

Метастабильное оптическое поглощение возбужденных F -центров в кристаллах BeO

© К.В. Баутин, С.В. Горбунов, В.Ю. Яковлев*, А.В. Кружалов

Уральский государственный технический университет,
620002 Екатеринбург, Россия

* Томский политехнический университет,
634034 Томск, Россия

E-mail: baut@dpt.ustu.ru

(Поступила в Редакцию 23 июня 1999 г.
В окончательной редакции 15 сентября 1999 г.)

Изучалось метастабильное оптическое поглощение аддитивно окрашенных кристаллов BeO . Обнаружено существование оптического поглощения, возникающего при переходах между возбужденными триплетными и синглетными состояниями F -центра.

Образование F -центров в кристаллах BeO при термохимической обработке в парах бериллия (аддитивное окрашивание) было доказано нами ранее в работе [1]. Подробные исследования оптических характеристик полосы поглощения при 6.5 eV и полос люминесценции при 4.9 и 3.4 eV позволили установить их связь с синглет-синглетными и триплет-синглетными переходами в F -центре [2]. Обнаруженная в [2] оптическая анизотропия поглощения и люминесценции F -центров в гексагональных кристаллах BeO была объяснена расщеплением возбужденных состояний в кристаллическом поле C_{3v} -симметрии.

В настоящей работе впервые получены данные о существовании в широкозонных оксидах метастабильного оптического поглощения, возникающего при оптических переходах электрона, релаксированного в наинизшее возбужденное триплетное состояние F -центра.

Эксперименты проведены с монокристаллами BeO , выращенными из раствора оксида бериллия в расплаве вольфрамата натрия В.А. Масловым и аддитивно окрашенными в парах бериллия при $T = 2200$ К по методике [1]. Оптические измерения в области 1–5 eV выполнены при температурах 80–600 К на установке импульсной адсорбционной спектроскопии с наносекундным временным разрешением (7 fs) [3]. Для возбуждения использовался импульсный ускоритель электронов ГИН-600 с параметрами пучка: $E = 0.2$ MeV, $W = 0.02–0.25$ J/cm², $t_{\text{imp}} = 10^{-8}$ s. Дополнительные исследования спектров оптического поглощения в поляризованном свете выполнены с помощью кварцевой призмы Рошона.

При 80 К кинетика затухания оптического поглощения аддитивно окрашенных кристаллов BeO в области около 3.8 eV и временном интервале $t > 50$ ms может быть описана суперпозицией двух экспоненциальных зависимостей. Первый доминирующий компонент имеет характерное время затухания $\tau_1 = 740 \pm 40$ ms, идентичное времени затухания люминесценции при 3.4 eV, обусловленной запрещенными по спину переходами из триплетного возбужденного состояния F -центров. Второй компонент кинетики спада метастабильного оптического

поглощения обладает характерным временем $\tau_2 > 5$ s, сильно зависящим от интенсивности зондирующего света. Эти фотонестойчивые центры захвата связаны, по-видимому, с мелкими ловушками, образованными примесями или дефектами.

Для установления природы первого компонента затухания метастабильного оптического поглощения было проведено сравнение температурных зависимостей амплитуды и времени релаксации оптической плотности этого компонента с температурными зависимостями интенсивности и времени затухания люминесценции при 3.4 eV F -центров (рис. 1). Видно, что температурное поведение интенсивности первого компонента оптического поглощения (кривая 4 на рис. 1) хорошо согласуется с температурным поведением интенсивности стационарной рентгенолюминесценции при 3.4 eV (кривая 3 на рис. 1) в аддитивно окрашенных кристаллах BeO . Симбатное тушение люминесценции при 4.9 eV, обусловленной синглет-синглетными переходами в F -центре, и люминесценции 3.4 eV при возбуждении фотонами в F -полосу поглощения (кривые 1 и 2 на рис. 1 соответственно) отражает процессы безызлучательного заселения триплетного состояния из более высоколежащего синглетного состояния. Поэтому уменьшение амплитуды первого компонента метастабильного оптического поглощения и интенсивности рентгенолюминесценции при 3.4 eV в области 100–200 К связано с безызлучательными переходами из синглетного состояния F -центра. Одинаковое увеличение выхода F -люминесценции и амплитуды оптической плотности первого компонента наведенного поглощения при $T > 200$ К вызвано увеличением числа возбужденных F -центров в результате передачи энергии F -центрам посредством термоактивированной миграции автолокализованных электронных возбуждений в BeO [4].

Наряду с этим изучение температурно-временных характеристик процессов релаксации люминесценции 3.4 eV и оптического поглощения выявило ряд незначительных отличий (кривые 5 и 6 на рис. 1). Укорочение спада первого компонента наведенного оптического

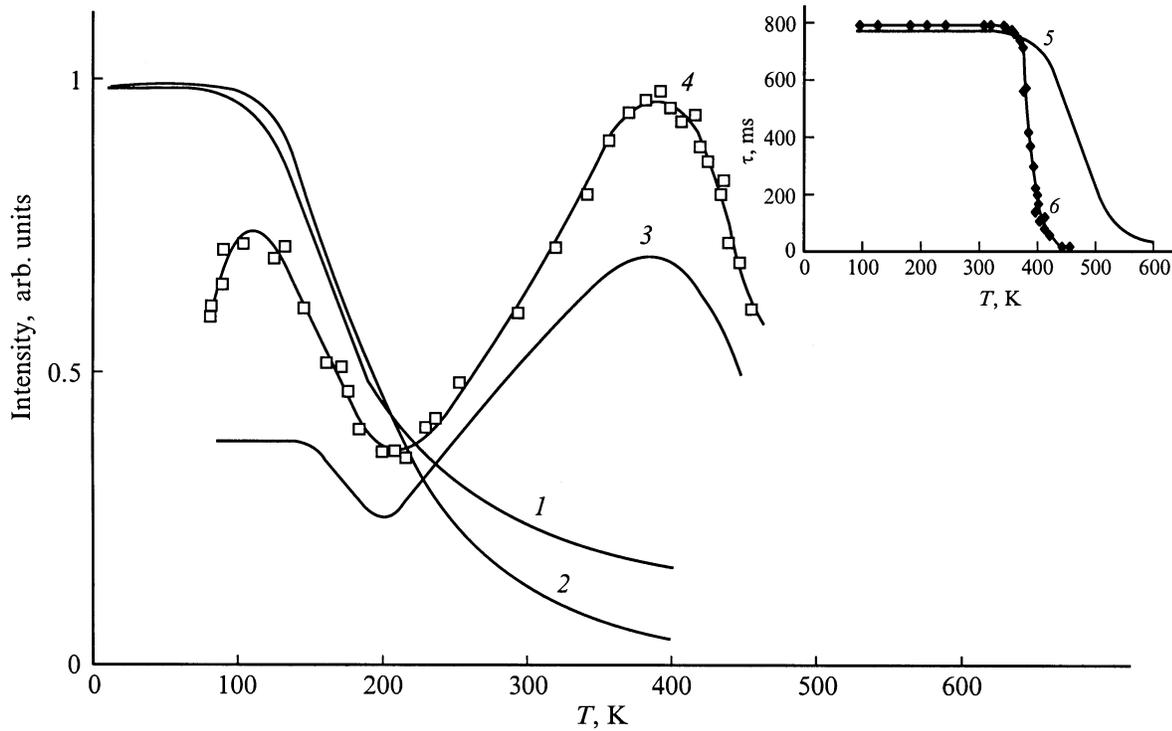


Рис. 1. Температурные зависимости интенсивностей люминесценции при 4.9 eV (1), люминесценции при 3.4 eV (2, 3) и метастабильного оптического поглощения (4) аддитивно окрашенных кристаллов BeO при возбуждении: 1, 2 — светом в F -полосу поглощения; 3 — рентгеновским излучением; 4 — электронным пучком. На врезке показаны температурные зависимости времен затухания люминесценции при 3.4 eV (5) и метастабильного оптического поглощения (6).

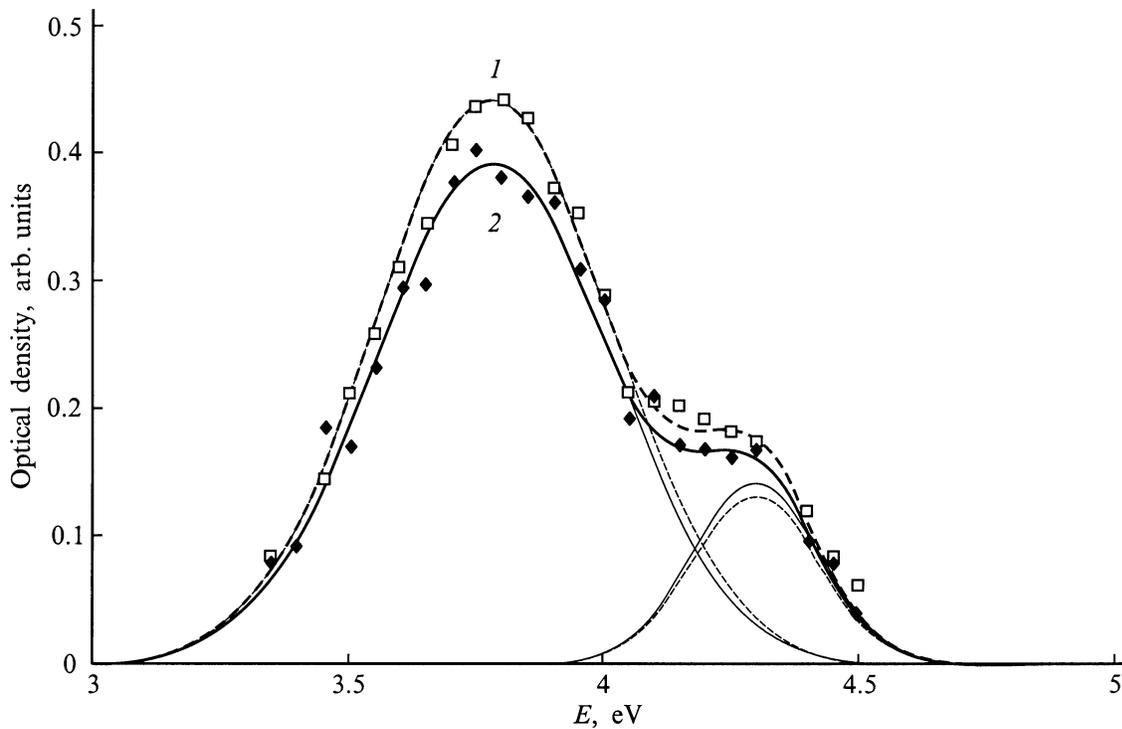


Рис. 2. Спектры метастабильного оптического поглощения при 80 K возбужденных F -центров для света, поляризованного $E \perp C$ (1), $E \parallel C$ (2). Сплошными и пунктирными линиями показано разложение на гауссовы составляющие.

поглощения начинается при $T > 350$ К и происходит с энергией активации $E_a = 0.8$ eV. В то же время уменьшение времени затухания люминесценции 3.4 eV начинается при $T > 380$ К и протекает с энергией активации $E_a = 0.53$ eV. Эти отличия могут быть связаны с влиянием зондирующего света, способствующего дополнительному уменьшению заселенности триплетного возбужденного состояния F -центра при оптических переходах.

Таким образом, проведенные исследования свидетельствуют о существовании метастабильного оптического поглощения возбужденных F -центров, образованных при воздействии электронного пучка на аддитивно окрашенные кристаллы BeO. Для интерпретации оптических переходов в возбужденных F -центрах нами были измерены при 80 К спектры метастабильного оптического поглощения с временным разрешением в поляризованном свете. Как видно из рис. 2, спектр компонента с характерным временем 740 ns состоит из двух изотропных полос с максимумами при 3.8 и 4.3 eV и полушириной 0.55 и 0.29 eV соответственно. Величина времени затухания этого поглощения позволяет сделать вывод, что оптические переходы происходят из триплетного возбужденного состояния F -центра в BeO. Мы предположили, что переходы осуществляются на более высоколежащие синглетные возбужденные состояния F -центра. При изучении анизотропии F -полосы поглощения в BeO [2] было обнаружено расщепление в кристаллическом поле C_{3v} -симметрии синглетного возбужденного состояния типа 1P на компоненты 1A_1 и 1E . Величина этого расщепления составляет 0.3 eV. Это значение несколько меньше, чем расстояние между максимумами двух полос метастабильного оптического поглощения (0.5 eV).

Оптические $^3P \rightarrow ^1P$ переходы между состояниями с различной мультиплетностью являются запрещенными. Этот запрет может быть частично снят в результате спин-орбитального взаимодействия, приводящего к смешиванию синглетных и триплетных состояний. Однако смешиваться могут состояния только с определенной симметрией. На основе теоретико-группового анализа спин-орбитальной связи ранее нами были рассмотрены правила отбора для излучательных переходов из триплетного возбужденного состояния, расщепленного в кристаллическом поле C_{3v} -симметрии на компоненты 3E и 3A_1 , в основное 1A_1 -состояние F -центра в BeO [2]. Незначительная анизотропия F -люминесценции при 3.4 eV объяснена в [2] $^3E \rightarrow ^1A_1$ переходами, так как 1E -состояние может смешиваться с 1E - и 1A_1 -состояниями. Обнаруженная изотропность полос метастабильного оптического поглощения подтверждает его связь с $^3E \rightarrow ^1A_1$ - и $^3E \rightarrow ^1E$ -переходами между возбужденными триплетными и синглетными состояниями F -центра в BeO.

Список литературы

- [1] А.В. Кружалов, С.В. Горбунов, Б.В. Шульгин, В.А. Маслов. Письма в ЖТФ **10**, 24, 1503 (1984).
- [2] S.V. Gorbunov, A.V. Kruzhalov, M.J. Springis. Phys. Stat. Sol. (B) **141**, 293 (1987).
- [3] В.Ю. Яковлев. ФТТ **26**, 11, 3334 (1984).
- [4] В.Ю. Иванов, В.А. Пустоваров, С.В. Горбунов, С.В. Кудяков, А.В. Кружалов. ФТТ **38**, 11, 3333 (1996).