

ЭЛЕКТРОН-ФОНОННЫЕ РЕЗОНАНСЫ В СПЕКТРЕ ПРИМЕСНОГО РЕДКОЗЕМЕЛЬНОГО ИОНА

Ю.Е.Перлин, А.А.Каминский, В.Н.Енакий,
Д.Н.Вылегжанин

В спектрах поглощения и люминесценции иона Yb^{3+} в кристалле YAlO_3 обнаружено расщепление бесфононных линий. Показано, что этот эффект может быть обусловлен электрон-фононным резонансом.

Резонанс или квазирезонанс локальных электронных состояний с фононным спектром кристалла-матрицы приводит к ряду специфических эффектов, включая появление связанных состояний фонона — диэлектрических мод. Теория этих эффектов [1 — 4] применялась к мелким примесным центрам полупроводников, поглощающим свет в далекой ИК области; обзор соответствующих экспериментальных результатов приведен в работах [3, 5]. Ниже сообщается о проявлениях электрон-фононного резонанса (ЭФР) в спектрах поглощения и люминесценции ионного кристалла, активированного редкоземельными (РЗ) ионами, когда оптические переходы происходят в области энергий 1 — 2 эВ, а в резонанс с фононами попадает штарковская структура конечного электронного состояния. Насколько нам известно, единственным отмеченным проявлением ЭФР в этом случае является температурное уширение бесфононных линий (БФЛ), обусловленное однофононными безызлучательными переходами между штарковскими уровнями РЗ-иона [6, 7].

Рассмотрим оптический переход из невырожденного изолированного состояния $|\Gamma_i\rangle$ на уровень $|\Gamma\rangle$, вообще говоря, вырожденный и отделенный от соседнего уровня $|\Gamma'\rangle$ энергетической щелью $\Omega_{\Gamma'\Gamma} > 0$ ¹⁾. При слабом электрон-фононном взаимодействии (ЭФВ), характерном для РЗ-ионов, этому переходу соответствует серия лоренцевских БФЛ, максимумы которых Ω_α являются корнями уравнения

$$\Omega - \Omega_{\Gamma\Gamma_i} = \Sigma(\Omega). \quad (1)$$

Здесь $\Sigma(\Omega)$ — вещественная часть собственно-энергетической функции, которая для центра малого радиуса может быть записана в виде ($T = 0\text{K}$):

$$\Sigma(\Omega) = \sum_{\Gamma'} |\langle \Gamma | V_{\Gamma'} | \Gamma' \rangle|^2 \int \frac{\rho_{\Gamma'}(\omega) d\omega}{\omega(\Omega - \Omega_{\Gamma'\Gamma_i} - \omega)}, \quad (2)$$

¹⁾ Обозначения электронных состояний соответствуют неприводимым представлениям точечной группы локального центра.

где $\langle \Gamma || \dots || \Gamma' \rangle$ — приведенный матричный элемент тензорного оператора ЭВФ; $\bar{\Gamma} \in \Gamma \times \Gamma'$ — неприводимое колебательное представление точечной группы центра; $\rho_{\bar{\Gamma}}(\omega)$ — спроектированная фононная плотность [7]. Функция формы БФЛ с индексом α с точностью до множителя, практически не зависящего от частоты света Ω , имеет вид

$$F_{\alpha}(\Omega) = \frac{\bar{\Delta}_{\alpha} \left(1 - \frac{\partial \Sigma}{\partial \Omega} \Big|_{\Omega = \Omega_{\alpha}} \right)^{-1}}{(\Omega - \Omega_{\alpha})^2 + \bar{\Delta}_{\alpha}^2/4}, \quad (3)$$

где

$$\bar{\Delta}_{\alpha} = \Delta(\Omega_{\alpha}) \left(1 - \frac{\partial \Sigma}{\partial \Omega} \Big|_{\Omega = \Omega_{\alpha}} \right)^{-1}, \quad (4)$$

$\Delta(\Omega)$ — мнимая часть собственно-энергетической функции. В обычном приближении $\Delta(\Omega_{\Gamma\Gamma'})$ есть вероятность однофононного безызлучательного перехода $\Gamma \rightarrow \Gamma'$.

Для невырожденных электронных состояний Γ, Γ' , смешиваемых единственной колебательной модой с частотой ω_0 , уравнение (1) сводится к квадратному уравнению

$$\Omega' - \Omega_{\Gamma\Gamma'} - \frac{b}{\Omega' - \omega_0} = 0, \quad (5)$$

где $\Omega' \equiv \Omega - \Omega_{\Gamma\Gamma'}$, и мы приходим к результатам известной квантово-механической задачи о квазирезонансном возмущении двухуровневой системы (см. [8], § 40). Дисперсия кристаллических колебаний и вырождение электронных состояний Γ, Γ' существенно усложняют картину расщепления. В настоящем сообщении мы ограничимся анализом наблюдаемого дублетного расщепления линий B и D' спектров поглощения и люминесценции иона Yb^{3+} в YAlO_3 (рис. 1) на основе упрощенного уравнения (5), используя элементарные соотношения для корней $\Omega_{1,2}$ этого уравнения

$$\Omega_1 + \Omega_2 = \Omega_{\Gamma\Gamma'} + \omega_0, \quad (6)$$

$$\Omega_1 \Omega_2 = \Omega_{\Gamma\Gamma'} \omega_0 - b \quad (7)$$

и соотношение интенсивностей

$$I_1/I_2 = (\Omega_2 - \Omega_{\Gamma\Gamma'})/(\Omega_{\Gamma\Gamma'} - \Omega_1), \quad (8)$$

которое справедливо при $\bar{\Delta}_1 \approx \bar{\Delta}_2$. Из (8) следует, что при $\omega_0 = \Omega_{\Gamma\Gamma'}$, т. е. в случае точного резонанса, $I_1 = I_2$; при нарушении резонанса расщепленная БФЛ становится асимметричной.

Заметим, что двухпиковая структура линии B и наличие интенсивного спутника d на коротковолновом крыле линии D' никак не объясняются

в рамках принятой картины штарковского расщепления состояний иона Yb^{3+} в YAlO_3 (рис. 2) [9]. Относить появление этих особенностей за счет сингулярности фононного спектра кристалла-матрицы неразумно из-за высокой интенсивности указанных пиков. Для БФЛ B имеем $\Omega_1 = 185 \text{ см}^{-1}$, $\Omega_2 = 198 \text{ см}^{-1}$, $I_1/I_2 = 1,05$. Подставляя эти данные в (8), (6) и (7), получаем $\Omega_{\Gamma\Gamma^*} = 191 \text{ см}^{-1}$, $\omega_0 = 192 \text{ см}^{-1}$, $b = 42 \text{ см}^{-2}$. С этим значением ω_0 для БФЛ D^* , для которой $\Omega_1 = 190 \text{ см}^{-1}$, $\Omega_2 = 210 \text{ см}^{-1}$, из (6) получаем $\Omega_{\Gamma\Gamma^*} = 208 \text{ см}^{-1}$, после чего из (8) следует величина отношения I_1/I_2 равная 0,11 и находящаяся в хорошем согласии с экспериментом. Для перехода D^* $b = 36 \text{ см}^{-2}$.

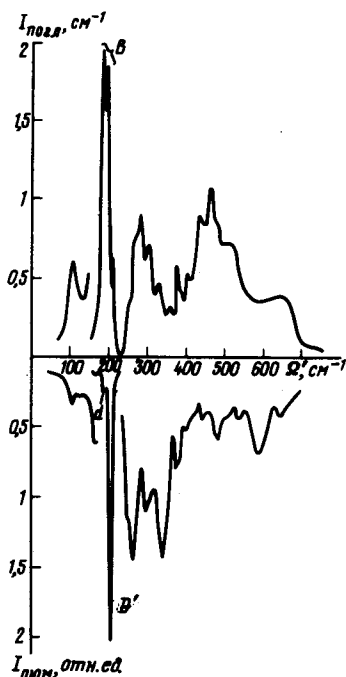


Рис. 1. Спектры поглощения и люминесценции иона Yb^{3+} в кристалле YAlO_3 , полученные при 77К. По оси абсцисс отложены волновые числа, отсчитываемые от положения линии C . Интенсивности линий D^* , d и B показаны уменьшенными в 5 и 7 раз соответственно

Приведенная оценка позволяет думать, что указанные особенности спектра ионов Yb^{3+} в YAlO_3 действительно обусловлены ЭФР, тем более, что в том же кристалле в области $190 - 200 \text{ см}^{-1}$ наблюдается выраженный пик электронно-колебательной структуры R -линии иона Cr^{3+} [10]. В этой же области частот наблюдается пик комбинационно-го рассеяния ИК излучения [11].

Из проведенного рассмотрения следует, что точное положение электронных уровней, попадающих в резонанс с фононным спектром, не совпадает ни с одним из наблюдаемых максимумов структурных БФЛ. Из-

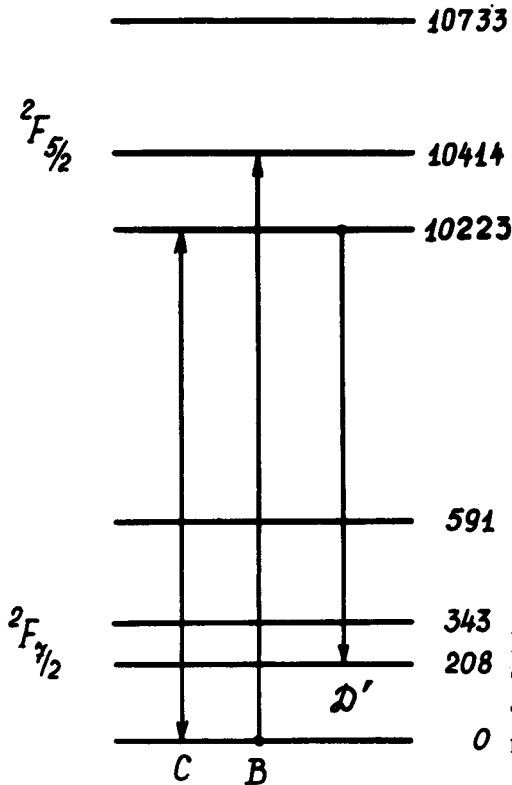


Рис. 2. Штарковское расщепление состояний ${}^2F_{5/2}$; ${}^2F_{7/2}$ иона Yb^{3+} в кристалле $YAlO_3$. Значения энергии штарковских компонентов указаны в cm^{-1}

ложенная методика позволяет определить истинное положение электронных уровней, а также положение резонансного пика фоновой плотности.

Институт кристаллографии
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
6 августа 1979 г.

Литература

- [1] Ш.М.Коган, Р.А.Сурис. ЖЭТФ, 50, 1279, 1966.
- [2] S.Rodrigues, T.D.Shults. Phys. Rev., 178, 1252, 1969.
- [3] И.Б.Левинсон, Э.И.Рашба. УФН, 111, 683, 1973.
- [4] Э.И.Рашба, А.В.Зимин. ЖЭТФ, 66, 1479, 1974.
- [5] G.D.Watkins, W.B.Fowler. Phys. Rev., B16, 4524, 1977.
- [6] E.Cohen, L.A.Riseberg, H.W.Moos. Phys. Rev., 175, 521, 1968.
- [7] И.С.Андриеш, В.Я.Гамурарь, Д.Н.Вылегжанин, А.А.Каминский, С.И.Клокишнер, Ю.Е.Перлин. Квантовая электроника, 2, 287, 1975; Yu.E.Perlin, A.A.Kaminskii, S.I.Klokishner, V.N.Enakii, Kh.S.Bagdasarov, D.N.Vylegzhanin, G.A.Bogomolova. Phys. Stat. Sol., (a), 40, 643, 1977.
- [8] Л.Д.Ландау, Е.М.Лифшиц. Квантовая механика, М., изд. Наука, 1974. стр. 175.
- [9] M.J.Weber. Phys. Rev., B4, 3153, 1971.
- [10] M.J.Weber, T.E.Varitimos. J. Appl. Phys., 45, 810, 1974.
- [11] А.А.Каминский. Лазерные кристаллы, М., изд. Наука, 1975, стр. 188.