РАЗОГРЕВ И ОХЛАЖДЕНИЕ ЛОКАЛЬНЫХ И КВАЗИЛОКАЛЬНЫХ КОЛЕБАНИЙ НЕРЕЗОНАНСНЫМ ПОЛЕМ

М. И. Дыкман

Рассмотрена динамика ангармонического осциллятора, взаимодействующего с фононами, в нерезонансном квазимонохроматическом поле. Индуцированные полем распадные процессы существенно изменяют эффективную температуру осциллятора. Если индуцированному распаду соответствует одновременное возбуждение осциллятора и рождение фонона, то при сильной накачке возникает эффект «убегания» — энергия осциллятора экспоненциально растет со временем. Предложены механизмы ограничения убегания. В результате ограничения в определенном интервале энергий осциллятора имеет место инверсионная населенность уровней. Рассмотрены спектры люминесценции и поглощения локальными и квазилокальными колебаниями. При инверсии населенности ангармонические колебания могут усиливать свет вблизи собственной частоты. Если частота возбуждающего поля больше частоты осциллятора, то он усиливает свет и фононы на разностной частоте.

Исследование динамики локализованных колебаний (ЛК) примесей в кристаллах (локальных или квазилокальных колебаний) связано с решением более общей задачи об осцилляторе, взаимодействующем со средой [1]. Релаксация гармонического осциллятора в случае, когда воздействие среды можно описать с помощью эффективной силы трения $-\Gamma\dot{q}_\varkappa$ $\left(q_\varkappa=\sqrt{\hbar/2\omega_\varkappa}\,(a_\varkappa+a_\varkappa^+)\right.$ — нормальная координата осциллятора $\varkappa$, $\omega_\varkappa$ — его частота) и некоторой случайной силы, рассматривалась в ряде работ [2–5]. В [4] было решено квантовое кинетическое уравнение, соответствующее такой модели. Было показано, что через время $t\gg\Gamma^{-1}$ после включения регулярной внешней силы, когда начальное распределение $\rho(0)$ «забывается», матрица плотности $\rho(t)$ оказывается сдвинутой больцмановской; ее можно получить из равновесной с помощью простого унитарного преобразования

$$\rho(t)=D(t)\,\rho_{eq}D^+(t);\quad \rho_{eq}=[\bar{n}(\omega_\varkappa)+1]^{-1}\exp(-\lambda\omega_\varkappa a_\varkappa^+a_\varkappa),$$
$$\lambda=\frac{1}{T},\quad \bar{n}(\omega)=[e^{\lambda\omega}-1]^{-1}, \tag{1}$$
$$D(t)=\exp[v(t)\,a_\varkappa^+-v^*(t)\,a_\varkappa];$$
$$v(t)=i\int_0^t dt'f(t')\exp[-(\Gamma+i\omega_\varkappa)(t-t')],\quad \hbar=1,$$

где $f(t)$ — внешняя сила (в единицах частоты).

Фактически, однако, (1) справедливо только вблизи резонанса, когда $|\omega-\omega_\varkappa|\ll\omega_m$, где ω — характерная частота силы, ω_m — характерная частота, на которой меняется поляризационный оператор осциллятора $R(\omega)$; $\Gamma=\mathrm{Im}R(\omega_\varkappa)$. При $|\omega-\omega_\varkappa|\sim\omega_m$ дисперсия $R(\omega)$ существенно влияет на динамику осциллятора во внешнем поле. Например, согласно (1), слабополевое сечение поглощения $\sigma(\omega)\backsim\Gamma/(\omega-\omega_\varkappa)^2(|\omega-\omega_\varkappa|\gg\Gamma)$ монотонно убывает с расстройкой частоты, в то время как правильное выражение $\sigma(\omega)\sim\mathrm{Im}\,R(\omega)/(\omega-\omega_\varkappa)^2$ (см., например, [6]) имеет струк-

туру вблизи $|\omega-\omega_\varkappa| \sim \omega_m$. Эта структура проявляется в спектрах ИК поглощения локальными колебаниями [7]: наряду с центральным пиком при $\omega=\omega_\varkappa$ в $\sigma(\omega)$ имеются боковые полосы, которые сдвинуты относительно $\omega_\varkappa$ на расстояния, приблизительно соответствующие максимумам плотности состояний фононов. Если поле достаточно велико и $\omega \sim |\pm\omega_\varkappa \pm \omega_m|$, то процессы распада, в которых одновременно рождаются или уничтожаются фотон, фонон и квант ЛК, могут стать доминирующими среди процессов релаксации ЛК.

Распределение колебания по возбужденным состояниям в сильных полях оказывается существенно различным в зависимости от того, превышает ли частота поля одновременно частоту осциллятора и участвующих в распаде фононов или нет. Во втором случае распад может произойти только тогда, когда либо осциллятор, либо фононы возбуждены. При этом осциллятору навязывается распределение актуальных для релаксации фононов. Его можно описать эффективной температурой $T^*=T\frac{\omega_\varkappa}{\omega_\varkappa \pm \omega}$ (плюс соответствует случаю $\omega_m > \omega_\varkappa$). Если же $\omega > \omega_\varkappa$, ω_m, «распад» означает одновременное возбуждение и осциллятора, и фононов. Поскольку осциллятор имеет бесконечное число уровней, а вероятность перехода с увеличением номера уровня растет (без учета ангармонизма), возникает эффект «убегания», стационарное распределение описывается отрицательной температурой $T^*=-T\omega_\varkappa/(\omega-\omega_\varkappa)$ и ненормируемо. В работе рассмотрены два механизма, устраняющие убегание: нелинейное трение [8] и ангармонизм. Для ограничения тока оказалось достаточно бесконечно малого ангармонизма, а для ограничения энергии осциллятора необходима значительная неэквидистантность уровней (во всяком случае высокоэнергетических). Механизмы ограничения убегания не устраняют инверсионную населенность нескольких нижайших уровней, так что неравновесные ЛК могут усиливать излучение на резонансной частоте.

1. Кинетическое уравнение в квазимонохроматическом поле

Рассмотрим одномерный ангармонический осциллятор, взаимодействующий с колебаниями непрерывного спектра, которые образуют термостат. Взаимодействие будем предполагать слабым, $\Gamma \ll \omega_m$, $\omega_\varkappa$. В простейшем случае гамильтониан системы во внешнем поле имеет вид

$$\left.\begin{aligned} &H=H_0+H_{ph}+H_i;\ H_0=\omega_\varkappa a_\varkappa^+ a_\varkappa+\frac{1}{12}Vc_\varkappa^4-f(t)\,c_\varkappa;\ c_\varkappa=a_\varkappa^++a_\varkappa,\\ &f(t)=f_1(t)\exp(-i\omega t)+f_1^*(t)\exp(i\omega t),\\ &H_{ph}=\sum_k \omega_k a_k^+ a_k;\ H_i=\sum_k V_{\varkappa k}c_\varkappa c_k+\\ &+\frac{1}{2}\sum_{k,k'} V_{\varkappa kk'}c_\varkappa c_k c_{k'}+\sum_k V_{\varkappa\varkappa k}c_\varkappa^2 c_k;\ c_k=a_k+a_k^+, \end{aligned}\right\} \qquad (2)$$

(индекс k нумерует колебания непрерывного спектра). В H_0 не выписаны члены $\sim c_\varkappa^3$ в предположении, что положение равновесия осциллятора является центром инверсии. Первое и второе слагаемые в H_i в (2) приводят к затуханию и сдвигу частоты осциллятора за счет распада на один или два фонона; третье слагаемое обусловливает максимумы в $\operatorname{Im} R(\omega)$ при $\omega \sim \omega_\varkappa \pm \omega_m$ [6], а также нелинейное сложным образом зависящее от координат трение [8], которое соответствует распаду с уничтожением двух квантов осциллятора.

В [8–10], исходя из гамильтониана (2) без полевого члена, было получено кинетическое уравнение и проанализировано его решение в равновесном и неравновесном случае при произвольном соотношении между параметром ангармонизма V и скоростью релаксации Γ (однако $|V|$,

$\Gamma \ll \omega_m,\ \omega_\varkappa$). Предложенную в [9] технику можно обобщить и на случай осциллятора в квазимонохроматическом поле,

$$\frac{d \ln |f_1|}{dt} \ll t_c^{-1},\ \bar{n}(|\omega \pm \omega_\varkappa|);\ t_c^{-1} = \min\{\omega,\ \omega_m,\ \omega_\varkappa\ |\omega - \omega_\varkappa|\}. \tag{3}$$

В дальнейшем предполагается, что при $t \leqslant t_0$ $f(t)=0$ и осциллятор находится в термодинамическом равновесии с колебаниями непрерывного спектра. Если поле не слишком велико, $|Vf^2| \ll t_c^{-3}$, то с учетом (3) в представлении взаимодействия

$$\tilde{a}_\varkappa(t) \simeq a_0(t)\, e^{-i\omega_\varkappa t} + v(t);\ v(t) = \frac{f_1(t)\, e^{-i\omega t}}{\omega_\varkappa - \omega} + \frac{f_1^*(t)\, e^{i\omega t}}{\omega_\varkappa + \omega};$$

$$\dot{a}_0(t) = -iV\left[1 + \frac{8\omega_\varkappa^2 |f_1(t)|^2}{(\omega_\varkappa^2 - \omega^2)^2} + a_0^+(t)\, a_0(t)\right] a_0(t);$$

$$\tilde{A}(t) = S^+(t,\ t_0)\, A\, S(t,\ t_0);\ S(t,\ t_0) = T \exp\left[-i \int_{t_0}^{t} d\tau H_0(\tau)\right]. \tag{4}$$

Кинетическое уравнение для матрицы плотности осциллятора в представлении взаимодействия, $\rho_\varkappa(t)$, в области больших времен $t - t_0 \gg t_c$ во втором порядке по H_i имеет вид

$$\left.\begin{aligned} &\frac{\partial \rho_\varkappa}{\partial t} = -\hat{\Gamma}_f \rho_\varkappa - \hat{\Gamma}_2 \rho_\varkappa - iP_f\,[n_0,\ \rho_\varkappa] - i\,\frac{V^{(2)}}{2}\,[n_0^2,\ \rho_\varkappa],\ \rho_\varkappa \equiv \rho_\varkappa(t),\ n_0 = n_0(t) = a_0^+ a_0, \\ &\hat{\Gamma}_f \rho_\varkappa = \Gamma_f\,[(2\bar{n}_f + 1)\,\{n_0,\ \rho_\varkappa\}_+ + 2\bar{n}_f \rho_\varkappa - 2(\bar{n}_f + 1)\, a_0 \rho_\varkappa a_0^+ - 2\bar{n}_f a_0^+ \rho_\varkappa a_0],\ a_0 = a_0(t), \\ &\{A,\ B\}_+ = AB + BA;\ \Gamma_f = \Gamma_f(t) = \Gamma + \frac{16\omega_\varkappa^2 |f_1(t)|^2}{(\omega_\varkappa^2 - \omega^2)^2}\,(\Gamma_+ + \Gamma_- - \Gamma_{\text{inv}}). \end{aligned}\right\} \tag{5}$$

Здесь $V^{(2)}$ — перенормировка параметра ангармонизма V за счет третьего слагаемого в H_i (она определена в [9]), P_f — зависящий от времени сдвиг частоты; при $f=0$ он рассчитан в [9], а зависящая от поля часть P_f может быть получена с помощью преобразования типа Крамерса—Кронига из выражения $\Gamma_f - \Gamma$. Параметры $\Gamma_\pm$ и Γ_{inv} определяют вероятность индуцированного распада

$$\left.\begin{aligned} &\Gamma_\pm = \pi \sum_k V_{\varkappa\varkappa k}^2\, \delta(\omega_\varkappa \pm \omega - \omega_k);\ \Gamma_{\text{inv}} = \pi \sum_k V_{\varkappa\varkappa k}^2\, \delta(\omega - \omega_\varkappa - \omega_k); \\ &\bar{n}_f = \bar{n}_f(t) = \Gamma_f^{-1}\left\{\Gamma \bar{n}(\omega_\varkappa) + \frac{16\omega_\varkappa^2 |f_1(t)|^2}{(\omega_\varkappa^2 - \omega^2)^2} \times \right. \\ &\left. \times\,[\Gamma_+ \bar{n}(\omega_\varkappa + \omega) + \Gamma_- \bar{n}(\omega_\varkappa - \omega) + \Gamma_{\text{inv}}(\bar{n}(\omega - \omega_\varkappa) + 1)]\right\}. \end{aligned}\right\} \tag{6}$$

Параметр Γ в (5) — не зависящее от поля распадное затухание [9], а оператор $\hat{\Gamma}_2 \rho_x$ описывает нелинейное трение и имеет вид (ср. [8])

$$\begin{aligned} \hat{\Gamma}_2 \rho_\varkappa = \Gamma^{(2)}\,[2\bar{n}(2\omega_\varkappa)\,\{n_0^2 + n_0 + 1,\ \rho_\varkappa\}_+ + \{n_0^2 - n_0,\ \rho_\varkappa\}_+ - 2(\bar{n}(2\omega_\varkappa) + 1)\, a_0^2 \rho_\varkappa a_0^{+2} - \\ - 2\bar{n}(2\omega_\varkappa)\, a_0^{+2} \rho_\varkappa a_0^2];\ \Gamma^{(2)} = \pi \sum_k V_{\varkappa\varkappa k}^2\, \delta(2\omega_\varkappa - \omega_k). \end{aligned} \tag{7}$$

При выводе (5) отбрасывались поправки $\sim (\bar{n}_f + 1)\left| V \frac{d\Gamma_f}{d\omega} \right| \ll \Gamma_f$ и $\Gamma_f t_c$, $\Gamma^{(2)} t_c$, $|V|\, t_c$, $|P_f| t_c \ll 1$.

Представляет интерес сравнить (5) с рассмотренным в [4] кинетическим уравнением для гармонического осциллятора с линейным трением. Из (1), (4) видно, что в приближении (3) $a_0(t) = e^{i\omega_\varkappa t} \tilde{D}(t) \tilde{a}_\varkappa(t)\, \tilde{D}^+(t)$, где $\tilde{D}(t)$ определяется формулой (1), в которой $a_\varkappa$ заменено на $\tilde{a}_\varkappa(t)$ и интегрирование по времени ведется от t_0. Если от представления взаимодействия с гамильтонианом H_0 перейти к представлению взаимодействия с гамильтонианом $H_0' = \omega_\varkappa a_\varkappa^+ a_\varkappa$, то с точностью до быстроосциллирующих слагаемых кинетическое уравнение (5) будет иметь формально тот же

вид, что и в [1]. Существенно, однако, что благодаря учету индуцированных полем процессов распада параметры Γ_f и $\bar{n}_f$ в (5) могут значительно отличаться от своих равновесных значений.

Уравнение (5) позволяет также проанализировать пики спектрального распределения неравновесного осциллятора вблизи $\omega_\varkappa$ и $|\pm\omega\pm\omega_\varkappa|$. Расчет формы пиков (линейная реакция на дополнительное слабое поле) связан с вычислением двухвременных корреляционных функций $\langle A(\tau)B(t)\rangle$ в области больших времен $|t-\tau|\gg t_c$. Можно показать (при $f=0$ это сделано в [10]), что с точностью до малых членов $\sim\Gamma_f t_c$

$$\langle A(\tau)B(t)\rangle \simeq \mathrm{Sp}_\varkappa[\tilde{B}(t)\hat{G}\{t,\ \tau;\ \rho_\varkappa(\tau)\bar{A}(\tau)\}],\ t-\tau\gg t_c, \tag{8}$$

где $\mathrm{Sp}_\varkappa$ означает шпур на волновых функциях изолированного осциллятора. Оператор $\hat{G}\{t,\ \tau;\ \tilde{C}(\tau)\}$ описывает релаксацию осциллятора и удовлетворяет дифференциальному (по t) уравнению (5) с начальным условием $\hat{G}\{\tau,\ \tau;\ \tilde{C}(\tau)\}=\tilde{C}(\tau)$, причем

$$\rho_\varkappa(t)=\hat{G}\{t,\ t_0;\ Z^{-1}\exp[-\lambda H_0(t_0)]\};\ Z=\mathrm{Sp}_\varkappa\exp[-\lambda H_0(t_0)]. \tag{9}$$

2. Решение кинетического уравнения в случае монохроматического поля

В монохроматическом поле $|f_1(t)|=\mathrm{const}$, и, как видно из (4), (5), параметры кинетического уравнения перестают зависеть от времени. За время $\Delta t\gg\Gamma_f^{-1}$ устанавливается стационарное распределение осциллятора на собственных функциях оператора n_0 (согласно (4), $dn_0/dt=0$). Рассмотрим это распределение вначале при $\Gamma^{(2)}=0$. Тогда стационарное решение (5) — больцмановское,

$$\rho_\varkappa(t)=\rho_\varkappa=(\bar{n}_f+1)^{-1}\exp(-\omega_\varkappa n_0/T^*),\ T^*=\omega_\varkappa\left[\ln\frac{\bar{n}_f+1}{\bar{n}_f}\right]^{-1}. \tag{10}$$

В соответствии с (4) матрица плотности в Шредингеровском представлении — сдвинутая больцмановская, и формально (10) имеет тот же вид, что (1). Однако эффективная температура T^* в (10) может оказаться как много больше, так и много меньше температуры термостата. В частности, если $\Gamma_f\approx 16\omega_\varkappa^2|f_1|^2\Gamma_\pm/(\omega_\varkappa^2-\omega^2)^2$, то $T^*\approx T\omega_\varkappa/(\omega_\varkappa\pm\omega)$.

В слабых полях

$$T^*\approx T+\frac{16\omega_\varkappa^2|f_1|^2}{(\omega_\varkappa^2-\omega^2)^2}\frac{T^2}{\Gamma\omega_\varkappa\bar{n}(\omega_\varkappa)[\bar{n}(\omega_\varkappa)+1]}\{\Gamma_+[\bar{n}(\omega_\varkappa+\omega)-\bar{n}(\omega_\varkappa)]+$$

$$+\Gamma_-[\bar{n}(\omega_\varkappa-\omega)-\bar{n}(\omega_\varkappa)]+\Gamma_{\mathrm{inv}}[\bar{n}(\omega-\omega_\varkappa)+\bar{n}(\omega_\varkappa)+1]\},\ |\Gamma_f-\Gamma|\ll\Gamma. \tag{11}$$

Из (11) следует, что эффективная температура сильно меняется даже в слабых полях, если равновесное планковское число осциллятора мало, $\bar{n}(\omega_\varkappa)\ll 1$, а $\bar{n}(|\omega_\varkappa-\omega|)\gg\bar{n}(\omega_\varkappa)$ и возможен распад $\omega_k=|\omega-\omega_\varkappa|$. Отметим, что при выполнении (10) стационарный ток осциллятора $\langle c_\varkappa(t)\rangle\approx\approx\mathrm{Sp}_\varkappa[\tilde{c}_\varkappa(t)\rho_\varkappa(t)]=\frac{4\omega_\varkappa}{\omega_\varkappa^2-\omega^2}\mathrm{Re}[f_1e^{-i\omega t}]$ имеет слагаемые только на частоте поля.

Формула (10) теряет смысл, если доминирующим механизмом релаксации является распад кванта поля с рождением фонона и возбуждением осциллятора, поскольку тогда $\Gamma_f<0$, $\bar{n}_f\leqslant -1$, $T^*<0$, и распределение (10) ненормируемо. При $\Gamma_f<0$ ($\Gamma^{(2)}=0$) происходит «убегание» осциллятора. Например, для среднего числа заполнения из (5) получаем: $d\langle n_0\rangle/dt=-\Gamma_f(\langle n_0\rangle-\bar{n}_f)$; при $\Gamma_f<0$ ($\Gamma_f\bar{n}_f>0$, согласно (6)) $\langle n_0\rangle\sim\exp(|\Gamma_f|t)\to\infty$ при $t\to\infty$.

Для анализа эффекта убегания, а также для расчета корреляторов (8) удобно перейти от операторного уравнения (5) к разностным уравнениям, проматрировав его на полной ортонормированной системе функций $|m)_\tau$

$$|m)_\tau=(m!)^{-1/2}[a_0^+(\tau)e^{i\omega_\varkappa\tau}]^m|0)_\tau;\ |0)_\tau=\tilde{D}(\tau)S^+(\tau,\ t_0)|0);$$

$${}_\tau(m'|n_0(t)|m)_\tau=m\delta_{m',m}. \tag{12}$$

Здесь $|0)$ — волновая функция основного состояния осциллятора в момент t_0 ($|m)_\tau$ не являются собственными функциями H_0). Параметр τ в (12) произволен, однако при рассмотрении релаксации в качестве τ целесообразно выбрать тот момент времени, в который задается начальное условие к кинетическому уравнению. При таком выборе, как видно из (5), $\hat{G}\{t, \tau\}$ зависит только от $t-\tau$.

Система дифференциально-разностных уравнений для $\rho_{mn}(t) = {}_\tau(m|\rho_\varkappa(t)|n)_\tau$ при $|f_1(t \geqslant \tau)| = \text{const}$ имеет такой же вид, как рассмотренная в [8, 10] система уравнений для ρ_{mn} при $f=0$. В [10] она была решена методом производящих функций; полученное решение (формулы (11)—(13) в [10]) при конечных временах оказывается справедливым и для $\Gamma_f < 0$. Эволюцию матричных элементов легко проследить в случае $\bar{n}_f = -1$, $T^* = -0$. Пусть при $t=\tau$ $\rho_{00}=1$. Тогда

$$\rho_{nn}(t) = \exp[-2|\Gamma_f|(t-\tau)]\left(1-e^{-2|\Gamma_f|(t-\tau)}\right)^n, \quad t \geqslant \tau. \tag{13}$$

Как видно из (13), $\rho_{nn}(t) \to 0$ при $t \to \infty$ для любого конечного n, однако с увеличением $t-\tau$ возбуждаются состояния со все большими номерами n («убегание») и $\langle n_0(t)\rangle = \sum_n n\rho_{nn}(t)$ растет. Внутренний ангармонизм осциллятора в приближении $\langle n_0\rangle \left| V \frac{d\Gamma_f}{d\omega} \right| \ll \Gamma_f$ не влияет на диагональные элементы $\rho_\varkappa$, но он очень важен для недиагональных элементов. Например, при $\bar{n}_f = -1$, $\Gamma_f < 0$ для $\rho_{n+1n}(t)$ (этот матричный элемент определяет ток осциллятора на частоте $\omega_\varkappa$) в предположении $\rho_{10}(\tau) = \alpha$, $\rho_{n+1n}(\tau)|_{n>0} = 0$ из (5) получаем

$$\rho_{n+1n}(t) = \alpha\left[1+i\frac{V+V^{(2)}}{2|\Gamma_f|}\right]^{-n}\sqrt{n+1}\exp\{-[3|\Gamma_f|+i(P_f-Vn+V^{(2)}/2)](t-\tau)\}\times$$
$$\times\{1-\exp[-(2|\Gamma_f|+iV+iV^{(2)})(t-\tau)]\}^n. \tag{14}$$

Согласно (14), $\langle a_0(t)\rangle \sim \sum_n \sqrt{n+1}\,\rho_{n+1n}(t)\exp[-iVn(t-\tau)] \backsim \exp[-3|\Gamma_f|\times(t-\tau)]$ при $t-\tau \to \infty$, если $V+V^{(2)} \neq 0$; если же $V^{(2)}+V=0$, то происходит «убегание» по току: $\langle a_0(t)\rangle \sim \exp[|\Gamma_f|(t-\tau)]$.[1] Затухание $\langle a_0(t)\rangle$ при конечной неэквидистантности уровней обусловлено следующим: в этом случае всегда имеются уровни с настолько большими номерами, что переходы между ними существенно отличаются по частоте от перехода $|0)_\tau \to |1)_\tau$; вероятность возбуждения таких переходов мала, $\left|1+i\frac{V+V^{(2)}}{2|\Gamma_f|}\right|^{-N} \ll 1$, $N \gg 1$. У гармонического осциллятора все переходы происходят на одной частоте и интерферируют, поэтому вклад отдельного перехода может быть выделен только условно [8]. Вследствие интерференции суммарный ток экспоненциально растет со временем.

Имеется несколько механизмов, обрезающих «убегание» осциллятора. Наиболее простой из них — значительная неэквидистантность возбужденных уровней. Если, начиная с некоторого уровня N_0, частота перехода $\omega(n)$ с n-го на $n+1$-й уровень ($n \geqslant N_0$) настолько отличается от $\omega(0) \approx \omega_\varkappa$, что распад $\omega = \omega_k + \omega(n)$ невозможен, убегание не возникает. Такая модель не описывается кинетическим уравнением (5), оператор затухания $\hat{\Gamma}_f\rho_\varkappa$ в ней имеет более сложный вид и в общем случае температуру осциллятора ввести нельзя. Если, однако, для состояний с $n \leqslant N_0$ доминируют распадные процессы $\omega = \omega_k + \omega(n)$, то при $\omega_\varkappa > T \gg \omega(N_0) - \omega_\varkappa$ в соответствующей области энергий осциллятора можно ввести температуру

$$\left.\begin{aligned} &\rho_{nn} = A\exp(-\omega_\varkappa n/T^*),\ n \leqslant N_0;\ \rho_{nn}=0,\ n>N_0;\\ &A = \frac{1-\exp(-\omega_\varkappa/T^*)}{1-\exp[-(N_0+1)\omega_\varkappa/T^*]},\\ &T^* \simeq -\omega_\varkappa T/(\omega-\omega_\varkappa),\ \Gamma \ll \Gamma_{\text{inv}} \end{aligned}\right\} \tag{15}$$

[1] В работе [11] показано, что в полупроводниках при рассеянии электронов на полярных оптических фононах также достаточно учесть конечность ширины запрещенной зоны, чтобы ликвидировать «убегание».

((15) можно получить из (5) при произвольном $\Gamma/\Gamma_{\text{inv}} < 1$, если взвешенная плотность состояний фононов представляет собой прямоугольную ступеньку). Населенность уровней (15) монотонно возрастает до уровня N_0, а затем резко падает до нуля. В случае реального ангармонического осциллятора такой резкой зависимости нет. Неэквидистантность для низколежащих уровней мала, и там можно, согласно (5), (10), при сильной инвертирующей накачке строго ввести отрицательную температуру. Для вышележащих уровней вклад накачки уравнивается, а затем становится малым по сравнению с вкладом иных механизмов релаксации. В результате населенность уровней представляет функцию с плавным максимумом.

Другим механизмом, позволяющим, не выходя за пределы модели, ограничить «убегание», является нелинейное трение (7). Как видно из (7), нелинейное трение быстро увеличивается с ростом энергии осциллятора, поэтому даже при малом $\Gamma^{(2)}/\Gamma_f$ оно оказывается существенным для высоколежащих уровней. Для анализа вклада нелинейного трения удобно перейти от разностного уравнения для ρ_{nn} к дифференциальному уравнению для производящей функции $\varphi(s) = \sum_{n=0}^{\infty} \rho_{nn} s^n$

$$\varphi''(s^2 - e^{2\omega_\varkappa/T}) + 4s\varphi' + 2\varphi = -\frac{\Gamma_f \bar{n}_f}{\Gamma^{(2)} \bar{n}\,(2\omega_\varkappa)\,(s+1)} \times$$
$$\times \{\varphi'[s - \exp(\omega_\varkappa/T^*)] + \varphi\}, \quad \varphi(1) = 1. \tag{16}$$

Вторым граничным условием к (16) является условие аналитичности $\varphi(s)$ в единичном круге. Проиллюстрируем применение этого условия на примере вычисления ρ_{nn} при $\Gamma_f \ll \Gamma^{(2)}$. В нулевом приближении по Γ_f

$$\varphi(s) = \frac{\rho_{00} + s\rho_{11}}{1 - s^2 e^{-2\omega_\varkappa/T}}, \quad \rho_{00} + \rho_{11} = 1 - e^{-2\omega_\varkappa/T}, \quad \rho_{nn} = e^{-2\omega_\varkappa/T} \rho_{n-2\,n-2}, \quad \Gamma^{(2)} \gg \Gamma_f. \tag{17}$$

Для того чтобы найти ρ_{00} и ρ_{11}, заметим, что при $\Gamma_f \neq 0$ правая часть (16) остается конечной в точке $s = -1$, если выражение в фигурной скобке в этой точке обращается в нуль, откуда

$$\rho_{11}/\rho_{00} = [1 + e^{-2\omega_\varkappa/T}(1 + 2e^{\omega_\varkappa/T^*})]/[2 + e^{\omega_\varkappa/T^*}(1 + e^{-2\omega_\varkappa/T})]. \tag{17a}$$

Как видно из (17), (17а), при $\Gamma^{(2)} \gg \Gamma_f$, независимо от соотношения T^*/T и от знака T^*, инверсия населенности отсутствует, $\rho_{11} < \rho_{00}$.

Если $\Gamma^{(2)} \ll \Gamma_f$, то инверсия населенности при $T^* < 0$ возможна. Обычная теория возмущений по $\Gamma^{(2)}/\Gamma_f$ не позволяет проанализировать ограничение убегания нелинейным трением. Корректно учесть нелинейное трение удается, однако, в важном случае сравнительно низких температур $\exp(-2\omega_\varkappa/T) \ll 1$, когда (16) можно свести к вырожденному гипергеометрическому уравнению. При $\Gamma^{(2)} < \Gamma_f(2\bar{n}_f + 1)$ единственное аналитическое решение этого уравнения таково

$$\varphi(s) = {}_1F_1\left(1, \frac{\Gamma_f(2\bar{n}_f + 1)}{\Gamma^{(2)}}, \frac{\Gamma_f \bar{n}_f}{\Gamma^{(2)}}(s+1)\right) \Big/ {}_1F_1\left(1, \frac{\Gamma_f(2\bar{n}_f + 1)}{\Gamma^{(2)}}, \frac{2\Gamma_f \bar{n}_f}{\Gamma^{(2)}}\right), \tag{18}$$

где ${}_1F_1$ — вырожденная гипергеометрическая функция [12]. Несложно, используя (18), проверить, что при слабом нелинейном трении $\rho_{00} < \rho_{11}$, если $T^* < 0$, т. е. имеет место инверсия населенности.

Нелинейное трение (7) может быть основным механизмом, устраняющим «убегание» низкочастотных квазилокальных колебаний, поскольку параметр $\Gamma^{(2)}$ в этом случае относительно велик за счет увеличения плотности состояний фононов на частоте $2\omega_\varkappa$ по сравнению с плотностью состояний на частоте $\omega_\varkappa$. Для локальных колебаний $\Gamma^{(2)} = 0$. Однако если $\omega_m < \omega_\varkappa < 2\omega_m$, то нелинейное трение локальных колебаний может быть обусловлено полем и возникает при учете членов $\sum_k V_{\varkappa\varkappa\varkappa k} c_\varkappa^3 c_k$ в H_i в (2). Для более высокочастотных колебаний основным механизмом, ограни-

чивающим «убегание», является скорее всего характерный для них сильный ангармонизм.

Отметим, что в случае сильного поля, когда $\Gamma_f \gg \Gamma$, кинетическое уравнение (5) имеет квазистационарное решение (10), даже если поле нестрого монохроматическое.

3. Взаимодействие неравновесных ЛК с излучением

Удобным способом регистрации состояния неравновесных осцилляторов является изучение их спектров поглощения (усиления) и люминесценции. Ниже будет исследована форма пиков вблизи резонансных частот в спектре ЛК, находящегося в нерезонансном монохроматическом поле, когда реализуется стационарный режим — усредненные по периоду ω^{-1} восприимчивости не зависят от времени. Если дипольный момент осциллятора $M=\mu c_\varkappa$, то его поляризуемость определяется (ср. [10]) Фурье-образом коррелятора $\langle [c_\varkappa(t),\ c_\varkappa(\tau)]\rangle$, причем в стационарном режиме $\langle [c_\varkappa(t),\ c_\varkappa(\tau)]\rangle = \langle [c_\varkappa(t-\tau),\ c_\varkappa(0)]\rangle$. Из (4) ясно, что с точностью до малых поправок $\sim\Gamma_f t_c$ форма спектра поглощения вблизи собственной частоты осциллятора описывается функцией

$$\left.\begin{aligned} &Q_0(\Omega) = \mathrm{Re}\int\limits_0^\infty dt \exp(i\Omega t)\langle [c_\varkappa(t),\ c_\varkappa(0)]\rangle \simeq \mathrm{Re}\int\limits_0^\infty dt \exp(i\Omega t)\, Q_0(t);\\ &Q_0(t) = \langle [a_\varkappa(t),\ a_\varkappa^+(0)]\rangle \approx e^{-i\omega_\varkappa t}\,\mathrm{Sp}_\varkappa\,[a_0(t)\,\hat{G}\,\{t,\ 0;\ [a_0^+(0),\ \rho_\varkappa(0)]\}],\ \Omega\sim\omega_\varkappa. \end{aligned}\right\} \quad (19)$$

С учетом (5)—(7), (12) $Q_0(\Omega)$ можно представить в виде совокупности перекрывающихся линий, соответствующих индуцированным резонансным излучением переходам между соседними уровнями осциллятора. Система уравнений, описывающая интерференцию этих линий, имеет такой же вид, как в равновесном случае [8, 9]. Основное отличие заключается в том, что в неравновесном случае параметры Γ_f и T^*, а также вероятности переходов, пропорциональные разностям населенностей уровней, зависят от поля.

В случае распадов $\omega_k = \omega_\varkappa \pm \omega$ уширение Γ_f растет с полем. Однако, если $\bar{n}(\omega_\varkappa) \gtrsim 1$ и $|V| > \Gamma$, то полная ширина $Q_0(\Omega)$ может уменьшаться в охлаждающем поле ($\Gamma_\perp \gg \Gamma_-,\ \Gamma_{\mathrm{inv}}$), так как при этом в формировании $Q_0(\Omega)$ участвуют переходы с меньшего числа уровней и неэквидистантность проявляется слабее. При $|V| \ll \Gamma_f$ уменьшение полуширины $Q_0(\Omega)$, Γ_f в поле происходит, если $\Gamma_{\mathrm{inv}} \gg \Gamma_\pm$. С уменьшением Γ_f растет эффективная температура осциллятора, и при $\Gamma_f \sim \bar{n}_f|V|$ распределение $Q_0(\Omega)$ начинает уширяться за счет неэквидистантности уровней. При $\Gamma_f < 0$, $\Gamma_f(2\bar{n}_f+1) > \Gamma^{(2)}$ неравновесный осциллятор усиливает излучение в некотором интервале частот. Из (19) видно, что в целом по спектру излучение поглощается,

$$\int d\Omega Q_0(\Omega) \simeq \pi\langle [a_\varkappa(0),\ a_\varkappa^+(0)]\rangle = \pi.$$

Поэтому оптимальными с точки зрения усиления являются ЛК со сравнительно сильным ангармонизмом, $|V| \gg \Gamma_f$. Спектр $Q_0(\Omega)$ для них представляет совокупность слабо перекрывающихся почти эквидистантных линий. Если интенсивность n-й линии, пропорциональная $(n+1)(\rho_{nn}-\rho_{n+1\,n+1})$, отрицательна, то в соответствующем частотном интервале излучение усиливается.

Как было показано в [13], при учете кубического ангармонизма $\tilde{V}c_\varkappa^3$, а также нелинейной зависимости дипольного момента ЛК от смещения, возникает резонансное поглощение света на удвоенной частоте осциллятора. Это справедливо и в неравновесном стационарном случае. Форма

пика вблизи удвоенной частоты определяется Фурье-образом коррелятора

$$Q_1(t) = \mathrm{Sp}_\varkappa [\tilde{c}_\varkappa^2(t)\, \hat{G}\{t,\ 0;\ [\tilde{c}_\varkappa^2(0),\ \rho_\varkappa(0)]\}], \tag{20}$$

куда вместо $\tilde{c}_\varkappa^2(t)$ следует подставить $a_0^2(t)\exp(-2i\omega_\varkappa t)$, а вместо $\tilde{c}_\varkappa^2(0)$ — $-[a_0^+(0)]^2$. Однако (20) позволяет исследовать не только форму пика на удвоенной частоте (соответствующие расчеты для равновесного случая проведены в [14]), но и спектр вблизи комбинированных частот $|\pm\omega\pm\omega_\varkappa|$. Для этого в $\tilde{c}_\varkappa^2$ необходимо учесть перекрестные члены $(v+v^*)(a_0+a_0^+)$. При $\omega_\varkappa\pm\omega>0$ слагаемое в $Q_1(t)$, ответственное за пик на частоте $\Omega\sim\omega_\varkappa\pm\omega$, отличается от $Q_0(t)$ только дополнительным множителем $16\omega_\varkappa^2|f_1|^2(\omega_\varkappa^2-\omega^2)^{-2}\times e^{\mp i\omega t}$ и, следовательно, пики на частотах $\omega_\varkappa$ и $\omega_\varkappa\pm\omega$ имеют одинаковую форму. Если же $\omega>\omega_\varkappa$, то пик на частоте $\Omega\sim\omega-\omega_\varkappa$ определяется коррелятором

$$\tilde{Q}_1(t) = \frac{16\omega_\varkappa^2}{(\omega^2-\omega_\varkappa^2)^2}|f_1|^2 e^{-i(\omega-\omega_\varkappa)t}\,\mathrm{Sp}_\varkappa[a_0^+(t)\,\hat{G}\{t,\ 0;\ [a_0(0),\ \rho_\varkappa(0)]\}]. \tag{21}$$

Из сравнения (21) и (19) ясно, что функции $\frac{16\omega_x^2|f_1|^2}{(\omega^2-\omega_x^2)^2}Q_0(x+\omega)$ и $\tilde{Q}_1(x+\omega-\omega_\varkappa)$ $(|x|\ll\omega,\ \omega_\varkappa)$ инверсионно симметричны относительно $x=0$. Если накачка осуществляется излучением, то участки $\tilde{Q}_1(\Omega)$ $(\Omega\sim\omega-\omega_\varkappa)$, где имеет место усиление (при $\Gamma_f>0$ это вся область пика) соответствуют вынужденному комбинационному рассеянию света.

Комбинационное рассеяние света, непосредственно взаимодействующего с ЛК, как и ВКР, обусловлено ангармонизмом и нелинейной поляризуемостью осциллятора. КР и люминесценция на основной частоте могут быть рассчитаны так же, как в [10], при учете взаимодействия с квантованным электромагнитным полем в кристалле. При $\Gamma_f>0$ и $\Gamma^{(2)}=0$ форма пиков люминесценции вблизи $\omega_\varkappa$ и $\omega-\omega_\varkappa$ определяется функциями

$$W_0(\Omega) = [\bar{n}_f-\bar{n}(\Omega)]\,Q_0(\Omega),\ \Omega\sim\omega_\varkappa:\ \tilde{W}_1(\Omega) =$$
$$= -[\bar{n}_f+\bar{n}(\Omega)+1]\,\tilde{Q}_1(\Omega),\ \Omega\sim\omega-\omega_\varkappa\ (\tilde{W}_1>0). \tag{22}$$

Осциллятор излучает на собственной частоте и на частотах $\omega_\varkappa\pm\omega>0$, только если его эффективная температура выше температуры среды. На частоте $\omega-\omega_\varkappa$ (при $\omega-\omega_\varkappa>0$) излучение (КР) имеет место при произвольных $T^*/T>0$. Если $\Gamma_f<0$, формула (22) неприменима; в области $\Omega\sim\omega-\omega_\varkappa$ есть частотные интервалы, где ВКР отсутствует, $\tilde{Q}_1(\Omega)>0$, и при достаточно больших $\bar{n}(\Omega)$ нет люминесценции.

Формула (20) позволяет также рассмотреть поглощение неравновесным осциллятором нерезонансных фононов (коэффициент поглощения пропорционален $\sum_k V_{\varkappa\varkappa k}^2\delta(\Omega-\omega_k)\,Q_1(\Omega)$). Согласно (20), (22), осциллятор может испускать фононы спонтанно на частотах $\omega_k\sim\omega_\varkappa\pm\omega$ при $\bar{n}(\omega_k)<\bar{n}_f$, однако усиление в этом случае не происходит. Фононы на частотах $\omega_k\sim\omega-\omega_\varkappa$ не только спонтанно испускаются, но, как видно из (21), когерентно усиливаются в присутствии поля. 4. Заключение

При накачке локализованных примесных колебаний нерезонансным излучением наибольший эффект можно получить, если частота излучения попадает в максимум одной из боковых полос поглощения (поглощение с участием фонона). Эти полосы обусловлены как ангармоническими членами $c_\varkappa^2 c_k$ в (2), так и нелинейной, зависящей от координат фононов, поляризуемостью ЛК [7]. С учетом последней в гамильтониане (2) появляется слагаемое $f(t)\sum_k m_{\varkappa k}c_\varkappa c_k$. Коэффициенты $m_{\varkappa k}$ перенормируют $V_{\varkappa\varkappa k}$ в выражениях для параметров индуцированного распада $\Gamma_\pm$, Γ_{inv}: $V_{\varkappa\varkappa k}\to V_{\varkappa\varkappa k}+\frac{\omega_\varkappa^2-\omega^2}{4\omega_\varkappa}m_{\varkappa k}$.

Поля, необходимые для того чтобы скорость индуцированного распада стала порядка скорости спонтанной релаксации, можно оценить по экспериментально измеренному отношению поглощения в максимуме пика α_m

к поглощению в боковой полосе $\alpha_{s.\,b.}(\omega)$: $|f|^2 \sim \Gamma\Gamma_0\omega\alpha_m/(\omega_\varkappa\alpha_{s.\,b.})$, где Γ_0 — полуширина пика. Соответствующие поля оказываются меньше 10^5 В/см. Усиление света и фононов на разностной частоте $\omega - \omega_\varkappa$ может проявляться в более слабых полях; порог для этого усиления обусловлен решеточным поглощением. Для получения значительного разогрева локальных или охлаждения квазилокальных колебаний нужно первые брать по возможности высокочастотными, а вторые — низкочастотными, чтобы Γ было мало. Осуществить равновесный разогрев высокочастотных ЛК до больших чисел заполнения $\bar{n}(\omega_\varkappa) \gtrsim 1$ часто невозможно.

Результаты, полученные выше для одномерного ЛК, можно обобщить на случай нескольких ангармонически взаимодействующих ЛК. В невырожденном случае, когда разные ЛК разнесены по частоте и частота поля не совпадает с разностью или суммой частот ЛК, это обобщение тривиально: взаимодействие $c_\varkappa c_{\varkappa'} c_k$ приводит к тому, что поле, действующее на осциллятор $\varkappa$, индуцирует распад осциллятора $\varkappa'$ и наоборот. Такие распады описываются совершенно аналогично рассмотренным выше. Ситуация меняется в случае вырожденных колебаний, например, ЛК кубической симметрии. В общем виде соответствующую задачу при произвольном направлении поля решить не удается и, в частности, не удается ввести эффективную температуру ЛК. В важном случае высокочастотных ЛК это, однако, можно сделать приближенно, если учесть, что для таких ЛК есть быстрый механизм релаксации, который обусловлен квазиупругим рассеянием фононов на ЛК. Такое рассеяние приводит к выравниванию чисел заполнения разных состояний ЛК с приблизительно одинаковой энергией (с одинаковым главным квантовым числом).

Большие эффекты могут иметь место в сравнительно слабом поле, если частота поля близка к разности частот двух ангармонически взаимодействующих ($V_{\varkappa\varkappa\varkappa_1} c_\varkappa^2 c_{\varkappa_1}$) ЛК и одно из них — быстрорелаксирующее, $\Gamma_{\varkappa_1} \gg \Gamma_\varkappa$, $|V_{\varkappa\varkappa\varkappa_1}|$.[2] Тогда при $\Gamma_{\varkappa_1}^2 \gg V_{\varkappa\varkappa\varkappa_1}^2 |f_1|^2 \omega_\varkappa^2/(\omega_\varkappa^2 - \omega^2)^2$ релаксация осциллятора $\varkappa$ описывается уравнением (5), причем $\Gamma_\pm$, Γ_{inv} следует заменить на существенно больший параметр $V_{\varkappa\varkappa\varkappa_1}^2/\Gamma_{\varkappa_1}$. Резонансный метод особенно важен для охлаждения низкочастотных квазилокальных колебаний, поскольку для них в случае индуцированной релаксации на фононы трудно добиться выполнения необходимого неравенства $\Gamma_+ \gg \Gamma_{\text{inv}}$. В случае резонанса с высокочастотным ЛК это неравенство может быть легко удовлетворено, если $\omega_\varkappa \gg \Gamma_{\varkappa_1}$.

Литература

[1] М. А. Иванов, Л. Б. Квашнина, М. А. Кривоглаз. ФТТ, *7*, 2047, 1965.
[2] Н. Н. Боголюбов. О некоторых статистических методах в математической физике. Изд. АН УССР, Киев, 1945.
[3] J. Schwinger. J. Math. Phys., *2*, 407, 1961.
[4] Б. Я. Зельдович, А. М. Переломов, В. С. Попов. ЖЭТФ, *55*, 589, 1968; *57*, 196, 1969.
[5] M. Lax. Fluctuation and Coherence Phenomena in Classical and Quantum Physics. New York, 1968. М. Лэкс. Флуктуации и когерентные явления, «Мир», М., 1974.
[6] М. И. Дыкман, М. А. Кривоглаз. УФЖ, *19*, 125, 1974.
[7] А. А. Марадудин. Дефекты и колебательный спектр кристаллов. «Мир», М., 1968.
[8] M. I. Dykman, M. A. Krivoglaz. Phys. Stat. Sol. (b), *68*, 111, 1975.
[9] М. И. Дыкман, М. А. Кривоглаз. ЖЭТФ, *64*, 993, 1973.
[10] М. И. Дыкман. ЖЭТФ, *68*, 2082, 1975.
[11] И. М. Дыкман, П. М. Томчук. ФТТ, *8*, 1343, 1966.
[12] И. С. Градштейн, И. М. Рыжик. Таблицы интегралов, сумм, рядов и произведений. «Наука», М., 1971.
[13] М. А. Кривоглаз, И. П. Пинкевич. Опт. и спектр., *23*, 571, 1967.
[14] М. И. Дыкман. ФТТ, *15*, 1075, 1973.

Институт полупроводников АН УССР
Киев

Поступило в Редакцию
25 января 1978 г.

[2] Примером такой системы могут служить высокочастотные (внутримолекулярные) локальные колебания примесной молекулы, взаимодействующие с относительно низкочастотными колебаниями (в частности, либрационными), затухание которых велико.