

КРАТКИЕ СООБЩЕНИЯ

УДК 535.37

 О ТЕМПЕРАТУРНОЙ ЗАВИСИМОСТИ ПОЛЯРИЗАЦИИ
 ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ АВТОЛОКАЛИЗОВАННЫХ ЭКСИТОНОВ
 В БРОМИСТОМ СВИНЦЕ

В. Г. Плеханов

В настоящее время доказано, что собственное свечение широкого класса ионных кристаллов является свечением автолокализованных экситонов. При этом автолокализация экситонов может происходить как за счет образования квазимолекулы типа Cl_2^{2+*} (ШГК), либо благодаря захвату одного из носителей на одном узле решетки типа Ag^{2+*} (AgCl) [1-3].

При рекомбинационном создании экситонов наблюдается поляризованная люминесценция экситонов в ШГК [4]. В Al_2O_3 была также наблюдаена поляризация собственного свечения при рентгеновском возбуждении [4]. Вместе с тем до сих пор не выяснена температурная зависимость поляризации $P(T)$ люминесценции автолокализованных экситонов. Этой цели посвящена настоящая работа, в которой была исследована зависимость $P(T)$ люминесценции автолокализованных экситонов в кристаллах $PbBr_2$.

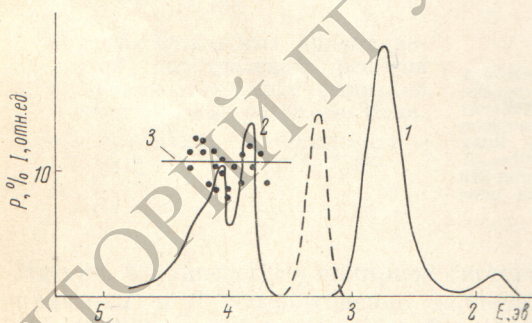
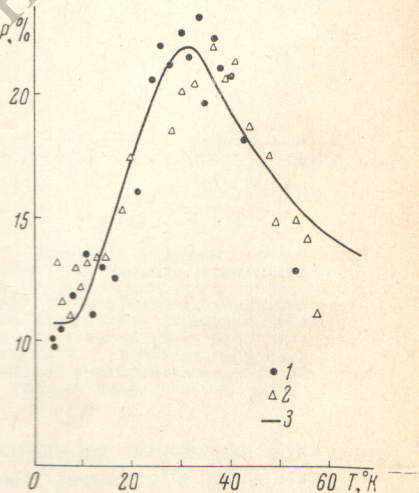


Рис. 1.

1 — спектр излучения при возбуждении в длинноволновой полосе поглощения (штриховая — по де Грейтеру [3]); 2 — спектр возбуждения экситонной люминесценции, 3 — поляризационный спектр экситонного излучения ($PbBr_2$, 4,2 К).


 Рис. 2. Температурная зависимость степени поляризации экситонной люминесценции $PbBr_2$.

1, 2 — эксперимент, P_{ca} и P_{cb} соответственно, 3 — теоретический расчет по формуле (6).

Свечение автолокализованных катионных экситонов в $PbBr_2$ при 4,2° К состоит из полосы с $E_M = 2.73$ эв [3]. Это свечение характеризуется большими стоксовыми потерями (рис. 1), а также низкотемпературным тушением. Степень поляризации люминесценции определялась из зависимости интенсивности люминесценции I от угла φ между осью пропускания анализатора и вертикальной осью $a \parallel \langle 100 \rangle$, либо $b \parallel \langle 010 \rangle$

$$P = (I_{\max} - I_{\min}) / (I_{\max} + I_{\min}). \quad (1)$$

При этом в обоих случаях I_{\max} соответствовало углу $\varphi = 90$ или 270° , т. е. когда ось анализатора была параллельна оси $c \parallel \langle 001 \rangle$. Через P_{cb} и P_{ca} обозначим степени поляризации при направлениях наблюдения $\langle 100 \rangle$ и $\langle 010 \rangle$ соответственно. Экспериментальная установка описана ранее [5].

Степень поляризации люминесценции при 4,2 К составляет $P_{cb} \approx P_{ca} \approx 11 \pm 2\%$. С повышением температуры наблюдается рост ее, затем спад (рис. 2). Если для P_{ca} максимальное значение достигается при ~ 30 К, то для P_{cb} — при ~ 36 К. Прежде

чем дать описание наблюдаемой зависимости $P(T)$, необходимо оценить степень поляризации, которая может быть наведена анизотропией кристалла. Влияние среды на интенсивность свечения определяется главными значениями тензора диэлектрической проницаемости (см. также [5]). Они определены для желтой линии натрия: $\epsilon_a^0 = 6.5$; $\epsilon_b^0 = 6.12$; $\epsilon_c^0 = 5.92$ [6]. Наблюдаемое свечение находится в области нормальной дисперсии, где среднее значение $\epsilon^0 = 7.1$ [7] и ϵ_a^0 , ϵ_b^0 и ϵ_c^0 имеют еще близкие значения. Оценка показывает, что при выходе света из кристалла наводится поляризация $P_{ca} \leq 4\%$, т. е. гораздо меньше, чем наблюдается, следовательно, основная часть обусловлена анизотропией излучателя (автолокализованного катионного экситона).

Согласно модели катионного экситона [3, 7], за это свечение ответствен излучательный переход $B_{1,2,3u} \rightarrow A_{1g}$ в ионе свинца. Таким образом, имеется три неэквивалентных состояния. В этом случае скорость изменения относительной заселенности z (B_{3u} -состояния) имеет вид (см. также [8])

$$\dot{n}_z = w_{yz}n_y + w_{xz}n_x - (w_{zy} + w_{zx})n_z. \quad (2)$$

В силу почти одинаковой зависимости $P_{ca}(T)$ и $P_{cb}(T)$ положим вероятность безызлучательного перехода из x (B_{1u})-состояния в z (B_{3u})-состояние равной вероятности перехода из y (B_{2u})-состояния $w_{yz} = w_{zx}$. Кроме того, вследствие принципа детального равновесия $w_{zy} = w_{xz} = w e^{-E/kT}$. Учитывая также, что $n_x + n_y + n_z = 1$, решением уравнения (2) будет

$$n_z^{\text{стап.}}(T) = \frac{1}{1 + 2e^{-E/kT}} + \frac{n_z(0) - \frac{1}{1 + 2e^{-E/kT}}}{1 + w\tau(1 + 2e^{-E/kT})}, \quad (3)$$

где $n_z(0) = n_z(t)|_{t=0}$ — относительная заселенность z -состояния в начальный момент времени, $\tau = 1/\gamma$, γ — вероятность радиационного распада, а E — расстояние между z - и x -состояниями. Заселенность при стационарном возбуждении определена по формуле

$$n_z^{\text{стап.}}(T) = \gamma \int_0^{\infty} e^{-\gamma t} n_z(t) dt. \quad (4)$$

Принимая во внимание, что степень поляризации при сделанных выше предположениях определяется формулой [8]

$$P_{zx} = P_{ca} = (3n_z - 1)/(n_z + 1) \quad (5)$$

и используя для вероятности w классическую формулу $w = D e^{-\Delta/kT}$ (Δ — высота потенциального барьера между x (y)- и z -состояниями, D — частотный фактор), получено следующее выражение для зависимости P_{zx} в стационарных условиях:

$$P_{zx} = \frac{3n_z(0) - 1 + 2C e^{-\Delta/kT} (1 - e^{-E/kT})}{n_z(0) + 1 + 2C e^{-\Delta/kT} (1 + e^{-E/kT})}. \quad (6)$$

В формуле (6) положено, что $C = D\tau$. Из этой формулы видно, что в области низких температур ($C e^{-\Delta/kT} \ll 1$) нет термического равновесия и поляризация определяется начальной, а при высоких температурах ($C e^{-\Delta/kT} \gg 1$) равновесной заселенностью. В численных расчетах предположено, что C не зависит от температуры. Навлучшее согласие теории с экспериментом получено при следующих значениях параметров: $C = 10.65$; $\Delta = 7.4$ мэВ; $E = 1.7$ мэВ. Таким образом, расстояние между B_{3u} и B_{1u} -состояниями составляет 1.5 мэВ, тогда как между B_{3u} и B_{2u} — 1.7 мэВ. Значение параметра Δ близко к значению энергии теплового тушения экситонной люминесценции, равной 6 ± 1 мэВ [3]. Это указывает на то, что во время переходов между состояниями $B_{1,2,3u}$ происходит трансляционное перемещение возбуждения, так как тушение экситонной люминесценции определяется миграцией экситонов по кристаллу. Найденный барьер, по-видимому, является барьером между автолокализованным и свободным состояниями экситонов [1, 9].

Интересно отметить, что если до релаксации экситонов расстояние между B_{3u} и B_{2u} -состояниями составляет ~ 25 мэВ, то после релаксации оно равно 1.7 мэВ. К обсуждению этого факта мы предполагаем вернуться в дальнейшем.

Автор благодарен В. В. Хижнякову за постоянный интерес к работе и стимулирующие дискуссии, Е. В. Михайловской за помощь при ориентации кристаллов.

Литература

- [1] Ч. Б. Лущик, Г. Г. Лийдья. Изв. АН СССР, сер. физ., 37, 334, 1973; M. N. Kabler. Phys. Rev., 136, A1296, 1964.
- [2] H. Kanzaki, S. Sakuragi. Sol. Stat. Commun., 9, 1667, 1971; C. L. Marquart, R. T. Williams, M. N. Kabler. Sol. Stat. Commun., 9, 2285, 1971.

- [3] В. Г. Плеханов, Г. Г. Лийдья. Изв. АН СССР, сер. физ., 38, 1304, 1974; W. C. de Gruijter. J. Sol. Stat. Chem., 6, 151, 1973; Ph. D. Thesis, University of Utrecht, Netherlands, 1972.
- [4] W. A. Runciman. Sol. Stat. Commun., 6, 537, 1968.
- [5] Г. Г. Лийдья, В. Г. Плеханов. Опт. и спектр., 36, 945, 1974.
- [6] А. Н. Винчел, Г. Винчел. Оптические свойства искусственных минералов, 465. Изд. «Мир», М., 1965.
- [7] V. G. Plekhanov. Phys. Stat. Sol. (b) 57, K55, 1973.
- [8] Н. Н. Кристофель, В. В. Хижняков. Опт. и спектр., 34, 1236, 1973; V. Hizhnyakov, S. Zazubovich, T. Soovik. Phys. Stat. Sol. (b), 66, 727, 1974.
- [9] Ch. B. Lushchik. Color Centers in Alkali Halides, 189. International Symposium, Rome, 1968.

Поступило в Редакцию 29 июля 1974 г.

УДК 621.373 : 535

ЛАБОРАТОРНЫЕ ИЗМЕРЕНИЯ ОСЛАБЛЕНИЯ ИЗЛУЧЕНИЯ CO₂-ЛАЗЕРА ЧИСТЫМ ВОДЯНЫМ ПАРОМ

В. Н. Арефьев, В. И. Дианов-Клоков, В. Ф. Рабионов и Н. И. Сизов

В связи с развитием лазерной техники и, в частности, большой перспективностью использования CO₂-лазеров в различных отраслях науки и техники в последнее время заметно усилился интерес к исследованиям ослабления лазерного излучения водяным паром в окне относительной прозрачности атмосферы 8 ÷ 12 мкм. Однако большинство таких исследований выполнялось на естественных оптических трассах, где имеет место одновременное влияние различных факторов, в том числе недостаточно точно определенных. Модельные же исследования малочисленны и часто не охватывают достаточный диапазон изменения параметров, реализующийся в атмосфере.

В оптической многоходовой кювете с базой 50 м [1] при температуре 20 ± 1° С были проведены измерения пропускания излучения CO₂-лазера трехкилометровым слоем чистого водяного пара при его содержаниях до ω = 5 см осажденного слоя. В качестве источника излучения использовался CO₂-лазер промышленного типа ЛГ-22. Анализ спектра излучения с помощью спектрометра с разрешением 0.2 см⁻¹ показал, что генерация попеременно происходила на переходах P (16), P (20), P (22), P (24). Специальные меры по разделению полученных результатов соответственно отдельным линиям не предпринималось. Таким образом, приводимые ниже данные следует рассматривать как усредненные для интервала длин волн 10.60 ± 0.05 мкм.

Для устранения погрешности, связанной с изменением мощности лазера, измерения пропускания излучения проводились по двухканальной схеме. Величина пропускания T_λ определялась из выражения

$$T_{\lambda} = \frac{I_u/I_k}{I_u^0/I_k^0}, \quad (1)$$

где I_u⁰ и I_k⁰ — интенсивности излучения при отсутствии водяного пара в кювете (остаточное давление 2 · 10⁻⁴ тор) и с водяным паром соответственно, а I_u и I_k — интенсивности излучения до входа в кювету.

Водяной пар подавался в кювету небольшими порциями из специального термостатированного испарителя. Измерения пропускания велись после выстаивания кюветы до наступления равновесного состояния. Содержание водяного пара определялось по величине давления пара в кювете, измеряемого манометром ППР-2М. Общая случайная ошибка измерений пропускания составляла ± 8.0%.

Результаты экспериментов на рисунке представлены точками. Обработка результатов по методу наименьших квадратов показала, что они аппроксимируются следующими выражениями:

$$T_{\lambda} = e^{-0.048\omega 1.83} \quad (2)$$

при Σ = 0.0429,
или

$$T_{\lambda} = e^{-(0.031\omega + 0.029\omega^2)} \quad (3)$$

при Σ = 0.0426 (Σ — среднеквадратичное отклонение величин T_λ) откуда для трассы произвольной длины L (км)

$$T_{\lambda} = e^{-1.75 \cdot 10^{-3} \alpha 1.83 L} \quad (2')$$

или

$$T_{\lambda} = e^{-(3.22\alpha + 0.82\alpha^2) 10^{-3} L}, \quad (3')$$