EESTI NSV TEADUSTE AKADEEMIA TOIMETISED. 31. KÖIDE
FÜÜSIKA * MATEMAATIKA. 1982, NR. 1

ИЗВЕСТИЯ АКАДЕМИИ НАУК ЭСТОНСКОЙ ССР. ТОМ 31
ФИЗИКА * МАТЕМАТИКА. 1982, № 1

УДК 535.37

Имби ТЕХВЕР

ВЛИЯНИЕ КРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ФОНОНОВ НА ВТОРИЧНОЕ СВЕЧЕНИЕ ЦЕНТРА ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ С ЛОКАЛЬНЫМ КОЛЕБАНИЕМ

Imbi TEHVER. KRISTALLI FOONONITE MÕJU ÜHE LOKAALSE VÕNKEGA LUMINESTSENTSITSENTRI SEKUNDAARKIIRGUSELE

Imbi TEHVER. EFFECT OF CRYSTAL PHONONS UPON SECONDARY RADIATION OF THE LUMINESCENCE CENTRE WITH A LOCAL MODE

(Представил В. Хижняков)

1. Резонансное вторичное свечение (РВС) центра люминесценции в кристалле с учетом локального и кристаллических колебаний в отдельности исследовано в [1,2]. На эксперименте в случае центров с локальными колебаниями, как правило, наблюдается также их взаимодействие с кристаллическими фононами. В связи с этим представляет интерес провести одновременный учет взаимодействия центра с отмеченными колебаниями. В этом случае каждая бесфононная линия РВС — либо резонансного комбинационного рассеяния (КР), либо горячей люминесценции (ГЛ), либо обычной люминесценции (ОЛ) — имеет фононное крыло. Нас интересует зависимость этого спектра от частоты возбуждения: спектр РВС будет найден при возбуждении 1) в резонансе с одной из бесфононных линий и 2) в области одного фононного крыла спектра поглощения.

Для локального колебания используем одноосцилляторную модель [1], в которой спектр РВС определяется следующим коррелятором:

$$A_\lambda(\mu\tau\tau') = e^{-2\xi^2}\exp\{\xi^2[e^{i\omega_1\mu-\Gamma|\mu|}(e^{i\omega_2\tau'-\Gamma\tau'}-1)\times$$
$$\times(e^{-i\omega_2\tau-\Gamma\tau}-1)+e^{i\omega_2\tau'-\Gamma\tau'}+e^{-i\omega_2\tau-\Gamma\tau}+e^{i\omega_2(\mu+\tau'-\tau)}\times \tag{1}$$
$$\times(e^{-\Gamma|\mu+\tau'-\tau|}+e^{-\Gamma(|\mu|+\tau'+\tau)}-e^{-\Gamma(|\mu+\tau'|+\tau)}-e^{-\Gamma(|\mu-\tau|+\tau')})]\}.$$

Этот коррелятор учитывает изменение положения равновесия ξ и частоты $\Delta\omega=\omega_2-\omega_1$ локального колебания при электронном переходе, а также ангармоническое затухание его со скоростью Γ. При этом считаем, что $\Delta\omega \gg \Gamma$.

Влияние кристаллических колебаний можно рассмотреть, если умножить $A_\lambda(\mu\tau\tau')$ на коррелятор [2]

$$A_\varkappa(\mu\tau\tau') = \exp\{g_\varkappa(\tau')+g_\varkappa(-\tau)+g_\varkappa(\mu+\tau'-\tau)+g_\varkappa(\mu)-$$
$$-g_\varkappa(\mu+\tau')-g_\varkappa(\mu-\tau)\}, \tag{2}$$

$$g_\varkappa(x)=\sum_i s_i^2\,(e^{i\omega_i x}-1)=\int_{-\infty}^{\infty} d\omega s^2(\omega)\,(e^{i\omega x}-1), \tag{3}$$

$$s^2(\omega)=\sum_i s_i^2\,\delta(\omega-\omega_i),$$

учитывающий кристаллические колебания в гармоническом приближении, с изменением лишь положений равновесия (s_i) этих колебаний при электронном переходе.

Рассматриваемый спектр РВС определяется следующим интегралом (см. [2]):

$$W(\omega_0, \Omega) = \frac{B}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\mu\, e^{i(\Omega-\omega_0)\mu} \iint_0^{\infty} d\tau\, d\tau'\, e^{i(\omega_0-\Omega_{21})(\tau-\tau')} \times$$
$$\times e^{-\gamma/2(\tau+\tau')} A_\lambda(\mu\tau\tau') A_\varkappa(\mu\tau\tau'), \tag{4}$$

где ω_0 и Ω — частоты возбуждения и РВС, Ω_{21} — частота чисто-электронного перехода, γ — радиационная ширина возбужденного электронного состояния, B — нормировочный фактор [2].

При изучении зависимости спектра РВС от ω_0 надо иметь в виду, что актуальная область интегрирования по $\mu + \tau' - \tau$ определяется обратной шириной σ^{-1} спектра поглощения, по μ — обратной шириной рассматриваемой области РВС, а переменная $t = (\tau + \tau')/2$ есть время пребывания системы в возбужденном (промежуточном) состоянии, интегрирование по которой в области $t \lesssim |\mu + \tau' - \tau| \lesssim \mu$ дает релеевское рассеяние (РР) и КР, а в области $\gg |\mu + \tau' - \tau|$, $|\mu|$ — ОЛ и ГЛ [2,3]. Мы будет считать, что ширины бесфононных линий гораздо у́же ширин их фононных крыльев. Поэтому актуальные области интегрирования по μ, τ и τ' существенно зависят от того, где находятся частоты возбуждения или илучения: в области бесфононной линии или области фононного крыла.

2. Спектр РВС при возбуждении в резонансе с бесфононной линией спектра поглощения находится тривиально: интенсивность бесфононных линий КР, ГЛ и ОЛ, вычисленная с учетом лишь локального колебания (см. [1]), умножается на фактор $\exp\{-2\sum_i s_i^2\}$. Действительно, в рассматриваемых областях поглощения и РВС актуальные значения μ, τ, τ' большие $(\sim \Gamma^{-1})$, так что можно ограничиться асимптотикой $\lim_{x\to\infty} g_\varkappa(x) = -\sum_i s_i^2$ и, следовательно,

$$A_\varkappa^{00}(\mu\tau\tau') \simeq \exp\{-2\sum_i s_i^2\}.$$

Фононные крылья отмеченных линий при таком возбуждении также легко находятся: в этом случае актуальные $\mu \sim \bar{\omega}_\varkappa^{-1} \ll \tau, \tau' \sim \Gamma^{-1}$ ($\bar{\omega}_\varkappa$ — средняя частота кристаллических колебаний) и поэтому

$$A_\varkappa^{0\text{ф}}(\mu\tau\tau') \simeq e^{-\sum_i s_i^2} \exp\{g_\varkappa(\mu)\}.$$

В результате спектр РВС в области фононного крыла при рассмотренном возбуждении определяется сверткой

$$W(\omega_0, \Omega) = e^{-\sum_i s_i^2} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega\, W_\varkappa(\omega)\, W_\lambda(\Omega - \omega) \tag{5}$$

спектра люминесценции кристаллических колебаний

$$W_\varkappa(\Omega) = \int_{-\infty}^{\infty} d\mu\, e^{i\Omega\mu + g_\varkappa(\mu)} \tag{6}$$

и спектра РВС локального колебания [1]

$$W_\lambda(\omega_0,\Omega)=\frac{B}{2\pi}\cdot\frac{\varkappa_M(\omega_0)}{\gamma+\Gamma L_2}\frac{|\langle L_2|L_1\rangle|^2}{}\left\{\frac{\Gamma L_1\delta_{L_2M}}{(\Omega-\omega_0+\omega_1 L_1)^2+(\Gamma L_1)^2}+\right.$$
$$\left.+\frac{(1-\delta_{L_2M})\,[\gamma+2\Gamma(L_1+L_2)\,]}{(\Omega-\Omega_{21}+\omega_1 L_1-\omega_2 L_2)^2+[\Gamma(L_1+L_2)+\gamma/2]^2}\right\}. \quad (7)$$

Здесь $\varkappa_M$ — вероятность поглощения при возбуждении в области M-го вибронного повторения чисто-электронной линии $(\omega_0\simeq\Omega_{21}+\omega_2 M)$, L_2 и L_1 — номера исходного и конечного уровней радиационного перехода, $\langle L_2|L_1\rangle$ — фактор Франка—Кондона; первый член в фигурных скобках описывает линии РР $(L_1=0)$ и КР $(L_1>0)$, второй — линии ГЛ $(M>L_2>0)$ и ОЛ $(L_2=0)$.

3. Спектр РВС при возбуждении в фононном крыле спектра поглощения несколько сложнее. Рассмотрим прежде всего КР. В этом случае актуальные $\tau,\tau'\sim\overline{\omega}_\varkappa^{-1}\ll\Gamma^{-1}$, т. е. в корреляторе $A_\lambda(\mu\tau\tau')$ можно считать $\Gamma\tau\approx\Gamma\tau'\approx0$:

$$A_\lambda(\mu\tau\tau')\approx e^{-2\xi^2}\exp\{\xi^2[e^{i\omega_1\mu-\Gamma|\mu|}(e^{i\omega_2\tau'}-1)\,(e^{-i\omega_2\tau}-1)+e^{i\omega_2\tau'}+e^{-i\omega_2\tau}]\}. \quad (8)$$

Этот коррелятор дает нам рассеяние на локальном колебании. Если же учитывать рассеяние и на кристаллических колебаниях (ограничимся здесь однофононным рассеянием), то (8) надо умножить на

$$A_\varkappa^{(1)}(\mu\tau\tau')=\exp[g_\varkappa(\tau')+g_\varkappa(-\tau)\,]\int\limits_{-\infty}^{\infty}d\omega s^2(\omega)\,e^{i\omega\mu}(e^{i\omega\tau'}-1)\,(e^{-i\omega\tau}-1) \quad (9)$$

(см. [2]). В результате интенсивность линии КР p-го порядка по локальному колебанию и первого порядка по кристаллическому фонону определяется формулой

$$W_{\text{КР}}(\omega_0,\Omega)=\frac{B}{2\pi}\cdot\frac{\xi^{-2p}}{p!}\int\limits_{-\infty}^{\infty}d\mu\,e^{i(\Omega-\omega_0)\mu}\,e^{i\omega_1 p\mu-\Gamma p|\mu|}\times$$
$$\times\int\limits_{-\infty}^{\infty}d\omega s^2(\omega)\,e^{i\omega\mu}\left|\int\limits_0^{\infty}d\tau\,e^{g_\lambda(\tau)}(g_\lambda(\tau))^p\langle S_\varkappa(\tau)\rangle(e^{i\omega\tau}-1)\right|^2, \quad (10)$$

где

$$g_\lambda(x)=\xi^2(e^{i\omega_2 x}-1),$$

а

$$\langle S_\varkappa(x)\rangle=\exp\{-i(\omega_0-\Omega_{21})\,x+g_\varkappa(x)\}$$

— Фурье-образ фононных крыльев в спектре поглощения.

Покажем, что

$$\frac{\xi^{-p}}{\sqrt{p!}}\exp\{g_\lambda(\tau)\}\,[g_\lambda(\tau)\,]^p=\sum_{m=0}^{\infty}\langle0|m\rangle\langle m|p\rangle\,e^{i\omega_2 m\tau}, \quad (11)$$

где интегралы Франка—Кондона

$$\langle0|m\rangle=e^{-\xi^2/2}\xi^m/\sqrt{m!},$$
$$\langle m|p\rangle=e^{-\xi^2/2}\xi^{m+p}\sqrt{m!p!}\sum_{i=0}^{p}(-1)^i\frac{\xi^{-2i}}{i!\,(p-i)\,!\,(m-i)\,!}. \quad (12)$$

Для этого преобразуем

$$\exp[g_\lambda(\tau)][g_\lambda(\tau)]^p = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\xi^{2(k+p)}}{k!} \sum_{m=0}^{k+p} (-1)^{k+p-m} \binom{k+p}{m} e^{i\omega_2 m\tau}.$$

Переходя к новому индексу суммирования $j = k + p - m$, имеем

$$\sum_{m=0}^{\infty} \frac{\xi^{2m}}{m!} e^{i\omega_2 m\tau} \sum_{j=0}^{\infty} (-1)^j \frac{\xi^{2j}}{j!} \frac{(m+j)!}{(m-p+j)!} =$$

$$= \sum_{m=p}^{\infty} \frac{\xi^{2m}}{(m-p)!} e^{i\omega_2 m\tau} {}_1F_1(m+1, m+1-p; -\xi^2),$$

где ${}_1F_1(\alpha, \gamma; z)$ — вырожденная гипергеометрическая функция. Для доказательства формулы (11) остается учесть, что ${}_1F_1(\alpha, \alpha; z) = e^{z^2}$ и

$$(z/\gamma)\, {}_1F_1(\alpha+1, \gamma+1; z) = {}_1F_1(\alpha+1, \gamma; z) - {}_1F_1(\alpha, \gamma; z),$$

откуда

$$\frac{\xi^{2m}}{(m-p)!} {}_1F_1(m+1, m+1-p; -\xi^2) = \langle 0|m\rangle \langle m|p\rangle \xi^p \sqrt{p!}. \tag{13}$$

Проинтегрируем теперь (10). Интеграл по τ

$$\int_0^\infty d\tau \langle S_\varkappa(\tau)\rangle (e^{i\omega\tau} - 1) e^{i\omega_2 m\tau} = \Phi(\omega_0 - \omega_2 m - \omega) - \Phi(\omega_0 - \omega_2 m) \tag{14}$$

выражается через комплексную функцию показателя преломления

$$\Phi(x) = \oint_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{\varkappa(\omega)}{\omega - x} + i\pi\varkappa(x),$$

где $\varkappa(x)$ — форма фононных крыльев в спектре поглощения.

Проинтегрировав и по μ, получим, что при возбуждении в фононном крыле m-го вибронного повторения чисто-электронной линии интенсивность линии КР p-го порядка по локальному колебанию и первого порядка по кристаллическому фонону определяется формулой

$$W_{\text{КР}}(\omega_0, \Omega) = \frac{B}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega s^2(\omega) \frac{2\Gamma p}{(\Omega - \omega_0 + \omega_1 p + \omega)^2 + (\Gamma p)^2} \times$$
$$\times \left| \sum_{m=p}^{\infty} \langle 0|m\rangle \langle m|p\rangle [\Phi(\omega_0 - \omega_2 m - \omega) - \Phi(\omega_0 - \omega_2 m)] \right|^2. \tag{15}$$

В этой формуле сумма по m учитывает интерференцию разных каналов рассеяния с участием различного числа виртуальных квантов локального колебания. В рассматриваемом случае возбуждения в фононном крыле ее учет существен, поскольку ширина фононного крыла, как правило, сравнима с частотой локального колебания ω_2. Если же ширина фононных крыльев гораздо у́же ω_2, то достаточно учесть вклад лишь резонансного вибронного перехода в комплексный показатель преломления, положив $m = M$. Тогда формула (15) существенно упрощается:

$$W_{\text{КР}}(\omega_0, \Omega) = \frac{B}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega s^2(\omega) \frac{2\Gamma p}{(\Omega - \omega_0 + \omega_1 p + \omega)^2 + (\Gamma p)^2} \times$$
$$\times |\langle 0|M\rangle \langle M|p\rangle|^2 |\Phi(\omega_0 - \omega_2 M - \omega) - \Phi(\omega_0 - \omega_2 M)|^2. \tag{16}$$

Рассмотрим в заключение линии ОЛ и ГЛ, возбуждаемые в фононном крыле. В этом случае актуальные значения $t \geqslant \Gamma^{-1} \gg \overline{\omega_\varkappa}^{-1}$. Следовательно, коррелятор $A_\varkappa(\mu\tau\tau')$ можно заменить его асимптотическим значением [2]

$$\lim_{t\to\infty} A_\varkappa(\mu\tau\tau') = \exp[g_\varkappa(\mu) + g_\varkappa(\mu+\tau'-\tau)] = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega F(\omega) e^{i\omega\mu} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' F(\omega') e^{i\omega'(\mu+\tau'-\tau)}, \tag{17}$$

где

$$F(\omega) = s^2(\omega) + \frac{1}{2}\int_{-\infty}^{\infty} dx s^2(x) s^2(\omega - x) + \ldots .$$

Подставляя (17) в (4) и учитывая (1), получаем, что рассматриваемый спектр выражается в виде сверток

$$W_{\text{ОЛ+ГЛ}}(\omega_0, \Omega) = \frac{B}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty} d\omega' F(\omega') \varkappa_M(\omega_0 - \omega') \times \int_{-\infty}^{\infty} d\omega F(\omega) \frac{(1-\delta_{L_2M})[\gamma + 2\Gamma(L_1+L_2)]|\langle L_2|L_1\rangle|^2}{(\Omega - \Omega_{21} + \omega_1 L_1 - \omega_2 L_2 + \omega)^2 + [\Gamma(L_1+L_2)+\gamma/2]^2}. \tag{18}$$

Автор признателен Л. Ребане и В. Хижнякову за обсуждение данной проблемы.

ЛИТЕРАТУРА

1. Hizhnyakov, V., Tehver, I., Phys. status solidi (b), 82, № 1, K89—K93 (1977).
2. Hizhnyakov, V., Tehver, I., Phys. status solidi, 21, № 2, 755—768 (1967).
3. Rebane, K. K., Tehver, I. Y., Hizhnyakov, V. V., In: The Theory of Light Scattering in Solids, ed. by V. Agranovich and J. Birman, M., «Nauka», 1976, p. 467—486.

Институт физики
Академии наук Эстонской ССР

Поступила в редакцию
24/IX 1981