

ФЛУОРЕСЦЕНЦИЯ КРИСТАЛЛОВ АНТРАЦЕНА ПРИ ВЫСОКИХ КОНЦЕНТРАЦИЯХ ЭКСИТОНОВ

*В. А. Бендерский, В. Х. Брикенштейн, В. Л. Бродде,
А. Г. Лаврушко*

Проведено параллельное изучение падения квантового выхода интегрального свечения и возрастания относительной интенсивности одной из вибронных полос в спектре флуоресценции кристалла антрацена при возбуждении азотным лазером. Найдены способы управления, позволяющие исследовать каждое из этих явлений в отдельности.

В спектре флуоресценции кристаллов антрацена наблюдаются два явления, возникающие при интенсивной накачке: падение квантового выхода интегрального свечения (нелинейное тушение) [1, 2] и возрастание относительной интенсивности одной из вибронных полос [3, 4]. Поскольку оба эти процесса обнаружены в одних и тех же образцах в одном температурном интервале и при сравнимых уровнях накачки, представляло интерес исследовать их взаимосвязь. В настоящей работе по-

казано, что усиление вибронной полосы с участием колебания 1400 см^{-1} (полоса I) связано с возникновением генерации света в кристалле. Найдены способы управления тушением и генерацией, позволяющие исследовать оба эти явления в отдельности.

Исследовалась флуоресценция сублимированных лепестков антрацена толщиной $0,5 - 3 \text{ мкм}$, возбуждаемых импульсами азотного лазера длительностью 12 нсек и мощностью $1,5 \text{ квт}$ при диаметре пятна фокусировки $1,2 \text{ мм}$. Кристаллы свободно крепились в бумажных конвертах на штоке гелиевого термостата с регулируемой температурой бани. Свет флуоресценции с тыловой грани образца через монохроматор ДФС-12 попадал на ФЭУ-36, сигнал с которого подавался на стробоскопический осциллограф запускаемый опорным импульсом с регулируемой задержкой. Выходное напряжение, пропорциональное величине импульса на ФЭУ в заданной по времени точке, регистрировалось самописцем, что позволяло записывать спектры свечения в этой точке. Все сообщаемые ниже данные относятся к временной точке максимума свечения. Измерения интегрального тушения проводились так же, как в [2].

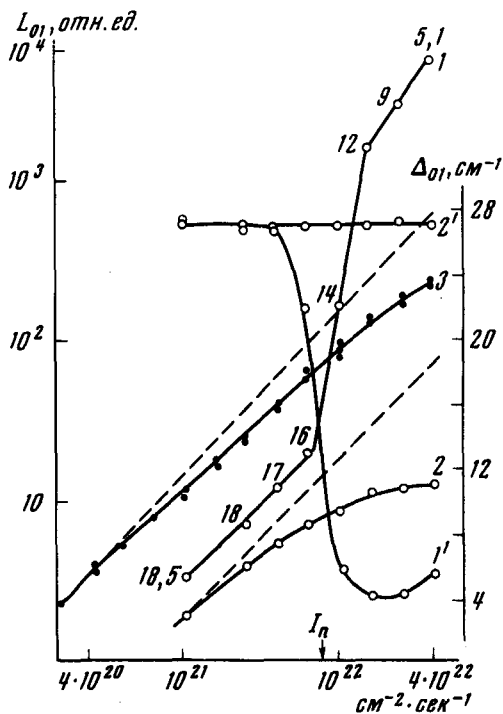


Рис. 1. Зависимость интенсивности (кривые 1, 1') и полуширины (кривые 2, 2') полос $23,692 \text{ см}^{-1}$ (полоса I) и $24,704 \text{ см}^{-1}$ (полоса II) и интегральной флуоресценции (кривая 3) от интенсивности накачки для образца толщиной $0,5 \text{ мкм}$. Температура освещаемой зоны кристалла -21°К . В скобках указаны температуры бани

В результате всевозможных безызлучательных переходов при интенсивной накачке происходит нагрев освещаемой области кристалла. Общая величина нагрева определялась по полуширине вибронной полосы с участием колебания 395 см^{-1} (полоса II), температурная зависимость которой была измерена независимо и совпала с данными [5]. При интенсивности накачки $4 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2} \cdot \text{сек}^{-1}$ и температуре бани $4,2^\circ\text{К}$ полуширина полосы II в различных образцах отвечала температурам $10 - 21^\circ\text{К}$. Для устранения этого изменения температуры при измерениях интенсивности отдельных полос и интегрального тушения температура бани варьировалась так, чтобы полуширина полосы II оставалась постоянной.

Из анализа полученных в этих условиях экспериментальных данных следует, что усиление интенсивности полосы I : 1. Возникает при наличии нелинейного тушения интегральной интенсивности всего спектра, причем тушение имеет место при всех температурах и для всех толщин образцов, в то время как усиление обнаружено лишь при температуре освещаемой зоны ниже 27°K и не наблюдается в кристаллах толще 2 мкм. 2. Заключается в сверхлинейном росте как пиковой, так и интегральной интенсивности полосы и ее резком сужении, сопровождается дополнительным усилением тушения остальных полос спектра. 3. Возрастает с уменьшением толщины кристалла, в наиболее тонких из них ее относительная пиковая интенсивность при максимальной накачке ($10^{23} \text{ см}^{-2} \cdot \text{сек}^{-1}$) возрастает в 1000 раз. 4. С точностью до фактора 2 – 3 по накачке наблюдается и при измерении флуоресценции от боковой грани кристалла.

На рис. 1 даны типичные характеристики свечения кристалла. При максимальной накачке полоса II заметно более ослаблена, чем интегральная флуоресценция (в 2,5 раза), что говорит о перекачке интенсивности из всего спектра в усиливающуюся полосу I. Следует отметить, что при постоянной температуре бани, а, значит, при меняющейся температуре освещаемой области образца, существенно размываются все пороги. Причиной этого является температурное уширение полос спонтанной флуоресценции, приводящее к резкому изменению порога I_p .

Данные рис. 1 показывают, что режим усиления в этом тонком кристалле антрацена возникает при концентрации экситонов n_p ($n_p = \Phi K I_p \tau$, $\tau = 4 \cdot 10^{-9} \text{ сек}$ – время спонтанной флуоресценции, $K = 2 \cdot 10^4 \text{ см}^{-1}$ коэффициент поглощения возбуждающего света, Φ – фактор тушения интегральной флуоресценции), равной $3 - 6 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$. Оценка коэффициента усиления тогда дает значение около 50 см^{-1} , что говорит о длине усиления много большей, чем толщина кристалла.

Наличие резких порогов в зависимостях полуширины и интенсивности полосы I от накачки позволяет предположить, что в тонких кристаллах антрацена осуществляется режим генерации света. Природа генерации не совсем ясна. Однако резкая ее зависимость от толщины кристалла дает основание предположить, что она развивается на модах, испытывающих полное внутреннее отражение и имеющих длину усиления L порядка диаметра освещаемой области D . Именно в этом случае при $d > 1/K$ длина усиления L должна уменьшаться с ростом толщины d . Хотя в исследованных кристаллах d/λ приближается к единице, отмеченное уменьшение L можно качественно подтвердить в рамках геометрической оптики, когда $L = 2D/Kd \sin \alpha$. (α – угол полного внутреннего отражения). Тогда для кристаллов с $d > 2 \text{ мкм}$ из-за уменьшения L могут не достигаться условия самовозбуждения. Выход света индуцированной флуоресценции с генерирующих мод может осуществляться за счет межмодовой передачи, вызванной наличием дефектов и механических напряжений в образце [6].

Дополнительные измерения зависимости усиления полосы I от величины D согласуются с рассмотренной моделью. На рис. 2 показаны зависимости пиковой интенсивности и полуширины полосы I от накачки при разных D . С ростом D порог генерации падает, так как возрастает длина усиления L . При $D = 3 \text{ мм}$ $I_p = 4 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2} \cdot \text{сек}^{-1}$, т. е.

генерация возникает при столь низких концентрациях экситонов ($n_p = 3 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$), когда тушение мало. Таким образом, меняя температуру бани, толщину кристаллов и диаметр освещаемой области, можно наблюдать как генерацию в условиях нелинейного тушения, так и каждое из этих явлений в отдельности. ¹

В результате проведенных измерений выяснено, что в кристаллах антрацена наблюдается скорее всего генерация лазерного происхождения. Это особенно существенно, поскольку наряду с известной генерацией на экситон-фононных переходах в кристаллах типа сернистого кадмия [7], это является вторым наблюдением генерации с участием экситонов и, по-видимому, первым для чистых молекулярных кристаллов.

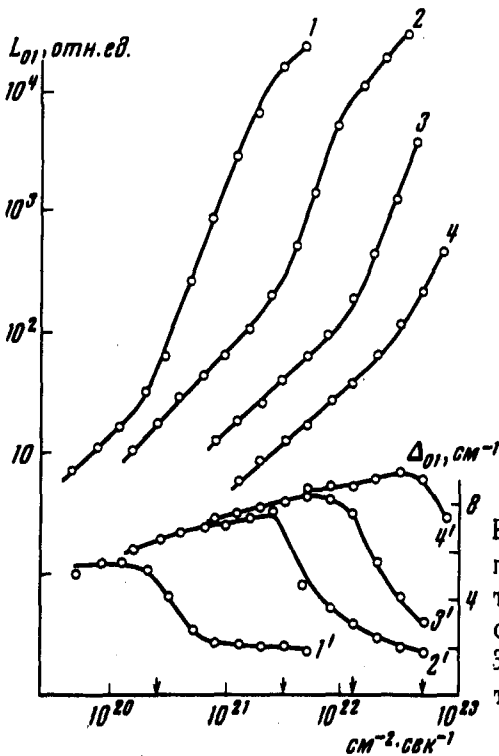


Рис. 2. Зависимости интенсивности и полуширины полосы I от интенсивности накачки при различных диаметрах D освещаемой области: 1 — 3,2 мм, 2 — 1,2 мм, 3 — 0,65 мм, 4 — 0,3 мм. Толщина кристалла ≈ 1 мкм, температура бани — 4,2°K

Наряду с этим, проведенными измерениями показано, что при одинаковых величинах накачки в разных образцах наблюдается различный нагрев и связанное с ним уширение полос спектра. В результате этого характеристики нелинейного тушения и пороги генерации в таких образцах также различаются. Это свидетельствует о необходимости более подробного изучения связи обсуждаемых явлений с процессами колебательной релаксации. Подобные исследования могут быть осуществлены, в частности, путем измерения временных характеристик на установке, описанной выше.

Литература

- [1] С.Д.Бабенко, В.А.Бендерский, В.И.Гольданский, А.Г.Лаврушко, В.П.Тычинский. *Phys. Stat. Solidi* , 45, 91, 1971. '
 - [2] В.А.Бендерский, В.Х.Брикенштейн, А.Г.Лаврушко. *ФТТ*, 15, 270, 1972; *Изв. АН СССР, сер. физич.*, №2, 1973, стр. 303.
 - [3] В.Л.Броуде, Е.Ф.Шека. *Сб. "Квантовая электроника"*, Киев, 1966. '
 - [4] М.Д.Галанин, Ш.Д.Хан-Магомедова, З.А.Чижикова. *Письма в ЖЭТФ*, 16, 141, 1972.
 - [5] E. G. Glockner, H. C. Wolf. *Z. Naturforsch.* , 34a, 943, 1969.
 - [6] Н.А.Власенко, С.И.Пекар, В.С.Пекар. *ЖЭТФ*, 64, 371, 1973.
 - [7] Н.Г.Басов и др. *ФТТ*, 7, 3639, 1965; А.М. Прохоров и др. *ДАН СССР*, 164, 1012, 1965.
-