

УДК 535.343.2

© 1992

## СПЕКТР ДИАМАГНИТНОГО И ЭКСИТОНА ВАНЬЕ—МОТТА В ИОННОМ КРИСТАЛЛЕ В ОБЛАСТИ ЭНЕРГИЙ ОСНОВНОГО ПИКА И ДВУХ ФОНОННЫХ ПОВТОРЕНИЙ

*Н. В. Ткач, А. Д. Валь, В. П. Жаркой*

Методом функции Грина с учетом многофононных процессов выполнен расчет спектров диамагнитных экситонов и экситонов Ванье—Мотта в ионных кристаллах в области частот основной полосы и двух фононных повторений. Проанализирована природа известных из эксперимента «пииков» (hump) в спектре экситонного поглощения света.

Исследование экситонного спектра ионных кристаллов (TlCl, TlBr) интересно тем, что большая (по отношению к традиционно исследуемому  $\text{Cu}_2\text{O}$ ) сила связи экситонов с поляризационными колебаниями приводит к специфическим проявлениям физических процессов в поведении спектральных характеристик. Пример такого типа — известный из эксперимента [1] аномальный температурный сдвиг основного пика экситонного поглощения света. Необычное поведение сдвига объяснимо уже в пределах теории возмущений для экситонной функции Грина [2, 3]. Функция связи в ионных кристаллах оказалась такой, что процессы, формирующие основной экситонный пик и идущие с поглощением фононов, преобладают над процессами с излучением, причем существенно, что с кристаллическими колебаниями интенсивнее взаимодействуют экситоны, кинетическая энергия которых меньше, чем энергия фонона.

Привлекают внимание и другие особенности спектров ионных кристаллов в экситонной области. В частности, представляет интерес найти убедительное объяснение коротковолновым «пикам» (hump), установленным на эксперименте [1, 4] в спектрах экситонов при наличии и в отсутствие магнитного поля. Интерпретация «пииков» пока неоднозначна, так как, согласно общей теории взаимодействия квазичастиц с колебаниями решетки [5–7], в области энергий порядок и больше порога рождения фонона возможно образование различных комплексов, связанных и свободных двух- и многочастичных состояний. Довольно сильная связь с поляризационными колебаниями экситонов в ионных кристаллах, с одной стороны, и широкий интервал энергии — с другой, требуют существенного учета многофононных процессов в теории спектра диамагнитных и экситонов Ванье—Мотта. Такая общая теория, последовательно учитывающая многофононные процессы при  $T = 0$ , была развита в [8] в рамках метода функций Грина для однозонной системы квазичастиц, взаимодействующих с колебаниями решетки.

Поскольку эксперимент [4], с результатами которого будут сопоставляться полученные здесь теоретические выводы, выполнялся при 4.2 К (а в таком случае средние значения чисел заполнения фононов пренебрежимо малы), то приближение  $T = 0$  вполне оправдано. Что же касается однозонного приближения, то вследствие многозонной системы экситона можно только предполагать, что

учет межзонного экситон-фононного взаимодействия изменит числовые, а не качественные выводы, представляющие главный интерес настоящей работы.

Рассмотрим систему экситонов, взаимодействующих с поляризационными колебаниями кристалла. Операторная форма гамильтониана такой системы в однозонном приближении имеет одинаковый вид [2, 8, 9]

$$\mathcal{H}_l = \sum_{\mathbf{k}} \mathcal{E}_l(\mathbf{k}) a_{\mathbf{k}}^+ a_{\mathbf{k}} + \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{q}} \varphi_l(\mathbf{q}) a_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^+ a_{\mathbf{k}} (b_{\mathbf{q}} + b_{-\mathbf{q}}^+) + \sum_{\mathbf{q}} \Omega_{\mathbf{q}} \left( b_{\mathbf{q}}^+ b_{\mathbf{q}} + \frac{1}{2} \right) \quad (1)$$

как в случае экситона без поля ( $l=0$ ), так и при наличии сильного магнитного поля ( $l=H$ ) (диамагнитный экситон).

Оптические фононы предполагаются бездисперсионными  $\Omega_{\mathbf{q}} = \Omega$ ; энергии экситонов Ванье—Мотта и диамагнитных экситонов основной зоны имеют квадратичную зависимость от квазиимпульса

$$\mathcal{E}_l(\mathbf{k}) = \mathcal{E}_l + \frac{\hbar^2 k^2}{2m},$$

$$\mathcal{E}_H = \mathcal{E}_0 + \frac{e\hbar H}{2\mu c} - \frac{\mu e^4}{2\hbar^2 \epsilon^2} P_H^2. \quad (2)$$

Функции связи экситонов с фононами те же, что и в работах [2, 3, 9]

$$\varphi_0(q) = g\Omega \sqrt{\frac{4\pi U}{V}} \frac{1}{q} \left\{ \left[ 1 + \left( \frac{m_e a_{ex}}{2m} q \right)^2 \right]^{-2} - \left[ 1 + \left( \frac{m_h a_{ex}}{2m} q \right)^2 \right]^{-2} \right\}, \quad (3)$$

$$\varphi_H(q) = \pi g\Omega \sqrt{\frac{4\pi U}{V}} \frac{1}{q} \left\{ \left[ 1 + \left( \frac{m_e a_{ex}}{2m P_H} q \right)^2 \right]^{-1} - \left[ 1 + \left( \frac{m_h a_{ex}}{2m P_H} q \right)^2 \right]^{-1} \right\}, \quad (4)$$

где

$$U = \sqrt{\hbar/(2m\Omega)}, \quad g = \sqrt{e^2(1/\epsilon_{\infty} - 1/\epsilon_0)/(2U\Omega)}$$

— константа Фрелиха;  $P_H$  — безразмерный параметр, определенный в работе [9], который с увеличением напряженности магнитного поля плавно возрастает от некоторого значения  $P_0 > 0$  до 1 (при  $H \rightarrow \infty$ ). Величина  $P_0$  задается значением нижней границы критического поля, которое можно считать сильным для определенного кристалла, согласно критерию Эллиотта—Лоудона [5,10]

$$\epsilon^2 \hbar^3 H / (\mu^2 e^3 c) \gg 1. \quad (5)$$

Чтобы исследовать перенормированный фононами (при  $T=0$ ) экситонный спектр в широком интервале энергий, используем полученную в работе [8] функцию Грина, которая учитывает многофононные процессы.

В силу того что функции связи  $|\varphi_l(q)|^2$  имеют один резкий максимум, в точном массовом операторе [8] можно положить  $A_n = n$  и при  $k=0$  получим

$$M(\omega) = \sum_{q_1} \frac{|\varphi_I(q_1)|^2}{E_I(-q_1) - 2\sum_{q_2} \frac{|\varphi_I(q_2)|^2}{E_I(-q_1 - q_2) - \dots - n \sum_{q_n} \frac{|\varphi_I(q_n)|^2}{E_I(-\sum_{s=1}^n q_s) - \dots}}, \quad (6)$$

где

$$E_I(-\sum_{s=1}^n q_s) = \omega' - \mathcal{E}_I - n\Omega - \frac{\hbar^2}{2m} \left( \sum_{s=1}^n q_s \right)^2, \quad (\omega' = \omega + i\eta). \quad (7)$$

Переходя к безразмерным величинам и переменным

$$\alpha_{e,h} = [\pi m_{e,h} a_{cx} / (2ma)]^2, \quad m_I = \Omega^{-1} M_I, \quad r = L/\Omega, \quad Q = (a/\pi) q, \\ \xi_I = (\omega - \mathcal{E}_I)/\Omega + i\eta, \quad (\eta \rightarrow +0),$$

массовый оператор представим в удобном для расчета виде, выделив действительную  $R_I$  и мнимую  $I_I$  части

$$m_I(\xi_I) = R_I(\xi_I) - iI_I(\xi_I) = \\ = g^2 \int \frac{|\Phi_I(Q_1)|^2 dQ_1}{\int_0^1 \int_0^1 \frac{|\Phi_I(Q_2)|^2 dQ_2 dx_2}{\xi_I - 1 - ra_1^2 - 2g^2/2} \dots \int_0^1 \int_0^1 \frac{|\Phi_I(Q_n)|^2 dQ_n dx_n}{\xi_I - n - ra_n^2 - \dots} - ng^2/2} \quad (8)$$

Здесь функции  $a_n$  определяются рекуррентными соотношениями

$$a_n^2 = a_{n-1}^2 - 2a_{n-1}Q_n x_n + Q_n^2 \dots, \quad a_1 = Q_1, \quad a_0 = 0.$$

Безразмерные функции  $|\Phi_0|^2$  при отсутствии поля и  $|\Phi_H|^2$  в сильном магнитном поле различны

$$|\Phi_0(Q)|^2 = \{(1 + \alpha_e Q^2)^{-2} - (1 + \alpha_h Q^2)^{-2}\}^2, \quad (9)$$

$$|\Phi_H(Q)|^2 = \pi^2 \{(1 + \alpha_e P_H^{-2} Q^2)^{-1} - (1 + \alpha_h P_H^{-2} Q^2)^{-1}\}^2, \quad (10)$$

а так как они определены в отличающихся моделях экситонов Ванье—Мотта и диамагнитных экситонов, то при формальном переходе  $H \rightarrow 0$  они не совпадают.

Расчет действительной и мнимой частей массового оператора (8) выполнялся на ЭВМ с параметрами кристалла TlBr (как и в работе [2]). Из (8) видно, что в области безразмерных частот до первой пороговой особенности все интегралы цепной интегральной дроби вычисляются в обычном смысле. Здесь действительная часть массового оператора не равна нулю, а мнимая отсутствует. Между первой и второй пороговыми особенностями все звенья цепи, за исключением первого, представляются обычными интегралами. В первом звене интеграл действительной части вычисляется в смысле главного значения, а мнимая часть находится согласно соотношению Дирака. В области частот между первым и вторым порогом, начиная с третьего звена, все звенья цепи не содержат особенностей. Второе звено содержит действительный интеграл в смысле главного значения и мнимую часть, определяемую формулой Дирака. Интеграл первого звена вычисляется обычно, как от комплексной функции.

Для анализа спектра вычислялась функция полосы поглощения света

$$\mathcal{L}(\xi_l) = -\text{Im } G(\xi_l) = \frac{I(\xi_l)}{[\xi_l - R(\xi_l)]^2 + I^2(\xi_l)} \quad (11)$$

Результаты расчетов  $R(\xi_l)$ ,  $I(\xi_l)$ ,  $\mathcal{L}(\xi_l)$  для диамагнитных экситонов и экситонов Ванье-Мотта приведены на рис. 1, 2 соответственно. Из этих рисунков видно следующее. Качественно частотные зависимости действительной и мнимой частей массового оператора экситонов в магнитном поле и без него весьма близки. Однако есть и существенные различия, обусловленные тем, что сила связи с колебаниями кристалла диамагнитного экситона значительно больше, чем у экситона Ванье—Мотта, так как сильное поле приводит к увеличению расстояния между экситонными электроном и дыркой, вследствие чего уменьшается взаимная компенсация создаваемых ими поляризационных полей, т. е. увеличивается связь всей квазичастицы с фононами.

Как видно из рис. 1, в случае диамагнитного экситона действительная часть  $R(\xi_H)$  трижды пересекает линию  $\xi_H$  в точках  $\xi_{H0}$ ,  $\xi_{H1}$  и  $\xi_{H1}$ . Так как при этом  $I(\xi_{H0}) = 0$ , то точка  $\xi_{H0}$  отвечает перенормированному фононами основному стационарному состоянию диамагнитного экситона. Если бы в области первого порога рождения оптического фонона отсутствовала мнимая часть массового оператора, то это означало бы, что в системе существует стационарное состояние  $\xi_{H1}$ , отвечающее двухчастичному состоянию свободных диамагнитного экситона и оптического фонона, и  $\xi_{H1}$ , отвечающее связанному состоянию этих квазичастиц (кстати, такой результат получился бы в теории, не учитывающей наличие мнимой части). Поскольку, однако, мнимая часть массового оператора на частоте  $\xi_{H1}$  значительно больше по моду-

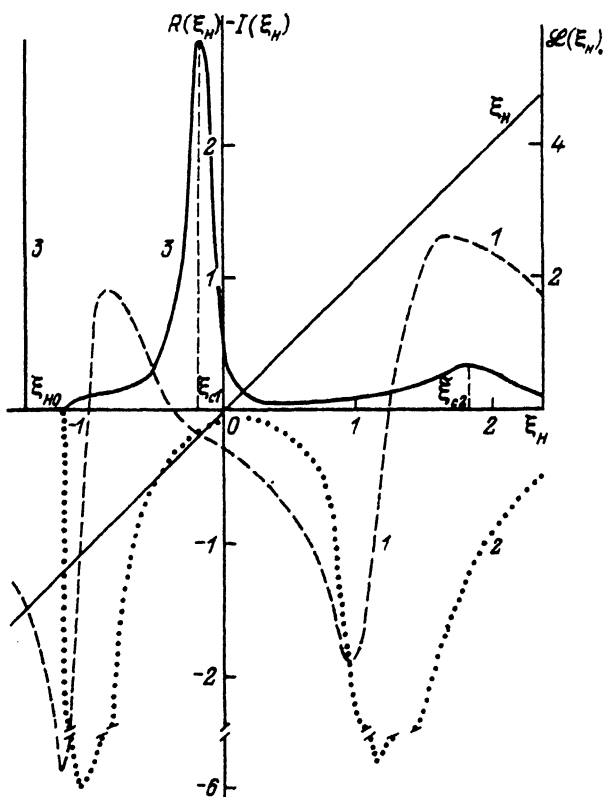


Рис. 1. Зависимости  $R$ ,  $I$ ,  $\mathcal{L}$  (кривые 1, 2, 3 соответственно) от  $\xi_H$  при  $H = 2 \cdot 10^5$  Э.

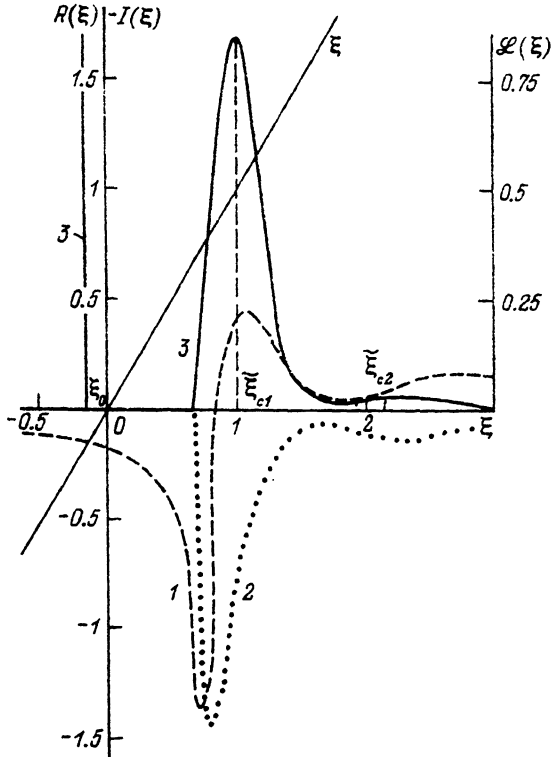


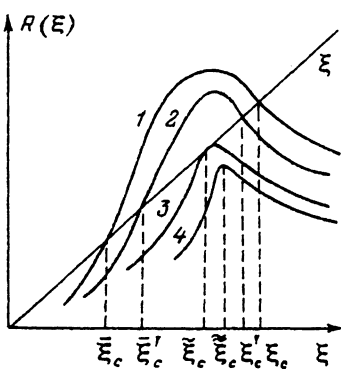
Рис. 2. Зависимости  $R$ ,  $I$ ,  $\mathcal{L}$  (кривые 1, 2, 3 соответственно) от  $\xi$ .

лю, чем на ( $\xi_{H1}$ ), то это значит, что время жизни связанного состояния значительно меньше времени жизни двухчастичного состояния свободных диамагнитного экситона и свободного фонона. Указанные особенности проявляются на функции формы  $\mathcal{L}(\xi_H)$  в том, что она имеет первый максимум в окрестности  $\xi_{H+1}$ , а состояние  $\xi_{H+1}$  не проявляется.

В области частот второй пороговой особенности  $R(\xi_H)$ , не пересекая линию  $\xi_H$ , максимально приближается к ней в точке  $\xi_{H2}$ , в окрестности которой (из-за конечного значения  $I(\xi_H)$ ) возникает «пик» в  $\mathcal{L}(\xi_H)$ , соответствующий второму фоновому повторению. Однако теперь этот «пик» уже нельзя интерпретировать как свободное или связанное состояние диамагнитного экситона с двумя фононами. Такое состояние, по-видимому, следует назвать смешанным, и отвечает оно двухфононному повторению основной полосы диамагнитного экситона. Смысл смешанного состояния следующий.

Представим себе область частот какого-либо фоновому повторению (рис. 3). Пусть при определенной силе связи действительная часть массового оператора  $R(\xi)$  (кривая 1) дважды пересекает линию  $\xi$ , т. е. в системе образуется свободное  $\xi_c$  и связанное  $\xi'_c$  состояния. Если сила связи по какой-либо причине уменьшается, то  $R(\xi)$  несколько опускается (кривая 2) и оба состояния  $\xi'_c$  и  $\xi_c$  сближаются. Дальнейшее уменьшение силы связи приводит сначала к тому, что  $R(\xi)$  (кривая 3) касается линии  $\xi$  в одной точке  $\xi_c$ , которая отвечает совпадению (смешиванию) связанного и свободного состояний. Если сила связи еще более уменьшается, то  $R(\xi)$  (кривая 4) уже не пересекает линию  $\xi$ , а лишь максимально сближается с ней в точке  $\xi'_c$ , которая, очевидно, также отвечает смешанному (свободному и связанному) состоянию экситона с соответствующим числом фононов.

Рис. 3. Иллюстрация поведения действительной части массового оператора в области фононного повторения при различной силе связи.



На рис. 2 приведены результаты расчета  $R(\xi)$ ,  $I(\xi)$ ,  $\mathcal{A}(\xi)$  для экситона Ванье—Мотта. Из него видно, что, поскольку сила  $ex-ph$  связи такого экситона меньше, чем диамагнитного, то  $R(\xi)$  только однажды пересекает линию  $\xi$  в точке  $\xi_0$ , которая соответствует перенормированному основному состоянию экситона. Оба фононных повторения образуются смешанными состояниями  $\xi_{c1}$  и  $\xi_{c2}$ .

В соответствии с экспериментом [4] при  $H=0$  расстояния между положениями максимума первого повторения и основного пика ( $\Delta_{10} = \xi_{c1} - \xi_0 \approx 1.17\Omega$ ), а также между положениями максимумов второго и первого повторений ( $\Delta_{21} = \xi_{c2} - \xi_{c1} \approx 1.17\Omega$ ) приблизительно одинаковы и из-за дисперсии превышают энергию фонона на 17%. На эксперименте  $\Delta_{10} \sim \Delta_{21} \sim 1.05\Omega$ .

Нужно заметить, что  $\alpha$ -пика на рис. 3 работы [4], расположенный в области однофононного повторения, отстоит от основной полосы на 0.6—0.7 $\Omega$ . Однако максимум  $\alpha$ -пика не соответствует проявлению только связанного экситон-фононного состояния, а является результатом суперпозиции этого состояния со всеми состояниями основной серии, которые находятся на его длинноволновом крыле. При этом  $2s$ -состояние проявляется отдельным острым пиком, а остальные сливаются и вместе с полосой фононного повторения формируют  $\alpha$ -hump с максимумом, сдвинутым в область меньших частот относительно положения  $\alpha$  однофононного повторения  $1s$ -полосы.

Как видно из рис. 1, в спектре диамагнитного экситона  $\Delta_{H10} \sim 1.3\Omega$ ,  $\Delta_{H21} \sim 2\Omega$ , что больше соответствующих величин в спектре экситона Ванье—Мотта. Это качественно согласуется с экспериментом, хотя там оба фононных повторения в поле  $2.11 \cdot 10^5$  Э (рис. 5 работы [4]) выражены не очень четко из-за провявшейся структуры возбужденных состояний диамагнитного экситона.

Таким образом, можно заключить, что уже в пределах рассмотренной здесь простой однозонной модели экситонов, взаимодействующих с поляризационными колебаниями ионного кристалла, в главных чертах существует качественное согласие между экспериментальным и теоретическим спектрами, рассчитанными с учетом многофононных процессов.

#### Список литературы

- [1] Vachrach R. Z., Brown F. C. // Phys. Rev. (b). 1970. V. 1. N 2. P. 818—831.
- [2] Ткач Н. В. // ФТТ. 1979. Т. 21. № 8. С. 2506—2508.
- [3] Ткач Н. В. // ФТТ. 1980. Т. 22. № 6. С. 1606—1608.
- [4] Kurita S., Kobayashi K. // Techn. Rept. ISSP. 1970. A430. P. 1—33.
- [5] Давыдов А. С. Теория твердого тела. М.: Наука, 1976. 640 с.
- [6] Рашба Э. И. // ЖЭТФ. 1966. Т. 50. № 4. С. 1064—1080.
- [7] Левинсон И. Б., Рабша Э. И. // УФН. 1973. Т. 111. № 4. С. 683—718.
- [8] Ткач Н. В. // ТМФ. 1984. Т. 61. № 3. С. 400—407.
- [9] Зинченко А. А., Ницович В. М., Ткач Н. В. // ФТТ. 1982. Т. 24. № 1. С. 157—161.
- [10] Elliott R. G., Loudon R. // J. Phys. Chem. Solids. 1960. V. 15. N 11. P. 196—207.

Черновицкий  
государственный университет

Поступило в Редакцию  
28 февраля 1991 г.  
В окончательной редакции  
6 июля 1992 г.