

УДК 578 : 537.611

ВЛИЯНИЕ ЛЕГКИХ ПРИМЕСЕЙ НА ИНДУЦИРОВАННЫЕ ЛАЗЕРНЫМ ИЗЛУЧЕНИЕМ ТЕМПОРЕЛАКСАЦИОННЫЕ ПРОЦЕССЫ В ЩЕЛОЧНО-ГАЛОИДНЫХ КРИСТАЛЛАХ

Л. Л. Бушвили, И. И. Топчян

Получены кинетические уравнения для обратных температур подсистем локальных, оптических и акустических фононов в находящихся под лазерным облучением щелочно-галлоидных кристаллах с легкими примесями. При определении времен релаксации фононной системы использован метод неравновесного статистического оператора. Показано, что в стационарном состоянии фононная система рассматриваемых кристаллов является неэргодической с преимущественным разогревом оптической ветви кристаллических колебаний.

Взаимодействие лазерного излучения с примесными ЩГК (или другими прозрачными материалами) приводит к разогреву локальных колебаний примесных центров [1] и тем самым к нарушению теплового равновесия в фононной системе кристалла. В случае легких примесей, частота ω_1 локальных колебаний которых выше предельной частоты ω_2 продольных оптических колебаний, возбуждаются подсистемы как оптических, так и акустических фононов. Для кристаллов с большой разностью масс между анионом и катионом, в которых оптические ветви колебательного спектра проходят гораздо выше акустических, вклад в рассеяние фононов процессов распада оптических фононов на акустические и обратных им процессов становится незначительным при условии $\Theta_E/\Theta_D \rightarrow 2$ (Θ_E, Θ_D — температуры Эйнштейна и Дебая) [2]. Поэтому в таких кристаллах акустические фононы рассеиваются в основном друг на друге и в процессе эволюции неравновесная фононная система проходит через квазиравновесную стадию, на которой каждой из подсистем в высокотемпературном приближении можно приписать свою температуру [3]. Очевидно, что на этой стадии для кристаллов рассматриваемого типа определяющую роль в протекании терморелаксационных процессов играет рассеяние локальных фононов, число которых резко возрастает при воздействии на кристалл лазерного излучения.

Для определения скоростей перераспределения энергии между подсистемами локальных и кристаллических фононов на квазиравновесной стадии удобно использовать разработанный Зубаревым метод неравновесного статистического оператора (НСО) [4, 5]. При слабом взаимодействии между подсистемами, характерном для квазиравновесной стадии, кинетические уравнения для обратных температур можно представить в виде [5]

$$\frac{d\beta_n}{dt} = \left[\frac{\partial}{\partial \beta_n} \langle H_n \rangle_q \right]^{-1} \langle \dot{H}_n \rangle_p, \quad (1)$$

где $\beta_n = 1/kT_n$; k — постоянная Больцмана; T_n, H_n — температура и гамилтониан n -й подсистемы; индексы $n=1, 2, 3$ относятся к подсистемам локальных, оптических и акустических фононов соответственно; $\langle \dots \rangle_q = = \text{Sp}(\rho_q \dots)$ — означает усреднение по квазиравновесному распределению

с матрицей плотности ρ_q ; $\langle \dot{H}_n \rangle_\rho$ — среднее значение потока энергии в n -й подсистеме, причем усреднение производится с помощью НСО ρ

$$\rho = Z^{-1} \exp \left\{ -A + \sum_{n=1}^3 \beta_n \int_{-\infty}^0 e^{\epsilon t} \dot{H}_n(t) dt \right\}, \quad (2)$$

где Z^{-1} — шпур экспоненты, определяющей ρ ; $A = \sum_{n=1}^3 \beta_n H_n$; ϵ — малый параметр, который, согласно методу НСО, нужно устремить к нулю после вычисления интегралов; $\dot{H}_n(t) = e^{iHt/\hbar} \dot{H}_n e^{-iHt/\hbar}$; H — полный гамильтониан системы $H = \sum_n H_n + H'$; H' — оператор энергии взаимодействия между подсистемами. Предполагая малое отклонение от равновесия, имеющее место на квазиравновесной стадии терморелаксационного процесса, и вводя обозначение

$$K_n \equiv \dot{H}_n = \frac{i}{\hbar} [H, H_n] = \frac{i}{\hbar} [H', H_n], \quad (3)$$

можно по аналогии с [5] получить следующее выражение для НСО ρ :

$$\rho = \rho_q + \Delta\rho, \quad (4)$$

где

$$\rho_q = (\text{Sp } e^{-A})^{-1} e^{-A}, \quad (5)$$

$$\Delta\rho = \rho_q \sum_{n=1}^2 (\Delta\beta)_n \int_0^1 d\lambda \int_{-\infty}^0 e^{\epsilon t} K_n(t, \lambda A) dt, \quad (6)$$

$$\begin{aligned} K_n(t, \lambda A) &= e^{\lambda A} K_n(t) e^{-\lambda A}, \\ (\Delta\beta)_1 &= \beta_1 - \beta_3, \quad (\Delta\beta)_2 = \beta_2 - \beta_3. \end{aligned} \quad (7)$$

При получении выражения (6) для $\Delta\rho$ использован закон сохранения энергии, согласно которому $\dot{H} = 0$. Учитывая, что

$$\langle K_n \rangle_q = 0, \quad (8)$$

получим

$$\langle \dot{H}_n \rangle_\rho = \text{Sp} (\Delta\rho K_n). \quad (9)$$

Как видно из (9) и (3), для вычисления средних потоков необходимо определить в явном виде гамильтониан взаимодействия между подсистемами. С целью упрощения расчетов ограничимся аналогично [6] трехфононным приближением и пренебрежем дисперсией оптической ветви [2]. Кроме того, рассмотрим локальные оптические колебания, частота которых $\omega_1 < 2\omega_2$. В этом случае доминирующим процессом распада локального фонона является распад его на один оптический и один акустический фононы. Соответствующий гамильтониан взаимодействия в представлении вторичного квантования можно представить в виде

$$\begin{aligned} H' &= \Phi \sum_{s=1}^N \sum_{\alpha, \beta, \gamma} \sum_{\mathbf{q}j} \varphi_{\alpha\beta\gamma} p_\alpha(j) (\omega_{\mathbf{q}j} \omega_\beta \omega_\gamma)^{-1/2} \times \\ &\times (b_{-\mathbf{q}j}^+ c_s^+ + a_{\mathbf{q}j} + b_{\mathbf{q}j} c_s + \beta a_\gamma^+) e^{-i\mathbf{q}\mathbf{r}_s} \chi_s, \end{aligned} \quad (10)$$

где $\Phi = (\hbar/2)^{3/2} (NM\mu_0)^{-1/2}$; $p_\alpha(j)$ — α -компонента вектора поляризации акустической моды; \mathbf{q}, j — волновой вектор и индекс ветви акустических колебаний; β, γ — индексы ветвей оптических и локальных колебаний; $\varphi_{\alpha\beta\gamma}$ — коэффициенты, зависящие от силовых постоянных третьего порядка; a^+, b^+, c^+ и a, b, c — операторы рождения и уничтожения локальных, акустических и оптических фононов соответственно; $M = (m_a + m_c)/2$; $\mu = (m_a m_c)/(m_a + m_c)$; m_a, m_c — массы аниона и катиона; μ_0 — приведенная масса элементарной ячейки с примесным атомом; $\chi_s = u(r_s)/u(0)$; u —

амплитуда локальных колебаний; r_s — расстояние от примесного центра, расположенного в начале координат, до s -й элементарной ячейки; N — число элементарных ячеек.

Предполагая, что в отсутствие взаимодействия локальных фононов с кристаллическими имеет место экспоненциальный рост температуры подсистемы локальных фононов при передаче ей энергии от разогретой электронной подсистемы примесного кристалла, взаимодействующей с электромагнитным лазерным излучением [1, 6], и пренебрегая расщеплением длинноволновой части оптической ветви, можно с помощью (1), (3), (6), (9), (10) получить следующую систему кинетических уравнений для обратных температур:

$$\frac{d\beta_1}{dt} = -\frac{1}{\tau_1} \left[(\Delta\beta)_1 - \frac{\omega_2}{\omega_1} (\Delta\beta)_2 \right] - a\beta_1, \quad (11)$$

$$\frac{d\beta_2}{dt} = \frac{1}{\tau_2} \left[(\Delta\beta)_1 - \frac{\omega_2}{\omega_1} (\Delta\beta)_2 \right], \quad (12)$$

$$\frac{d\beta_3}{dt} = \frac{1}{\tau_3} \left[(\Delta\beta)_1 - \frac{\omega_2}{\omega_1} (\Delta\beta)_2 \right], \quad (13)$$

где

$$\tau_2 = g\tau_1, \quad \tau_3 = g'\tau_1, \\ g = 2 \left(\frac{\beta_1}{\beta_2} \right)^2 \frac{\omega_1}{\omega_2} c^{-1}, \quad g' = 2 \left(\frac{\beta_1}{\beta_3} \right)^2 \frac{\omega_1}{\Delta\omega} c^{-1}, \quad \Delta\omega = \omega_1 - \omega_2,$$

c — концентрация примеси; a — кинетический коэффициент, зависящий как от степени электрон-колебательной связи, обуславливающей передачу энергии лазерного излучения подсистеме локальных фононов, так и от интенсивности лазерного излучения; τ_1 — время релаксации подсистемы локальных фононов, определяемое в виде

$$\tau_1 = -\frac{\partial \langle H_1 \rangle_q}{\partial \beta_1} \left[\int_0^1 d\lambda \int_{-\infty}^0 e^{\xi t} L_{11} dt \right]^{-1}, \quad (14)$$

где H_1 — гамильтониан подсистемы локальных фононов $H_1 = \hbar\omega_1 \sum_{\gamma} a_{\gamma}^{\dagger} a_{\gamma}$,

$$L_{11} = \langle K_1(t, \lambda A) K_1 \rangle_q. \quad (15)$$

Вычисляя корреляционную функцию L_{11} , для времени релаксации τ_1 получим

$$\tau_1 = \tau/\beta_1, \quad (16)$$

где

$$\tau = \xi\beta_2\beta_3, \quad (17)$$

$$\xi = \frac{3\pi v^3 \hbar^2 \omega_2^2}{\Phi^2 V \sum_{\alpha, \beta, \gamma, j, s} \varphi_{\alpha\beta\gamma}^2 P_{\alpha}^2(j) \chi_s^2}, \quad (18)$$

v — скорость звука, V — объем кристалла. Отметим, что уравнения (11)—(13) получены в высокотемпературном приближении.

Предположим для наглядности, что все кристаллические колебания можно рассматривать как термостат. При этом $\beta \equiv \beta_2 = \beta_3 = \text{const}$ и $\Delta\beta_2 = 0$. В этом случае решение уравнения (11) при начальном условии

$$\beta_1(0) = \beta_1^{(0)}, \quad (19)$$

где $\beta_1^{(0)}$ — величина, обратная температуре локальных колебаний на квазиравновесной стадии терморелаксационного процесса, имеет вид

$$\beta_1(t) = a/(1 - be^{-at/\tau}), \quad (20)$$

где $a = \beta(1 - \delta)$, $\delta = a/\alpha_0$, $\alpha_0 = 1/\xi\beta$, $b = 1 - a/\beta_1^{(0)}$. Как видно из (20), зависимость температуры локальных колебаний от времени существенно зависит от величины параметра δ . Действительно, при $t \rightarrow \infty$ имеем

$$\beta_1 = 0, \delta > 1; \beta_1 = \beta(1 - \delta), \delta < 1, \quad (21), (22)$$

т. е. температура подсистемы локальных фононов в случае высокой удельной теплоемкости подсистемы кристаллических фононов зависит от степени электрон-колебательной связи: при сильной связи ($\delta > 1$) $T_1 \rightarrow \infty$, а при слабой ($\delta < 1$) $T_1 = T/(1 - \delta)$ и, следовательно, точка $\delta = 1$ является точкой бифуркации. Эти же результаты можно получить, проверяя на устойчивость решения уравнения (11) в стационарном случае.

Учет в стационарном состоянии разогрева подсистемы кристаллических фононов приводит к следующим решениям системы уравнений (11)–(13):

$$\beta_1 = \beta_3(1 - \omega_2/\omega_1), \beta_2 = 0. \quad (23), (24)$$

Из (23), (24) следует, что в стационарном состоянии температура подсистемы оптических фононов стремится к бесконечности, тогда как температура подсистемы локальных колебаний при $\beta_3 \neq 0$ (т. е. в случае достаточно сильной связи подсистемы акустических колебаний с термостатами) превышает температуру подсистемы акустических фононов и связана с ней соотношением (23). Таким образом, в рассматриваемом случае фононная система кристалла является неэргодической с преимущественным разогревом подсистемы оптических фононов.

Следует отметить, что решения, аналогичные (23) и (24), можно получить и в том случае, если термостатом является только подсистема акустических фононов, однако при этом β_3 является фиксированным параметром.

Для оценки времен релаксации τ_i используем результаты работы [7] и представим χ_s в виде

$$\chi_s = \frac{a^3}{2\pi} \frac{\Delta\mu}{\mu} \left(\frac{\omega_1}{\Omega}\right)^2 \frac{1}{r_s} \left[\frac{1}{2l^2} e^{-r_s/l} - \frac{1}{r_s^2} \right], \quad (25)$$

где $\Delta\mu = \mu - \mu_0$; $\Omega^2 = \omega_1^2 - \omega_2^2$; l — длина убывания амплитуды локальных колебаний, обусловленного действием упругих сил; второй член в (25) связан с внутренними квазистатическими электрическими полями в ионных кристаллах. Подставляя (25) в (18), для системы КВг: D⁻ при $\varphi_{\text{эфт}} \sim 10^{11}$ Дж/м³, $c \sim 10^{-4}$, $T_1 \sim 5000$, $T_2 \sim 600$, $T_3 \sim 400$ К получим $\tau_1 \sim 10^{-11}$ с, $\tau_2 \sim \tau_3 \sim 10^{-9}$ с. Как показывают оценки, времена релаксации τ_2 и τ_3 оптической и акустической подсистем гораздо больше времени релаксации τ_1 подсистемы локальных фононов и, следовательно, рассмотрение кристаллических колебаний в качестве термостата является наиболее приемлемым приближением.

Л и т е р а т у р а

- [1] Kovarskii V. A., Popov E. A., Chaikovskii I. A. // Phys. St. Sol. 1975. V. 67. N 2. P. 427—433.
- [2] Займан Дж. Электроны и фононы. М., 1962.
- [3] Лифшиц Е. М., Пятаевский Л. П. Физическая кинетика. М., 1979.
- [4] Зубарев Д. Н. Неравновесная статистическая термодинамика. М., 1971.
- [5] Александров И. В. Теория магнитной релаксации. М., 1975.
- [6] Бушвили Л. Л., Топчян И. И. // ФТТ. 1986. Т. 28. № 10. С. 3000—3005.
- [7] Косевич А. М., Погребняк В. А. // ЖЭТФ. 1982. Т. 83. № 5 (11). С. 1886—1893.

Институт физики АН ГССР
Тбилиси

Поступило в Редакцию
29 марта 1988 г.
В окончательной редакции
7 июля 1988 г.