

## Литература

- [1] О. В. Богданкевич, С. А. Дарзбек, П. Г. Елисеев. Полупроводниковые лазеры. «Наука», М., 1976.
- [2] А. А. Реза, Г. А. Бабонас, А. Ю. Шилейка. Квант. электрон., 4, 2257, 1977.
- [3] Н. С. Лешенюк, Л. Н. Орлов, С. С. Шевченко, Ж. прикл. спектр., 22, 1016, 1975.
- [4] B. Tell, J. M. Worlock, R. J. Martin. Appl. Phys. Lett., 6, 123, 1965.
- [5] G. Babonas, A. Reza, A. Šileika. Phys. St. Sol. (b), 55, 321, 1973.
- [6] P. Y. Yu, M. Cardona. J. Phys. Chem. Sol., 34, 29, 1973.
- [7] В. М. Левин, Р. Г. Маев, И. А. Полуэктов. Препринт № 122, ФИАН СССР, М., 1975.
- [8] R. Berkowicz, T. Scettrup. Phys. Rev., B11, 2316, 1975.
- [9] А. А. Реза, Г. А. Бабонас. ФТТ, 16, 1414, 1974.
- [10] С. А. Гейдур, А. Н. Пихтин, В. Т. Прокопенко, А. Д. Яськов. Опт. и спектр., 46, 714, 1979.
- [11] А. Н. Пихтин, Д. А. Яськов. ФТТ, 12, 1597, 1970.
- [12] А. Н. Пихтин, В. Т. Прокопенко, В. С. Рондарев, А. Д. Яськов. Опт. и спектр., 43, 711, 1977.
- [13] С. А. Гейдур, В. Т. Прокопенко, А. Д. Яськов. ФТТ, 20, 2858, 1978.
- [14] J. A. Van Vechten. Phys. Rev., 187, 1007, 1969.

Поступило в Редакцию 25 августа 1979 г.

УДК 535.37 : 548.0

## ЛАВИННОЕ ТУШЕНИЕ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ

В. В. Овсянкин и А. А. Федоров

В этой заметке мы продемонстрируем специфическую нелинейность зависимости люминесцентных характеристик твердых тел, склонных к температурному тушению люминесценции, от интенсивности возбуждающего излучения. Происхождение нелинейности связано с тем, что начиная с определенных интенсивностей возбуждения такие системы становятся неустойчивыми по отношению к слабому тепловому возмущению в том смысле что присутствие в возбужденном объеме затравочных фононов вызывает лавинную реакцию их размножения за счет энергии, запасенной в электронной подсистеме, и высвобождающейся в процессе безызлучательной дезактивации. Одновременно происходит сброс населенности возбужденных электронных состояний, феноменологически проявляющийся в резком падении квантового выхода люминесценции. Параметры процесса зависят от природы объекта и механизма температурного тушения, но в целом структура явления допускает весьма общее формальное рассмотрение, не зависящее от конкретных деталей.

В основу рассмотрения можно положить представление об элементарном акте тушения как процессе неупругого рассеяния фонона частоты  $\omega$  на возбужденном люминесцирующем центре с энергией  $E_{эл.}$ , сопровождающемся рождением  $p$  фононов с частотами  $\omega_p$ , так, что  $E_{эл.} = \sum_p \hbar\omega_p$ . Процесс может быть охарактеризован сечением, зависящим от частоты фонона  $\sigma(\omega)$  и при  $E_{эл.} \gg \hbar\omega$ , очевидно, удовлетворяет необходимому условию для осуществления лавинной реакции: число фононов, рождаемых в элементарном акте реакции, превышает число фононов, инициировавших реакцию. Достаточное условие для возникновения лавинного размножения фононов можно записать в виде

$$n^* \sum_p \sigma_p \nu_p \tau_p > 1, \quad (1)$$

где  $n^*$  — концентрация возбужденных центров,  $v_p$  — групповая скорость фононов и  $\tau_p$  — время жизни фононов в возбужденном объеме. Физический смысл этого условия прозрачен — необходимо, чтобы в среднем больше, чем один фонон, из рожденных в элементарном акте тушения рассеялся на возбужденном центре до выхода из возбужденного объема. Так как величины  $\sigma_p$ ,  $v_p$  и  $\tau_p$  являются параметрами системы ( $\tau_p$  зависит еще и от формы возбуждаемого объема), то из (1) следует пороговый характер явления по отношению к населенности возбужденных состояний, а следовательно, и к интенсивности возбуждения. Если процессы возбуждения или люминесценции не сопровождаются хотя бы частичной диссипацией энергии в решетку, т. е. затрагивают только электронную подсистему, то, несмотря на

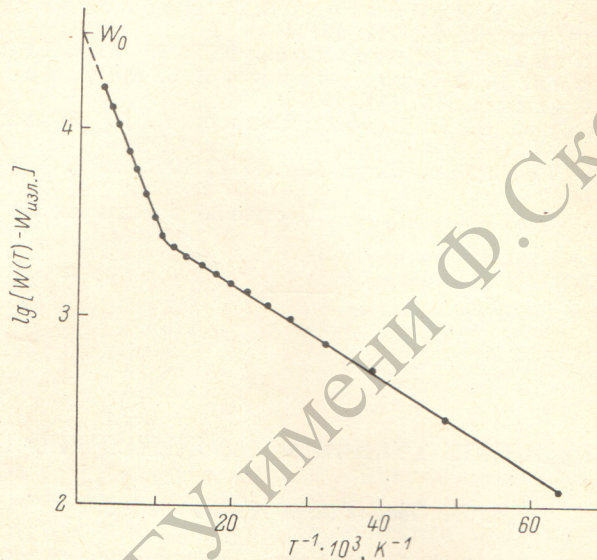


Рис. 1. Температурная зависимость начальной скорости затухания люминесценции ионов  $Yb^{3+}$  в кристалле  $SrYb_2F_8$ .

выполнение условия (1), образования фононной лавины не произойдет из-за отсутствия в системе внутренних источников фононного шума. Однако из-за конечной вероятности электронно-колебательных переходов такие источники всегда имеются. Оценка пороговых интенсивностей возбуждения в общем виде вряд ли возможна, так как связана с проблемой распространения фононов в твердых телах, обсуждение которой увело бы нас слишком далеко от существа рассматриваемого явления. Вместо этого мы приведем результаты экспериментального исследования лавинного тушения люминесценции, обнаруженного нами в кристаллах  $SrYb_2F_8$ . Но прежде чем перейти к изложению экспериментальной части работы, рассмотрим основные феноменологические проявления эффекта в условиях импульсного возбуждения.

Для этого рассмотрим твердотельную систему, температурная зависимость квантового выхода люминесценции которой описывается типичным выражением  $\eta(T) = W_{изл.} / (W_{изл.} + W_0 e^{-\Delta/kT})$ . Будем считать, что до действия возбуждающего импульса системы находится при  $T=0$  К и что длительность возбуждающего импульса много меньше обратной величины предельной скорости температурного тушения, т. е.  $\tau_n \ll W_0^{-1}$ . При этих условиях зависимость начальной интенсивности люминесценции —  $I(t)/I_{t=\tau_n} = I_0$  от интенсивности возбуждения ( $E$ ) ведет себя так же, как и в системе, не подверженной температурному тушению. В то же время начальная скорость затухания люминесценции (при наличии в системе собственного фононного шума) резко изменится при достижении пороговой населенности от величины  $W_{изл.}$  до  $W_0$ . Параллельно квантовый выход

свечения, экспериментально определяемый как отношение  $W_{изл.} \int_0^{\infty} I(t) dt / I_0$ ,

упадет от значения 1 до величины, равной  $W_{изл.} / W_0$ .

В исследованных нами кристаллах  $SrYb_2F_8$  люминесцирующими центрами являются ионы  $Yb^{3+}$ , локальные позиции которых неэквивалентны из-за статистического характера распределения ионов иттербия и стронция по катионным, а фторовых вакансий — по анионным позициям в разупорядоченной структуре тисонита ( $LaF_3$ ), в которой кристаллизуется  $SrYb_2F_8$ . Температурное тушение люминесценции этой системы, график которого приведен на рис. 1, вызвано термоактивированной диффузией возбуждений

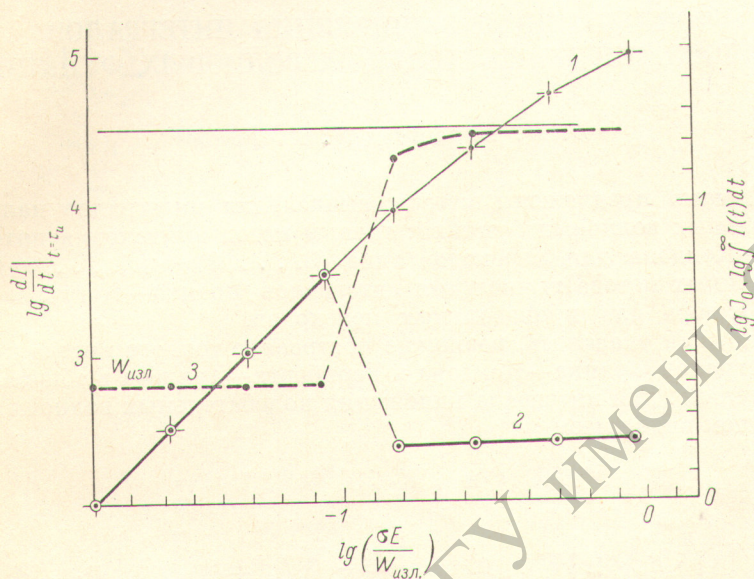


Рис. 2. Зависимости  $lg I_0(I)$ ,  $lg \int_0^{\infty} I(t) dt$  (2),  $lg \frac{dI}{dt} \Big|_{t=\tau_n}$  (3) от  $lg \left( \frac{\sigma E}{W_{изл.}} \right)$ .

по ансамблю неоднородно уширенных осцилляторов к малому числу неконтролируемых тушащих примесей, характеризующихся высокой скоростью безызлучательных переходов. Результаты измерений в виде зависимостей

$lg I_0$ ,  $lg \int_0^{\infty} I(t) dt$  и  $lg \frac{dI}{dt} \Big|_{t=\tau_n}$  от  $lg(\sigma E / W_{изл.})$ , где  $\sigma$  — сечение поглощения и

$E$  — плотность возбуждения, приведены на рис. 2 и получены при следующих условиях эксперимента. Кристаллическая пластинка толщиной 0.02 мм и оптической плотностью, равной 0.3 в максимуме резонансной полосы поглощения ( $\lambda = 975.0$  нм), помещалась в криостат с жидким гелием при  $T = 2$  К непосредственно за диафрагмой с диаметром 0.05 мм. Этим достигалось равномерное по всему облучаемому объему возбуждение образца (дифракционный размер фокального пятна источника возбуждения составлял 0.1 мм) и исключалась возможность срыва излучения в суперлюминесценцию. Источником возбуждения служил лазер на красителе с параметрами  $\tau_n = 30$  нс и  $\lambda_{ген.} = 975.0$  нм, удовлетворяющими условию  $\tau_n \ll W_0$ . Фотоотклик регистрировался ФЭУ-84 с временным разрешением 20 нс. Как видно из рис. 2, полученные зависимости вполне соответствуют теоретической модели явления. В условиях эксперимента пороговая населенность, соответствующая возникновению фоновой лавины («переключение» люминесценции), составляла  $\sim 0.05 N$ , где  $N$  — концентрация ионов иттербия в кристалле.

Авторы благодарны И. Г. Подколзиной, Л. Ф. Карякиной и Т. С. Семеновой за выращенные для исследования кристаллы и П. П. Феофилу за интерес к работе и ценные замечания.

Поступило в Редакцию 27 августа 1979 г.

УДК 539.192

## ТОЧНЫЙ МЕТОД ВЫЧИСЛЕНИЯ ИНТЕГРАЛОВ НАЛОЖЕНИЯ КОЛЕБАТЕЛЬНЫХ ВОЛНОВЫХ ФУНКЦИЙ

В. И. Баранов и Л. А. Грибов

В [1] нами предложены методы вычисления интегралов наложения колебательных волновых функций: точный метод вычисления интегралов Франка—Кондона для переходов типа  $(0, \dots, 0) \rightarrow (v'_1, \dots, v'_M)$  и два приближенных метода вычисления интегралов Франка—Кондона и Герцберга—Теллера для произвольных переходов.

Однако, как оказалось, возможно построение точного метода вычисления интегралов Франка—Кондона и Герцберга—Теллера в общем случае. Действительно, для интеграла наложения колебательных волновых функций в общем виде имеем

$$\begin{aligned} \langle v' | f(\xi) | v \rangle &= \int \Psi_{v'}^*(\xi') f(\xi) \Psi_v(\xi) d\xi = \\ &= N \int \left\{ \prod_{i=1}^M H_{v'_i}(\xi'_i) \prod_{k=1}^M H_{v_k}(\xi_k) \exp \left[ -\frac{1}{2} \sum_{l=1}^M (\xi_l'^2 + \xi_l^2) \right] f(\xi) \right\} d\xi_1 \dots d\xi_M, \quad (1) \end{aligned}$$

где  $H_n(\xi)$  — полиномы Эрмита,  $\xi'$  и  $\xi$  — нормированные на амплитуды нулевых колебаний нормальные координаты комбинирующих электронных состояний,  $\xi' = J\xi + \Delta$ ,  $f(\xi) = \prod_{i=1}^M \xi_i^{\alpha_i}$  — весовая функция, появляющаяся при учете электронно-колебательного взаимодействия в рамках адиабатического приближения.

Видим, что, если провести некоторое унитарное преобразование  $\xi = \mathcal{L}\zeta$  —  $\mathcal{L}\Delta^{-1}\mathcal{L}J\Delta$  (и соответственно  $\xi' = \mathcal{F}\zeta + (1 - \mathcal{F}\Delta^{-1}\mathcal{F})\Delta$ ,  $\mathcal{F} = J\mathcal{L}$ ), такое, что показатель степени экспоненты преобразуется к квадратичному виду

$$-\frac{1}{2} \sum_{l=1}^M (\xi_l'^2 + \xi_l^2) = -\frac{1}{2} \sum_{l=1}^M a_l \zeta_l^2 + C,$$

то интеграл (1) факторизуется, причем каждый из возникающих интегралов суть интеграл типа

$$P(w, a) = \int_{-\infty}^{\infty} x^w e^{-\frac{1}{2}ax^2} dx = \begin{cases} (w-1)!! \sqrt{\frac{2\pi}{a^{w+1}}}, & w \text{ — четное,} \\ 0, & w \text{ — нечетное.} \end{cases}$$

Тогда, учитывая, что

$$H_n(\xi) = \sum_{p=0}^{[n/2]} (-1)^p \frac{n!}{(n-2p)!} \frac{\xi^{n-2p}}{4^p p!},$$