

УДК 538.913—405

НЕРАВНОВЕСНЫЕ ФОНОНЫ В МНОГОКВАНТОВЫХ БЕЗЫЗЛУЧАТЕЛЬНЫХ ПРОЦЕССАХ

Ю. Е. Перлин, Г. А. Шехтман

Рассматривается система неоднородно-уширенных двухуровневых локальных центров, взаимодействующих с сильным электромагнитным полем, локальными колебаниями и кристаллическими фононами. В предельной ситуации, включающей сильную накачку и низкую температуру фоновго термостата, получено решение уравнений движения для матрицы плотности, найдено выражение для среднего числа квантов локальных колебаний. Рассчитаны зависимости населенностей электронных и колебательных уровней от интенсивности накачки.

Оптические и безызлучательные многоквантовые переходы в локальных центрах (ЛЦ) при воздействии на них сильного излучения рассматривались в работах [1, 2]. В качестве модели выбирались ЛЦ, взаимодействующие с локальными колебаниями, и допускалась возможность введения эффективных температур для электронной и колебательной подсистем. Было показано, что при слабой связи локальных колебаний с кристаллическими фононами в результате многоквантовых безызлучательных переходов происходит разогрев колебательной подсистемы до температуры, превосходящей равновесную. Эта эффективная температура рассчитывалась методом неравновесного статистического оператора. В настоящей работе, так же как и в [1], рассматривается система двухуровневых ЛЦ, взаимодействующих с сильным электромагнитным полем, локальными колебаниями и кристаллическими фононами. Уровни ЛЦ и частоты локальных колебаний предполагаются неоднородно-уширенными. Взаимодействие с акустическими колебаниями служит возмущением, промотирующим безызлучательные переходы $1 \rightleftharpoons 2$ между электронными уровнями. Локальные колебания или бездисперсные оптические фононы играют роль акцептирующей моды, взаимодействие с ними учитывается в адиабатическом приближении. Таким образом, гамильтониан системы имеет вид

$$H = H_0 + H_p + v + V(t), \quad (1)$$

где H_0 — гамильтониан динамической подсистемы (ЛЦ плюс локальные колебания), H_p — гамильтониан диссипативной подсистемы (кристаллические фононы), v — оператор взаимодействия между ними

$$v = v_{Lp} + v_{ep}. \quad (2)$$

Здесь v_{Lp} — оператор взаимодействия локальных колебаний с кристаллическими,

$$v_{ep} = \sum_{\mathbf{x}} v_{\mathbf{x}} (a_{\mathbf{x}}^+ + a_{-\mathbf{x}}) \quad (3)$$

— оператор взаимодействия ЛЦ с акустическими колебаниями ($a_{\mathbf{x}}^+$, $a_{\mathbf{x}}$ — операторы рождения и уничтожения фонона с волновым вектором \mathbf{x}). Предполагается, что существенно взаимодействие лишь с одной из ветвей акустических фононов. $V(t)$ — оператор взаимодействия динамической подсистемы с внешним электромагнитным полем.

Динамическая подсистема может быть описана с помощью матрицы плотности $P_{\alpha\beta}$, временное поведение которой находится из соответствующих кинетических уравнений [3]. В работах [4, 5] эти уравнения были обобщены на случай нарушения теплового равновесия в диссипативной подсистеме. В [5, 6] они использовались для исследования возможности генерации фононов в трехуровневой системе. Кинетические уравнения для диагональных элементов матрицы плотности имеют вид [3]

$$\dot{P}_{\alpha\alpha} + \frac{i}{\hbar} [V(t), P]_{\alpha\alpha} = \sum_{\beta} (W_{\beta\alpha} P_{\beta\beta} - W_{\alpha\beta} P_{\alpha\alpha}), \quad (4)$$

где $W_{\alpha\beta}$ — вероятность перехода динамической подсистемы из состояния α в состояние β ($W_{\alpha}(r, Q) = \psi_{\alpha}(r) \Phi_{\alpha}(Q - Q_{\alpha})$, где $i = 1, 2$; $\Phi_{\alpha}(Q - Q_{\alpha})$ — волновая функция гармонического осциллятора). Учитывая в (4) всевозможные переходы между состояниями динамической подсистемы, получаем для $\alpha = (2, n)$

$$\begin{aligned} \dot{P}_{2n, 2n} + \frac{i}{\hbar} [V(t), P]_{2n, 2n} = & W_{12}(n + \nu) P_{1n+\nu, 1n+\nu} + n\omega'_1 P_{2n-1, 2n-1} + \\ & + (n+1)\omega_1 P_{2n+1, 2n+1} - W_{21}(n) P_{2n, 2n} - (n\omega_1 + (n+1)\omega'_1) P_{2n, 2n}. \end{aligned} \quad (5)$$

Здесь

$$W_{21}(n) \equiv W_{2n, 1n+\nu} = \frac{2\pi}{\hbar^2} \sum_{\mathbf{x}} |v_{\mathbf{x}12}|^2 S_{n, n+\nu}^2(p_{\mathbf{x}} + 1) \delta(\Omega - \nu\omega_0 - \omega_{\mathbf{x}}), \quad (6)$$

$$S_{nn'} = \int \Phi_n(Q - Q_1) \Phi_{n'}(Q - Q_2) dQ, \quad (7)$$

$p_{\mathbf{x}}$ — число акустических фононов с частотой $\omega_{\mathbf{x}}$; $\hbar\Omega = \mathcal{J}_2 - \mathcal{J}_1$ (\mathcal{J}_i — энергия минимума адиабатического потенциала); ω_0 — частота локальных колебаний; $\nu = [\Omega/\omega_0]$ ($[x]$ — целая часть x); предполагается, что $\omega_{\mathbf{x}} < \omega_0$; ω_1 — феноменологически введенная константа, учитывающая процессы распада кванта локальных колебаний на кристаллические фононы; ω'_1 — константа, соответствующая обратным процессам; $\omega_1/\omega'_1 = \exp \beta$ ($\beta = \hbar\omega_0/kT$, T — температура фононного термостата).

Пренебрегая неадиабатическим взаимодействием электронов ЛЦ с локальными колебаниями, применим приближенное расщепление системы динамических уравнений

$$P_{i'n, i'n} = \sigma_i \rho_n, \quad (8)$$

где σ_i, ρ_n имеют смысл населенностей электронных и колебательных уровней соответственно и

$$\sigma_1 + \sigma_2 = 1, \quad \sum_n \rho_n = 1. \quad (9)$$

Суммируя (5) с аналогичным уравнением для $\alpha = (1, n)$ и учитывая (8), (9), получаем кинетические уравнения для ρ_n

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_n = & -W_{12}(n) \sigma_1 \rho_n + W_{21}(n - \nu) \sigma_2 \rho_{n-\nu} - W_{21}(n) \sigma_2 \rho_n + W_{12}(n + \nu) \sigma_1 \rho_{n+\nu} - \\ & - n\omega_1 \rho_n - (n+1)\omega'_1 \rho_n + n\omega'_1 \rho_{n-1} + (n+1)\omega_1 \rho_{n+1}, \quad n \geq \nu. \end{aligned} \quad (10)$$

При $n < \nu$ в правой части (10) первые два члена отсутствуют. При выводе (10) предполагалось, что ЛЦ взаимодействуют с монохроматическим излучением с частотой Ω_0 и константа тепловыделения достаточно мала, так что переходы под действием внешнего поля происходят без изменения числа квантов локальных колебаний. Из (10) следует кинетическое уравнение для среднего числа колебательных квантов \bar{n}

$$\dot{\bar{n}} = \sum_n n \dot{\rho}_n = \nu \sum_n \rho_n W_{21}(n) \sigma_2 - \nu \sum_n \rho_n W_{12}(n) \sigma_1 - \bar{\omega}_1 (\bar{n} - \bar{n}_0), \quad (11)$$

где

$$\omega_1 = \omega_1 (1 - e^{-\beta}), \quad \bar{n}_0 = (e^{\beta} - 1)^{-1}.$$

Величина $\bar{W}_{21} = \sum_n \rho_n W_{21}(n)$ есть усредненная по колебательным состояниям вероятность безызлучательного перехода $2 \rightarrow 1$. В случае термодинамического равновесия

$$\rho_n = \exp(-\beta n) / z, \quad z = \sum_n \exp(-\beta n)$$

и учитывая, что

$$S_{\bar{n}, n+\nu}^2 = \frac{n!}{(n+\nu)!} \left[L_n^{\nu} \left(\frac{a}{2} \right) \right]^2 e^{-a/2} \left(\frac{a}{2} \right)^{\nu}, \quad (12)$$

где $L_n^{\nu}(z)$ — обобщенный полином Лагерра, $a = (Q_1 - Q_2)^2$ — константа тепловыделения, получаем для \bar{W}_{21} известное выражение [7]

$$\bar{W}_{21} \sim e^{-a/2} \exp\left(-\frac{a}{e^{\beta} - 1}\right) e^{\nu\beta/2} I_{\nu}\left(\frac{a}{2 \operatorname{sh}(\beta/2)}\right), \quad (13)$$

где $I_{\nu}(z)$ — модифицированная функция Бесселя.

Суммируя (5) по n и учитывая (8), (9), получаем кинетическое уравнение для $\dot{\sigma}_2$

$$\dot{\sigma}_2 + \frac{i}{\hbar} \sum_n [V(t), P]_{1n, 2n} = \sigma_1 \bar{W}_{12} - \sigma_2 \bar{W}_{21}. \quad (14)$$

Недиагональные элементы матрицы плотности подчиняются следующим уравнениям движения [3]:

$$\begin{aligned} \dot{P}_{1n, 2n} + \frac{i}{\hbar} [H_0 + V(t), P]_{1n, 2n} = & -\frac{1}{2} (W_{12}(n) + W_{21}(n) + \\ & + 2(n\omega_1 + (n+1)\omega'_1) P_{1n, 2n} + \\ & + (n+1)\omega_1 P_{1, n+1, 2, n+1} + \omega'_1 n P_{1, n-1, 2, n-1}. \end{aligned} \quad (15)$$

Рассмотрим стационарный процесс, когда $\dot{\sigma}_2 = \dot{\rho}_n = 0$. В предельном случае сильной накачки, когда можно предположить, что $W_{21}(n) \gg (n+1)\omega_1$, используя (15), (14) и (11), получаем

$$\begin{aligned} \frac{2|V|^2}{\hbar^2} (\sigma_{1j} - \sigma_{2j}) \sum_n \rho_{nj} S_{\bar{n}n}^2 \frac{1/2(W_{12j}(n) + W_{21j}(n))}{(Q_0 - Q_j)^2 + 1/4(W_{12j}(n) + W_{21j}(n))^2} - \\ - \frac{\bar{\omega}_1}{\nu} (\bar{n}_j - \bar{n}_{0j}) = 0. \end{aligned} \quad (16)$$

Здесь введен индекс центра j , тем самым учитываются разброс частот чисто электронных переходов и разброс частот локальных колебаний, приводящий, как будет показано ниже, к существенному уширению спектра неравновесных акустических фононов; $|V| = |V_{12}| = |V_{21}|$,

$$W_{21j}(n) = \frac{2\pi}{\hbar^2} \sum_x |\nu_{x12}|^2 S_{\bar{n}, n+\nu}^2 (p_x + 1) \delta(Q_j - \nu\omega_{0j} - \omega_x), \quad (17)$$

ν полагаем одинаковым для всех ЛЦ. Число акустических фононов p_x удовлетворяет кинетическому уравнению

$$\begin{aligned} \dot{p}_x = \frac{2\pi}{\hbar^2} |\nu_{x12}|^2 \sum_j \left\{ (p_x + 1) \sigma_{2j} \sum_n \rho_{nj} S_{\bar{n}, n+\nu}^2 - p_x \sigma_{1j} \sum_n \rho_{nj} S_{\bar{n}, n-\nu}^2 \right\} \times \\ \times \delta(Q_j - \nu\omega_{0j} - \omega_x) - \omega_x (p_x - p_x^0). \end{aligned} \quad (18)$$

Последний член в (18) соответствует изменению p_x , связанному с ангармонизмом; p_x^0 — равновесное значение p_x .

Для вывода (16), (18) использованы кинетические уравнения для матрицы плотности, полученные в [4] при условии

$$\omega^* \gg W_{21}, \quad \delta \gg W_{21}, \quad (19)$$

где $\hbar\omega^*$, $\hbar\delta$ — некоторые эффективные интервалы изменения энергии в диссипативной и динамической подсистеме соответственно. В данном случае ω^* имеет смысл ширины фононного распределения, а δ характеризует величину неоднородного уширения уровней динамической подсистемы. Условия (19) означают, что при переходе в (17) и (18) от суммирования к интегрированию по частотам области существенного изменения подынтегральных функций и области интегрирования должны быть много больше W_{21} .

Рассмотрим два предельных случая.

1. Разброс частот Ω_j центров значительно превышает разброс частот локальных колебаний и определяет величину неоднородного уширения δ уровней динамической подсистемы, т. е. можно предположить, что $\omega_0 \approx \bar{\omega}_0$. Из (16) видно, что наиболее эффективно взаимодействуют с электромагнитным полем те центры, для которых $|\Omega_0 - \Omega| < W_{21}$, т. е., как следует из (16)—(18), получаемое фононное распределение имеет ширину порядка W_{21} . Следовательно, в этом случае не выполняется первое из условий (19) и исходные кинетические уравнения не применимы. Неприменимость этих уравнений обусловлена тем, что они получены в первом порядке нестационарной теории возмущений (в них фигурируют вероятности перехода, содержащие δ -функции). Для исследования узких фононных распределений в работах [8-11] использованы более общие уравнения, основанные на диаграммной технике Келдыша.

2. Разброс частот Ω_j мал, и величина неоднородного уширения определяется разбросом частот локальных колебаний, т. е. $\Omega_j \approx \bar{\Omega}$, а распределение частот ω_0 описывается функцией $g(\omega_0 - \bar{\omega}_0)$ ($\bar{\omega}_0$ — центр распределения) с заданной шириной δ

$$\int g(\omega - \bar{\omega}_0) d\omega = 1. \quad (20)$$

В этом случае практически все центры возбуждаются электромагнитным полем с частотой $\Omega_0 \approx \bar{\Omega}$ и вид функции распределения акустических фононов $p(\omega)$ определяется формой и шириной функции g . Фононное распределение имеет ширину порядка $\nu\delta$, и условия (19) выполняются, если $\nu\delta \gg W_{21}$. В роли акцептирующих колебательных мод могут быть учтены не кванты локальных колебаний, а оптические фононы. В этом случае условие применимости сводится к тому, что дисперсия оптических фононов должна превышать W_{21} . Переходя в (18) к интегрированию по ω_0 и подставляя в (16) $\omega_0 = (\bar{\Omega} - \omega)/\nu$, получаем

$$\frac{4|V|^2}{\hbar^2} (\sigma_1(\omega) - \sigma_2(\omega)) \sum_n \frac{\rho_n(\omega) S_{2n}^2}{W_{12n}(\omega) + W_{21n}(\omega)} - \frac{\bar{\omega}_1}{\nu} (\bar{n}(\omega) - \bar{n}_0(\omega)) = 0, \quad (21)$$

$$\gamma(\omega) \left\{ (p(\omega) + 1) \sigma_2(\omega) \sum_n \rho_n(\omega) S_{n, n+\nu}^2 - p(\omega) \sigma_1(\omega) \sum_n \rho_n(\omega) S_{n, n-\nu}^2 \right\} - w_2(\omega) (p(\omega) - p_0(\omega)) = 0. \quad (22)$$

Здесь

$$W_{21n}(\omega) = S_{n, n+\nu}^2 \Gamma(\omega) (p(\omega) + 1), \quad (23)$$

$$\Gamma(\omega) = \frac{2\pi}{\hbar^2} \sum_x |v_{x12}|^2 \delta(\omega - \omega_x), \quad (24)$$

$$\gamma(\omega) = \frac{2\pi}{\hbar^2} |v_{12}(\omega)|^2 N_c \nu^{-1} g\left(\frac{\bar{\omega} - \omega}{\nu}\right), \quad (25)$$

N_c — число ЛЦ в кристалле, $\bar{\omega} = \bar{\Omega} - \nu\bar{\omega}_0$.

Система уравнений (10), (21), (22) позволяет в принципе получить путем численного решения вид функции распределения неравновесных

акустических фононов p (ω) вблизи ее максимума. Эдесь мы ограничимся решением задачи лишь для фиксированной частоты $\omega = \bar{\omega}$. Переобозначим в дальнейшем $p(\bar{\omega}) = p$, $\Gamma(\bar{\omega}) = \Gamma$, $\gamma(\bar{\omega}) = \gamma$ и т. д. Из (11) и (22) получаем связь между \bar{n} и p

$$p - p_0 = \frac{\bar{\omega}_1}{\omega_2} \frac{\gamma}{\sqrt{\Gamma}} (\bar{n} - \bar{n}_0). \quad (26)$$

Предположим, что температура кристалла достаточно мала, так что можно пренебречь \bar{n}_0 и p_0 по сравнению с \bar{n} и p . Используя (9), (10), можно показать, что при условии

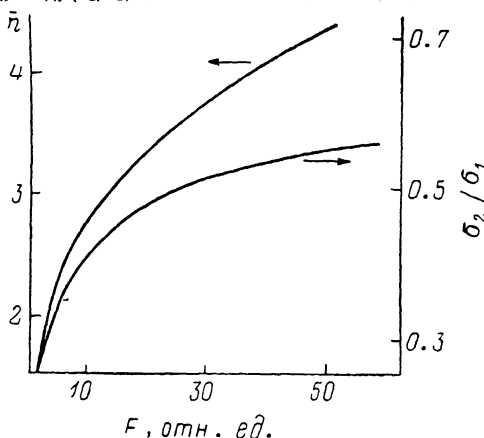
$$(n + \nu) \omega_1 / \sigma_1 W_{21n} \ll 1 \quad (27)$$

населенности колебательных уровней удовлетворяют соотношению

$$p_{n+\nu} / p_n = \sigma_2 (p + 1) / \sigma_1 p \approx \sigma_2 / \sigma_1, \quad (28)$$

т. е.

$$p_{\nu m+k} = p_k (\sigma_2 / \sigma_1)^m, \quad m = 0, 1, \dots, k = 0, 1, \dots, \nu - 1, \quad (29)$$



Зависимость \bar{n} и σ_2/σ_1 от интенсивности накачки.

где

$$p_k = p_0 \frac{\nu \sigma_2}{\nu \sigma_2 + k(\sigma_1 - \sigma_2)}, \quad (30)$$

$$p_0 = \frac{(\sigma_1 - \sigma_2)^2}{\nu \sigma_2 \sigma_1} \left[\psi \left(\frac{\nu \sigma_1}{\sigma_1 - \sigma_2} \right) - \psi \left(\frac{\nu \sigma_2}{\sigma_1 - \sigma_2} \right) \right]^{-1}. \quad (31)$$

Здесь $\psi(z)$ — логарифмическая производная гамма-функции. Из (28) следует, что только для одноквантовых переходов можно ввести эффективную температуру, описывающую квазиравновесное распределение в колебательной подсистеме. С учетом (29)—(31) имеем

$$\bar{n} = \nu \left[\psi \left(\frac{\nu \sigma_1}{\sigma_1 - \sigma_2} \right) - \psi \left(\frac{\nu \sigma_2}{\sigma_1 - \sigma_2} \right) \right]^{-1}. \quad (32)$$

Если (27) выполняется для n в интервале от 0 до некоторого n' , то следует добавить условие

$$(\sigma_2/\sigma_1)^m \ll 1, \quad (33)$$

где $m = [n'/\nu]$. Подставляя (23), (26), (29)—(32) в (21), получаем уравнение, связывающее интенсивность внешнего электромагнитного поля и населенности электронных уровней. Полученные решения справедливы лишь для тех значений интенсивности накачки, для которых выполняются условия (27), (33).

На рисунке представлены зависимости σ_2/σ_1 и \bar{n} от накачки F ($F = 4 |V|^2 \omega_2 \nu^2 / \hbar^2 \omega_1^2 \gamma$) для следующих значений параметров: $\nu = 3$, $a = 0.4$. С увеличением F σ_2/σ_1 и \bar{n} растут, так что $\sigma_2/\sigma_1 \rightarrow 1$ при $|V|^2 \rightarrow \infty$.

Таким образом, в условиях сильной накачки возникает нелинейная зависимость населенностей электронных и колебательных уровней от интенсивности накачивающего электромагнитного поля. Вероятность многоквантовой безызлучательной релаксации, вычисляемая по формуле

$$\bar{W}_{21} = \sum_n \rho_n S_n^2, \quad n \rightarrow \Gamma(p+1), \quad (34)$$

также растет с энергией накачки. Возрастание вероятности безызлучательной релаксации с накачкой отмечалось в работах [12, 13] для случая примесных редкоземельных ионов.

Авторы выражают благодарность А. А. Каминскому за обсуждение проблемы неравновесных фононов в безызлучательных процессах.

Список литературы

- [1] Kovarskii V. A., Popov E. A., Chaikovskii I. A. // *Phys. St. Sol. (b)*. 1975. V. 67. N 2. P. 427—433.
- [2] Коварский В. А., Попов Е. А., Чайковский И. А., Перельман Н. Ф. // *ФТТ*. 1974. Т. 16. № 3. С. 943—945.
- [3] Файн В. *Квантовая радиофизика*. Т. 1. М.: Сов. радио, 1972. 472 с.
- [4] Fain B. // *Phys. Rev. A*. 1981. V. 24. N 5. P. 2685—2693.
- [5] Fain B. // *Phys. Rev. B*. 1982. V. 26. N 10. P. 5932—5940.
- [6] Grill W., Hirschbiegel L. // *Phys. Rev. B*. 1985. V. 31. N 12. P. 8148—8152.
- [7] Perlin Yu. E., Kaminskii A. A. // *Phys. St. Sol. (b)*. 1985. V. 132. N 1. P. 11—40.
- [8] Левинсон И. Б. // *ЖЭТФ*. 1973. Т. 65. № 1. С. 331—341.
- [9] Булгадаев С. А., Левинсон И. Б. // *ЖЭТФ*. 1974. Т. 67. № 6. С. 2341—2351.
- [10] Булгадаев С. А., Каплан Б. И., Левинсон И. Б. // *ЖЭТФ*. 1976. Т. 70. № 4. С. 1550—1565.
- [11] Булгадаев С. А., Левинсон И. Б. // *ЖЭТФ*. 1976. Т. 71. № 5. С. 1987—2000.
- [12] Ткачук А. М., Федоров А. А. // *Письма в ЖЭТФ*. 1972. Т. 16. № 6. С. 324—327.
- [13] Каминский А. А. // *ДАН СССР*. 1982. Т. 267. № 5. С. 1106—1109.

Кишиневский государственный
университет им. В. И. Ленина
Кишинев

Поступило в Редакцию
11 июля 1988 г.
В окончательной редакции
14 апреля 1989 г.