

ЭФФЕКТ СТИМУЛЯЦИИ БЕЗЫЗЛУЧАТЕЛЬНЫХ ПЕРЕХОДОВ
ПРИ ИНТЕНСИВНОМ СВЕТОВОМ ВОЗБУЖДЕНИИ

А. М. Ткачук, А. А. Федоров

При стоксовом возбуждении кристалла излучению, как правило, предшествует безызлучательная релаксация с возбужденного уровня на излучательный. Вероятность безызлучательной релаксации зависит от температуры и обычно считается характеристикой примесного центра, не зависящей от интенсивности возбуждающего света.

При исследовании вероятности безызлучательной релаксации в кристаллах $\text{CaF}_2(\text{Sm}^{2+})$ нами был обнаружен эффект стимуляции безызлучательных переходов в интенсивном поле волны возбуждающего света.

Наблюдалась кинетика разгорания люминесценции при возбуждении субнаносекундными импульсами второй гармоники неодимового лазера, работающего в режиме самосинхронизации мод. Возбуждающие импульсы представляли собой серию пиков с длительностью $< 1 + 1,5 \text{ нсек}$ (предел временного разрешения установки) и средней энергией $\sim 0,1 - 0,2 \text{ дж}$ каждый.

Схема уровней и переходов в $\text{CaF}_2(\text{Sm}^{2+})$ представлена на рис. 1. Возбуждение и излучение кристалла идентифицируются с разрешенными переходами ($1 \rightarrow 3$ и $2 \rightarrow 1$ на рис. 1) между состояниями $4f$ - и $4f$ - $5d$ -конфигураций в ионе Sm^{2+} [1 - 6]. Вероятность безызлучательного перехода $3 \rightarrow 2$ обозначим W_{32} . Других безызлучательных переходов в этой системе нет, так как квантовый выход люминесценции с уровня 2 при возбуждении в области $(14 + 30) \cdot 10^3 \text{ см}^{-1}$ равен единице и время жизни излучательного уровня τ_2 при $T \leq 77^\circ\text{K}$ постоянно, оно равно $\sim 2 \cdot 10^{-6} \text{ сек}$ [1, 2]. При возбуждении уровня 3 импульсом вида $F(t)$ и при условиях: $\tau_2 \gg t_{\text{имп}}$ (длительности импульса) и

$\tau_2 \gg 1/W_{32}$ кинетика нарастания люминесценции с уровня 2 выражается как: t

$$I_H(t) = \text{const} \int_0^t \exp(-W_{32}t) \left[\int_0^t F(t) \exp(W_{32}t) dt \right] dt. \quad (1)$$

Таким образом, из зависимости $I_H(t)$ можно сделать оценки W_{32} .

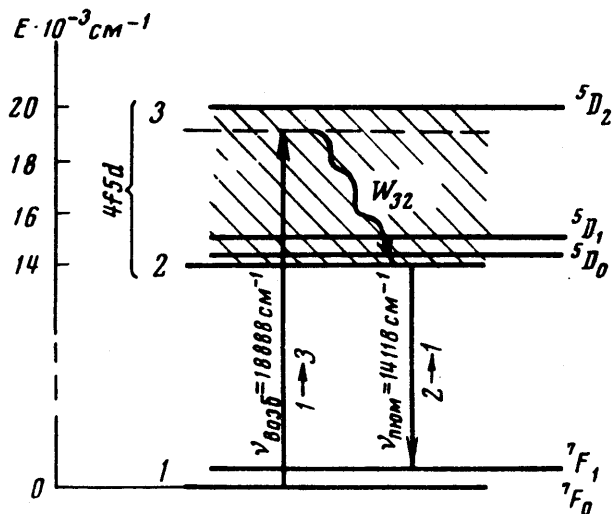


Рис. 1. Схема уровней кристалла $\text{CaF}_2(\text{Sm}^{2+})$

На рис. 2 представлены осциллограммы сигнала люминесценции кристалла $\text{CaF}_2(\text{Sm}^{2+})$, полученные при 77 и 300°K и различных плотностях мощности возбуждающего света P/S от ~ 400 до 360 Вт/см^2 ¹⁾.

Нижний предел определялся амплитудной чувствительностью приемной части установки: фотоумножителя 18ЭЛУ-Ф9²⁾ и осциллографа 6ЛОР-02М. Как видно из рис. 2, б, д при $P/S \lesssim 1 \text{ кВт/см}^2$ и $T = 77^\circ\text{K}$ интенсивность люминесценции нарастает за время значительно большее длительности одного пика, т. е. реализуется случай $t_{\text{имп}} \ll 1/W_{32}$ и время безызлучательной релаксации из (1) можно оценить как $1/W_{32} \gtrsim 10 \text{ нсек}$. При увеличении плотности мощности возбуждающего света это время сокращается, при $P/S \sim 2 \text{ кВт/см}^2$ оно равно $\sim 3 \text{ нсек}$ (рис. 2, е) и при $P/S > 100 \text{ кВт/см}^2$ это время сравнимо с длительностью возбуждающего пика, т. е. $1/W_{32} < 1,5 \text{ нсек}$. Таким образом, при изменении плотности мощности возбуждающего света от 400 Вт/см^2 до десятков кВт/см^2 и более вероятность безызлучательного перехода W_{32} возрастает от $\sim 10^8$ до $\gtrsim 5 \cdot 10^{10} \text{ сек}^{-1}$.

¹⁾ Для изменения плотности возбуждения и сохранения общей амплитуды регистрируемого сигнала различные комбинации нейтральных фильтров переставлялись в установке таким образом, чтобы ослаблять либо возбуждающий свет, либо свет люминесценции образца в одинаковое число раз.

²⁾ Авторы пользуются случаем выразить благодарность Л.И. Андреевой, З.М. Семичастновой и Б.М. Степанову за предоставление ФЭУ.

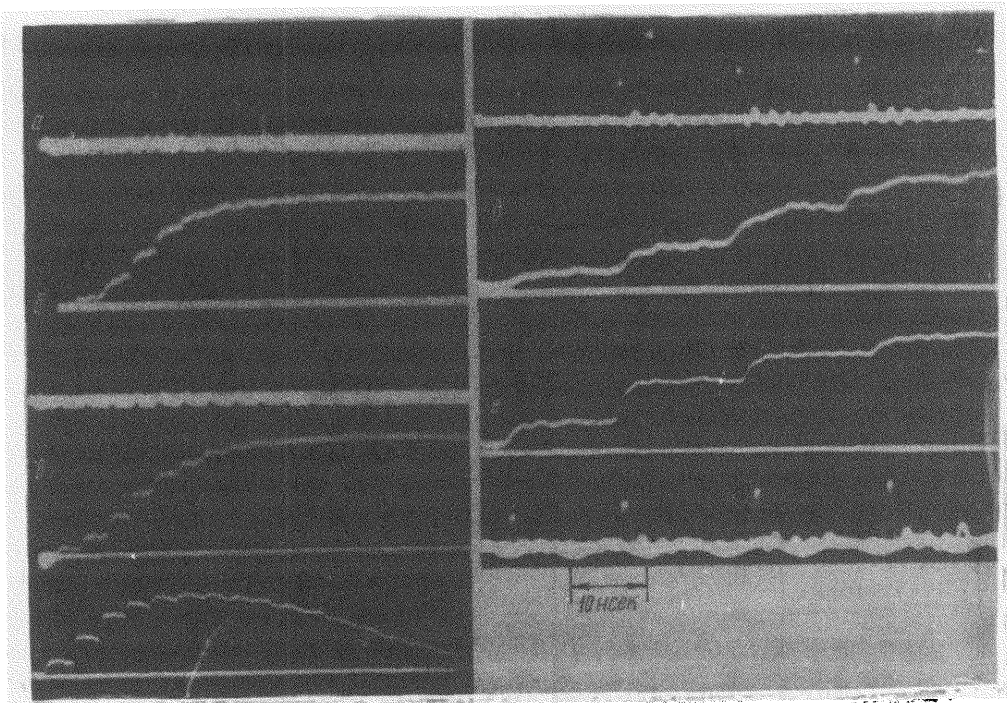


Рис. 2. Осциллограммы возбуждающих импульсов (а) и кинетики нарастания люминесценции при различных плотностях мощности возбуждающего света: б) $P/S \sim 400 \text{ вт/см}^2$, $S = 40 \text{ мм}^2$, $T = 77^\circ\text{К}$; в) $P/S \sim 360 \text{ Мвт/см}^2$, $S = 1 \text{ мм}^2$, $T = 77^\circ\text{К}$; г) $P/S \sim 4,5 \text{ квт/см}^2$, $S = 13 \text{ мм}^2$, $T = 300^\circ\text{К}$; д) $P/S \sim 1 \text{ квт/см}^2$, $S = 1 \text{ мм}^2$, $T = 77^\circ\text{К}$; е) $P/S \sim 2 \text{ квт/см}^2$, $S = 33 \text{ мм}^2$, $T = 77^\circ\text{К}$. Расстояние между возбуждающими пичками соответствует 16,5 нсек

Наблюдаемый эффект может быть связан : 1) с температурной зависимостью W_{32} , если при увеличении плотности возбуждающего света повышается локальная температура примесного центра (обычный нагрев можно не учитывать, так как при $P/S \sim 300 \text{ квт/см}^2$ и полном поглощении света образец нагрелся бы лишь на $\Delta t \sim 2 \cdot 10^{-3} \text{ град}$) и 2) с взаимодействием примесного центра с полем возбуждающей или излучаемой волны, приводящим к изменению вероятности безызлучательных переходов. Локальную температуру примесного центра можно контролировать по изменению τ_2 . Как следует из температурной зависимости $\tau_2(T)$ [2] и рис. 2, г величина τ_2 при 300°К падает до значения $\leq 4 \cdot 10^{-8} \text{ сек}$. Отсутствие заметного затухания люминесценции при 77°К за время 10^{-7} сек (рис. 2, б, в) позволяет заключить, что τ_2 должно быть $> 10^{-6} \text{ сек}$, и, следовательно, локальная температура центра не может быть выше 100°К [2]. Взаимодействие примесного центра с полем световой волны может проявиться в увеличении W_{32} за счет смещения возбужденных состояний примесного центра. Этот эффект связан с внутрицентровыми переходами и зависит только от интенсивности возбуждающего света. В этом случае, также как и в случае температурных эффектов, изменения $I_H(t)$ в формуле (1) связаны только с изменением параметра W_{32} .

Однако, опыт показывает, что при плотности мощности возбуждающего света $P/S \lesssim 10 \text{ квт/см}^2$ в кинетике разгорания люминесценции $I_H(t)$ наблюдается два процесса: один быстрый, соответствующий скачкам интенсивности на осциллограммах, происходящим за время $\lesssim 1,5 \text{ нсек}$, и второй, более медленный с длительностью $\gtrsim 3 \text{ нсек}$, причем доля первого процесса по отношению ко второму с увеличением номера возбуждающего пика (и его интенсивности) уменьшается (рис. 2, б, е).

Наблюдаемые эффекты можно объяснить, если предположить, что при интенсивном возбуждении возможно вынужденное излучение неравновесных — "горячих" — фононов. Как показано в работе [7] для появления вынужденных безызлучательных переходов необходимо наличие инверсной заселенности и связи между частицами посредством фотонного или фононного поля. Для перехода $3 \rightarrow 2$ условие инверсии заселенности уровней будет выполняться лишь для первых пиков; для них же наблюдаются максимальные амплитуды быстрых скачков на осциллограммах рис. 2. Оценки показывают, что при плотностях $P/S \sim (1 + 10) \text{ квт/см}^2 = (2,6 + 26) \cdot 10^{12} \text{ квант/см}^2$ (для $\lambda = 530 \text{ нм}$), при которых уже наблюдается эффект стимуляции безызлучательных переходов, расстояние между возбужденными центрами $\sim (0,8 + 0,4) \cdot 10^{-4} \text{ см}$ и сравнимо с длиной волны возбуждающего света. Для осуществления связи между центрами через фононное поле при таких расстояниях между центрами необходимо, чтобы время жизни фононов $\tau_{\text{ф}} > 10^{-10} \text{ сек}$, что для CaF_2 нам представляется мало вероятным.

Из совокупности приведенных фактов и оценок следует, что в $\text{CaF}_2 (S m^{2+})$ наблюдаются вынужденные безызлучательные переходы, причем связь между центрами может осуществляться через поле возбуждающей световой волны.

Авторы выражают глубокую признательность А.М.Бонч-Бруевичу за помощь при проведении работы и ценные советы и П.П.Феофилову за интерес к работе и обсуждение результатов.

Государственный
оптический институт им. С.И.Вавилова

Поступила в редакцию
7 августа 1972 г.

Литература

- [1] D.L.Wood, W. Kaiser. Phys. Rev., 126, 2079, 1962.
- [2] П.П.Феофилов. Оптика и спектроскопия, 1, 992, 1956.
- [3] А.А.Каплянский, П.П.Феофилов. Оптика и спектроскопия, 12, 493, 1962.
- [4] А.А.Каплянский, А.Н.Пржевусский. Оптика и спектроскопия, 13, 882, 1962.
- [5] Б.П.Захарченя, А.Я.Рыскин. Оптика и спектроскопия, 13, 875, 1962.
- [6] П.П.Феофилов. Acta Physica Polonica, 26, 331, 1964.
- [7] В.Р.Нагибаров, У.Х.Копвиллем. ЖЭТФ, 54, 312, 1968.