ՀԱՅԿԱԿԱՆ ՍՍՀ ԳԻՏՈՒԹՅՈՒՆՆԵՐԻ ԱԿԱԴԵՄԻԱՅԻ ԶԵԿՈՒՅՑՆԵՐ
ДОКЛАДЫ АКАДЕМИИ НАУК АРМЯНСКОЙ ССР
LXXVI 1983 2

УДК 535. 341

ФИЗИКА

Г. Г. Демирханян, Ф. П. Сафарян

Вычисление фактора Дебая—Валлера примесных лазерных кристаллов

(Представлено академиком АН Армянской ССР М. Л. Тер-Микаеляном 28/V 1982)

1. Систематические спектроскопические исследования примесных диэлектрических кристаллов не потеряли свое значение; в настоящее время они ведутся с целью нахождения новых рабочих материалов для ОКГ света и улучшения качества уже работающих ОКГ. Важное значение приобретает исследование интенсивностей спектральных линий примесных лазерных кристаллов. Известно, что контур спектральной линии поглощения или испускания можно представить в следующем виде:

$$I(\nu,\ T)=\text{const}\cdot e^{-2W(T)}f(\nu,\ T),$$

где функция $f(\nu, T)$ при сравнительно низких температурах, когда однородная ширина линии меньше, чем неоднородная, имеет вид функции гауссовского распределения, а при высоких температурах, когда в ширине спектральной линии преобладает зависящая от температуры однородная часть, представляет собой лоренцевскую функцию распределения. Очевидно, что при низких температурах температурная зависимость интенсивности линий определяется только дебай-валлеровским фактором $\exp\{-2W(T)\}$, а при высоких температурах она оказывается более сложной, так как на нее в этом случае оказывает влияние также температурная зависимость ширины спектральной линии.

Для правильной интерпретации экспериментальных данных по температурному тушению спектральных линий необходимо провести последовательные количественные вычисления как величин температурной ширины, так и дебай-валлеровского фактора для конкретных кристаллических систем. Трудности таких вычислений связаны в основном с трудностями детального вычисления (на микроскопической основе) матричных элементов электрон-фононного взаимодействия (ЭФВ). После того как в работах [1,2] были проведены подобные вычисления для температурных ширин спектральных линий задача вычисления дебай-валлеровского фактора также стала осуществимой. В настоящей статье мы приводим результаты вычислений фактора Дебая—Валлера для двух кристаллических систем: ИАГ—Nd^{3+} и ИАГ—Yb^{3+}.

2. Показатель экспоненциальной функции $2W(T)$ в факторе

Дебая—Валлера, как известно, можно представить в следующем виде:

$$2W(T)=\sum_{\alpha}\frac{1}{(\hbar\omega_{\alpha})^2}\left[B_{\alpha}^{(1)}(\lambda',\lambda')-B_{\alpha}^{(1)}(\lambda,\lambda)\right](1+2v_{\alpha}), \tag{1}$$

где через λ и λ' обозначены соответственно основное и возбужденное примесные электронные состояния, между которыми происходит электронный переход; $\hbar\omega_{\alpha}$—энергия решеточных фононов типа α; $v_{\alpha}=[e^{\frac{\hbar\omega_{\alpha}}{kT}}-1]^{-1}$—число фононов, имеющих энергию $\hbar\omega_{\alpha}$; $B_{\alpha}^{(1)}(\nu,\nu')$—коэффициенты ЭФВ первого порядка, связанные с матричными элементами ЭФВ $\langle\nu|V^{(1)}|\nu'\rangle$ посредством

$$B_{\alpha}^{(1)}(\nu,\nu')=\sqrt{\frac{\hbar\omega_{\alpha}}{2Mv_0^2}}\sin\delta_{\alpha}\langle\nu|V^{(1)}|\nu'\rangle, \tag{2}$$

где M—масса кристалла; v_0—средняя скорость звуковых волн в кристалле; δ_{α}—случайная фаза нормальных колебаний кристалла; $V^{(1)}$—член первого порядка в разложении потенциальной функции кулоновского взаимодействия оптического электрона примесного иона с ионами первой координационной сферы по смещениям ионов из равновесных положений. Для систем типа активированных гранатов в ([3]) получено выражение для $V^{(1)}$. Оно имеет вид*:

$$V^{(1)}=\frac{16}{3}\sqrt{\frac{2\pi}{15}}\frac{Ze^2r^2}{r_0^3}\Big\{\Phi_1[Y_{2-1}(\vartheta,\varphi)-Y_{21}(\vartheta,\varphi)]+i\Phi_2[Y_{21}(\vartheta,\varphi)+$$

$$+Y_{2-1}(\vartheta,\varphi)]+i\Phi_4[Y_{2-2}(\vartheta,\varphi)-Y_{22}(\vartheta,\varphi)]-\frac{3}{2}\Phi_6[Y_{22}(\vartheta,\varphi)+Y_{2-2}(\vartheta,\varphi)]-$$

$$-\sqrt{\frac{3}{2}}(3\Phi_5-1)Y_{20}(\vartheta,\varphi)\Big\}, \tag{3}$$

где r_0 и Z соответственно радиус и эффективный заряд ионов первой координационной сферы; r—радиус орбиты оптического электрона примеси.

$$\Phi_1=\sin2\theta\cos\Phi;\quad \Phi_2=\sin2\theta\sin\Phi;$$
$$\Phi_4=\sin^2\theta\sin2\Phi;\quad \Phi_5=\cos^2\theta;\quad \Phi_6=\sin^2\theta\cos2\Phi. \tag{4}$$

Функции (4) записаны для фиксированного направления волнового вектора $\vec{\varkappa}(\theta,\Phi)$ звуковых волн в кристалле. Для учета всех направлений в конечных физических величинах необходимо произвести усреднение по сферическими координатам θ и Φ.

На основе применения приближения Дебая для колебания решетки можно в формуле (1) от суммы по фононным состояниям α

---

* В выражении (3) для $V^{(1)}$ опущен член нулевого порядка, пропорциональный Y_{00}, поскольку, как нетрудно убедиться, при составлении разности $[\langle\lambda'|V^{(1)}|\lambda'\rangle-\langle\lambda|V'|\lambda\rangle]$ вклады этого члена в $\langle\lambda'|V^{(1)}|\lambda'\rangle$ и в $\langle\lambda|V^{(1)}|\lambda'\rangle$ взаимно уничтожаются.

перейти к интегралу посредством преобразования $\sum_{\alpha} \ldots \to \left(\frac{3V}{2\pi^2 v_0^3}\right) \times$ $\times \int_0^{\omega_D} \ldots \omega^2 d\omega$ (где V—объем кристалла; ω_D—частота Дебая). Тогда для зависящего от температуры члена в $2W(T)$ нетрудно получить следующее выражение:

$$2W(T) = \frac{3\omega_D^2}{2\pi^2 \hbar \rho v_0^5} \overline{\sin^2\delta_x} \left(\frac{T}{T_2}\right)^2 |M_{\lambda\lambda}^{\lambda'\lambda'}|^2 I(T), \tag{5}$$

где

$$M_{\lambda\lambda}^{\lambda'\lambda'} = \langle\lambda'|V^{(1)}|\lambda'\rangle - \langle\lambda|V^{(1)}|\lambda\rangle; \tag{6}$$

ρ—плотность кристалла; интеграл $I(T) = \int_0^{T_D/T} \frac{x\,dx}{e^x - 1}$ табулирован, например, в [4] (T_D—температура Дебая кристалла). Однако в двух предельных случаях низких и высоких температур возможно найти приближенные выражения для этого интеграла:

$$I(T) = \frac{\pi^2}{6} - \left(1 + \frac{T_D}{T}\right)e^{-T_D/T} - \left(\frac{1}{4} + \frac{T_D}{2T}\right)e^{-2T_D/T} - \left(\frac{1}{9} + \frac{T_D}{3T}\right)e^{-3T_D/T} \tag{7}$$

при $T < T_D$;

$$I(T) = \frac{T_D}{T} - \frac{1}{4}\left(\frac{T_D}{T}\right)^2 + \frac{1}{38}\left(\frac{T_D}{T}\right)^3 - \frac{11}{3600}\left(\frac{T_D}{T}\right)^5 + \ldots \tag{8}$$

при $T > T_D$.

Итак, при достаточно низких температурах $\left(T < \frac{1}{2} \cdot T_D\right)$, как следует из формул (5)—(8), $2W(T) \sim T^2$, а при высоких температурах ($T > T_D$) $2W(T) \sim T$.

3. Вычислим фактор Дебая—Валлера для спектральной линии, соответствующей электронному переходу между нижними штарковскими состояниями термов $^4F_{3/2}$ и $^4I_{11/2}$ иона Nd^{3+} в ИАГ. Волновые функции $|j\,M_j\rangle$ этих состояний приведены в [2] (где j полный момент количества движения, M_j его проекция):

$$|\lambda'\rangle = \pm|3/2 \pm 1/2\rangle;$$

$$|\lambda\rangle = -0{,}2253\,|11/2 \pm 1/2\rangle + 0{,}2249\,|11/2 \pm 9/2\rangle + 0{,}9479\,|11/2 \mp 7/2\rangle. \tag{9}$$

Как видно из формул (3) и (9), вычисление матричных элементов типа $\langle\nu|V^{(1)}|\nu'\rangle$ сводится к вычислению матричных элементов неприводимых тензорных операторов типа $r^2 Y_{2m}$, для которых развит аппарат генеалогической схемы, предложенной Рака. Соответствующая формула для вычисления матричных элементов типа $\langle j_1 M_1|r^l Y_{lm}|j_2 M_2\rangle$ приведена, например, в [1]. Здесь мы приводим только величины отличных от нуля матричных элементов оператора $r^2 Y_{2m}$:

$$\langle 3/2\pm 1/2\,|\,r^2Y_{20}|\,3/2\pm 1/2\rangle=\frac{1}{5}\sqrt{\frac{1}{5\pi}}\,\overline{r^2};$$

$$\langle 11/2\pm 1/2\,|r^2Y_{20}|\,11/2\pm 1/2\rangle=-\frac{1}{11\cdot 13}\sqrt{\frac{14}{3\pi}}\,\overline{r^2}; \tag{10}$$

$$\langle 11/2\pm 9/2\,|r^2Y_{20}|\,11/2\pm 9/2\rangle=\frac{5}{11\cdot 13}\sqrt{\frac{2}{21\pi}}\,\overline{r^2};$$

$$\langle 11/2\pm 7/2\,|r^2Y_{20}|\,11/2\pm 7/2\rangle=\frac{1}{5\cdot 11\cdot 13}\sqrt{\frac{2}{21\pi}}\,\overline{r^2},$$

где $\overline{r^2}=\int\limits_0^\infty [R_{4f}(r)]^2r^4dr$; $R_{4f}(r)$ — радиальная волновая функция $4f$ электрона. Численные значения $\overline{r^2}$ для РЗ ионов, вычисленных на основе хартри-фоковских волновых функций, приведены, например, в ([5]).

Учитывая, что штарковские состояния иона Nd^{3+} в ИАГ двукратно вырождены (крамерсовское вырождение), для входящего в формулу (5) коэффициента $M_{\lambda\lambda}^{\lambda'\lambda'}$ нетрудно найти выражение

$$|M_{\lambda\lambda}^{\lambda'\lambda'}|^2=0{,}45\,g_\lambda g_{\lambda'}\left(\frac{ze^2\overline{r^2}}{r_0^3}\right)^2\overline{(3\Phi_1-1)^2}, \tag{11}$$

где $g_\lambda=g_{\lambda'}=2$ статвесы состояний λ и λ'.

Используя следующие значения параметров ([2]): $\omega_D=9{,}82\cdot 10^{13}$ сек$^{-1}$; $\rho=4{,}56$ г/см^3; $v_0=5{,}58\cdot 10^5$ см/сек; $r_0=2{,}37\cdot 10^{-8}$ см; $\overline{r^2}=1{,}001$ а. е., которые справедливы для кристалла ИАГ—Nd^{3+}, а также средние значения $\overline{\sin^2\delta_\alpha}=\frac{1}{2}$, $\overline{(3\Phi_5-1)^2}=\frac{4}{5}$, которые легко вычисляются, для $2W(T)$ на основе формул (5) и (11) получим выражение

$$2W(T)=9{,}63\cdot 10^{-2}\left(\frac{T}{T_D}\right)^2 Z^2\int\limits_0^{T_D/T}\frac{x\,dx}{e^x-1}. \tag{12}$$

Для двух предельных температур на основе формул (7) и (8) получим:

$$2W(T)=1{,}59\cdot 10^{-1}\left(\frac{T}{T_D}\right)^2 Z^2 \qquad \text{при } T<T_D;$$

$$2W(T)=9{,}63\cdot 10^{-2}\left(\frac{T}{T_D}\right) Z^2 \qquad \text{при } T>T_D;$$

Выбирая подходящее значение для параметра Z (фактически единственного параметра теории), можно достичь удовлетворительного согласия теории с экспериментом. Отметим, что для других спектральных характеристик (ширины и сдвига линий ([2,6]), вероятности безызлучательных переходов ([7]) и т. д.) такое согласие достигалось при значениях $Z=1\pm 0{,}15$.

4. Вычислим фактор Дебая—Валлера для спектральной линии,

соответствующей электронному переходу между нижними штарковскими состояниями термов $^2F_{5/2}$ и $^2F_{7/2}$ иона Yb^{3+} в ИАГ. Волновые функции этих состояний в представлении (LSM_LM_S) найдены в [8], в удобном нам представлении $(LSjM_j)$ они имеют следующий вид:

$$
\begin{aligned}
|\lambda'\rangle &= \pm 0{,}2732|5/2 \mp 1/2\rangle + 0{,}8902i|5/2 \pm 3/2\rangle - 0{,}3789i|5/2 \mp 5/2\rangle; \\
|\lambda\rangle &= -0{,}0931|7/2 \pm 7/2\rangle - 0{,}3652|7/2 \mp 1/2\rangle \mp 0{,}3603|7/2 \pm 3/2\rangle \pm \\
&\quad \pm 0{,}8504i|7/2 \mp 5/2\rangle.
\end{aligned}
\tag{13}
$$

При этом отличными от нуля оказываются семнадцать матричных элементов неприводимых тензорных операторов r^2Y_{2m}. Значения некоторых таких матричных элементов приведены ниже:

$$
\begin{aligned}
&\langle 7/2 \pm 7/2|r^2Y_{20}|7/2\rangle \pm 7/2 = \sqrt{\frac{5}{3\pi}}\,\overline{r^2}; \\
&\langle 7/2 \pm 5/2|r^2Y_{2\pm 2}|7/2 \pm 1/2\rangle = \frac{5}{7}\sqrt{\frac{2}{\pi}}\,\overline{r^2}; \\
&\langle 7/2 \pm 7/2|r^2Y_{2\pm 2}|7/2 \pm 3/2\rangle = \sqrt{\frac{11}{21\pi}}\,\overline{r^2}; \\
&\langle 7/2 \pm 3/2|r^2Y_{20}|7/2 \pm 3/2\rangle = -\frac{1}{7}\sqrt{\frac{15}{\pi}}\,\overline{r^2}; \\
&\langle 7/2 \pm 7/2|r^2Y_{2\pm 1}|7/2 \pm 5/2\rangle = -\sqrt{\frac{10}{7\pi}}\,\overline{r^2}; \\
&\langle 5/2 \pm 3/2|r^2Y_{2\pm 1}|5/2 \pm 1/2\rangle = -\frac{2}{7}\sqrt{\frac{3}{5\pi}}\,\overline{r^2}; \\
&\langle 5/2 \pm 3/2|r^2Y_{2\pm 2}|5/2 \mp 1/2\rangle = \frac{3}{7}\sqrt{\frac{3}{5\pi}}\,\overline{r^2}; \\
&\langle 5/2 \pm 3/2|r^2Y_{20}|5/2 \pm 3/2\rangle = -\frac{1}{7}\sqrt{\frac{1}{5\pi}}\,\overline{r^2}; \\
&\langle 5/2 \pm 1/2|r^2Y_{20}|5/2 \pm 1/2\rangle = -\frac{4}{7}\sqrt{\frac{1}{5\pi}}\,\overline{r^2};
\end{aligned}
\tag{14}
$$

на их основе для коэффициентов $M_{\lambda\lambda}^{\lambda'\lambda'}$ находим выражение

$$
|M_{\lambda\lambda}^{\lambda'\lambda'}|^2 = \left(\frac{16}{9}\sqrt{\frac{2\cdot 7}{5}}\,\frac{Ze^2\overline{r^2}}{r_0^3}\right)^2 \overline{[0{,}0492(3\Phi_5-1)+0{,}4574\Phi_4]^2}\,g_\lambda g_{\lambda'}.
$$

Учитывая, что для Yb^{3+} $\overline{r^2}=0{,}613$ а. е. и кроме того $\overline{\Phi_4^2}=4/15$, $\overline{\Phi_4\Phi_5}=\overline{\Phi_5}=0$, для $2W(T)$ получим выражение

$$
2W(T) = 0{,}41\,Z^2\left(\frac{T}{T_D}\right)^2 \int_0^{T_D/T} \frac{x\,dx}{e^x-1}. \tag{15}
$$

В случае низких температур $(T < T_D)$ получаем

$$2W(T) = 0{,}67\, Z^2 \left(\frac{T}{T_D}\right)^2,$$

а в случае высоких температур ($T > T_D$)

$$2W(T) = 0{,}41\, Z^2 \left(\frac{T}{T_D}\right).$$

5. Из сравнения формул (12) и (15) следует, что тушение люминесценции для системы ИАГ — Nd^{3+} наступает при более низких температурах, чем для системы ИАГ—Yb^{3+}. Это не противоречит хорошо известному экспериментальному факту, заключающемуся в том, что в этом отношении ИАГ—Nb^{3+} является более хорошим материалом для ОКГ, чем ИАГ—Yb^{3+}.

Однако насколько справедливы проведенные здесь вычисления, можно выяснить только после детального сравнения результатов этих вычислений с экспериментальными данными, для чего необходимо располагать полным набором таких данных, который в настоящее время отсутствует.

Авторы выражают благодарность М. Л. Тер-Микаеляну за постоянное внимание к работе.

Институт физических исследований
Академии наук Армянской ССР

Գ. Գ. ԴԵՄԻՐԽԱՆՅԱՆ, Ֆ. Պ. ՍԱՖԱՐՅԱՆ

Խառնուրդային լազերային գծերի ինտենսիվության Դեբայ—Ուոլլերի ֆակտորի հաշվարկը

Աշխատանքում ստացված է Դեբայ—Ուոլլերի ֆակտորի ջերմաստիճանային կախումը հազվագյուտ հողերի խմբի տարրերի իոններով ակտիվացված նռնաքարերի տիպի բյուրեղների համար։ Դեբայ—Ուոլլերի ֆակտորի թվային հաշվարկը, ինչպես նաև նրա ասիմպտոտիկ արտահայտությունը բարձր և ցածր ջերմաստիճանների համար, կատարված է YAlG—Nd^{3+} *և* YAlG—Yb^{3+} *կոնկրետ բյուրեղային համակարգերի համար։*

ЛИТЕРАТУРА — ԳՐԱԿԱՆՈՒԹՅՈՒՆ

[1] *И. С. Андриеш, В. Я. Гамурарь, Д. Н. Вылегжанин* и др., ФТТ, т. 14, 2967 (1972). [2] *Ф. П. Сафарян*, ФТТ, т. 19, 1947 (1977); т. 20, 1963 (1978). [3] *Г. Г. Демирханян, Ф. П. Сафарян*, Уч. записки ЕрГУ, № 2, 61 (1981). [4] *Е. Янке, Ф. Эмде, Ф. Леш*, Специальные функции. Формулы. Графики. Таблицы, Наука, М, 1977. [5] *A. J. Freeman, R. E. Watson*. Phys. Rev., vol. 127, 2058 (1962). [6] *Ф. П. Сафарян*, препринт ПРЛФ—78—15, 1978. [7] *Ф. П. Сафарян*, ФТТ, т. 21, 300 (1979). [8] *J. J. Pearson, G. F. Herrmann, K. A. Wickersheim*, Phys. Rev., vol. 159, 251 (1967).