

УДК 548.0 : 535+548.0 : 537

ПРИМЕСНЫЙ ЭЛЕКТРООПТИЧЕСКИЙ ЭФФЕКТ
В ОБЛАСТИ ЛИНИИ ПОГЛОЩЕНИЯ 5185 Å В КРИСТАЛЛЕ LiF-U⁶⁺

В. Н. Медведев и А. П. Скворцов

С помощью чувствительной модуляционной методики исследована спектральная зависимость вынужденного двупреломления $\Delta n(\nu)$ во внешнем электрическом поле в области линии поглощения 5185 Å в кристалле LiF-U⁶⁺. По спектрам двупреломления $\Delta n(\nu)$, дихроизма $\Delta k(\nu)$ и поглощения $k(\nu)$ восстановлена в исследованной области спектра дисперсия показателя преломления. Экспериментальная кривая $n(\nu)$ сравнивается с расчетной, полученной с помощью соотношения Крамерса—Кронига.

Как известно, в оптически изотропных кубических кристаллах во внешних полях (магнитном, электрическом или деформационном), понижающих симметрию кристалла, может возникнуть дихроизм поглощения. Дихроизм обусловлен поляризованным расщеплением или изменением интенсивностей полос как собственного, так и примесного поглощения. Поскольку поглощение и преломление света определенным образом связаны между собой, то одновременно с возникновением дихроизма, как правило, возникает двупреломление. Вынужденное двупреломление чистых кубических кристаллов, связанное с изменением собственного поглощения в электрическом поле, изучалось в ряде работ [1-4]. Индуцированное же внешним электрическим полем двупреломление, связанное с изменением поглощения локальных (примесных или дефектных) центров, исследовано недостаточно. Такие эксперименты представляют интерес при изучении дисперсии показателя преломления в области полос поглощения локальных центров.

Примесный электрооптический эффект Керра исследовался в ряде щелочно-галогенидных кристаллов вблизи полос поглощения дипольных дефектов OH⁻ и CN⁻ в [5-8]. Вынужденное двупреломление связано в этих работах с возникновением дихроизма в кристалле вследствие переориентации дипольных молекул (OH⁻ или CN⁻) во внешнем электрическом поле, то есть с изменением интегральной интенсивности полос в поляризациях параллельной и перпендикулярной полю \mathcal{E} . Поэтому спектральная зависимость двупреломления непосредственно отражала ход кривой дисперсии $n(\nu)$ в исследовавшейся области спектра [6].

В настоящей работе определена дисперсия $n(\nu)$ в области линии поглощения 5185 Å примесного центра в кристалле LiF-U⁶⁺ по спектральной зависимости двупреломления $\Delta n(\nu)$, индуцированного внешним электрическим полем. Измерение спектров двупреломления $\Delta n(\nu)$ и дихроизма поглощения $\Delta k(\nu)$, необходимых для исследования дисперсии $n(\nu)$, проводилось с помощью чувствительной дифференциальной методики, описанной в [9].¹

Линия поглощения 5185 Å в кристалле LiF-U⁶⁺ отвечает электрически дипольному переходу между невырожденными уровнями в безинверсионном примесном центре [10]. В электрическом поле на этой линии наблюдалось линей-

¹ В [9] на примере линии 5234 Å N₁-центра окраски LiF была продемонстрирована возможность определения хода дисперсии показателя преломления $n(\nu)$ вблизи и внутри контура линии поглощения $k(\nu)$ локального центра по спектрам вынужденного двупреломления $\Delta n(\nu)$ в кубическом кристалле, подвергнутом одноосному сжатию.

ное «псевдоштарковское» расщепление [10, 11]. Поэтому исследовавшиеся в данной работе двупреломление и дихроизм связаны с «псевдоштарковским» симметричным расщеплением линии 5185 Å во внешнем поле.²

Если двупреломление и дихроизм возникают (как в данном случае) вследствие симметричного линейного по полю \mathcal{E} расщепления, то можно воспользоваться результатами, полученными в [9]. В случае узкополосных бесфононных спектров и малых расщеплений ($\Delta_i \ll \Gamma$, Δ_i -сдвиг i -компоненты, Γ — ее полу-

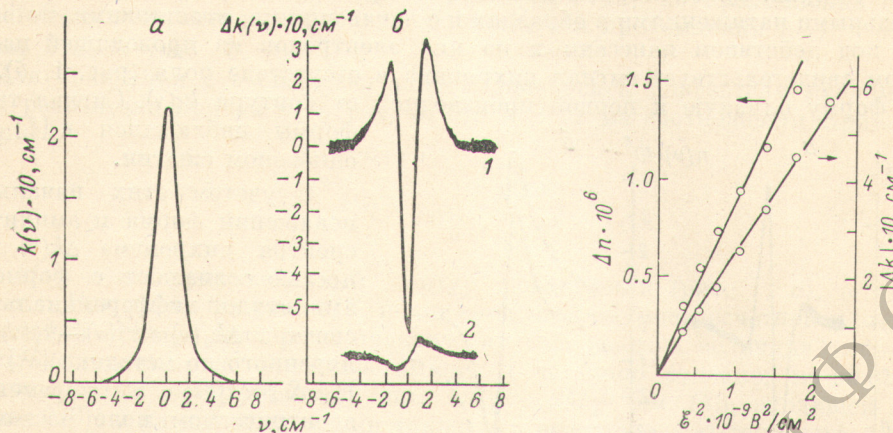


Рис. 1.

а — контур линии поглощения 5185 Å $k(\nu)$; б — спектр дихроизма $\Delta k(\nu)$ в области линии 5185 Å в поле $\mathcal{E}=46.3$ кВ/см (1); спектр дихроизма в отсутствие поля (2).

Рис. 2. Зависимость величины центрального максимума дифференциального сигнала дихроизма $\Delta k(\nu)$ и величины коротковолнового максимума дифференциального сигнала двупреломления $\Delta n(\nu)$ от величины напряженности электрического поля.

ширина) нетрудно, используя разложения (3) и (4) из работы [9], получить для $\Delta n(\nu) = n_{\parallel}^{\mathcal{E}}(\nu) - n_{\perp}^{\mathcal{E}}(\nu)$ и $\Delta k(\nu) = k_{\parallel}^{\mathcal{E}}(\nu) - k_{\perp}^{\mathcal{E}}(\nu)$ следующие выражения

$$\Delta n(\nu) = (1/2) n''(\nu) (\Delta M_{\parallel}^{(2)} - \Delta M_{\perp}^{(2)}), \quad (1)$$

$$\Delta k(\nu) = (1/2) k''(\nu) (\Delta M_{\parallel}^{(2)} - \Delta M_{\perp}^{(2)}), \quad (2)$$

где $\Delta M_{\parallel}^{(2)} = \Sigma A_{i\parallel} \Delta_{i\parallel}^2 \sim \mathcal{E}^2$ и $\Delta M_{\perp}^{(2)} = \Sigma A_{i\perp} \Delta_{i\perp}^2 \sim \mathcal{E}^2$ — изменения вторых моментов линии [11] в состояниях поляризации света $\mathbf{E} \parallel \mathcal{E}$ и $\mathbf{E} \perp \mathcal{E}$. $A_{i\parallel(\perp)}$ — относительные интенсивности компонент расщепления, $\Delta_{i\parallel(\perp)}$ — их сдвиги в электрическом поле в соответствующей поляризации. Таким образом, в случае малых симметричных линейных по \mathcal{E} расщеплений спектры двупреломления и дихроизма должны иметь форму 2-ой производной от кривой дисперсии показателя преломления $n(\nu)$ и контура линии поглощения $k(\nu)$ соответственно, а их амплитуды должны быть пропорциональны \mathcal{E}^2 .

Здесь уместно заметить, что в случае квадратичного эффекта Штарка, приводящего к сдвигу центра тяжести линии в поле [11], выражения для двупреломления $\Delta n(\nu)$ и дихроизма $\Delta k(\nu)$ аналогичны выражениям, полученным в [9] для случая одноосной деформации. Отличие состоит лишь в том, что изменения первых моментов пропорциональны квадрату напряженности электрического поля, а не механическому напряжению.

Экспериментальные результаты и их обсуждение

Эксперименты проводились на кристаллах LiF-U⁶⁺ с неполным поглощением в максимуме линии 5185 Å ($k(\nu_0) d \approx 1.5-2$, где d — длина кристалла в направлении распространения света, рис. 1, а) с тем, чтобы иметь возмож-

² Собственный электрооптический эффект в кристалле LiF очень мал по величине [1] ($\Delta n \approx 4.8 \cdot 10^{-18}$ в поле 1 В/см, направленном вдоль $\langle 100 \rangle$) и в наших экспериментах им можно было пренебречь.

ность исследовать спектры $\Delta n(\nu)$ не только вне, но и внутри контура линии поглощения $k(\nu)$. Образцами служили кристаллические пластинки размерами $\approx 10 \times 10 \times 1$ мм³, на большие грани которых были нанесены электроды из проводящей пасты. Исследования проводились при 77 К в статическом электрическом поле $\mathcal{E} \parallel \langle 100 \rangle$ в интервале напряженностей поля $\mathcal{E} \approx 10 \div 50$ кВ/см.

Экспериментальные спектры дихроизма $\Delta k(\nu)$, как и ожидалось согласно (2), имели форму, изображенную на рис. 1, б, а их амплитуда была пропорциональна \mathcal{E}^2 (рис. 2). Некоторая асимметрия кривой $\Delta k(\nu)$ может быть связана с начальными натяжениями в образцах и с натяжениями, возникшими, по-видимому, под действием нанесенных на них электродов из проводящей пасты. Об этом свидетельствует сигнал дихроизма в отсутствие поля (рис. 1, б). Он имеет форму близкую к первой производной от контура $k(\nu)$. Сигнал такой формы наблюдался в [9] при одноосном сжатии.

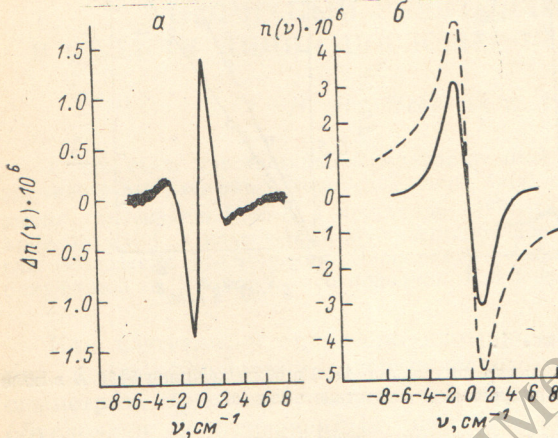


Рис. 3.

а — дифференциальный спектр примесного двуупреомления $\Delta n(\nu)$ в области линии 5185 Å в поле $\mathcal{E} = 41.7$ кВ/см; б — вычисленная по экспериментальным спектрам зависимость $n(\nu)$ в области линии 5185 Å (сплошная линия); расчетная кривая (штриховая линия).

второй производной от дисперсионной кривой показателя преломления $n(\nu)$, а величина амплитуды сигнала пропорциональна квадрату напряженности электрического поля (рис. 2). В спектр двуупреомления, как и в спектр дихроизма, дает небольшой вклад двуупреомление, связанное с упомянутыми выше начальными натяжениями в образце. При количественной обработке спектров двуупреомления этот деформационный вклад был учтен.

Тот факт, что спектры дихроизма $\Delta k(\nu)$ (с учетом начального дихроизма) имеют форму второй производной от контура линии $k(\nu)$, свидетельствует об отсутствии изменений в спектре, приводящих к изменению нулевого, первого, третьего и последующих центральных моментов линии [12]. Поэтому экспериментальная кривая $\Delta n(\nu)$ (с учетом начального двуупреомления), изображенная на рис. 3, а, согласно выражению (1), является второй производной от контура показателя преломления $n(\nu)$. Это обстоятельство дает возможность восстановить дисперсию $n(\nu)$ вне и внутри контура поглощения $k(\nu)$ исследуемой примесной линии дважды интегрируя с переменным верхним пределом экспериментальный спектр $\Delta n(\nu)$. Из (1) следует

$$n(\nu) = \frac{2}{\Delta M_{\parallel}^{(2)} - \Delta M_{\perp}^{(2)}} \int_0^{\nu} \int_0^{\nu} \Delta n(\nu) d^2\nu. \quad (3)$$

Величина $\Delta M_{\parallel}^{(2)} - \Delta M_{\perp}^{(2)}$, также как и в [9], может быть получена путем количественной обработки спектров дихроизма $\Delta k(\nu)$ и поглощения $k(\nu)$. Для этого умножаем обе части (2) на $(\nu - \nu_0)^2$ и, интегрируя в области линии, получаем

$$\Delta M_{\parallel}^{(2)} - \Delta M_{\perp}^{(2)} = \frac{\int (\nu - \nu_0)^2 \Delta k(\nu) d\nu}{\int k(\nu) d\nu}. \quad (4)$$

Следует заметить, что если значения сдвигов $\Delta_{i\parallel(1)}$ и относительных интенсивностей $A_{i\parallel(1)}$, входящих в выражения для вторых дифференциальных моментов, известны из непосредственных измерений эффекта Штарка (как в данном случае [11]), то величина $\Delta M_{\parallel}^{(2)} - \Delta M_{\perp}^{(2)}$ может быть без труда вычислена. Полученная по (4) величина $3.1 \cdot 10^{-10} \text{ см}^{-2}/(\text{В}^2/\text{см}^2)$ находится в удовлетворительном согласии с вычисленной по результатам исследования эффекта Штарка [11] и равной $2.5 \cdot 10^{-10} \text{ см}^{-2}/(\text{В}^2/\text{см}^2)$.

Интегрированием экспериментального спектра дупреломления $\Delta n(\nu)$ по (3) была восстановлена дисперсия показателя преломления $n(\nu)$ в области линии 5185 \AA (рис. 3, б).

Для сравнения с экспериментальной дисперсией показателя преломления была рассчитана кривая $n(\nu)$ (рис. 3, б), исходя из соотношения Крамерса—Кронига

$$n(\nu) = \frac{1}{2\pi^2} \int_0^{\infty} \frac{k(\nu') d\nu'}{\nu'^2 - \nu^2},$$

где $k(\nu')$ — экспериментальный контур поглощения (рис. 1, а), а частота ν в см^{-1} . Как видно из рис. 3, б, положение экстремумов расчетной и экспериментальной кривых дисперсии практически совпадает, а величина амплитуды несколько отличается. Различие амплитуд частично связано, по-видимому, с погрешностью измерения величины $\Delta M_{\parallel}^{(2)} - \Delta M_{\perp}^{(2)}$ (см. (4)), входящей в выражение (3), а на крыльях линии также и с недостаточной точностью измерения $\Delta n(\nu)$ (рис. 3, а). Поскольку величина различия сравнима с величиной погрешности для экспериментальной кривой дисперсии, то нет оснований утверждать, что соотношение Крамерса—Кронига в данном случае не выполняется. Однако более детальные и более точные эксперименты с целью выяснения выполнимости соотношения Крамерса—Кронига представляются целесообразными.

В заключение заметим, что на примере линии 5185 \AA LiF-U^{6+} впервые наблюдался квадратичный электрооптический эффект, связанный со штарковским расщеплением спектральных линий примесных центров. Это явление в принципе может быть использовано для создания узкополосных световых фильтров и для высокочастотной модуляции интенсивности света в узком спектральном интервале.

Авторы благодарны А. Д. Витохину за помощь при обработке результатов на ЭВМ и А. А. Каплянскому за полезные обсуждения.

Л и т е р а т у р а

- [1] S. Haussühl, H. Hesse. Phys. Stat. Sol., 30, 209, 1968.
- [2] E. Anastassakis, E. Burstein. J. Opt. Soc., Am. 61, 1618, 1971.
- [3] А. А. Каплянский, Б. З. Малкин, В. Н. Медведев, А. П. Скворцов. ФТТ, 16, 335, 1974.
- [4] А. П. Скворцов, В. Ульрици. ФТТ, 18, 247, 1976.
- [5] A. Diaz-Góngora, F. Lüty. Sol. St. Comm., 14, 923, 1974.
- [6] G. Zibold, F. Lüty. J. Nonmetals, 1, 17, 1972.
- [7] F. Lüty, A. Diaz-Góngora. Phys. Stat. Sol. (b), 85, 693, 1978.
- [8] A. Diaz-Góngora, F. Lüty. Phys. Stat. Sol. (b), 86, 127, 1978.
- [9] В. Н. Медведев, А. П. Скворцов. Опт. и спектр., 50, 711, 1981.
- [10] О. Д. Гаврилов, А. А. Каплянский, В. Н. Медведев, Н. А. Москвин. Опт. и спектр., 27, 960, 1969.
- [11] А. А. Каплянский, В. Н. Медведев, А. П. Скворцов. Опт. и спектр., 29, 905, 1970.
- [12] В. Н. Медведев. Опт. и спектр., 42, 129, 1977.

Поступило в Редакцию 29 октября 1980 г.