УДК 535.37 : 548.0

К ТЕОРИИ РАСПРОСТРАНЕНИЯ ТЕРАГЕРЦЕВЫХ ФОНОНОВ В КРИСТАЛЛЕ CaF_2: Eu^{2+}

К. Л. Аминов

Рассматривается распространение фононов в резонансной среде с учетом ангармонического распада и упругого рассеяния на дефектах.

В настоящей работе исследуется распространение неравновесных фононов (НФ) в диэлектрическом кристалле, содержащем резонансные центры рассеяния. На основе кинетических уравнений, учитывающих резонансное рассеяние, ангармонический распад фононов и упругое рассеяние на дефектах, получено уравнение переноса простого вида. Проанализированы различные режимы распространения НФ, возникающие при соответствующих условиях. Особое внимание уделяется режиму нелокального распространения, обусловленному анизотропией резонансного рассеяния [1]. Получены асимптотические выражения для коэффициента переноса при различной симметрии резонансных центров. На основе развитой теории проводится интерпретация экспериментальных данных по распространению НФ в CaF_2 : Eu^{2+} [2].

1. Уравнение переноса

Рассмотрим кристалл, содержащий примесные двухуровневые центры. Считаем, что рассеяние фононов на таких центрах является анизотропным. Такие центры могут быть получены в результате оптического возбуждения, поэтому введем τ_l — время излучательного распада центров. Также считаем, что концентрация центров достаточно мала, чтобы не учитывать эффекты когерентного рассеяния и взаимодействия центров между собой. Будем рассматривать достаточно низкие температуры, при которых большинство центров находится в основном состоянии. Это также упрощает рассмотрение ангармонических процессов, так как для фононов с частотой $\nu \gg T$ основным процессом является распад на низкочастотные фононы. Процесс ангармонического распада будем считать изотропным и введем время жизни фонона частоты ν относительно ангармонического распада $\tau_a(\nu)$. Также будем считать изотропным процесс упругого рассеяния на дефектах и введем $\tau_d(\nu)$ — время жизни фононов относительно упругого рассеяния. Для описания неравновесной фононной подсистемы введем функцию $n_{\mathbf{q}j}(\mathbf{r}, t)$ — концентрация фононов моды $\mathbf{q}j$ в точке $\mathbf{r}$ в момент времени t. Для описания неравновесной подсистемы центров, как было показано в [3, 4], необходимо ввести спектральную плотность концентрации возбужденных центров $N(\nu, \mathbf{r}, t)$. При этом $N(\mathbf{r}, t)=\int d\nu N(\nu, \mathbf{r}, t)$ — концентрация возбужденных центров в точке $\mathbf{r}$ в момент времени t. Считая отклонения от равновесия малыми, запишем линеаризованные кинетические уравнения в виде

$$\frac{\partial}{\partial t}N(\nu,\ \mathbf{r},\ t)+\left(\frac{1}{\tau}+\frac{1}{\tau_l}\right)N(\nu,\ \mathbf{r},\ t)=\sum_j\int\frac{d^3q}{(2\pi)^3}\delta(\nu-\nu_{\mathbf{q}j})\frac{n_{\mathbf{q}j}(\mathbf{r},\ t)}{\tau_R(\mathbf{q}j)},\tag{1}$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial t}+\mathbf{v}_{\mathbf{q}j}\nabla\right)n_{\mathbf{q}j}(\mathbf{r},\ t)=-\frac{1}{\tau_R(\mathbf{q}j)}\left(n_{\mathbf{q}j}(\mathbf{r},\ t)-\frac{\tau_R(\nu_{\mathbf{q}j})N(\nu_{\mathbf{q}j},\ \mathbf{r},\ t)}{\tau\rho_0}\right)-$$
$$-\frac{1}{\tau_d(\nu_{\mathbf{q}j})}(n_{\mathbf{q}j}(\mathbf{r},\ t)-n(\nu_{\mathbf{q}j},\ \mathbf{r},\ t))-\frac{1}{\tau_a(\nu_{\mathbf{q}j})}n_{\mathbf{q}j}(\mathbf{r},\ t).\tag{2}$$

Здесь τ — время релаксации центра в решетку; $\tau_R(\mathbf{q}j)$ — время жизни фонона моды $\mathbf{q}j$ относительно резонансного рассения; $\mathbf{v}_{\mathbf{q}j}$ — групповая скорость фонона $\mathbf{q}j$; $\tau_R(\nu)^{-1}=\langle\tau_R(\mathbf{q}j)^{-1}\rangle_\nu$; $n(\nu,\mathbf{r},t)=n_{\mathbf{q}j}(\mathbf{r},t)\rangle_\nu$, где

$$\langle f\rangle_\nu=\frac{1}{\rho_0}\sum_j\int\frac{d^3q}{(2\pi)^3}f\delta(\nu-\nu_{qj}),\quad \rho_0=\sum\int\frac{d^3q}{(2\pi)^3}\delta(\nu-\nu_{qj}).$$

Полная спектральная плотность возбуждений, определяемая как $J(\nu,\mathbf{r},t)=n(\nu,\mathbf{r},t)+N(\nu,\mathbf{r},t)/\rho_0$, удовлетворяет уравнению непрерывности

$$\frac{\partial}{\partial t}J(\nu,\ \mathbf{r},\ t)+\operatorname{div}\mathbf{Q}(\nu,\ \mathbf{r},\ t)=-\frac{1}{\tau_a(\nu)}n(\nu,\ \mathbf{r},\ t)-\frac{1}{\tau_l\rho_0}N(\nu,\ \mathbf{r},\ t),\tag{3}$$

где $\mathbf{Q}(\nu,\mathbf{r},t)=\langle\mathbf{v}_{\mathbf{q}j}n_{\mathbf{q}j}(\mathbf{r},t)\rangle_\nu$.

Используя пространственное преобразование Фурье $f(\mathbf{k})=\int d^3rf(\mathbf{r})\exp(-i\mathbf{kr})$, преобразуем уравнения (1)—(3) к виду

$$\frac{\partial}{\partial t}P(\nu,\ \mathbf{k},\ t)+\left(\frac{1}{\tau}+\frac{1}{\tau_l}\right)P(\nu,\ \mathbf{k},\ t)=\left\langle\frac{n_{\mathbf{q}j}(\mathbf{k},\ t)}{\tau_R(\mathbf{q}j)}\right\rangle_\nu,\tag{1a}$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial t}+i\mathbf{k}\mathbf{v}_{\mathbf{q}j}\right)n_{\mathbf{q}j}(\mathbf{k},\ t)=-\frac{1}{\tau_R(\mathbf{q}j)}\left(n_{\mathbf{q}j}(\mathbf{k},\ t)-\frac{\tau_R(\nu_{\mathbf{q}j})}{\tau}P(\nu_{\mathbf{q}j},\ \mathbf{k},\ t)\right)-$$
$$-\frac{1}{\tau_d(\nu_{\mathbf{q}j})}(n_{\mathbf{q}j}(\mathbf{k},\ t)-n(\nu_{\mathbf{q}j},\ \mathbf{k},\ t))-\frac{1}{\tau_a(\nu_{\mathbf{q}j})}n_{\mathbf{q}j}(\mathbf{k},\ t),\tag{2a}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}J(\nu,\ \mathbf{k},\ t)+i\mathbf{k}\mathbf{Q}(\nu,\ \mathbf{k},\ t)=-\frac{1}{\tau_a(\nu)}n(\nu,\ \mathbf{k},\ t)-\frac{1}{\tau_l}P(\nu,\ \mathbf{k},\ t).\tag{3a}$$

Здесь $P(\nu,\mathbf{k},t)=N(\nu,\mathbf{k},t)/\rho_0$. Отметим, что уравнения с различными $\mathbf{k}$ являются независимыми.

Рассмотрим условия, при которых может установиться квазиравновесное состояние в системе фононов и центров. Из (1a) следует, что при $t\gg(\tau^{-1}+\tau_l^{-1})^{-1}$

$$P(\nu,\ \mathbf{k},\ t)\simeq(\tau^{-1}+\tau_l^{-1})^{-1}\left\langle\frac{n_{\mathbf{q}j}(\mathbf{k},\ t)}{\tau_R(\mathbf{q}j)}\right\rangle_\nu.\tag{4}$$

С другой стороны, из (2a) следует, что при $t\gg\tau_{\mathbf{q}j}$, где $\tau_{\mathbf{q}j}=\left(\tau_R(\mathbf{q}j)^{-1}+\right.$ $\left.+\tau_d(\nu_{\mathbf{q}j})^{-1}+\tau_a(\nu_{\mathbf{q}j})^{-1}\right)^{-1}$,

$$n_{\mathbf{q}j}(\mathbf{k},\ t)\simeq(i\mathbf{k}\mathbf{v}_{\mathbf{q}j}+\tau_{\mathbf{q}j}^{-1})^{-1}\left(\frac{\tau_R(\nu_{\mathbf{q}j})}{\tau\tau_R(\mathbf{q}j)}P(\nu_{\mathbf{q}j},\ \mathbf{k},\ t)+\frac{n(\nu_{\mathbf{q}j},\ \mathbf{k},\ t)}{\tau_d(\nu_{\mathbf{q}j})}\right).\tag{5}$$

Соответственно

$$n(\nu,\ \mathbf{k},\ t)\simeq(1-\tau_d(\nu)^{-1}\langle(i\mathbf{k}\mathbf{v}_{\mathbf{q}j}+\tau_{\mathbf{q}j}^{-1})^{-1}\rangle_\nu)^{-1}\frac{\tau_R(\nu)\,\tau_R(\mathbf{q}j)^{-1}}{\tau(i\mathbf{k}\mathbf{v}_{\mathbf{q}j}+\tau_{\mathbf{q}j}^{-1})}P(\nu,\ \mathbf{k},\ t).\tag{6}$$

Если размер пространственных неоднородностей $L\gg\mathbf{v}_{\mathbf{q}j}\tau_{\mathbf{q}j}$, что соответствует диффузионному режиму распространения фононов, $k\sim1/L$, и можно пренебречь $\mathbf{k}\mathbf{v}_{\mathbf{q}j}$ по сравнению с $\tau_{\mathbf{q}j}^{-1}$. При этом

$$\left\langle \frac{\tau_R(\mathbf{q}j)^{-1}}{i\mathbf{k}\mathbf{v}_{\mathbf{q}j} + \tau_{qj}^{-1}} \right\rangle_\nu \simeq 1 - (\tau_d(\nu)^{-1} + \tau_a(\nu)^{-1})\,\tau_{ph}(\nu),$$

где

$$\tau_{ph}(\nu) = \langle \tau_{\mathbf{q}j} \rangle_\nu, \quad \langle (i\mathbf{k}\mathbf{v}_{\mathbf{q}j} + \tau_{\mathbf{q}j}^{-1})^{-1} \rangle_\nu \simeq \tau_{ph}(\nu).$$

Выразив, таким образом, $n(\nu)$ через $P(\nu)$, используя (5), из (4) получим

$$P(\nu,\ \mathbf{k},\ t)\left[\tau_R(\nu)^{-1}\left(1 + \frac{\tau}{\tau_l}\right) + \left(1 - \frac{\tau_d(\nu)}{\tau_{ph}(\nu)}\right)^{-1}\{1 - (\tau_d(\nu)^{-1} + \tau_a(\nu)^{-1})\,\tau_{ph}(\nu)\} - \right.$$

$$\left. - \left\langle \frac{\tau_{\mathbf{q}j}}{\tau_R(\mathbf{q}j)^2} \right\rangle \right] \simeq 0. \qquad (7)$$

Равенство (7) выполняется либо при $P(\nu, \mathbf{k}, t) = 0$, либо при равенстве нулю содержимого квадратных скобок. Если (7) выполняется при $P(\nu, \mathbf{k}, t) \neq 0$, это означает, что устанавливается квазиравновесное состояние, которое описывается одним параметром $P(\nu, \mathbf{k}, t)$. Таким образом, из (7) можно получить условия установления квазиравновесия: во-первых, $\tau_l \gg \tau$; во-вторых, должно выполняться условие $\tau_R(\nu) \sim \tau_{ph}(\nu)$ либо условие $\tau_a(\nu) \gg \tau_d(\nu)$.

Первое условие означает, что центры должны приходить в равновесие с фононами раньше, чем происходит излучательный распад центров. Второе условие фактически означает, что равновесие в фононной подсистеме должно устанавливаться раньше, чем происходит ангармонический распад фононов.

Полагая, что в системе устанавливается квазиравновесие, получим уравнение переноса. Выражая с помощью (5), (6) $n_{\mathbf{q}j}$ и $P(\nu)$ через $n(\nu)$, можно выразить через $n(\nu)$ спектральную плотность возбуждений $J(\nu)$, а также поток возбуждений $\mathbf{Q}(\nu)$. Тогда из (3а) получим уравнение переноса в виде

$$\partial/\partial t\, n(\nu,\ \mathbf{k},\ t) + G(\mathbf{k},\ \nu)\, n(\nu,\ \mathbf{k},\ t) = (-1/\tau^*(\nu))\, n(\nu,\ \mathbf{k},\ t), \qquad (8)$$

где

$$\tau^*(\nu) = \left(1 + \frac{\tau}{\tau_R(\nu)}\right)\left(\tau_a(\nu)^{-1} + \tau_l^{-1}\frac{\tau}{\tau_R(\nu)}\right)^{-1}, \qquad (9)$$

$$G(\mathbf{k},\ \nu) = \left(1 + \frac{\tau}{\tau_R(\nu)}\right)^{-1}\left\langle \frac{(\mathbf{k}\mathbf{v}_{\mathbf{q}j})^2\,\tau_{\mathbf{q}j}^{-1}}{(\mathbf{k}\mathbf{v}_{\mathbf{q}j})^2 + \tau_{\mathbf{q}j}^{-2}} \right\rangle_\nu . \qquad (10)$$

Так как $G(\mathbf{k}, \nu) \to 0$ при $\mathbf{k} \to 0$, соответствующий член в (8) описывает пространственный перенос возбуждений. Правая часть (8) описывает уменьшение числа возбуждений во всем объеме за счет ангармонического распада фононов и излучательного распада центров.

2. Различные режимы распространения фононов

а) Ангармонический распад. В пространственно-однородном случае имеем $\mathbf{k} = 0$. Уравнение (8) принимает вид

$$(\partial/\partial t)\, n(\nu,\ t) + (1/\tau^*(\nu)\, n(\nu,\ t) = 0. \qquad (11)$$

В случае $\tau \ll \tau_R(\nu)$ $\tau^*(\nu) \simeq \tau_a(\nu)$, что позволяет непосредственно наблюдать ангармонический распад фононов.

б) Диффузионное распространение фононов (изотропное рассеяние). В случае, когда длина свободного пробега фононов $\lambda_{\mathbf{q}j}$ мала в масштабе пространственных неоднородностей возбуждения L и не зависит от направления $\mathbf{q}$, (8) переходит в диффузионное уравнение

$$(\partial/\partial t)\, n(\nu,\ \mathbf{k},\ t) + D(\nu)\, k^2 n(\nu,\ \mathbf{k},\ t) = (-1/\tau^*(\nu))\, n(\nu,\ \mathbf{k},\ t), \qquad (12)$$

где
$$D(\nu)=(1/3)(1+\tau/\tau_R(\nu))^{-1}v^2\tau_{ph}(\nu), \qquad (13)$$
v — средняя скорость фононов. Из (13) видно, что за счет пленения фононов центрами коэффициент диффузии уменьшается. Формулы (12), (13) дополняют результат, полученный в [3, 4], учитывая рассеяние на дефектах и ангармонический распад.

в) Распространение фононов в анизотропной среде. В анизотропных кристаллах $\tau_{\mathbf{q}j}$ является функцией направления волнового вектора $\mathbf{q}$ фонона, определяемой симметрией уровней центров резонансного рассеяния. При некоторых направлениях $\mathbf{q}$ $\tau_{\mathbf{q}j}^{-1}$ может обратиться в нуль (если пренебречь τ_d^{-1} и τ_a^{-1}). В некоторых случаях это может привести к расходимости τ_{ph}. Как показано в [1, 5], это соответствует нелокальности процесса распространения фононов, поскольку перенос возбуждения происходит за счет фононов с большой длиной свободного пробега, распространяющихся вдоль «выгодных» направлений. Для того чтобы этот механизм распространения проявился, должно быть исключено влияние изотропных механизмов рассеяния. Из (10) видно, что основной вклад в $G(\mathbf{k}, \nu)$ дают фононы с $\tau_{\mathbf{q}j}^{-1}\sim kv_{qj}$. Следовательно, данный механизм проявляется на расстояниях $L\ll\lambda_d$, где λ_d — длина свободного пробега фононов относительно изотропного рассеяния на дефектах.

Нами были проведены модельные расчеты асимптотических выражений для $G(\mathbf{k}, \nu)$ при $k\to 0$ для центров различной симметрии.

Пусть взаимодействие центра с решеткой описывается гамильтонианом
$$\mathcal{H}_{e-ph}=\sum_{\lambda\Gamma}V_\lambda(\Gamma)\,e_\lambda(\Gamma), \qquad (14)$$
где $V_\lambda(\Gamma)$ — операторы, определенные в пространстве состояний центра; $e_\lambda(\Gamma)=\sum_{\alpha\beta}c(\lambda\Gamma\mid\alpha\beta)e_{\alpha\beta}$ — линейные комбинации компонент тензора динамической деформации $e_{\alpha\beta}$, преобразующиеся по строке λ неприводимого представления Γ точечной группы симметрии центра. Для фононов моды $\mathbf{q}j$
$$\tau_{\mathbf{q}j}^{-1}=\frac{\pi\nu_{\mathbf{q}j}}{\rho\hbar v_{\mathbf{q}j}^2}n_{ex}g(\nu_{\mathbf{q}j})\left|\sum_{\alpha\beta}V_{\alpha\beta}(q_\alpha e_\beta(\hat{\mathbf{q}}j)+q_\beta e_\alpha(\hat{\mathbf{q}}j))/2q\right|^2. \qquad (15)$$
Здесь ρ — плотность кристалла; n_{ex} — объемная концентрация центров; $g(\nu)$ — форма линии, нормированная соотношением $\int g(\nu)\,d\nu=1$; $e_\alpha(\hat{\mathbf{q}}j)$ — компоненты вектора поляризации моды $\mathbf{q}j$; $V_{\alpha\beta}=\sum_{\lambda\Gamma}c(\lambda\Gamma\mid\alpha\beta)\langle 1\mid V_\lambda(\Gamma)\mid 2\rangle$.

Решетку будем рассматривать в модели изотропного упругого континуума. В этой модели решеточные колебания имеют одну продольную и две поперечные ветви. Соответственно $\nu_{\mathbf{q}1}=v_lq/2\pi$, $\nu_{\mathbf{q}2}=\nu_{\mathbf{q}3}=v_tq/2\pi$.

Направление поляризации продольной моды совпадает с направлением волнового вектора. Поляризация поперечных мод может быть выбрана произвольно из-за вырождения. Выберем ее так, что $\mathbf{q}=q(\sin\vartheta,\cos\varphi,\sin\vartheta,\sin\varphi,\cos\vartheta)$, $\mathbf{e}(\hat{\mathbf{q}}1)=(\sin\vartheta\cos\varphi,\ \sin\vartheta\sin\varphi,\ \cos\vartheta)$, $\mathbf{e}(\hat{\mathbf{q}}2)=(\cos\vartheta\cos\varphi,\ \cos\vartheta\sin\varphi,\ -\sin\vartheta)$, $\mathbf{e}(\hat{\mathbf{q}}3)=(-\sin\vartheta,\ \cos\varphi,\ 0)$ в системе координат, где ось z совпадает с одной из осей симметрии кристалла.

Для случая, когда $\langle 1\mid\mathcal{H}_{e-ph}\mid 2\rangle=\mathbf{V}(e_{xz}+ie_{yz})$, получим
$$\tau_R(\nu)^{-1}=\frac{3+2\gamma^5}{2+\gamma^3}\,\frac{\pi\nu}{15\rho\hbar v_t^2}\,n_{ex}g(\nu)\,|V|^2, \qquad (16)$$
$$G(\mathbf{k},\nu)\simeq(\tau+\tau_R(\nu))^{-1}(kv_t\tau_R(\nu))^{3/2}\{\gamma^{1/2}B_l(\theta_k)+B_{t_1}(\theta_k)+B_{t_2}(\theta_k)\}, \qquad (17)$$
$$B_\alpha(\theta)=\beta_\alpha(\theta)(3+2\gamma^5)^{1/2}/4\sqrt{15}\,(2+\gamma^3)^{3/2},\quad \gamma=v_t/v_l,$$
$$\beta_l(\theta)=[\Gamma(1/4)]^2\,|\sin\theta|^{3/2}/3\sqrt{\pi},\quad \beta_{t_1}(\theta)=2\beta_l(\theta),$$

$$\beta_{t_2}(\theta)=\sqrt{2}\int\limits_0^{2\pi} d\varphi\,|\cos\theta+\sin\theta\cos\varphi|^{3/2}.$$

Здесь θ_k, Φ_k — сферические координаты вектора $\mathbf{k}$.

Приведем еще в качестве примера результат вычислений для случая, когда $\langle 1\ |\ \mathscr{H}_{e-\mathrm{ph}}\ |\ 2\rangle = V\,(e_{xx}-e_{yy})$. В этом случае

$$\tau_R(\nu)^{-1}=\frac{3+2\gamma^5}{2+\gamma^3}\,\frac{2\pi\nu}{15\rho\hbar v_t^2}\,g(\nu)\,n_{\mathrm{ex}}\,|V|^2, \tag{18}$$

$$G(\mathbf{k},\ \nu)\simeq(\tau+\tau_R(\nu))^{-1}B(\theta_k,\ \varphi_k)\,(kv_t\tau_R(\nu))^{3/2}\ln(kv_t\tau_R(\nu))^{-1}, \tag{19}$$

где

$$B(\theta,\ \varphi)=\frac{3+2\gamma^5}{4\sqrt{15}\,(2+\gamma^3)^{3/2}}\left\{\sqrt{\gamma}\,|\cos\theta|^{3/2}+|\sin\theta|^{3/2}\times\right.$$

$$\left.\times\left[|\cos(\varphi-\pi/4)|^{3/2}+|\cos(\varphi+\pi/4)|^{3/2}\right]\right\}.$$

3. Расчет для реальных систем. $CaF_2 : Eu^{2+}$.

Используем изложенную теорию для интерпретации экспериментальных данных по флуоресцентному детектированию неравновесных фононов в $CaF_2 : Eu^{2+}$ [2, 6]. Схема эксперимента приведена на рис. 1. Монокристалл $CaF_2 : Eu^{2+}$ в форме параллелепипеда подвергался при $T=1.5$ K упругому одноосному сжатию вдоль оси [001]. Деформация вызывает расщепление нижнего уровня Γ_8^+ возбужденной $4f^65d$-конфигурации Eu^{2+} [7]. Через боковую грань образец возбуждается лучом импульсного азотного лазера. При этом можно изменять диаметр сфокусированного луча. В процессе безызлучательной релаксации из верхних состояний происходит заселение деформационных подуровней W_1 и W_2. Поскольку вероятность перехода $W_1 \rightarrow W_2$ с испусканием резонансных акустических фононов значительно больше вероятности излучательного $d\rightarrow f$-перехода ($\tau_l \simeq 0.6$ мкс [8]), в оптически возбужденном объеме происходит инжекция неравновесных фононов, резонансно взаимодействующих с двухуровневой системой W_1, W_2. Измеряя временнóй ход импульсов флуоресценции с уровней W_1, W_2, можно исследовать кинетику ухода фононов из возбужденного объема. При этом изменением величины деформации можно варьировать частоту перехода $W_1 \rightarrow W_2$. В [2, 6] были получены зависимости времени жизни неравновесных фононов от величины расщепления.

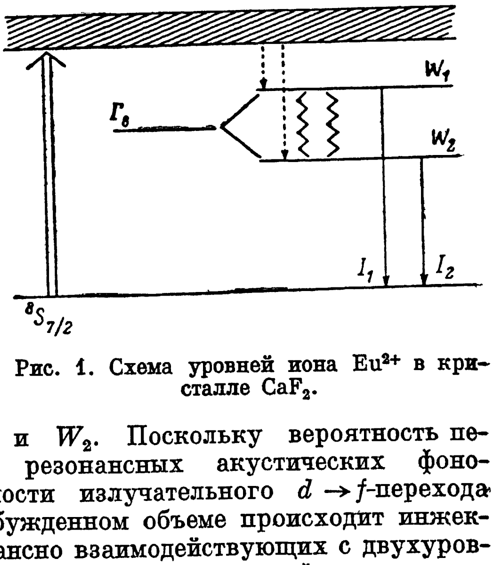

Рис. 1. Схема уровней иона Eu^{2+} в кристалле CaF_2.

Будем считать, что неоднородность деформаций при сжатии, а также изотропное упругое рассеяние на дефектах не дают проявиться описанному выше механизму нелокального распространения фононов и фононы распространяются диффузионным образом. Тогда время жизни $\tau_{\mathrm{п}}$ неравновесных фононов в возбужденном объеме с характерным размером L определяется соотношением

$$\tau_{\mathrm{п}}=(\tau^*(\Delta)^{-1}+D(\Delta)/L^2)^{-1}, \tag{20}$$

где Δ — величина расщепления дублета, τ^* определяется соотношением (9),

$$D(\Delta)=v^2/3\,(\tau_R(\Delta)^{-1}+\tau_d(\Delta)^{-1})\,(1+\tau/\tau_R(\Delta)), \tag{21}$$

v — средняя скорость звука, определяемая в модели изотропного кристалла соотношением $v^2=v_t^2(2+\gamma)/(2+\gamma^3)$.

Ангармоническое затухание и рассеяние на дефектах представим в виде $\tau_a(\Delta)^{-1}=a\Delta^5$, $\tau_d(\Delta)^{-1}=d\Delta^4$. Из (15) видно, что для резонансного рассеяния $\tau_R(\Delta)^{-1}\ a\ \Delta g(\Delta)\ n_{ex}b^2$, где b — эффективная константа электрон-фононного взаимодействия для переходов внутри дублета Γ_8^+. Будем считать, что $\Delta g(\Delta)=\mathrm{const}$.

Концентрацию возбужденных центров можно определить из соотношения

$$n_{ex}\simeq P\tau_{\text{имп}}\lambda k_{\text{п}}/\pi hcL^2, \tag{22}$$

где P — импульсная мощность лазера, $\tau_{\text{имп}}$ — длительность импульса, λ — длина волны излучаемого лазером света, $k_{\text{п}}$ — коэффициент поглощения света в кристалле, L — диаметр луча лазера, c — скорость света. При $P=1$ кВт, $\tau_{\text{имп}}\simeq 10$ нС, $\lambda=3370$ Å [5], взяв $k\sim 10$ см$^{-1}$, при $L\simeq0.3$ мм получим $n_{ex}\sim 10^{17}$ см$^{-3}$. Следовательно, $\tau_R(\Delta)^{-1}=Rb^2/L^2$. Рассмотрим вза-

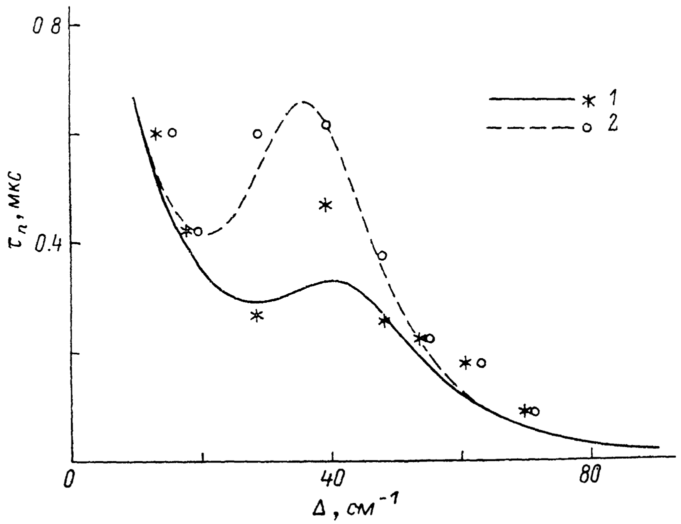

Рис. 2. Зависимость времени жизни фононов в возбужденном объеме от величины расщепления дублета.

имодействие ионов Eu^{2+} с решеткой, используя результаты работы [7]. Для компонент дублета W_1 и W_2 имеем $\langle W_1\,|\,\mathscr{H}_{e\text{-}ph}\,|\,W_2\rangle=\sqrt{3}\,b\,(e_{xx}-e_{yy})$. Однако, кроме дублета Γ_8^+, необходимо также учитывать уровень Γ_6^+, расположенный на 15.3 см$^{-1}$ выше дублета. При деформации происходит перемешивание волновых функций Γ_6^+ и Γ_8^+. Это приводит к существенному уменьшению эффективной константы b, которую поэтому также необходимо рассматривать как функцию Δ. Например, при $\Delta=0$ $b=3.5$ см$^{-1}$, а при $\Delta=20$ см$^{-1}$ $b=1.2$ см$^{-1}$.

Время спин-решеточной релаксации в модели изотропного кристалла

$$\tau^{-1}=(\Delta^3b^2/5\pi\rho\hbar^3)(6v_t^{-5}+4v_l^{-5}). \tag{23}$$

На рис. 2 приведены зависимости $\tau_{\text{п}}$ от Δ при $L=0.3$ (*1*) и 0.6 мм (*2*) и экспериментальные точки из работы [2]. Кривые получены при значениях параметров: $\rho=3.5$ г/см^3, $v_l=7\cdot10^5$, $v_t=3.5\cdot10^5$ см/с, $\tau l=0.6$ мкс, $a=8\cdot10^{-3}$ с$^{-1}$ (см$^{-1}$)$^{-5}$, $d=6.3$/с$^{-1}$ (см$^{-1}$)$^{-4}$, $R=6.4\cdot10^{-3}$ с$^{-1}$ (см)^2 (см$^{-1}$)$^{-2}$. На участке $\Delta<20$ см$^{-1}$ $\tau_{\text{п}}$ определяется резонансным пленением фононов. Зависимость от L отсутствует, поскольку возрастание времени выхода возбуждений из возбужденного объема за счет увеличения объема компенсируется уменьшением времени выхода за счет увеличения коэффициента диффузии, связанного с уменьшением концентрации резонансных центров при одинаковой мощности накачки. При $20 < \Delta < 40$ см$^{-1}$ возрастает упругое рассеяние на дефектах, и именно оно определяет теперь время ухода фононов из возбужденного объема. Появляется характерная диффузионная зависимость $\tau_п$ от L. При $\Delta > 40$ см$^{-1}$ упругое рассеяние столь велико, что фононы не выходят из возбужденного объема и их время жизни определяется ангармоническим распадом.

Сравним значения параметров приведенных кривых с имеющимися данными. Результаты теоретического расчета ангармонического затухания фононов в CaF_2 можно найти в работах [9, 10]. Из [9] имеем $a \simeq 2 \times \times 10^{-3}$с$^{-1}$ (см$^{-1}$)$^{-5}$, что хорошо согласуется с нашим значением. Постоянная упругого рассеяния может быть определена по данным эксперимента [11] по измерению рассеяния фононов в CaF_2 : 0.001 % Eu^{2+}. По этим данным $d \simeq 12$ с$^{-1}$ (см$^{-1}$)$^{-4}$. Наш параметр находится в разумном согласии с этим значением. Среднее время резонансного рассеяния (18) дает $R \sim 1$ с$^{-1}$ (см)^2 (см$^{-1}$)$^{-2}$, если считать, что при $\Delta = 60$ см$^{-1}$ неоднородное уширение составляет порядка 1 см$^{-1}$. Такое расхождение с параметром, использованным для построения кривой, легко объяснить, во-первых, сильной анизотропией, за счет которой основной уход возбуждений определяется фононами, слабо рассеивающимися на центрах, или, с формальной точки зрения, $\langle \tau_{\mathbf{q}j} \rangle^{-1} \neq \langle \tau_{\mathbf{q}j}{}^{-1} \rangle$. Во-вторых, концентрация резонансных центров падает за счет люминесценции за время, сравнимое с временем жизни фононов.

Более детальное экспериментальное исследование времени жизни фононов в области малых расщеплений $\Delta \sim 10$ см$^{-1}$, вероятно, было бы полезным, поскольку в этой области ангармонический распад и рассеяние на дефектах становятся неэффективными и можно пытаться искать проявления анизотропного нелокального распространения фононов.

Список литературы

[1] Аминов К. Л., Малкин Б. З. // Письма в ЖЭТФ. 1988. Т. 48. N 9. С. 508—510.
[2] Акимов А. В., Каплянский А. А., Сыркин А. Л. // Письма в ЖЭТФ. 1981. Т. 33. № 8. С. 410—413.
[3] Левинсон И. Б. // ЖЭТФ. 1978. Т. 75. № 1. С. 234—248.
[4] Малышев В. А., Шехтман В. Л. // ФТТ. 1978. Т. 20. № 10. С. 2915—2928.
[5] Малышев В. А., Шехтман В. Л. // Опт. и спектр. 1979. Т. 46. № 4. С. 800—808.
[6] Baumgartner R., Engelhardt M., Renk K. F. // Phys. Rev. Lett. 1981. V. 47. № 7. P. 1403—1406.
[7] Каплянский А. А., Пржевуский А. К. // Опт. и спектр. 1965. Т. 19. № 2. С. 597—604.
[8] Bron W. E., Grill W. // Phys. Rev. B. 1977. V. 16. N 12. P. 5303—5315.
[9] Tamura S. // Phys. Rev. B. 1985. V. 31. N 9. P. 2574—2578.
[10] Labrot M. T., Mayer A. P., Wehner R. K., Obermayer P. E. // J. Phys.: Condens. Matter. 1989. V. 1. N 45. P. 8809—8822.
[11] Абрамов А. П., Абрамова И. Н., Герловин И. Я., Разумова И. К. // ФТТ. 1982. Т. 24. № 1. С. 67—71.

Казанский государственный университет
им. В. И. Ульянова-Ленина

Поступило в Редакцию
4 сентября 1990 г.