

УДК 539.21

© 1991

## ВЛИЯНИЕ ДИСПЕРСИИ ФОНОНОВ НА ЧАСТОТЫ ЛОКАЛЬНЫХ КОЛЕБАНИЙ В КРИСТАЛЛАХ С ЭЛЕКТРОННЫМИ ЦЕНТРАМИ

Г. Н. Чувев

Исследовано уравнение для частот локальных фононов в случае, когда дисперсия фононов определяется квадратичным законом. Численно исследовано изменение фононного спектра для основного и первого возбужденного самосогласованного состояний полярона. Полученные результаты позволяют проводить расчеты спектров для реальных электронных центров с учетом дисперсии фононов.

Избыточный электрон, взаимодействующий с колебаниями решетки, в кристалле играет роль дефекта особого рода. Наличие такого дефекта приводит к перестройке фононного спектра решетки и возникновению локальных колебаний [1]. При определенных условиях дисперсия кристаллической решетки может существенно повлиять на спектр этих колебаний. Так, например, для резонансных колебаний слабой связи вид дисперсионной зависимости [2, 3] определяет спектр связанных локальных колебаний. В последнее время появились работы [4], в которых указывается, что дисперсия фононов может служить фактором, определяющим автолокализованное состояние электрона, определять скорость его движения.

В настоящей работе исследовано влияние дисперсии кристаллической решетки на спектр локальных фононов и на состояние электрона, образующееся на  $F$ -центре. Хотя при последовательном анализе требуется учет дисперсии диэлектрической проницаемости, в этой работе мы ограничимся только учетом дисперсии оптических фононов. Полученные результаты могут играть определяющую роль при рассмотрении особенностей инфракрасного поглощения и комбинационного рассеяния на примесных центрах в ионных кристаллах.

### 1. С х е м а р а с ч е т а

Для исследования электронного состояния и расчета спектра локальных фононов использовалось адиабатическое приближение [5]. Условие адиабатического приближения есть

$$\varepsilon^2 = \hbar\omega_0/W \ll 1, \quad (1)$$

где  $\omega_0$  — характерная частота фононов,  $W$  — характерная энергия электронного состояния. Рассматриваются малые отклонения ядер от равновесных положений  $D_k$ , описываемых соотношением

$$\varepsilon q_k = D_k - Q_k. \quad (2)$$

Исходный гамильтониан электрон-фононной системы есть

$$H = -\hbar^2/(2m) \Delta + \sum [P_k P_{-k} - \hbar\omega_k + \omega_k^2 Q_{-k} Q_k + 2c_k Q_k \exp(ikr)]/2 - Ze^2/\varepsilon_0 r, \quad (3)$$

где  $m$  — эффективная масса электрона;  $c_k = e \omega_k / k (4\pi\hbar (1/\epsilon_\infty - 1/\epsilon_0)/V)^{1/2}$  — матричный элемент электрон-фононного взаимодействия;  $Q_k, P_k$  — комплексные координаты решетки;  $r$  — координата электрона. Последний член гамильтониана представляет собой кулоновское взаимодействие электрона с вакансией в среде с диэлектрической проницаемостью  $\epsilon_0$ ; для полярона этот член отсутствует. Исходный гамильтониан электрона и ядер, а также электронная и фононная волновые функции раскладываются в ряд по параметру  $\epsilon$ . В результате уравнения для электронной и фононной систем разделяются. Электронная волновая функция  $\varphi(r)$  и энергия  $E_0$  для  $F$ -центра с эффективным зарядом  $\nu' = Ze^2/\epsilon_0$  определяются следующим соотношением:

$$(\hbar^2/(2m)\Delta + U(r) + E_0 + \nu'/r)\varphi(r) = 0, \quad (4)$$

$$U(r) = -\sum c_k D_k \exp(ikr), \quad D_k = -c_k/\omega_k^2 (\varphi^2, \exp(ikr)), \quad (5)$$

$$\nu' = Ze^2/\epsilon_0. \quad (6)$$

Для определения спектра локальных колебаний необходимо использовать разложение по  $\epsilon$  до второго порядка включительно. В этом приближении состояние фононной подсистемы соответствует гармоническим колебаниям ядер. Следуя схеме адиабатического приближения, можно получить уравнение для частот локальных колебаний  $\omega_s$  [6]

$$(\hbar^2/(2m)\Delta + U(r) + \nu'/r + E_0)X_s = 2\varphi \sum h_k (h_{-k}\varphi, X_s)/(\omega_s^2 - \omega_k^2), \quad (7)$$

$$h_k = \omega_k^2 D_k + c_k \exp(ikr). \quad (8)$$

Здесь  $X_s(r)$  — собственная функция задачи (7), соответствующая локальной моде  $s$ ; она связана с  $U_s(r)$ -волновой функцией фононов следующим образом:

$$U_s(r) = V/4\pi^3 \int \exp(ikr) (X_s, h_{-k}\varphi) dk^3 / (\omega_s^2 - \omega_k^2). \quad (9)$$

Система (7) есть линейное интегродифференциальное уравнение, определяющее  $\omega_s$  как спектр собственных значений краевой задачи.

## 2. Влияние дисперсии фононов на электронное состояние

Влияние дисперсии фононов на электронное состояние определяется зависимостью поляризационного потенциала  $U(r)$  от частот фононов. Однако для неподвижного полярона или  $F$ -центра для оптических фононов потенциал  $U(r) \approx c_k^2/\omega_k^2 \approx c_0^2$  не зависит от частотных характеристик. При трансляционном движении со скоростью  $V$  для полярона соотношения для равновесных положений ядер модифицируются [7]

$$D_k = -c_k/(\omega_k^2 - (Vk)^2) (\varphi^2, \exp(ikr)). \quad (10)$$

И в этом случае соотношение для электронной волновой функции перестает быть независимым от дисперсии фононов и требуется численный расчет системы (7), (10). В случае медленного движения полярона  $V \ll \omega_0 L$  последний член в знаменателе можно рассматривать как малую поправку, которая исказит поляризационный потенциал и внесет дополнительные поправки в энергию состояния. Так как эти поправки пропорциональны  $V^2$  и малы, влияние дисперсии на медленное трансляционное движение будет несущественно.

## 3. Влияние дисперсии на спектр локальных фононов

В работе [6] исследовался спектр локальных фононов при отсутствии дисперсии  $\omega_k = \omega_0$  для различных состояний полярона и  $F$ -центра. Найдено, что в этом случае спектр локальных колебаний представляет собой бес-

конечную серию узких линий, сгущающихся к частоте  $\omega_0$ . Исследуем, как дисперсия фононов, в частности, определяемая квадратичным законом (1), влияет на перенормировку частот этих фононов

$$\omega^2(k) = \omega_0^2 - V_0^2 k^2, \quad (11)$$

$\omega_0$  — максимальная частота оптических фононов,  $V_0$  — скорость дисперсии фононов. Рассмотрим случай слабой дисперсии

$$|x^2| = |V_0/\omega_0 L|^2 \ll 1, \quad (12)$$

$L$  — характерный размер электронного состояния. Для большинства ионных кристаллов это соотношение хорошо выполняется. В [8] указан качественный критерий, определяющий, когда влияние дисперсии на спектр колебаний существенно

$$|x\omega_0| \simeq \delta\omega_s, \quad (13)$$

где  $\delta\omega_s$  — характерное расстояние между частотами в спектре колебаний. Для исследуемых систем  $\delta\omega_s \simeq \omega_0 - \omega_s$ , и поэтому, несмотря на слабость дисперсии, всегда существует область локальных колебаний, для которой влияние дисперсии существенно.

Проведем качественный анализ влияния дисперсии для полярона и  $F$ -центров. Представим  $X_p$  как линейную комбинацию  $\varphi_n(r)$  возбужденных решений уравнения (4), тогда для уровней  $n$  получим

$$W_n - W_0 = 4/\Omega_n^2 \{A, (A, [1 - (1 - \Omega_n^2) \exp(-i\Omega_n/x |x - x'|)] / |x - x'|)\}, \quad (14)$$

$$A(r) = \varphi_n(r) \varphi(r), \quad x = r/L, \quad \Omega_n^2 = 1 - \omega_n^2/\omega_0^2, \quad (15)$$

$W_n$ ,  $\varphi_n$  — энергия и функция возбужденного электронного состояния  $n$ . Анализ этого уравнения показывает, что весь спектр можно разделить на три области.

а)  $|\Omega^2| \gg |x^2|$ , область низких частот и высоких частот. В этой области, согласно критерию (13), влияние дисперсии незначительно и сводится к малому сдвигу частот

$$\begin{aligned} \Omega &= \Omega_0 [1 + 4\pi k^2 \omega_n^2(A, A)], \\ \Omega_0 &= 4 [A, (A, | -x' |x|)] / (W_n - W_0). \end{aligned} \quad (16)$$

б)  $\Omega \simeq x$ , область квазилокальных колебаний.  $\Omega_n$  определяется из условия

$$(A, (\sin^2[\Omega/(2x) |x - x'|], A/|x - x'|)) = 0. \quad (17)$$

Соотношение (17) нелинейно и в общем случае имеет несколько решений. Здесь происходит расщепление частотных уровней и плотность частотных уровней имеет резонансный вид. Возникают колебания, являющиеся ана-

Таблица 1

Спектр квадратов фононных частот  $\omega_n^2$  для основного и первого возбужденного состояния полярона с учетом дисперсии фононов

$l$	Основное состояние полярона					Первое возбужденное самосогласованное состояние				
	$n$									
	2	3	4	5	6	2	3	4	5	6
0	0.404	0.866	0.871	0.872	0.886	1.56	0.358	0.881	0.926	0.927
1	0.	0.854	0.863	0.865	0.908	2.54	0.	0.798	0.928	0.928
2		0.796	0.855	0.855	0.870		-1.62	0.879	0.917	0.927
3			0.877	0.881	0.891			0.405	0.929	0.929
4				0.871	0.873				0.806	0.927
5					0.845					0.905

Таблица 2

Локальные частоты для  $F$ -центров для наличия ( $\omega_d$ ) и отсутствия дисперсии ( $\omega_0$ )

$\omega^2$	( $n, l$ )	TlCl	LiF	LiBr	LiCl
$\omega_d^2$	(2.0)	0.5499	0.5686	0.5764	0.5896
$\omega_0^2$	(2.0)	0.5784	0.6039	0.6209	0.6465
$\omega_d^2$	(2.1)	0.8308	0.8156	0.8036	0.7779
$\omega_0^2$	(2.1)	0.9472	0.9500	0.9526	0.9559
$\omega_d^2$	(3.2)	0.3753	0.4417	0.4671	0.5079
$\omega_0^2$	(3.2)	0.3859	0.4587	0.4873	0.5348

Таблица 2 (продолжение)

$\omega^2$	NaF	KF	AgCl	CsCl
$\omega_d^2$	0.5981	0.602	0.6078	0.6128
$\omega_0^2$	0.6665	0.6764	0.6921	0.7143
$\omega_d^2$	0.750	0.7352	0.7092	0.6653
$\omega_0^2$	0.9584	0.9597	0.9617	0.9646
$\omega_d^2$	0.5374	0.5506	0.569	0.5856
$\omega_0^2$	0.5735	0.5908	0.6168	0.6521

логом резонансных колебаний, рассматриваемых в теории кристаллической решетки.

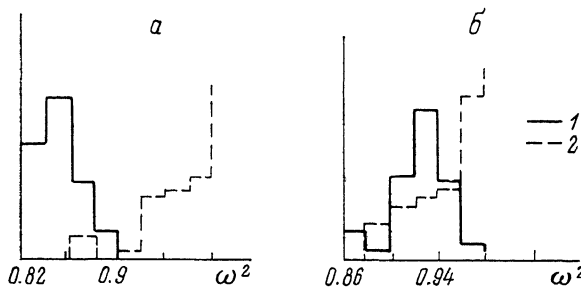
в)  $|\Omega^2| \ll |x^2|$ , область частот  $\omega_n \simeq \omega_0$ . Здесь, согласно (13), дисперсия существенна и приводит к сильному изменению перенормировки частот. Для  $\Omega_n$  следует, что

$$3x^2(A, (A, |x - x'|)) + \Omega^2(A, (A, |x - x'|^3)) + \dots = 0. \quad (18)$$

Соотношение (18) может иметь решение  $|\Omega^2| \ll |x^2|$  только для больших  $n$ , так как при этом необходимо, чтобы выполнялось соотношение

$$(A, (A, |x - x'|)) / (A, (A, |x - x'|^3)) \ll 1. \quad (19)$$

Для количественного анализа влияния дисперсии на спектр локальных колебаний, проводился численный расчет (см. Приложение) для основ-



Аппроксимация спектра частот связанных фононов для основного (а) и первого самосогласованного (б) состояния полярона при наличии (1) и отсутствии дисперсии (2).

ного и первого возбужденного самосогласованного состояний полярона и  $F$ -центров, исследовавшихся в [9]. Результаты расчета для  $x^2 = 0.045$  представлены в табл. 1, 2. На рисунке дано сравнение этих результатов с расчетами, проведенными в [6] (случай  $\omega_k = \omega_0$ ). Расчеты подтверждают, что влияние даже слабой дисперсии на частоты локальных колебаний существенно и приводит к появлению дополнительного резонансного пика в об-

ласти  $1 - \omega_n^2/\omega_0^2 \approx \kappa^2$ . Для некоторых  $F$ -центров этот пик может попасть на низкочастотный край спектра локальных колебаний (табл. 2) и тем самым сильно исказить его, при этом изменение частот может составить до 20 %. Таким образом, хотя слабая дисперсия не сказывается непосредственно на электронном состоянии  $F$ -центров и медленного полярона, она существенно влияет на спектр локальных колебаний. Полученные результаты подтверждают необходимость учета дисперсии фононов для расчета спектра локальных колебаний, обусловленных электрон-фононным взаимодействием в реальных кристаллах.

## П Р И Л О Ж Е Н И Е

Схема численного расчета частот локальных фононов при наличии дисперсии

Подставляя соотношение (11) в (3), получим из (7)

$$\left(\Delta/2 + \int u^2(x')/|x-x'| dx'^3 + W + \nu/x\right) X_n(x) = 2u/\Omega_n^2 [I_1(x) - \omega_n^2 I_2(x) - D],$$

$$I_1(x) = \int u(x') X_n(x')/|x-x'| dx'^3,$$

$$I_2(x) = \text{Re} \int u(x') X_n(x')/|x-x'| \exp(-i\Omega/x|x-x'|) dx'^3,$$

$$D = (u^2 I_1 - \bar{\omega}_n^2 I_2), \quad (\text{П. 1})$$

где

$$\nu = 1/c\epsilon_0, \quad L = \hbar^2/mc^2, \quad W = E_0(L/c\epsilon^2), \quad u(x) = \varphi(r)L^{3/2}, \quad \bar{\omega}_n = \omega_n/\omega_0.$$

Система (П. 1) определяет  $\omega_n$  как спектр линейной интегродифференциальной краевой задачи. Для сферически-симметричных  $u(x)$  она сводится к системе обыкновенных дифференциальных уравнений.

## С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Мельников В. И., Рашба Э. И. // Письма в ЖЭТФ. 1969. Т. 10. № 2. С. 95—98.
- [2] Коган Ш. М., Сурис Р. А. // ЖЭТФ. 1966. Т. 50. № 5. С. 1279—1284.
- [3] Rodriguez S., Schultz T. D. // Phys. Rev. 1969. V. 178. N 4. P. 1252—1263.
- [4] Давыдов А. С., Энольский В. З. // ЖЭТФ. 1988. Т. 94. № 2. С. 177—181.
- [5] Борн М., Кунь Х. Динамическая теория кристаллических решеток. М., 1958. 488 с.
- [6] Лахно В. Д., Чуев Г. Н. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 2. С. 23—27; Phys. St. Sol. (b). 1989. V. 151. N 79. P. 79—87.
- [7] Боголюбов Н. Н. // УМЖ. 1950. Т. 2. С. 3—24.
- [8] Левинсон И. Б., Рашба Э. И. // УФН. 1973. Т. 111. № 4. С. 683—718.
- [9] Балабаев Н. К., Лахно В. Д. // Опт. и спектр. 1983. Т. 55. № 2. С. 308—312.

Научно-исследовательский  
вычислительный центр  
АН СССР  
Пушино  
Московская область

Поступило в Редакцию  
17 января 1991 г.  
В окончательной редакции  
11 июня 1991 г.