

多声子无辐射弛豫速率的理论研究

张包箴 李宇新 林美荣 陈文驹

南开大学物理系, 天津, 300071

1989 年 4 月 4 日收到

本文应用量子力学生成函数法, 在等效耦合模条件下导出多声子弛豫速率的普适表达式, 及在高级近似条件下的解析表达式. 指出 Fong 等人在弱耦合条件下用统计方法、Miyakawa 等人在弱耦合和低温近似条件下所得多声子弛豫速率表达式的局限性. 文中还计算了多声子弛豫速率对温度、声子能量、能隙以及位移参数的依赖关系.

PACC: 6310; 6320D; 6320

一、引 言

多声子无辐射弛豫速率是掺稀土晶体激光性能的重要参数. 在理论上建立多声子弛豫过程的模型, 获得弛豫速率的解析表达将具有重要的意义. Kiel 等人^[1]曾运用量子力学的高阶微扰理论处理轨道-晶格相互作用的一级近似项, 得出多声子发射过程的解析式. 但由于过程的复杂性, 只能估计出多声子弛豫速率的数量级. Riseberg 等人^[2]发展了 Kiel 等人的方法, 用唯象处理法得出弛豫速率的表达式. 但该结果中的参数无明显的物理意义, 仅能解释弛豫速率对能级间隙的依赖关系. Miyakawa 等人^[3]严格地推导出多声子弛豫速率的表达式, 但其结果仅在满足: (1) 弱耦合、(2) 低温近似、(3) 电-声耦合谱密度分布的零宽度近似三个条件下才成立. Fong^[4]等人用量子统计法得到的结果, 也是在弱耦合及梯度点近似下才成立.

实际上, 由于电-声耦合存在谱密度分布, 因而零点近似不符合实际情况. 此外, 虽然掺稀土材料的 $4f^n$ 构型内的跃迁符合弱耦合近似条件, 而对于 $4f^n \rightarrow 15d$ 向 $4f^n$ 的弛豫过程则属于中间耦合或强耦合. 同时, 由于大多数激光系统通常运转在常温或高温下, 因而不满足低温条件. 为此有必要推导出在更普遍情况下(即高温、强耦合下)均适用的多声子无辐射弛豫速率的表达式.

本文采用生成函数方法, 在等效耦合模条件下推导出普遍适用的多声子弛豫速率表达式, 并讨论了 Fong 等人所得结果和 Miyakawa 等人所得结果的局限性.

二、理论模型与生成函数方法

如果晶体中掺杂离子浓度不很高, 杂质之间的相互作用很小并不影响杂质离子内部跃迁时, 杂质离子可视为局域性的. 局域化离子系统的哈密顿量可写为

$$H(r, \theta) = H_e(r) + H_L(\theta) + H_{eL}(r, \theta). \quad (1)$$

这里 H_e , H_L , H_{eL} 分别为电子、晶格振动及电子与晶格相互作用能; r , θ 分别为电子坐标及晶格振动坐标. 由于局域化离子间相互作用很弱, 采用绝热近似解方程, 得出系统波函数为

$$\phi_{ir}(r, \theta) = \Phi_i(r, \theta) X_{ir}(\theta), \quad (2)$$

$\Phi_i(r, \theta)$ 和 $X_{ir}(\theta)$ 分别为电子波函数和相应的晶格振动波函数; i , r 分别表示电子态和振动态. 由于电子波函数 $\Phi_i(r, \theta)$ 依赖位型坐标, 所以系统波函数 $\phi_{ir}(r, \theta)$ 不是定态波函数, 存在非绝热哈密顿量 H_{NA} , 它由下式确定:

$$H_{NA}\phi_{ir}(r, \theta) = H_L(\Phi_i, X_{ir}) - \Phi_i(H_L, X_{ir}). \quad (3)$$

设电子晶格作用是线性的, 于是有

$$H_{eL}(r, \theta) = - \sum_i V_i(r) \partial_i. \quad (4)$$

利用(4)式, 由(3)式可将非绝热哈密顿算符表示为

$$(H_{NA})_{ij} = -i \sum_k S_{ik} \frac{\partial}{\partial \theta_j}. \quad (5)$$

由 E_i 到 E_j 单位时间无辐射跃迁几率为

$$W_{NA} = \frac{2\pi}{\hbar} F_{NA}(\Delta E), \quad (6)$$

式中 $F_{NA}(\Delta E)$ 为能谱函数,

$$F_{NA}(\Delta E) = \sum_{i,j} |\langle f | H_{NA} | i \rangle|^2 W_i \delta(\Delta E - E_i + E_j), \quad (7)$$

f , i 为跃迁末态和始态, ΔE 为跃迁能,

$$W_i = e^{-\beta E_{ir}/T} \rho_i(\beta), \quad (8)$$

式中 E_{ir} 为电子振动能, $\rho_i(\beta)$ 为振动态的密度矩阵, T , 为晶格温度, $\beta = 1/kT$.

采用生成函数法^[9]求能谱函数 $F_{NA}(\Delta E)$. 首先对(7)式进行拉普拉斯变换, 得出

$$f_{NA}(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} F_{NA}(\Delta E) e^{-t\Delta E} d(\Delta E). \quad (9)$$

经一系列运算后, 将(9)式改写为

$$f_{NA}(t) = f_0(t) g_{NA}(t), \quad (10)$$

式中 $f_0(t)$ 即为生成函数, 它决定能谱的线型,

$$f_0(t) = \exp[(i\varepsilon_0 t/\hbar) - g + g_+(t) + g_-(t)], \quad (11)$$

式中 $\varepsilon_0 = \varepsilon_k^{(0)} - \varepsilon_i^{(0)}$ 称作激发能或跃迁能, g 和 $g_{\pm}$ 分别定义为

$$g = g_+(0) + g_-(0) = \int d\omega D(\omega) (2\hbar\omega + 1), \quad (12)$$

$$g_{\pm}(t) = \int d\omega D(\omega) \left\{ \sum_{n=0}^{\infty} \right\} \exp(\pm i\omega t), \quad (13)$$

$D(\omega)$ 为电-声耦合作用的谱密度, 被定义为

$$D(\omega) = \sum_i (\omega_i \Delta_i^2 / 2\hbar) \delta(\omega - \omega_i), \quad (14)$$

式中 Δ_i 表示 k, j 两态之间的绝热势, 它是一个重要参数, 表征电-声耦合作用的强弱. $n_\omega(T)$ 表示在温度 T 时的激发声子数,

$$n_\omega(T) = [\exp(\beta\hbar\omega) - 1]^{-1}. \quad (15)$$

(10)式中的 $g_{NA}(t)$ 实际是非绝热算子, 表征非绝热耦合的强度及分布, 可表示为

$$g_{NA} = |R - R_+(t) - R_-(t)|^2 + J_+(t) + J_-(t), \quad (16)$$

式中

$$R = R_+(0) + R_-(0), \quad (17)$$

$$R_\pm(t) = \int d\omega L(\omega) \left\{ \begin{matrix} n_\omega \\ n_\omega \pm 1 \end{matrix} \right\} \exp(\pm i\omega t), \quad (18)$$

$$J_\pm(t) = \int d\omega N(\omega) \left\{ \begin{matrix} n_\omega \\ n_\omega \pm 1 \end{matrix} \right\} \exp(\pm i\omega t), \quad (19)$$

$$L(\omega) = \sum_i (\omega_i S_i \Delta_i / 2\hbar) \delta(\omega - \omega_i), \quad (20)$$

$$N(\omega) = \sum_i (\omega_i S_i'^2 / 2\hbar) \delta(\omega - \omega_i), \quad (21)$$

$$S_i = i\hbar^2 \int \Phi_k^*(r, \theta) \frac{\partial \Phi_i(r, \theta)}{\partial \theta_i} dr. \quad (22)$$

若根据(9)式计算出生成函数, 并对生成函数进行反演拉普拉斯变换, 即可求出多声子弛豫速率的表达式. 为了求得生成函数, 必须已知电声作用的谱密度分布 $D(\omega)$ 和 S_i . 下面采用等效耦合模近似, 求得多声子弛豫速率的普适表达式.

三、多声子弛豫速率的普适表达式

各声子模式对电-声耦合的贡献可由一个等效耦合模式表示, 这个等效模式的频率对应于无辐射过程贡献最大的声子模式频率 ω_m . 根据这个假设, 令

$$g_m = \left(\frac{\omega_m}{2\hbar} \right)^{1/2} \Delta_m, \quad (23)$$

$$R_m = \left(\frac{\omega_m}{2\hbar} \right)^{1/2} S_m, \quad (24)$$

Δ_m 为等效耦合模位移参数, m 指无辐射弛豫过程贡献最大的声子模式, S_m 由(22)式当 $s = m$ 时得出. 于是(14), (20)和(21)式分别改写为

$$D(\omega) = L_m g_m^2 \delta(\omega - \omega_m), \quad (25)$$

$$L(\omega) = L_m g_m R_m \delta(\omega - \omega_m), \quad (26)$$

$$N(\omega) = L_m R_m^2 \delta(\omega - \omega_m). \quad (27)$$

利用上面的关系可将(12)和(13)式表示为

$$g_\pm(t) = L_m g_m^2 \left\{ \begin{matrix} n_m \\ n_m \pm 1 \end{matrix} \right\} \exp(\pm i\omega_m t), \quad (28)$$

$$g = L_m g_m^2 (2n_m + 1), \quad (29)$$

(17), (18)和(20)式表示为

$$R_{\pm}(t) = L_m R_m g_m \left\{ \begin{matrix} n_m \\ n_m + 1 \end{matrix} \right\} \exp(\pm i\omega_m t), \quad (30)$$

$$R = L_m R_m g_m (2n_m + 1), \quad (31)$$

$$J_{\pm}(t) = L_m R_m^2 \left\{ \begin{matrix} n_m \\ n_m + 1 \end{matrix} \right\} \exp(\pm i\omega_m t), \quad (32)$$

式中 L_m 为等效耦合模的简并度因子, $L_m g_m^2$ 表示电-声耦合作用的强度.

由上述关系可以计算出生成函数为

$$\begin{aligned} f_{NA}(t) &= f_0(t) g_{NA}(t) \\ &= \exp[(i\varepsilon_0 t/\hbar) - L_m g_m^2 (2n_m + 1)] L_m R_m^2 \\ &\quad \cdot \left[\sum_{P=0}^{\infty} \sum_{K=0}^P \frac{(L_m g_m^2)^P (n_m + 1)^P}{(P-K)! K!} \left(\frac{n_m}{n_m + 1} \right)^K L_m g_m^2 \right. \\ &\quad \cdot (6n_m^2 + 6n_m + 1) \Big] - [(4n_m^2 + 6n_m + 2)L_m g_m^2 - (n_m + 1)] \\ &\quad \cdot \sum_{P=0}^{\infty} \sum_{K=0}^P \frac{(L_m g_m^2)^P (n_m + 1)^P}{(P-K)! K!} \frac{n_m^K}{(n_m + 1)^K} \\ &\quad \cdot \exp[-i\omega_m(P-2K+1)t] - [(4n_m^2 + 2n_m)L_m g_m^2 - n_m] \\ &\quad \cdot \sum_{P=0}^{\infty} \sum_{K=0}^P \frac{(L_m g_m^2)^P (n_m + 1)^P}{(P-K)! K!} \frac{n_m^K}{(n_m + 1)^K} \exp[-i\omega_m(P-2K-1)t] \\ &\quad + \sum_{P=0}^{\infty} \sum_{K=0}^P \frac{(L_m g_m^2)^P (n_m + 1)^P}{(P-K)! K!} \frac{n_m^K}{(n_m + 1)^K} L_m g_m^2 \exp[-i\omega_m \\ &\quad \cdot (P-2K-2)t] + \sum_{P=0}^{\infty} \sum_{K=0}^P \frac{(L_m g_m^2)^P (n_m + 1)^{P+2}}{(P-K)! K!} \\ &\quad \cdot \frac{n_m^K}{(n_m + 1)^K} L_m g_m^2 \exp[-i\omega_m(P-2K+2)t]. \end{aligned} \quad (33)$$

感兴趣的是 N 个声子的过程, 因而上式中取幂指数项为 $\exp(-iN\hbar\omega_m t)$, 对(33)式进行反演拉普拉斯变换, 为简化表达, 现引入因子 $\lambda_{\Delta\gamma}$, 对应于 $\Delta\gamma = 0, \pm 1, \pm 2$, 分别有

$$\lambda_0 = (6n_m^2 + 6n_m + 1)L_m g_m^2, \quad (34)$$

$$\lambda_{+1} = -[(4n_m^2 + 6n_m + 2)L_m g_m^2 - (n_m + 1)] \frac{1}{L_m g_m^2}, \quad (35)$$

$$\lambda_{-1} = -[(4n_m^2 + 2n_m)L_m g_m^2 - n_m] L_m g_m^2 (n_m + 1) \quad (36)$$

$$\lambda_{+2} = \frac{1}{L_m g_m^2}, \quad (37)$$

$$\lambda_{-2} = (L_m g_m^2)^3 (n_m + 1)^2 n_m^2 \quad (38)$$

$$A_P^{\Delta\gamma} = \frac{(L_m g_m^2)^{2P} (n_m + 1)^P n_m^P}{P!} \frac{1}{(N + P - \Delta\gamma)!}. \quad (39)$$

最后求得 N 个声子过程的无辐射弛豫速率为

$$\begin{aligned} W_{NA}^N &= \frac{2\pi}{\hbar} F_{NA}(\Delta E) \\ &= \frac{2\pi}{\hbar} L_m R_m^2 (L_m g_m^2)^N (n_m + 1)^N \exp[-L_m g_m^2 (2n_m + 1)] \end{aligned}$$

$$\cdot \sum_{P=0}^{\infty} \sum_{\Delta\gamma=-1}^{+1} A_P^{\Delta\gamma} \lambda_{\Delta\gamma} \delta(\varepsilon_0 - N\hbar\omega_m). \quad (40)$$

在推导(40)式的过程中,除了作等效耦合模近似外,未引入任何其它近似条件,因此在任何耦合强度和在任何温度下,公式都是适用的,它是多声子弛豫速率的普适表达式。

为了分析弛豫速率对温度、声子频率、能隙,以及位移参数的依赖关系,定义具有长度量纲的弛豫速率 W^* 为

$$W^* = W_{NA}^N \frac{\hbar}{2\pi c} \frac{1}{L_m R_m^2}, \quad (41)$$

式中 c 为光速。

从(40)式可以看出,弛豫速率的表达式为级数形式,它的收敛速度要比以往得到的指数展开 $x^P/P!$ 形式的收敛速度快得多。即使当 n_m 和 $L_m g_m^2$ 较大时,在较好的精度条件下,须考虑的项数也不会太多,因此使计算大为简化。

四、结果分析与讨论

1. 通常认为当 $L_m g_m^2 \gg 5$ 时属于强耦合^[6]; 当 $L_m g_m^2 \ll 1$ 时为弱耦合; 介于两者之间的情况为中间耦合。所谓强、弱耦合,实际上是对应着绝热势位移很大和很小的两种极限情况。

对于掺稀土晶体的 $4f^n$ 构型,绝热势能曲线的平衡位移很小,弱耦合近似条件可写作^[7]

$$\varepsilon_0 \gg L_m g_m^2 \hbar \omega_m. \quad (42)$$

低温近似条件可表示为

$$n_m \ll 1. \quad (43)$$

为简化(40)式,定义

$$(L_m g_m^2)^2 (n_m + 1) n_m \ll 1 \quad (44)$$

为高级近似条件。所谓高级近似条件是指当弱耦合近似条件(42)式和低温近似条件(43)式成立时,高级近似条件自然成立。而当弱耦合近似条件和低温近似条件中的一个条件不满足时,高级近似条件依然成立。

由(40)式可以看出,当高级近似条件(44)式成立时,在(40)式中只须考虑 $P=0$ 的零阶项即可。这时弛豫速率的表达式为

$$W_{NA}^N = \frac{2\pi}{\hbar} L_m R_m^2 (L_m R_m^2)^N (n_m + 1)^N \cdot \exp[-L_m g_m^2 (2n_m + 1)] \sum_{\Delta\gamma=-1}^{+1} \lambda_{\Delta\gamma} \frac{1}{(N - \Delta\gamma)!} \delta(\varepsilon_0 - N\hbar\omega_m). \quad (45)$$

在此情况下,弛豫速率由(45)式给出,而这正是一般实验所满足的条件。

2. 在弱耦合和低温近似条件下,(40)式须进一步考虑 $\Delta\gamma = 2, 1$ 两项的贡献,求得的弛豫速率为

$$W_{NA}^N = \frac{2\pi}{\hbar} L_m R_m^2 (L_m R_m^2)^N (n_m + 1)^N \exp[-L_m g_m^2 \cdot (2n_m + 1)] \cdot \frac{1}{N!} \frac{N^2}{L_m g_m^2} \delta(\epsilon_0 - N\hbar\omega_m). \quad (46)$$

当 $N \gg 1$ 时, 斯特令公式成立^[8]

$$\ln N'! = N'(\ln N' - 1) + \frac{1}{2} \ln(2\pi N').$$

现令(46)式中的 $N = N'$, 运用斯特令公式, 可将(46)式改写为

$$\begin{aligned} W_{NA}^N &= \frac{2\pi^{1/2}}{\hbar} \frac{L_m R_m^2}{L_m g_m^2} N^{3/2} \exp\left[-N\left(\ln \frac{N}{L_m g_m^2 (n_m + 1)} - 1\right)\right] \\ &\quad \cdot \exp[-L_m g_m^2 (2n_m + 1)] \\ &= \frac{2\pi^{1/2}}{\hbar} \frac{L_m R_m^2}{L_m g_m^2} N^{3/2} \exp[-\epsilon_0 \alpha - L_m g_m^2 (2n_m + 1)] \end{aligned} \quad (47)$$

式中

$$\alpha = \frac{1}{\hbar\omega_m} \left(\ln \frac{N}{L_m g_m^2 (n_m + 1)} - 1 \right), \quad (48)$$

$$\epsilon_0 = \hbar\omega_m N. \quad (49)$$

(47)式适用于 $N \gg 1$, 即声子数较大时的情况. 该式表明, W_{NA}^N 与能隙 ϵ_0 存在近似指数的依赖关系, 同时与电-声耦合参数 $L_m g_m^2$ 亦是近似指数依赖关系.

在弱耦合及低温条件下, Miyakawa 等人^[3]得到的弛豫速率表达式为

$$W_{NA}^N = \frac{2\pi}{\hbar} R^2 \left(1 - \frac{N}{g}\right)^2 e^{-\alpha' \epsilon_0} \delta(\epsilon_0 - N\hbar\omega), \quad (50)$$

式中 R^2 , g^2 分别与 $L_m R_m^2$ 和 $L_m g_m^2$ 等价, 且有

$$\alpha = \frac{1}{\hbar\omega} \left[\ln \frac{N}{g(n+1)} - 1 \right]. \quad (51)$$

该式与本文所得(47)式不完全相同, 这是由于 Miyakawa 等人在运用斯特令公式时, 忽略了 $\frac{1}{2} \ln(2\pi N)$ 项. 实际上, 由于声子数取值一般不会超过 6, 因而此项不应忽略. 其

次, 在(50)式中, 他们忽略了 $\exp[-L_m g_m^2 (2n_m + 1)]$ 这一项. 而该项只有在温度极低情况下才可忽略, 而在弱耦合和低温近似下不应忽略. 因而忽略上述两项的处理是欠妥的.

3. Fong 等人^[4] 曾用量子统计方法得到弱耦合条件下的弛豫速率表达式为

$$\begin{aligned} W_{NA}^N &= \frac{2\pi^{1/2}}{\hbar^2} L_m |C_m|^2 \sum_{\Delta\gamma=-1}^{+1} \lambda'_{\Delta\gamma} (N - \Delta\gamma)^{-\frac{1}{2}} \\ &\quad \cdot \exp[-L_m g_m^2 (2n_m + 1)] \\ &\quad \cdot \exp\left\{-(N - \Delta\gamma) \cdot \ln \left[\left(\frac{N - \Delta\gamma}{L_m g_m^2 (n_m + 1)} \right) - 1 \right]\right\}, \end{aligned} \quad (52)$$

式中

$$\lambda'_0 = L_m g_m^2 (6n_m^2 + 6n_m + 1), \quad (53)$$

$$\lambda'_1 = -[L_m g_m^2 (4n_m^2 + 6n_m + 2) - (n_m + 1)], \quad (54)$$

$$\lambda'_2 = L_m g_m^2 (n_m + 1)^2, \quad (55)$$

$$\lambda'_{-1} = -[(4n_m^2 + 2n_m)L_m g_m^2 - n_m], \quad (56)$$

$$\lambda'_{-2} = L_m g_m^2 n_m^2, \quad (57)$$

$$|C_m|^2 = \hbar R_m^2. \quad (58)$$

为了将此结果与本文所得结果进行比较,现利用斯特令公式,并令 $N' = N - \Delta\gamma$, 将(45)式改写为

$$W_{N\Lambda}^N = \frac{2\pi^{1/2}}{\hbar} L_m R_m^2 \sum_{\Delta\gamma=-2}^{+2} \lambda'_{\Delta\gamma} (N - \Delta\gamma)^{-\frac{1}{2}} \exp[-L_m g_m^2 \cdot (2n_m + 1)] \cdot \exp\left\{-(N - \Delta\gamma) \left[\ln\left(\frac{N - \Delta\gamma}{L_m g_m^2 (n_m + 1)}\right) - 1 \right]\right\} \quad (59)$$

式中 $\lambda'_{\Delta\gamma}$ 由(53)–(57)式给出.

可以看出, (59)式与 Fong 等人的结果(52)式完全相同. 但是注意到(59)式是应用了斯特令公式后得出的,也就是需要满足

$$N' \equiv N - \Delta\gamma \gg 1. \quad (60)$$

由于弛豫速率贡献最大的项为 $\Delta\gamma = 2$, 于是条件(60)式改写为

$$N - 2 \gg 1. \quad (61)$$

在实际情况下,由于 N 不会超过6,因此(61)式在一般情况下是得不到满足的,故 Fong 等人的结果在一般情况下是不成立的^[9].

4. 根据本文所求得的多声子弛豫速率的普适表达式,用计算机模拟计算了弛豫速率 W^* 对温度、声子频率、能隙以及位移参数的依赖关系,计算结果如图1至图4所示.

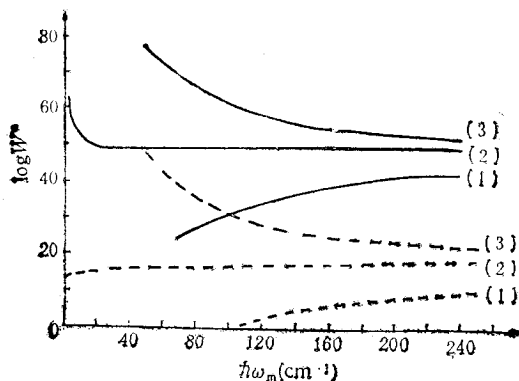


图1 两种温度下弛豫速率与声子能量关系 $L_m g_m^2$ 分别取(1)为0.1; (2)为1; (3)为10; 虚线为30K; 实线为300K

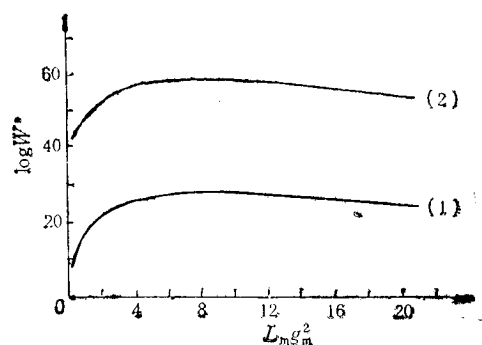


图2 弛豫速率与电-声耦合参数的关系 (1)为 $T = 30\text{K}$; (2)为 $T = 250\text{K}$.

图1为 T 分别为30K和300K下,弛豫速率对声子能量的依赖关系.计算中取能隙间隔 $\varepsilon_0 = 732\text{cm}^{-1}$.结果表明,在弱耦合下 W^* 随声子能量 $\hbar\omega_m$ 的增加而明显增加.在强耦合条件下, W^* 随 $\hbar\omega_m$ 的增加而下降.在中间耦合时 W^* 对 $\hbar\omega_m$ 不敏感.图

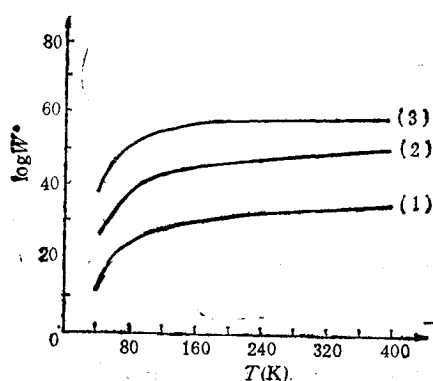


图3 弛豫速率与温度的关系 $L_m g_m^2$ 分别取 (1) 为 0.1; (2) 为 1; (3) 为 10

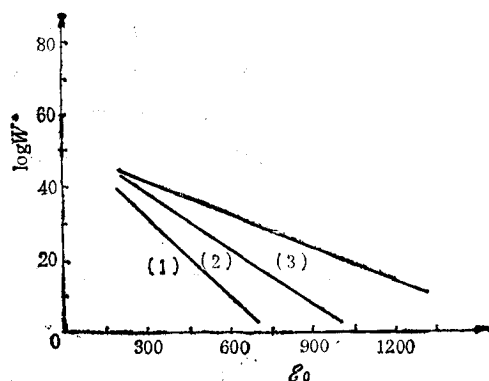


图4 弛豫速率与能隙的关系 $T = 30\text{K}; L_m g_m^2$ 分别取 (1) 为 0.1; (2) 为 1; (3) 为 10

2 为 W^* 随电-声耦合参数的变化关系。取 $\epsilon_0 = 732\text{cm}^{-1}$, $\hbar\omega_m = 122\text{cm}^{-1}$ 。计算了 T 分别为 30K 和 250K 的情况。结果表明在弱耦情况下, W^* 随耦合强度的增加而急剧下降。在中间耦合时变化平缓, 而在强耦合时, W^* 随耦合强度的增加而明显下降。图 3 给出 W^* 随温度的变化关系。计算中 $\epsilon_0 = 732\text{cm}^{-1}$, $\hbar\omega_m = 122\text{cm}^{-1}$ 。计算结果表明, 在任何耦合强度下, W^* 皆随温度的增加而增加。图 4 给出 W^* 与能隙间隔 ϵ_0 的依赖关系。计算中取 $\hbar\omega_m = 122\text{cm}^{-1}$ 。结果表明在三种耦合强度下, W^* 与能隙间隔 ϵ_0 为近似指数衰减关系。

- [1] A. Kiel, in "Quantum Electronics", edited by P. Grivet and N. Bloembergen, Columbia University Press, New York, (1964), p. 445.
- [2] L. A. Riseberg and H. W. Moos, *Phys. Rev.*, **74**(1968), 429.
- [3] T. Miyakawa and D. L. Dexter, *Phys. Rev.*, **B1**(1970), 2961.
- [4] F. K. Fong *et al.*, *J. Chem. Phys.*, **56**(1972), 4020.
- [5] R. Kubo and Y. Toyozawa, *Progr. Theoret. Phys. (Kyoto)*, **13**(1955), 162.
- [6] Y. Toyozawa, in *Dynamical Processes in Solid State Optics*, edited by K. Kubo *et al.*, New York, (1967), p. 90.
- [7] K. F. Treed and J. Jortner, *J. Chem. Phys.*, **52**(1970), 6272.
- [8] 汪志诚主编, 热力学统计物理, 人民教育出版社, 北京(1980), 202 页.
- [9] S. F. Eischer, *J. Chem. Phys.*, **53**(1970), 3195.

THEORETICAL STUDY OF MULTIPHONON RADIATIONLESS RELAXATION RATE

ZHANG BAO-ZHENG LI YU-XING LIN MEI-RONG CHEN WEN-JU

Department of Physics, Nankai University, Tianjin, 300071

(Received 4 April 1989)

ABSTRACT

In this paper, with the assumption of effective lattice mode of coupling, a generalized theoretical expression of multiphonon relaxation rate has been derived by using quantum mechanical generating function method. An analytical rate expression is presented for high-order approximation case. Limitations of relaxation rate expressions in weak coupling approximation given by Fong *et al.* with the quantum statistical method, and in weak coupling approximation and low temperature approximation given by Miyakawa *et al.* with quantum statistical method are pointed out. The dependence of the multiphonon relaxation rate on temperature, phonon energy, energy gap and displacement parameter are also calculated.

PACC: 6310; 6320D; 6320