

Broude, V.L., Šeka, E.F.:

LUMINESZENZ BEI INTENSIVER ANREGUNG

Übersetzung aus:

Kvantovaja elektronika. Kiev, 1966  
S. 188 - 213

Russ.: ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ ПРИ ИНТЕНСИВНОМ ВОЗБУЖДЕНИИ  
Luminescencija pri intensivnom vozbuždenii

Untersucht wird die Möglichkeit der Verwendung von optischen Masern bei Molekülkristallen mit linearen Lumineszenzspektren. Aufgezeigt wird, daß das Haupthindernis für eine derartige Verwendung der hohe Absorptionskoeffizient der Kristalle ist und daß Tieftemperaturen verwendet werden müssen. Referativnyj žurnal. Fizika 1966. 10D730 (Autorèn)

In einem System, das zwei Energiezustände besitzt (Abb. 1), werde eine von der thermodynamischen Gleichgewichtsbesetzung unterschiedliche Niveaubesetzung erzeugt. Die Wiederherstellung der Gleichgewichtsverteilung erfolgt aufgrund der optischen Übergänge zwischen den Niveaus, von denen ein Teil von einer Strahlung, der Lumineszenz, begleitet wird. Es sind zwei verschiedenartige Lumineszenzvorgänge möglich.

1. Die unabhängige spontane Photonenstrahlung durch jedes angeregte Zentrum im einzelnen. Eine solche Emission ist inkohärent, die Phasen der bestrahlt werdenden Wellen sind zufällig.

2. Eine Strahlung, die nur bei Wechselwirkung mit dem Lichtfeld (Feld der spontanen Strahlung oder äußeres Feld) entsteht und die stimulierter Art ist, nämlich die induzierte Strahlung. Die Photonen, die aufgrund der induzierten Übergänge entstehen, sind sowohl unter sich als mit den Photonen des Anregungsfeldes kohärent.

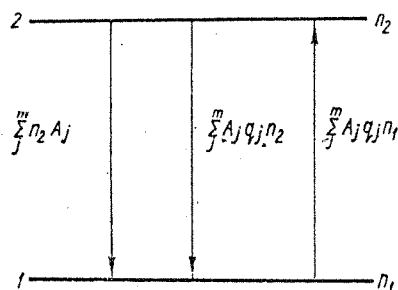


Abbildung 1. Schematische Darstellung der Übergänge im Zweiniveauschema

Beide Strahlungsmechanismen sind immer in einem System vorhanden; deshalb kann die Aufgabe nur hinsichtlich der Bestimmung ihres Beitrags zur gesamten Leuchtintensität gestellt werden und somit hinsichtlich der Abhängigkeit der Spektralzusammensetzung der Lumineszenz von der Intensität des Anregungslichts.

Um die Gesetzmäßigkeiten der Veränderung der Intensität und der Spektralverteilung der Lumineszenz bei starken Anregungen feststellen zu können, wurden in dieser Arbeit kinetische Gleichungen verwendet, mit denen es im Prinzip möglich ist, die gestellte Aufgabe zu lösen. Ein ähnliches Verfahren wurde von V.S. Maškevič im einzelnen entwickelt und von ihm und seinen Mitarbeitern mit Erfolg angewandt, um eine Reihe nichtlinearer Erscheinungen bei hohen optischen Pumpniveaus zu untersuchen [1, 4]. Nach Auswertung der von V.S. Maškevič für den einfachsten Fall eines Zweiniveausystems ermittelten Lösungen konnte man sie für die konkrete Berechnung der experimentell beobachteten Exzitonolumineszenzspektren von Molekülkristallen (Anthrazen) verwenden. Ähnliche Berechnungen sind für molekulare Verunreinigungssysteme die zuweilen reale Kristalle sind, genauso aktuell. Damit verbunden wird nachfolgend auch der Fall der gleichzeitigen

Beobachtung der Exzitonen- und Verunreinigungs-Lumineszenz untersucht, bei der die induzierten Strahlungsübergänge nicht die einzige Ursache für eine mögliche Umverteilung der Intensität im Lumineszenzspektrum sind.

### I. Stationäre Strahlung in einem homogenen System. Die Moden

Ein beliebiges periodisches Feld, das sich in einem Raum (z.B. in einem Würfel mit der Kante  $L$ ) befindet, kann man als Superposition monochromatischer ebener Wellen darstellen, die die Eigenschwingungen des Systems, also die Moden, sind. Die Anzahl der Moden stimmt mit der Anzahl der Freiheitsgrade des Feldes überein und läßt sich aus der Bedingung bestimmen, daß das Feld an der Kante des Raumes gleich null sei. Unter diesen Bedingungen entspricht jeder Mode ein Punkt im Raum der Wellenvektoren, wobei der Wellenvektor so vorgegeben wird:

$$k_x = \frac{2\pi}{L} l_x; \quad k_y = \frac{2\pi}{L} l_y; \quad k_z = \frac{2\pi}{L} l_z; \quad (1)$$

$l_x, l_y, l_z$  stellen dabei ganze Zahlen dar. Die Anzahl der Punkte im Elementarvolumen des  $k$ -Raumes kann dann folgendermaßen wiedergegeben werden:

$$m = \int l^2 dl d\Omega. \quad (2)$$

Dementsprechend, daß  $k = \frac{2\pi}{c} \nu$  und  $l^2 = \frac{\nu^2 L^2}{c^2}$ , ist

$$m = \frac{1}{c^3} \nu^2 L^3 d\nu d\Omega.$$

Wir berücksichtigen für jeden Wert  $\nu$  zwei mögliche Polarisationen, schreiben die Frequenzen in Wellenzahlen an ( $\tilde{\nu} = \frac{\nu \mu}{c}$ , wobei  $\mu$  Brechungsindex des Mediums ist) und erhalten die Anzahl der Moden im Intervall der Wellenzahlen von  $\tilde{\nu}$  bis  $\tilde{\nu} + d\tilde{\nu}$ , die innerhalb des Raumwinkels  $d\Omega$  Platz finden:

$$M = 2\tilde{\nu}^2 V \mu^3 d\tilde{\nu} d\Omega, \quad (3)$$

wobei  $V$  das Volumen des untersuchten Systems ist.

V e r t e i l u n g   d e r   P h o t o n e n   n a c h   d e n  
M o d e n   u n d   A n z a h l   d e r   a n g e r e g t e n  
Z e n t r e n

Die Spektralverteilung der Lumineszenz beschreiben wir durch die Abhängigkeit der Anzahl der bestrahlten Photonen von der Wellenlänge, d.h. durch die Verteilung der Photonen nach den Moden.

Die Veränderung der Photonenzahl  $q_j$  in der  $j$ -ten Mode kann bei Elektronenübergängen in einem System mit zwei Energieniveaus durch die folgende kinetische Gleichung beschrieben werden:

$$\frac{dq_j}{dt} = n_2 A_j + W_j (n_2 - n_1) - \alpha_j q_j. \quad (4)$$

Hier ist  $A_j$  die Wahrscheinlichkeit der spontanen Strahlung in der  $j$ -ten Mode;  $W_j = A_j q_j$  die Wahrscheinlichkeit des induzierten Übergangs in der  $j$ -ten Mode;  $(n_2 - n_1)$  die Überbesetzung auf dem oberen Niveau, infolgedessen das zweite Glied der Gleichung einen Überschuß an induzierter Strahlung über die Absorption darstellt;  $\alpha_j$  Verlustfaktor oder die Wahrscheinlichkeit, daß das Photon der  $j$ -ten Mode aus dem System ausfällt; ( $1/\alpha_j = t_j$  Lebensdauer des Photons im System<sup>1)</sup>).

Es ist noch hinzuzufügen: stellt man die Aufgabe nach den Besetzungszahlen der Moden durch die Photonen, d.h.  $q_j$  ist gesucht, dann finden wir gerade dadurch gleichzeitig das Verhältnis zwischen den Beiträgen der induzierten und der spontanen Übergänge in die Lumineszenz. Da  $q_j = W_j / A_j$ , ergibt sich, daß nur bei  $q_j \gtrsim 1$  die Rolle der induzierten Übergänge bedeutend wird<sup>2)</sup>.

Die Auswertung der zu (4) gehörenden Größen zeigt, daß die Veränderung der Spektralverteilung der Strahlung (bei vorgegebenem Pumpen von  $n_2$ ) durch drei unabhängige Faktoren bestimmt werden kann.

1. Bekanntlich gibt die Linienform der Bande im Spektrum der sponta-

---

1) Wie hier, so wird auch im weiteren Verlauf angenommen, daß im System keine inaktive Absorption vorkommt und daß die Photonenverluste nur aufgrund dessen auftreten, weil sie aus dem System ausfallen. Dabei ist die Lebensdauer eines Photons in der Mode gleich  $t_j = L_j \mu / c$ , wobei  $L_j$  lineares Maß des Systems für die  $j$ -ten Mode ist;  $\mu$  Brechungsindex des Mediums;  $c$  Lichtgeschwindigkeit im Vakuum.

2) Die Zahl der Photonen auf der Mode  $q_j < 1$  (spontane Lumineszenz) ist natürlich statistisch und beinhaltet, daß zu jedem Zeitpunkt nur ein Teil der Mode besetzt ist.

nen Lumineszenz die Spektralabhängigkeit der Wahrscheinlichkeiten  $A_j$  wieder. In diesem Zusammenhang ist die Besetzung der Moden innerhalb der Lumineszenzbande bereits bei geringen Anregungen ungleichmäßig. Wenn induzierte Übergänge hinzukommen, führt dies deshalb zu einer noch größeren Anreicherung jener Moden, deren Frequenzen dem Maximum der Lumineszenzbande entsprechen.

2. Im Lumineszenzspektrum einiger Substanzen, insbesondere von Molekularsystemen, können Banden beobachtet werden, die dem Übergang auf verschiedene Endniveaus entsprechen. Auch unter der Annahme, daß eine Quasigleichgewichtsverteilung zwischen ihren Niveaus festgestellt werden kann, kann die Besetzung verschieden sein; sie wird durch das Energieintervall, das die Niveaus trennt, und die Temperatur bestimmt. Damit hängt zusammen, daß die Besetzung der Moden durch die Photonen bei induzierten Übergängen je nach Besetzung des Endniveaus ( $n_1$ ), das am Übergang teilnimmt, stark differiert.
3. Der geometrische Aufbau des lumineszierenden Systems, der durch die Ausdehnung der aktiven Substanz in den einzelnen Richtungen bestimmt wird, kann zu einem Unterschied bei den Koeffizienten  $\alpha_j$  führen. Auch bei gleicher Aufteilungswahrscheinlichkeit der Photonen auf die verschiedenen Moden können dadurch ihre Besetzungszahlen stark differieren.

Im stationären Zustand ist  $\frac{dq_j}{dt} = 0$  und

$$n_2 A + W_j (n_2 - n_1) - \alpha_j q_j = 0,$$

wobei  $A = \frac{1}{\tau_{sp}} M$  die Wahrscheinlichkeit der spontanen Strahlung auf eine Mode angibt, vorausgesetzt, daß die Strahlung auf eine beliebige Mode gleichermaßen wahrscheinlich ist.

Wir setzen  $W_j = A q_j$  ein und erhalten

$$A(1 + q_j) n_2 - A q_j n_1 - \alpha_j q_j = 0. \quad (5)$$

Und hieraus

$$q_j = \frac{A n_2}{\alpha_j - A(n_2 - n_1)}. \quad (6)$$

Dann ist die Gesamtzahl der Photonen, die aus dem System ausfallen und seine Verluste ausmachen, gleich

$$Q = \sum_j Q_j = \sum_j \frac{\alpha_j A n_2}{\alpha_j - A(n_2 - n_1)}, \quad (7)$$

wobei

$$Q_j = \alpha_j q_j = \frac{\alpha_j A n_2}{\alpha_j - A(n_2 - n_1)} \quad (8)$$

die Anzahl der Photonen der j-ten Mode ist, die aus dem System ausfallen.

Durch Ausdruck (7) läßt sich die Abhängigkeit der Lumineszenzintensität, die in Quantenzahlen ausgedrückt wird, von der Anzahl der aktiven Zentren  $n_1$  und  $n_2$  analysieren.

$n_2$  sei gering, sodaß man die induzierten Übergänge in die Strahlung vernachlässigen kann. Dann ist

$$Q = \sum_j \frac{\alpha_j A n_2}{\alpha_j + A n_1} \quad (9)$$

Dieser Ausdruck bestimmt die Intensität der spontanen Lumineszenz. Wenn dazu, wie dies bei den Elektronenschwingungsübergängen bei der Lumineszenz von Molekulkristallen der Fall ist,  $n_1$  ebenfalls sehr gering ist, dann gilt

$$Q = \sum_j A n_2 = \frac{n_2}{\tau_{\text{eff}}} \quad (10)$$

In allen Fällen spontaner Lumineszenz (Gleichungen (9) und (10)) hängt die Gesamtzahl der Photonen linear mit der Anzahl der angeregten Zentren zusammen. Diese Abhängigkeit wird aufrechterhalten, solange die Lebensdauer bezüglich der spontanen Emission in die j-te Mode in der Berechnung für ein Zentrum viel größer ist als die Lebensdauer des Photons in der Mode ( $M\tau_{\text{sp}}/n_2 \gg 1/\alpha_j$ ). Eine Verletzung dieser Beziehung beweist, daß die induzierten Übergänge eingeschlossen sind. In diesem Fall ist die Abhängigkeit der Photonenzahl von der Anzahl der angeregten Zentren nicht mehr linear, und unter bestimmten Bedingungen ist in einem solchen System Lichterzeugung möglich [2].

V e r t e i l u n g   d e r   P h o t o n e n   n a c h   d e n  
M o d e n   u n d   I n t e n s i t ä t   d e s   A n r e g u n g s -  
l i c h t s

Unter Versuchsbedingungen ist es praktisch unmöglich, die Abhängigkeit der Spektralverteilung in der Lumineszenz von der Anzahl der angeregten Zentren zu untersuchen. Normalerweise wird die Abhängig-

keit von der Intensität des Anregungslichtes untersucht. Diese Abhängigkeit kann ermittelt werden, wenn die kinetischen Gleichungen für die Anzahl der Photonen und die Anzahl der angeregten Zentren  $n_2$  zusammengefaßt werden.

Die zeitliche Veränderung der Anzahl der angeregten Zentren auf dem Niveau 2 (siehe Abb. 1) ist bei Berücksichtigung der Strahlungsmenge für alle Moden

$$\frac{dn_2}{dt} = H - An_2M - A(n_2 - n_1) \sum_i q_i - \Gamma_6 n_2. \quad (11)$$

Hier ist H die Intensität des Anregungslichtes (des Pumpens) in Quanten während 1 sec;  $\Gamma_6$  die Wahrscheinlichkeit der strahlungslosen Übergänge von Niveau 2. Für den stationären Fall gilt  $\frac{dn_2}{dt} = 0$  und

$$H = \Gamma_6 n_2 + AMn_2 + A(n_2 - n_1) \sum_i q_i. \quad (12)$$

Durch gemeinsames Lösen der Gleichungen (5) und (12) lassen sich bei vorgegebenen Pumpen im Prinzip die Werte  $q_j$  und  $n_2$  bestimmen. Wenn man dabei  $q_j$  aus (6) einsetzt, erhält man

$$H = \Gamma_6 n_2 + AMn_2 + A(n_2 - n_1) \sum_i \frac{An_2}{\alpha_j - A(n_2 - n_1)}. \quad (13)$$

Gleichung (13) kann vereinfacht folgendermaßen angeschrieben werden

$$H = n_2 \left( \Gamma_6 + \sum_i \frac{\alpha_j A}{\alpha_j - A(n_2 - n_1)} \right). \quad (13a)$$

Wir verwenden den Ausdruck (6), beachten, daß  $\alpha_j q_j = Q_j$  ist, und erhalten

$$H = \Gamma_6 n_2 + Q, \quad (13b)$$

mit  $Q = \sum_i Q_j$ . Diese Gleichung verbindet die Gesamtintensität der Lumineszenz Q mit der Intensität des Anregungslichts H.

Gleichung (13a) ist die Hauptgleichung, mit der die Anzahl der angeregten Zentren  $n_2$  in Abhängigkeit vom Pumpen bestimmt werden kann. Bemerkt sei, daß das zweite Glied in Klammern die Gesamtwahrscheinlichkeit der Strahlung unter Berücksichtigung der spontanen und induzierten Übergänge in alle Moden beschreibt.

Zur Ermittlung der uns interessierenden Abhängigkeit der Besetzungszahlen der einzelnen Moden  $q_j$  vom Pumpen H muß Gleichung (13a) bezüg-

lich  $n_2$  gelöst und der ermittelte Wert in Gleichung (6) eingesetzt werden. Im Allgemeinfall hat Gleichung (13a) einen  $(M + 1)$ -ten Grad bezüglich  $n_2$ , und ihre Lösung ist auch unter den oben genannten Annahmen über die Gleichwahrscheinlichkeit der spontanen Strahlung auf jeder Mode nicht möglich.

In einigen Fällen, von denen ein Teil später untersucht wird, zerfällt die gesamte große Anzahl der Moden aufgrund der Besonderheiten des lumineszierenden Systems in eine kleine Anzahl von Gruppen, die gleichartige Moden vereinigen. Unter diesen Bedingungen wird der Grad von Gleichung (13a) durch die Anzahl der Gruppen bestimmt; und damit kann sie in einigen physikalischen Aufgaben gelöst werden. Die Untersuchung beginnen wir mit der spontanen Lumineszenz, die eine Sonderstellung einnimmt.

a. DIE SPONTANE LUMINESZENZ. In diesem Fall werden die Bedingungen  $\alpha_j \gg An_2$  für eine beliebige Mode erfüllt. Die Anzahl der Photonen, die vom System emittiert werden, wird durch die Relation (9) (oder (10)) beschrieben. Zur Verbindung von  $n_2$  mit dem Pumpen erhalten wir anstelle Gleichung (13a) die Gleichung

$$n_2 = \frac{H}{\Gamma_0 + \sum_i \frac{\alpha_j A}{\alpha_j + An_1}} \quad (14)$$

mit demselben hohen Grad.

Im Zusammenhang damit, daß die Überlappung der Absorptions- und Lumineszenzspektren normalerweise nicht groß ist, ist jedoch die Anzahl der Summanden der Summe in Gleichung (14), für die das Glied  $An_1$  wesentlich ist, gering. Deshalb kann  $n_2$  mit geringer Ungenauigkeit so ausgedrückt werden:

$$n_2 = \frac{H}{\Gamma_0 + \frac{1}{\tau_{sp}}}; \quad (14a)$$

für  $q_j$  erhalten wir

$$q_j = \frac{AH}{\left(\Gamma_0 + \frac{1}{\tau_{sp}}\right)(\alpha_j + An_1)}. \quad (15)$$

Als quantitative Charakteristik der Spektralverteilung der Lumineszenz kann man die Relation der Anzahl der Photonen auf den beiden beliebigen Moden  $i$  und  $j$  wählen:



$$\xi_{ij} = \frac{\alpha_i q_i}{\alpha_j g_j} = \frac{Q_i}{Q_j}. \quad (16)$$

Dann erhalten wir für  $\xi_{ij}$

$$\xi_{ij} = \frac{\alpha_i (\alpha_j + An_1)}{\alpha_j (\alpha_i + An_1)}. \quad (16a)$$

Somit ist  $\xi_{ij}$  für die spontane Lumineszenz konstant, und die Spektralverteilung in der Lumineszenz hängt nicht von der Intensität des Anregungslichtes ab.

b. DIE INDUZIERTE STRAHLUNG. 1) DIE VERLUSTFAKTOREN SIND FÜR ALLE MODEN GLEICH ( $\alpha_i = \alpha$ ). In diesem Fall sind die Photonenzahlen auf den verschiedenen Moden ebenfalls identisch und gleich

$$q = \frac{An_2}{\alpha - A(n_2 - n_1)}.$$

Dabei ist  $\xi_{ij} = 1$  und zwar auch bei sehr großen Anregungen, wenn die induzierten Übergänge bestimmend sind. Wenn man die strahlungslosen Übergänge vernachlässigt, dann gilt nach (13b)

$$q = \frac{1}{\alpha M} H. \quad (17)$$

Der Faktor  $1/\alpha M$  hat die Größenordnung  $\sim 10^{-18} - 10^{-20}$ , was die äußerst langsame Zunahme von  $q$  mit dem Pumpen erklärt; und  $q$  bleibt nur bei  $H > 10^{20}$  Quanten/sec größer Eins.

2) DIE VERLUSTFAKTOREN SIND FÜR ALLE MODEN GLEICH, MIT AUSNAHME EINER, FÜR DIE  $\alpha_0$  RELATIV KLEIN IST. Dann ist die Anzahl der Photonen auf einer besonderen Mode gleich

$$q_0 = \frac{n_2}{\alpha_0 - A(n_2 - n_1)},$$

und auf jeder der übrigen (nicht besonderen) Moden:

$$q_n = \frac{n_2}{\alpha - A(n_2 - n_1)}.$$

Dementsprechend sind die Photonen, die aus dem System auf der besonderen und den nicht besonderen Moden ausscheiden, zahlenmäßig gleich

$$Q_0 = \alpha_0 q_0; \quad Q_n = \alpha q_n (M - 1). \quad (18)$$

Die Gesamtzahl der Photonen beträgt

$$Q = \alpha_0 q_0 + \alpha q_n (M - 1).$$

Aus der Analyse dieser Beziehungen geht hervor, daß  $Q_0 \rightarrow \infty$  bei  $A(n_2 -$

$n_1 \rightarrow \alpha_0$ , was selbstverständlich erfordert, daß  $H \rightarrow \infty$ . Somit ist  $n_2 - n_1 = \frac{\alpha_0}{A}$  die maximal zulässige Überbesetzung im System bei unendlichem Pumpen.

Deshalb ist es nicht möglich, eine solche Überbesetzung zu erreichen, bei der  $Q_n$  (nicht besondere Moden) ebenfalls stark zunimmt, da dafür eine Überbesetzung  $n_2 - n_1 \sim \frac{\alpha}{A}$ , die größer als  $\frac{\alpha_0}{A}$  ist, erforderlich wäre. Dies bedeutet, daß nur auf der Mode (den Moden) mit den geringsten Verlustfaktoren (der größten Photonenlebensdauer im System) eine starke Zunahme der Photonen (Lichterzeugung durch das System) erreicht werden kann. Die Überbesetzung nähert sich dabei der maximal zulässigen an:

$$(n_2 - n_1) \sim \frac{\alpha_0}{A}.$$

Dann beträgt die Anzahl der Photonen auf den nicht besonderen Moden im Grenzfall unendlich großer Anregungen

$$Q_n^{\text{grenz}} = \alpha(M-1)q_n = \frac{\alpha n_2(M-1)A}{\alpha - \alpha_0},$$

und da  $n_2 = \frac{n_2 - n_1 + N}{2} = \frac{\alpha_0 + AN}{2A}$ , wobei N eine ganze Zahl der Teilchen im System darstellt, gilt

$$Q_n^{\text{grenz}} = \frac{\alpha(M-1)(\alpha_0 + AN)}{2(\alpha - \alpha_0)}. \quad (19)$$

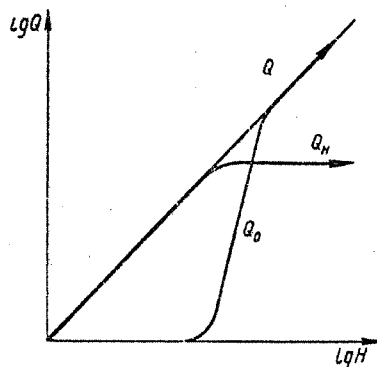


Abbildung 2. Abhängigkeit der Anzahl der Photonen der Lumineszenz auf allen Moden (Q), auf der besonderen Mode ( $Q_0$ ) und den nicht besonderen ( $Q_n$ ) von der Pumpleistung.

Im Zusammenhang damit, daß  $Q_n^{\text{grenz}}$  nicht von H abhängt, geht die Anzahl der Photonen auf den nicht besonderen Moden mit zunehmendem Pumpen in die Sättigung über, während die Anzahl der Photonen der besonderen Mode gleichzeitig unbegrenzt zunimmt. Der Verlauf dieser Abhängigkeiten ist in Abb. 2 dargestellt. Die auf der besonderen Mode entstehende Lichterzeugung führt zu einer starken Abnahme der Lumineszenzbande

(maximal bis auf die Breite der besonderen Mode), wie dies bei optischen Masern vorkommt [5].

Als darauffolgenden Fall kann man ein System untersuchen, in dem es zwei Modengruppen mit unterschiedlichen Verlustfaktoren gibt. Dieser Fall ist für die Kristalllumineszenz besonders interessant und wird nachfolgend am Beispiel eines monokristallinen Anthrazenfilms untersucht.

## II. Lumineszenz der Anthrazenkristalle. Auswertung der Parameter

---

Das Energieniveauschema des Anthrazenkristalls, das für alle Molekülkristalle typisch ist, ist in Abb. 3 dargestellt. Die Lumineszenzanregung findet immer in einem breiten Spektralbereich statt, der eine große Anzahl von Anregungszuständen umfaßt. Während der Anregungslebensdauer werden diese bei niedrigen Temperaturen jedoch auf eine geringe Zahl von Niveaus konzentriert, die nahe dem unteren Ende

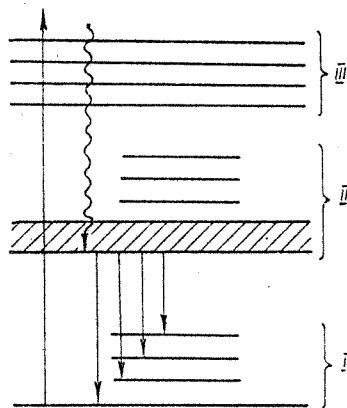


Abbildung 3. Schematische Darstellung der Energieniveaus des Molekülkristalls: I - Schwingungsbereichssystem des Grundzustands; II - dasselbe für den ersten angeregten Elektronenzustand; III - alle darüberliegenden Niveaus und Bereiche.

des niedrigsten Exzitonenbands liegen. Die Lumineszenz entwickelt sich aufgrund von Übergängen aus dem Exzitonenband des Kristalls auf das System der Schwingungsbereiche des Grundzustands.

## U n t e r s c h i e d   d e r   M o d e n

Die wohlbekannte leuchtende blau-violette lumineszierende Kante von monokristallinen Anthrazenfilmen ist dadurch bedingt, daß der Brechungsindex des Kristalls größer Eins ist und daß das Licht der Lumineszenz an der Kristall-Luft-Grenze teilweise eine innere Totalreflexion erfährt. Das Lumineszenzlicht, das sich vom Punkt A (Abb. 4)

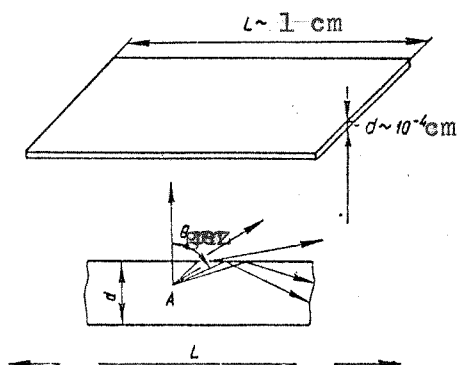


Abbildung 4. Lichtausbreitung im Kristallfilm.

unter einem Winkel zur Oberfläche, der kleiner ist als der Winkel der inneren Totalreflexion ( $\theta_{\text{grenz}}$ ), ausbreitet, verläßt den Kristall wieder, wobei es eine Entfernung von ungefähr der Kristalldicke  $d$  zurücklegt. Diese Strahlung ergibt die sogenannte Frontallumineszenz. Das Licht, das auf die Oberfläche unter Winkeln größer  $\theta_{\text{grenz}}$  fällt, erfährt eine mehrmalige innere Totalreflexion und tritt an der Seite aus, wobei es im Kristall einen Weg von etwa der Kristalllänge  $L$  zurücklegt. Dies ist die sogenannte Kantenlumineszenz. Da der Anthrazenkristall zu den stark absorbierenden Stoffen gehört (sein durchschnittlicher Eigenabsorptionsfaktor beträgt bei  $4\ 000 - 2\ 500\ \text{\AA}$   $2,6 \cdot 10^{-4}\ \text{cm}^{-1}$ ), werden 90 % der einfallenden Strahlung bereits bei einer Dicke von  $1\ \mu\text{m}$  absorbiert [6]. Die Längenenfernung des bestrahlten Flecks auf der Oberfläche der Probe und der Pumpquelle beträgt einige Millimeter (wenn Gasentladungslampen vom Typ GSVD, DRŠ oder ISS verwendet werden). Somit entsteht die Lumineszenz in der Schicht, deren Dicke um einige Größenordnungen kleiner ist als die Längenabmessungen der Oberfläche. Verglichen mit den Photonen der Kantenlumineszenz leben deshalb die Photonen der Frontallumineszenz nur eine unmerkliche Zeit lang, was den Unterschied in den Koeffizienten  $\alpha_j$  bei den entsprechenden Moden erklärt. Wir nennen die Moden der Kan-

tenlumineszenz gut und die der Frontallumineszenz schlecht. Ihre Anzahl ist verschieden, da die oben beschriebenen Lichtleiteigenschaften des kristallinen Filmes die Strahlung aus verschiedenen Raumwinkeln in der Frontal- und Kantenlumineszenz sammeln.

Dabei können die entsprechenden Größenordnungen der Verlustfaktoren so bestimmt werden (siehe Anmerkung zu S. 4):

$$\alpha_g = \frac{c}{\mu L}; \quad \alpha_s = \frac{c}{\mu d}. \quad (20)$$

Verbunden damit, daß  $L/d \sim 10^4$  ist, gilt für die untersuchten Kristallproben  $\alpha_s / \alpha_g \sim 10^4$ .

#### Bestimmung des Raumwinkels

Der allgemeine Raumwinkel ist gleich

$$d\Omega = \sin \theta \, d\theta \, d\varphi.$$

Dann ist

$$\Delta\Omega_g = 2 \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\theta_{\text{grenz}}} \sin \theta \, d\theta = 4\pi \cos \theta_{\text{grenz}}; \quad (21a)$$

$$\Delta\Omega_s = 4\pi (1 - \cos \theta_{\text{grenz}}). \quad (21b)$$

Da

$$\sin \theta_{\text{grenz}} = \frac{1}{\mu},$$

ist

$$\Delta\Omega_g = 4\pi \frac{\sqrt{\mu^2 - 1}}{\mu}; \quad (22a)$$

$$\Delta\Omega_s = 4\pi \frac{\mu - \sqrt{\mu^2 - 1}}{\mu}. \quad (22b)$$

Der Anthrazenkristall ist anisotrop, deshalb wäre es bei der Berechnung der Raumwinkel notwendig, die Veränderung des Brechungsindex für die verschiedenen Richtungen zu berücksichtigen. Da die Kristallanisotropie in dem Durchlässigkeitsbereich, wo das Lumineszenzspektrum liegt, jedoch nicht sehr groß ist, ergibt es keinen großen Fehler, wenn man anstelle des Brechungsindex einen Durchschnittswert  $\mu$  verwendet.

Bestimmung der Anzahl der Anregungszentren in einem System mit zwei Modengruppen

Im untersuchten Fall kann Gleichung (13a) in einfacherer Form angeschrieben werden, da die zu ihr gehörende Summierung für die guten und die schlechten Moden von allen Moden einzeln abgeleitet werden kann:

$$H = n_2 \left[ \Gamma_6 + \frac{\alpha_g M_g A}{\alpha_g - A(n_2 - n_1)} + \frac{\alpha_s M_s A}{\alpha_s - A(n_2 - n_1)} \right]. \quad (23)$$

Hier sind  $M_{\text{gut}}$  und  $M_{\text{schl}}$  ganze Modenzahlen einer jeden Sorte im System. In dieser Form kann man diese Gleichung direkt nicht benutzen, um  $n_2$  bei Anthrazen festzustellen, da sein Spektrum überwiegend kein Zweiniveauspektrum ist. Das Exzitonenlumineszenzspektrum des Anthrazens besteht aus vielen Elektronenschwingungsbanden. Für jede dieser Banden gibt es eine Anzahl guter und schlechter Moden, und für die entsprechenden Übergänge einen eigenen Wert  $n_1$  (siehe S. 4, 3. Abschn.).

Die Besetzung der Schwingungssubniveaus des Grundzustands wird in Annäherung des festgestellten Wärmegegengewichts so bestimmt:

$$n_{1l} = N \exp\left(\frac{-\hbar\nu_l}{kT}\right),$$

dabei ist  $\nu_l$  die Größe der entsprechenden Schwingung. Bei nicht zu niedrigen Temperaturen kann der Wert  $n_{1l}$  groß sein. Aufgrund dessen, daß Gleichung (23) das Bandenspektrum der Lumineszenz des Anthrazenkristalls beschreiben kann, muß sie in folgender Form angeschrieben werden:

$$H = n_2 \left[ \Gamma_6 + \sum_l^k \frac{\alpha_g M_g^l A}{\alpha_g - A(n_2 - n_{1l})} + \sum_l^k \frac{\alpha_s M_s^l A}{\alpha_s - A(n_2 - n_{1l})} \right], \quad (24)$$

wobei über die  $k$ -Banden des Spektrums summiert wird;  $M_{\text{gut}}^l$  und  $M_{\text{schl}}^l$  die Anzahl der guten und schlechten Moden der  $l$ -ten Bande des Spektrums wiedergeben;  $A$  vorläufig die Wahrscheinlichkeit des spontanen Übergangs in die Mode:

$$A = \frac{1}{\tau_{\text{sp}} \sum_l (M_g^l + M_s^l)}. \quad (25)$$

Gleichung (24) hat gegenüber  $n_2$  eine hohe Potenz. Man kann sie jedoch stark vereinfachen. Wenn man von den Überlegungen ausgeht, die wir im vorhergehenden Abschnitt bei der Erörterung des Falls einer abgetrennten Mode angeführt haben, so kann man zeigen, daß  $A(n_2 - n_{1l})$  auch in diesem Fall und sogar bei äußerst großen Anregungen nicht grös-

ser sein kann als  $\alpha_{\text{gut}}$  (siehe Ausdruck (6)). Dies bedeutet, daß die Höchstzahl der Anregungszentren  $n_2$  nach oben beschränkt ist durch die Ungleichung

$$n_2 \lesssim \frac{\alpha_{\text{gut}}}{A} + n_{1l}. \quad (26)$$

Da  $n_{1l}$  für die verschiedenen Übergänge differieren und sich bei hohen Schwingungssubniveaus als viel kleiner als  $\alpha_{\text{gut}}/A$  erweisen kann, kann man Ungleichung (26) klarer machen:

$$n_2 \lesssim \frac{\alpha_{\text{gut}}}{A}. \quad (27)$$

Im Zusammenhang mit dem letztgenannten Umstand kann man bei schlechten Moden ( $\alpha_g \gg \alpha_s$ ) im Nenner von Gleichung (24)  $An_2$  vernachlässigen, und in den Fällen, wo  $An_{1l}$  im Vergleich zu  $\alpha_{\text{schl}}$  geringer ist, hat Gleichung (24) die Gestalt

$$H = n_2 \left[ \Gamma_6 + A \sum_l^k M_{\text{S}}^l + \sum_l^{k_1} M_{\text{gut}}^l \frac{\alpha_{\text{gut}}}{n_{1l}} + A \sum_l^{k_2} \frac{\alpha_g M_{\text{gut}}^l}{\alpha_g - An_2} \right]. \quad (28)$$

Hier bezeichnet  $k = k_1 + k_2$  die Gesamtzahl der Banden im Lumineszenzspektrum. Bekanntlich liegt die Quantenausbeute der Exzitonenlumineszenz des Anthrazens nahe bei Eins und ist  $\Gamma_6$  gering. Wenn man eine

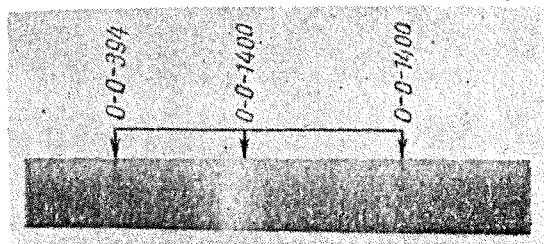


Abbildung 5. Exzitonenlumineszenzspektrum der Anthrazenkristalle bei 77°K.

konkrete Probe eines Kristallfilms untersucht, so kann man Gleichung (28) numerisch lösen. Durch Bestimmung der Größe  $n_2$  läßt sich die Anzahl der Photonen auf den Moden nach (6) errechnen und gerade dadurch die Abhängigkeit der Spektralverteilung vom Pumpen erklären.

Die Berechnung der Koeffizienten von Gleichung (28) wurde für einen Anthrazenkristallfilm durchgeführt, dessen Exzitonenlumineszenzspektrum bei 77°K in Abb. 5 dargestellt ist.<sup>3)</sup>

<sup>3)</sup> Die Probe wurde sorgfältig durch Zonenschmelzen gereinigt.

Die Werte der in Gleichung (28) enthaltenen Größen sind in Tab. 1 und 2 angegeben.

Tabelle 1

Elektronen- übergang	Fre- quenz, cm <sup>-1</sup>	Halbwerts- breite cm <sup>-1</sup>	$n_{11} \cdot 10^{16}$	$M_{\text{gut}}^l \cdot 10^8$	$M_{\text{schl}}^l \cdot 10^8$
0-0	25 075	100	3,2	0	0,3
0-0-394	24 680	150	$3,2 \cdot 10^{-3}$	1,25	0,2
0-0-1400	23 675	310	$3,2 \cdot 10^{-11}$	2,38	0,4
0-0-2.1400	22 270	300}	$\ll 10^{-13}$	2,05	0,35
0-0-3.1400	20 870	250}		1,51	0,25

Tabelle 2

Parameter	Be- zeich- nung	Größe	Anmerkungen
Kristallvolumen	V	$8 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^3$	$L = 4 \cdot 10^{-1} \text{ cm}, d = 10^{-4} \text{ cm}$
Anzahl der Anthrazenmole- küle im Film	N	$3,2 \cdot 10^{16}$	pro Volumen- einheit $N_0 = 4 \cdot 10^{21}$
Gesamtzahl d. guten Moden	$M_{\text{gut}}$	$7,2 \cdot 10^8$	$M_{\text{gut}} = 8\pi \frac{\sqrt{\mu^2 - 1}}{\mu} V \sum_l v_l^2 \Delta v_l$
Gesamtzahl der schlechten Moden	$M_{\text{schl}}$	$1,5 \cdot 10^8$	$M_{\text{schl}} = 8\pi \frac{\mu - \sqrt{\mu^2 - 1}}{\mu} V \sum_l v_l^2 \Delta v_l$
Modengesamtzahl	M	$8,7 \cdot 10^8$	$M_{\text{gut}} + M_{\text{schl}}$
Wahrscheinlichkeit d. spon- tanen Emission in e-Mode	A	$0,11 \text{ sec}^{-1}$	$\tau_{\text{sp}} = 10^{-8} \text{ sec}$ [7]; $A = \frac{1}{\tau_{\text{sp}} M}$
Mittlere Brechungszahl	$\mu$	2	[8]
Verlustfaktor der guten Moden	$\alpha_{\text{gut}}$	$3,75 \cdot 10^{10} \text{ sec}^{-1}$	$\alpha_{\text{gut}} = \frac{c}{\mu L}$
Verlustfaktor der schlechten Moden	$\alpha_{\text{schl}}$	$1,5 \cdot 10^{14} \text{ sec}^{-1}$	$\alpha_{\text{schl}} = \frac{c}{\mu d}$
Grenzwert der Anzahl der angeregten Moleküle	$n_2$	$3,4 \cdot 10^{11}$	$\frac{\alpha_{\text{gut}}}{A}$
Anzahl der Quanten des An- regungslichts im Film <sup>5)</sup>	$\{H_1, H_2\}$	$\{10^{17}, 10^{20}\} \text{ Qu/sec}$	Lampe GSV-120, $i=5 \text{ a}, v=110 \text{ V}$ Lampe ISS <sup>5)</sup> 500, 9kV, $\tau=6 \cdot 10^{-6} \text{ sec}$

Vorläufige Schätzungen von  $n_2$  müssen nach Ausdruck (14a) durchgeführt werden, der für die spontane Lumineszenz gilt. Wenn sich  $n_2$  beim ge- wählten Pumpen als nahe bei oder größer als der Grenzwert ( $3,4 \cdot 10^{11}$ , siehe Tab. 2) erweist, so bedeutet dies, daß die Schätzung überhöht war und daß man zum Auffinden des genauen Wertes von  $n_2$  Gleichung (28) verwenden muß.<sup>4)</sup>

4) Wenn  $n_2$  mit  $\alpha_{\text{gut}}/A$  vergleichbar ist, dann herrschen in der Strahlung induzierte Übergänge vor. Die Wahrscheinlichkeit der induzierten



Die Schätzungen von  $n_2$  nach (14a) für die untersuchte Anthrazen-kristallprobe liefern bei zwei verschiedenen Intensitätswerten des Anregungslichts folgende Ergebnisse:  $H_1 = 10^{17}$  Quanten/sec;  $n_2 = 10^9$  Anregungszentren in der Probe;  $H_2 = 10^{20}$  Quanten/sec;  $n_2 = 10^{12}$  Anregungszentren in der Probe. Im ersten Fall ist die Anzahl der Anregungszentren zu gering, um die induzierten Übergänge bei Exzitonenlumineszenz auffällig zu machen ( $n_2 \ll \alpha_g / A$ , siehe Tab. 2).<sup>6)</sup> Im zweiten Fall ist  $n_2$  bereits größer als der Grenzwert. Deshalb beträgt der genaue Wert von  $n_2$ , der durch Lösen von Gleichung (28) ermittelt wurde,  $2,7 \cdot 10^{11}$ .

A n a l y s e   d e r   E i g e n s c h a f t e n   d e r   E x -  
z i t o n e n l u m i n e s z e n z   e i n e s   A n t h r a -  
z e n k r i s t a l l f i l m s   b e i   s t a r k e n   A n r e -  
g u n g e n

Die Anzahl der Photonen, die in die l-te Bande der Frontallumineszenz emittiert werden, ist gleich

$$Q_f^l = M_S^l \alpha_S q_f, \quad (29)$$

wobei

$$q_f = \frac{A n_2}{\alpha_S}.$$

---

Strahlung nimmt nach demselben Gesetz zu wie die Anzahl der Photonen auf der Mode (siehe 6), und bei Näherung von  $n_2$  an den Wert  $\alpha_g / A$  strebt die Wahrscheinlichkeit gegen unendlich, infolgedessen die Anzahl der Übergänge vom angeregten Niveau unendlich zunimmt. Dieser Umstand stellt auch die Sättigung der Anzahl der angeregten Zentren sicher.

5)

Die Lichtströme der Lichtquellen wurden mit Hilfe des Kalorimeters "Rat's Nest" gemessen [9].

6)

Diese Schlußfolgerung mag erstaunen, da die ermittelte Zahl  $n_2$  viel größer ist als die Anzahl der Teilchen auf den darüber liegenden Schwingungsniveaus des Elektronengrundzustands (siehe Tab. 1). Die Forderungen, nach inverser Besetzung werden durch einen großen Vorrat erfüllt. Eine merkliche Inversion der Besetzung erweist sich jedoch als notwendig, aber keineswegs ausreichend für die Entwicklung der induzierten Übergänge. Notwendig ist auch noch, daß die Lebensdauer des Photons auf der Mode im System vergleichbar ist mit der Lebensdauer eines Anregungszentrums bezüglich der spontanen Lumineszenz. Bei einer Anzahl aktiver Anregungszentren von  $n_2 \ll \alpha_g / A$  wird die letzte Bedingung nicht erfüllt.

Hieraus ist  $Q_f^1 = M_{\text{schl}}^1 A n_2$ . Bei Intensitätszunahme des Anregungslichts strebt die Intensität der Frontallumineszenz gegen einen konstanten Wert, der gleich  $Q_{f.\text{max}}^1 = M_{\text{schl}}^1 \alpha_{\text{gut}}$  ist.

Die Anzahl der Photonen, die in die l-te Spektralbande der Kantenlumineszenz ausgestrahlt werden, ist gleich

$$Q_k^l = M_{\text{gut}}^l \alpha_{\text{gut}} \frac{A n_2}{A(n_2 - n_1)}. \quad (29a)$$

Nach (13b) steht die Summe der Anzahl der Photonen auf allen guten und schlechten Moden bei geringen Anregungen und unter Vernachlässigung der strahlungslosen Übergänge in linearem Zusammenhang mit der Pumpgröße. Bei zunehmendem Pumpen werden die beiden Abhängigkeiten  $Q_f^1$  und  $Q_k^1$  nichtlinear, so daß  $Q_f^1$  zur Sättigung strebt und  $Q_k^1$  sich H annähert. In Abb. 6 sind die Abhängigkeiten der Intensitäten der Frontal- ( $Q_f$ ) und der Kantenlumineszenz ( $Q_k$ ) vom Pumpen H für verschiedene Relationen  $M_{\text{gut}}/M_{\text{schl}}$  abgebildet.

Die Spektralverteilung der Intensität kann wie oben bereits angedeutet als Verhältnis der Anzahl der Photonen in zwei ausgewählten Spektralbanden gekennzeichnet werden. Wir bezeichnen dieses Verhältnis mit  $\xi_{ll}$ . Dann gilt für die Frontallumineszenz

$$\xi_{ll}^f = \frac{Q_f^l}{Q_k^l} = \frac{M_s^l}{M_s^l}.$$

Dieser Ausdruck enthält keine Glieder, die vom Pumpen abhängen, und beinhaltet, daß die Spektralverteilung der Lumineszenzintensität sogar bei unendlich großem Pumpen unveränderlich ist. Der Parameter der Spektralverteilung der Kantenlumineszenz  $\xi_{ll}^k$  wird so geschrieben:

$$\xi_{ll}^k = \frac{M_{\text{gut}}^l}{M_{\text{gut}}^l} \cdot \frac{\alpha_{\text{gut}} A(n_2 - n_{1l})}{\alpha_{\text{gut}} A(n_2 - n_{1l})}. \quad (30)$$

Wenn man im Lumineszenzspektrum Banden wählen kann, für die  $n_{ll}$  wesentlich differiert, dann hängt  $\xi_{ll}^k$  von der Intensität des Anregungslichts ab.

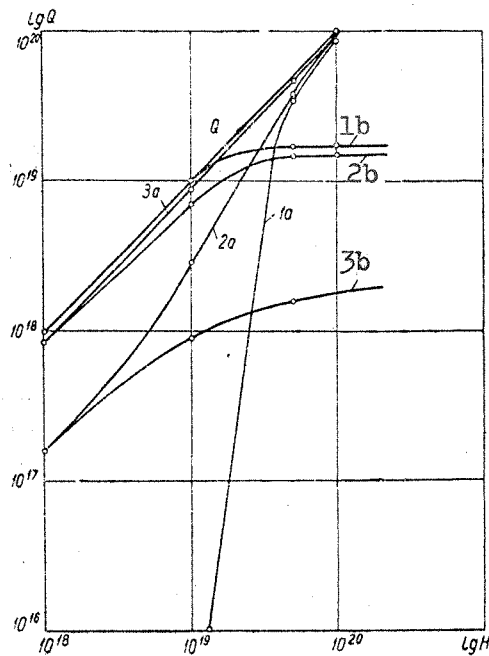


Abbildung 6. Abhängigkeit der Anzahl der Photonen der Lumineszenz von der Pumpleistung (in Quanten/sec) für verschiedene Verhältnisse guter und schlechter Modenzahlen:

- 1a, 1b -  $Q_k$  und  $Q_f$  für den Fall  $\frac{M_{\text{gut}}}{M_{\text{schl}}} = 10^{-4}$ ;
- 2a, 2b - dasselbe für  $\frac{M_{\text{gut}}}{M_{\text{schl}}} = 1/6$ ;
- 3a, 3b - dasselbe für  $\frac{M_{\text{gut}}}{M_{\text{schl}}} = 6$ .

Im Exzitonenlumineszenzspektrum des Anthrazens sind bei 77 °K die Banden der Elektronenschwingungsübergänge 0-0 - 394 (l) und 0-0 - 1 400 (l) gut abgetrennt, während die Besetzungen der Schwingungssubniveaus des Grundzustands stark differieren (siehe Tab. 1). Bei geringen Anregungen hängt  $\xi_{li}^k$  nicht von der Intensität der Anregung ab und wird wie im vorhergehenden Fall durch das Verhältnis der Modenzahlen ausgedrückt. Bei starken Anregungen ist die Größe  $An_2$  mit  $\alpha_{\text{gut}}$  vergleichbar, wodurch sich  $\xi_{li}^k$  durch Formel (30) ausdrücken läßt. Das Verhältnis von  $\xi_{li}^k$  kann bei zwei Anregungen als Maß für die Veränderung der Spektralverteilung dienen.

Für die untersuchten zwei Übergänge erhalten wir bei Verwendung der Angaben von Tab. 1 und 2

$$\chi = \frac{\xi_{II}^2}{\xi_{II}^2} = \frac{\alpha_{\text{gut}}}{\alpha_{\text{gut}} - An_2} \sim 4,8. \quad (30a)$$

Somit ist der Anteil der induzierten Strahlung in der Bande 0-0 - 1 400 des Kantenlumineszenzspektrums des Kristallfilms beim Pumpen von etwa  $10^{20}$  Quanten/sec schon sehr beträchtlich.

### III. Exzitonenlumineszenz der Anthrazenkristalle bei starken Anregungen (experimentelle Untersuchungen)

#### S c h e m a   d e r   V e r s u c h s d u r c h f ü h r u n g

Das Schema der Anlage zur Messung der Lumineszenz ist in Abb. 7 dargestellt. Die Probe wird zwischen zwei Papiermembranen gelegt und auf einer Spezialstange in einem optischen Niedertemperaturkryostat von guter Lichtdurchlässigkeit mit drei Fenstern untergebracht.<sup>7)</sup> Bei

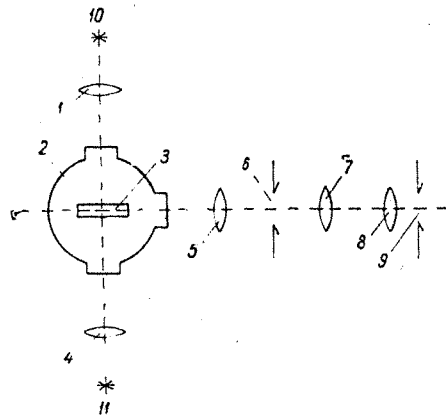


Abbildung 7. Schematische Darstellung der Anlage:

1, 4 - Kondensoren; 2 - Kryostat für Niedertemperaturuntersuchungen mit drei Fenstern; 3 - Kristall; 5, 7, 8 - Lichtquelle mit drei Linsen; 6 - Zwischenspalt; 9 - Spalt des Spektrographen; 10 - GSVD-120-Lampe mit konstanter Strahlung; 11 - ISS-500-Impuls-lampe.

unveränderter Lage des Kristalls bezüglich des Aufzeichnungssystems kann man in ihm die Lumineszenz abwechselnd mit Hilfe zweier Licht-

<sup>7)</sup> Der Kryostat wurde von V.S. Medvedev in der Abteilung für Kristallphysik des Physikalischen Instituts der Akademie der Wissenschaften der Ukrainischen SSR hergestellt.

quellen anregen: mit der GSVD-120-Lampe, die kontinuierlich strahlt, und ISS-500-Kugelimpulslampe (Impulsdauer  $6 \cdot 10^{-6}$  sec); beide sind an den zwei Seitenfenstern des Kryostats aufgestellt. Die Abbildung des Lichtfadens wird mit Hilfe der Linsen 1 und 4 auf den Kristall projiziert, wobei die Linsen so gewählt werden, daß sie die maximale Lichtausnützung der Lichtquellen gewährleisten. Das aus der Stirn austretende Lumineszenzlicht geht durch das dritte Fenster des Kryostats, das im rechten Winkel zu den beiden ersten angebracht ist, und wird photographisch unter Verwendung des ISP-22-Spektrographen aufgezeichnet. Der Spalt des Spektrographen wird durch ein System mit drei Linsen beleuchtet. Um das Leuchten eines bestimmten Kristallabschnitts abzutrennen, wird ein Zwischenspalt verwendet, in dessen Ebene eine 15-fache Darstellung des Kristalls eingebracht worden ist. Durch Spezialversuche konnte gezeigt werden, daß der Anteil des Streulichts der Lampen an der aufzuzeichnenden Strahlung so gering ist, daß es vernachlässigt werden kann.

#### U n t e r s u c h u n g s e r g e b n i s s e

Die Abhängigkeit der Lumineszenzintensität vom Pumpen wurde bei gleichbleibendem Versuchsaufbau untersucht. Die Pumpintensität wurde durch Veränderung der Spannung an den Elektroden der ISS-500-Lampe verändert. Die Anzahl der Blitze bei jeder Spannung wurde äußerst genau festgehalten. In Abb. 8 ist eine Serie von Spektrogrammen bei zunehmender Pumpintensität dargestellt, die für die Kanten- und Frontallumineszenz ermittelt wurden.<sup>8)</sup> Die Ergebnisse der quantitativen Fotometrierung der ermittelten Spektrogramme im Maximumbereich der Bande 0-0 - 1 400 (Bande B in Abb. 8) sind in Abb. 9 dargestellt. Daraus geht hervor, daß die Intensität der Frontallumineszenz entsprechend den oben dargelegten Berechnungen auf Sättigung hinausläuft, wenn das Pumpen Werte von etwa  $10^{20}$  Quanten/sec erreicht. Eine Störung der Linearität in den Abhängigkeiten  $Q_f$  und  $Q_k$  tritt gleichzeitig von Seiten der geringen Anregungen ein, und die Art der Nichtlinearität ist - wie aus Abb. 6 hervorgeht - in beiden Abhängigkeiten dem Vorzeichen nach umgekehrt (sublinear für die Frontallumineszenz und hyperlinear für die Kantenlumineszenz).

---

8) Die Untersuchungen über die Abhängigkeit der Lumineszenzintensität von der Pumpleistung wurden zusammen mit dem Studenten N.S. Belokrinickij von der Staatlichen Universität Kiev durchgeführt.

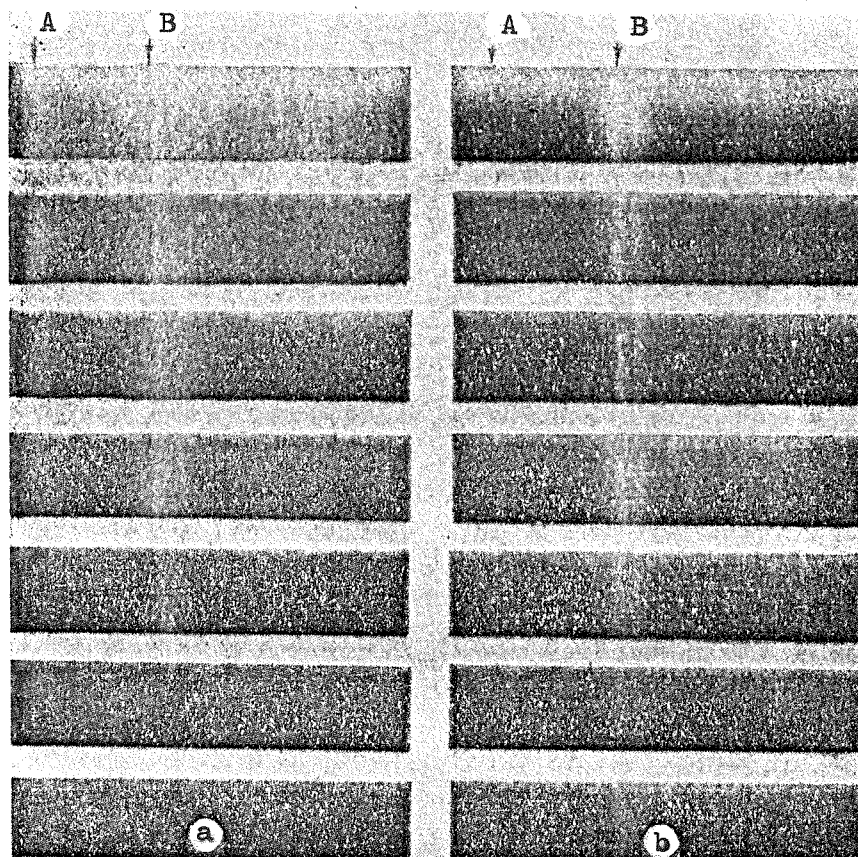


Abbildung 8. Spektrogramme der Exzitonenlumineszenz des Anthrazens, die aus der Kante (a) und aus der Front (b) des Kristallfilms austritt:

(die Intensität des Anregungslichts nimmt von unten nach oben zu, A und B - Banden der Elektronenschwingungsübergänge  $0-0 - 394$  und  $0-0 - 1400$ ).

Die ermittelten Kurven stimmen in dem Sinne gut mit den theoretischen Kurven von Abb. 6 (Fälle 3a und 3b) überein, daß die Pumpgröße, bei der die Abweichungen von der Linearität beträchtlich sind, innerhalb von  $10^{20}$  Quanten/sec liegt. Daß die Abbildungen äußerlich völlig übereinstimmen, kann man nicht erwarten, da sich Abb. 6 auf den Fall bezieht, wo die Gesamtzahl der Photonen gemessen wurde, die auf allen Moden in allen Linien des Spektrums emittiert werden. Die experimentellen Messungen beziehen sich nur auf ein enges Spektralintervall. Ein Unterschied der Moden führt zur Umverteilung der Intensität zwischen den einzelnen Modengruppen (den Frontal- und Kantenmoden), ohne dabei die lineare Abhängigkeit der Gesamtzahl der Photonen vom Pumpen zu verletzen. Da die Anzahl der Moden einer jeden Sorte groß ist, ist es bei Untersuchung der Kantenlumineszenz wie auch im Fall I (S. 9) nicht

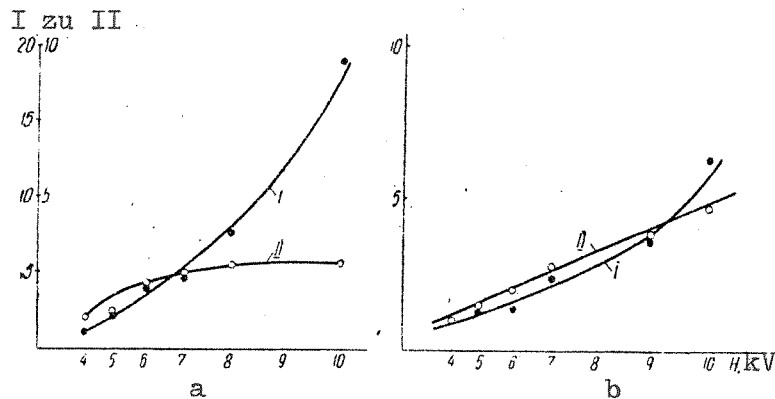


Abbildung 9. Abhängigkeit der Intensität der Bande des Elektronenschwingungsübergangs 0-0 - 1 400 der Kanten- (I) und der Frontallumineszenz (II) von der Intensität des Anregungslichts für zwei Anthrazen-Proben:

a - Dicke  $\sim 5 \mu\text{m}$ ; b - Dicke  $\sim 11 \mu\text{m}$  von der Intensität des Anregungslichts (ISS-500-Lampe, Änderungsbereich der Spannungen von 4 bis 10 kV).

möglich, diese Moden gleichzeitig mit einer großen Anzahl von Photonen zu besetzen. Das bedeutet, daß die tatsächlich erreichten Werte  $H$  es nicht zulassen,  $n_2$  zu erreichen, das beliebig nahe  $\alpha_{\text{gut}}$  ist. Darin ist auch der Unterschied der Vielmodenlumineszenz von der Erzeugung einer großen Anzahl von Photonen im Generator, der mit einer geringen Anzahl von Moden arbeitet (Fall 2, S. 9), zu sehen.

Auf den abgebildeten Spektrogrammen kann man im Kantenlumineszenzspektrum den Unterschied in der relativen Intensität der vibronischen Banden 0-0 - 394 und 0-0 - 1 400 (Banden A und B) schwer feststellen; nach den oben beschriebenen Schätzungen muß dieser Unterschied beim Übergang von einem schwächeren Pumpen zu größeren Anregungen vier bis fünf mal größer sein. Um diese Wirkung feststellen zu können, sind offensichtlich noch sorgfältigere Messungen notwendig.

#### IV. Verunreinigungslumineszenz der Anthrazenkristalle

Die oben genannte Untersuchung über die Lumineszenz der Kristalle bei starken Anregungen bezieht sich auf den Fall, wo sich die Absorption des Lichts und seine Strahlung (Lumineszenz) in einem einzigen Zentrum vollziehen. Diese Untersuchung erwies, daß es möglich ist, zur Analyse

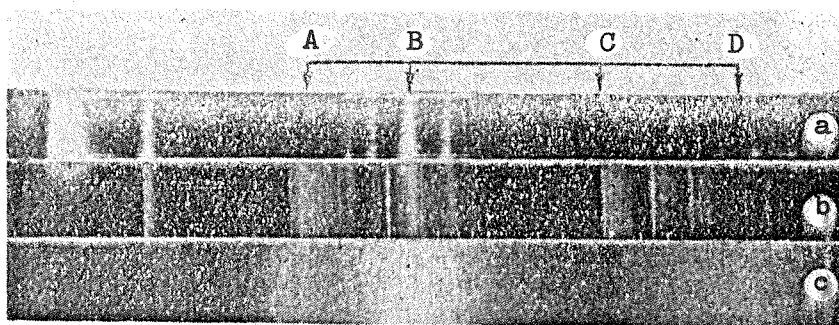


Abbildung 10. Exzitonenlumineszenzspektrum des Anthrazenkristalls bei 20°K (a); Lumineszenzspektrum des dotierten Kristalls bei 20°K (b) und 77°K (c).

der Eigenschaften der Exzitonenlumineszenz einen Molekülkristall zu verwenden. Aus dieser Sicht kann auch die Lumineszenz der Verunreinigungszentren (z.B. von Chromionen in Rubinkristallen) untersucht werden. In Molekülkristallen tritt jedoch auch noch eine andere Form von Verunreinigungslumineszenz auf, wenn sich die Absorption im Gitter des Grundzustands vollzieht, und die Anregung auf die Verunreinigungsmoleküle mit Hilfe der Exzitonen übertragen wird (induzierte Exzitonenlumineszenz [10]).

Wir untersuchten eine derartige Lumineszenz in Anthrazenverunreinigungskristallen, die durch starke Lichtströme angeregt wurden [11].

Bekanntlich reagieren die Lumineszenzspektren der Anthrazenkristalle auf vorhandene Verunreinigungen sehr empfindlich. Sogar in Proben, die dem Zonenschmelzen unterzogen wurden, kann der Anteil an Störstellenstrahlung manchmal groß sein, besonders bei niedrigen Temperaturen [12].

Das Spektrum der spontanen Lumineszenz des untersuchten Kristallfilms enthält bei 20 °K (Abb. 10b) - wenn man es mit dem Exzitonenlumineszenzspektrum vergleicht (Abb. 10a) - zusätzliche Banden, die in der Abbildung mit den Buchstaben A und B bezeichnet wurden.<sup>9)</sup> Diese etwas weniger stark ausgeprägten Bandengruppen bleiben im Lumineszenzspektrum des Kristalls auch bei 77 °K erhalten (Abb. 10c).

Wenn das Lumineszenzspektrum durch Licht der ISS-500-Lampe angeregt

---

<sup>9)</sup> Nach den Untersuchungen von Lisovenko und Špak gehören diese Banden zu einer geringen 9, 10-Diäthylanthrazenverunreinigung.



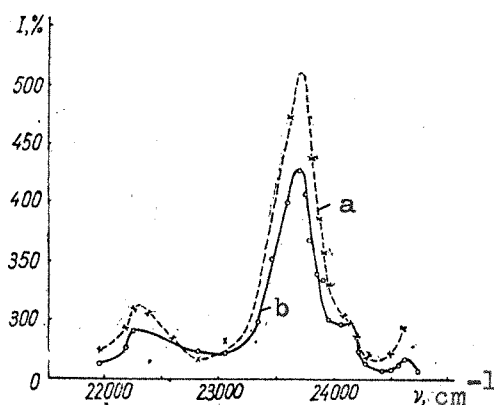


Abbildung 11. Spektralverteilung der Lumineszenzintensität des dotierten Anthrazenkristalls bei zwei verschiedenen Pumpleistungen:

- a -  $H = 10^{20}$  Quanten/sec;
- b -  $H = 10^{18}$  Quanten/sec.

wird, die mit Maximalleistung arbeitet (Spannung 10 kV,  $H \sim 10^{20}$  Quanten/sec), dann tritt eine merkliche Umverteilung der Intensität zwischen den Banden der Gruppen A, B und C, D auf (Abb. 11, Kurve a). Bei schrittweiser Verringerung der Pumpleistung mittels einer Feldmembrane nimmt die Umverteilung ab, und bei  $H \sim 10^{17} - 10^{18}$  Quanten/sec unterscheidet sich das beobachtete Spektrum nicht mehr vom spontanen Lumineszenzspektrum (Abb. 11, Kurve b).

Wenn wir diese Erscheinung interpretieren wollen, müssen wir dabei zuerst festhalten, daß der Aufwand an Kristallanregungen in diesem Fall auf zwei praktisch gleichwertigen Kanälen (Exzitonen- und Verunreinigungslumineszenz) abläuft. Daneben ist der Wirkungsgrad der direkten Absorption des Anregungslichts durch die Verunreinigungsmoleküle unbedeutend (geringe Konzentration), wodurch ihre Lumineszenz eine induzierte Exzitonenlumineszenz ist. Die Intensität der Verunreinigungslumineszenz wird unter diesen Bedingungen durch die Anzahl der Exzitonen in der Zone bestimmt; deshalb kann die relative Schwächung der Intensität der Verunreinigungslumineszenz und ihr Streben nach Sättigung bei großen Pumpleistungen, wenn die Anzahl der Exzitonen in der unteren Zone des Anthrazens groß ist, aus zwei Gründen hervorgerufen werden: entweder durch Totalanregung aller vorhandenen Verunreinigungsmoleküle durch die Exzitonen oder durch Stabilisierung der Konzentration der Exzitonen aufgrund der sich entfaltenden induzierten Vorgänge im

eigenen Kanal. Weiter unten werden diese beiden Möglichkeiten ausführlich analysiert.

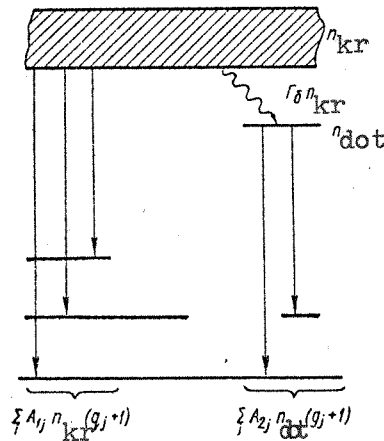


Abbildung 12. Schematische Darstellung der Energieniveaus des dotierten Kristalls.

Wir untersuchen die kinetischen Gleichungen für die Anzahl der Partikel in der Exzitonenzone des Kristalls  $n_{kr}$  und auf dem reinen Elektronenniveau der Verunreinigung  $n_{dot}$  im System der Übergänge, die der oben beschriebenen Niedertemperaturlumineszenz des dotierten Kristalls entsprechen (Abb. 12). Im stationären Zustand ist

$$H - \sum_i A_{i1} n_{kr} (q_i + 1) + \sum_i A_{i1} q_i n_{kr} - \Gamma_6 n_{kr} = 0; \quad (31)$$

$$\Gamma_6 n_{kr} - \sum_i A_{i2} n_{dot} (q_i + 1) + \sum_i A_{i2} q_i n_{dot} = 0. \quad (32)$$

T o t a l a n r e g u n g   a l l e r   V e r u n r e i n i g u n g s -  
z e n t r e n

Die Intensität des Anregungslichts sei so groß, daß die Anzahl der Exzitonen in der Zone des Kristalls mit der Gesamtzahl der Verunreinigungsmoleküle im Kristall vergleichbar ist. Wir nehmen jedoch an, daß der Beitrag der induzierten Übergänge sowohl zur Exzitonen- als auch zur Verunreinigungslumineszenz nicht groß ist ( $q_i < 1$ ). Unter diesen Voraussetzungen stellt das Lumineszenzspektrum des dotierten Kristalls die Summe der Spektren der spontanen Emission von Verunreinigung und Kristall dar. Dann lassen sich die Gleichungen (13) und (32) vereinfachen:

$$H - \frac{n_{kr}}{\tau_1} - \Gamma_0 n_{kr} = 0; \quad (33)$$

$$\Gamma_0 n_{kr} - \frac{n_{dot}}{\tau_2} = 0. \quad (34)$$

Wie vorher bezeichnen hier  $H$  die Intensität des Anregungslichts in Quanten/sec;  $\tau_1$  und  $\tau_2$  die Lebensdauer bezüglich der spontanen Strahlung der Moleküle des Kristalls und der Verunreinigung;  $\Gamma_0$  die Wahrscheinlichkeit des strahlungslosen Übergangs der Exzitonenanregung des Kristalls auf die Verunreinigungsmoleküle. Die angeschriebenen Relationen beziehen sich auf den einfachsten Fall, wenn die Quantenausbeute der Verunreinigungslumineszenz gleich Eins ist.

Auf der Grundlage von Gleichung (33) und (34) kann man zwischen der Exzitonzahl und der Anzahl der angeregten Verunreinigungsmoleküle eine Verbindung herstellen. Für  $\Gamma_0$  verwenden wir einen Ausdruck, der in der Halbleiterkinetik weit verbreitet ist [13]:

$$\Gamma_0 = \beta (n - n_{dot}),$$

wobei  $n$  die Gesamtzahl der Verunreinigungsmoleküle im Kristall bezeichnet;  $\beta$  die Wahrscheinlichkeit des Exzitoneneinfangs durch ein Störstellenzentrum, bezogen auf das gesamte Volumen ( $\beta \sim \frac{\bar{v}\sigma}{V}$ , mit  $\bar{v}$  Wärmegeschwindigkeit des Exzitons,  $\sigma$  Einfangquerschnitt).

Wir lösen das Gleichungssystem (33), (34) bezüglich  $n_{dot}$  und erhalten

$$n_{dot} = \frac{1}{2} \left( \frac{1}{\beta\tau_1} + n + H\tau_2 \right) \left\{ 1 - \sqrt{1 - \frac{4Hn\tau_2}{\left( \frac{1}{\beta\tau_1} + n + H\tau_2 \right)^2}} \right\}. \quad (35)$$

Da  $\left( \frac{1}{\beta\tau_1} + n + H\tau_2 \right)^2 \gg 4Hn\tau_2$ ,

so ist

$$n_{dot} = \frac{Hn\tau_2}{\frac{1}{\beta\tau_1} + n + H\tau_2}. \quad (36)$$

Durch Analyse dieses Ausdruckes lassen sich zwei getrennte Grenzfälle erzielen, die für uns von besonderem Interesse sind; diese lassen sich wiederum analysieren:

1) Wenn  $H\tau_2 \ll \frac{1}{\beta\tau_1} + n$ , d.h.  $H$  gering ist, dann ist

$$n_{dot} = \frac{H\tau_2 n}{\frac{1}{\beta\tau_1} + n};$$

2) Wenn  $H\tau_2 \gg \frac{1}{\beta\tau_1}$ , d.h.  $H$  groß ist, dann

$$n_{dot} \rightarrow n.$$

In diesen beiden Grenzfällen hat der Ausdruck für die Intensität der Verunreinigungslumineszenz die Gestalt:

$$1) \dot{I}_{\text{dot}} = H \frac{n}{\frac{1}{\beta\tau_1} + n},$$

$$2) \dot{I}_{\text{dot}} \rightarrow \frac{n}{\tau_2}.$$

Im dazwischenliegenden Pumpbereich wird die Anzahl der angeregten Verunreinigungsmoleküle durch Formel (36) beschrieben, und die Intensität der Verunreinigungslumineszenz wird so ausgedrückt:

$$3) \dot{I}_{\text{dot}} = H \frac{n}{\frac{1}{\beta\tau_1} + n + H\tau_2}.$$

Bei Analyse der letzten drei Ausdrücke geht hervor, daß die Abhängigkeit der Intensität der Verunreinigungslumineszenz von der Intensität des Anregungslichts bei geringen Anregungen linear ist und bei starken gegen einen konstanten Wert strebt. Dies veranschaulicht Abb. 13, in der die Abhängigkeiten der Intensitäten der Verunreinigungs- und der eigentlichen Lumineszenz vom Pumpen dargestellt sind ( $I_{\text{kr}} = H - \dot{I}_{\text{dot}}$ ).

Wir untersuchen nun die Verhältnisse der Intensitäten der Verunreinigungs- und Exzitonenlumineszenz in diesen drei Pumpbereichen:

1) Bereich der geringen H

$$\xi = \frac{I_{\text{kr}}}{\dot{I}_{\text{dot}}} = \frac{1}{\beta n \tau_1};$$

2) Bereich der starken H

$$\xi = \frac{I_{\text{kr}}}{\dot{I}_{\text{dot}}} = \frac{H\tau_2}{n};$$

3) Bereich der dazwischenliegenden H

$$\xi = \frac{I_{\text{kr}}}{\dot{I}_{\text{dot}}} = \frac{1}{\beta n \tau_1} + \frac{H\tau_2}{n}.$$

In den beiden letzten Fällen hängt das Verhältnis der Intensitäten vom Pumpen ab, was Ursache für die Umverteilung der Intensitäten im Lumineszenzspektrum sein kann.

Bei einem Vergleich mit dem Experiment ist das Verhältnis der beiden Parameter  $\xi$  bei Grenzwerten der Anregungen von Interesse:

$$\frac{\xi_{H_2}}{\xi_{H_1}} = H_2 \tau_2 \beta \tau_1; \quad H_2 \gg H_1.$$

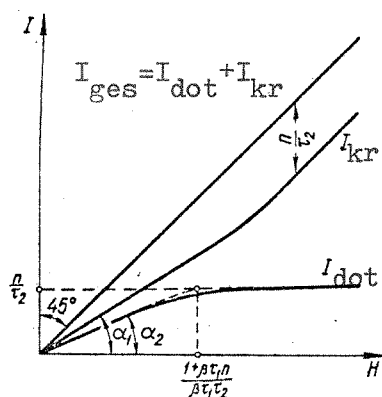


Abbildung 13. Abhängigkeit der Intensität der Exzitonen- und Verunreinigungslumineszenz des dotierten Kristalls von der Pumpleistung ( $\text{tg } \alpha_1 = \frac{1}{\beta\tau_1\bar{v}}$ ;  $\text{tg } \alpha_2 = \frac{\beta\tau_1\bar{v}}{1+\beta\tau_1\bar{v}}$ ; die Kur-

ven sind für den Fall  $\frac{I_{\text{dot}}}{I_{\text{dot}}} = \frac{\text{tg } \alpha_1}{\text{tg } \alpha_2} = 3$  konstruiert).

Es muß hinzugefügt werden, daß diese Relation nicht von der Anzahl der Verunreinigungsmoleküle abhängt, sondern völlig durch die Größe des Pumpens bestimmt wird.

Am Schluß dieses Abschnitts wollen wir uns noch mit der Bewertung der Parameter befassen, die zu den oben genannten Relationen gehören. Bei geringen Anregungen wird das Verhältnis der Intensitäten der Exzitonen- und der Verunreinigungslumineszenz durch das Verhältnis der Wahrscheinlichkeiten des strahlenden und des strahlungslosen Untergangs des Exzitons bestimmt. Die experimentelle Größe dieser Beziehung ist ungefähr 3. Dies bedeutet bei  $\tau_1 = 10^{-8}$  sec (siehe Tab. 2), daß  $1/\beta\bar{v} \sim \sim 3,10^{-8}$  sec ist. Die Größe  $\beta$  kann man schätzen, wenn man für  $\bar{v}$  einen Wert von etwa  $10^5$  cm/sec und für  $\sigma \sim 10^{-14} - 10^{-15}$  cm<sup>2</sup> annimmt. Hieraus erhalten wir für  $\beta$  einen Wert von etwa  $10^{-2} - 10^{-3}$  sec<sup>-1</sup>. Dann beträgt die Anzahl der Verunreinigungsmoleküle in der untersuchten Probe des dotierten Kristalls ca.  $10^{10} - 10^{11}$  oder  $10^{-6} - 10^{-5}$  von der Molekülgesamtzahl. Die Abschätzungen der Größe  $H\tau_2$  bei äußerst grossen Anregungsleistungen ergeben ebenfalls etwa  $10^{11}$ . Wenn die Konzentration der Verunreinigung  $10^{-5}$  mol/mol nicht übersteigt, so kann eine Verzögerung des Intensitätsanstiegs der Verunreinigungslumineszenz - verglichen mit der Exzitonenlumineszenz - aufgrund der vorher genannten dadurch erklärt werden, daß praktisch alle Verunreinigungsmoleküle angeregt werden. In dem von uns untersuchten Fall ist die Größe der

Verunreinigungskonzentration nicht bekannt. Wir untersuchen deshalb noch eine andere Möglichkeit, mit der die beobachtete Umverteilung erklärt werden könnte.

I n d u z i e r t e   E x z i t o n e n s t r a h l u n g   u n d  
V e r u n r e i n i g u n g s l u m i n e s z e n z

Die Größe des Pumpens sei so hoch, daß die Lebensdauer eines Photons auf einer guten Mode im Kristallfilm mit der spontanen Emissionszeit des Photons vergleichbar ist, welche für ein Exziton berechnet ist. Unter diesen Bedingungen kommt die Anzahl der Exzitonen der maximal erreichbaren Zahl nahe (siehe oben), und die Exzitonlumineszenz, die an der Kante austritt, wird hyperlinear, während die Intensität des Verunreinigungsleuchtens unter der Annahme, daß es spontan ist, der Anzahl der Exzitonen im Kristall streng folgt. Dies führt zu einem Rückstand der Verunreinigungslumineszenz, der auch noch durch eine Verminderung der freien Weglänge des Exzitons aufgrund kürzerer Lebensdauer im Anregungszustand vergrößert wird.

Die Gleichungen (31) und (32), die einen Zusammenhang herstellen zwischen der Anzahl der Exzitonen und der angeregten Verunreinigungsmoleküle, schreiben wir jetzt so um, daß sie zur Berechnung dieser Größen unter Berücksichtigung der induzierten Übergänge geeignet sind:

$$n_{kr} \left[ \Gamma_0 + A \sum_l^k M_l^I S + \sum_l^{k_1} M_l^I \frac{\alpha_{gut}}{n_{il}} + A \sum_l^{k_2} M_l^I \frac{\alpha_{gut}}{n_{gut}^I A n_{kr}} \right] = H; \quad (37)$$

$$\Gamma_0 n_{kr} - \frac{n_{dot}}{\tau_2} = 0. \quad (38)$$

Die erste Gleichung haben wir schon vorher ermittelt (siehe (28)); beim Anschreiben der zweiten Gleichung haben wir angenommen, daß das Verunreinigungsleuchten spontan ist. Die Größe  $\Gamma_0 = \beta n$  wurde von uns bereits geschätzt und für die Berechnung wurde ihr Wert  $\sim 3 \cdot 10^7 \text{ sec}^{-1}$  verwendet; die Werte aller übrigen Koeffizienten stammen aus Tab. 1 und 2. Die somit bestimmten Zahlen  $n_{kr}$  und  $n_{dot}$  sind gleich  $2,5 \cdot 10^{11}$ . Wenn wir den ermittelten Wert  $n_{dot}$  verwenden, können wir die Lebensdauer des Photons der dotierten Kantenlumineszenz bezüglich der spontanen Strahlung abschätzen. Wie die Schätzungen zeigen, ist sie viel größer als die Lebensdauer des Photons im System; dadurch wird die oben gemachte Annahme, die Verunreinigungsstrahlung sei spontan, bestätigt.

Die Anzahl der Photonen, die in die l-te Spektralbande der Kantenlumineszenz emittiert werden, wird durch Formel (29a) ausgedrückt. Dann sieht das Verhältnis der Intensitäten der beiden gewählten Banden der eigentlichen (l) und der Verunreinigungslumineszenz (l<sub>1</sub>) so aus:

$$\xi_{ll_1} = \frac{M_{gut}^{l_{kr}}}{M_{s}^{l_{dot}}} \cdot \frac{\alpha_{gut} \cdot A_{l_{kr}}}{\alpha_{gut} - A_{l_{kr}}}$$

Wenn das Pumpen gering ist, dann ist

$$\xi_{ll_1} = \frac{M_{gut}^{l_{kr}}}{M_{gut}^{l_{dot}}}$$

Bei großen Anregungen ist

$$\xi_{ll_1} = \frac{M_{gut}^{l_{kr}}}{M_{gut}^{l_{dot}}} \cdot \frac{\alpha_{gut}}{\alpha_{gut} - A_{l_{kr}}}$$

Bei zwei verschiedenen Pumpwerten wird das Verhältnis der Parameter  $\xi_{ll_1}$ , das den Grad der Spektralumverteilung kennzeichnet, folgendermaßen ausgedrückt:

$$\chi = \frac{\xi_{ll_1}^{H_2}}{\xi_{ll_1}^{H_1}} = \frac{\alpha_{gut}}{\alpha_{gut} - A_{l_{kr}}}; \quad (39)$$

für den untersuchten Fall ist dieses Verhältnis gleich 3,8. Die Relation (39) stimmt völlig mit Ausdruck (30a) überein. Dies ist kein Zufall, denn die Verunreinigungslumineszenz kann nur im spontanen Zustand untersucht werden. Im Experiment wurden die Intensitäten der Banden des reinen Elektronenübergangs in das Verunreinigungsmolekül und des Elektroschwingungsübergangs 0-0 - 1 400 der Exzitonenlumineszenz verglichen (siehe Abb. 11). Der im Versuch ermittelte Wert für den Grad der Umverteilung, der gleich 2 ist, kann als gute Bestätigung der durchgeführten Berechnung angesehen werden.

Da jedoch genaue Angaben über die Größe der Verunreinigungskonzentration fehlen, kann die Möglichkeit nicht ausgeschlossen werden, daß in dem beobachteten Experiment gleichzeitig beide erörterten Vorgänge auftreten.

### Schluß

Molekülkristalle mit entwickelten Lumineszenzlinienspektren sind für die Herstellung von Vielfrequenzquantengeneratoren von großem Interesse [14, 15]. Deshalb erscheint es uns sehr aktuell zu sein, ihre Lumineszenzbesonderheiten bei starken Anregungen zu untersuchen und Verfahren

zu finden, mit denen die induzierten Vorgänge aufgedeckt werden können; dem Zweck war auch diese Arbeit gewidmet.

Es darf angenommen werden, daß sich durch weiteres Studium der Lumineszenz von Molekülkristallen und Verunreinigungssystemen auf dieser Grundlage feststellen läßt, ob die geltenden theoretischen Vorstellungen auf die zu untersuchenden Erscheinungen anwendbar sind; es müssen auch praktische Wege zur Herstellung von Quantenlichtgeneratoren neuer Art aufgezeigt werden. Haupthindernis bleibt offenbar bislang noch der hohe Absorptionsfaktor dieser Substanzen und die Notwendigkeit, Tieftemperaturen zu verwenden.

#### L i t e r a t u r

1. Машкевич В. С.—УФЖ, 1963, 8, 915, 1035.

Maškević, V.S.: Pro ponjattja vid'ëmного poglinannja ta vid'ëmnoï temperaturi.

In: Ukrainiskij fizičeskij žurnal. Kiev, 8 (1963), Nr 8, S. 915 - 918.  
[On the Concept of Negative Absorption and Negative Temperature, ukrain.]

Maškević, V.S.: Nelinijni optični vlastivosti tririvnevoï sistemi v rezonatori z bagat'ma modami.

In: Ukrainiskij fizičeskij žurnal. Kiev, 8 (1963), Nr 9, S. 1035 bis 1038.

[Nonlinear Optical Properties of a Three-level System in a Resonator with Many Modes, ukrain.]

2. Буряковский Г. Ю., Машкевич В. С.—УФЖ, 1964, 9, 14.

Burjakovskij, G.Ju., Maškević, V.S.: Teorija stacionarnogo viprominjuvannja odnoridnoï sistemi v rezonatori z bagat'ma modami. 1. Zaležnist' viprominjuvannja vid pídkački.

In: Ukrainiskij fizičeskij žurnal. Kiev, 9 (1964), Nr 1, S. 14 - 25.  
[Theory of Stationary Radiation of a Homogeneous System in a Multimode Resonator. 1. Dependence of Radiation on the Swing, ukrain.]

3. Буряковский Г. Ю., Машкевич В. С.—УФЖ (в печати).

Burjakovskij, G.Ju., Maškević, V.S.: Teorija stacionarnogo viprominjuvannja odnoridnoï sistemi v rezonatori z bagat'ma modami. 2. Optimal'ni umovi lazernogo viprominjuvannja.

In: Ukrainiskij fizičeskij žurnal. Kiev, 10 (1965), Nr 9, S. 991 - 1006.  
[Theory of Stationary Radiation of a Homogeneous System in a Resonator with Many Modes. 2. Optimal Conditions of Laser Emission, ukrain.]

4. Машкевич В. С. Основы кинетики излучения лазеров. Изд-во «Наукова думка», К., 1966.

Maškević, Vladimir Stefanović:

Osnovy kinetiki izlučeniya lazerov.

Kiev: Verlag "Naukova dumka", 1966.

Engl.: Mashkevich, Vladimir Stefanovich:

Laser Kinetics. Transl. by Scripta Technica. Transl.ed.: S. Chomet.

New York: American Elsevier Publ.Co., 1967.



5. Heavens O. S.— Appl. Opt. Suppl., 1962, 1, 1.  
(русский перевод, Изд-во «Мир», М., 1964).

Heavens, O.S.: Optical Masers.

In: Applied Optics. Supplement. Easton, Pa., 1 (1962), S. 1 - 23.

Russ.: Chivens, O.S.: Optičeskie mazery.

In: Zarubežnaja radioelektronika. Moskva, 1964, Nr 1, S. 90 - 129.

6. Бродин М. С., Марисова С. В.— Оптика и спектроскопия  
(в печати).

Brodin, M.S., Marisova, S.V.: O sile oscilljatora pervogo ėlektronnogo perechoda kristalla antracena.

In: Optika i spektroskopija. Moskva, 19 (1965), Nr 2, S. 235 - 238.

Engl.: The Oscillator Strength of the First Electronic Transition of Crystalline Anthrazene.

In: Optics and Spectroscopy. New York, 19 (1965), Nr 2, S. 132 - 133.

7. Галанин М. Д., Чижи́кова З. А.— Оптика и спектроскопия,  
1961, 11, 271.

Galanin, M.D., Čižikova, Z.A.: Dlitel'nost' foto- i radioljuminescencii kristallov antracena i naftalina.

In: Optika i spektroskopija. Moskva, 11 (1961), Nr 1, S. 271 - 273.

Engl.: Duration of the Photo- and Radioluminescence of Anthrazene and Naphthalene Crystals.

In: Optics and Spectroscopy. New York, 11 (1961), Nr 2, S. 143 - 144.

8. Бродин М. С., Прихотько А. Ф.— В кн.: Материалы X Все-  
союзного совещания по спектроскопии, 1, 16, 1957.

Brodin, M.S., Prichot'ko, A.F.: Pogloščenie i dispersija sveta v neko-  
torych molekuljarnych kristallach.

In Sammelband: Fizičeskij sbornik. L'vovskij universitet (Materialy X Vsesojuznogo soveščanija po spektroskopii). L'vov, 3 (8)(1957), S. 16 bis 21.

⟨Lichtabsorption und -streuung in einigen Molekülkristallen, russ.⟩

9. Baker R. M.— Electronics, 1963, 36, 5.

Baker, R.M.: Measuring Laser Output with Rat's Nest Calorimeter.

In: Electronics. New York, 36 (1963), Februar Nr 1, S. 36 - 38.

10. Броуде В. Л., Шека Е. Ф., Шпак М. Т.— Оптика и спек-  
троскопия, сб. «Люминесценция», 110, 1963.

Broude, V.L., Šeka, E.F., Špak, M.T.: Elektronno-kolebatel'naja struktura ėksitonnoj ljuminescencii kristalla naftalina.

In Sammelband: Optika i spektroskopija. Moskva/Leningrad, 1963, Band 1 ("Ljuminescencija"), S. 102 - 110.

⟨Elektronen-Schwingungsstruktur der Exzitonenlumineszenz des Naphthalin-kristalls, russ.⟩

11. Броуде В. Л. и др.— Прикладная спектроскопия, 1964, 1, 4.

Broude, V.L., Klimuševa, G.V., Maškevič, V.S., Onoprienko, M.I., Soskin, M.S., Šeka, E.F.: Ljuminescencija tonkich plenok antracena pri inten-  
sivnyh vozbuždenijach.

In: Žurnal prikladnoj spektroskopii. Minsk, 1 (1964), Nr 4, S. 352 - 356.

⟨Lumineszenz dünner Anthrazen-Filme bei intensiven Anregungen, russ.⟩

12. Шпак М. Т., Шеремет Н. И.— Оптика и спектроскопия, 1963,  
14, 816; 1964, 17, 694.

Špak, M.T., Šeremet, N.I.: O prirode ljuminescencii kristalličeskogo antracena pri nizkych temperaturach.

In: Optika i spektroskopija. Moskva, 14 (1963), Nr 6, S. 816 - 819.

Engl.: The Nature of the Luminescence of Crystalline Anthrazene at Low Temperatures.

In: Optics and Spectroscopy. New York, 14 (1963), Nr 6, S. 433 - 435.

Spak, M.T., Šeremet, N.I.: Ljuminescencija kristalličeskogo antracena.

In: Optika i spektroskopija. Moskva, 17 (1964), Nr 5, S. 694 - 704.

Engl.: Luminescence of Crystalline Anthrazene.

In: Optics and Spectroscopy. New York, 17 (1964), Nr 5, S. 374 - 379.

13. Фок М. В. Введение в кинетику люминесценции кристаллофосфоров.  
«Наука», М., 1964.

Fok, M.V.:

Vvedenie v kinetiku ljuminescencii kristallofosforov.

Moskva: Verlag "Nauka", 1964.

<Einführung in die Lumineszenzkinetik der Phosphorkristalle, russ.>

14. Броуде В. Л. и др.— ФТТ, 1962, 4, 2976.

Broude, V.L., Maškevič, V.S., Prichot'ko, A.F., Prokopjuk, N.F.,  
Soskin, M.S.: O vozmožnosti polučeniya inducirovannogo izlučeniya v sistemach s elektronno-kolebatel'nymi urovnjami.

In: Fizika tverdogo tela. Moskva, 4 (1962), Nr 10, S. 2976 - 2978.

Engl.: Possibility of Obtaining Stimulated Emission from Systems with Electron-Vibration Levels.

In: Soviet Physics. Solid State. New York, 4 (1963), Nr 10, S. 2182 bis 2183.

15. Броуде В. Л., Соскин М. С. см. настоящий сборник.

Broude, V.L., Soskin, M.S.: Optičeskij kvantovoj generator s perestraivaemoj častotoj.

In Sammelband: Kvantovaja elektronika. Kiev: Verlag "Naukova dumka", 1966, S. 123 - 136.

<Ein optischer Maser mit abstimmbarer Frequenz, russ.>

Physikalisches Institut der  
Akademie der Wissenschaften  
der Ukrainischen Sozialisti-  
schen Sowjetrepublik

Stuttgart, den 27. Oktober 1978

übersetzt von

*Ottmar Pertschi*

(Ottmar Pertschi)

Dipl.-Übersetzer