

В. И. БЕЛИНИЧЕР, В. К. МАЛИНОВСКИЙ
(Новосибирск)

РЕЗОНАНСЫ В ТВЕРДОМ ТЕЛЕ И ОПТИЧЕСКАЯ ЗАПИСЬ ИНФОРМАЦИИ

I. Представляется целесообразным рассмотреть возможность применения для записи оптической информации резонансные эффекты в твердом теле. Способ использования резонансных эффектов для оптической записи и обработки информации ясен из рисунка.

Если под действием света энергетический уровень сдвигается (расщепляется) на величину Δ , то возможна эффективная модуляция оптических свойств на частоте ω , близкой к ω_0 . Сдвиг уровня может быть связан с изменением некоторого поля в кристалле: электрического или магнитного поля, поля деформации и т. д.

Из рисунка ясно также, что модуляция наиболее заметна, когда поглощение в центре пика велико $\chi(\omega_0) \sim 1$, а сдвиг энергетического уровня Δ превышает ширину пика поглощения $\Gamma: \Delta \gg \Gamma$.

В оптической области частот наибольший интерес могут представить резонансные эффекты на примесных ионах редкоземельных элементов и эффекты, связанные с возбуждением экситонов. Резонансные эффекты на примесных ионах редкоземельных элементов рассмотрены в [1]. В настоящей работе мы остановимся на резонансных эффектах с возбуждением экситонов.

Оценим величины сдвига резонансной линии поглощения света под действием различных внешних полей:

а) Магнитное поле H . Величина смещения линий при наложении поля H определяется эффектом Зеемана и имеет порядок

$$\Delta_H = \mu H = 10^{-4} \text{ эВ для } H = 5 \cdot 10^4 \text{ Э} \quad (1)$$

(μ — магнетон Бора).

б) Намагниченность M . Величина смещения линии при изменении знака M определяется величиной обменных полей в кристалле

$$\Delta_M = kT_c \approx (5 \cdot 10^{-2} - 10^{-4}) \text{ эВ} \quad (2)$$

(T_c — температура Кюри ферромагнитного перехода).

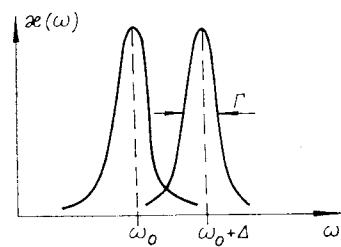
в) Электрическое поле E . Величина сдвига линий при наложении поля E в кристаллах с центром инверсии определяется квадратичным эффектом Штарка

$$\Delta_E'' = E^2 d^{112} / \Delta E \approx 10^{-5} - 10^{-7} \text{ эВ для } E = 10^5 \text{ В/см} \quad (3)$$

(ΔE — расстояние по энергии до ближайшего уровня с дипольным моментом перехода d'').

Линейный эффект Штарка реализуется в кристаллах без центра инверсии, если сдвигаемый уровень обладает отличным от нуля дипольным моментом d' :

$$\Delta_E' = Ed' \approx 10^{-4} \text{ эВ для } E = 10^5 \text{ В/см.} \quad (4)$$



В этом случае направление сдвига уровня по энергетической шкале зависит от направления поля.

г) Поляризация P . Величина смещения уровня зависит от изменения знака в кристаллах без центра инверсии только в той специальной ситуации, когда уровень обладает составляющей дипольного момента d' , не зависящей от P (аналогично линейному эффекту Штарка):

$$\Delta_P = (4\pi P/\epsilon(0)) d' \approx kT_e \approx (5 \cdot 10^{-2} - 10^{-4}) \text{ эВ.} \quad (5)$$

д) Деформация u . Сдвиг уровней из-за деформации кристалла обусловлен эффектом Штарка от локального электрического E_u , возникающего в результате деформации. Для этого поля можно написать оценку

$$E_u = u_{th}(\partial V/\partial x_k) \approx u(\Delta_3/ea) \approx 10^5 \text{ В/см для } u \approx 10^{-3} \quad (6)$$

(V — кристаллический потенциал на атоме (ионе), обладающем оптическим переходом; Δ_3 — ширина зоны; a — постоянная решетки). Для оценки величины сдвига можно воспользоваться оценками (3), (4).

Из проведенных оценок следует, что для наблюдения заметной модуляции диэлектрической проницаемости нужны узкие резонансные линии с шириной пика поглощения $\Gamma \leq 10^{-4}$ эВ.

II. Диэлектрическая проницаемость кристалла в окрестности резонансной линии оптического поглощения с частотой Ω_0 имеет вид

$$\varepsilon(\omega, k) \underset{\omega \sim \omega_0}{=} \varepsilon_\Phi(\omega_0) + \varepsilon_p(\omega); \quad \varepsilon_p(\omega) = (2\omega_0)^{-1} \omega_\pi^2 F / (\Omega_0(k) - \omega - i\gamma). \quad (7)$$

Здесь $\varepsilon_\Phi(\omega_0)$ — нерезонансная часть диэлектрической проницаемости; $\varepsilon_p(\omega)$ — резонансный вклад; $\omega_\pi = (4\pi n e^2/m)^{1/2}$ — плазменная частота, n — концентрация оптически активных центров, m_e — масса электрона, e — электрический заряд; F — эффективная сила осциллятора оптического перехода в кристалле; γ — ширина энергетического уровня в кристалле.

Резонансные эффекты, связанные с рождением экситонов, исследовались с экспериментальной и теоретической точек зрения в [2—5]. Основная особенность резонансных эффектов на экситонах — необходимость учета пространственной дисперсии в окрестности линии поглощения, т. е. в формуле (7) необходимо учесть зависимость энергии экситона от волнового вектора k :

$$\Omega_0(k) = \Omega_0 + k^2/2m_s,$$

где m_s — масса экситона.

Будем считать, что $m_s > 0$. Для квадрупольных и магнитно-дипольных переходов с возбуждением экситона надо учитывать зависимость силы осциллятора от k : $F \Rightarrow \frac{k^2}{\omega_0^2} F$. Для нахождения показателя преломления $n(\omega)$ в окрестности частоты Ω_0 используется равенство $n^2(\omega) = \varepsilon(\omega, \Omega_0(\omega))$, тогда

$$\begin{aligned} n^2(\omega) &= \varepsilon_\Phi(\omega_0) + m_s (-\alpha \pm (\alpha^2 + \beta^2)^{1/2})/\omega_0^2; \\ \alpha &= \omega_0 - \omega - i\gamma; \quad \beta^2 = \omega_\pi^2 \omega_0 F / m_s, \end{aligned} \quad (8)$$

где $\omega_0 = \Omega_0 + \delta + \Omega_0^2 \varepsilon_\Phi(\omega_0)/2m_s$, $\delta = 0$ для дипольных переходов, $\delta = -\omega_\pi^2 F / 2\omega_0$ для квадрупольных и магнитно-дипольных переходов. Знак «плюс» перед корнем в выражении для n^2 соответствует обычной световой волне, а знак «минус» — добавочной волне, имеющей смысл в окрест-

ности резонанса [5]. Условия, благоприятные для наблюдения узких резонансных пиков поглощения, противоположны условиям, в которых существует вклад добавочной волны, поэтому эффекты, связанные с добавочной волной, рассматривать не будем. Формула (8) для n^2 носит резонансный характер для $\omega \sim \omega_0$ только в том случае, если $\gamma \geq \beta$, поэтому для оценок мы будем считать

$$\gamma = \beta \approx 0,5\Delta \approx 10^{-4} \text{ эВ} \approx 10^{11} \text{ с}^{-1}. \quad (9)$$

При соблюдении (9) показатель преломления заметным образом меняется в окрестности резонансной линии:

$$\begin{aligned} n(\omega_0) + i\kappa(\omega_0) &\simeq \epsilon_\phi + i\gamma m_s/2\epsilon_\phi \omega_0^2; \\ n(\omega_0 + \Delta) + i\kappa(\omega_0 + \Delta) &\simeq \epsilon_\phi + (0,2 + i0,1) \gamma m_s/2\epsilon_\phi \omega_0^2. \end{aligned} \quad (10)$$

Для прозрачных кристаллов $\epsilon_\phi \approx 5$, m_s порядка массы электронов ($m_s = m_e \approx 10^{21} \text{ с}^{-1}$, $\gamma \approx 10^{11} \text{ с}^{-1}$, $\omega_0 = 3 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, т. е. характерный коэффициент поглощения в центре линии $\kappa \approx 1$ при смещении на двойную ширину линии падает в 10 раз).

Обсудим, при каких условиях реализуется соотношение (9). Для $\omega_n \approx 10^{16} \text{ с}^{-1}$, $\beta \approx 10^{13} (F)^{1/2} \text{ с}^{-1}$, т. е. необходимы переходы с силой осциллятора $F = 10^{-4} m_s/m_e$, что может быть реализовано на слабо запрещенных дипольных или магнитно-дипольных и квадрупольных переходах. Использование магнитно-дипольных переходов удобно в присутствии магнитного поля (намагниченности), так как уровни рожденного светом триплетно экситона оказываются расщепленными, что должно приводить к циркулярному дихроизму.

Величина затухания экситонной линии γ определяется фотонными процессами, а также неоднородным уширением экситонной линии: $\gamma = \gamma_\phi + \gamma_n$. Для $m_s > 0$ и $T \ll \theta$ (θ — температура Дебая) однофононные процессы поглощения акустических фононов дают доминирующий вклад в γ_ϕ [3]:

$$\gamma_\phi = (b/a)^2 \omega_D \exp(-2m_s c_s^2/T). \quad (11)$$

Здесь $\omega_D \approx 10^{13} \text{ с}$ — частота Дебая, a — постоянная решетки, b — средний радиус нулевых колебаний ионов кристалла, c_s — скорость звука. Из (11) следует, что при низких температурах $T < m_s c_s^2 \approx (1-10)^\circ \text{К}$ легко выполнить условие (9), если основной вклад в затухание вносит величина γ_ϕ . При более высоких температурах выполнение приближения (9) определяется параметром b/a .

Неоднородное уширение связано со случайными электрическими полями, существующими в кристалле. Величина этих полей определяется типом и количеством дефектов и существенно зависит от технологии изготовления кристалла [5].

Экспериментально экситонные линии поглощения наблюдались в различного типа кристаллах: CdS, CdSe, CuO₂ и др. [4—6]; узкие экситонные линии — лишь при гелиевых температурах (см., например, для CdS [5]). Наблюданная ширина линии Г была порядка 10^{-3} эВ, коэффициент поглощения $\kappa = 10$, затухания экситонной линии $\gamma = 10^{-4}$ эВ.

Из этих данных ясно, что в работе [5] ширина линии поглощения определяется не затуханием экситонной линии γ , а параметром экситон-фотонного смешивания $\beta = \Gamma = 10^{-3}$ эВ. Выбор перехода с меньшей силой осциллятора должен привести к линиям поглощения с шириной порядка 10^{-4} эВ. В работе [5] отмечено также, что значение $\kappa(\omega_0)$ меняется от образца к образцу, т. е. $\gamma = 10^{-4}$ эВ определяется не взаимодействием экситонов с фононами, а неоднородностями кристалла.

III. Структура твердого тела позволяет реализовать условия, в которых могут существовать гигантские узкие пики в комплексном показателе преломления. Условия существования таких пиков на примесных редкоземельных ионах (ПРИ) были разобраны в [1], а на оптических переходах с рождением экситонов (ОПРЭ)—в настоящей работе. Произведем сравнение требований к типу перехода и структуре кристалла в этих двух случаях.

При ПРИ требуется, чтобы сила осциллятора оптического перехода была максимальной $F \sim 1$, что практически ограничивает тип ионов Eu^{++} , Sm^{++} . В случае ОПРЭ условие противоположно $F \leq 10^{-4}$, т. е. переходы могут быть запрещенные дипольные, магнитно-дипольные и квадрупольные. Для ПРИ имеется сильное ограничение на тип перехода и тип кристалла: фактор Дебая—Уоллера оптического перехода должен быть порядка $W \approx 1$ [1]. Подобное условие в случае ОПРЭ отсутствует, так как $W=1$ при слабой экситон-фононной связи.

Для ПРИ и ОПРЭ важным является условие на температуру кристалла $T:T \ll \theta$ (θ —температура Дебая), при этом ширина линии, обусловленная электрон-фононным взаимодействием для ПРИ, падает как $(T/\theta)^7$, а в случае ОПРЭ—экспоненциально с температурой.

Имеется существенное ограничение на качество кристалла: неоднородное уширение оптической линии, обусловленное дефектами, должно быть меньше сдвига (расщепления) линии внешним полем. Необходимы кристаллы такого качества, чтобы неоднородное уширение линии было 10^{-5} эВ, т. е. на порядок меньше, чем у существующих в настоящее время. Создание таких кристаллов представляет актуальную технологическую проблему.

В заключение отметим, что оптические резонансы в твердом теле могут эффективно использоваться для целей оптической памяти. Условия, которые при этом надо выполнить, довольно жесткие: высокая чистота и однородность материала, низкие температуры, наличие лазеров с узкой линией подходящей частотой.

ЛИТЕРАТУРА

1. В. И. Белиничер, В. К. Малиновский. Возможность наблюдения гигантских резонансных эффектов на примесных ионах редкоземельных элементов.—«ФТТ», 1975, т. 17, с. 3194.
2. В. Л. Агранович, В. Л. Гинзбург. Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов. М., «Наука», 1965.
3. А. С. Давыдов. Теория молекулярных экситонов. М., «Наука», 1968.
4. Е. Ф. Гросс, С. А. Пермогоров, Б. С. Разбираин. Аннигиляция экситонов и экситон-фононное взаимодействие.—«УФН», 1971, т. 103, с. 431.
5. С. И. Пекар, М. И. Страшникова. Пространственная дисперсия и добавочная световая волна в области экситонного поглощения CdSe.—«ЖЭТФ», 1975, т. 68, с. 2047.
6. L. A. Avdeeva, P. I. Perov, M. I. Elinson, L. G. Kuaginskaya. Electrodispersion in thin film.—«Phys. Stat. Sol.», 1973, vol. 16, p. 323.

Поступила в редакцию 2 февраля 1976 г.