

ФОНОННОЕ УЗКОЕ ГОРЛО В ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ КРИСТАЛЛОВ CaF₂ – Eu²⁺ И АНГАРМОНИЧЕСКОЕ ВРЕМЯ ЖИЗНИ ТЕРАГЕРЦОВЫХ АКУСТИЧЕСКИХ ФОНОНОВ.

А.В.Акимов, А.А.Каплянский, А.Л.Сыркин

Обнаружено явление фононного узкого горла в $d \rightarrow f$ флуоресценции кристаллов CaF₂ – Eu²⁺ из расщепленного деформацией Γ_8^+ ($4f^6 5d$)-состояния. По кинетике флуоресценции определено усредненное по модам ангармоническое время жизни акустических фононов частоты 2 ТГц в флюорите $\bar{\tau}_p \approx 2 \cdot 10^{-7}$ сек.

Экспериментальное определение ангармонического времени жизни акустических фононов терагерцового диапазона (10^{12} Гц) сопряжено с большими трудностями, что объясняет немногочисленность имеющихся опытных оценок [1]. В настоящей работе время жизни терагерцовых акустических фононов определено по кинетике флуоресценции активированных кристаллов в условиях "фононного узкого горла". Объектами служили одноосно-напряженные кристаллы CaF₂ – Eu²⁺, широко используемые в исследованиях высокочастотных акустических фононов в кристаллах [2 – 5].

Монокристаллы CaF₂ – 0,01% Eu²⁺ в форме параллелепипедов $6 \times 1,5 \times 1,5$ мм³ подвергались при $T = 1,5$ К упругому одноосному сжатию вдоль оси [001]. Деформация вызывает дублетное расщепление нижнего уровня Γ_8^+ возбужденной $4f^6 5d$ -конфигурации Eu²⁺ [6] (рис.1), причем максимальная величина расщепления $\Delta = W_2 - W_1$ может быть доведена до 70 см^{-1} . Через боковую грань образец возбуждался лучом импульсного N₂-лазера ($\lambda = 3370$ А, длительность импульсов ≈ 10 нсек, частота повторения 100 Гц, импульсная мощность $P = 1$ кВт, диаметр

сфокусированного луча $L = 0,3 \pm 0,6$ мм). Возбужденный объем с помощью световода проецировался на щель спектрометра ДФС-24, который выделял спектральные линии $d \rightarrow f$ люминесценции Eu^{2+} с обеих подуровней W_1 и W_2 . Методом счета фотонов с накоплением сигналов измерялся временной ход соответствующих импульсов флуоресценции $I_1(t)$ и $I_2(t)$.

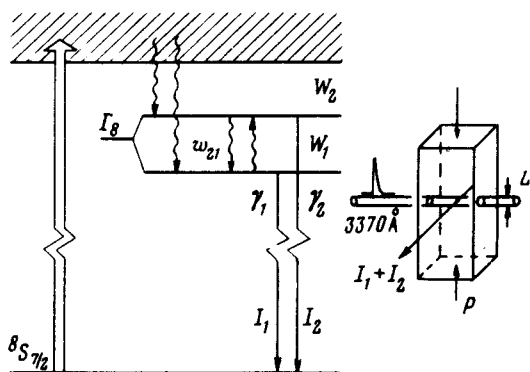


Рис.1. Схема эксперимента

Идея опытов состоит в следующем. В процессе безызлучательной релаксации из верхних состояний происходит заселение обоих деформационных уровней W_1 и W_2 (рис.1). Вероятность перехода $W_2 \rightarrow W_1$ с испусканием резонансного фонона $\hbar\omega = \Delta$ составляет $w_{21} = 10^{11}$ сек $^{-1}$ (для $\omega = 10 \div 30$ см $^{-1}$ [5]) и намного превышает вероятность γ_2 излучательного $d \rightarrow f$ перехода с W_2 ($\gamma_2^{-1} \approx \gamma_1^{-1} \approx 0,6$ мсек [7]). Поэтому за время $\ll 1$ нсек ионы Eu^{2+} перейдут из W_2 в W_1 с испусканием в решетку акустических фононов $\hbar\omega = \Delta$ [2, 4]. Оптическое возбуждение Eu^{2+} в Γ_8^+ ($4f^6 5d$)-состояние сопровождается, следовательно, инжекцией в возбужденный объем фононов, способных резонансно взаимодействовать с двухуровневой системой W_1, W_2 . Концентрация этих неравновесных фононов может быть велика, так как их выход из возбужденного объема затруднен нерезонансным (релеевским) рассеянием на примесных центрах и дефектах [8]. В этих условиях многократное поглощение — излучение ($W_1 \rightleftharpoons W_2$) неравновесных фононов $\hbar\omega = \Delta$ определяет заселенность N_2 уровня W_2 ("фононное узкое горло"). Из уравнений баланса следует, что при малых числах заполнения неравновесных фононов ($\bar{n}_\omega \ll 1$)

$$\frac{I_2(t)}{I_1(t)} = \frac{\gamma_2 N_2(t)}{\gamma_1 N_1(t)} \approx \bar{n}_\omega(t). \quad (1)$$

Измеряя временной ход отношения I_2/I_1 можно исследовать кинетику ухода фононов из активного объема, в частности, роль конечного времени жизни фононов.

Измерения показывают, что ситуация фононного узкого горла действительно реализуется на опыте. Отношение амплитуд импульсов флуоресценции (I_2^0/I_1^0) растет с мощностью возбуждающего света P , причем $I_1^0 \sim P$. Это находится в соответствии с (1) (\bar{n}_ω растет с P) и прямо

указывает на существенную роль перепоглощения релаксационных фононов $\hbar\omega = \Delta$ в заселении уровня W_2 . Недостаточная стабильность азотного лазера не позволила измерить характер зависимости I_2° / I_1° от P . Абсолютная величина I_2° / I_1° при $P_{max} \approx 1$ кВт достигала $0,01 \div 0,1$, в этих условиях начальные числа заполнения инжектированных фононов $\bar{n}_\omega^\circ = 10^{-2} - 10^{-1}$.

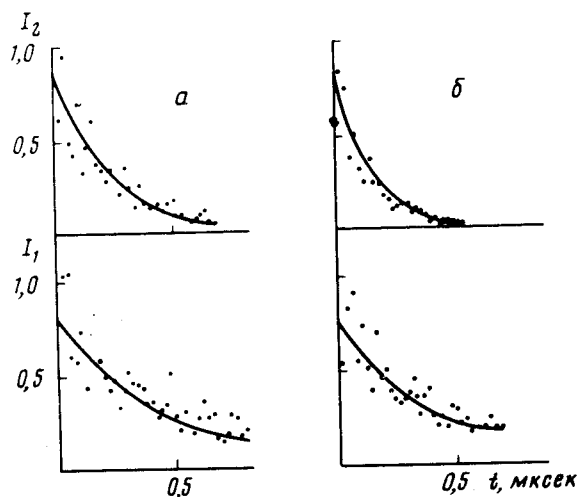


Рис.2. Импульсы люминесценции с верхнего (I_2) и нижнего (I_1) подуровней Γ_8^+ :
 $a - \Delta = 14 \text{ см}^{-1}$, $b - \Delta = 60 \text{ см}^{-1}$

На рис.2 показаны типичные, близкие к экспонентам, импульсы $I_1(t)$ и $I_2(t)$ при двух величинах расщепления Δ . Видно, что время τ_2 затухания $I_2(t)$ существенно зависит от Δ . Наблюдаемые $\tau_2 \approx 0,1 \div 0,25$ мксек намного превышают время жизни уровня W_2 по отношению к однофононному распаду $W_2 \rightarrow W_1$ ($\omega_{21}^{-1} \approx 10^{-11}$ сек). Это вновь указывает на роль релаксационных фононов в заселении W_2 . Время τ_2 также зависит (при $\Delta \approx 20 - 50 \text{ см}^{-1}$) от размера возбужденного объема (диаметра L лазерного луча). Существенно подчеркнуть, что τ_2 не зависит от накачки P .

Время τ_1 затухания $I_1(t)$ заметно больше τ_2 . Оно меняется в пределах $0,32 \div 0,5$ мксек в зависимости от Δ , а также L . Величина τ_1 близка к известному [7] радиационному времени жизни γ^{-1} уровня Γ_8^+ , которым в принципе должно определяться затухание W_1 уровня. На наблюдаемую величину τ_1 может оказывать определенное влияние реабсорбция оптического излучения в линии [7], которая ответственна, вероятно, за зависимость τ_1 от L и частично от Δ (через влияющее на реабсорбцию неоднородное уширение спектральной линии $W_1 \rightarrow {}^8S_{7/2}$ при деформации). Другой возможный фактор зависимости τ_1 от Δ — уменьшение вероятности γ_1 за счет деформационного смешивания состояния W_1 с "оптически неактивным" состоянием Eu^{2+} , расположенным выше Γ_8^+ на $\sim 15 \text{ см}^{-1}$ [6].

Таким образом из исследования относительной интенсивности (I_2° / I_1°) и кинетики флуоресценции следует, что заселенность W_2 определяется инжектированными в возбужденный объем релаксационными фононами $\hbar\omega = \Delta$. Из хода $I_1(t)$ и $I_2(t)$ по (1) вычислен временной ход чисел

заполнения \bar{n}_ω фононов в возбужденном объеме и найдено соответствующее время τ затухания фононов в объеме. На рис.3 показана зависимость τ от Δ при двух размерах объема. Выход фононов \bar{n}_ω из объема происходит как путем их пространственной диффузии (с временем τ_d), так и путем ангармонического распада (время τ_p), так что $\tau^{-1} = \tau_d^{-1} + \tau_p^{-1}$. Наблюдаемая при $\Delta = 20 - 50 \text{ см}^{-1}$ зависимость τ от размера объема (рис.3) показывает, что в этом интервале частот существует пространственная диффузия фононов из объема. Независимость τ от мощности накачки P (т.е. от числа возбужденных ионов Eu^{2+}) показывает, что эта диффузия не связана с резонансным рассеянием фононов на возбужденных в Γ_8^+ -состояние ионах Eu^{2+} , а обусловлена нерезонансным релеевским рассеянием на примесях и дефектах решетки (CaF_2). В последнем случае $\tau_d \sim \omega^4$, при больших ω время τ_d может стать больше τ_p и тогда τ будет определяться уже временем жизни фононов τ_p . Этим можно объяснить независимость τ от L при частотах $\omega > 50 \text{ см}^{-1}$ (рис.3); соответствующее опытное $\tau \approx 2 \cdot 10^{-7}$ сек для фононов $\omega = 2 \text{ ТГц}$ представляет собой усредненное по фононным модам ангармоническое время жизни τ_p .

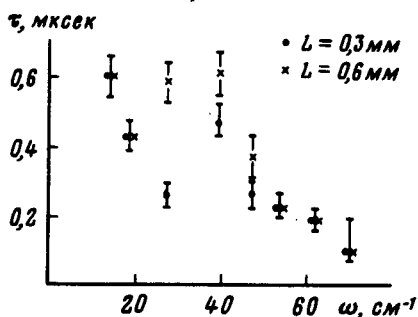


Рис.3. Зависимость времени затухания фононов в возбужденном объеме от частоты

По существующим представлениям [1] распад фононов идет в основном через короткоживущие LA -фононы, TA -фононы относительно стабильны.

При этом $\tau_p^{-1} = \frac{\tau_L^{-1}}{1 + (v_L/v_t)^3}$, где τ_L — время распада LA -фононов,

а знаменатель учитывает разную плотность состояний LA - и TA -фононов (v_L и v_t — соответствующие скорости звука). Для CaF_2 $\tau_L \approx 1/8 \tau_p \approx 2,5 \cdot 10^{-8}$ сек. Эта величина в 6 + 7 раз превышает теоретическую оценку времени жизни LA -фононов 2 ТГц по отношению к распаду $L \rightarrow L + T^2$.

Авторы благодарны Б.З.Малкину и В.Л.Шехтману за полезное обсуждение и предоставление результатов теоретических расчетов.

Физико-технический институт
им. А.Ф.Иоффе
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
30 января 1981 г.

¹) В этом — принципиальное отличие от "резонансного" пленения фононов 29 см^{-1} в $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Cr}^{3+}$ [9, 10].

²) Расчеты В.Д.Поликарпова.

Литература

- [1] W.E.Bron . Phys. Rev., B21, 2627, 1980.
 - [2] W.Eisfeld, K.F.Renk. Appl. Phys. Lett., 34, 481, 1979.
 - [3] А.П.Абрамов, И.Н.Абрамова, И.Я.Герловин, И.К.Разумова. ФТТ, 22, 946, 1980.
 - [4] А.В.Акимов, А.А.Каплянский, А.Л.Сыркин. Письма в ЖЭТФ, 32, 136, 1980.
 - [5] А.В.Акимов, А.А.Каплянский. ЖЭТФ, 80, 767, 1981.
 - [6] А.А.Каплянский, А.К.Пржеvusкий. Оптика и спектроскопия, 19, 597, 1965.
 - [7] P.Kisliuk, H.H.Tippins, S.A.Moore. Phys. Rev., 171, 336, 1968.
 - [8] W.E.Bron , W.Grill. Phys. Rev., B16, 5303, 5315, 1977.
 - [9] K.F.Renk, L.Deisenhofer. Phys. Rev. Lett., 26, 764, 1971.
 - [10] А.А.Каплянский, S.A.Basoon, V.L.Shektman. in „Light Scattering in Solids” ed. J.L.Birman, H.Z.Cummins, K.K.Rebane. N.Y., 1979, p. 95.
-