

УДК 539.144.592

ОПТИЧЕСКОЕ ДЕТЕКТИРОВАНИЕ КРОСС-РЕЛАКСАЦИОННЫХ РЕЗОНАНСОВ В УСЛОВИЯХ ОПТИЧЕСКОЙ НАКАЧКИ F -ЦЕНТРОВ

Н. Г. Романов, В. В. Дьяконов, В. А. Ветров, П. Г. Баранов

Обнаружен и исследован эффект резонансного изменения электронной спиновой поляризации F -центров в условиях оптической накачки при кросс-релаксации с различными парамагнитными дефектами. По магнитному циркулярному дихроизму F -центров в облученных щелочно-галлоидных (ЩГК) кристаллах с примесью ртуте-подобных ионов в отсутствие микроволнового поля зарегистрирован магнитный резонанс радиационных примесных центров Tl^{2+} , $A_F(Tl)$, In^{2+} .

Исследованию процессов кросс-релаксации между спиновыми системами уделяется значительное внимание в литературе, особенно после появления работы [1], в которой была сформулирована теория кросс-релаксации. Для изучения таких процессов эффективными оказались методики двойных резонансов, в частности оптически детектируемый магнитный резонанс (ОДМР). Кросс-релаксационные резонансы (КРР) были зарегистрированы по магнитному циркулярному дихроизму (МЦД) [2], по фарадеевскому вращению плоскости поляризации света [3], по люминесценции [4, 5]. Необходимым условием наблюдения КРР является создание неравновесной поляризации в спиновых системах, которая может быть достигнута за счет модуляции магнитного поля [3], различных вероятностей оптических переходов с разных магнитных подуровней, как например [4, 5], СВЧ накачки [6], а также оптической ориентации электронных спинов (оптической накачки) [7].

F -центры, являющиеся простейшими дефектами в ионных кристаллах (электрон, захваченный на анионную вакансию), всегда образуются при радиационном, электролитическом или аддитивном окрашивании [8], а также могут быть созданы мощным УФ облучением [9]. Оптическая накачка циркулярно-поляризованным светом в область F -полосы поглощения, проявляющей сильный МЦД, приводит к значительной спиновой поляризации [10-12], что было использовано для регистрации ЭПР основного и возбужденного состояний F -центров [11].

В настоящей работе приведены результаты исследования КРР, наблюдаемых по магнитному циркулярному дихроизму F -центров в облученных ЩГК, содержащих примеси таллия и индия.

1. Методика эксперимента

В экспериментах использовались кристаллы, активированные индием и таллием (концентрация примеси была порядка 0.1 мол.% в расплаве), вращенные по методу Стокбаргера. Образцы подвергались рентгеновскому облучению с использованием трубки с молибденовым анодом (55 кВ, 15 мА) при комнатной температуре.

Спектры ЭПР регистрировались по изменению МЦД при помощи установки, описанной в [13]. Линейно-поляризованный свет галогенной лампы,

выделенный монохроматором (0.2—2 мкм), модулировался кварцевым модулятором (30 кГц) между двумя циркулярными поляризациями σ^+ и σ^- и после прохождения через образец регистрировался фотоэлектронным умножителем. Сверхпроводящий магнит создавал магнитное поле до 6 Тл.

Сигнал МЦД для $S=1/2$ равен

$$\varepsilon = \frac{1}{4} \alpha_0 d \frac{\sigma^+ - \sigma^-}{\sigma^+ + \sigma^-} \frac{n^- - n^+}{n^- + n^+},$$

d — толщина кристалла; α_0 — коэффициент поглощения для неполяризованного света; n^+ , n^- — населенности состояний $m_s = +1/2$ и $m_s = -1/2$

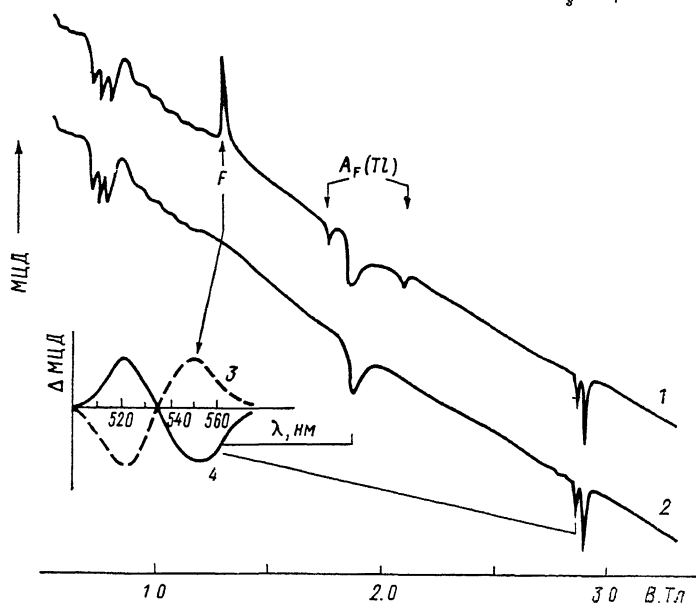


Рис. 1. Зависимости МЦД при $\lambda=550$ нм от магнитного поля, зарегистрированные в кристалле КСl : Тl при $P_{\text{СВЧ}} = 200$ мВт (1) и 0 (2). $T = 1.6$ К. Спектральные зависимости сигналов ОДМР F -центров (3) и КРР (4) в кристалле КСl : Тl.

соответственно; σ^+ , σ^- — коэффициенты поглощения для право- и левополяризованного света.

В тепловом равновесии поляризация

$$P_e = \frac{n^- - n^+}{n^- + n^+} = \tanh \frac{\Delta E}{2kT},$$

ΔE — зеемановское расщепление дублета.

Величина сигнала $I = I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-}$ поддерживалась постоянной, поэтому выделяемый синхронным детектором сигнал $I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-}$ был пропорционален МЦД.

2. Экспериментальные результаты

В облученных при комнатной температуре кристаллах КСl : Тl проявляется характерный МЦД в полосах наведенного поглощения примесных и собственных дефектов. На рис. 1, 1 представлена зависимость МЦД от магнитного поля на длине волны $\lambda = 550$ нм, полученная при действии на образец микроволнового поля с частотой 35 ГГц. Видны сигналы ЭПР от F -центров ($g=1.995$) и A_F (Тl)-центров, представляющих собой комплекс, состоящий из иона активатора и анионной вакансии, захвативших электрон [14]. Взаимодействие магнитного момента неспаренного электрона с магнитным моментом ядра таллия ($I=1/2$) расщепляет линию ЭПР на две сверхтонкие компоненты с характерной константой [15].

Кроме этих линий, наблюдается ряд резонансных линий в широком диапазоне полей, причем не зависящих от мощности микроволнового поля (рис. 1, 2). Противоположные по знаку с F -центрами резонансные особенности в спектре имеют тем не менее одинаковые с ними спектральные зависимости (рис. 1, 3, 4). Наблюдаемые сигналы связаны, по-видимому, с резонансным изменением электронной спиновой поляризации F -центров при кросс-релаксации с другими парамагнитными дефектами, также образующимися при рентгеновском облучении. Подобное становится возможным при совпадении энергий зеемановских расщеплений взаимодействующих партнеров.

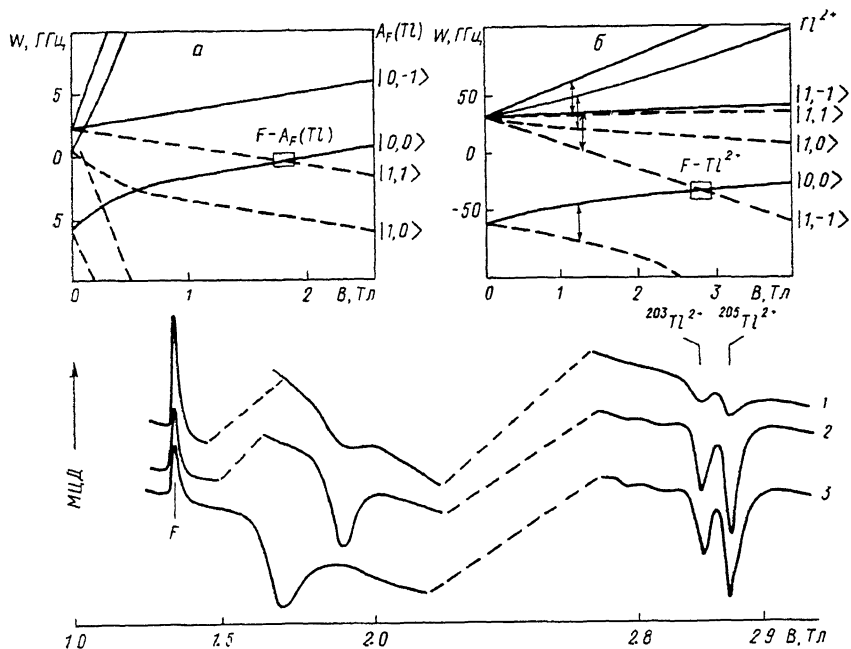


Рис. 2. Зависимость (внизу) сигнала ОДМР F -центров и КРР от интенсивности зондирующего света (1, 2) и ориентации кристалла (3). Энергетические уровни системы партнеров кросс-релаксации $F-A_F(Tl)$ (а) и $F-Tl^{2+}$ (б).

На рис. 2, а, б приведены энергетические уровни возможных партнеров $F-A_F(Tl)$ и $F-Tl^{2+}$, при этом энергия системы пространственно удаленных центров считается равной сумме их энергий. В этих схемах кросс-релаксационный резонанс (КРР) может наблюдаться в магнитных полях, соответствующих точкам пересечений энергетических уровней системы.

Положение резонансных сигналов при $B \sim 2.8$ Тл совпадает с магнитными полями, соответствующими КРР F -центров и ионов Tl^{2+} для двух стабильных изотопов таллия ^{203}Tl и ^{205}Tl . В свою очередь линия в $B \sim 1.85$ Тл совпадает с рассчитанным значением КРР между F - и $A_F(Tl)$ -центрами.

В нижней части рис. 2 показаны также зависимости сигналов ОДМР и КРР от интенсивности зондирующего света (1, 2), а также вид спектра для разных ориентаций кристалла относительно внешнего магнитного поля (2, 3). При изменении ориентации кристалла сигнал КРР для пары $F-A_F(Tl)$ смещается в область малых магнитных полей, при этом угловая зависимость описывается аксиальным спин-гамильтонианом с параметрами, полученными в [15] для параллельной ориентации $A_F(Tl)$ -центра. Сигналы, приписанные кросс-релаксационным переходам между F -центрами и ионами Tl^{2+} , как видно из рис. 2, изотропны. В низкопольной части спектра (~ 0.6 Тл) остались неидентифицированными три изотропные линии КРР. Возможно, что наличие в кристалле неконтроли-

руемых примесей приводит под действием ионизирующего облучения к образованию ряда примесных дефектов и их агрегатов, которые могут быть партнерами для кросс-релаксационных переходов с F -центрами; не исключены также близкие пары. Рассчитанные же значения возможных КРР между F -центрами и Tl_2^{3+} и Tl_2^0 (1) не совпадают с экспериментальными результатами.

Наблюдаемая по МЦД F -центров в облученных при комнатной температуре кристаллах $KCl : In$ серия сигналов (рис. 3) может быть объяснена кросс-релаксационными переходами между F - и In^{2+} -центрами, что иллюстрируется результатами расчетов КРР для системы $F-In^{2+}$ -центров. Методом ЭПР [16] показано, что существует по крайней мере

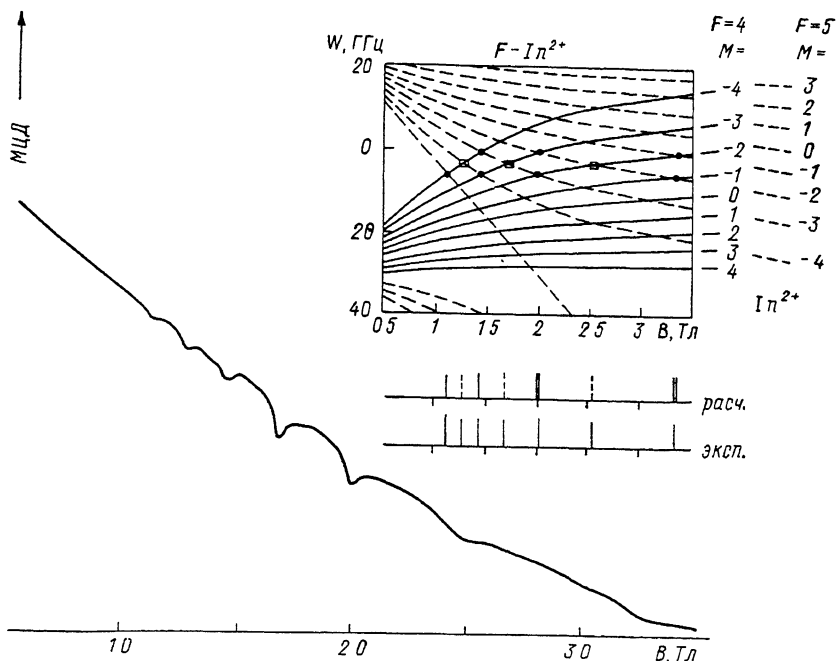


Рис. 3. Зависимость МЦД при $\lambda=550$ нм от магнитного поля в кристалле $KCl : In$ в отсутствие микроволнового поля. $T=1.6$ К.

На вставке — система уровней энергии пары $F-In^{2+}$ и сопоставление экспериментальных и расчетных значений КРР для параметров центра In^{2+} : $g=2.11$, $A=11.3$ ГГц.

два типа индиевых центров в кристаллах KCl , различающиеся по g -факторам и константами сверхтонкой структуры. Для объяснения спектра КРР нами привлечены параметры, близкие к одному из них: $g=2.11$, $A=11.3$ ГГц. Кросс-релаксационные переходы с изменением магнитного квантового числа $|\Delta m_F|=0,1$ практически совпадают с результатами эксперимента. На рис. 3 уровни суммарной энергии системы $F-In^{2+}$, соответствующие состоянию F -центра $|-1/2\rangle$, показаны штриховыми линиями.

Спектры КРР наблюдались также в ЩГК с примесью Tl и In , подвергнутых облучению мощными УФ импульсами эксимерного лазера в активаторные полосы поглощения при комнатной температуре, а также в кристаллах $KCl : Bi$, выращенных в Центральном институте физики (г. Бухарест) СРР доктором С. В. Нистором.

3. Обсуждение результатов

В настоящей работе показано, что магнитный резонанс примесных радиационных дефектов может быть зарегистрирован в отсутствие микроволнового поля по МЦД F -центров. Эффект обусловлен изменением спи-

новой поляризации последних при кросс-релаксации между F -центрами и примесными дефектами (Tl^{2+} , In^{2+} , $A_F(Tl)$).

Для наблюдения кросс-релаксации между двумя спиновыми системами необходимо создание неравновесности. В данном случае она создается с помощью оптической накачки. При этом оптическая ориентация электронных спинов осуществляется тем же модулированным по поляризации между σ^+ и σ^- зондирующим для регистрации МЦД светом.

В работе [11] показано, что при накачке модулированным с частотой ω светом при условии $1/T_1 \ll 1/T_p \ll \omega$, где T_1 — время спин-решеточ-

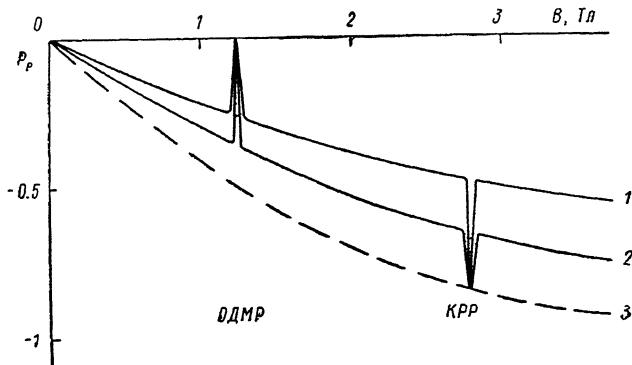


Рис. 4. Зависимость электронной спиновой поляризации от магнитного поля для двух интенсивностей света накачки I_1 (1) и I_2 (2), $I_1 > I_2$.

Показаны также сигналы ОДМР F -центров и КРР ($F-Tl^{2+}$) и равновесное значение поляризации P_e (3).

ной релаксации, T_p — время накачки, электронная спиновая поляризация определяется выражением

$$P = \left(\frac{T_p}{T_1} \right) \tanh \left(\frac{g^2 H}{2kT} \right) \left(1 + \frac{T_p}{T_1} \right).$$

В отсутствие оптической накачки равновесная (больцмановская) спиновая поляризация в системе F -центров есть

$$P_e = \tanh (g^2 H / 2kT).$$

При увеличении интенсивности света накачки T_p , а следовательно, и P уменьшаются. Эта ситуация демонстрируется на рис. 4, на котором показана полевая зависимость электронной спиновой поляризации для двух интенсивностей света накачки I_1 и I_2 ($I_1 > I_2$) и ее равновесного значения P_e . Показаны также сигналы ОДМР F -центров и КРР. В соответствии с экспериментальными данными эти сигналы имеют противоположные знаки и различные зависимости от интенсивности света. В результате оптической накачки электронная спиновая поляризация F -центров P отклоняется от P_e тем больше, чем выше интенсивность света. При совпадении энергетических интервалов между зеемановскими подуровнями F - и примесных центров вследствие кросс-релаксации $P \rightarrow P_e$ и по МЦД наблюдается резонансный сигнал.

F -центры являются удобным зондом для регистрации магнитных резонансов радиационных и других дефектов в ЩГК в отсутствие микроволнового поля. Такая методика оказалась простой, чувствительной и информативной, поскольку F -центры всегда образуются в ЩГК при рентгеновском или мощном УФ облучении. Эффект оптической регистрации кросс-релаксации по МЦД F -центров в условиях их оптической накачки может быть использован для регистрации и идентификации радиационных дефектов, изучения их пространственного распределения, а также для оптического детектирования двойного электронно-ядерного резонанса.

Список литературы

- [1] Bloembergen N., Shapiro S., Pershan P. S., Artman J. O. // Phys. Rev. 1959. V. 114. P. 445—454.
- [2] Sabbisky E. S., Call P. J., Anderson C. H. // Rev. Sci. Instr. 1975. V. 46. P. 1632—1634.
- [3] Александров Е. Б., Запаский В. С. // ФТТ. 1978. Т. 20. № 4. С. 1180—1185.
- [4] Glasbeek K. M., Hond R. // Phys. Rev. B. 1981. V. 23. P. 4220—4235.
- [5] Lee K. M., Watkins G. D. // Phys. Rev. B. 1982. V. 26. P. 26—34.
- [6] Запаский В. С., Феофилов П. П. // УФН. 1975. Т. 116. С. 41—78.
- [7] Антипин А. А., Запаский В. С. // ФТТ. 1979. Т. 21. № 12. С. 3542—3550.
- [8] Fowler W. B. // Physics of Color Centers. Academic Press, N. Y., 1968.
- [9] Баранов П. Г., Данилов В. П., Жеков В. И., Мурина Т. М., Нагли Л. Е., Прохоров А. М. // ФТТ. 1980. Т. 22. № 9. С. 2790—2795.
- [10] Margerie J. J. // Physique Coll. C. 1967. V. 4. Suppl. 28. P. 103—106.
- [11] Mollenauer L. F., Pan S. // Phys. Rev. B. 1972. V. 6. P. 772—787.
- [12] Winnacker A., Mauser K. E., Niesert B. // Z. Physik B. 1977. V. 26. P. 97—106.
- [13] Алерс Ф. И., Баранов П. Г., Романов Н. Г., Шпэт И. М. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 2. С. 427—432.
- [14] Baranov P. G., Khramtsov V. A. // Phys. St. Sol. (b). 1980. V. 101. P. 153—161.
- [15] Ahlers F. J., Lohse F., Spaeth J. M., Mollenauer L. F. // Phys. Rev. B. 1983. V. 28. P. 1249—1255.
- [16] Баранов П. Г., Храпцов В. А. // ФТТ. 1979. Т. 21. № 5. С. 1455—1460.

Физико-технический институт
им. А. Ф. Иоффе АН СССР
Ленинград

Поступило в Редакцию
30 мая 1989 г.