Кооперативная генерация когерентных фононов локализованными возбуждениями в стеклах

© А.М. Андриеш, Н.А. Енаки, В.И. Король, П.И. Бардетский, И.П. Куляк

Институт прикладной физики Академии наук Молдавии, МД-2028 Кишинев, Республика Молдавия

(Получена 9 ноября 2000 г. Принята к печати 15 ноября 2000 г.)

Исследуется кооперативная генерация фононных импульсов в полупроводниках группами инвертированных квазиэквидистантных многоуровневых связанных возбуждений (электроны, экситоны). Подобные эквидистантные системы имеют место в халькогенидных стеклах с фрактальной структурой. Показано, что кооперативная генерация неравновесных локализованных фононов (фрактонов) может быть наблюдаема при экспериментальном изучении релаксации групп возбужденных атомов после прохождения короткого лазерного импульса через образец. Увеличение коэффициента поглощения в процессе возбуждения стекол коротким лазерным импульсом сравнительно малой мощности обусловлено генерацией неравновесных когерентных локализованных фононов в процессе релаксации неравновесных возбуждений. Эти когерентные неравновесные локализованные фононы сильно изменяют топологию случайного потенциала и, таким образом, открывают новый канал межзонного поглощения света. Данные переходы имеют место с одновременным участием фотонов и локализованных фононов. Получены кинетические уравнения, описывающие релаксацию локализованных электронов, для двух случаев. Первый описывает поведение связанных электронов в мелких квантовых ямах. Второй реализован для глубоких квантовых ям. Процесс релаксации сильно зависит от динамической симметрии связанной электрон-фононной (или экситон-фононной) системы. Решения этих уравнений соответствуют экспериментальным данным.

1. Введение

При возбуждении стеклообразного полупроводника (As₂Se₃, AsSe) лазерными импульсами вблизи дна зоны проводимости замечаем, что коэффициент поглощения излучения сильно зависит от температуры (при заданной частоте). По-видимому, это связано с изменением топологии случайного потенциала при изменении числа термализованных фононов с длиной волны порядка расстояний между неоднородностями (ямами случайного потенциала). Формально этот результат можно представить в следующем виде:

$$\alpha = \alpha_0 + \beta n, \tag{1}$$

где n — число локализованных (и нелокализованных) фононов (фрактонов), способных менять топологию случайного потенциала, что в свою очередь приводит к увеличению коэффициента поглощения (1). Спектр этих фононов находится в довольно широком интервале, и скорее всего коэффициент поглощения (1) может быть записан в следующем виде:

$$\alpha = \alpha_0 + \sum_k \beta_k n_k, \tag{2}$$

где n_k — число спектральных фононов, приводящих к изменению коэффициента поглощения с весовым множителем β_k .

Что происходит при сильном возбуждении стеклообразного полупроводника лазерными импульсами? Очевидно, что при релаксации электронов (дырок) число неравновесных фононов возрастает. Это значит, что происходит более сильное изменение топологии случайного потенциала и коэффициент межзонного поглощения растет быстрее:

$$\alpha = \alpha_0 + \sum_k \beta_k \left[n_k^0 + \Delta n_k(t) \right], \qquad (3)$$

где $\Delta n_k(t)$ — число неравновесных фононов, генерируемых в процессе релаксации возбужденных электронов или дырок.

Рассмотрим далее некоторую модель релаксации этих возбуждений. Допустим, что возбужденные электроны наиболее вероятным образом релаксируют на нижележащие связанные состояния таким образом, что модель релаксации может быть описана в приближении двухуровневой системы [1]. При такой релаксации каждый электрон (дырка) генерирует спонтанно фонон. Очевидно, что в зависимости от локальной топологии случайного потенциала, яма, в которой релаксирует возбуждение (электрон или дырка), имеет случайную глубину и ширину. Другими словами, двухуровневые системы, о которых идет речь, неэквидистантны и поэтому генерируемые фононы имеют разные частоты. Так как длина волны генерируемых фононов превышает 100-1000 Å, то в объеме с данными размерами можно найти достаточно большое число локальных квазиэквидистантных состояний.

В данной ситуации мы можем разделить локальные состояния по спектральным подгруппам. Каждая подгруппа может быть рассмотрена как независимая эквивалентная возбужденная двухуровневая система, способная кооперативно генерировать фононный импульс на определенной частоте ω_k . Этот импульс напоминает сверхизлучательный импульс Дикке и при кооперативной генерации фононов впервые был обнаружен в кристалле рубидия

677

при "акустических" переходах примеси Cr³⁺ соответствующих инверсии $\bar{E}({}^{2}E) - 2\bar{A}({}^{2}E)$ [2]. О возможности когерентной генерации фононов и их влияния на коэффициент поглощения при распространении импульсов через тонкие пленки *a*-As₂Te₃ и полиацетилена сообщается в работе [3]. Наблюдаемые осцилляции фотоиндуцированного поглощения авторы напрямую связывают с распространением когерентных фононных импульсов между поверхностями пленки. Подобная генерация когерентных фононов и их влияние на коэффициент поглощения в пленках As₂Se₃, AsSe, GeSe₂ и As₂₂Se₃₃Ge₄₅ были замечены при проведении экспериментов в широких интервалах температур от 70 до 300 К [4,5]. Возвращаясь к нашим подгруппам, замечаем, что закономерности когерентной раскачки во времени каждой фононной моды (группы фононов) сильно зависят от частоты этих фононов ω_k , числа возбужденных электронов (или дырок) N_e^k , способных переходить в когерентный режим генерации фононов, от вероятности спонтанного перехода $1/\tau_0^k$ и даже от геометрии возбуждения электронов. Данное время раскачки называется в теории кооперативной релаксации временем задержки фононного импульса. Нетрудно сделать следующий вывод, что группа возбужденных электронов в более глубоких ямах способна генерировать более высокочастотные фононные импульсы и с более коротким временем раскачки. Это следует из зависимости от частоты и числа возбуждений времени задержки $t_0^k = \tau_0^k / N_k \ln(2N^k)$. Так как время спонтанной релаксации τ_0^k обратно пропорционально кубу частоты перехода ω_k , то очевидно, что когерентная раскачка высокочастотных фононов происходит быстрее раскачки низкочастотных фононных мод.

Этот эффект может быть экспериментально обнаружен при распространении через тонкую пленку импульсов разной длительности, но одинаковой энергии. При распространении коротких импульсов успевают раскачаться только высокочастотные фононные моды, и только они дают вклад в коэффициент поглощения

$$\alpha = \alpha_0 + \beta n_{\text{thermal}} + \beta \Delta n_k^{hf}(t). \tag{4}$$

При распространении более длинных импульсов успевают подключиться к процессу поглощения с участием фононов и низкочастотные когерентные моды, имеющие более длинные времена раскачки. Другими словами, оперируя длительностью оптических импульсов, мы можем тестировать временную картину генерации фононов по спектру (см. рис. 1). Экспериментально обнаружено, что энергия поглощения импульса *1* меньше энергии поглощения импульса *2*. Этот эффект поглощения может быть объяснен нашей моделью, так как вклад в коэффициент поглощения от импульса *1* вносят только высокочастотные фононы

$$\alpha_1 = \alpha_0 + \beta n^0 + \beta_{k_1} \Delta n_{k_1}(t).$$

Для импульса 2 коэффициент поглощения возрастает

$$\alpha_2 = \alpha_0 + \beta n^0 + \beta_{k_1} \Delta n_{k_1}(t) + \beta_{k_2} \Delta n_{k_2}(t)$$



Рис. 1. Возбуждение когерентных фононных мод лазерным импульсом одинаковой мощности и различными продолжительностями $\tau_{p_1} < \tau_{p_2} < \tau_{p_3}$, где $\tau_{p_1} \approx t_0^{k_1}$, $\tau_{p_2} \approx t_0^{k_2}$, $\tau_{p_3} \approx t_0^{k_3}$.

При импульсе *3* вклад в коэффициент поглощения вносят все три группы

$$lpha_3=lpha_0+eta n^0+\sum_{i=1}^3eta_{k_i}\Delta n_{k_i}(t).$$

Следует также отметить, что коэффициент β из формулы (1) может быть найден в процессе измерения линейного коэффициента поглощения α для двух различных температур [4,5]

$$\alpha(T_1) = \alpha_0 + \beta n_0(T_1)$$

И

$$\alpha(T_2) = \alpha_0 + \beta n_0(T_2).$$

Исключая α_0 из этих выражений, можно получить следующий результат:

$$\beta = \frac{\alpha(T_1) - \alpha(T_2)}{n_0(T_1) - n_0(T_2)}.$$

Принимая во внимание, что основной вклад в поглощение света дают локализованные фононы с длиной волны $\lambda \approx d_m$, где $d_m \approx 1$ нм — среднее расстояние между пространственными неоднородностями в образце халькогенидного стеклообразного полупроводника (ХСП), из температурных зависимостей $\alpha(T_1)$, $\alpha(T_2)$ и $n_0(T_1)$, $n_0(T_2)$ можно найти β . Среднее число локализованных фононов может быть найдено, используя распределение Бозе

$$n_0(T) = [\exp(\hbar\omega_s/k_{\rm B}T) - 1]^{-1},$$

где $k_{\rm B}$ — постоянная Больцмана, $\omega_s \approx sk_m$, s — скорость света в ХСП ($s \approx 10^5 \,{\rm cm/c}$), $k_m \approx 2\pi/d_m$. Подставляя в выражение для $\alpha(T)$ и $n_0(T)$ соответствующие

Физика и техника полупроводников, 2001, том 35, вып. 6

значения параметров XCП [4–6], можно найти, что $\beta \approx 6 \cdot 10^3 \, {\rm cm}^{-1}.$

Основная цель данной работы состоит в том, чтобы показать, каким образом возбужденные электроны в квантовых ямах случайного потенциала могут генерировать коррелированные локализованные фононы (фрактоны). Эти когерентные локализованные возбуждения распадаются в акустические фононы, которые распространяются по образцу ХСП.

Модель кооперативной генерации фононов и их влияние на коэффициент поглощения

Механизм возбуждения локализованных электроннодырочных пар лазерным импульсом и генерация неравновесных когерентных фононов могут быть описаны следующей системой уравнений:

$$\frac{1}{c} \frac{dI_{s}(t,z)}{dt} + \frac{dI_{s}(t,z)}{dz} = -(\alpha_{0} + \beta n)I_{s}(t,z),$$

$$\frac{dN_{e}^{k}}{dt} = -\frac{N_{e}^{k}}{\tau_{0}^{k}} + (\alpha_{0} + \beta n)\frac{V_{0}I_{s}(t,z)}{\hbar\omega_{0}}\rho^{k}$$

$$-\frac{N_{e}^{k}N_{g}^{k}}{\tau^{k}} - \frac{n_{k}}{\tau_{0}^{k}}(N_{e}^{k} - N_{g}^{k}),$$

$$\frac{dN_{g}^{k}}{dt} = \frac{N_{e}^{k}}{\tau_{0}^{k}} + \frac{N_{e}^{k}N_{g}^{k}}{\tau^{k}} + \frac{n_{k}}{\tau_{0}^{k}}(N_{e}^{k} - N_{g}^{k}),$$

$$\frac{dn}{dt} = \frac{1}{\tau_{f}}(n - n_{0}) + \sum_{k} \frac{dN_{g}^{k}}{dt},$$
(5)

где N_e^k и N_g^k — средние числа возбужденных электронов и электронов в основном состоянии *k*-й подгруппы (см. рис. 2) соответственно; *k* нумерует число эквидистантных подгрупп двухуровневых систем, $k = 1, 2, 3, \ldots, N_s$; V_0 — объем возбуждения лазерным импульсом в образце ХСП, I_s — интенсивность света в образце ХСП, ρ^k — плотность функции распределения по подгруппам, обладающая следующим свойством:

$$\sum_{k=1}^{N_s}\rho^k=1;$$

 $n_k = n\rho^k$; τ^k/N^k — время кооперативного распада *k*-й подгруппы; $N^k = N_g^k + N_e^k$; τ_f — время ухода фононов из области активной локализации акустических фононных мод. Эта система уравнений может быть получена из уравнений Максвелла–Блоха в случае, когда продолжительность лазерного импульса много больше времени релаксации электронной поляризации в ХСП. Кооперативный эффект возможен в случае, когда длина волны локализованных фононов порядка расстояний между квантовыми ямами *k*-й подгруппы.



Рис. 2. Система двухуровневых возбуждений в стеклах со случайной энергией переходов. Здесь $N_e^{k_i}$ — число возбуждений *i*-й подгруппы. На этом рисунке $\omega_{k_1} > \omega_{k_2} > \omega_{k_3}$.

Рассмотрим случай, когда продолжительность импульса τ_p порядка времен релаксации локализованных электронов и фононных подсистем. В данной ситуации мы можем найти стационарное решение для нелинейного коэффициента поглощения $\alpha(I_s) = -dI_s(z)/I_sdz$, используя условия стационарности $dI_s/dt = dn/dt = dN_e/dt = 0$:

$$\alpha(I_s) = \alpha_0 + \beta \, \frac{n_0 + \tau_f V_0 \alpha_0 I_s(z) / \hbar \omega_0}{1 - \tau_f V_0 \beta I_s(z) / \hbar \omega_0}. \tag{6}$$

Замечаем, что с увеличением интенсивности света коэффициент поглощения возрастает. Подобное увеличение коэффициента поглощения было экспериментально обнаружено в работах [4,5]. Нестационарное решение системы уравнений (5) приводит к гистерезисной зависимости интенсивности света на выходе в зависимости от интенсивности на входе.

Когда продолжительность лазерного импульса много меньше времени релаксации локализованных электронов, возбуждающий импульс может быть аппроксимирован δ -функцией ($I_s(z,t) = I_{s0}\tau_p\delta(t)$). В этом случае число возбужденных электронов во время прохождения импульса имеет следующий вид:

$$N_e^k = \tau_p V_0 \frac{I_{s0}}{\hbar\omega_0} (\alpha + \beta n) \rho^k = 2j^k, \tag{7}$$

где 2*j^k* — число локализованных возбужденных центров (электроны, дырки) в *k*-й подгруппе. Из второго и третьего уравнений системы (5) можно получить уравнение распада для инверсии $\langle D_z^k \rangle = (N_e^k - N_g^k)/2$:

$$\begin{aligned} \frac{d\langle D_z^k \rangle}{dt} &= -\frac{1}{\tau_0^k} \left(\langle D_z^k \rangle + j^k \right) \\ &- \frac{2}{\tau_0^k} \bar{n}_0 \langle D_z^k \rangle + \frac{1}{\tau^k} \left[\langle D_z^k \rangle^2 - (j^k)^2 \right]. \end{aligned} \tag{8}$$

Здесь \bar{n}_0 — среднее число фотонов внешнего термолизованного поля,

$$\bar{n}_0 = [\exp(\hbar\omega_0/k_{\rm B}T) - 1]^{-1}$$

Приступим к изучению поведения предложенной системы в квазистационарном случае, когда $dn/dt \ll (n - n_0)/\tau_f$. В данной ситуации из четвертого уравнения системы (5) следует, что

$$n = n_0 - \tau_f \sum_k \frac{d\langle D_z^k \rangle}{dt},\tag{9}$$

где $\langle D_z^k \rangle$ можно найти, решив уравнение (8),

$$\langle D_z^k \rangle = \frac{\tau^k}{2\tau_0^k} (1+2\bar{n}_0) - d^k \operatorname{th} \left[\frac{d^k}{\tau^k} (t-t_0) \right],$$
 (10)

где

$$t_{0k} = \frac{\tau^k}{d^k} \ln \sqrt{\frac{\frac{d^k - \frac{\tau^k}{2\tau_0^k}(1 + 2\bar{n}_0) + j^k}{d^k + \frac{\tau^k}{2\tau_0^k}(1 + 2\bar{n}_0) - j^k}}$$

— время задержки для подгруппы *k*, которое дается следующим выражением:

$$d^{k} = \sqrt{\left(\frac{\tau^{k}}{2\tau_{0}^{k}}\right)^{2} (1+2\bar{n}_{0})^{2} + \left(\frac{j^{k}}{\tau^{k}} + \frac{1}{\tau_{0}^{k}}\right) j^{k}\tau^{k}}.$$
 (11)

В этом случае стационарное решение для нелинейного коэффициента поглощения α принимает следующую форму:

$$\alpha = \alpha_0 + \beta \left(n_0 - \tau_f \sum_k \frac{d\langle D_z^k \rangle}{dt} \right)$$
$$= \alpha_0 + \beta \left\{ n_0 + \tau_f \sum_k \frac{d^{k2}}{\tau^k} \operatorname{sch}^2 \left[\frac{d^k}{\tau^k} (t - t_{0k}) \right] \right\}. \quad (12)$$

Формула (12) описывает процесс релаксации нелинейного коэффициента поглощения после прохождения δ -импульса через образец ХСП. Следует отметить, что данные релаксации также рассматривались в работах [4,5]. Из формулы (12) следует, что релаксация зависит от закона кооперации между локализованными электронами. Каждая функция sch² в выражении (12) имеет максимум в точке $t = t_{0k}$. Сумма по k учитывает все подгруппы эквидистантных двухуровневых состояний, которые имеют различные времена задержки. В этой ситуации закон релаксации коэффициента поглощения может быть более уширенным, чем в случае отдельной группы эквидистантных двухуровневых состояний. Это уширение зависит от явной функции распределения по подгруппам ρ^k .

3. Модель описания глубоких квантовых ям

В этом разделе мы исследуем другой случай, когда глубина квантовых ям случайного потенциала такова, что локализованное возбуждение имеет более двух состояний, а именно, М энергетических состояний. Для простоты мы ограничимся случаем, когда спектр отдельного локализованного возбуждения может быть рассмотрен как квазиэквидистантный спектр нелинейного осциллятора с энергетическим интервалом между соседними уровнями $\hbar \omega_f$ [7]. Подобный нелинейный осциллятор может быть эквивалентен возбужденным электронам в твердых телах, в которых принимаются во внимание экситон-экситонные взаимодействия [8]. По аналогии со случаем мелких квантовых ям все глубокие квантовые ямы могут быть распределены по подгруппам с одинаковым энергетическим интервалом между соседними уровнями $\hbar \omega_{fk}$. Предположим, что короткий лазерный импульс возбуждает в образце ХСП локализованное возбуждение, принадлежащее подгруппе k, таким образом, что во время процесса релаксации локализованного возбуждения по М-уровневому эквидистантному спектру генерируются *M* – 1 коррелированных локализованных фононов (фрактонов). Предположим, что энергия возбуждения в отдельной квантовой яме есть E_0 . В процессе спонтанного распада закон сохранения принимает следующий вид:

$$E_0 = E_{el} + E_f, \tag{13}$$

где E_{el} — энергия локализованного электрона (дырки) и E_f — энергия излученных фононов соответственно. Данные энергии можно записать через среднее число электронов (экситонов) уровня $j\langle a_j^+ a_j \rangle$ и среднее число фрактонов *n* следующим образом:

$$E_{el} = \sum_{j} \hbar \omega_f j \langle a_j^+ a_j \rangle, \quad E_f = \hbar \omega_f n_f$$

Из закона сохранения (13) мы получаем, что

$$\frac{dn}{dt} = -\frac{d}{dt} \langle D_z \rangle. \tag{14}$$

Здесь $\langle D_z
angle = \sum_j j \langle a_j^+ a_j
angle.$

В случае, когда локализованное электронно-дырочное возбуждение распадается по эквидистантному энергетическому спектру, могут иметь место различные динамические симметрии, связанные с законом распада. Например, может иметь место процесс релаксации, во время, которого наблюдается или только ускорение, или только замедление скорости спонтанного распада [7]. С другой стороны, возможен процесс, когда ускорение и замедление скорости спонтанного распада следуют один за другим [7]. В дальнейшем мы рассмотрим три динамические симметрии, одна из которых — симметрия гармонического осциллятора, а остальные — симметрии SU(2) и SU(1, 1). В зависимости от этих динамических симметрий D_z принимет различные формы:

$$D_{z} = \begin{cases} A^{+}A, \\ J_{z}, & SU(2), \\ R_{z}, & SU(1,1), \end{cases} D^{+} = \begin{cases} A^{+}, \\ J^{+}, & SU(2), \\ R^{+}, & SU(1,1), \end{cases}$$
$$D^{-} = [D^{+}]^{+}.$$

Рассмотрим далее три различные ситуации релаксации локализованного электрона по эквидистантному спектру в квантовой яме:

a)
$$d_{s,s-1} = d_0 \sqrt{s}$$
,
b) $d_{s,s-1} = d_0 [(j+m)(j-m+1)]^{1/2}$,
(здесь $j = (M-1)/2, m = s - j - 1)$,
b) $d_{s,s-1} = d_0 [(p-I)(p+I-1)]^{1/2}$,
(здесь $p - I = s$, $I = 0, 1, 2, ...$),

где $d_{s,s-1}$ — матричный элемент перехода дипольного момента между уровнями *s* и *s* – 1, 2*j* — число возбужденных состояний нелинейного осциллятора в случае симметрии SU(2), а *I* — параметр группы для симметрии SU(1,1), который может быть найден из экспериментальных данных закона распада. В случае а), когда число электронных уровней *M* большое, можно ввести следующие кооперативные операторы:

$$A = \sum_{s=1}^{M-1} \sqrt{s} a_s^+ a_{s+1}, \quad A^+ = \sum_{s=1}^{M-1} \sqrt{s} a_{s+1}^+ a_s, \qquad (15)$$

которые удовлетворяют следующему коммутационному соотношению:

$$[A, A^+] = \sum_{s=1}^M a_s^+ a_s - M a_M^+ a_M.$$
(16)

Первое слагаемое в правой части выражения (16) равно единице $\left(\sum_{s=1}^{M} a_s^+ a_s = 1\right)$. Так как мы изучаем распад осциллятора, находящегося в состоянии $|K\rangle$, которое находится ниже состояния $|M\rangle$, мы можем пренебречь вторым слагаемым в правой части формулы (16). В этом приближении операторы A и A^+ являются операторами Бозе и поведение системы напоминает поведение линейного осциллятора.

В случае б) можно ввести следующие кооперативные операторы каскадных переходов:

$$J^{-} = \sum_{m=-j+1}^{j} \left[(j+m)(j-m+1) \right]^{1/2} a_{m+j}^{+} a_{m+j+1},$$

$$J^{+} = \sum_{m=-j+1}^{j} \left[(j+m)(j-m+1) \right]^{1/2} a_{m+j+1}^{+} a_{m+j},$$

$$J_{z} = \sum_{m=-j}^{j} m a_{m+j+1}^{+} a_{m+j+1}, \qquad (17)$$

где 2*j* + 1 = *M* — число эквидистантных электронных уровней в квантовой яме.

Эти новые операторы являются генераторами SU(2)алгебры и, следовательно, удовлетворяют обычным свойствам углового момента [7–12]. Результат действия операторов J^+ , J^- и J_z на кет-вектор, соответствующий SU(2)-алгебре, определяется следующими соотношениями [7,8]:

$$J^{+}|j,m\rangle = [(j-m)(j+m+1)]^{1/2} |j,m+1\rangle,$$

$$J^{-}|j,m\rangle = [(j+m)(j-m+1)]^{1/2} |j,m-1\rangle,$$

$$J_{z}|j,m\rangle = m|j,m\rangle.$$
(18)

Теперь мы можем установить дипольный момент перехода $d_{s,s-1}$ в зависимости от номера уровня *s* каскадной эквидистантной лестницы. Как следует из формулы (18), эта зависимость может быть представлена для больших значений *M* в простой форме

$$d_{s,s-1} \approx d_0 \sqrt{s(M-s)}.$$

Также имеет место другой случай, когда динамика переходов из $|M\rangle$ возбужденных состояний коренным образом отличается от вышеупомянутых. В данной ситуации можно использовать симметрию переходов SU(1, 1). В самом деле, если мы рассмотрим случай в), то можно ввести кооперативные операторы переходов

$$\bar{R}^{+} = \sum_{p=0}^{M-1} \left[p(2I+p-1) \right]^{1/2} a_{p+1}^{+} a_{p},$$
$$\bar{R}^{-} = \sum_{p=0}^{M-1} \left[p(2I+p-1) \right]^{1/2} a_{p}^{+} a_{p+1}, \qquad (19)$$

удовлетворяющие следующему коммутационному соотношению:

$$[\bar{R}^+, \bar{R}^-] = -2\sum_{p=0}^{M} (p+I-1)a_p^+ a_p + M(2I+M-1)a_M^+ a_M$$
(20)

Физика и техника полупроводников, 2001, том 35, вып. 6

、 *-*

или

$$\tilde{R}^{+} = \sum_{p=-M+1}^{0} \left[p(p-2I+1) \right]^{1/2} a_{p+M+1}^{+} a_{p+M},$$

$$\tilde{R}^{-} = \sum_{p=-M+1}^{0} \left[p(p-2I+1) \right]^{1/2} a_{p+M}^{+} a_{p+M+1}.$$
 (21)

Когда M принимает большие значения и вышележащие уровни локализованного электрона не заселены, новые операторы переходов удовлетворяют коммутационным соотношениям для SU(1, 1)-алгебры [7,8,13–18]:

$$[R^+, R^-] = -2R_z, \quad [R_z, R^\pm] = \pm R^\pm, \qquad (22)$$

где R_z может быть определен в следующей форме:

$$\bar{R}_{z} = \lim_{M \to \infty} \sum_{p=1}^{M} (p+I-1)a_{p}^{+}a_{p},$$
$$\tilde{R}_{z} = \lim_{M \to \infty} \sum_{p=-M+1}^{0} (p-I)a_{p+M}^{+}a_{p+M}$$
(23)

для верхней и нижней ветвей гиперболоида вращения соответственно. В этой ситуации ми имеем новый интеграл движения

$$R^2 = R_z^2 - R_y^2 - R_x^2.$$
 (24)

И

Здесь $R_y = (R^+ - R^-)/2i$, $R_x = (R^+ + R^-)/2$ для "bar" и "tilde" операторов. Гиперболоид вращения, соответствующий вектору классического псевдоуглового момента (24), представлен на рис. 3. Из рис. 3 и выражений (19), (21) и (23) видно, что bar и tilde операторы соответствуют верхней и нижней ветвям гиперболоида вращения соответственно. Следует отметить, что изменение матричного элемента перехода дипольного момента в зависимости от состояния *s* сильно зависит от параметра *I* и ветви гиперболоида. В этом случае нормированные кет-векторы, соответствующие верхней ветви гиперболоида вращения, принимают форму [7]

$$|I, p\rangle = \left[\frac{(2I-1)!}{(p-I)!(p+I-1)!}\right]^{1/2} (\bar{R}^+)^{(p-I)} |I, I\rangle,$$
$$p = I, I+1, I+2, \dots$$
(25)

и для нижней ветви

$$|I, p\rangle = \left[\frac{(2I-1)!}{(|p|-I)!(|p|+I-1)!}\right]^{1/2} (\tilde{R}^{-})^{(|p|-I)} |I, -I\rangle,$$

$$p = -I, -I - 1, -I - 2, \dots$$
(26)

В данной ситуации необходимо представить действие генераторов группы на состояние $|I, p\rangle$:

$$R^{+}|I, p\rangle = \sqrt{(p - I + 1)(p + I)}|I, p + 1\rangle,$$

$$R^{-}|I, p\rangle = \sqrt{(p + I - 1)(p - I)}|I, p - 1\rangle,$$

$$R_{z}|I, p\rangle = p|I, p\rangle, \quad |p| \ge I.$$
(27)

Физика и техника полупроводников, 2001, том 35, вып. 6



Рис. 3. Верхняя и нижняя ветви гиперболоида вращения для симметрии переходов SU(1, 1).

Используя эти свойства, можно установить зависимость дипольного момента переходов $d_{s,s+1}$ как функции позиции состояния *s* и параметра группы *I*. Для верхней и нижней ветвей гиперболоида вращения имеем

$$d_{s,s+1} \approx d_0 \sqrt{s(2I+s)} \tag{28}$$

$$d_{s,s+1} \approx d_0 \sqrt{(M-s)(2I+M-s)}$$
 (29)

соответственно. Следует отметить, что для верхней ветви момент $d_{s,s+1}$ увеличивается с увеличением *s* и это увеличение изменяется от линейного закона для $I \ll 1$ до закона квадратного корня при больших *I*. Для нижней ветви наблюдается уменьшение момента перехода с возрастанием *s* при той же зависимости от параметра *I*, как и для верхней ветви. Следовательно, можно варьировать скорость процесса распада, выбирая оптимальное значение параметра *I* согласно экспериментальным данным.

Так как в халькогенидных стеклах центры D^+ и D^- могут появляться и исчезать одновременно [6], естественно предположить, что процесс релаксации таких бицентров может происходить с рождением отдельного локализованного колебания (фрактона). В нашей интерпретации этот процесс соответствует SU(1, 1)-симметрии переходов локализованных состояний в стеклах. В случае, когда два локализованных центра рождают отдельный фрактон, гамильтониан взаимодействия может быть представлен в следующей форме:

$$H_{\rm int} \propto g(a^{+2}b + a^2b^+),$$

где $a^+(a)$ — операторы рождения (уничтожения) локализованного центра и $b^+(b)$ — операторы рождения

$$R^+ = (a^+)^2/2, \quad R^- = a^2/2, \quad R_z = (aa^+ + a^+ a)/4.$$

Более детальные физические аспекты относительно верхней и нижней ветвей симметрии переходов SU(1,1) представлены в работе [7].

Рассмотрим случай, когда электронные переходы подчиняются SU(2)-алгебре. В данной ситуации, используя сохранение квадрата оператора полного углового момента J^2 и коммутационные соотношения для кооперативных операторов данной группы, можно получить следующее уравнение для электронной населенности в полуклассическом приближении $\langle J_z^2 \rangle \approx \langle J_z \rangle^2$:

$$\frac{d\langle J_z\rangle}{dt} = -2\gamma \left[j(j+1) - \langle J_z\rangle^2 + \langle J_z\rangle \right] - 4\gamma \bar{n}_0 \langle J_z\rangle, \quad (30)$$

где $2\gamma = 1/\tau_0$ и τ_0 — время спонтанной релаксации отдельного электрона. Для $\bar{n}_0 = 0$ решение этого уравнения для $j \gg 1$ принимает форму

$$\langle J_z(t) \rangle = -j \operatorname{th} \frac{1}{2\tau_r} (t - t_0').$$
 (31)

Здесь $1/\tau_r = 2j/\tau_0$ и $t'_0 = (\tau_0/2j) \ln 4j$ — времена кооперативного излучения и задержки *М*-го фононного импульса соответственно. Как было отмечено, это решение получено в полуклассическом приближении, так что флуктуации населенности $\sigma_{zz} \ll 1$.

Аналогичным образом, используя сохранение квадрата оператора полного псевдоуглового момента R^2 (24) и коммутационные соотношения (22) в полуклассическом приближении, мы имеем для симметрии переходов SU(1, 1):

$$\frac{d\langle R_z\rangle}{dt} = -2\gamma \left[-I(I-1) + \langle R_z \rangle^2 - \langle R_z \rangle \right] + 4\gamma \bar{n}_0 \langle R_z \rangle.$$
(32)

В случае, когда электрон первоначально находится в возбужденном состоянии $|K\rangle$ (K = I + M) верхней ветви гиперболоида, можно получить следующее решение этого уравнения при $\bar{n}_0 = 0$ для $I \gg 1$:

$$\langle \bar{R}_z(t) \rangle = I \operatorname{cth} \frac{1}{2\tau_r'} (t + \bar{t}_0), \qquad (33)$$

где $1/\tau_r' = 2I/\tau_0$ — время кооперативного излучения,

$$\bar{t}_0 = (\tau_0/2I) \ln(K+I)/(K-I)$$

Нетрудно заметить, что в этой ситуации скорость распада уменьшается во времени. Если первоначальное возбужденное состояние соответствует наивысшему состоянию нижней ветви гиперболоида вращения, то можно получить другое решение для электронной населенности:

$$\langle \tilde{R}_z(t) \rangle = I \operatorname{cth} \frac{1}{2\tau_r'} (t - \tilde{t}_o').$$
(34)

Здесь $\tilde{t}'_0 = (\tau_0/2I) \ln 4I.$

Следует отметить, что если мы пренебрегаем флуктуациями заселенности, то можно получить замкнутые уравнения (30) и (32) для заселенности уровней в присутствии симметрии переходов SU(2) и SU(1,1) соответственно. Решая эти уравнения в отсутствие электромагнитного поля $\bar{n}_0 = 0$, можно получить явное решение для заселенностей в случаях симметрий SU(2) - (31)и SU(1,1) - (33) и (34). Нетрудно заметить, что решение для симметрии переходов SU(2) напоминает соответствующее решение для модели сверхизлучения Дикке (M - 1) инвертированных атомов, в то время как для симметрии переходов SU(1,1) процесс распада коренным образом отличается от сверхизлучения Дикке.

Если природа случайного потенциала такова, что имеет место множество квазиэквидистантных нелинейных осцилляторов (экситонов) в ХСП, мы можем трактовать поведение такой системы по аналогии со случаем мелких квантовых ям. В самом деле, так как спектр М-уровневых локализованных возбуждений может быть разделен на спектр квазиэквидистантных подгрупп, в данной ситуации возможны два типа кооперации. Одна из них представляет собой кооперацию между локализованными возбуждениями, принадлежащими различным пространственно разделенным квазиэквидистантным нелинейным осцилляторам. Подобная кооперация возможна только в том случае, когда длина волны локализованных фононов порядка расстояния между локализованными осцилляторами к-й подргуппы. Второй тип — кооперация, которая имеет место в процессе релаксации отдельного квазиэквидистантного осциллятора из возбужденного в основное состояние [7]. В данной ситуации система уравнений (5) модифицируется путем введения новых уравнений, которые описывают релаксацию электронно-дырочных пар, принадлежащих *k*-й подгруппе *M*-уровневого эквидистантного спектра. Таким образом, система уравнений, описывающая процесс нелинейного межзонного поглощения света в стеклах в присутствии этих типов кооперации, принимет следующий вид:

$$\frac{dI_s(t,z)}{dt} = -c \left[\frac{dI_s(t,z)}{dz} + (\alpha_0 + \beta n) I_s(t,z) \right],$$

$$\frac{d\langle D_z^k \rangle}{dt} = -\frac{1}{\tau^k} \langle D_k^+ D_k^- \rangle - \frac{2}{\tau_0^k} n^k(t) \langle D_z^k \rangle G$$

$$+ (\alpha_0 + \beta n) \frac{V_0 I_s(t,z)}{\hbar \omega_f} \rho^k,$$
(35)

$$\begin{split} \frac{d\langle D_k^+ D_k^- \rangle}{dt} &= -\frac{1+n^k}{\tau_0^k} \langle D_k^+ D_k^- \rangle \\ &+ \frac{G}{\tau^k} \langle D_k^+ D_k^- \rangle \langle D_z^k \rangle - \frac{G^2}{\tau_0^k} \langle D_z^k \rangle n^k(t), \\ \frac{dn}{dt} &= -\sum_k \frac{d}{dt} \langle D_z^k \rangle - \frac{1}{\tau_f} (n-n_0). \end{split}$$

В этой системе параметр G = 1 для симметрии SU(2) и G = -1 для симметрии SU(1, 1).

Физика и техника полупроводников, 2001, том 35, вып. 6

Рассмотрим далее случай, когда симметрия дипольных переходов локализованных возбуждений в глубоких квантовых ямах подчиняется симметрии SU(1, 1) (см. (28)). В данной ситуации можно записать уравнение для населенности D_z по аналогии со случаем мелких квантовых ям

$$\frac{d\langle D_z^k \rangle}{dt} = -\frac{1}{\tau_0^k} \left(-\langle D_z^k \rangle + I^k \right) + \frac{2}{\tau_0^k} \bar{n}_0 \langle D_z^k \rangle + \frac{1}{\tau^k} \left[-\langle D_z^k \rangle^2 + (I^k)^2 \right].$$
(36)

Решение этого уравнения принимает следующий вид:

$$\langle D_{z}^{k} \rangle = \frac{\tau^{k}}{2\tau_{0}^{k}} (1 + 2\bar{n}_{0}) + \bar{d}^{k} \operatorname{cth}\left(\frac{\bar{d}^{k}}{\tau^{k}} t + \ln \sqrt{\frac{\bar{d}^{k} - \frac{\tau^{k}}{2\tau_{0}^{k}} (1 + 2\bar{n}_{0}) + I^{k}}{\bar{d}^{k} + \frac{\tau^{k}}{2\tau_{0}^{k}} (1 + 2\bar{n}_{0}) - I^{k}}}\right), (37)$$

где

$$\bar{d}^{k} = \sqrt{\left(\frac{\tau^{k}}{2\tau_{0}^{k}}\right)^{2} (1+2\bar{n}_{0})^{2} + \left(\frac{I^{k}}{\tau^{k}} - \frac{1}{\tau_{0}^{k}}\right) I^{k}\tau^{k}}.$$
 (38)

Используя это решение, можно легко получить выражение для нелинейного коэффициента поглощения в случае SU(1,1,)-симметрии локализованных возбуждений в глубоких квантовых ямах

$$\alpha = \alpha_0 + \beta \left[n_0 + \tau_f \sum_k \frac{(\bar{d}^k)^2}{\tau^k} \right]$$
$$\times \operatorname{csch}^2 \left(\frac{\bar{d}^k}{\tau^k} t + \ln \sqrt{\frac{\bar{d}^k - \frac{\tau^k}{2\tau_0^k} (1 + 2\bar{n}_0) + I^k}{\bar{d}^k + \frac{\tau^k}{2\tau_0^k} (1 + 2\bar{n}_0) - I^k}} \right) \right]. \quad (39)$$

Замечаем, что в данной ситуации коэффициент нелинейного поглощения α убывает во времени и в процессе релаксации стремится к равновесному значению $\alpha = \alpha_0 + \beta n_0$, в то время как в случае симметрии SU(2) коэффициент поглощения ведет себя аналогично соответствующему случаю мелких квантовых ям.

4. Заключение

Как видно из уравнений (12) и (39), коэффициент нелинейного индуцированного поглощения света α сильно зависит от закона релаксации локализованных возбуждений случайного потенциала. Этот закон определяется формой случайного потенциала и динамической симметрией процесса релаксации системы. Из уравнения (12) следует, что для мелких квантовых ям, а также для симметрии SU(2) в случае глубоких квантовых ям коэффициент нелинейного поглощения $\alpha \propto \operatorname{sch}^2 t$ и напоминает сверхизлучательный импульс Дикке. В случае симметрии переходов SU(1, 1) в глубоких квантовых ямах из уравнения (39) замечаем, что коэффициент нелинейного поглощения $\alpha \propto \operatorname{csch}^2 t$ и коренным образом отличается от сверхизлучения Дикке, что в свою очередь дает более глубокое понимание описания экспериментальных исследований [2–5].

Список литературы

- [1] P.W. Anderson, B.I. Halperin, C.M. Varma. Philos. Mag., 25, 1 (1972).
- [2] M.H. Overwijk, J.I. Dijkhuis, H.W. de Wijn. Phys. Rev. Lett., 65, 2015 (1990).
- [3] C. Thomsen, J. Strait, Z. Vardeny, H.J. Maris, J. Tauc. Phys. Rev. Lett., 53, 989 (1984).
- [4] А.М. Андриеш, О.И. Богдан, Н.А. Енаки, И.А. Кожокарь, В.Н. Чумаш. Известия РАН, 56, 96 (1992).
- [5] А.М. Андриеш, Н.А. Енаки, И.А. Кожокарь, Н.Д. Остафейчук, П.Г. Чербарь, В.Н. Чумаш. Письма ЖТФ, 14, 1985 (1988).
- [6] Н. Мотт, Э. Дэвис. Электронные процессы в некристаллических веществах (М., Мир, 1982).
- [7] N.A. Enaki, V.I. Koroli. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., 31, 3583 (1998).
- [8] П.И. Бардетский, Н.А. Енаки, Д. Михалаке. ЖЭТФ, 83, 653 (1996).
- [9] Л. Биденхарн, Ж. Лаук. Угловой момент в квантовой физике.
- [10] J.M. Radcliffe. J. Phys. A, 4, 313 (1971).
- [11] F.T. Arecchi, E. Courtens, R. Gilmore, H. Thomass. Phys. Rev. A, 6, 2211 (1972).
- [12] S.S. Hassan, G.P. Hildred, R.R. Puri, R.K. Bullough. J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., 15, 2635 (1982).
- [13] C.C. Gerry. Phys. Rev. A, 37, 2683 (1988).
- [14] A.M. Perelomov. Generalized Coherent States and Their Applications (Berlin, Springer Verlag, 1980).
- [15] V. Buzeek. Phys. Rev. A, 39, 3196 (1989).
- [16] K. Wodkiewicz, J.H. Eberly. J. Opt. Soc. Amer. B, 2, 458 (1985).
- [17] C.C. Gerry. Phys. Rev. A, **31**, 2721 (1985).
- [18] M. Ban. J. Opt. Soc. Amer. B, 10, 1347 (1993).

Редактор Т.А. Полянская

A cooperative generation of coherent phonons by localized excitations in glasses

A.M. Andriesh, N.A. Yenaki, V.I. Korol, P.I. Bardetskii, I.P. Kulyak

Institute for Applied Physics, Moldovian Academy of Sciences, MD-2028 Kishin'ov, The Moldova Republic