УДК 548—162.01

А. М. ШЕПЕТА

ВКЛАД АНГАРМОНИЗМА АКУСТИЧЕСКИХ ФОНОНОВ В ФОРМИРОВАНИЕ ЭКСИТОННОЙ ПОЛОСЫ ПОГЛОЩЕНИЯ ДЛЯ ИОННЫХ КРИСТАЛЛОВ

Важный источник информации об экситонном возбуждении и механизмах его диссипации — исследования по температурному смещению положения максимума кривой поглощения. Особый интерес представляет выяснение роли фонон-фононного взаимодействия в формировании функции формы экситонной полосы поглощения и его влияния на температурный генезис оптических параметров экситонного спектра.

В работе изучено влияние ангармонизма акустических фононов на сдвиг экситонного пика. Получено выражение для функции связи фонон-фононного взаимодействия ионного кристалла. Расчеты проводили для двухатомных кристаллов со структурой Cu_2O.

Рассмотрим ионный кристалл, в котором экситоны слабо взаимодействуют с продольной акустической ветвью фононов. Будем считать экситонную зону широкой, используя для нее приближение эффективной массы m^* и квадратичный закон дисперсии

$$\varepsilon(k) = \varepsilon_0 + \frac{\hbar^2 k^2}{2m^*}.$$

Гамильтониан системы запишем в виде

$$H = \sum_k \varepsilon_k a_k^+ a_k + \sum_q \Omega_q \left(b_q^+ b_q + \frac{1}{2}\right) + \sum_{k,q} \varphi_{ac}(q)\, a_{k+q_1}^+ a_k \times$$

$$\times (b_{q_1} + b^+ - q_1) + \sum_{q_1, q_2, q_3, q_4} V_{ac}^{(4)}(q_1, q_2, q_3, q_4) \cdot \prod_{i=1}^{4} (b_{q_i} + b_{-q_i}^+), \quad (1)$$

где линейная функция связи $\varphi_{ac}(q_1)$ совпадает с известной в литературе [1, 6]. $V^{(4)}(q_1, q_2, q_3, q_4)$ — функция связи фонон-фононного взаимодействия, описывающая процессы с участием четырех фононов (здесь благодаря центральной симметрии узлов кристаллической решетки при разложении потенциальной энергии в ряд по смещениям ионов члены с нечетными степенями опущены) [2]. Очевидно также, что $V^{(4)}(q_1, q_2, q_3, q_4)$ отлична от нуля лишь при $q_1+q_2+q_3+q_4=0$ или $2\pi Q_m$, симметрична по парам индексов q и удовлетворяет соотношению

$$V^{(4)}_{(q_1, q_2, q_3, q_4)} = V^{(4)*}_{(-q_1, -q_2, -q_3, -q_4)} - V^{(4)*}_{(-q_1, -q_2, -q_3, -q_4)}.$$

Изучение температурной зависимости сдвига экситонного пика сводится к вычислению Фурье-образа двухвременной запаздывающей функции Грина экситонов

$$G(k, t) = -i\theta(t) < [a_k(t), a_k^+(0)] >.$$

Используя уравнения движения для операторов a_k, b_q, b_{-q}, получаем систему уравнений для функций Грина. Решая ее относительно $G(k, \omega')$, находим

$$G(k, \omega') = \frac{1}{\omega' - \varepsilon(k) - M_{ac}(k, \omega')}; \quad (2)$$

$$M(k, \omega') = \sum_q |\varphi_{ac}(q)|^2 \left[\frac{\nu_q}{E_1[10]} + \frac{1+\nu_q}{E_{\bar{1}}[01]}\right] +$$

$$+ 12 \sum_{q_1 q_2} |\varphi_{ac}(q)|^2 - V^{(4)}_{ac\,(q_1, -q_1, q_2, -q_2)} (1 + 2\nu_{q_2}) \left[\frac{1}{E_1[10]} - \frac{1}{E_{\bar{1}}[01]}\right], \quad (3)$$

где

$$E_1[10] = \omega' - \varepsilon(k + q_1) + \Omega_{ac}(q_1);$$

$$E_{\bar{1}}[01] = \omega' - \varepsilon(k + q_1) - \Omega_{ac}(q_1)$$

— энергетические знаменатели, отвечающие за процесс рождения экситонов под действием поглощенного фотона с поглощением фонона (первый) и излучением (второй)

$$\varepsilon(k) = \varepsilon_0 + \frac{\hbar^2 k^2}{2m^*}, \quad \Omega_{ac}(q) = \hbar c |q|;$$

$$\nu_q = [e^{\frac{\Omega_{ac}(q)}{kT}} - 1]^{-1}, \quad \omega' = \omega + i\eta \, (\eta \to +0).$$

Для вычисления ангармонического вклада в сдвиг Δ_{ac} необходимо вычислить $V^{(4)}(q_1 - q_1, q_2 - q_2)$. Потенциальную энергию взаимодействия ионов в кристалле представим в виде [4]

$$U(R) = -\frac{\alpha \cdot e^2}{R} + n_0 \cdot A \cdot e^{-\frac{R}{\rho}}. \quad (4)$$

Здесь R — расстояние между ионами; $R = R_0$ в равновесном состоянии; n_0 — число ближайших соседей; α — постоянная Маделунга; A и ρ — параметры, определяемые из условия равновесия и по коэффициенту изотермического сжатия β. Первый член в выражении (4) описывает кулоновское взаимодействие всех ионов, второй — силы отталкивания только между ближайшими соседями.

Используя методику работы [3], получаем

$$\frac{R_0}{\rho} = \delta = \frac{9R_0}{N\beta\alpha e^2} + 2;$$

$$\left(\frac{\partial^4 U}{\partial r^4}\right)_{\substack{r=0 \\ R=R_0}} = \frac{\alpha e^2}{R_0^5} \left\{\frac{\delta^3 - 12(\delta^2 + \delta + 1)}{216} + \frac{7B}{8}\right\}, \quad (5)$$

где N — число пар ионов в единице объема.

Учитывая линейный закон дисперсии для акустических фононов $\Omega_{ac}(q) = cq$, где c — скорость распространения продольных акустических волн в кристалле, находим выражение для Фурье-образа фонон-фононной функции связи при малых значениях квазиимпульса

$$V^{(4)}_{ac}(q_1, -q_1, q_2, -q_2) = \frac{7\cdot\hbar^2\cdot\alpha\cdot e^2(m_+ + m_-)^2\cdot q_1 q_2}{48\cdot N\cdot C^2\cdot R_0\cdot m_+^2\cdot m_-^2}\times$$

$$\times\left\{\frac{\delta^3 - 12(\delta^2+\delta+1)}{216} + \frac{7B}{8}\right\}, \qquad (6)$$

где m_+, m_- — массы положительных и отрицательных ионов соответственно.

Найдем теперь парциальные вклады обеих функций связи в Δ_{ac}, представив их в виде

$$\Delta_{ac} = \Delta^{(1)}_{ac} + \Delta^{(4)}_{ac}. \qquad (7)$$

Аналитическое выражение для $\Delta^{(1)}_{ac}$ при достаточно высоких температурах ($kT > \Omega_{ac}$) определяется формулой (6) работы [5], которую в дальнейшем используем при конкретном расчете.

Что же касается $\Delta^{(4)}_{ac}$, то при том же условии, выделяя в выражении (3) действительную часть, получаем

$$\Delta(k, \omega') = 12\sum_{q_1 q_2} |\varphi_{ac}(q_1)|^2\cdot V^{(4)}_{ac}(q_1, -q_1, q_2, -q_2)\left(1 + \frac{2k_B\cdot T}{\hbar c q_2}\right)\times$$

$$\times\left\{\frac{1}{\omega' - \varepsilon(k+q_1) + \Omega_{ac}(q_1)} - \frac{1}{\omega' - \varepsilon(k+q_1) - \Omega_{ac}(q_1)}\right\}. \qquad (8)$$

Так, Δ_{ac} слабо зависит от ω' [5], далее будем анализировать эту величину при $\omega' = \varepsilon$.

Вводя безразмерный параметр $x = \frac{a_p}{\pi} q$ (a_p — постоянная решетки) и переходя от суммирования к интегрированию в сферической системе координат, представим $\Delta^{(4)}_{ac}$ в виде двух слагаемых (в единицах L).

$$\Delta_{ac} = \Delta_e + \Delta_t,$$

где

$$\Delta_l = -\frac{2\pi^2 N^2}{L^2}\int_0^{\sqrt[3]{6/\pi}} dx_1 \int_0^{\sqrt[3]{6/\pi}} dx_2 \frac{x_1^2 x_2^2}{(x_1^4 + \tau^2)}\left|\varphi_{ac}\left(\frac{\pi}{a_p}x_1\right)\right|^2\times$$

$$\times V^{(4)}_{ac}\left(\frac{\pi}{a_p}x_1, -\frac{\pi}{a_p}x_1, \frac{\pi}{a_p}x_2, -\frac{\pi}{a_p}x_2\right) \qquad (9)$$

— лэмбовская, не зависящая от температуры, часть сдвига, формируемая виртуальными фононами;

$$\Delta_t = -\frac{4\pi^2 N^2 T}{L^2\xi}\int_0^{\sqrt[3]{6/\pi}} dx_1 \int_0^{\sqrt[3]{6/\pi}} dx_2 \frac{x_1^2 x_2}{(x_1^4 - \tau^2)}\left|\varphi_{ac}\left(\frac{\pi}{a_p}x_1\right)\right|^2 -$$

$$- V^{(4)}_{ac}\left(\frac{\pi}{a_p}x_1, -\frac{\pi}{a_p}x_1, \frac{\pi}{a_p}x_2, -\frac{\pi}{a_p}x_2\right) \qquad (10)$$

— температурная часть сдвига, формируемая реальными фононами; $L = \frac{\pi^2\hbar^2}{2m^* a_p^2}$ — ширина экситонной зоны; $\tau = \frac{\Omega_{ac}(q)}{L}$; ζ — безразмерный параметр.

Чтобы выяснить соотношение между вкладами в Δ_{ac} линейного и фонон-фононного взаимодействий, зададим конкретные параметры кристалла (близкие к Cu_2O): $c = 5\cdot 10^5$ см/с; $a_p = 4{,}2\cdot 10^{-8}$ см; $m_+ = 106{,}24\cdot 10^{-24}$ с; $m_- = 26{,}56\cdot 10^{-24}$ г; $\beta = 0{,}592\cdot 10^{-12}$ см²/Дин; $\alpha = 9{,}5044$; $\zeta = 300$.

В результате вычислений по формулам (9), (10) данного исследования и (7) из работы [5] получим в области $T \geqslant 100$ К $\Delta_{ac} = -(0{,}87 + 0{,}038\cdot T)$ см⁻¹; $\Delta^{(1)}_{ac} = -(3{,}8 + 0{,}115\cdot T)$ см⁻¹. Окончательно $\Delta_{ac} = -(4{,}67 + 0{,}153\cdot T)$ см⁻¹.

Выполненные расчеты показывают, что ангармонизм может делать вклад как в лэмбовскую (весьма существенный), так и в температурную часть сдвига.

Список литературы: 1. *Давыдов А. С.* Теория твердого тела. — М.: Наука, 1967. 2. *Лейбфрид Г., Людвиг В.* Теория ангармонических эффектов в кристаллах. — М., 1963. 3. *Ipatova J. 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. 4. *Krishnan K. S., Roy K.* The frequencies and the anharmonicities of the normal modes of oscillation of alkalihalide crystals. — Proc. Roy. Soc. A, 1951, 207, № 1091. 5. *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. Stat. Sol. (B), 1974, 63, № 2. 6. *Toyozawa Y.* Theory of line-shapes of the exiton absorption bands. — Progr. Theor. Phys., 1958, 20, № 1.

The role of acoustic anharmonic in the excitinic band formation has been investigated for ionic crystals by Green function method. The anharmonic term of fourth order is taken into account in Hamiltonian of the phonon subsystem. The exciton-phonon interaction operator has an ordinary form. The temperature dependence of the absorption line shift has been obtained for Cu_2O type crystals.

Статья поступила в редколлегию 18. 10. 82