Письма в ЖЭТФ, том 40, вып. 5, стр. 178 – 181 *10 сентября 1984 г.*

НАБЛЮДЕНИЕ СВЯЗАННОЙ ЭЛЕКТРОН-ФОНОННОЙ МОДЫ В КРИСТАЛЛЕ $LiHoF_4$

А.П.Абрамов, И.Н.Абрамова, И.Я.Герловин, И.К.Разумова

В экспериментах по флуоресцентному детектированию тепловых импульсов в кристалле $LiHoF_4$ обнаружены медленно затухающие (постоянная времени порядка 10^{-2} с) колебательные состояния с энергией близкой к 7 $см^{-1}$. Результаты интерпретированы как следствие резонансного взаимодействия фононов с электронными состояниями ионов Ho^{3+}, приводящего к образованию связанной электрон-фононной моды.

В кристаллах, содержащих редкоземельные ионы с богатой штарковской структурой основного состояния, движение фононов терагерцовых частот определяется в значительной степени резонансным взаимодействием с электронными состояниями этих ионов. В "концентрированных" кристаллах, в которых редкоземельные ионы являются элементами регулярной структуры, такое взаимодействие проявляется наиболее сильно и приводит к образованию связанных электрон-фононных состояний. Как было показано в работе [1], связанные состояния (связанные моды) характеризуются своим законом дисперсии и скорость

их распространения может существенно уступать скорости движения фононов. Возникающее при образовании связанных состояний антипересечение фононных и электронных ветвей наблюдалось в опытах по нейтронному рассеянию [2], однако экспериментальные сведения о переносе энергии электрон-фононными модами в литературе отсутствуют. Приведенные в настоящем сообщении результаты исследования распространения тепловых импульсов в двойном фториде лития – гольмия ($LiHoF_4$) представляют собой первую информацию о наблюдении движения сильно связанных электрон-фононных мод.

Кристалл $LiHoF_4$ имеет тетрагональную симметрию и близок по физическим характеристикам к известной системе $LiVF_4$. Особенностью иона гольмия в использованном кристалле является наличие близких по энергии зазоров между нижайшими подуровнями основного $^5I_8$ и люминесцирующего возбужденного $^5F_5$ состояний (7,7 и 6,7 см$^{-1}$, соответственно [1)]). Эта особенность позволяла использовать методику флуоресцентного детектирования тепловых импульсов [3] для изучения распространения фононов, почти совпадающих по частоте с переходами в основном состоянии редкоземельных ионов. Источником неравновесных фононов служила напыленная на поверхность кристалла тонкая константановая пленка, нагреваемая импульсами электрического тока. Длительность импульсов составляла 3 мкс, пиковая мощность – 20 Вт/мм^2. Наличие фононов регистрировалось по увеличению интенсивности люминесценции с приподнятого подуровня Γ_{34} (симметрия по [4]) состояния $^5F_5$. Люминесценция возбуждалась непрерывным излучением He –Ne-лазера (632,8 нм, мощность 1 – 10 мВт). Для регистрации люминесценции использовался спектрометр ДФС-24. Все эксперименты проводились при температуре 2 К.

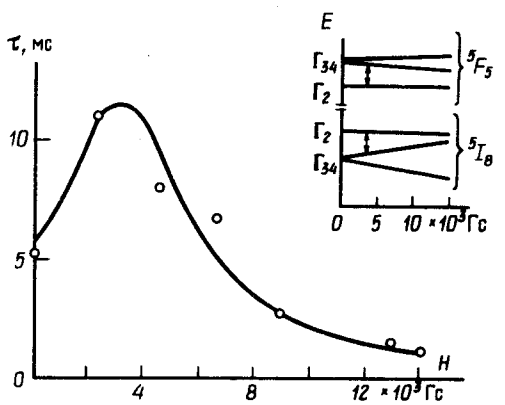

Рис. 1

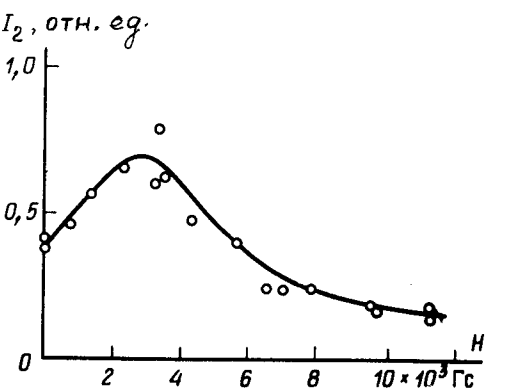

Рис. 2

Рис. 1. Полевая зависимость времени затухания регистрируемого импульса. На вставке продемонстрировано расщепление подуровней состояний $^5F_5$ и $^5I_8$ в магнитном поле

Рис. 2. Полевая зависимость интенсивности люминесценции с уровня Γ_{34} ($^5F_5$) при плотности оптического возбуждения 1 Вт/см^2

Как показали результаты измерений, при подаче электрического импульса на нагреватель в кристалле (как в непосредственной близости от нагревателя, так и на удалении порядка 1 мм) наблюдается импульсное возгорание люминесценции с уровня Γ_{34} ($^5F_5$), причем длительность регистрируемого импульса составляет 10^{-2} с, что более чем на три десятичных порядка превышает времена, типичные для распространения фононов в кристаллах на миллиметровые расстояния [5]. Почти столь же велико отличие от времени излучательной релаксации уровня $^5F_5$ ($4 \cdot 10^{-5}$ с), определенного оптическим методом. Измеренное время не является также временем остывания кристалла в целом, так как на расстояниях, больших 1,5 мм, импульс не наблюдается (размеры образца 2 × 5 × 8 мм^3).

---

1) Значения зазоров определены по спектроскопическим данным.

Для выяснения роли резонанса с переходами в основном состоянии изучалось изменение формы регистрируемого импульса в магнитном поле, направленном вдоль оси четвертого порядка. Эксперимент базировался на различии значений g-факторов подуровней основного и возбужденного состояний (см. вставку на рис. 1), позволявшем сканировать магнитным полем зазор между штарковскими подуровнями основного состояния относительно частоты фононного детектора и проходить тем самым область точного резонанса. Как видно из рис. 1, на котором приведены результаты измерений, длительность регистрируемого импульса немонотонно зависит от напряженности магнитного поля H и имеет максимальные значения в полях, соответствующих резонансу между расщеплениями основного и возбужденного состояний. С учетом измеренных спектроскопически значений g-факторов, вид полевой зависимости времени затухания импульса хорошо описывается лоренцовой спектральной функцией, имеющей полуширину 2 $см^{-1}$ и центрированной на частоте резонанса. Резонансный характер изменения длительности детектируемых импульсов позволяет объяснить наблюдаемые на опыте большие времена затухания колебательных возбуждений наличием в кристалле связанных электрон-фононных мод. Ширина резонанса задается, по-видимому, спектральной областью существования связанных состояний, а большая длительность объясняется незначительностью вклада фононной составляющей, ответственной за основные диссипативные процессы – пространственный перенос и спектральную трансформацию энергии.

Благодаря большой длительности затухания связанные моды являются эффективным резервуаром для накопления колебательной энергии. В отсутствие внешнего нагревателя источником избыточной энергии может быть возбуждающий свет, поскольку при возбуждении люминесценции кристалла $LiHoF_4$ излучением He –Ne-лазера, попадающим в резонанс с одним из верхних штарковских подуровней состояния $^5F_5$, около 10% энергии поглощенных квантов превращается в фононы за счет безызлучательной релаксации по подуровням возбужденного и основного состояний иона гольмия. Как и в экспериментах с тепловыми импульсами, возбуждение связанных мод за счет поглощения световой энергии фиксировалось по люминесценции с приподнятого подуровня Γ_{34} состояния $^5F_5$. Было обнаружено, что при плотностях мощности непрерывного оптического возбуждения 0,1 $Вт/см^2$ и выше интенсивность люминесценции (I_2) с подуровня Γ_{34} ($^5F_5$) превышала значения, соответствующие его равновесной температурной заселенности, причем отклонение от равновесия возрастало с увеличением плотности возбуждения. Убедительным свидетельством в пользу того, что превышение заселенности над равновесным значением обусловлено резонансом с расщеплением в основном состоянии, являются приведенные на рис. 2 результаты измерения зависимости I_2 от магнитного поля. Как видно из сравнения рис. 1 и рис. 2, величина I_2 принимает максимальные значения в тех полях, в которых выполняется условие резонанса. При плотностях возбуждения меньших 0,1 $Вт/см^2$, величина I_2 соответствовала равновесной заселенности подуровня Γ_{34}($^5F_5$) при температуре 2 К и не зависела от магнитного поля.

На основании полученных данных можно заключить, что в экспериментах по флуоресцентному детектированию тепловых импульсов в кристалле $LiHoF_4$ наблюдалось распространение связанных электрон-фононных мод с энергиями порядка 7 $см^{-1}$, были измерены времена жизни и оценена спектральная область их существования. Более детальное изучение свойств связанного состояния, таких как скорость и анизотропия распространения, характер когерентности и пр., является задачей дальнейших исследований.

Литература

1. *Jacobsen E.H., Stevens K.W.H.* Phys. Rev., 1963, **129**, 2036.
2. *Kjems I.K., Hayes W., Smith S.H.* Phys. Rev. Lett., 1975, **35**, 1089.
3. *Renk K.F., Deisenhofer J.* Phys. Rev. Lett., 1971, **26**, 764.

4. *Гифейсман Ш.Н., Ткачук А.М., Призмак В.В.* Оптика и спектроскопия, 1978, **44**, 120.
5. *Гутфельд Р.* Кн.: "Физическая акустика" под ред. У.Мэзона, М.: Мир, 1973, с. 267.

Поступила в редакцию
5 апреля 1984 г.
После переработки
30 июня 1984 г.