

## Локальные поляритоны нового типа на границе раздела гиротропных энантиоморфных кристаллов

© О.А. Дубовский, А.В. Орлов

Физико-энергетический институт,  
249020 Обнинск, Калужская обл., Россия

(Поступила в Редакцию 13 апреля 1998 г.)

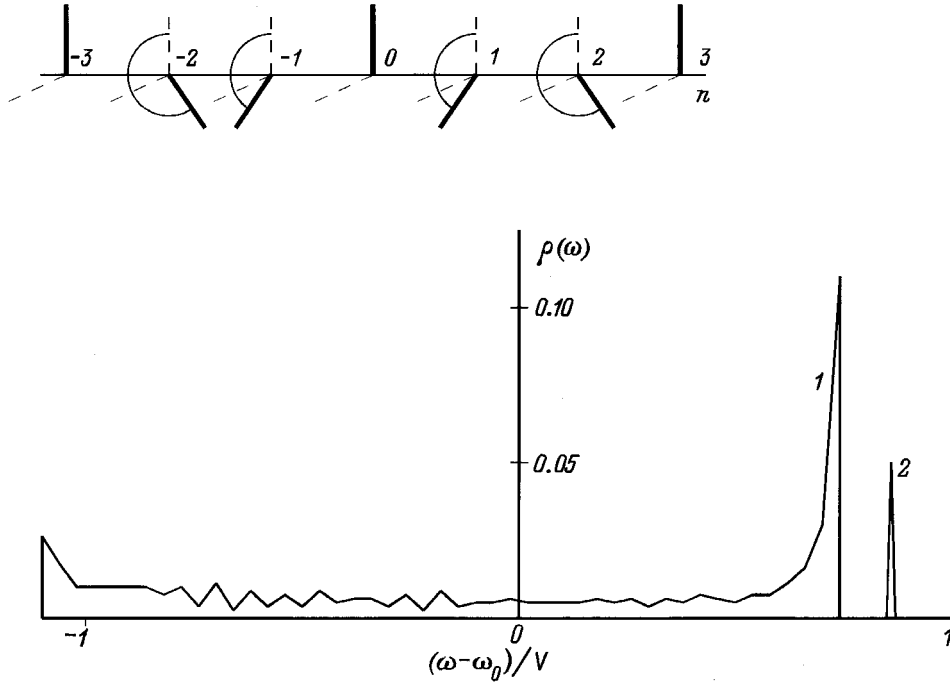
Показано, что на границе раздела энантиоморфных двойников — гиротропных кристаллов с левовинтовым и правовинтовым вращением плоскости поляризации света — могут распространяться локальные поляритоны нового типа. Волновая функция этих локальных поляритонов сильно, с изменением знака осциллирует на длине постоянной решетки вблизи границы раздела, и при удалении от границы период пространственных осцилляций возрастает. Терм локального поляритона отщеплен от зоны делокализованных состояний в высокочастотную область. Расчеты радиационного уширения этого термина показывают, что для локального поляритона возможен эффект гигантского увеличения затухания ("seperradiance"). Найдена величина вращения поляризации определяемого локальным поляритоном.

Исследование экситонных и колебательных возбуждений, локализованных на различных дефектах кристаллической решетки — примесях, вакансиях, дислокациях и на границах кристаллов — привлекает внимание в связи с возможностью их технологического использования в различных оптических устройствах и при решении проблем устойчивости различных твердотельных материалов. Соответствующие волновые функции локальных экситонных и фононных состояний различного типа обычно монотонно спадают при удалении от дефекта, и радиус локального состояния, зависящий от величины параметра, определяющего дефект, например изотопического сдвига для изотопической примеси [1,2], обычно существенно превышает постоянную решетки. В работах [3,4] в развитие исследований гиротропных кристаллов, в том числе жидких кристаллов, вращающих плоскость поляризации света [5], были найдены локальные поляритоны (смешанные экситон-фотонные моды) нового типа, распространяющиеся вдоль своего рода дефекта — границы раздела разновращающих гиротропных энантиоморфных кристаллов типа кварца — двойников с левовинтовым и правовинтовым вращением. Существование этих локальных поляритонов (ЛП) в рамках феноменологической электродинамики с использованием дополнительных граничных условий (ДГУ) целиком связано с эффектом пространственной дисперсии [6]. Они имеют ряд необычных особенностей в поведении дисперсионных кривых и параметров пространственного затухания. Отметим, что эти ЛП были найдены только для кристаллов класса  $C_{2v}$  ромбической сингонии и класса  $D_{2d}$  тетрагональной сингонии. При этом оставался открытым вопрос о микроскопическом изучении возможности существования локальных состояний такого типа во всем наборе кристаллических классов с тестированием соответствующих дискуссионных и в настоящее время ДГУ, которые принципиально определяют саму возможность существования ЛП и их параметры. В настоящей

работе в рамках микротeorии исследуется доступная для первоначального изучения система контактирующих лево- и правовращающих одномерных кристаллов. Результаты данной работы могут быть непосредственно использованы в последующем при исследовании двумерных и трехмерных кристаллических систем, во-первых, и, кроме того, реальными системами такого типа могут быть гиротропные полимерные и биологические цепочки, экспериментально и теоретически исследуемые в ряде работ [7]. Найдено локальное поляритонное состояние нового, специфического типа с сильно осциллирующей по знаку и пространственно затухающей волновой функцией и термом локального состояния, отщепленным от зоны делокализованных состояний. Полученный результат показывает, что, по-видимому, ЛП найденного в [3,4] и в данной работе типа могут существовать не только в кристаллах классов  $C_{2v}$ ,  $D_{2d}$ , но и в двойниках других кристаллических групп. Отметим, что, например, кварц имеет симметрию  $D_3$ .

На вставке к рис. 1 схематически представлена являющаяся в некотором смысле продолжением простейшей двухосцилляторной модели Куна [8] кристаллическая цепочка периодически расположенных перпендикулярных оси дипольных осцилляторов соответствующих мономеров с левовинтовым вращением на постоянной решетки на угол  $2\pi/3$  в области с номерами узлов  $n \leq 0$  и правовинтовым вращением в области  $n \geq 0$ . В нумерации узлов  $n = \dots - 2, -1, 0, +1, +2 \dots$  центральному осциллятору, разделяющему области левовинтового и правовинтового вращения, отвечает значение  $n = 0$ .

Использование соответствующей микротeorии [1], включающей в рамках представления вторичного квантования учет трансляционного движения экситонов и экситон-фотонного запаздывающего взаимодействия, приводит после диагонализации соответствующего гамильтониана к следующей системе секулярных уравнений для волновой функции  $\Psi_n$  симметричного поляри-



**Рис. 1.** Плотность поляритонных состояний контактирующих энантиомерных кристаллов. 1 — зона делокализованных состояний, 2 — терм локального поляритона. На вставке — модельная цепочка дипольных осцилляторов.

тонного состояния  $\Psi_n = \Psi_{-n}$  с энергии  $\hbar\omega$

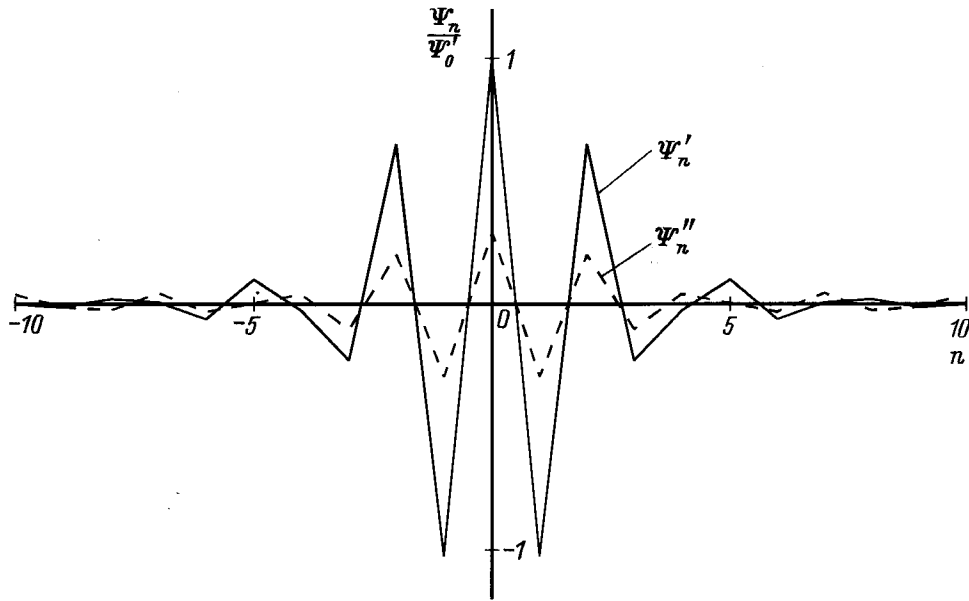
$$(\omega^2 - \omega_0^2)\Psi_n = \frac{2\omega_0|\mathbf{P}|^2}{\hbar a^3} \sum_{m \geq 0} \left[ (1 - \delta_{nm})\varphi(\omega, (n - m)) + (1 - \delta_{m0})\varphi(\omega, (n + m)) \right] \times \cos\left(\frac{2\pi}{3}|n - m|\right)\Psi_m, \quad (1a)$$

$$\varphi(\omega, |n \pm m|) = \left[ \frac{1}{|n \pm m|^3} - i \frac{((\omega/c)a)}{|n \pm m|^2} - \frac{((\omega/c)a)^2}{|n \pm m|} \right] \exp\left[i\left(\frac{\omega}{c}a\right)|n \pm m|\right], \quad 0 \leq n \leq N. \quad (1b)$$

В (1)  $\omega_0$  — частота дипольного перехода в изолированной молекуле,  $\mathbf{P}$  — соответствующий матричный элемент оператора дипольного момента,  $a$  — постоянная цепочки, исключено самодействие ( $n \neq m$ ), второй член в правой части (1a) определяет взаимодействие энантиомерных кристаллов, первый член в (1b) определяет кулоновское взаимодействие на близких расстояниях, третий — взаимодействие в волновой зоне, второй — в промежуточной области,  $2N + 1$  — число узлов цепочки. Точное решение сложной системы уравнений (1) с определением комплексных  $\omega = \omega' - i\omega''$  и  $\Psi_n = \Psi'_n + i\Psi''_n$  представляется достаточно трудной задачей, поскольку  $\omega$  входит в правую часть весьма

сложным образом. Отметим, что это может быть в последующем выполнено с использованием примененной в [9] процедуры решения "обратной" задачи с нахождением  $|\mathbf{P}|^2/\hbar a^3$  как соответствующего "собственного значения" при фиксированных  $\omega', \omega''$ .

Первоначально был проведен предварительный расчет собственных волновых функций и энергий экситона в такой системе при неучете запаздывающего взаимодействия, т.е. при  $c \rightarrow \infty$ ,  $\omega/c \rightarrow 0$ , и в (1) было оставлено только кулоновское диполь-дипольное взаимодействие  $\sim 1/|n \pm m|^3$ . Расчет спектра частот и волновых функций такой системы показал, что выше верхнего края зоны делокализованных экситонных состояний существует отщепленный от края по частоте на величину  $\sim 0.12|\mathbf{P}|^2/\hbar a^3$  терм локального состояния (как на рис. 1) с сильно осциллирующей и затухающей волновой функцией (как на рис. 2). Отличительной особенностью этого состояния является то обстоятельство, что вблизи границы раздела осцилляции с изменением знака происходят на длине постоянной решетки, а при удалении от границы раздела период пространственных осцилляций постепенно растет. Радиус локального состояния  $r$ , оцениваемый по формуле  $\Psi_n \cong \Psi_0 \exp[-(|n|a/r)](-1)^{|n|}$ , составляет величину  $r \cong 10a$ . Результаты проведенного рассмотрения с учетом только кулоновского взаимодействия указали на принципиальную возможность существования ЛП, и в последующем была проведена диагонализация полной соответствующей матрицы, отвечающей системе уравнений (1). При этом в правой части (1a) для упро-



**Рис. 2.** Пространственная зависимость волновой функции локального поляритона  $\Psi_n^{(l)} = \Psi_n^{(l)'} + i\Psi_n^{(l)''}$ . Сплошная линия —  $\Psi_n^{(l)'}$ , штриховая линия —  $\Psi_n^{(l)''}$ .

шения расчетов в гайтлер–лондоновском приближении полагалось фиксированным значение  $\omega = \omega_0$ . Значение оптического параметра  $(\omega_0/c)a$  полагалось равным типичному в оптике для различных кристаллов значению  $(\omega_0/c)a = 10^{-3}$ . В результате расчетов были получены частота  $\omega_l'$  и затухание  $\omega_l''$  поляритона в единицах  $V \equiv |\mathbf{P}|^2/\hbar a^3$ , его волновая функция  $\Psi_n^{(l)'} = \Psi_n^{(l)'} + i\Psi_n^{(l)''}$  с основными особенностями пространственного поведения, указанными выше.

На рис. 1 зона делокализованных состояний 1 представлена в виде графика плотности состояний, рассчитанной по полученным величинам собственных значений в цепочке из 801 узла при  $(\omega_0/c)a = 10^{-3}$ . Поведение плотности состояний в этой зоне типично для линейного кристалла, однако, отметим, с разновысокими максимумами на границах зоны. Отщепленный на  $0.12|\mathbf{P}|^2/\hbar a^3$  от верхней границы зоны одиночный терм локального поляритонного состояния условно представлен пиком 2. Радиационное уширение этого терма ЛП  $\omega_l''$  существенно меньше, чем отщепление терма от верхнего края зоны, их отношение очень мало,  $\hbar\omega_l''/(\hbar\omega_l' - \hbar\omega_{\max}) = 10^{-5}$ , и графическое представление уширения пика на рис. 1 имеет только демонстрационный характер. Вместе с тем найденное абсолютное значение уширения локального состояния существенно превышает уширение изолированного мономера  $\omega_l'' \cong (10-100|\mathbf{P}|^2)(\omega_0/c)^3/\hbar$  при значениях  $\omega_0 a/c \cong 10^{-3}-10^{-4}$ . Для численной оценки абсолютного значения радиационного уширения терма ЛП можно использовать типичные экспериментальные значения соответствующих энергетических параметров  $\hbar\omega_0 \cong 1 \text{ eV}$ ,  $|\mathbf{P}| = 0.2 \text{ \AA} \cdot e$ ,  $\omega_0 a/c \cong 10^{-3}$ , ширина экситонной зоны  $|\mathbf{P}|^2/a^3 \cong 0.1 \text{ eV}$ . При этом радиационное затухание изолированного мономера  $\hbar\gamma_0 = |\mathbf{P}|^2(\omega_0/c)^3$

составляет величину  $\hbar\omega_0 \cong 10^{-10} \text{ eV}$  и уширение терма ЛП  $\hbar\omega_l'' \cong 10^{-9}-10^{-8} \text{ eV}$  при  $\omega_0 a/c \cong 10^{-3}-10^{-4}$ . То обстоятельство, что уже в одномерной системе существует значительное радиационное уширение термов ЛП указывает на то, что для локального состояния найденного типа в двумерных и трехмерных двойниковых кристаллических системах может наблюдаться эффект гигантского увеличения уширения ("superradiance"), исследованный теоретически впервые в [10] для одномерных и двумерных однородных кристаллов и обнаруженный впоследствии экспериментально [11,12]. При этом большой фактор  $(c/\omega_0 a) \approx 10^3$  для двумерных и  $(c/\omega_0 a)^2 \approx 10^6$  для трехмерных двойников [10] может увеличить радиационное уширение до экспериментально наблюдаемых величин порядка  $10^{-3}-1 \text{ meV}$ .

На рис. 2 представлена волновая функция локального состояния  $\Psi_n^{(l)} = \Psi_n^{(l)'} + i\Psi_n^{(l)''}$ . Видно, что  $\Psi_n^{(l)'}$  (сплошная линия) имеет сильные осцилляции с изменением знака на длине  $a$  вблизи границы раздела, а при удалении от границы эта длина возрастает. Волновая функция затухает на длине  $\sim 10a$  (из аппроксимации функцией  $\exp[-\chi na](-1)^n$ ). Мнимая часть  $\Psi_n^{(l)''}$  (штриховая линия), увеличенная на рис. 2 в  $10^7$  раз, имеет аналогичные затухание и осцилляции.

Осцилляции волновой функции на длине  $a$  на первый взгляд должны приводить к существенному уменьшению соответствующих матричных элементов, определяющих интенсивность различных динамических процессов с распадом и возбуждением этого локального состояния. Однако, например, аналогичное, осциллирующее на длине  $a$ , поведение бифононных волновых функций [13] при определенном соотношении между знаками константы

ангармонизма и эффективной массы не только не приводит к существенному уменьшению сечения деления бифононов нейтронами, но, наоборот, дает при определенном соотношении этих знаков то же значение сечения, что и при монотонном, неосциллирующем, спадании волновой функции, что свидетельствует о некоторой универсальности, отмечавшейся в определенных моментах и ранее. Этот интересный вопрос для найденных ЛП требует дальнейшего исследования.

В связи с этим и в плане исследования существенного при изучении гиротропных кристаллов вопроса о вращении плоскости поляризации представляет интерес вопрос о поляризации излучения при распаде найденного локального состояния. В точке  $\mathbf{R}$  волновой зоны напряженность электрического поля  $\mathbf{E}$  данной кристаллической системы излучающих осцилляторов может быть получена из следующего соотношения:

$$\mathbf{E}(\mathbf{R}) = - \sum_n \frac{(\omega^2/c^2)}{|\mathbf{R}_n|^3} [\mathbf{R}_n [\mathbf{R}_n \mathbf{P}_n]] \exp\left(i \frac{\omega_l}{c} |\mathbf{R}_n|\right),$$

$$\mathbf{R}_n = \mathbf{R} - \mathbf{j}na, \quad \mathbf{P}_n = |\mathbf{P}| \Psi_n^{(l)} \mathbf{e}_n, \quad (2)$$

где  $\mathbf{j}$  — орт вдоль оси цепочки,  $\mathbf{e}_n$  — единичные векторы вдоль дипольных моментов. Для упрощения расчетов использовались аппроксимирующие волновые функции локального состояния  $\tilde{\Psi}_n^{(l)} = \Psi_0 \exp[-\chi na] (-1)^n$ . Подстановка этой функции в (2) дает в предположении сильного затухания  $\chi a > 1$  следующее значение для напряженности электрического поля  $\mathbf{E}$ :

$$\mathbf{E}(\mathbf{R}) = - \frac{(\omega^2/c^2)}{|\mathbf{R}|^3} \left[ \mathbf{R} [\mathbf{R} (\mathbf{P}_0 + \sqrt{3} e^{-\chi a} [\mathbf{j} \mathbf{P}_0])] \right]$$

$$\times \exp\left[i \frac{\omega_l}{c} |\mathbf{R}|\right]. \quad (3)$$

Из (3) видно, что эффективный дипольный момент системы повернут относительно центрального дипольного момента в правую сторону, к вектору  $[\mathbf{j} \mathbf{P}_0]$ , и величина этого поворота определяется фактором затухания  $\exp(-\chi a)$ . естественно, использование точных значений  $\Phi_n$  (рис. 2) численно изменит величину соответствующего вращения.

Локальные поляритоны найденного типа существуют, очевидно, и в кристаллических системах большей размерности. Представляет интерес дальнейшее исследование этого вопроса применительно к двумерной системе граничащих энантиоморфных полуплоскостей с одномерной границей раздела.

В заключение авторы выражают искреннюю признательность В.М. Аграновичу за полезные обсуждения.

Работа выполнена при поддержке Российской государственной научно-технической программы "Актуальные направления в физике конденсированных сред" по направлению "Нейтронные исследования вещества". Первый из авторов благодарит за частичную поддержку по гранту Фольксваген-фонда 1/69928.

## Список литературы

- [1] В.М. Агранович. Теория экситонов. Наука, М. (1969).
- [2] V.M. Agranovich, O.A. Dubovsky. Optical Properties of Mixed Crystals. North-Holland, Amsterdam (1988). P. 297.
- [3] В.М. Агранович, О.А. Дубовский. Письма в ЖЭТФ **26**, 9, 641 (1977).
- [4] В.М. Агранович, О.А. Дубовский. ФТТ **20**, 11, 3237 (1978).
- [5] Я.Б. Зельдович. ЖЭТФ **67**, 6, 2357 (1974).
- [6] В.М. Агранович, В.Л. Гинзбург. Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов. Наука, М. (1979). 432 с.
- [7] W. Moffitt. J. Chem. Phys. **23**, 1, 467 (1956).
- [8] М.В. Волькенштейн. Молекулярная оптика. Гостехиздат; М. (1951). 744 с.
- [9] V.M. Agranovich, O.A. Dubovsky, D. Basko. J. Chem. Phys. **106**, 6, 3896 (1997).
- [10] В.М. Агранович, О.А. Дубовский. Письма в ЖЭТФ **3**, 2, 345 (1966).
- [11] Я. Аавиксоо, Я. Липмаа, Т. Рейнот. Опт. и спектр. **62**, 5, 419 (1987).
- [12] B. Deveaud, F. Clerot, N. Roy, K. Satake, B. Sermage, D.S. Katzer. Phys. Rev. Lett. **67**, 2355 (1991).
- [13] О.А. Дубовский, А.В. Орлов. ФТТ, в печати (1999).