

ОБ АНОМАЛЬНОМ ТЕМПЕРАТУРНОМ УШИРЕНИИ ОПТИЧЕСКИХ ЛИНИЙ ПРИМЕСНЫХ ЦЕНТРОВ В СТЕКЛАХ

И.С.Осадько

Показано, что аномалии температурного уширения примесных оптических линий в стеклах можно объяснить с помощью взаимодействия примесного иона с низкочастотными локализованными модами.

1. Недавно было установлено, что однородная полуширина $\Gamma(T)$ оптических бесфононных линий (БФЛ) редкоземельных ионов в стеклах, измеряемая при селективном возбуждении, на два порядка превосходит полуширину БФЛ тех же ионов в кристалле [1], а возрастание полушири-

ны $\Gamma(T)$ в широком температурном интервале (8 – 300 К) описывается законом T^2 [2]. Эти аномалии по мнению авторов [1, 2] нельзя объяснить рамановским механизмом уширения БФЛ. Ими была выдвинута гипотеза о важной роли двухуровневых систем Андерсона и др. [3] и Филиппса [4] в температурном уширении оптических БФЛ в стеклах. Эта гипотеза используется в однофононном механизме уширения БФЛ, рассмотренном в [5]. Однако, как отмечено в [2], формулу работы [5] трудно согласовать с законом T^2 в высокотемпературной области. Поэтому вопрос о природе аномалий, остается открытым.

В данной статье показано, что упомянутые аномалии в $\Gamma(T)$ все же можно объяснить в рамках рамановского двухфононного механизма уширения БФЛ. Однако при этом необходимо учесть взаимодействие примесного центра с локализованными низкочастотными модами.

2. Ряд экспериментальных данных и, в частности, данные по комбинационному рассеянию [6] свидетельствуют, что в стеклах имеются локализованные моды с частотами в несколько см^{-1} . Примем, что одна из таких мод отвечает квазилокальному колебанию примесного иона по координате R . Тогда взвешенная плотность фононных состояний

$$f^g(\nu) = \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\nu t} \langle R(t)R(0) \rangle_g dt = \frac{\pi}{2\nu} \sum_{\kappa} u_{g\kappa}^2 \delta(\nu - \nu_{g\kappa}) \quad (1)$$

будет иметь пик на частоте ν_g в основном электронном состоянии ($g = 0$) и ν_e в возбужденном ($g = e$). Рассмотрим оптический 0 – 0 переход в примесном центре. Изменение адиабатического потенциала можно записать так

$$H_{el-ph} = (R - a) \frac{U^e}{2} (R - a) - R \frac{U^0}{2} \bar{\Gamma} = a' \frac{U^e}{2} a - a U^e R + R \frac{W}{2} R. \quad (2)$$

Известно, что уширение БФЛ обусловлено только квадратичной по R частью H_{el-ph} , а линейная не вносит в него вклад [7]. Формула для $\Gamma(T)$ при произвольной величине W была выведена в [7]. Мнимую часть выражения (27) этой работы можно представить в таком простом виде¹⁾:

$$\Gamma(T) = \int_0^{\infty} \ln \left(1 + \frac{W^2 f^0(\nu) f^e(\nu)}{\text{sh}^2(\nu/2kT)} \right) \frac{d\nu}{\pi}. \quad (3)$$

Аппроксимируя $2\nu f^g(\nu)$ функцией лоренцевой формы с полушириной 2γ , можем вычислить интеграл по частоте. Учитывая, что $2\gamma \ll \nu_g$ и $W \cong \cong (\nu_e^2 - \nu_0^2)/2$, получаем для температур, удовлетворяющих неравенству $kT \gg \nu_g$,

$$\Gamma(T) = \Gamma_0^2(T) \frac{\gamma}{\Delta^2 + \gamma^2} \left(1 - \frac{\Gamma_0^2(T)}{4} \frac{5\gamma^2 + \Delta^2}{(\Delta^2 + \gamma^2)^2} + \dots \right), \quad (4)$$

¹⁾Мы принимаем $\hbar = 1$.

где $\Gamma_0(T) = \Delta \frac{kT}{\nu_g}$, а $\Delta = \nu_e - \nu_0$. Через ν_g здесь и далее обозначена частота $\nu_e \cong \nu_0$. При $\Delta/\gamma \gg 1$ в (4) нельзя ограничиться учетом только первого слагаемого, а при $\Delta/\gamma \ll 1$ — можно, но только при условии $\Gamma_0(T)/\gamma < 1$. Тогда

$$\Gamma(T) \cong \frac{\Gamma_0^2(T)}{\gamma} \alpha T^2. \quad (5)$$

Если, например, $\nu_g = 6 \text{ см}^{-1}$, $\Delta/\gamma \sim 10^{-2}$, то формула (5) справедлива в широком температурном интервале 8 — 300 К. При низких температурах вполне может быть

$$\frac{\Gamma_0^2(T)}{\gamma} \gg 18\pi \nu_D \left(\frac{W}{\nu_D^2} \right)^2 \left(\frac{kT}{\nu_D} \right)^7 \int_0^{\nu_D/kT} \frac{x^6 e^x dx}{(e^x - 1)^2}, \quad (6)$$

где правая часть неравенства описывает полуширину БФЛ, обусловленную взаимодействием примесного центра с акустическими фононами [8]. Беря, например, $\Delta/\gamma = 7 \cdot 10^{-2}$, $\gamma = 2 \text{ см}^{-1}$, $\nu_g = 6 \text{ см}^{-1}$ для локализованного колебания и $\nu_D = 300 \text{ см}^{-1}$ и $W/\nu_D^2 = 2 \cdot 10^{-2}$ для фононов дебаевской модели, получаем, учтя, что интеграл в (6) при $kT = 60 \text{ см}^{-1}$ равен примерно 200, что левая часть в (6) на два порядка превосходит правую.

3. Учтем теперь, что в стекле имеется множество примесных ионов, различающихся как энергией электронного возбуждения, так и частотой ν_g , т. е. параметром α . При селективном лазерном возбуждении в области $0 - 0$ перехода ликвидируется неоднородность по энергии электронного возбуждения, но неоднородность по параметру α все же остается. Поэтому "однородная" БФЛ люминесценции, регистрируемая в опытах с селективным возбуждением [1], описывается формулой:

$$I(\omega) = \int_0^{\infty} \frac{\alpha T^2/2}{(\omega - \omega_l)^2 + (\alpha T^2/2)^2} N(\alpha, \omega_l) d\alpha, \quad (7)$$

где ω_l — частота возбуждающего света, а $N(\alpha, \omega_l)$ — функция распределения центров с частотой $0 - 0$ перехода равной ω_l . Из (7) следует, что полуширина "однородной" БФЛ может зависеть от длины волны возбуждающего света, что и наблюдалось в [2]. Действительно, полуширина такой БФЛ равна $\Delta\omega(T, \omega_l) = \Omega(\omega_l) T^2$, где Ω — корень уравнения

$$\int_0^{\infty} \left(\frac{\alpha}{\Omega^2 + \alpha^2} - \frac{1}{2\alpha} \right) N(\alpha, \omega_l) d\alpha = 0. \quad (8)$$

Нерезонансные с ω_l фотопереходы не дадут вклада в линейчатую люминесценцию в силу разброса центров по ν_g и слабости электрон-фононного взаимодействия.

Итак, обычный рамановский двухфононный механизм взаимодействия примесных центров с низкочастотными локализованными модами в состоянии объяснить все основные аномалии в уширении БФЛ, обсуждавшиеся в [1, 2].

Государственный
педагогический институт
им. В.И.Ленина

Поступила в редакцию
6 апреля 1981 г.

Литература

- [1] P.M.Selzer, D.L.Huber, D.S.Hamilton, W.M.Yen, M.J.Weber. Phys. Rev. Lett., **36**, 813, 1976.
 - [2] J.Hegarty, W.M.Yen. Phys. Rev. Lett., **43**, 1126, 1979.
 - [3] P.W.Anderson, B.I.Halperin, C.M.Varma. Phil. Mag., **25**, 1, 1972.
 - [4] W.A.Phillips. J.Low Temp. Phys., **7**, 351, 1972.
 - [5] S.K.Lyo, R.Orbach. Phys. Rev., **B22**, 4223, 1980.
 - [6] G.Winterling. Phys. Rev., **B12**, 2432, 1975.
 - [7] И.С.Осадько. ФТТ, **14**, 2927, 1972.
 - [8] И.С.Осадько. УФН, **128**, 31, 1979.
-