

ОПТИЧЕСКОЕ ДЕТЕКТИРОВАНИЕ СПИНОВОЙ КИНЕТИКИ
В ПАРАМАГНИТНОМ КРИСТАЛЛЕ

Ю. Г. Назаров, О. В. Недопекин, Э. Е. Шакиров

Обнаруженное в работе [1] спин-комбинационное сверхрассеяние света (СКСС) на парамагнитных ионах оказалось весьма эффективным способом изучения неравновесных спиновых систем. С его помощью ранее [1, 2] были изучены формы линий ЭПР ионов Ce^{3+} в кристаллах $(\text{Ce}_x\text{La}_{1-x})_2\text{Mg}_3(\text{NO}_3)_{12}\cdot 24\text{H}_2\text{O}$ ($\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{MgN}$), $x=0.05$, 1 в условиях сильного стационарного СВЧ насыщения. В данной работе методом СКСС исследуются переходные процессы насыщения ЭПР в кристалле $\text{Ce}_{0.05}\text{La}_{0.95}\text{MgN}$.

В эксперименте оптическая ось образца ориентировалась вдоль луча падающего света и перпендикулярно статическому магнитному полю \mathbf{H} . Рассеяние света наблюдалось под углом 0° при температуре 1.7 К. Насыщение ЭПР ионов Ce^{3+} проводилось на частоте $\omega_1/2\pi=9.38$ ГГц импульсами СВЧ мощности с частотой повторения 10 Гц. Оптическая регистрация велась с помощью ФЭУ-77, сигналы с которого накапливались в многоканальном анализаторе NTA-1024. В остальных условиях эксперимента существенно не отличались от реализованных в работе [1].

На рисунке показано изменение во времени интегральной интенсивности $I(t)$ одной из компонент СКСС, полученное при фиксированной расстройке $\Delta=(\omega_1-\omega_0)$ СВЧ поля относительно ларморовой частоты ω_0 ионов Ce^{3+} .

Как известно [3], интенсивность СКСС пропорциональна квадрату поперечной намагниченности $M_1^2=(M_x^2+M_y^2)$ системы, где M_x и M_y — синфазная и квадратурная компоненты во вращающейся с частотой ω_1 системе координат. В соответствии с концепцией спиновых температур на временах $t \gg \tau_2$, где τ_2 — время поперечной спиновой релаксации, компоненты M_x , M_y могут быть выражены через обратные температуры β_D , β_Z диполь-дипольного резервуара (ДДР) и зеemanовской системы [4]

$$\left. \begin{aligned} M_x &= a [\beta_D - \pi g'(\Delta)(\omega_0\beta_Z + \Delta\beta_D)], \\ M_y &= a\pi g(\Delta)(\omega_0\beta_Z + \Delta\beta_D), \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

где $a = \text{const}$, $g(\Delta)$ и $g'(\Delta)$ — функции парамагнитного поглощения и дисперсии соответственно. Кинетика β_Z и β_D в присутствии СВЧ поля определяется уравнениями Провоторова, общее решение [5] которых в условиях сильного насыщения может быть представлено в следующем виде

$$x(t) = (\omega_0\beta_Z + \Delta\beta_D) = \omega_0\beta_0 \exp(\lambda_1 t), \quad (2)$$

$$y(t) = \frac{\beta_D}{\beta_0} = \beta_D^\infty + C_1 \exp(\lambda_1 t) - C_1 \frac{\tau_Z - \tau_D}{\tau_Z + \tau_D \Delta^2 / D^2} \exp(\lambda_2 t), \quad (3)$$

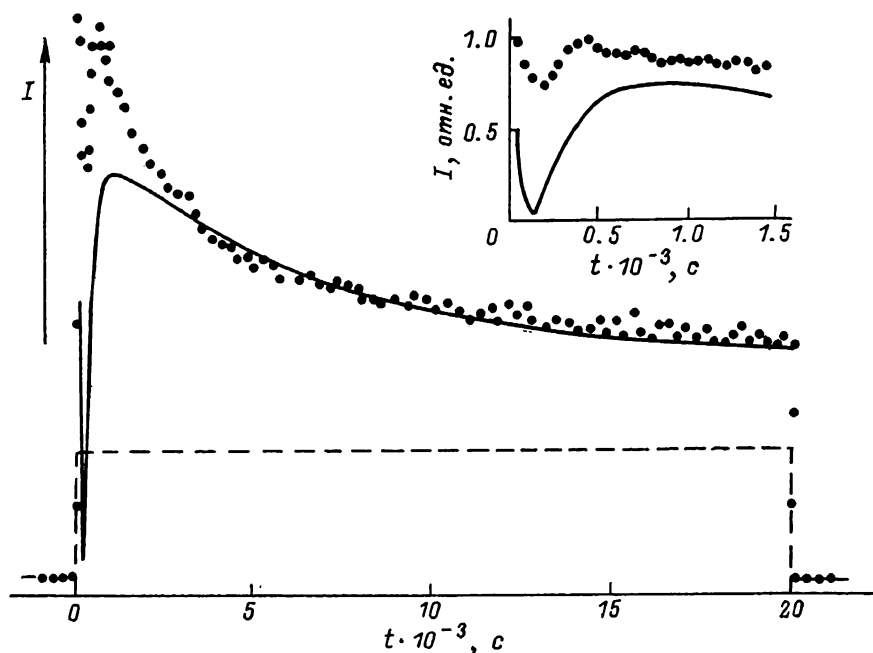
$$\lambda_1 = -W \left(1 + \frac{\Delta^2}{D^2} \right), \quad \lambda_2 = - \frac{\tau_Z + \tau_D \Delta^2 / D^2}{\tau_Z \tau_D (1 + \Delta^2 / D^2)}, \quad C_1 = \frac{\omega_0 \Delta}{D^2 + \Delta^2},$$

$$W = \pi (\gamma H_1)^2 g(\Delta), \quad \frac{\beta_D^\infty}{\beta_0} = - \frac{\Delta \omega_0 \tau_D}{D^2 (\tau_Z + \tau_D \Delta^2 / D^2)},$$

D — средняя частота локального поля, H_1 — амплитуда СВЧ поля, τ_Z и τ_D — времена спин-решеточной релаксации зеemanовской системы и ДДР соответственно, β_0 — значение обратной температуры решетки.

Из выражений (1)–(3) видно, что временное изменение амплитуды M_x описывается суммой двух затухающих экспонент — «быстрой» и «медленной» с показателями λ_1 и λ_2 соответственно, а для M_y такое изменение определяется только «быстрой» экспонентой. Причем характерной особен-

ностью кинетики M_x является образование при $t \approx \lambda_1^{-1}$ пика, соответствующего максимальному переходному значению y_{\max} [5]. На рисунке представлена теоретическая функция $I(t)$, вычисленная при измеренных значениях $\tau_z = 15$ мсек и полуширины линии ЭПР $\delta = 23$ МГц в приближении лоренцевой функции формы этой линии при следующих значениях параметров: $\tau_D = 6.5$ мс, $D = 67$ МГц, $H_1 = 3 \cdot 10^{-5}$ Т. Образование в начальный период времени (при $t_1 \approx 150$ мкс) минимума M_x^2 соответствует случаю, когда $M_x(t_1) = 0$, и объясняется равенством при $t = t_1$ амплитудных значений функций $\pi g'(\Delta) x(t)$ и $y(t)$, формирующих эволюцию $M_x(t)$. После достижения (примерно при $t \approx 2\lambda_1^{-1}$) максимального значения интенсивность СКСС спадает к стационарному значению $|\beta_D^\infty|^2$ со временем $\approx 2\lambda_2^{-1}$.



Изменение интенсивности СКСС при насыщении ЭПР с расстройкой $\Delta/2\pi = 93$ МГц. Сплошная линия — теоретическая функция $I(t)$. На врезке — изменение интенсивности СКСС в начальный период времени. Штриховой линией обозначена форма насыщающего СВЧ импульса. Точки — эксперимент.

Из рисунка видно качественное согласие экспериментальной и расчетной кинетических кривых для M_x^2 . Заметное для них расхождение связано с много бóльшим вкладом в экспериментальную кривую членов из (1), содержащих $x(t)$, и, по-видимому, определяется имеющим место отклонением крыльев реальной функции $g(\Delta)$ от лоренцевой.

Важным достоинством реализованной оптической методики является возможность независимого от СВЧ канала наблюдения за эволюцией спин-системы с высоким временным разрешением, что может быть использовано для получения информации о неравновесной спиновой кинетике на временах, предшествующих образованию спиновых температур.

В заключение авторы выражают благодарность А. Х. Хасанову за обсуждение результатов и ценные замечания.

Л и т е р а т у р а

- [1] Кочелав Б. И., Назаров Ю. Г., Хасанов А. Х. Письма в ЖЭТФ, 1983, т. 38, № 10, с. 475—477.
- [2] Кочелав Б. И., Назаров Ю. Г., Хасанов А. Х., Чистяков Д. В. Изв. АН СССР, сер. физ., 1986, т. 50, № 2, с. 213—215.
- [3] Romestain R., Geschwind S., Devlin G. E., Wolff P. A. Phys. Rev. Lett., 1974, vol. 33, № 1, p. 10—14.

РОЛЬ ПЕРЕНОСА ЗАРЯДА В ОБРАЗОВАНИИ ЛОКАЛЬНЫХ ЭКСИТОННЫХ СОСТОЯНИЙ В КРИСТАЛЛЕ НАФТАЛИНА

И. В. Бровченко, Н. И. Остапенко, М. Т. Шпак

Введение примеси в некоторых случаях приводит к образованию локальных экситонных состояний в молекулярных кристаллах. Такие состояния проявляются в виде дополнительных серий полос в спектрах поглощения и люминесценции, смещенных относительно соответствующих серий в спектрах чистого кристалла [1]. Появление локальных экситонных состояний связано с изменением межмолекулярного взаимодействия вблизи молекул примеси. Однако до сих пор неизвестно, какими именно свойствами примесной молекулы определяются условия возникновения полос локальных экситонов и их положение в спектре. Выяснению этого вопроса и посвящена данная работа.

Проведено исследование оптических спектров поглощения и люминесценции примесных кристаллов нафталина в области первого синглетного перехода. В качестве примесей было использовано 50 различных соединений (ароматические и гетероциклические соединения). Для 30 примесных систем обнаружено появление полос локальных экситонов.

На рис. 1 приведен начальный участок спектра поглощения кристалла нафталина с примесью антрацена. Здесь A и B — компоненты давидовского расщепления чисто электронного перехода; M и D — одночастичная и двухчастичная вибронные полосы, соответствующие переходам с участием неполносимметричного колебания соответственно в возбужденном и основном ($\omega_0 = 509 \text{ см}^{-1}$); вибронная A' — полоса ($\nu_{A'} = 31\,920 \text{ см}^{-1}$) по своим параметрам (поляризация, интенсивность, полуширина) подобна экситонной A -полосе (в [2] предполагалось, что эта полоса является a -компонентой вибронного перехода с участием полносимметричного колебания ($\omega_0 = 512 \text{ см}^{-1}$)). Введение примеси приводит к появлению в спектре поглощения кристалла электронных и вибронных полос локальных экситонов — L и L' (в отдельных случаях одна примесь приводит к появлению нескольких L - и L' -полос). Для всех исследованных нами примесных систем появление локальной L -полосы с длинноволновой стороны от A -полосы всегда сопровождается появлением локальной L' -полосы с длинноволновой стороны от A' -полосы, причем приблизительно на таком же расстоянии. В тех случаях, когда L' -полоса наблюдается с коротковолновой стороны от A' -полосы, в области чисто электронного перехода L -полоса не наблюдается.

Анализ полученных результатов показал явную зависимость положения локальных полос от потенциала ионизации молекул примеси. В то же время не обнаружена зависимость положения локальных полос от таких характеристик примесных молекул, как дипольный момент, поляризуемость, симметрия, наличие или отсутствие гетероатомов или заместителей, положение синглетных или триплетных уровней.

На рис. 2 приведены зависимости положений локальных L' -полос от потенциала ионизации молекулы примеси для двух рядов примесных молекул.