

ПИСЬМА В РЕДАКЦИЮ

УДК 535.37 : 533.82#

СВЕРХЛИНЕЙНАЯ НИЗКОТЕМПЕРАТУРНАЯ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ И НЕРЕЗОНАНСНОЕ ЭЛЕКТРОН-ФОНОННОЕ ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ В РУБИНЕ

А. П. Абрамов, И. Н. Абрамова, И. Я. Герловин и И. К. Разумова

Взаимодействие неравновесных фононов терагерцового диапазона с электронными состояниями ионов хрома в рубине проявляется в опытах двух типов: при флуоресцентном детектировании фононов, генерируемых внешним импульсным тепловым источником [1], и в стационарных опытах по наблюдению сверхлинейного свечения линии R_2 [2]. Опыты обоих типов проводятся при 2 К, когда основная энергия в спектре люминесцирующего рубина сосредоточена в яркой R_1 -линии, соответствующей переходу с нижнего подуровня E метастабильного дублета 2E в основное состояние, а люминесценция с верхнего подуровня $2A$, отстоящего на 29 см^{-1} (R_2 -линия), регистрируется лишь вследствие наличия в возбужденном объеме кристалла неравновесных фононов.

Согласно принятой точке зрения, источником неравновесных фононов, вызывающим сверхлинейную стационарную люминесценцию R_2 -линии при больших плотностях возбуждения, служит канал прямой безызлучательной релаксации между уровнями дублета. При этом рождаются фононы, резонансные переходу $E-2A$, а многократное повторение процесса поглощения и рождения фононов возбужденными центрами (пленение фононов [1]) приводит к увеличению эффективного времени жизни верхнего уровня и тем самым к возрастанию интенсивности R_2 -линии.

В то же время эксперименты по флуоресцентному детектированию фононов в рубине, проведенные при больших концентрациях возбужденных ионов хрома и при больших температурах импульсного теплового источника фононов, привели к выводу, что заселение верхнего уровня дублета обусловлено не только резонансным процессом, но и нерезонансным (рамановским) рассеянием неравновесных фононов, энергия которых превышает величину расщепления 29 см^{-1} [3].

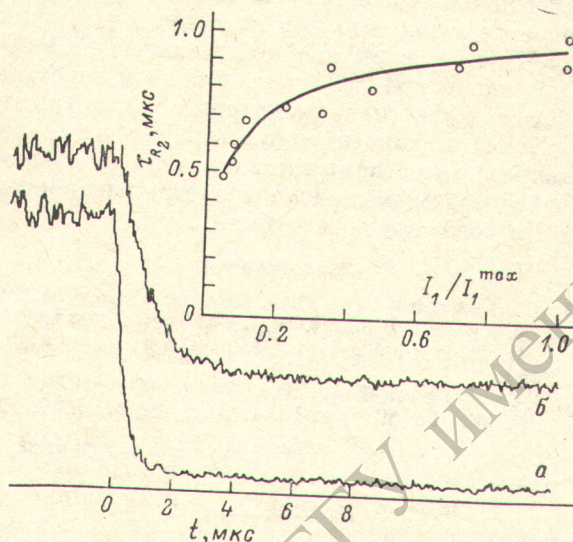
В стационарных опытах возбуждение рубина производится в высоколежащие кватерные состояния, и поглощение каждого возбуждающего кванта сопровождается безызлучательной релаксацией с рождением большого числа фононов, не совпадающих по энергии с зазором между компонентами дублета. Нерезонансное взаимодействие этих фононов с возбужденными ионами хрома может приводить к заселению верхнего уровня дублета и увеличению интенсивности R_2 -люминесценции. Для экспериментального обнаружения такого процесса достаточно сопоставить относительную интенсивность линии R_2 — величину I_2/I_1 и время релаксации τ_{R_2} .

Согласно модели пленения измеряемое время релаксации складывается из двух величин: $\tau_1 = T\delta$ — времени жизни состояния $2A$ (T^{-1} — вероятность безызлучательного перехода $2A-E$, δ — число актов резонансного перепоглощения фононов) и τ_2 — времени существования фононов. Таким образом, между измеренными в одинаковых условиях величинами I_2/I_1 и τ_{R_2} должно выполняться соотношение

$$I_2/I_1 = \beta \frac{T\sigma}{\tau_0} < \beta \frac{\tau_{R_2}}{\tau_0}.$$

Здесь отношение T/τ_0 ($\tau_0^{-1}=10^2 \text{ с}^{-1}$ — вероятность излучательного перехода с уровня $2A$ в основное состояние) характеризует квантовый выход R_2 -люминесценции, а β — коэффициент, задающий (в расчете на один поглощенный световой квант) число участвующих в процессе пленения фононов, рожденных при прямой релаксации между уровнями дублета. При внутрицентральной релаксации величина $\beta \approx 0.3$ [4] определяется отношением вероятностей переходов на уровни $2A$ и E . Нерезонансное взаимодействие с релаксационными фононами должно приводить к возрастанию величины β до значений, превышающих единицу.

В настоящем сообщении излагаются результаты эксперимента, позволившего оценить значение коэффициента β в сильно возбужденном рубине. Эксперимент состоял в измерении интенсивности R_2 -люминесценции и времени ее затухания при одинаковых условиях возбуждения. Люминесценция возбуждалась сфоку-



Кинетика сверхлинейной люминесценции рубина.

а — аппаратное затухание (люминесценция красителя родамин С), б — затухание R_2 -люминесценции. На вставке — зависимость времени затухания от концентрации возбужденных центров.

сированным излучением аргонового лазера; для изучения кинетики возбуждающее излучение модулировалось вращающимся диском.

На рисунке приведена кривая затухания R_2 -люминесценции, полученная в условиях, когда концентрация возбужденных центров максимальна ($C=4 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$), а соотношение интенсивностей линий R_2 и R_1 составляет $I_2/I_1 = 4 \cdot 10^{-3}$. Обработка кривой затухания дает $\tau_{R_2} = 1.0$ мкс. Опыт показывает, что τ_{R_2} слабо меняется при расфокусировке лазерного излучения. Концентрационная зависимость τ_{R_2} при постоянном диаметре возбужденного объема $d=0.03$ мм представлена на вставке рисунка.

Подстановка в формулу найденных из эксперимента значений I_2/I_1 и τ_{R_2} дает $\beta > 40$, то есть много больше величины, определяемой внутрицентральной релаксацией. Отсюда следует, что в условиях эксперимента поглощение каждого светового кванта сопровождается рождением по крайней мере 40 резонансных фононов. Как уже отмечалось выше, единственным источником таких фононов может служить безызлучательная релаксация по верхним возбужденным состояниям иона хрома. Зная сечение резонансного поглощения, нетрудно показать, что случайное совпадение энергии фононов, рождаемых при многофононной релаксации с энергией электронного перехода $E-2A$, не может дать столь больших значений β , поэтому единственным процессом, обеспечивающим в этих условиях высокую интенсивность R_2 -люминесценции, может быть нерезонансный процесс комбинационного рассеяния релаксационных фононов на возбужденных ионах хрома.

Предельное число фононов, которые могут участвовать в таком процессе, определяемое отношением стоковых потерь к энергии расщепления дублета, составляло в условиях эксперимента величину порядка 10^2 , то есть близкую к получаемому значению β . Этот результат, согласно которому почти вся энергия, выделяющаяся при безызлучательной релаксации, идет на заселение верхнего уровня состояния 2E , указывает на высокую эффективность процесса комбинационного рассеяния фононов на переходе $E-2A$.

Измеренное значение $I_2/I_1=4 \cdot 10^{-3}$ более чем на 4 десятичных порядка превышает квантовый выход R_2 -люминесценции ($T/\tau_0 \approx 10^{-7}$). В соответствии с вышеизложенным это превышение следует приписать совместному действию двух механизмов: нерезонансного заселения состояния $2A$ релаксационными фононами (увеличивающего I_2 в 10^2 раз) и последующего пленения фононов 29 см^{-1} , образовавшихся при переходе $2A-E$.

Существенный вывод, вытекающий из полученных в настоящей работе результатов, заключается в том, что при интерпретации размерных и концентрационных закономерностей сверхлинейной люминесценции рубина [2, 5] необходимо учитывать не только процесс пленения, но и нерезонансное электрон-фононное взаимодействие, эффективность которого также может зависеть от размера освещенного объема и концентрации возбужденных центров. По-видимому, только с помощью такого комплексного подхода можно получить достоверные сведения о физическом механизме процесса распространения резонансных фононов 29 см^{-1} в возбужденном рубине.

Литература

- [1] K. F. Renk, J. Deisenhofer. Phys. Rev. Lett., 26, 764, 1971.
- [2] J. I. Dijkhuis, A. vander Pol, H. W. de Wijn. Phys. Rev. Lett., 37, 1554, 1976.
- [3] А. П. Абрамов, И. Н. Абрамова, И. Я. Герлович, И. К. Разумова. ЖЭТФ, 79, 1303, 1980.
- [4] J. E. Rives, R. S. Meltzer. Phys. Rev., B, 16, 1808, 1977.
- [5] J. I. Dijkhuis, H. W. de Wijn. Phys. Rev., B, 20, 1844, 1979.

Поступило в Редакцию 14 июня 1982 г.

УДК 535.34 : 548.0

НОВАЯ ПОЛОСА ПОГЛОЩЕНИЯ ЭКСИТОНА, ЛОКАЛИЗОВАННОГО ВБЛИЗИ ДИПОЛОНА

Г. А. Розман, М. Г. Колбасовская и Т. А. Плявина

Экспериментальные исследования, в том числе и авторов обзора [1], определенно показали, что так называемая α -полоса обусловлена локализацией экситона вблизи α -центра (галоидной вакансии). Тем самым была разрешена проблема, дискутировавшаяся длительное время, в течение которого центру, ответственному за α -полосу, сопоставлялись различные модели [2-4]. Однако один α -центр не может объяснить существования широкой и сложной полосы в спектре поглощения щелочно-галоидных кристаллов (ЩГК), рентгенизованных при низких температурах [5], которая накладывается на длинноволновую ветвь первой полосы собственного поглощения. Обнаруженные на длинноволновой ветви ступени обусловлены дефектами, природа которых до сих пор не идентифицирована.

Одним из авторов данного сообщения выдвигалась модель сложного центра окраски в ЩГК: экситон + диполон типа $V_a V_c$. Расчеты, проведенные по этой модели [4], предсказывали полосы, которые должны располагаться на длинноволновом спаде собственного поглощения. Это позволило считать предложенный центр окраски одним из тех, которые обуславливают сложный характер кривой экситонного поглощения в ЩГК [6].

Учитывая анизотропный характер и экситона и диполона, в данном сообщении рассматривается еще одна возможная локализация этих дефектов кристаллической решетки помимо тех, что рассмотрены в работе [4]. На рисунке пред-