

金绿宝石 $\text{BeAl}_2\text{O}_4:\text{Cr}^{3+}$ 中高压荧光动力学

贾惟义 商玉生 唐若明 姚振益 王彦云

(中国科学院物理研究所)

本文报道了金绿宝石 $\text{BeAl}_2\text{O}_4:\text{Cr}^{3+}$ 在高压下的荧光动力学行为。这是一种新型激光材料, 利用它已制成第一个室温运转的固体可调谐声子态激光器。

实验结果表明: (1) R_1 和 R_2 线随压力线性地红移, 但和红宝石不同, 其红移速度不相等, 分别为 $0.62 \text{ cm}^{-1}/\text{kbar}$ 和 $0.71 \text{ cm}^{-1}/\text{kbar}$ 。因此, R_1 和 R_2 线将逐步随压力升高而靠近。(2) R_1 和 R_2 线宽随压力窄化。 R_1 线宽由常压的 9.4 cm^{-1} 降至 68 kbar 的 7.5 cm^{-1} , R_2 由 12.9 cm^{-1} 降至 7.4 cm^{-1} 。(3) 测量了不同压力下声子边带荧光的时间分辨谱。整个声子边带随压力兰移, 强度降低, 除强度外。时间分辨谱的波谱分布不随延迟分辨时间变化(最短延迟时间 $5 \mu\text{s}$)。 (4) R_1 和 R_2 线寿命随压力延长, 由常压的 0.5 ms 分别延长至 3.5 ms 和 3.0 ms 。对不同波数的声子边带测量了寿命, 其值与 R_1 和 R_2 线相近。

关于红宝石的红移问题的理论解释曾有过不少的文章。赵敏光和徐积安认为, 红移来源于晶场的变化。但是, 红移似乎还可能有另外的来源, 即动力学来源, 由电声子耦合引起的谱线移动。按照黄昆的理论, 对于电声子耦合系统, 当压力增加时, S 模声子频率 ω_s 增加, 将引起附加的红移。晶场引起的静态红移反映在不考虑晶格弛豫时电子跃迁能 ω_{ij}^0 中。

在氧八面体中, Cr^{3+} 离子的 ${}^2\text{E}$ 能级受非立方晶场和自旋轨道耦合的影响, 分裂为 $2\bar{\text{A}}$ 和 $\bar{\text{E}}$ 能级, 相应于 R_2 和 R_1 荧光, 其间的裂距反应了氧八面体的畸变程度。在 $\text{BeAl}_2\text{O}_4:\text{Cr}^{3+}$ 中, R 线的并拢趋势, 意味着八面体畸变随压力减小。

声子边带荧光及时间分辨谱的测量表明, 声子支助的荧光辐射带是 ${}^4\text{T}_2$ 至 ${}^4\text{A}_2$ 振动带的跃迁。处于 ${}^4\text{T}_2$ 能级的离子数主要是自 $2\bar{\text{A}}$ 和 $\bar{\text{E}}$ 能级热激发而来的。 ${}^4\text{T}_2$ 的寿命很短, 但 $2\bar{\text{A}}$ 和 $\bar{\text{E}}$ 寿命长, 使实际观测到的声子边带寿命很长, 与 R_1 和 R_2 荧光寿命相近。晶场参数 D_q 随压力增加, 使 ${}^4\text{T}_2$ 能级也随压力而升高, 导致声子边带紫移。由于热激活布居数的减少, 荧光强度也随之减弱。

R_1 和 R_2 线的窄化和寿命延长似乎来源于相同机理。 R 线的窄化意味着均匀线宽随压力减小, 是受寿命致宽机制决定。线宽的窄化和寿命的延长可能直接和 ${}^4\text{T}_2$ 的高压行为有关。 ${}^4\text{T}_2$ 随压力很快增加, 使由 $2\bar{\text{A}}$ 和 $\bar{\text{E}}$ 热激发到 ${}^4\text{T}_2$ 的几率减小, 使 $2\bar{\text{A}}$ 和 $\bar{\text{E}}$ 的寿命增加;