностей уровней при насыщении для центров со слабым и сильным электрон-фононным взаимодействием

© А.А. Григорова*, Е.Ф. Мартынович*,**

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

** Иркутский государственный университет, 664003 Иркутск, Россия

E-mail: filial@ilph.irk.ru

Получены простые выражения, описывающие пространственно-периодическую модуляцию разности диагональных элементов матрицы плотности для отдельных ориентационных групп квантовых систем в анизотропных кристаллах, а также для центров всего кристалла в целом. Найдено, что глубина модуляции населенностей уровней при насыщении для центров с сильной электрон-фононной связью в пределе в 2 раза выше, чем для центров с чисто электронными оптическими переходами. На примере кристаллов со структурой рутила, имеющих оптическую ось четвертого порядка, описан эффект удвоения волнового числа периодических структур, индуцированных на возбужденных центрах.

Работа поддержана Сибирским отделением Российской академии наук (программа № 10.1).

PACS: 78.20.-e, 78.40.-q, 78.90.+t

Замещающие трехвалентные ионы редких земель в кристаллах характеризуются сравнительно слабым электрон-фононным взаимодействием, поэтому основная часть интенсивности спектральных линий для переходов внутри $4f$ -конфигурации обусловлена чисто электронными переходами. Для тех же ионов $4f-5d$ -переходы значительно меньше изолированы от решетки и существенная доля соответствующих спектральных линий обусловлена электронно-колебательными переходами. Сравнительно сильное электронно-колебательное взаимодействие характерно также для других примесных и собственных дефектов в кристаллах, включая центры окраски. Таким образом, случаи слабой и сильной электрон-фононной связи характерны для квантовых систем различной природы.

При сравнительно высоких интенсивностях оптического возбуждения переходы в центрах могут насыщаться, что означает существенное изменение населенностей уровней по сравнению с равновесным распределением. В анизотропных кристаллах при насыщении могут проявляться пространственные модуляционные эффекты [1]. Изучение пространственно-периодических структур, индуцированных светом в кристаллических средах, актуально в связи с развитием оптических микро- и нанотехнологий [2,3].

Задачей настоящей работы являются расчет и сравнение свойств пространственно-периодических структур, возникающих в анизотропных кристаллах при фотовозбуждении квантовых систем двух типов. Центры первого типа слабо взаимодействуют с колебаниями и фононами и характеризуются чисто электронными оптическими переходами; центры второго типа характеризуются сильным взаимодействием и интенсивными электронно-колебательными переходами. Предполагается оценить возможности фотоиндуцирования периодических струк-

тур на возбужденных центрах обоих типов с целью обоснования соответствующих оптических технологий. Кроме прикладного значения данная задача актуальна также в плане развития теории эффекта насыщения в анизотропных средах.

Элементарные осцилляторы, моделирующие переходы в центрах, взаимодействующих с излучением, всегда анизотропны [4]. Ориентация таких осцилляторов в кристаллических средах не может быть произвольной, центры ориентированы в соответствии с законами симметрии этих сред. Взаимодействие оптического излучения с центрами зависит от взаимной ориентации электрического вектора и вектора момента перехода в квантовой системе. Поскольку для различных ориентационных групп центров их взаимные ориентации с электрическим вектором различны, каждую ориентационную группу необходимо рассматривать отдельно. Для этого используем метод анализа, развивающий подход Феофилова [4] и названный нами методом парциальных восприимчивостей или парциальных поляризуемостей. Суть этого метода определяется совокупностью следующих операций:

- определение числа отдельных ориентационных групп квантовых систем, допускаемых законами симметрии в изучаемых кристаллах;
- определение типа (мультипольности) элементарных осцилляторов для исследуемых квантовых переходов;
- нахождение ориентаций осей этих осцилляторов и ориентаций векторов момента переходов, связанных с поглощением и излучением;
- вычисление компонент парциальных тензоров восприимчивости (или поляризуемости), связанных с каждой отдельной ориентационной группой;

— раздельное вычисление взаимодействия этих групп с излучением;

— суммирование результата по определенным правилам.

Кроме того, в расчетах мы используем метод оператора плотности [5], рассматривая вероятности заселения и электронные поляризуемости для отдельных квантовых систем как квантово-механические средние.

Зададим геометрию взаимодействия света и вещества, необходимую для расчета. Рассмотрим оптически одноосный кристалл, его оптическую ось направим по координатной оси z декартовой системы координат. Волновой вектор плоской волны возбуждающего света направим по оси y , возникающие в этих условиях обыкновенная и необыкновенная волны распространяются в одном направлении y , но с разными скоростями. Входная поверхность кристалла находится в точке $y = 0$.

При описании чисто электронных переходов в качестве исходного уравнения используем уравнение для разностей диагональных элементов матрицы плотности ρ_{11} и ρ_{22} двухуровневых систем в следующем виде:

$$\frac{\partial(\rho_{11} - \rho_{22})}{\partial t} + \frac{(\rho_{11} - \rho_{22}) - (\rho_{11}^e - \rho_{22}^e)}{T_1} = -\frac{2\varepsilon_0}{\hbar} \sum_{\alpha, \beta} \text{Re} [i(\chi'_{\alpha\beta} - i\chi''_{\alpha\beta}) \tilde{E}_\alpha^* \tilde{E}_\beta]. \quad (1)$$

Левая часть данного уравнения взята из [5], а правая — из [6]; в ней введено следующее переобозначение: здесь $\chi'_{\alpha\beta}$ и $\chi''_{\alpha\beta}$ — действительная и мнимая части тензора электрической поляризуемости центра, связанной с его возбуждением, E_α и E_β — координатные компоненты электрического вектора, причем $\alpha, \beta = x, y, z$, а по повторяющимся индексам α и β производится суммирование, T_1 — время диполь-решеточной релаксации, \hbar — постоянная Планка, ε_0 — электрическая постоянная, индекс e помечает равновесное значение соответствующей величины. Уравнение (1) позволяет анализировать пространственные зависимости степени возбуждения вещества, характеризуемой, например, вероятностями заселения уровней центров или поглощаемой ими мощностью излучения.

Уравнение (1) с учетом геометрии эксперимента можно преобразовать к виду

$$\frac{\partial(\rho_{11} - \rho_{22})}{\partial t} + \frac{(\rho_{11} - \rho_{22}) - (\rho_{11}^e - \rho_{22}^e)}{T_1} = -\frac{2\varepsilon_0\chi_0}{\hbar} (\rho_{11} - \rho_{22})g(\omega)f(y, E_\alpha), \quad (2)$$

где $f(y, E_\alpha) = a_{xx}E_x^2 + 2(\alpha_{xy}E_xE_y + \alpha_{xz}E_xE_z) \cos \delta y + 2a_{zy}E_zE_y + a_{yy}E_y^2 + a_{zz}E_z^2$, $g(\omega)$ — функция формы линии; для случая чисто электронных переходов она будет одной и той же как для возбуждения, так и для испускания (рис. 1, а); $a_{xx}, a_{xy}, a_{xz}, a_{zy}, a_{yy}, a_{zz}$ — компоненты тензорной части поляризуемости, опреде-

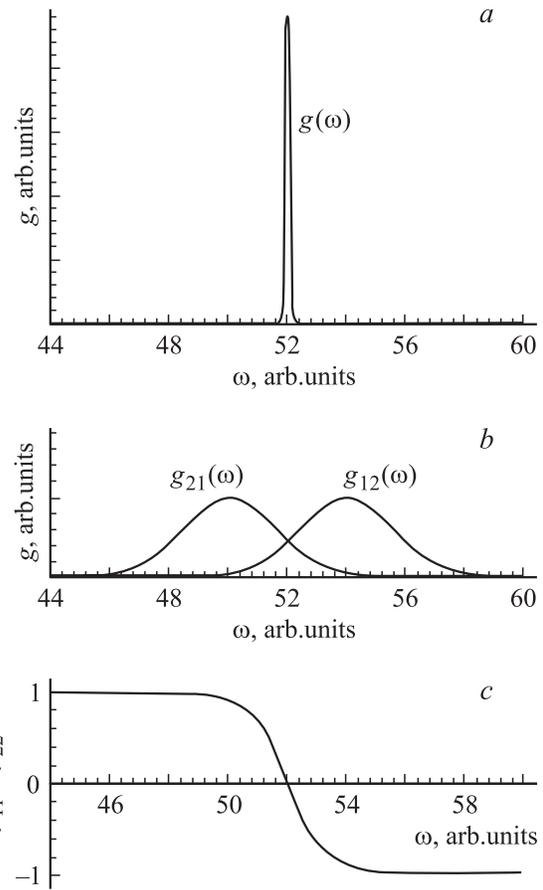


Рис. 1. Характерный вид оптических спектров для центров со слабым (а) и сильным (б) электронно-колебательным взаимодействием. с — спектральная зависимость предельной разности населенности уровней электронно-колебательных центров при интенсивностях возбуждения, стремящихся к ∞ .

ляемой только из геометрических соотношений; δ — волновое число индуцируемой периодической структуры; χ_0 — остаток скалярной части поляризуемости после выделения из нее диагональных элементов матрицы плотности и функции формы спектральной линии.

Тензор $a_{\alpha\beta}$ для некоторой произвольной ориентации дипольного момента перехода μ_{12} , заданной двумя углами (β_μ , отсчитываемым от оси z , и η_μ , отсчитываемым от оси x в плоскости xu до проекции на нее вектора μ_{12}), определяется следующим образом [7]:

$$a_{\alpha\beta} = \begin{pmatrix} \sin^2 \beta_\mu \cos^2 \eta_\mu & \sin^2 \beta_\mu \cos \eta_\mu \sin \eta_\mu & \sin \beta_\mu \cos \eta_\mu \cos \beta_\mu \\ \sin^2 \beta_\mu \cos \eta_\mu \sin \eta_\mu & \sin^2 \beta_\mu \sin^2 \eta_\mu & \sin \beta_\mu \sin \eta_\mu \cos \beta_\mu \\ \sin \beta_\mu \cos \eta_\mu \cos \beta_\mu & \sin \beta_\mu \sin \eta_\mu \cos \beta_\mu & \cos^2 \beta_\mu \end{pmatrix}. \quad (3)$$

Проанализируем пространственное изменение разностей диагональных элементов матрицы плотности для центров с сильным электронно-колебательным взаимодействием. Энергетические уровни подобных центров

испытывают значительное уширение за счет взаимодействия с фононами или локальными колебаниями. Поэтому спектры поглощения и испускания таких центров представляют собой частично перекрывающиеся широкие полосы со значительным стоковым сдвигом (рис. 1, *b*). Вследствие этого дифференциальное уравнение для разностей диагональных компонент матрицы плотности приобретает вид

$$\frac{\partial(\rho_{11} - \rho_{22})}{\partial t} + \frac{(\rho_{11} - \rho_{22}) - (\rho_{11}^e - \rho_{22}^e)}{T_1} = -\frac{2\varepsilon_0\chi_0}{\hbar} \{ \rho_{11}g_{12}(\omega) - \rho_{22}g_{21}(\omega) \} f(y, E_\alpha). \quad (4)$$

Рассмотрим стационарное возбуждение центров. Для такого возбуждения зависимость разности диагональных элементов матрицы плотности от расстояния y в описанных выше условиях будет иметь вид

$$\rho_{11} - \rho_{12} = \frac{(\rho_{11}^e - \rho_{22}^e)}{1 + \frac{2f(y, E_\alpha)}{F} \frac{g(\omega)}{g(\Omega)}} \quad (5)$$

для чисто электронных переходов и

$$\rho_{11} - \rho_{12} = \frac{[g_{21}(\omega) - g_{12}(\omega)] \frac{f(y, E_\alpha)}{F} + (\rho_{11}^e - \rho_{22}^e)}{1 + [g_{21}(\omega) + g_{12}(\omega)] \frac{f(y, E_\alpha)}{F}} \quad (6)$$

для электронно-колебательных переходов, где $F = \frac{\hbar}{\varepsilon_0\chi_0 T_1 g(\Omega)}$ — параметр насыщения, $g(\Omega)$ — значение функций формы спектральных линий на частоте их максимума (для чисто электронных переходов) или в точке их пересечения (для электронно-колебательных переходов).

Полученные выражения служат основой для анализа пространственно-периодической модуляции населенностей уровней при насыщении для квантовых систем различной физической природы в анизотропных кристаллах. В качестве примера рассмотрим центры с чисто электронными переходами, а также центры с электронно-колебательными переходами, которые имеют одну и ту же ориентацию, определяемую углами $\eta_\mu = 0$, $\beta_\mu = 4/\pi$. Для таких центров тензорная часть поляризуемости будет иметь вид

$$a_{\alpha\beta} = \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 0 & \frac{1}{2} \\ 0 & 0 & 0 \\ \frac{1}{2} & 0 & \frac{1}{2} \end{pmatrix}. \quad (7)$$

Вектор электрического поля на входной поверхности кристалла ориентирован под углом $\pi/4$ к оптической оси и его направление здесь совпадает с направлением вектора дипольного момента.

Полученные зависимости разности населенностей уровней от расстояния для центров обоих типов показаны на рис. 2 при различных интенсивностях возбуждения, задаваемых отношением квадрата напряженности электрического поля к параметру насыщения перехода F , также выраженному в единицах квадрата

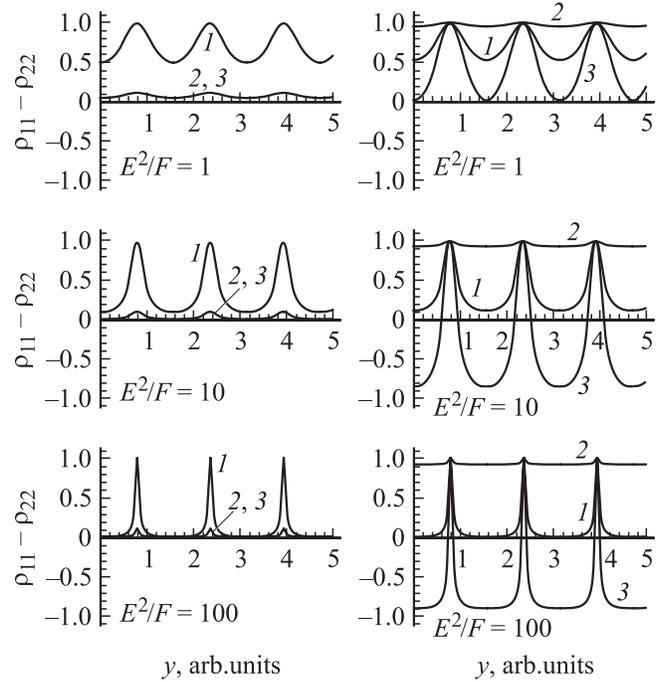


Рис. 2. Пространственные зависимости разностей диагональных элементов матрицы плотности, определяющих вероятности заселения состояний $|1\rangle$ и $|2\rangle$. Слева — для центров со слабым электронно-колебательным взаимодействием (для зависимости 1 частота возбуждающего излучения соответствует максимуму функции формы линии, для 2 и 3 — точкам на крыльях линии на уровне 0.1 от максимума). Справа — для центров с сильным электронно-колебательным взаимодействием (зависимости 1 соответствуют возбуждению на частоте бесфононного перехода, т.е. в точке пересечения нормированных спектров, 2 — на частоте максимума полосы излучения, 3 — на частоте максимума полосы поглощения для гауссовых модельных спектров, использованных в расчете и показанных на рис. 1, *a*).

напряженности поля. Видно, что при заданных условиях все зависимости носят пространственно-периодический характер. Период модуляции $\Lambda = \lambda/|n_o - n_e|$, где λ — длина волны возбуждающего излучения, n_o и n_e — показатели преломления обыкновенной и необыкновенной волн возбуждающего излучения в направлении распространения y .

Можно заметить, что для центров обоих типов есть точки, соответствующие максимумам кривых, в которых равновесное заселение уровней центров не меняется ни при каких интенсивностях. Это обусловлено тем, что в этих точках поляризация суммарной световой волны становится линейной, а вектор \mathbf{E} строго ортогонален вектору дипольного момента $\boldsymbol{\mu}$ рассматриваемой ориентационной группы. При таком соотношении ориентаций этих векторов энергия электродипольного взаимодействия поля и вещества $-\boldsymbol{\mu}\mathbf{E}$ равна нулю.

Из данных рис. 2 следует, что глубина модуляции разности заселения уровней при стационарном возбуж-

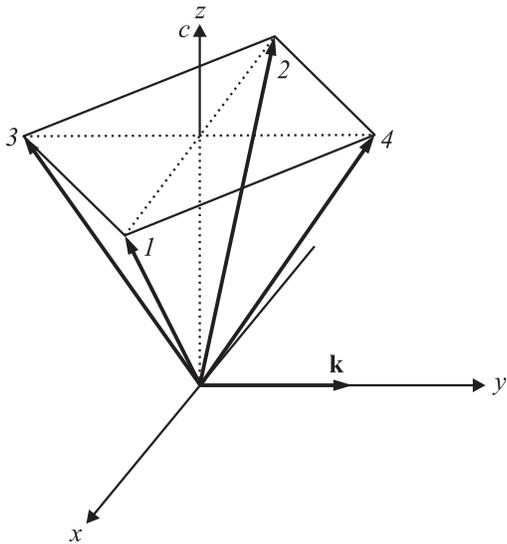


Рис. 3. Ориентации дипольных моментов переходов 1–4 в кристалле, имеющем оптическую ось $L4$. Направления 1 и 2 лежат в плоскости xz , 3 и 4 — в плоскости yz . \mathbf{k} — волновой вектор возбуждающего излучения.

дении центров первого типа при любых интенсивностях не превышает единицы и ни в каких точках по оси y инверсия не достигается. В то же время для центров второго типа, обладающих сильным электронно-колебательным взаимодействием, максимальная глубина модуляции приближается к двум. Это означает, что для двухуровневых центров такого типа инверсия в периодических структурах легко обеспечивается. Распределение инверсии по частоте возбуждающего излучения при больших интенсивностях в области сопряженных оптических спектров показано на рис. 1, *с*. Видно, что инверсия наиболее эффективно реализуется в области коротковолнового крыла спектра поглощения, где сечение вынужденного испускания уже пренебрежимо мало по сравнению с сечением поглощения.

Рассмотренный выше пример взаимодействия со светом анизотропной среды, имеющей центры единственной ориентации в направлении, не совпадающем с направлением оптической оси, не соответствует реальному случаю. На самом деле рассмотренная ориентация должна быть дополнена другими ориентациями так, чтобы получилась осесимметричная картина их распределения. Рассмотрим одноосный кристалл с оптической осью симметрии четвертого порядка. Такую симметрию имеют, в частности, кристаллы со структурой рутила, например кристалл фторида магния MgF_2 . Возможное распределение по ориентациям отдельных групп центров, допускаемое симметрией таких кристаллов, показано на рис. 3. После вычисления парциальных тензоров поляризуемости для ориентационных групп центров, обозначенных на рис. 3 цифрами 1–4, были найдены зависимости заселения уровней от расстояния для центров двух исследуемых типов как для отдельных ориентационных

групп, так и для всего кристалла (рис. 4). Видно, что для ориентаций 3 и 4 пространственных осцилляций нет. Это обусловлено тем, что центры таких ориентаций возбуждаются только z -компонентой поля и не возбуждаются y -компонентой. Кроме того, период модуляции разности заселения уровней вдвое меньше периода, определяемого величиной Λ . Это значит, что волновое число индуцированной периодической структуры удвоилось. Удвоение происходит, как можно понять из данных рис. 4, благодаря тому, что парциальные населенности в группах 1 и 2 осциллируют в противофазе и при их суммировании дают удвоенное волновое число.

Таким образом, в результате проведенных исследований найдены выражения для вероятностей заселения уровней квантовых систем двух типов, различающихся силой электрон-фононного взаимодействия. Данные выражения служат основой для анализа пространственно-периодической модуляции населенностей уровней при насыщении для квантовых систем различной физической природы в анизотропных кристаллах. Показано, что глубина модуляции населенностей уровней при насыщении для центров с сильной электрон-фононной связью в пределе в 2 раза выше, чем для центров с чисто электронными оптическими переходами. На примере

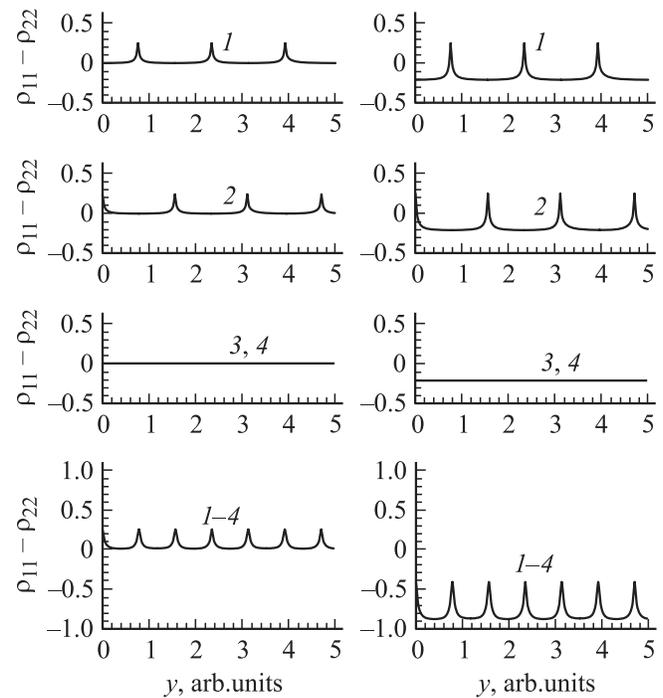


Рис. 4. Зависимости от расстояния y разностей диагональных элементов матрицы плотности, определяющих вероятности заселения состояний $|1\rangle$ и $|2\rangle$, для ориентационных групп от первой до четвертой (кривые 1–4) и для всего кристалла в целом (внизу). Слева — для центров со слабым электронно-колебательным взаимодействием. Справа — для центров с сильным электронно-колебательным взаимодействием. Возбуждение в обоих случаях соответствует максимуму полосы поглощения. $E^2/F = 100$.

кристаллов со структурой рутила, имеющих оптическую ось четвертого порядка, описан эффект удвоения волнового числа периодических структур, индуцированных на возбужденных центрах.

Список литературы

- [1] Е.Ф. Мартынович. Письма в ЖЭТФ **49**, 655 (1989).
- [2] T. Kurobori, T. Jamakage, Y. Hirose, Ken-ichi Kawamura, M. Hirano, H. Hosono. Jpn. J. Appl. Phys. **44**, 910 (2005).
- [3] L.C. Courrol, R.E. Samad, A.Z. de Freitas, I.M. Ranieri, S.L. Baldochi, L. Gomes, N.D. Vieira, Jr. Annals of optics. XXIX ENFMC (2006).
- [4] П.П. Феофилов. Поляризованная люминесценция атомов, молекул и кристаллов. Гос. изд-во физ.-мат. лит., М. (1959). 288 с.
- [5] Р. Пантел, Г. Путхоф. Основы квантовой электроники. Мир, М. (1972). 327 с.
- [6] А. Ярив. Введение в оптическую электронику. Высш. шк., М. (1983). 398 с.
- [7] Е.Ф. Мартынович. Центры окраски в лазерных кристаллах. Изд-во Иркут. ун-та, Иркутск (2004). 227 с.