ЛАЗЕРНОЕ ОХЛАЖДЕНИЕ ЛОКАЛЬНЫХ КОЛЕБАНИЙ В ИОННЫХ КРИСТАЛЛАХ

Т.Ш.Абесадзе, Л.Л.Буишвили, И.И.Топчян

Предложен механизм образования «холодных» точек в находящихся под лазерным облучением ионных кристаллах, связанный с антистоксовским рассеянием лазерного излучения примесными центрами. Методом неравновесного статистического оператора Зубарева получена система кинетических уравнений для обратных температур электронной подсистемы примесных центров и подсистемы локальных фононов. Показано, что наиболее глубокое охлаждение подсистемы локальных фононов имеет место при эффективной релаксации возбужденной лазерным излучением электронной подсистемы и при слабом взаимодействии локальных фононов с другими подсистемами, например с решеткой, со спинами и т.д.

Лазерное охлаждение как свободных, так и связанных в электромагнитных и других ловушках атомных частиц является объектом многочисленных экспериментальных и теоретических работ [1], так как получение достаточно низкой трансляционной температуры (в настоящее время удается достигнуть температур ультрахолодных частиц в мили- и даже в микрокельвиновом диапазонах [2]) позволяет наблюдать практически неподвижную атомную частицу и управлять ее движением, а также движением пучков атомных частиц, что представляет значительный интерес как с точки зрения атомной физики, так и в спектроскопических исследованиях, в области квантовых стандартов частоты и т.д.

Однако существует и другой класс задач, в которых лазерное охлаждение колебательных степеней свободы атома (иона) должно играть немаловажную роль. Эти задачи связаны с исследованием разрушения прозрачных примесных кристаллов под воздействием лазерного излучения. Как известно [3,4], на разрушение таких кристаллов существенное влияние оказывают образующиеся в них «горячие точки», индуцирующие термоупругие напряжения, превышающие предел прочности кристалла. Один из механизмов образования горячих точек связан с разогревом локальных колебаний примеси в результате резонансного взаимодействия электромагнитного лазерного излучения с электронной подсистемой примесного кристалла [5,6]. С другой стороны, очевидно, что термоупругие напряжения могут быть индуцированы и при возникновении в кристаллах «холодных точек», образующихся в результате охлаждения локальных колебаний под воздействием лазерного излучения.

Предлагаемый механизм образования холодных точек в примесных кристаллах аналогичен рассмотренному в [1,7] механизму охлаждения локализованных атомных частиц и связан с антистоксовским рассеянием лазерного излучения примесными центрами (как известно [8], тепловое возбуждение локальных колебаний приводит к возникновению в спектрах люминесценции сдвинутых в антистоксовскую область копий электронно-колебательного спектра, обусловленного взаимодействием электронного перехода только с кристаллическими колебаниями). Предполагается, что на кристалл с примесями, частота электронных переходов которых ω_R (для упрощения расчетов используется двухуровневая модель локального центра), падает излучение лазера с частотой фотонов $\omega < \omega_R$. Электронное возбуждение такого центра возможно только при передачи части колебательной энергии в энергию внутреннего состояния [1]. При $\omega = \omega_R - \omega_\nu$, где ω_ν — частота локальных колебаний примеси, электрон переходит на верхний возбужденный уровень, а энергия локальных колебаний уменьшается при этом на $\hbar\omega_\nu$. Последующая спонтанная релаксация возбужденного состояния сопровождается излучением фотона с энергией $\hbar\omega_R$ без изменения колебательного состояния частицы, т.е. частца теряет энергию и охлаждается. Очевидно, что в рамках рассмотренного механизма процесс лазерного охлаждения колебательных степеней свободы аналогичен оптической накачке, так как он связан с прямой оптической накачкой колебательных степеней свободы примесного центра [7].

В настоящей работе для исследования кинетики процесса охлаждения локальных колебаний используется разработанный Зубаревым метод неравновесного статистического оператора [9,10]. Согласно этому методу, на гидродинамической стадии релаксационного процесса каждой из подсистем можно приписать определенную температуру. Предполагая, что температура фотонной подсистемы $T_f = \infty$, неравновесный статистический оператор можно представить в виде

$$\rho = \rho_q \left\{ 1 + \beta_\nu \int\limits_0^1 d\lambda \int\limits_{-\infty}^0 \left[K_\nu(t, a\lambda A) - \langle K_\nu(t, \lambda A) \rangle_q \right] dt + \right.$$

$$\left. + \beta_R \int\limits_0^1 d\lambda \int\limits_{-\infty}^0 \left[K_R(t, \lambda A) - \langle K_R(t, \lambda A) \rangle_q \right] dt \right\}, \qquad (1)$$

где λ — параметр интегрирования, $\beta_{\nu(R)} = 1/kT_{\nu(R)}$, k — постоянная Больцмана, $T_{\nu(R)}$ — температура электронной (фононной) подсистемы, ρ_q — локально-равновесный статистический оператор, $\rho_q = Z_q^{-1} e^{-A}$, $Z_q = \mathrm{Sp}\, e^{-A}$, $A = \beta_R H_R + \beta_\nu H_\nu$, $H_\nu = \omega_\nu a^+ a$, $H_R = \omega_R R$, a^+, a — операторы рождения и уничтожения локального фонона соответственно, R — эффективный спин электрона, $\langle \ldots \rangle_q = \mathrm{Sp}(\rho_q \ldots)$ означает усреднение по квазиравновесному распределению,

$$K_{\nu(R)}(t, \lambda A) = e^{\lambda A + iHt} K_{\nu(R)} e^{-\lambda A - iHt},$$

H — полный гамильтониан системы

$$H = H_R + H_\nu + H_f + H',$$

где H_f — гамильтониан фотонной подсистемы, $H' = (a^+R + aR^+)h$ — гамильтониан взаимодействия между подсистемами, R^+, R — операторы рождения и уничтожения электрона на верхнем возбужденном уровне соответственно, h — оператор внешнего переменного поля [11] лазерного излучения, $K_{\nu(R)} = i[H', H_{\nu(R)}]$ — поток фононов (электронов).

Используя (1), можно легко определить, аналогично [12], средние потоки электронов и локальных фононов и получить систему кинетических уравнений для обратных температур в следующем виде:

$$\frac{d\beta_\nu}{dt} = -\frac{1}{q_\nu}\Big\{L_{\nu\nu}\beta_\nu + L_{\nu R}\beta_R\Big\}, \tag{2}$$

$$\frac{d\beta_R}{dt} = -\frac{1}{q_R}\Big\{L_{RR}\beta_R + L_{R\nu}\beta_\nu\Big\}, \tag{3}$$

где

$$q_\nu = \omega_\nu^2/4\,\mathrm{sh}^2\,\frac{\beta_\nu\omega_\nu}{2}, \qquad q_R = \omega_R^2/4\,\mathrm{ch}^2\,\frac{\beta_R\omega_R}{2},$$

L — корреляционные функции:

$$L_{\nu\nu} = \int\limits_0^1 d\lambda \int\limits_{-\infty}^0 \langle K_\nu(t, \lambda A)K_\nu\rangle_q dt,$$

$$L_{R\nu} = L_{\nu R} = \int\limits_0^1 d\lambda \int\limits_{-\infty}^0 \langle K_\nu(t, \lambda A)K_R\rangle_q dt.$$

Вычислив корреляторы, уравнения (2) и (3) можно записать в явном виде следующим образом:

$$\frac{d\beta_\nu}{dt} = 2\frac{\alpha}{\omega_\nu}\,\mathrm{sh}\,\frac{\beta_R\omega_R - \beta_\nu\omega_\nu}{2}\,\frac{\mathrm{sh}(\beta_\nu\omega_\nu/2)}{\mathrm{ch}(\beta_R\omega_R/2)}, \tag{4}$$

$$\frac{d\beta_R}{dt} = -2\frac{\alpha}{\omega_R}\,\mathrm{sh}\,\frac{\beta_R\omega_R - \beta_\nu\omega_\nu}{2}\,\frac{\mathrm{ch}(\beta_R\omega_R/2)}{\mathrm{sh}(\beta_\nu\omega_\nu/2)}, \tag{5}$$

где $\alpha = 2\pi h_0^2\delta(\omega_\nu - \omega_R + \omega)$, $h_0^2 = \langle h(t)h\rangle_q/\cos\omega t$. Уравнения (4) и (5) становятся более наглядными, если их выразить через среднее число фононов $n_\nu = [e^{\beta_\nu\omega_\nu} - 1]^{-1}$ и разность населенностей между нижним и верхним электронными уровнями $n_R = \mathrm{th}\,\frac{\beta_R\omega_R}{2}$:

$$\frac{dn_\nu}{dt} = -\frac{\alpha}{2}\Big[n_R(2n_\nu + 1) - 1\Big], \tag{6}$$

$$\frac{dn_R}{dt} = -\alpha\Big[n_R(2n_\nu + 1) - 1\Big]. \tag{7}$$

Решение системы уравнений (6), (7) имеет вид

$$n_\nu(t) = \frac{1}{2A} \frac{p - B + (p + B)Qe^{pt}}{1 - Qe^{pt}}, \tag{8}$$

$$n_R(t) = 1 + 2\left[n_\nu(t) - n_\nu^0\right], \tag{9}$$

где

$$A = -2\alpha, \qquad B = -\alpha(2q + 1), \qquad q = \frac{1}{2}n_R^0 - n_\nu^0,$$

$n_{R(\nu)}^0$ — значения $n_{R(\nu)}$ в начальный момент времени, т.е. до начала лазерного облучения,

$$p = \sqrt{B^2 - 4AC}, \qquad C = \frac{\alpha}{2}(1 - 2q),$$

$$Q = \left(2An_\nu^0 + B - p\right) / \left(2An_\nu^0 + B + p\right).$$

Предполагая, что в начальном состоянии заселены в основном нижние электронные уровни («низкая» начальная температура T_R^0 электронной подсистемы) и, следовательно, $\beta_R^0\omega_R \gg 1$, получим $n_R^0 \approx 1$. При этом, как видно из (8) и (9), в равновесном состоянии

$$n_\nu^s = \frac{1}{2}\left[\sqrt{1 + {n^0}_\nu^2} + n_\nu^0 - 1\right], \tag{10}$$

$$n_R^s = \left[\sqrt{1 + {n^0}_\nu^2} - n_\nu^0\right]. \tag{11}$$

Учитывая, что частота локальных фононов $\omega_\nu \ll \omega_R$ и в начальном состоянии $\beta_R^0 = \beta_\nu^0 \equiv \beta_0$, для фононной системы можно рассмотреть два предельных случая.

1) $\beta_0\omega_\nu \gg 1$ — «низкая» начальная температура локальных фононов. При этом $n_\nu^0 \simeq e^{-\beta_0\omega_\nu} \ll 1$ и, согласно (10) и (11), получим

$$n_\nu^s = \frac{n_\nu^0}{2}, \qquad n_R^s \simeq 1.$$

Таким образом, при слабом тепловом возбуждении локальных фононов и низкой начальной температуре электронной подсистемы лазерное облучение не приводит в рассматриваемой модели к разогреву электронной подсистемы, но обусловливает заметное охлаждение подсистемы локальных фононов. Однако, как показывают оценки, охлаждение подсистемы локальных фононов быстро убывает с ростом начальной температуры T_ν^0.

2) $\beta_0\omega_\nu \ll 1$ — «высокая» начальная температура локальных фононов. В этом случае $n_\nu^0 = (\beta_0\omega_\nu)^{-1}$ и из (10) и (11) следует, что $n_\nu^s \simeq n_\nu^0$, $n_R^s = 0$, т.е. при низкой начальной температуре электронной подсистемы и высокой начальной температуре локальных фононов лазерное облучение хотя и приводит к сильному разогреву (до

насыщения) электронной подсистемы, но не дает заметного охлаждения подсистемы локальных фононов. Таким образом, в отличие от высокотемпературных случаев, встречающихся в магнитном резонансе (имеет место сильное охлаждение резервуара диполь-дипольного взаимодействия под воздействием не точно резонансного переменного магнитного поля [13]), охлаждение подсистемы локальных фононов при учете воздействия только лазерного излучения не имеет места. Это связано с тем, что во вращающейся системе координат [14] теплоемкость $\tilde{c}_R$ двухуровневой системы в рассматриваемом случае гораздо меньше теплоемкости c_ν подсистемы локальных фононов как в начале облучения ($\tilde{c}_{iR} \ll c_{i\nu}$), так и в конечном равновесном состоянии ($\tilde{c}_{fR} \ll c_{f\nu}$), и поэтому температура локальных фононов не меняется (при низкой начальной температуре локальных фононов $\tilde{c}_{iR} \ll c_{i\nu}$, $\tilde{c}_{fR} = c_{f\nu}$, что может привести к охлаждению фононной подсистемы).

Очевидно, что для эффективного охлаждения локальных фононов необходимо включить в рассматриваемую модель дополнительный релаксационный механизм, обеспечивающий возврат электрона с верхнего возбужденного уровня на нижний, что приведет к увеличению эффективного числа электронов на нижнем уровне и, следовательно, к дополнительному оттоку колебательной энергии из подсистемы локальных колебаний. При этом кинетическое уравнение для n_R примет вид

$$\frac{dn_R}{dt} = -\alpha\Big[n_R(2n_\nu + 1) - 1\Big] + \frac{n_R^s - n_R}{\tau_R}, \tag{12}$$

где τ_R — время релаксации, например время спонтанной релаксации электронов. Если τ_R достаточно мало, то второй член в (12) будет преобладать над первым. В этом случае

$$\frac{dn_R}{dt} = \frac{n_R^s - n_R}{\tau_R}, \tag{13}$$

откуда следует, что в стационарном состоянии

$$n_R = n_R^s. \tag{14}$$

Используя (6) и (14), для равновесного числа локальных фононов получим следующее выражение:

$$n_R^s = \left(\frac{1}{n_R^s} - 1\right) \Big/ 2. \tag{15}$$

В случае $n_R^s = 1$, т.е. при достаточно эффективной спонтанной релаксации, когда населенность нижнего электронного уровня не меняется, из (15) имеем

$$n_\nu^s = 0 \tag{16}$$

и, следовательно, имеет место «замораживание» локальных колебаний.

В наиболее общем случае релаксационный член можно ввести и в уравнение (6)

$$\frac{dn_\nu(t)}{dt} = -\frac{\alpha}{2}\Big[n_R(2n_\nu + 1) - 1\Big] + \frac{N_\nu^s - n_\nu}{\tau_\nu}, \tag{17}$$

где τ_ν — время, определяемое взаимодействием локальных фононов с какой-либо другой подсистемой, например с решеткой, N_ν^s — равновесное число локальных фононов при малых временах релаксации τ_ν, когда второй член в (17) преобладает над первым. Из (13) и (17) для равновесного числа локальных фононов получим

$$n_\nu^s = \frac{N_\nu^s}{1 + \alpha\tau_\nu n_R^s} + \frac{1}{2}\left(\frac{1}{n_R^s} - 1\right)\frac{\alpha\tau_\nu n_R^s}{1 + \alpha\tau_\nu n_R^s}. \tag{18}$$

При $n_R^s = 1$ второй член в (18) равен нулю, и равновесное число фононов в стационарном состоянии определяется в виде

$$n_\nu^s = \frac{N_\nu^s}{1 + \alpha\tau_\nu}. \tag{19}$$

Если время релаксации τ_ν достаточно мало (τ_ν гораздо меньше характерного времени электронно-колебательного взаимодействия примесного центра с лазерным излучением; быстрая релаксация), т.е. $\alpha\tau_\nu \ll 1$, из (19) следует, что $n_\nu^s = N_\nu^s$. В случае $\alpha\tau_\nu \sim 1$ $n_\nu^s < N_\nu^s$, а при $\alpha\tau_\nu \to \infty$ $n_\nu^s \to 0$, и, следовательно, взаимодействие локальных фононов с решеткой или другими подсистемами, например со спинами, препятствует их охлаждению.

Таким образом, наиболее глубокое охлаждение локальных фононов имеет место в случае сильной релаксации возбужденной лазером электронной подсистемы примесного кристалла и слабого взаимодействия локальных фононов с другими подсистемами (наличие «узкого горла» [5,6] в канале обмена энергий между подсистемами локальных и кристаллических фононов способствует образованию холодных точек в облученных лазером ионных кристаллах, если частота лазерного излучения меньше частоты электронных переходов примесных центров).

В качестве объекта, удобного для экспериментального исследования, рассмотрим атом водорода в междоузельном положении в ЩГК, например систему $\mathrm{KCl:H_i^0}$. Диаметр междоузельной «дырки» в кристалле KCl приблизительно равен 2.3 Å, и поэтому атом водорода слабо возмущен окружающей средой [15]. В этом случае для спектральных линий из серии Бальмера $\omega_R \sim 10^{15}\ \mathrm{s}^{-1}$ [16], а частота локальных колебаний $\omega_\nu \sim 10^{13}\ \mathrm{s}^{-1}$ [17]. Для обнаружения эффекта охлаждения локальных колебаний необходимо, чтобы время спонтанной релаксации τ_r было гораздо меньше времени τ_d диффузионного распространения тепла по образцу. Принимая во внимание, что при комнатных температурах и учете лишь наиболее интенсивных дипольных переходов электронов в видимой части спектра $\tau_R \sim \tau_d \sim 10^{-9}$ s, экспериментальное исследование рассматриваемой системы следует проводить при достаточно низких температурах, при которых и стабильны рассматриваемые U_2-центры (при $T \sim 100°$ K атомы водорода $\mathrm{H_i^\circ}$ становятся подвижными и объединяются в молекулы $\mathrm{H_2}$).

Отметим, что в случае примесных центров с вырожденным возбужденным состоянием электрона необходимо предварительно снять вырождение возбужденного уровня, чтобы избежать проявления эффекта Яна–Теллера [17].

Список литературы

[1] Миногин В.Г., Летохов В.С. Давление лазерного излучения на атомы. М.: Наука, 1986. 222 с.

[2] Коротеев Н.И., Шумай И.Л. Физика мощного лазерного излучения. М.: Наука. 1991. 310 с.

[3] Асеев Г.И., Кац М.Л. // ФТТ. 1972. Т. 14. № 5. С. 1303–1307.

[4] Горшков Б.Г., Данилейко Ю.К., Маненков А.А., Прохоров А.М., Сидорин А.В. // Квантовая электрон. 1981. Т. 8. № 1. С. 148–154.

[5] Kovarskii V.A., Popov E.A., Chaikovskii I.A. // Phys. Stat. Sol. 1975, V. 67. N 2. P. 427–433.

[6] Буишвили Л.Л., Топчян И.И. // ФТТ. 1985. Т. 27. № 4. С. 1082–1087.

[7] Wineland D.J., Itano Wayne M. // Phys. Rev. 1979. V. 20. N 4. P. 1521–1540.

[8] Ребане К.К. Элементарная теория колебательной структуры спектров примесных центров кристаллов. М.: Наука, 1968. 232 с.

[9] Зубарев Д.Н. Неравновесная статистическая термодинамика. М., 1971.

[10] Александров И.В. Теория магнитной релаксации. М.: Наука, 1975. 400 с.

[11] Буишвили Л.Л. // ФТТ. 1967. Т. 9. № 8. С. 2157–2162.

[12] Буишвили Л.Л., Топчян И.И. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 3. С. 60–63.

[13] Гольдман М. Спиновая температура и ЯМР в твердых телах. М.: Мир, 1972. 342 с.

[14] Абрагам А. Ядерный магнетизм. М.: ИЛ, 1963, 551 с.

[15] Delbeeq C., Smaller B., Yuster P. // Phys. Rev. 1956. V. 104. N 3. P. 599.

[16] Фриш С.Э. Оптические спектры атомов. М.: ФМ, 1963. 640 с.

[17] Кристофель Н.Н. Теория примесных центров малых радиусов в ионных кристаллах. М.: Наука, 1974. 336 с.

Институт физики АН Грузии
Тбилиси

Поступило в Редакцию
27 мая 1993 г.
В окончательно редакции
12 июля 1994 г.