ՀԱՅԿԱԿԱՆ ՍՍՀ ԳԻՏՈՒԹՅՈՒՆՆԵՐԻ ԱԿԱԴԵՄԻԱՅԻ ԶԵԿՈՒՅՑՆԵՐ
ДОКЛАДЫ АКАДЕМИИ НАУК АРМЯНСКОЙ ССР

LXXIII 1981 3

УДК 535.341

ФИЗИКА

Ф. П. Сафарян

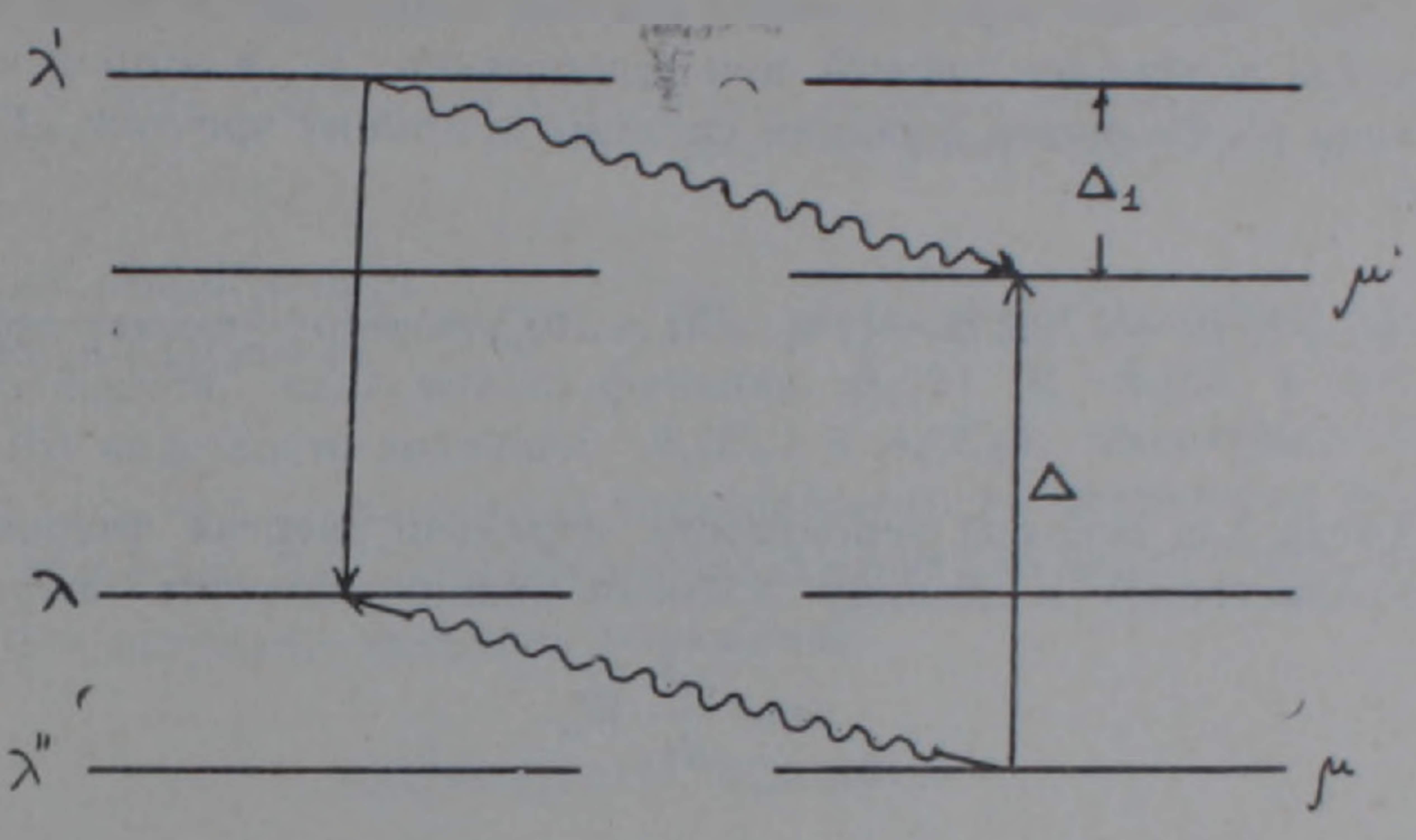
Механизм электрон-фононной кросс-релаксационной передачи энергии электронного возбуждения в примесных лазерных кристаллах

(Представлено чл.-корр. АН Армянской ССР М. Л. Тер-Мнкаеляном 18/VI 1981)

1. В ([1]) вычислена вероятность резонансной передачи энергии электронного возбуждения между двумя одинаковыми примесными ионами, находящимися в диаэлектрических кристаллах. Считалось, что ионы связаны друг с другом через взаимодействие их оптических электронов с фононами решетки. Как известно, такая передача приводит к миграции энергии электронного возбуждения по примесным ионам. Поскольку при миграции возбужденные уровни как доноров, так и акцепторов идентичны, то миграция не может привести к непосредственному тушению люминесценции. Тушение происходит в отдельных примесных центрах, если имеются соответствующие каналы безызлучательного перехода энергии электронного возбуждения к тепловому резервуару фононов решетки. В настоящее время считается, что одним из механизмов таких безызлучательных переходов является процесс кросс-релаксации, при котором энергия электронного возбуждения без изменения переходит от одного примесного центра к другому, однако допускается, что возбужденный уровень акцепторного иона отличается от соответствующего уровня донорного иона. Если возбужденный уровень акцептора затем может распадаться, излучая световую энергию, то кросс-релаксационные процессы в конечном итоге приводят к изменению частотного спектра люминесценции. Однако если возбужденный уровень акцептора может распадаться безызлучательно, то кросс-релаксационные процессы приводят к тушению люминесценции.

В настоящей статье, используя метод двухвременных температурных функций Грина, мы получили формулу для вероятности кросс-релаксации. Эта формула является более общей, поскольку она содержит члены, соответствующие как «дальнодействующим», так и короткодействующим» механизмам передачи энергии. В частном случае они переходят в формулы для резонансной миграции энергии, которые получены в [1]. Результаты численных вычислений для конкретных кристаллических систем мы приводим в другом сообщении.

2. Обозначим электронные состояния донорного иона посредством $\lambda, \lambda', \ldots$ и т. д., а электронные состояния акцептора—посредством $\mu, \mu' \ldots$ и т. д. (см. рисунок). Гамильтониан электрон-фононной сис-



темы типа примесных кристаллов можно представить в следующем общем виде:

$$H = \sum_{\nu} \varepsilon_\nu a_\nu^+ a_\nu + \sum_{\alpha} \hbar\omega_\alpha b_\alpha^+ b_\alpha + \sum_{\nu,\nu'} \sum_{\alpha} B_\alpha^{(1)}(\nu, \nu') a_\nu^+ a_{\nu'} [b_\alpha^+ e^{-i \vec{\varkappa} \vec{R}'} + b_\alpha e^{i \vec{\varkappa} \vec{R}}], \quad (1)$$

где a_ν^+, a_ν—операторы рождения и уничтожения электронов в примесных электронных состояниях ν (ν может принимать как значения $\lambda, \lambda' \ldots$ и т. д., так и значения $\mu, \mu' \ldots$ и т. д.); b_α^+, b_α—операторы рождения и уничтожения фононов решетки типа α (α заменяет два индекса $\vec{\varkappa}$, s, где $\vec{\varkappa}$—волновой вектор решетки, s—ветвь колебаний, ε_ν—энергия одноэлектронных состояний примесных ионов, $\hbar\omega_\alpha$—энергия фононов решетки, $\vec{R}'$—радиус-вектор примесного иона, $B_\alpha^{(1)}(\nu, \nu')$—коэффициенты электрон-фононного взаимодействия (ЭФВ) первого порядка*).

Для конкретных систем типа активированных гранатов в [2] получены на основе учета кулоновского взаимодействия оптического электрона примесей с близко расположенными ионами решетки правильные выражения для этих коэффициентов.

Допустим, что в момент времени $t=0$ первый ион находится в возбужденном состоянии λ', а второй —в основном состоянии μ. Очевидно, волновую функцию этого состояния в представлении чисел заполнения электронов (n_ν) и фононов (v_α) можно получить из

* В задачах передачи энергии вклад членов более высоких порядков ничтожно мал.

основного состояния системы $(n_\lambda, n_{\lambda'} \dots n_\mu\; n_{\mu'} \dots v_\alpha\rangle$, воздействуя оператором $a^+_{\lambda'} a_{\lambda''}$:

$$|0\rangle = |n_{\lambda'}+1, \dots n_{\lambda''}-1, \dots v_\alpha\rangle = \frac{a^+_{\lambda'} a_{\lambda''} |n_{\lambda'} \dots n_{\mu'} \dots v_\alpha\rangle}{\sqrt{n_{\lambda'}(n_{\lambda''}+1)}}. \quad (2)$$

Допустим, что через время t система переходит в такое состояние, когда возбужден первый ион в состоянии λ, а второй ион — в состоянии μ'. Волновая функция системы в момент времени t тогда будет:

$$|t\rangle = |n_\lambda+1,\; n_{\lambda''}-1, \dots n_\mu-1,\; n_{\mu'}+1, \dots v_\alpha\rangle = \frac{a^+_\lambda a_{\lambda''} a^+_{\mu'} a_\mu |n_\lambda \dots n_\mu \dots v_\alpha\rangle}{(1+n_\lambda)(1+n_{\mu'}) n_{\lambda''} n_\mu}. \quad (3)$$

Тогда для искомой вероятности передачи энергии (вероятность кросс-релаксации) в единицу времени можно написать выражение

$$w = \frac{d}{dt} W,$$

где

$$W = \frac{|\langle a^+_{\mu'} a_\mu a^+_{\lambda''} a_\lambda(t),\; a^+_{\lambda'} a_{\lambda''}(0)\rangle|^2}{n^2_{\lambda''} n_\mu (1+n_\lambda)(1+n_{\lambda'})(1+n_{\mu'})}, \quad (4)$$

где можно подставить $n_{\lambda''} = n_\mu = 1$, $n_\lambda = n_{\lambda'} = n_{\mu'} = 0$. Входящее в формулу (4) выражение корреляционной функции $\langle A(t), B(0)\rangle = = \langle n_\lambda \dots n_{\mu'} \dots v_\alpha | AB | n_\lambda \dots v_\alpha\rangle$, представляющее собой как квантово-механическое, так и статистическое усреднение оператора $A \cdot B$ (где $A = a^+_{\mu'} a_\mu a^+_{\lambda''} a_\lambda$; $B = a^+_{\lambda'} a_{\lambda''}$), можно найти, используя известную формулу

$$\langle A(t),\; B(0)\rangle = \lim_{\varepsilon\to 0} \int \frac{e^{\beta E}}{e^{\beta E}+1} \{\langle\langle A|B\rangle\rangle_{E+i\varepsilon} - \langle\langle A|B\rangle\rangle_{E-i\varepsilon}\} e^{-iEt} dE;$$

$$\beta = \frac{1}{kT}, \quad (5)$$

связывающую корреляционную функцию $\langle A(t), B(0)\rangle$ с Фурье-представлением соответствующей двухвременной функции Грина $\langle\langle A|B\rangle\rangle_E$. Процедура составления и расцепления цепочки уравнений для функции типа $\langle\langle A|B\rangle\rangle_E$ приведена, например, в ([1,3]). Нетрудно показать, что аналогичные расчеты приводят к следующему значению для рассматриваемой функции $\langle\langle a^+_{\mu'} a_\mu a^+_{\lambda''} a_\lambda | a^+_{\lambda'} a_{\lambda''}\rangle\rangle_E$:

$$\langle\langle a^+_{\mu'} a_\mu a^+_{\lambda''} a_\lambda | a^+_{\lambda'} a_{\lambda''}\rangle\rangle_E = \frac{i/2\pi A(E) n_\mu n_{\lambda''}}{(E-\varepsilon_{\mu\mu'}-\varepsilon_{\lambda\lambda''})(E-\varepsilon_{\lambda'\lambda''})}, \quad (6)$$

где

$$\varepsilon_{\lambda'\lambda}=\varepsilon_{\lambda'}-\varepsilon_{\lambda};$$

$$A(E)=A_1(E)+A_2(E);$$

$$A_1(E)=-\sum_{\alpha}B_{\alpha}^{(1)}(\lambda,\mu)B_{\alpha}^{(1)}(\lambda',\mu')\left\{\frac{v_\alpha}{\varepsilon_{\lambda\mu}+\hbar\omega_\alpha}+\frac{1+v_\alpha}{\varepsilon_{\lambda\mu}-\hbar\omega_\alpha}-\frac{v_\alpha}{\varepsilon_{\lambda'\mu'}-\hbar\omega_\alpha}-\frac{1+v_\alpha}{\varepsilon_{\lambda'\mu'}+\hbar\omega_\alpha}\right\}; \tag{7}$$

$$A_2(E)=\sum_{\alpha}B_{\alpha}^{(1)}(\lambda,\lambda')B_{\alpha}^{(1)}(\mu,\mu')\left\{-\frac{v_\alpha}{\varepsilon_{\lambda'\lambda}-\hbar\omega_\alpha}-\frac{1+v_\alpha}{\varepsilon_{\lambda'\lambda}+\hbar\omega_\alpha}+\frac{v_\alpha}{\varepsilon_{\mu'\mu}+\hbar\omega_\alpha}+\frac{1+v_\alpha}{\varepsilon_{\mu'\mu}-\hbar\omega_\alpha}\right\}. \tag{8}$$

Подставляя формулу (6) в (5), мы получим интеграл, который легко решается, если вместо функций $A_1(E)$ и $A_2(E)$ в функции Грина (6) подставить значения $A_1(E_m)$ и $A_2(E_m)$, полученные в максимуме $(E_m=\varepsilon_{\mu'\mu}+\varepsilon_{\lambda\lambda''}=\varepsilon_{\lambda'\lambda''})$ спектрального распределения функции $\langle\langle a_{\mu}^{+}a_{\mu'}a_{\lambda'}^{+}a_{\lambda}|a_{\lambda'}^{+}a_{\lambda''}\rangle\rangle_E$. Тогда для корреляционной функции $\langle a_{\mu}^{+}a_{\mu'}a_{\lambda'}^{+}a_{\lambda}(t);$ $a_{\lambda'}^{+}a_{\lambda''}(0)\rangle$ нетрудно получить выражение

$$\langle a_{\mu}^{+}a_{\mu'}a_{\lambda''}^{+}a_{\lambda}(t),\ a_{\lambda'}^{+}a_{\lambda''}(0)\rangle=$$

$$=\frac{A(E_m)n_{\lambda}n_{\lambda''}}{\varepsilon_{\lambda'\lambda}-\varepsilon_{\mu'\mu}}\{n(\varepsilon_{\mu'\mu}+\varepsilon_{\lambda\lambda''})e^{i(\varepsilon_{\mu'\mu}+\varepsilon_{\lambda\lambda''})t}-n(\varepsilon_{\lambda'\lambda''})e^{-i\varepsilon_{\lambda'\lambda''}t}\}, \tag{9}$$

где $n(E)=e^{\beta E}[e^{\beta E}+1]^{-1}$.

Подставляя формулу (9) в (4), для вероятности кросс-релаксации получим выражение

$$w=2\pi N[A(E_m)]^2\delta(\varepsilon_{\mu'\mu}-\varepsilon_{\lambda'\lambda}), \tag{10}$$

где

$$N=\frac{n_{\mu}[1-n(\varepsilon_{\lambda'\lambda''})]^2}{(1+n_{\lambda'})(1+n_{\lambda})(1+n_{\mu'})}\approx 1;$$

$$A(E_m)=A_1(E_m)+A_2(E_m); \tag{11}$$

$$A_1(E_m)=\frac{1}{\hbar}\sum_{\alpha}B_{\alpha}^{(1)}(\mu',\lambda')B_{\alpha}^{(1)}(\mu,\lambda)\left[\frac{1}{\Delta_1+\omega_\alpha}-\frac{1}{\Delta_1-\omega_\alpha}\right]; \tag{12}$$

$$A_2(E_m)=-\frac{1}{\hbar}\sum_{\alpha}B_{\alpha}^{(1)}(\mu',\mu)B_{\alpha}^{(1)}(\lambda',\lambda)\left|\frac{1}{\Delta+\omega_\alpha}-\frac{1}{\Delta-\omega_\alpha}\right|; \tag{13}$$

$$\Delta_1=\frac{1}{\hbar}(\varepsilon_{\lambda}-\varepsilon_{\mu})=\frac{1}{\hbar}(\varepsilon_{\lambda'}-\varepsilon_{\mu'});\quad \Delta=\frac{1}{\hbar}(\varepsilon_{\lambda'}-\varepsilon_{\lambda})=\frac{1}{\hbar}(\varepsilon_{\mu'}-\varepsilon_{\mu}).$$

3. В соответствии с двумя членами в сумме $A(E_m)$ (11) вероятность передачи (10) можно интерпретировать на основе двух механизмов передачи — „дальнодействующего“ и „короткодействующего“, вероятности которых зависят от коэффициентов $A_2(E_m)$ и $A_1(E_m)$ соответственно. В первом случае матричные элементы ЭФВ $B_{\alpha}^{(1)}(\mu',\mu)$,

$B_a^{(1)}(\lambda', \lambda)$ связывают электронные состояния одного и того же примесного иона и зависимость вероятности передачи от расстояния ($\vec{R}'$) между ионами получается за счет присутствующих в гамильтониане (1) множителей типа $e^{\pm i\vec{\varkappa}\vec{R}'}$.

Именно такие механизмы передачи (в случае миграции энергии) рассматривались в работах ([4-6]), где получена зависимость вероятности передачи от R в виде $\frac{1}{R^n}$, где n меняется в пределе от $n=1$ до $n=12$.

В случае „короткодействующего“ механизма передачи энергии потенциальная функция ЭФВ связывает электронные состояния двух разных примесных ионов ($B_a^{(1)}(\mu', \lambda')$; $B_a^{(1)}(\mu, \lambda)$). Поскольку волновые функции электронных состояний примесных ионов локализованы в окрестностях своих ядер, то такая вероятность передачи содержит интеграл перекрывания волновых функций примесных ионов.

Величины вероятностей рассматриваемых двух механизмов передачи зависят также от величин энергетических расщеплений Δ_1 и Δ, входящих в формулы (10), (12) и (13). В частном случае, когда $\Delta_1 \to 0$ и $\Delta \gg \omega_a$, формула (10) переходит в формулу для короткодействущей миграции энергии, найденной в ([1]). В другом частном случае, когда $\Delta \to 0$ и $\Delta_1 \gg \omega_a$, в процессе передачи энергии будут преобладать дальнодействующие кросс-релаксационнные процессы. Какой из рассматриваемых механизмов преобладает в случае конкретных кристаллических систем, зависит, таким образом, от особенностей энергетических спектров рассматриваемых систем. Этот вопрос окончательно можно выяснить только после проведения количественных расчетов, аналогичных приведенным в ([7]) для вероятности нерезонансной миграции энергии.

Институт физических исследований
Академии наук Армянской ССР

Յ. Պ. ՍԱՖԱՐՅԱՆ

Խառնուրդային լազերային բյուրեղներում էլեկտրոնային գրգռման էներգիայի էլեկտրոն-ֆոնոնային ոչ ճառագայթային փոխանցման մեխանիզմը

Հայտնի է, որ էլեկտրոնային գրգռման էներգիայի ոչ ճառագայթային փոխանցումը բյուրեղներում խառնուրդային իոնների մեջ տեղի ունի մասնակցությամբ նաև էլեկտրոն-ֆոնոնային փոխազդեցության։ Սակայն այդպիսի ոչ ճառագայթային անցման հնարավորությունը բավականին վատ է ուսումնասիրված թե՛ տեսականորեն և թե՛ գործնականում։ Ներկա հոդվածում խնդիր է դրված ստանալու այդպիսի անցումների հավանականության համար բանաձևեր, որոնք հնարավորություն տան ի հայտ բերելու էլեկտրոն-ֆոնոնային ոչ ճառագայթային անցումների հավանականության կախումը *խառնուրդների կոնցենտրացիայից և ջերմաստիճանից։ Ներկա հոդվածում քննարկվում է ավելի ընդհանուր խնդիր՝, կապված կրոս-ռելակսացիոն պրոցեսների հավանականության հաշվման հետ, որի մասնավոր դեպքն է հանդիսանում նախկինում մեր կողմից քննարկված միգրացիոն պրոցեսների հավանականության հաշվարկը։*

ЛИТЕРАТУРА — ԳՐԱԿԱՆՈՒԹՅՈՒՆ

[1] *Ф. П. Сафарян*, Изв. АН АрмССР. Физика, т. 16, № 4 (1981). [2] *Ф. П. Сафарян*, препринт ПЛРФ—78—19, Ереван, 1978 [3] *Ф. П. Сафарян*, ДАН. АрмССР, т. 71. № 1 (1980). [4] *R. Orbach, M. Tachiki*, Phys. Rev, vol. 158, 524 (1967). [5] *Л. К. Аминов, Б. И. Кочелаев*, ЖЭТФ, т. 42 (1962). [6] *В. Р. Нагибаров, И. А. Нагибарова*, Опт. и спектр., т. 20, 814 (1966). [7] *Ф. П. Сафарян*, ДАН АрмССР. т. 72, № 5 (1981).