

НЕЛИНЕЙНАЯ ДЕЛОКАЛИЗАЦИЯ ВОЗБУЖДЕНИЙ В РАЗУПОРЯДОЧЕННЫХ КРИСТАЛЛАХ

В.В. Овсянкин, А.А. Федоров

При оптических накачках, превышающих некоторую критическую, спектр эффективности возбуждения люминесценции кристаллов разупорядоченного тисонита приобретает вид, ожидаемый для систем, испытывающих андерсоновскую делокализацию¹.

В работе исследовались возбужденные состояния разупорядоченного тисонита SrYb_2F_8 , генетически связанные с возбуждением внутри незаполненной $4f^{13}$ -конфигурации иона Yb^{3+} (переход между нижайшими компонентами кристаллического расщепления термов ${}^2F_{7/2}$ и ${}^2F_{5/2}$). Неоднородное уширение состояний, комбинирующих в оптическом переходе, связано с разбросом локальных кристаллических полей, вызванным хаотическим распределением катионов и анионных вакансий по системе правильных точек структуры тисонита – LaF_3 . Полюширина неоднородного уширения $|\Delta|$ составляет $\Delta \cong 35 \text{ см}^{-1}$ (рис. 1). Основной вклад в делокализирующее взаимодействие дает квадруполь-квадрупольный член разложения электростатического взаимодействия в ряд по мультиполям. Величина взаимодействия на минимальном расстоянии между ионами Yb^{3+} , допускаемом кристаллической структурой, равна $V_{qq}(R_{\min}) \equiv V \cong 5 \text{ см}^{-1}$. Соответственно, отношение $\Delta/V = 7$. Сравнивая это значение с численными расчетами критических значений модели Андерсона для трех решеток², можем ожидать, что центральная область плотности состояний занята зоной делокализованных состояний (ДЛС), а края распределения – локализованными состояниями (ЛС), отделенными от ДЛС, как это принято считать³, порогами подвижности ω_c и ω'_c (рис. 1). Существенное отличие нашей системы, как и большинства других реальных систем, от модели Андерсона заключается в том, что последняя игнорирует электрон-фононное взаимодействие, приводящее к обмену энергией между нерезонансными электронными состояниями, тогда как такой обмен протекает, как правило, очень эффективно. В частности, в SrYb_2F_8 межмодовой электрон-фононный обмен приводит к тому, что при $T = 1,8\text{K}$ возбуждения быстро релаксируют в низкоэнергетическое крыло распределения, так что независимо от области возбуждения стационарная люминесценция определяется переходами в системе ЛС низкоэнергетического крыла (рис. 1).

В этой статье мы покажем, что межмодовая релаксация радикально изменяет картину эффектов, связанных с распространением делокализованных возбуждений. Для этого нам понадобятся детекторы, реагирующие на пространственную диффузию возбуждений. В качестве таких детекторов будем использовать малое число точечных дефектов – тушителей люминесценции ($N_T \ll 10^{-8} N_{\text{Yb}}$), эффективно преобразующих энергию возбуждения соседних ионов иттербия в энергию фононной подсистемы. При $T = 300\text{K}$ скорость тушения, вызванного термоактивированной диффузией возбуждений к этим тушителям, составляет $\gamma_T = 3 \cdot 10^4 \text{ сек}^{-1}$ и значительно превышает скорость излучательных переходов $\gamma_{\text{и}} = 6 \cdot 10^2 \text{ сек}^{-1}$ ⁴.

При $T = 0\text{K}$ эффективный пространственный перенос энергии возможен лишь по системе делокализованных состояний. Пренебрегая межмодовой релаксацией, можем ожидать, что квантовый выход люминесценции нашей системы при низких температурах будет испытывать скачки от величины близкой к единице при возбуждении в область ЛС до величины порядка $\gamma_{\text{и}}/\gamma_T = 5 \cdot 10^{-2}$ при возбуждении в область ДЛС. В предварительном эксперименте мы исследовали зависимость интенсивности люминесценции SrYb_2F_8 при $T = 1,8\text{K}$ от частоты возбуждающего излучения при стационарном возбуждении (излучение лампы ДКсР-150а, пропущенное через монохроматор ДФС-24) и не обнаружили сколько-нибудь заметных отклонений спектра возбуждения от спектра поглощения кристалла. Это свидетельствует о том, что либо в кристалле не реализуются ДЛС, либо возбуждения, созданные в области ДЛС быстрее релаксируют в ЛС, чем взаимодействуют с тушителями центрами. Последнее означает, что по отношению к когерентному переносу энергии по зоне ДЛС резервуар ЛС играет роль диссипативной

подсистемы, взаимодействие с которой ограничивает время и радиус когерентной диффузии. Существенно, что энергоемкость ЛС конечна и заполняя ЛС мы можем подавить нестационарность ДЛС, связанную с межмодовой релаксацией и тем самым управлять радиусом когерентной диффузии возбуждений, увеличивая его до значения, определяемого меньшим из времен γ_T^{-1} или γ_H^{-1} .

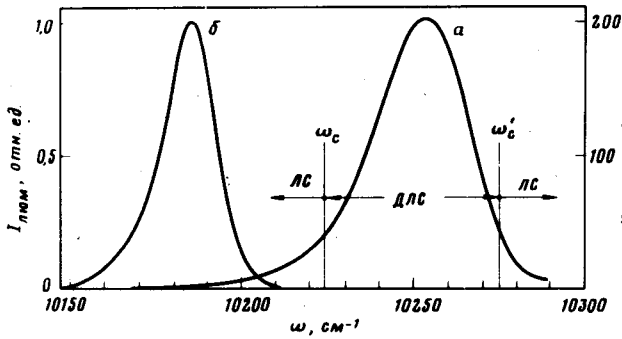


Рис. 1.

Рис. 1. Спектры поглощения – а, люминесценции – б SrYb₂F₈ при T = 1,8К

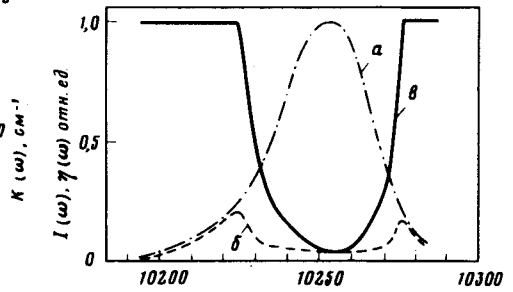


Рис. 2

Рис. 2. Спектры $I(\omega)$ при $\Lambda = 0,5\Lambda_{кр}$ – а; $I(\omega)$ – б и $\eta(\omega)$ – в при $\Lambda = 2\Lambda_{кр}$

Эксперимент, демонстрирующий такую возможность, ставился следующим образом. Излучение перестраиваемого импульсного лазера на красителе, имеющего параметры: (длительность импульса – 30 нсек, энергия в импульсе – 3 мДж, ширина спектра – $0,5\text{ см}^{-1}$ область перестройки – $930 \div 1000\text{ нм}$), пропускалось через калиброванный жидкостной ($\text{H}_2\text{O} + \text{CuSO}_4$) фильтр и фокусировалось на образец (диаметр фокального пятна – $0,1\text{ мм}$). Образец в виде плоской пластинки толщиной 20 мкм (оптическая плотность в максимуме поглощения равна 0,4) помещался в криостат с жидким гелием ($T = 1,8\text{ К}$) непосредственно за диафрагмой диаметром 50 мкм. Этим достигалось равномерное по объему возбуждение кристалла. Свечение образца проектировалось на фотокатод ФЭУ-83 линзой с экранированной центральной частью, что препятствовало прямому прохождению возбуждающего излучения на фотокатод. Фототок ФЭУ регистрировался осциллографом и интегрирующим вольтметром с постоянной интегрирования $\tau = 10\gamma_H^{-1}$. В каждой серии измерений варьировалась длина волны возбуждения с шагом 0,1 нм, а плотность возбуждения поддерживалась постоянной. Получаемые таким образом спектральные зависимости интенсивности интегрального по спектру и времени свечения образца будем называть спектрами возбуждения – $I(\omega)$. Оказалось, что при плотностях возбуждения меньших критической ($\Lambda_{кр}$) спектры возбуждения не отличаются от спектров поглощения – $K(\omega)$ с точностью до погрешности эксперимента. Соответственно, спектр квантового выхода, определяемый как отношение $\eta(\omega) = I(\omega)/K(\omega)$, постоянен и не испытывает скачков, свидетельствующих о когерентной диффузии делокализованных возбуждений к тушителю. При $\Lambda \geq \Lambda_{кр}$ спектр возбуждения резко изменяется и приобретает характерный вид, изображенный на рис. 2 для значения $\Lambda = 2\Lambda_{кр}$ в сравнении со спектром, полученным для $\Lambda = 0,5\Lambda_{кр}$. Соответственно, спектр квантового выхода приобретает вид, ожидаемый для систем, испытывающих андерсоновскую делокализацию (рис. 2).

Приведенные результаты позволяют нарисовать следующую картину обнаруженного нами критического явления. При $\Lambda < \Lambda_{кр}$ делокализованные возбуждения релаксируют в область ЛС со скоростью, превышающей скорость когерентной диффузии к тушителю. При $\Lambda \geq \Lambda_{кр}$ часть энергии возбуждения ДЛС расходуется на заселение ЛС, заполняя их на столько, что время жизни оставшихся в зоне ДЛС возбуждений возрастает до величины, достаточной для развития когерентного тушения. Так как началу когерентного тушения предшествует заполнение ЛС низкоэнергетического крыла, то есть создание значительной плотности возбужденных

состояний, то система оказывается подготовленной к лавинному тушению люминесценции⁴ — термоактивированному тушению, стимулированному фононами, образовавшимися в процессе когерентного тушения. В результате, интегральная интенсивность свечения при возбуждении в зону ДЛС падает ниже уровня, соответствующего возбуждению на пороге делокализации — ω_c (рис. 2).

В заключение отметим, что критический характер явлений, связанных с насыщением межмодовой релаксации в системах с делокализованными по Андерсону возбужденными состояниями, может оказаться небезынтесным для практических приложений.

Авторы благодарны И.Г.Подколзиной, Т.С.Семеновой и Л.Ф.Корякиной, вырастившим кристаллы для этого исследования.

Литература

1. *Anderson P.W.*, Phys. Rev. 1958, 109, 1492; Proc. Nat. Acad. Sci. US 1972, A69, 1097.
2. *Weaire D., Srivastava V.* Communication on Physics, 1977, 2, 73.
3. *Mott N.F.* Adv. Phys., 1967, 16, 49.
4. *Овсянкин В.В., Федоров А.А.* Оптика и спектроскопия, 1980, 49, 195.

Государственный
оптический институт
им. С.И.Вавилова

Поступила в редакцию
30 декабря 1981 г.
После переработки
1 февраля 1982 г.