

НАБЛЮДЕНИЕ

РЕЗОНАНСНЫХ РЕЛАКСАЦИОННЫХ АКУСТИЧЕСКИХ ФОНОНОВ
ПО ВИБРОННОЙ АНТИСТОКСОВОЙ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ
В ПРИМЕСНЫХ КРИСТАЛЛАХ

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

В двухактивированных кристаллах $\text{CaF}_2 - \text{Eu}^{2+}, \text{Sm}^{2+}$ осуществлены эксперименты по прямому наблюдению неравновесных акустических фононов, генерируемых при безызлучательной релаксации электронного возбуждения примесных ионов. Резонансные фононы ~ 1 ТГц, испущенные при переходах между электронными уровнями иона Eu^{2+} зарегистрированы по вибронной люминесценции иона Sm^{2+} .

В недавних работах [1, 2] указывалось на возможность использования антистоксовой вибронной люминесценции активированных кристаллов ($\text{SrF}_2 - \text{Eu}^{2+}$ [1], $\text{CaF}_2 - \text{Sm}^{2+}$ [2]) для регистрации спектра неравновесных акустических фононов терагерцового диапазона ("вибронный фонанный спектрометр" — ВФС). В настоящем сообщении ВФС впервые использован для детектирования неравновесных акустических фононов, возникающих в кристалле в процессе безызлучательной релаксации оптически возбужденных примесных ионов [3]. В работе использованы кристаллы CaF_2 с двумя активаторами ($\text{Eu}^{2+}; \text{Sm}^{2+}$), при этом резонансные фононы, испущенные при переходах между электронными уровнями Eu^{2+} , зарегистрированы по антистоксовой вибронной люминесценции ионов Sm^{2+} .

Ориентированные монокристаллические образцы $\text{CaF}_2 - \text{Eu}^{2+}, \text{Sm}^{2+}$ размером $5 \times 1 \times 1 \text{ мм}^3$ были помещены в жидкий гелий ($T = 2\text{К}$) и подвергались одноосному сжатию вдоль оси [001]. Ионы Eu^{2+} (основное состояние $4f^7, {}^8S_{7/2}$) стационарно возбуждались в высокие состояния смешанной конфигурации $4f^6 5d$ путем освещения образца ртутной линией Hg 365 нм (лампа ДРШ-250 с фильтром ФС-7). Нижайший электронный уровень возбужденной $4f^6 5d$ -конфигурации (24206 см^{-1}) при деформации расщеплен в дублет W_2, W_1 , с шириной $\Delta = W_2 - W_1$, которая может меняться в зависимости от напряжения сжатия p [4] (см рис. 1). При безызлучательной релаксации возбуждения на $\Gamma_8 (W_2, W_1)$ в канале релаксации, включающем однофононные переходы $W_2 \rightarrow W_1$ должно происходить эффективное испускание в решетку резонансных фононов частоты $h\omega = \Delta$ [5].

Для регистрации избыточной концентрации этих релаксационных фононов использовалась $d \rightarrow f$ люминесценция ионов Sm^{2+} на электронном переходе $\Gamma_1^- (4f^5 5d 14373 \text{ см}^{-1}) \rightarrow \Gamma_4^+ (4f^6, {}^7F_1, 263 \text{ см}^{-1})$, который дает в спектре при $T = 2\text{К}$ бесфононную линию (БФЛ, 7085 Å при $p = 0$) и интенсивное вибронное крыло в стоксовой области от БФЛ [6, 7]. Люминесценция Sm^{2+} возбуждалась стационарно линиями Аг-лазера 4880, 5145 Å (которые не поглощаются ионами Eu^{2+}). В соответст-

1) Выращены В. Н. Баклановой при любезном содействии В. А. Архангельской.

ви с основной идеей ВФС [1, 2] предполагалось, что релаксационные фононы $\hbar\omega = \Delta$ дадут селективное увеличение стационарной интенсивности вибронного антистокса на частотном расстоянии Δ от БФЛ Sm^{2+} .

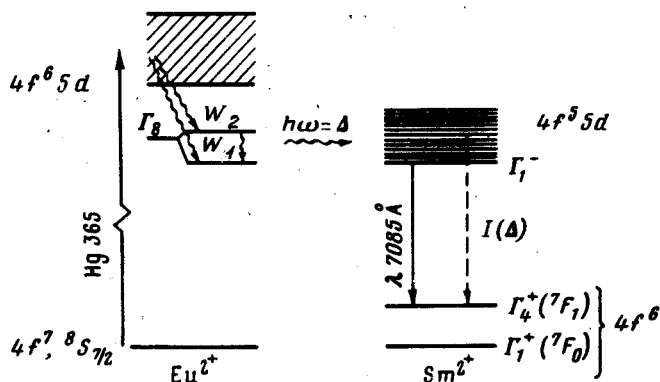


Рис. 1. Схема генерирования и детектирования релаксационных фононов в кристалле $CaF_2 - Eu^{2+}, Sm^{2+}$

В опытах изучалось влияние на стационарный спектр антистоксовой люминесценции Sm^{2+} в области линии $\Gamma_1^- \rightarrow \Gamma_4^+$, возбуждаемой Ar-лазером, дополнительного освещения кристалла линией Hg 365 нм, которое приводит к возбуждению ионов Eu^{2+} . (Освещение линией Hg 365 нм приводит и к дополнительному возбуждению ионов Sm^{2+} , однако эффективность этого процесса на порядок величины меньше возбуждения Sm^{2+} линиями Ar-лазера). Трудность измерений связана со слабостью антистоксовой вибронной люминесценции около БФЛ, а также с присутствием в этой области излучения неизвестной природы, не связанного с вибронным антистоксом перехода $\Gamma_1^- \rightarrow \Gamma_4^+$ в ионах Sm^{2+} . Измерения спектров велись по методу счета фотонов с накоплением сигнала.

На рис. 2 показаны "разностные" спектры излучения $\Delta I^{as}(\omega)$ в антистоксовой области от БФЛ $Sm^{2+} \Gamma_1^- \rightarrow \Gamma_4^+$ при различных значениях напряжения одноосного сжатия p . "Разностный" спектр есть $\Delta I^{as}(\omega) = I^{as}(\omega, Hg + Ar) - I^{as}(\omega, Ar)$, где $I^{as}(\omega, Hg + Ar)$ — спектр при одновременном возбуждении кристалла линией Hg 365 нм и Ar-лазером, а $I^{as}(\omega, Ar)$ — спектр при возбуждении кристалла только Ar-лазером, частота ω отсчитывается от положения БФЛ (которое само смещается при деформации [6]). Справа на рис. 2 показана величина Δ расщепления уровня $\Gamma_8 Eu^{2+}$ при различных p , измеренная по положению длинноволновой компоненты расщепленной линии люминесценции $W_1(4f^6 5d) \rightarrow {}^8S_{7/2}(4f^7)$ [4].

Как видно из рис. 2, в "разностном" спектре излучения $\Delta I^{as}(\omega)$ имеется четко выраженный максимум, который смещается в сторону высоких частот с ростом напряжения сжатия. Частота максимума сов-

падает с величиной Δ дублетного расщепления уровня Γ_8 Eu^{2+} при соответствующем напряжении сжатия (показана на рис. 2 стрелками). Ширина максимума ($2 + 5 \text{ см}^{-1}$) согласуется с величиной неоднородного уширения уровней W_2 , W_1 и с шириной БФЛ иона Sm^{2+} . Следует отметить также, что спектр люминесценции $I^{as}(\omega, \text{Hg})$ в антистоксовой области от БФЛ Sm^{2+} при возбуждении только Hg 365 нм не содержит никакой особенности на частоте $\omega = \Delta$. Таким образом, особенность $\Delta I^{as}(\omega)$ связана с генерированными Eu^{2+} фононами.

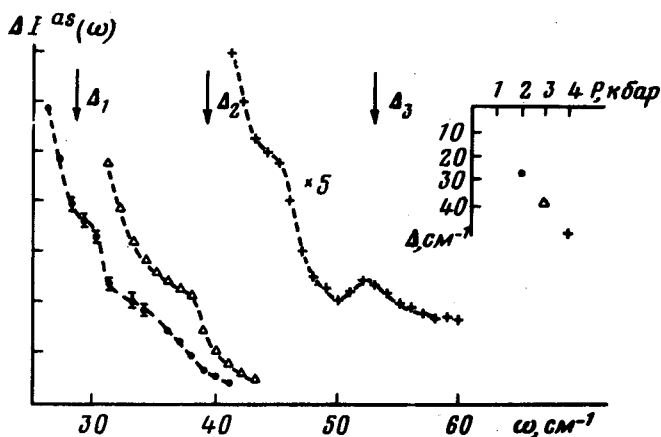


Рис. 2. "Разностные" антистоксовы спектры излучения Sm^{2+} при различных напряжениях сжатия p

Как известно [1, 2], интенсивность антистоксовой вибронной люминесценции на частоте ω $I^{as}(\omega) = I^s(\omega) \bar{n}(\omega)$, где $I^s(\omega)$ — интенсивность стоксовой люминесценции, а $\bar{n}(\omega)$ — число заполнения фононов на частоте ω . Основанная на измерениях I^{as} , I^s оценка по этой формуле дает для чисел заполнения генерированных резонансных фононов с $\omega = \Delta$ величину $\bar{n} = 10^{-4} + 10^{-5}$. Эта величина согласуется со значениями \bar{n} , полученными независимо из известного темпа генерации фононов ионами Eu^{2+} :

$$\text{Eu}^{2+}: \bar{n} = \frac{k P \tau \bar{v}^3}{12 \pi \nu^2 d \nu}, \text{ где } P \approx 10^{22} \text{ см}^{-3} \cdot \text{сек}^{-1} \text{ — число}$$

оптических квантов, поглощаемых ионами Eu^{2+} в единицу времени в единице объема, $\bar{v} = 3,5 \cdot 10^5 \text{ см/сек}$ — средняя скорость звука, $\tau = 10^{-6} \text{ сек}$ — время жизни фононов, в возбужденном объеме [2], $k = 1/2$ — квантовый выход генерации релаксационных фононов, $\nu = 10^{12} \text{ сек}^{-1}$ и $d\nu = 3 \cdot 10^{10} \text{ сек}^{-1}$ — соответственно частота и ширина генерируемых фононов ($\nu = 1/2 \pi \omega$).

В заключение отметим, что совмещение в двухактивированных кристаллах в одном объеме разных ионов, одни из которых генерируют, а

другие детектируют фононы, открывает новые возможности изучения генерации и распространения фононов терагерцового диапазона в кристаллах.

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

Поступила в редакцию
11 июня 1980 г.

Литература

- [1] W.E.Bron, W.Grill. Phys. Rev., B16, 5303, 5315, 1977.
 - [2] А.В. Акимов, С.А.Басун, А.А.Каплянский, Р.А.Гитов. ФТТ, 21, 231, 1979.
 - [3] R.S.Meltzer, J.E.Rives. Phys. Rev. Lett., 38, 421, 1977.
 - [4] А.А.Каплянский, А.К.Пржеvusский. Оптика и спектроскопия, 19, 597, 1965.
 - [5] W.Eisfeld, K.F.Renk. Appl. Phys. Lett. to be published.
 - [6] А.А.Каплянский, А.К.Пржеvusский. Оптика и спектроскопия, 20, 1045, 1966.
 - [7] В.А.Бонч-Бруевич, И.В.Игнатъев, В.В.Овсянкин. Оптика и спектроскопия, 44, 510, 1978.
-