

В двойном логарифмическом масштабе мы построили зависимость экспериментально определенной величины  $\Delta\theta = \theta(x) - \theta(x=0)$  от концентрации примесных ионов  $x$  (вставка на рис. 3). Экспериментальные точки хорошо ложатся на прямую с тангенсом угла наклона, равным  $1/3$ , откуда следует, что величина  $\Delta\theta$  есть функция концентрации примесных ионов в степени  $1/3$ . Из этого графика мы нашли  $C$ , а затем, подставляя в (3) следующие значения для исследованных нами материалов:  $S=3/2$ ,  $a \sim 10 \text{ \AA}$ , получили величину  $(AS)^2(m^*/m_0) = 0,37 \text{ эВ}^2$ . Полагая  $m^* = m_0$ , получаем  $AS \sim 0,6 \text{ эВ}$ , т. е. в данном материале наблюдается сильный  $s-d$ -обмен.

В заключение выражаем благодарность К. П. Белову и Э. Л. Нагаеву за обсуждение результатов и постоянный интерес к работе.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] Pinch H. L., Wood M. J., Lopatin E. Mater. Res. Bul., 1970, 5, N 6, p. 425. [2] Kanomata T., Ido H. J. Phys. Soc. Japan, 1974, 36, N 5, p. 1322. [3] Lotgering F. K. Solid State Comm., 1964, 2, N 2, p. 55. [4] Lotgering F. K. In: Proc. Int. Conf. Magnetism. Nottingham, 1964, p. 533. [5] Vitins J., Wachter P. Solid State Comm., 1973, 13, p. 1273. [6] Андрианов Д. Г., Дроздова Л. И., Цветкова Н. А. ФТТ, 1978, 75, № 6, с. 2228. [7] Белов К. П., Королева Л. И., Цветкова Н. А. ФТТ, 1981, 23, № 2, с. 372. [8] Белов К. П., Королева Л. И. и др. Физ. мет. и металловедение, 1981, 52, № 2, с. 314. [9] Нагаев Э. Л. ЖЭТФ, 1968, 54, № 1, с. 228. [10] Нагаев Э. Л. Физика магнитных полупроводников. М.: Наука, 1979. [11] Нагаев Э. Л. ФТТ, 1971, 13, № 3, с. 891.

Поступила в редакцию  
28.10.81

ВЕСТН. МОСК. УН-ТА. СЕР. 3. ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ, 1983, т. 24, № 1

УДК 621.375.826

#### СЕЧЕНИЕ ДВУХФОТОННОГО ПОГЛОЩЕНИЯ В $F_2^+$ -ЦЕНТРАХ ЩЕЛОЧНО-ГАЛОИДНЫХ КРИСТАЛЛОВ

В. Ф. Камалов, Ю. П. Свирко

(кафедра общей физики и волновых процессов)

1. Центры окраски (ЦО) щелочно-галоидных кристаллов интенсивно используются в настоящее время в качестве активной среды для перестраиваемых оптических генераторов ближнего ИК-диапазона [1]. Для получения генерации используется переход между основным и первым возбужденным состояниями, характеристики которых хорошо изучены в линейной спектроскопии. Тем не менее в связи с развитием работ по использованию ЦО в оптических устройствах встает вопрос о полной структуре энергетических уровней, в частности запрещенных в однофотонном поглощении из основного состояния. Информацию о них можно получить с помощью методов нелинейной спектроскопии, например используя спектроскопию двухфотонного поглощения, сечение которого определяется мнимой частью нелинейной кубической восприимчивости  $\chi^{(3)}$ . Эффективность методов нелинейной спектроскопии, таким образом, определяется величиной  $\chi^{(3)}$ . Поэтому актуальным является вопрос об оценке этого главного нелинейно-оптического параметра для ЦО в щелочно-галоидных кристаллах. В нашей работе приводится метод расчета нелинейных кубических восприимчивостей  $F_2^+$ -центров; в качестве примера получены значения для сечения двухфотонного поглощения таких центров в кристаллах LiF и KF.

2.  $F_2^+$ -центр представляет собой электрон, локализованный на двух соседних анионных вакансиях. Для этого дефекта кристалла применима модель молекулярного иона водорода  $H_2^+$  [2], согласно которой значения энергетических уровней электронных состояний  $F_2^+$ -центра  $E_{F_2^+}$  находятся из соотношения

$$E_{F_2^+}(r) = \epsilon^{-2} E_{H_2^+}(r/\epsilon), \quad (1)$$

где  $E_{H_2^+}$  — значения энергетических уровней электронных состояний  $H_2^+$ -иона,  $\epsilon$  — диэлектрическая проницаемость кристалла,  $r$  — расстояние между анионными вакансиями  $F_2^+$ -центра.

Расчет структуры электронных состояний  $H_2^+$ -иона — классическая задача квантовой механики. Зависимости энергии электронных состояний  $H_2^+$ -иона от расстояния между ядрами  $R$  для первых десяти уровней приведены в [3], квантовомеханический расчет сил осцилляторов различных переходов содержится в работах [4—6]. Значения параметра  $r$  в (1) для поглощения из основного состояния определяются по известной из линейной спектроскопии резонансной частоте. Это позволяет определить необходимые для дальнейших вычислений  $\chi^{(3)}$  значения дипольных моментов и энергий.

$F_2^+$ -центры характеризуются сильным электрон-фононным взаимодействием. В результате равновесным состояниям различных электронных термов соответствуют различные конфигурации близлежащих к дефекту ионов. Следствием этого является различие энергии оптических переходов при поглощении и люминесценции. В рамках данной модели это выражается в том, что поглощение и люминесценция происходят при различных параметрах  $r$  в (1). Поэтому по известной частоте лю-

Таблица 1

Частоты  $\omega_{ij}$  оптических переходов и соответствующие дипольные моменты  $d_{ij}$  для кристаллов KF и LiF. Приведен расчет для переходов при конфигурации ионов, соответствующей поглощению ( $r_1$ ) и люминесценции ( $r_2$ ). Звездочкой отмечены экспериментальные значения, полученные в работе [7]

Оптический переход $i \rightarrow j$	KF			LiF		
	$r_1 = 1,60 \text{ \AA}$	$r_2 = 1,70 \text{ \AA}$	$r_1 = 1,35 \text{ \AA}$	$r_2 = 1,55 \text{ \AA}$		
	$\omega_{ij}, 10^{15} \text{ с}^{-1}$	$\omega_{ij}, 10^{15} \text{ с}^{-1}$	$\omega_{ij}, 10^{15} \text{ с}^{-1}$	$\omega_{ij}, 10^{15} \text{ с}^{-1}$	$\omega_{ij}, 10^{15} \text{ с}^{-1}$	$d_{ij}, 10^{-18} \text{ ед. СГСЭ}$
$1s \sigma_g \rightarrow 2p \sigma_u$	1,79/1,79*	1,46/1,46*	2,92	2,04	7,13	
$1s \sigma_g \rightarrow 2p \pi_u$	5,12/4,90*	4,95	6,65	6,03	4,03	
$2p \sigma_u \rightarrow 2s \sigma_g$	3,89	3,93/3,97*	4,19	4,49	2,98	
$2p \sigma_u \rightarrow 3d \sigma_g$	4,38	4,32/3,33*	5,14	5,14	4,86	
$2p \sigma_u \rightarrow 3d \pi_g$	4,73	4,71/4,73*	5,40	5,51	3,25	
$2p \pi_u \rightarrow 3d \pi_g$	1,50	1,43	1,99	1,79	8,44	
	8,13/4,81*	8,55		6,35		
	4,49/2,48*	4,58		3,86		
	3,26	3,15/1,40*		3,25		
	5,44	5,61/3,19*		4,58		
	3,63	3,65/2,58*		3,21		
	9,45	9,79		7,87		

минесценции можно из (1) восстановить соответствующее  $\gamma$  и провести вычисление энергетической структуры. Рассчитанные по описанной методике частоты переходов  $\omega_{ij}$  для  $F_2^+$ -центров в кристаллах KF и LiF сведены в табл. 1. Там же приведены полученные из эксперимента [7] значения частот переходов для  $F_2^+$ -центров в кристалле KF. Хорошее согласие наблюдается для всех электронных состояний, кроме состояния  $3d\sigma_g$  (расхождение здесь составляет около 30%), и для дипольных моментов.

3. Рассчитанные значения  $d_{ij}$  и  $\omega_{ij}$  могут быть использованы для вычисления электронных оптических восприимчивостей. Основной нелинейно-оптической характеристикой центрально-симметричных сред, к которым относятся щелочно-галогидные кристаллы с ЦО, является кубическая восприимчивость  $\chi^{(3)}$ , величина которой определяет эффективность генерации третьей гармоники, насыщения оптического поглощения и других процессов, идущих на электронной нелинейности ЦО. В данной работе мы ограничились нахождением коэффициента двухфотонного поглощения (ДФП), однозначно определяемого мнимой частью кубической восприимчивости  $\text{Im } \chi^{(3)}$  [8]:

$$\beta = (96\pi^2\omega/c^2n^2) \text{Im } \chi^{(3)}. \quad (2)$$

Здесь  $\omega$  — частота излучения,  $n$  — показатель преломления кристалла. Вычисление  $\text{Im } \chi_R^{(3)}$  проводилось по теории возмущений [9]:

$$\text{Im } \chi_R^{(3)} = \frac{L^4 N}{\hbar^3 \Gamma_{ij}} \left| \sum_k \frac{d_{ik} d_{kj}}{\omega_{jk} - \omega} \right|^2, \quad (3)$$

где  $L$  — фактор Лоренца,  $N$  — концентрация ЦО. Значения резонансной части кубической восприимчивости  $\text{Im } \chi_R^{(3)}$  для переходов из основного состояния в состояния  $2s\sigma_g$ ,  $3d\sigma_g$ ,  $3d\pi_g$   $F_2^+$ -центров в кристаллах KF и LiF приведены в табл. 2. Здесь же даны вычисленные по (2) значения коэффициента ДФП и сечения ДФП. Расчет проводился с учетом промежуточных состояний  $2p\sigma_u$  и  $2p\pi_u$ .

Таблица 2

Значения мнимой части резонансного значения кубической восприимчивости  $\text{Im } \chi_R^{(3)}$ , коэффициента ДФП  $\beta$  и сечения ДФП  $\delta = (\hbar\omega/8\pi^2 N) \beta$  для  $F_2^+$ -центров в кристаллах KF и LiF. Расчет приведен для концентрации  $F_2^+$ -центров  $N = 10^{17} \text{ см}^{-3}$

Оптический переход	KF			LiF		
	$\text{Im } \chi_R^{(3)}$ , $10^{-17}$ ед. СГСЭ	$\beta$ , $10^{-12}$ см/Вт	$\delta$ , $10^{-50}$ см <sup>4</sup> ·с	$\text{Im } \chi_R^{(3)}$ , $10^{-17}$ ед. СГСЭ	$\beta$ , $10^{-12}$ см/Вт	$\delta$ , $10^{-50}$ см <sup>4</sup> ·с
$1s\sigma_g - 2s\sigma_g$	6,79	0,98	3,7	5,90	1,14	5,4
$1s\sigma_g - 3d\sigma_g$	9,12	1,43	5,9	5,56	1,22	6,6
$1s\sigma_g - 3d\pi_g$	7,30	1,22	5,3	3,16	0,72	4,0

4. Модель молекулярного иона водорода, таким образом, позволяет вычислить коэффициент двухфотонного поглощения в  $F_2^+$ -центрах щелочно-галогидных кристаллов. Необходимо отметить, однако, что проведенное выше рассмотрение носит ограниченный характер. Именно, нами рассмотрены здесь лишь переходы, разрешенные принципом Франка—Кондона, т. е. в стороне остаются вопросы, связанные с процессами релаксации и электрон-фононным взаимодействием, которое мы здесь учитываем только феноменологически, вводя эффективную ширину линии оптического перехода. Тем не менее хорошее согласие

энергий оптических переходов и соответствующих дипольных моментов с экспериментальными значениями указывает на применимость модели  $H_2^+$ -иона для расчета электронной структуры и определения величины нелинейных оптических восприимчивостей  $F_2^+$ -центров.

Авторы благодарны Л. В. Виноградовой и Н. И. Коротееву за помощь в работе и полезные обсуждения.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] Mollenauer L. F. Color Center Lasers Preprint of Bell Laboratories, 1980. [2] Herman R., Wallis M. C., Wallis R. F. Phys. Rev., 1956, 103, p. 87. [3] Bates D. R., Lenshaman K., Stewart A. L. Phil. Trans. Roy. Soc. (London), 1953, A246, p. 215. [4] Bates D. R. J. Chem. Phys., 1951, 19, p. 1122. [5] Bates D. R., Darling R. T. S. et al. Proc. Phys. Soc., 1953, A66, p. 1124. [6] Bates D. R., Darling R. T. S. et al. Proc. Phys. Soc., 1954, A67, p. 533. [7] Mollenauer L. F. Phys. Rev. Lett., 1979, 43, p. 1524. [8] Lin P., Yen R., Blombergen N. Appl. Opt., 1979, 18, p. 1015. [9] Бломберген Н. Нелинейная оптика. М.: Мир, 1965.

Поступила в редакцию  
09.11.81

ВЕСТН. МОСК. УН-ТА. СЕР. 3. ФИЗИКА. АСТРОНОМИЯ, 1983, т. 24, № 1

УДК 621.372.325

#### ОТРАЖЕНИЕ СВЕТА ОТ ГРАНИЦЫ РАЗДЕЛА СРЕД ПРИ ТЕПЛОВОЙ НЕЛИНЕЙНОСТИ

С. П. Чернов, А. В. Шепелев

(кафедра квантовой теории; кафедра квантовой радиофизики)

В последнее время появился ряд работ [1—4], посвященных исследованию эффекта нелинейного термического отражения (НТО), обусловленного наличием тепловой нелинейности у одной из сред, образующих границу раздела. Интерес к этому эффекту объясняется двумя причинами. Во-первых, несмотря на детальную изученность теплового самовоздействия, вопрос об отражении света от среды, обладающей тепловой нелинейностью, к 1978 г. был почти не изучен (имелась единственная работа [5]). Во-вторых, эффект НТО может быть использован для управления временными и пространственными характеристиками излучения.

Будем в дальнейшем называть самовоздействием тот случай, когда сам луч, претерпевающий отражение, нагревает поглощающую среду. Случай, когда нагрев поглощающей среды определяется в основном сторонним излучением, будем называть случаем стороннего нагрева.

**Теория.** Рассмотрим отражение от границы раздела, образованной прозрачным твердым телом и поглощающей жидкостью, которая обладает тепловой нелинейностью. Показатель преломления жидкости изменяется при ее нагреве следующим образом [6]:

$$n(T) = n_0 + \int_{T_0}^T \left\{ \left( \frac{\partial n}{\partial T} \right)_\rho + \alpha \rho \left( \frac{\partial n}{\partial \rho} \right)_T \right\} dT. \quad (1)$$

Здесь  $T_0$  и  $T$  — начальная и конечная температуры,  $n_0 = n(T_0)$ ,  $\rho$  — плотность,  $\alpha$  — коэффициент термического расширения. Для малых  $\Delta T = T - T_0$  и при постоянном давлении относительный показатель пре-