Письма в ЖЭТФ, том 13, стр 365 – 368 *5 апреля 1971 г.*

О ВОЗМОЖНОСТИ УПРАВЛЕНИЯ ПАРАМЕТРАМИ БЕСФОНОННЫХ ЛИНИЙ С ПОМОЩЬЮ УЛЬТРАЗВУКА

Б. Г. Вехтер, В. А. Коварский, Ю. Б. Розенфельд, Б. С. Цукерблат

При сильном взаимодействии электронов, локализованных на примесях, с колебаниями решетки становятся вероятными многофононные процессы, приводящие к широким электронно-колебательным полосам поглощения света и люминесценции [1]. Если константа связи с колебаниями мала, то при низких температурах спектр представляет собой бесфононную линию (БФЛ) со слабо выраженной колебательной структурой. Рост температуры может привести к сильному тепловыделению даже при слабой связи за счет стимулированных процессов в фононной подсистеме.

В настоящей работе предлагается способ направленного изменения формы оптических кривых разогревом фононной подсистемы кристалла в узкой спектральной области осуществляемого, например, мощной ультразвуковой (УЗ) волной или с помощью вынужденного мандельштам-бриллюэновского рассеяния лазерного излучения. Перегрев этот может стать, как оказывается, настолько большим, что делает возможным наблюдение стимулированного ультразвуком многофононного поглощения света.

Коэффициент поглощения света запишем в виде [2]:

$$K(\Omega) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty} e^{-i\Omega t - \Gamma|t|} \langle\langle d^+(0)d(t)\rangle\rangle\, dt,$$

где $d(t)$ – оператор дипольного момента в гайзенберговском представлении, оператор взаимодействия с УЗ выбран в линейном по фононным операторам $b_{\vec{k}\sigma}$ и $b^+_{\vec{k}\sigma}$ приближении

$$\hat{H}' = \frac{1}{\sqrt{2}}\sum_i v_{ii\vec{k}\sigma}\,(b^+_{\vec{k}\sigma} + b_{\vec{k}\sigma})$$

с учетом только поляронного эффекта; i – нумерует электронные состояния, которые предполагаются невырожденными; $\vec{k}$, σ – волновой вектор и индекс поляризации УЗ – волны частоты ω; Γ – константа затухания дискретных линий оптического спектра. Результат усреднения в (1) зависит от статистических свойств введенных в кристаллах колебаний, здесь мы рассмотрим две предельные ситуации: 1) абсолютно когерентный и 2) тепловой (гауссовский) источник [3]. Методика расчета та же, что и в задаче вычисления $K(\Omega)$ в присутствии электромагнитного излучения высокой интенсивности [3].

Для абсолютно когерентного источника УЗ получаем:

$$K(x) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty} dt\, \exp(ixt - \Gamma|t|)\, I_0\left(\frac{4B_{k\sigma}\sqrt{n}}{\hbar\omega}\sin\frac{\omega t}{2}\right), \qquad (2)$$

где $n\hbar\omega$ – объемная энергия УЗ, I_0 – функция Бесселя;

$$B_{\vec{k}\sigma} = v_{ll\vec{k}\sigma} - v_{kk\vec{k}\sigma}, \quad \hbar x = \hbar\Omega - \epsilon_l + \epsilon_k, \quad |d_{lk}|^2 = 1,$$

$\epsilon_{l(k)}$ – энергия электронных термов. Воспользовавшись известным разложением $I_0\left(z\sin\frac{\omega t}{2}\right) = \sum_{p=-\infty}^{\infty} I_p^2(z/2)\, e^{ip\omega t}$, можно представить

(2) в следующей форме:

$$K(x) = \frac{1}{2\pi} \sum_{p=-\infty}^{\infty} I_p^2\left(\frac{2B_{\bar{k}\sigma}\sqrt{\bar{n}}}{\hbar\omega}\right) \frac{2\Gamma}{(x+p\omega)^2+\Gamma^2}, \qquad (3)$$

где ясно видна многоквантовая природа полосы, в которой при достаточно малых собственных ширинах Γ разрешима тонкая структура, и "эффект подавления" оптического поглощения [3] может наблюдаться. Для достаточно мощных источников УЗ $(B\sqrt{\bar{n}}/\hbar\omega) >> 1$ (оценки даны ниже), можно воспользоваться квазиклассическим приближением, заменив $\sin(\omega t/2)$ на $\omega t/2$, и получить:

$$K(x) = \frac{\left[\sqrt{\left(\Gamma^2 - x^2 + \frac{4B^2\bar{n}}{\hbar^2}\right)^2 + 4x^2\Gamma^2} + \Gamma^2 - x^2 + \frac{4B^2\bar{n}}{\hbar^2}\right]^{1/2}}{\sqrt{\left(\Gamma^2 - x^2 + \frac{4B^2\bar{n}}{\hbar^2}\right)^2 + 4x^2\Gamma^2}}. \qquad (4)$$

Выражение (4) описывает симметричную спектральную кривую, которая при $\Gamma^2 > B^2\bar{n}/\hbar^2$ является колоколообразной (но не гауссовской), и двугорбой в противоположном случае. Кривая (4) представляет собой многофононную полосу, стимулированную УЗ-фононами, частоты которых $\omega << \Gamma, \omega_D$. В этом случае структура полосы практически неразрешима, и эффект может проявиться экспериментально в виде стимулированного УЗ уширения и изменения контура БФЛ; поэтому в формуле (1) учтен эффект собственной ширины БФЛ Γ. Следует иметь в виду, что Γ, вообще говоря, также зависит от мощностей ультразвука.

В случае гауссовского (теплового) источника [3] получается

$$K(x) = \frac{1}{2B\sqrt{\pi\bar{n}}} \operatorname{Re}\left\{\exp\left[\frac{\hbar^2(\Gamma+ix)^2}{4B^2\bar{n}}\right]\left[1-\Phi\left(\frac{\hbar(\Gamma+ix)}{2B\sqrt{\bar{n}}}\right)\right]\right\}, \qquad (5)$$

где Φ – функция ошибок. Кривая (5) всегда имеет колоколообразный вид, с максимумом при $\Omega = \Omega_0$ (отсутствие стоксова сдвига при сильном тепловыделении не должно вызывать удивления, так как константа связи с длинноволновыми УЗ колебаниями очень мала, и члены типа $B << B\sqrt{\bar{n}}$ отброшены). Сравнение кривых (3) и (5) может послужить основой для экспериментального установления статистических свойств УЗ-фононов в кристаллах.

Благоприятной для наблюдения указанных эффектов является ситуация, когда электрон-фононное взаимодействие в примесном центре не слишком мало, но в то же время не настолько велико, чтобы БФЛ была скрыта колебательной структурой. Такими объектами, например, является БФЛ U-полосы рубина (Cr^{3+} : Al_2O_3), а также БФЛ и ее колебательные повторения $4f \to 5d$-переходов в Ce^{3+}: CaF_2 [4]. Для численных оценок воспользуемся методикой расчета параметров электрон-фононного взаимодействия [5, 6], дающей хорошее количественное согласие с экспериментом. Для БФЛ U-полосы (переход ${}^4A_{2g}(t_2^3) \to {}^4T_{2g}(t_2^3)$) получаем уширение δ :

$$\delta = (100\sqrt{2\ln 2}/3) D_q \sqrt{P/\rho v^3}, \qquad (6)$$

где D_q – параметр теории кристаллического поля, ρ – плотность кристалла, D – плотность потока УЗ энергии. Используя для рубина $D_q = 1800$ $см^{-1}$, $\rho = 4$ $г/см^3$, $v = 10^6$ $см/сек$ и $P = 100$ $вт/см^2$ (эта мощность соответствует частоте $\nu \sim 10^6$ $сек^{-1}$), находим $\delta \sim 1$ $см^{-1}$. Для рекордных мощностей УЗ ($P \approx 10^5$ $вт/см^2$, $\nu = 2 \cdot 10^4$ $сек^{-1}$ [7]) получается $\delta \approx 30$ $см^{-1}$.

Предлагаемый эффект может оказаться важным для приложений, так как ширина БФЛ является одним из основных параметров, определяющих режим работы ОКГ.

Авторы благодарят Ю.Е.Перлина за полезное обсуждение.

Институт химии
Академии наук Молдавской ССР

Институт прикладной физики
Академии наук Молдавской ССР

Поступила в редакцию
22 февраля 1971 г.

Литература

[1] Ю.Е.Перлин. УФН, 80, 553, 1963.

[2] Ю.Е.Перлин. ФТТ, 7, 1941, 1968.

[3] В.А.Коварский. ЖЭТФ, 57, 1217, 1613, 1969.

[4] А.А.Каплянский, В.Н.Медведев, П.П.Феофилов. Оптика и спектроскопия, 14, 664, 1963.

[5] Б.С.Цукерблат. ЖЭТФ, 51, 831, 1966.

[6] Б.С.Цукерблат, Ю.Е.Перлин. ФТТ, 7, 3278, 1965.

[7] Л.К.Зарембо, В.А.Красильников. Введение в нелинейную акустику, М., 1966, стр. 373; УФН, 102, 549, 1970.