

В. М. Ницович, А. М. Шенета

ИССЛЕДОВАНИЕ ТЕМПЕРАТУРНОЙ ЗАВИСИМОСТИ СПЕКТРАЛЬНЫХ ПАРАМЕТРОВ ЭКСИТОННОЙ ПОЛОСЫ ПОГЛОЩЕНИЯ СВЕТА С УЧЕТОМ АНГАРМОНИЗМА ФОНОНОВ

Введение

Теория поглощения света ионными кристаллами с учетом колебаний решетки развивалась во многих работах. В большинстве теоретических работ изучение экситон-фононного взаимодействия и его роли в оптических экситонных спектрах основывается на гармоническом приближении для динамики кристаллической решетки. Гамильтониан экситон-фононной системы выбирался в линейном и квадратичном приближениях по фононным операторам [1—4]. Такой подход позволил объяснить основные закономерности как структуры экситонных спектров, так и температурного генезиса формы полос поглощения при сравнительно невысоких температурах.

Однако, несмотря на это, теория экситонных полос поглощения света все еще остается незавершенной. В ней учитываются не все механизмы диссипации энергии экситона, в частности взаимодействие с фононами при учете ангармонизма. В работе [5] методом спектральных моментов исследуется фонон-фононное взаимодействие в экситонных спектрах полупроводниковых кристаллов и показано, что оно приводит к немонотонной температурной зависимости интегральной интенсивности экситонного поглощения, а также ответственно за нормальный и аномальный сдвиги экситонных полос. В работе [6] методом функций Грина был исследован вклад ангармонизма оптических фононов только в полуширину линий экситонного поглощения в спектрах кристаллов со слабой экситон-фононной связью.

В настоящей работе этим методом исследуется влияние ангармонизма фононов на температурный сдвиг Δ и полуширину Γ экситонной полосы в спектре поглощения кристаллов типа Cu_2O , в которых учитывается взаимодействие экситонов с оптическими и акустическими фононами.

Гамильтониан системы. Фонон-фононная функция связи

Рассмотрим ионный кристалл, в котором экситоны взаимодействуют с оптическими и акустическими фононами. Гамильтониан такой системы запишем в виде

$$H = \sum_{\mathbf{k}} \varepsilon(\mathbf{k}) a_{\mathbf{k}}^{\dagger} a_{\mathbf{k}} + \sum_s \Omega(s) \left(b_s^{\dagger} b_s + \frac{1}{2} \right) + \sum_{\mathbf{k}, s} \varphi(s) a_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\dagger} a_{\mathbf{k}} (b_s + b_{-s}^{\dagger}) + \sum_{s_1, s_2, s_3, s_4} V^{(4)}(s_1, s_2, s_3, s_4) \prod_{i=1}^4 (b_{s_i} + b_{-s_i}^{\dagger}), \quad (1)$$

в котором взаимодействие экситонов ($\varepsilon(\mathbf{k})$) — энергия экситонов с квазиимпульсом \mathbf{k}) с фононами ($\Omega_s = \lambda, \mu$) — энергия фонона λ -й ветви с квазиимпульсом \mathbf{q}) принимается слабым и описывается линейным по фононным операторам членом. В случае взаимодействия экситонов с оптическими и акустическими фононами $\varphi(s)$ принимает вид [4]

$$\varphi_{\text{opt}}(\mathbf{q}) = \sqrt{\frac{A_{\text{opt}}}{v}} \frac{1}{|\mathbf{q}|} \left[\frac{1}{(1 + \alpha_1^2 \mathbf{q}^2)^2} - \frac{1}{(1 + \alpha_2^2 \mathbf{q}^2)^2} \right],$$

$$\varphi_{\text{ac}}(\mathbf{q}) = \sqrt{\frac{A_{\text{ac}}}{v}} \frac{1}{|\mathbf{q}|} \left[\frac{c_1}{(1 + \alpha_1^2 \mathbf{q}^2)^2} - \frac{c_2}{(1 + \alpha_2^2 \mathbf{q}^2)^2} \right],$$

где

$$A_{\text{opt}} = 2\pi \hbar^2 \Omega_0 c, \quad A_{\text{ac}} = 2\pi \hbar a^3 / 9 M u, \quad \alpha_j = m_j a_{\text{ex}} / 2, \quad m_j = \mu_j / (\mu_1 + \mu_2), \quad [j = 1, 2,$$

c — известная константа из теории поляронов, Ω_0 — предельная частота фонона, e — заряд электрона, a_{ex} — радиус экситона, a — постоянная решетки, M — масса ионов в элементарной ячейке, u — скорость распространения акустической волны в кристалле, μ_1, μ_2 и c_1, c_2 — эффективные массы и постоянные деформационного потенциала электрона и дырки соответственно.

В приближении эффективной массы закон дисперсии экситонов запишем в виде $\varepsilon(\mathbf{k}) = \varepsilon_0 + \hbar^2 \mathbf{k}^2 / 2m^*$, где m^* — эффективная масса. Мы пренебрегаем дисперсией оптических колебаний $\Omega_{\text{opt}}(\mathbf{q}) = \Omega_0$, а для акустических фононов используем линейный закон дисперсии $\Omega_{\text{ac}}(\mathbf{q}) = \hbar u |\mathbf{q}|$, $V^{(4)}(s_1, s_2, s_3, s_4)$ — функция связи фонон-фононного взаимодействия, описывающая процессы с участием четырех фононов. Из-за центральной симметрии узлов кристаллической решетки Cu_2O в разложении потенциальной энергии в ряд по смещениям ионов члены с нечетными степенями равны нулю. Функция $V^{(4)}(s_1, s_2, s_3, s_4)$ отлична от нуля лишь при $\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2 + \mathbf{q}_3 + \mathbf{q}_4 = 0$, $\mathbf{Q}_m(\mathbf{Q}_m$ — вектор трансляции обрательной решетки). Для определения $V^{(4)}(s_1, s_2, s_3, s_4)$ ограничимся приближением ближайших соседей, а центральное парное взаимодействие между ионами будем аппроксимировать потенциалом Борна — Майера

$$\Phi(r) = -\alpha e^2/r + n_0 \rho \exp(-r/\rho), \quad (2)$$

n_0 — число ближайших соседей; ρ и ρ — параметры, определяемые из условия равновесия и по коэффициенту изотермического сжатия β [7], α — постоянная Маделунга.

Следуя методике [8], для кристалла типа Cu_2O получим

$$V_{\text{opt}}^{(4)}(\mathbf{q}_1, -\mathbf{q}_1, \mathbf{q}_2, -\mathbf{q}_2) = \frac{\hbar^2 B(r_0)}{48 N M_p^2 \Omega_0^2},$$

$$V_{\text{ac}}^{(4)}(\mathbf{q}_1, -\mathbf{q}_1, \mathbf{q}_2, -\mathbf{q}_2) = \frac{\hbar^2 |\mathbf{q}_1| |\mathbf{q}_2| B(r_0)}{96 N \pi^2 u^2 M_p^2} \quad (3)$$

— функции связи, описывающие взаимодействие между оптическими и акустическими фононами соответственно; $M_p = M_+ M_- / (M_+ + M_-)$ — приведенная масса ионов, M_+ и M_- — массы положительных и отрицательных ионов,

$$B(r_0) = r_0^4 \Phi^{IV}(r_0) + 5r_0^3 \Phi'''(r_0) + 5r_0^2 \Phi''(r_0)$$

— постоянная, связанная со структурой кристалла, $r_0 = a\sqrt{3}/4$ — расстояние между ближайшими соседями.

Изучение температурного сдвига и полуширины экситонной полосы сводится к вычислению фурье-образа двухвременной запаздывающей функции Грина экситонов

$$G(\mathbf{k}, t) = -i\theta(t) \langle [a_{\mathbf{k}}(t); a_{\mathbf{k}}^+(0)] \rangle.$$

Используя уравнение движения для операторов $a_{\mathbf{k}}, b_{\mathbf{q}}, b_{-\mathbf{q}}^+$, получим систему зацепляющихся уравнений для функций Грина. Решая ее методом последовательных приближений относительно $G(\mathbf{k}, \omega')$, найдем

$$G(\mathbf{k}, \omega') = \frac{1}{\omega' - \varepsilon(\mathbf{k}) - M(\mathbf{k}, \omega')}, \quad (4)$$

$$M(\mathbf{k}, \omega') = \sum_s |\varphi(s)|^2 \left(\frac{\nu_s}{E_{\Gamma(10)} + \frac{1 + \nu_s}{E_{\Gamma(01)}}} + \right. \\ \left. + 12 \sum_{s_1, s_2} |\varphi(s_1)|^2 \frac{V^{(4)}(s_1, -s_1, s_2, -s_2)}{\tilde{\Omega}(s_1)} (1 + 2\nu_{s_2}) \left(\frac{1}{E_{\Gamma(10)}} - \frac{1}{E_{\Gamma(01)}} \right) \right) \quad (5)$$

— массовый оператор системы; $\omega' = \omega + i\eta$ ($\eta \rightarrow 0$);

$$E_{\Gamma(01)} = \omega' - \varepsilon(\mathbf{k} + \mathbf{q}_1) + \tilde{\Omega}(s_1), \quad E_{\Gamma(10)} = \omega' - \varepsilon(\mathbf{k} + \mathbf{q}_1) - \tilde{\Omega}(s_1)$$

— энергетические знаменатели, отвечающие за процесс рождения экситонов под действием поглощенного фотона с поглощением и излучением фотона соответственно;

$$\tilde{\Omega}(s_1) = \Omega(s_1) + 12 \sum_{s_2} V^{(4)}(s_1, -s_1, s_2, -s_2) (1 + 2\nu_{s_2})$$

— энергия фонона, учитывающая ангармоническую собственную энергию.

Температурная зависимость (5) определяется через средние числа заполнения фононных состояний

$$\nu_s = (e^{s/k_B T} - 1)^{-1}.$$

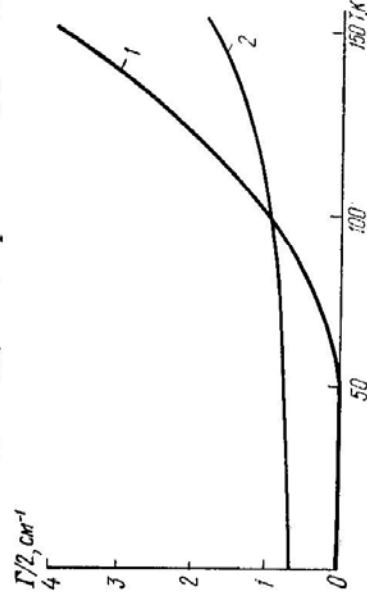
Определение температурного сдвига и полуширины экситонной полосы

Используя тождество Дирака [1], переходя в (5) от суммирования к интегрированию по волновому вектору \mathbf{q} в сферической системе координат, находим значения Δ и Γ для кристалла с параметрами Cu_2O ($\omega_0 = 250 \text{ см}^{-1}$, $c = 0,14$, $\mu_1 = 1,4 m_0$, $\mu_2 = 0,3 m_0$, $m_0 = 0,9 \cdot 10^{-27} \text{ г}$, $M_+ = 106,24 \cdot 10^{-24} \text{ г}$, $M_- = 26,56 \cdot 10^{-24} \text{ г}$, $a_{\text{ex}} = 9 \cdot 10^{-8} \text{ см}$, $a = 4,2 \cdot 10^{-8} \text{ см}$, $\beta = 0,592 \cdot 10^{-12} \text{ см}^2/\text{дин}$, $u = 5 \cdot 10^5 \text{ см/с}$, $\alpha = 9,5044$, $c_1 = 5 \text{ эВ}$) с учетом взаимодействия как с оптическими, так и акустическими фононами.

В результате вычислений получим в области $T > 100 \text{ К}$ $\Delta_{\text{opt}}^{(\text{Ф})} = -(51 + 0,356 T) \text{ см}^{-1}$, $\Delta_{\text{opt}}^{(\text{ФV})} = -(1,01 + 0,048 T) \text{ см}^{-1}$, $\Delta_{\text{opt}} = -(52,01 + 0,404 T) \text{ см}^{-1}$; $\Delta_{\text{ac}}^{(\text{Ф})} = -(3,8 + 0,115 T) \text{ см}^{-1}$, $\Delta_{\text{ac}}^{(\text{ФV})} = -(0,87 + 0,038 T) \text{ см}^{-1}$,

$\Delta_{ac} = -(4,67 + 0,153T) \text{ см}^{-1}$. При одновременном взаимодействии экситонов с оптическими и акустическими фононами $\Delta = \Delta_{opt} + \Delta_{ac} = -(56,68 + 0,557T) \text{ см}^{-1}$.

Выполненные расчеты показывают, что ангармонизм оптических и акустических фононов дает вклад в лэмбовскую и температурную частоты сдвига, причем вклады $\Delta_{ac}^{(Ф)}$ и $\Delta_{opt}^{(Ф)}$ одного порядка. Ангармонизм акустических фононов дает ощутимый вклад в Δ_{ac} , в то время как вклад оптического ангармонизма в $\Gamma/2, \text{ см}^{-1}$ мал. Из анализа выражений для Γ_{opt} и Γ_{ac} следует, что вклад Γ_{ac} в функцию формы полосы поглощения в области ее максимума равен нулю, а основной вклад в Γ_{opt}



1, 2 — расчет Γ_{opt} в гармоническом и ангармоническом приближениях соответственно.

ределяется величиной Γ_{opt} . Результаты численного интегрирования выражений для Γ приведены на рисунке, откуда видно, что при $T < 100 \text{ K}$ Γ в основном определяется $\Gamma_{opt}^{(Ф)}$, а при $T > 100 \text{ K} - \Gamma_{opt}^{(Ф)}$. Так как Γ_{opt} определяет полуширину пика экситонной полосы поглощения, то отличные от нуля значения Γ в области низких температур позволяют заключить, что ангармонизм колебаний ионов является одним из факторов, формирующих конечную полуширину пика при $T \rightarrow 0 \text{ K}$. Качественно такая же зависимость наблюдается экспериментально в экситонном спектре поглощения Cu_2O [9].

Таким образом, ангармонизм оптических и акустических фононов приводит к дополнительной диссипации энергии экситона, что обуславливает дополнительные лэмбовский и температурный сдвиги и формирует конечную полуширину экситонного пика при $T \rightarrow 0 \text{ K}$.

SUMMARY. The role of acoustic and optic phonon anharmonicity in the exciton absorption band formation has been investigated by the Green function method. The fourth phonon anharmonicity term and linear boundary function have been taken into account in the Hamiltonian system. Temperature dependence of the halfwidth and shift of the excitonic peak has been obtained for Cu_2O -type crystals with allowance for an interaction of excitons with optical and acoustic phonons.

1. Давыдов А. С. Теория твердого тела. М.: Наука, 1970. 639.
2. Лубченко А. Ф., Ницович В. М., Ткач Н. В. Исследование спектральных характеристик ионных кристаллов в экситонной области поглощения света.— УФЖ, 1975, 20, 5, 1695—1706.
3. Lubchenko A. F., Nitsovich V. M., Tkach N. V. Temperature genesis of the curves of absorption and dispersion of light by ionic crystals in the exciton region.— Phys. status solidi B, 1974, 63, 2, 609—619.
4. Toyozawa Y. Theory of line-shapes of the exciton absorption bands.— Progr. Theor. Phys., 1958, 20, 1, 53—81.
5. Ницович В. М. Ангармонические эффекты в экситонных спектрах. Киев, 1981. 20. (Препринт / АН УССР, ИТФ; ИТФ-81-108Р).
6. Карельских И. Л., Ницович В. М. Влияние ангармонизма на уширение экситонного пика в спектре поглощения света.— УФЖ, 1980, 25, 5, 1226—1228.
7. Krishnan K. S., Roy K. The frequencies and the anharmonicities of the normal modes of oscillation of alkali halide crystals.— Proc. Roy. Soc. A, 1951, 207, 1091, 447—460.
8. Ipatova I. P., Maradudin A. A., Wallis R. F. Temperature dependence of the width of the fundamental lattice-vibration absorption peak in ionic crystals.— Phys. Rev., 1967, 155, 3, 882—895.
9. Горбань И. С., Тимофеев В. Б. Свойства наиболее длинноволновой линии структурного поглощения Cu_2O .— Опт. и спектр., 1960, 9, 4, 462—486.

Черновил. гос. ун-т

Получено 27.12.82,

в окончательном варианте — 28.02.83