

в первом приближении  $\tilde{E}(\mathbf{k})$  определяется уравнением (1) из работы [1]. Однако, как сразу видно из рис. 1, б работы [2], в окрестности точки  $k=0.04 \pi/a$  производная по частоте от массового оператора больше единицы. Именно это и не было учтено, и эта ошибка в конечном итоге привела авторов [1, 2] к неправильным результатам.

В заключение отметим, что поставленная задача достаточно легко решается с помощью метода функции Грина, когда спектр поляритонов естественным образом оказывается связанным с полюсами двухчастичной электрон-дырочной функции Грина (см. [6]).

### Список литературы

- [1] Крехивский О. В., Ницович Б. М., Аванесян Г. Т. // ФТТ. 1987. Т. 29. № 7. С. 2843—2844.
- [2] Nitsovich B. M., Krekhivskii O. V., Pestryakov G. M., Avanesyan G. T. // Phys. St. Sol. (b). 1988. V. 148. N 1. P. K29—K32.
- [3] Hanamura E. // J. Phys. Soc. Jap. 1974. V. 37. N 6. P. 1545—1552.
- [4] Steyn-Ross M. L., Gardner C. W. // Phys. Rev. A. 1983. V. 27. N 1. P. 310—325.
- [5] Бродин М. С., Мясников Э. Н., Марисова С. В. Поляритоны в кристаллооптике. Киев: Наукова думка, 1984. 200 с.
- [6] Koinov Z. G., Glinskii G. F. // J. Phys. A. 1988. V. 21. N 8. P. 3431—3450.

Поступило в Редакцию  
22 марта 1989 г.

УДК 538.913

*Физика твердого тела, том 31, в. 10, 1989*  
*Solid State Physics, vol. 31, N 10, 1989*

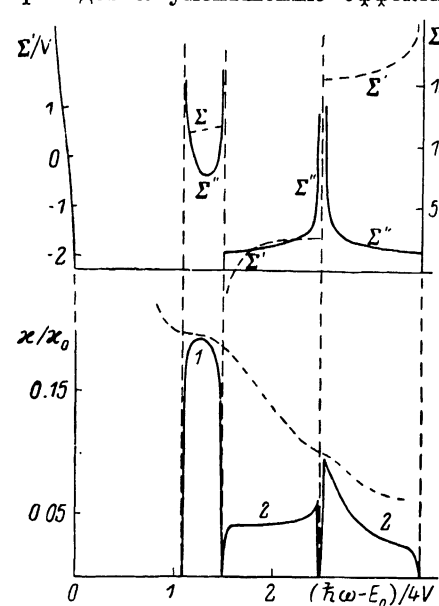
## ВЛИЯНИЕ СВЯЗАННЫХ МНОГОФОНОННЫХ КОЛЕБАНИЙ НА ЭКСИТОННЫЕ СПЕКТРЫ ПОГЛОЩЕНИЯ СВЕТА

*О. А. Дубовский*

В настоящее время ведутся исследования колебательных спектров кристаллов, в которых вследствие ангармонизма колебаний взаимодействие фононов приводит к образованию связанных многофононных комплексов из двух, трех и т. д. фононов. Таким связанным бифононным, трифононным и т. д. состояниям в экспериментально наблюдаемых оптических спектрах, в спектрах рассеяния медленных нейтронов отвечают изолированные линии вне континуума несвязанных колебаний [1, 2]. Эксперименты показали, что ангармонизм колебаний с энергией ангармонического взаимодействия, достигающей  $\sim 20$  мэВ при собственной энергии оптических фононов  $\sim 100$  мэВ, существенно определяет весь спектр колебательных состояний от энергии однофононных возбуждений до многофононных возбуждений высокой кратности. Так, в [3] при рассеянии нейтронов наблюдался спектр колебаний водорода в  $V_2H$  от 1-го до 14-го (!) тона в широком диапазоне энергий 50—1500 мэВ. Спектр многофононных колебаний включает уже для трифононов несколько отдельных термов (основное состояние, *s*- и *p*-возбужденные состояния) [4], а для тонов высшей кратности этот набор еще более увеличивается. Ясно, что такая богатая мультиплетная структура многофононных колебаний может определенным образом влиять и на спектры высокочастотных элементарных возбуждений в кристаллах — экситонов Френкеля, магнонов и т. д., взаимодействующих с фононной подсистемой. При этом в наибольшей степени эффекты ангармонизма многофононных колебаний могут проявиться в тех случаях, когда возбуждение (распад) экситона Френкеля с энергией  $\geq 2$  эВ идет при поглощении (излучении) света с испусканием (поглощением) большого числа фононов, бифононов и т. д. Таким образом, эти эффекты

могут влиять на форму экситонных полос поглощения света в молекулярных, квазимолекулярных (типа гидридов металлов) и ионных кристаллах, особенно на крыльях полос. В частности, это влияние может быть заметным на длинноволновом крыле, где наблюдается экспоненциальное затухание по эвристическому правилу Урбаха, объяснение которого по-прежнему привлекает интерес [2, 5-7]. При этом возникает вопрос о распределении энерговыведения, об относительном вкладе фононов, бифононов, трифононов в форму полосы поглощения, т. е., например, генерируется ли большее число несвязанных пар фононов или связанных бифононов и т. д.

В настоящей работе рассмотрено влияние низжайших связанных колебаний — бифононов — на форму экситонных полос поглощения света. Показано, что в определенных случаях наличие бифононов может приводить к увеличению поглощения света на крыльях экситонной полосы, что приведет к уменьшению эффективной константы в экспоненте правила



Урбаха, как это и необходимо для согласования с экспериментом [8, с. 171]. При этом определяется относительный вклад бифононов и пар диссоциированных фононов в спектр поглощения. Отметим, что при учете нелинейности колебаний возникают как суммарные по основным тонам колебаний, так и разностные, причем последние, например, в [9] (для колебаний одного типа с нулевой разностной частотой) связывались с наличием центрального пика. Разностные тона с малой энергией при учете дисперсии мо-

Коэффициент экситонного поглощения света в области двухфононных колебаний.

1 — связанные бифононные колебания, 2 — полоса диссоциированных двухфононных колебаний.

гут играть роль в альтернативном объяснении правила Урбаха присутствием колебаний малой частоты [8]. Соответствующее уширение экситонных линий вследствие взаимодействия с фононной подсистемой дополняется, естественно, радиационным уширением [10], уширением из-за взаимодействия с дефектами [11].

При учете экситон-фононного взаимодействия, квадратичного по смещениям атомов [8, 12], и фонон-фононного взаимодействия [1, 2] гамильтониан кристалла имеет следующий вид:

$$\hat{H} = \sum_{\mathbf{k}} E_{\mathbf{k}} \hat{B}_{\mathbf{k}}^{\dagger} \hat{B}_{\mathbf{k}} + \sum_{\mathbf{k}} \epsilon_{\mathbf{k}} \hat{\delta}_{\mathbf{k}}^{\dagger} \hat{\delta}_{\mathbf{k}} - A \sum_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3} \hat{\delta}_{\mathbf{k}_1}^{\dagger} \hat{\delta}_{\mathbf{k}_2}^{\dagger} \hat{\delta}_{\mathbf{k}_3} \hat{\delta}_{\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3} + \Gamma \sum_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2} \hat{B}_{\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2}^{\dagger} \hat{B}_{\mathbf{k}} (\hat{\delta}_{\mathbf{k}_1} + \hat{\delta}_{-\mathbf{k}_1}^{\dagger}) (\hat{\delta}_{\mathbf{k}_2} + \hat{\delta}_{-\mathbf{k}_2}^{\dagger}), \quad (1)$$

где  $E_{\mathbf{k}}$ ,  $\epsilon_{\mathbf{k}}$  — энергии экситона и фонона с волновым вектором  $\mathbf{k}$ ;  $\hat{B}_{\mathbf{k}}$ ,  $\hat{\delta}_{\mathbf{k}}$  — соответствующие Бозе-операторы;  $A > 0$  — константа ангармонизма;  $\Gamma$  — константа экситон-фононной связи. Коэффициент поглощения света  $\chi(\omega)$  на частоте  $\omega$  определяется мнимой составляющей экситонной функции Грина  $G(\mathbf{k}, \omega)$  [8], которая находится из уравнения Дайсона  $G = G^0 + G^0 \Sigma G$  (в операторном виде) с соответствующей собственно-энергетической частью  $\Sigma(\mathbf{k}, \omega)$ . При решении уравнения Дайсона для  $G$  и соответственно для  $\Sigma$  учтем основной в области двухфононных колебаний вклад двухфононных функций Грина  $g_{\mathbf{k}, \mathbf{k}}(\epsilon)$ , имеющих, как показано в [2], следующий вид:

$$g_{k_1, k_2}(\varepsilon) = g_{k_1, k_2}^{(0)}(\varepsilon) - 2A \left[ 1 + 2A \frac{1}{N} \sum_q g_{k_1+k_2-q, q}^{(0)}(\varepsilon) \right]^{-1} \times \\ \times [g_{k_1, k_2}^{(0)}(\varepsilon)]^2, \quad g_{k_1, k_2}^{(0)}(\varepsilon) = (\varepsilon - \varepsilon_{k_1} - \varepsilon_{k_2})^{-1}. \quad (2)$$

В (2) полюс 2-го слагаемого и определяет вклад бифононов с энергией  $\varepsilon_{k_1+k_2}^{b,p}$  и волновым вектором  $k_1+k_2$ . Известно точное решение задачи определения спектра бифононов только в 1-мерном [2] и 2-мерном [13] кристаллах. В 1-мерном кристалле учтем взаимодействие ближайших соседей ( $\varepsilon_k = \varepsilon_0 + 2V \cos(ka)$ ),  $\varepsilon_{k_1+k_2}^{b,p} = 2\varepsilon_0 - [(2A)^2 + 16V^2 \cos^2(ka/2)]^{1/2}$  и квадратичный по  $\Gamma$  вклад в  $\Sigma$  двухфононных состояний. Для выяснения основных особенностей формы полосы поглощения, обусловленных наличием связанных колебаний, рассмотрим случай большой эффективной массы экситона и низкой температуры, поскольку более точный учет таких факторов не вызывает принципиальных затруднений. После некоторых вычислений для собственно-энергетической части  $\Sigma(\omega) = \Sigma'(\omega) + i\Sigma''(\omega)$  находим следующее представление:

$$\Sigma'(\omega) = (\Gamma^2/\pi V) \{ \operatorname{sgn} |\Omega(\omega)| F(|\Omega|) \theta(1 - |\Omega|) + \\ + kn^{-1} [F(k) - (1-n)\Pi(-n, k)] \Phi(\Omega) \}, \\ \Sigma''(\omega) = (\Gamma^2/\pi V) \{ F(\sqrt{1-\Omega^2}) \theta(1 - |\Omega|) + \\ + 2\pi |\Omega| [1 - (2\Omega^2 - 1 - 2A^2)^2]^{-1/2} \Phi(\Omega) \}, \\ \Omega(\omega) = (\hbar\omega - E_0 - 2\varepsilon_0)/4V, \quad A \equiv A/2V, \quad k = \\ = (A^2 + 1)^{-1/2}, \quad n = 1 - k^2\Omega^2, \quad \Phi(\Omega) = \theta(|\Omega| - \\ - \max(\bar{A}, 1)) - \theta(|\Omega| - k^{-1}), \quad (3)$$

где  $F(k)$ ,  $\Pi(-n, k)$  — известные табулированные специальные функции — полные эллиптические интегралы 1-го, 3-го рода с параметром  $k$  и характеристикой  $n$  [14].

На рисунке представлены зависимости  $\Sigma'(\omega)$ ,  $\Sigma''(\omega)$  и  $\kappa(\omega)/\kappa_0 = = 2V\Sigma''(\omega) / \{ [\hbar\omega - E_0 - \Sigma'(\omega)]^2 + [\Sigma''(\omega)]^2 \}$  на высокочастотном крыле поглощения при значениях параметров  $\Gamma = \pi^{1/2}V$ ,  $A = 2V$ ,  $\varepsilon_0 = 5V$ , дающих наглядное графическое представление особенностей в поглощении. Выделенный пик  $I$  в поглощении, отвечающий бифононам, имеет ту же интегральную интенсивность, что и полоса диссоциированных состояний 2. Это обстоятельство и указывает на существенную роль бифононов. Отметим также провал на частоте  $(E_0 + 2\varepsilon_0)/\hbar$ , связанный с увеличением  $\Sigma''$  на этой частоте. Остальные особенности  $\kappa(\omega)$  могут быть определены из (3). При конечной температуре указанные особенности в инвертированном по частоте виде будут присутствовать и на длинноволновом крыле поглощения, давая наряду с трифононами, квартафононами и т. д. соответствующий вклад в области частот, где действует правило Урбаха.

В заключение автор считает необходимым выразить искреннюю признательность В. М. Аграновичу за полезные замечания.

#### С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Agranovich V. M. // Spectroscopy and Excitation Dynamics of Condensed Molecular Systems / Ed. V. M. Agranovich & R. M. Hochstrasser. Amsterdam, North-Holland, 1983. P. 83.
- [2] Agranovich V. M., Dubovsky O. A. // Optical Properties of Mixed Crystals / Ed. R. J. Elliott & I. P. Ipatova. Amsterdam, North-Holland, 1988. P. 297.
- [3] Hempelman R., Richter D., Price D. L. // Phys. Rev. Lett. 1987. V. 58. N 10. P. 1016—1019.
- [4] Agranovich V. M., Dubovsky O. A., Orlov A. V. // Phys. Lett. A. 1986. V. 119. N 2. P. 83—88.
- [5] Mohler E., Thomas B. // Phys. Rev. Lett. 1980. V. 44. N 8. P. 543—545.
- [6] Ihm J., Phillips J. C. // Phys. Rev. B. 1983. V. 27. N 12. P. 7803—7810.
- [7] Алiev В. А., Багирзаде Э. Ф., Гасанов Н. З., Гусейнов Г. Д. // ФТТ. 1987. Т. 29. № 11. С. 3466—3469.
- [8] Агранович В. М. Теория экситонов. М.: Наука, 1968.
- [9] Behera S. N., Samsur Sk. // Pramana. 1980. V. 15. N 4. P. 375—398.
- [10] Агранович В. М., Дубовский О. А. // Письма в ЖЭТФ. 1966. Т. 39. № 3. С. 345—348.

- [11] Дубовский О. А. // ФТТ. 1973. Т. 15. № 1. С. 205—211.  
 [12] Toyozawa Y. // Progr. Theor. Phys. (Kyoto). 1959. V. 22. N 3. P. 455—465.  
 [13] Дубовский О. А., Орлов А. В. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 6. С. 1688—1698.  
 [14] Градштейн И. С., Рыжик И. М. Таблицы интегралов, сумм, рядов и произведений. М.: Физматгиз, 1963.

Поступило в Редакцию  
22 марта 1989 г.

УДК 538.222 : 538.113.092 : 546.657

Физика твердого тела, том 31, в. 10, 1989  
Solid State Physics, vol. 31, N 10, 1989

## ИНВЕРСИЯ СОСТОЯНИЙ И СПИН-РЕШЕТОЧНАЯ РЕЛАКСАЦИЯ ИОНА ЦЕРИЯ В ЭТИЛСУЛЬФАТЕ ЛАНТАНА ПРИ ВЫСОКИХ ДАВЛЕНИЯХ

И. М. Крыгин, Г. Н. Нейло, А. Д. Прохоров

Ион церия в решетке этилсульфата лантана (ЭТС La) обладает редко встречающейся системой энергетических уровней, состоящей из двух близко расположенных крэммеровских дублетов [1]. В [2, 3] было показано, что энергетический интервал между основным и ближайшим возбужденным дублетами чувствителен к давлению и может как увеличиваться [2], так и уменьшаться [3]. Для данного иона в рассматриваемой матрице уменьшение энергетического интервала  $\Delta_1$  с ростом давления должно при-

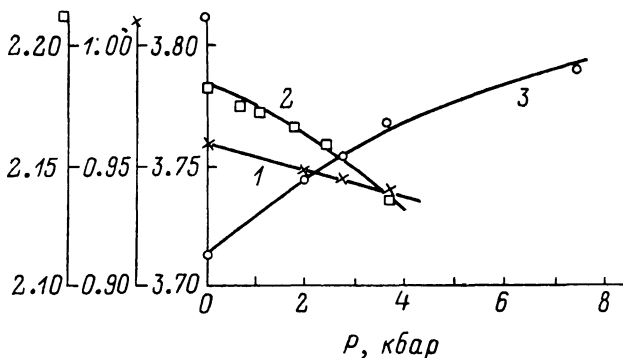


Рис. 1. Изменение  $g$ -факторов дублетов  $|\pm 5/2\rangle$  и  $|\pm 1/2\rangle$  от давления.

водить к уникальной ситуации: искусственному вырождению энергетических уровней (при  $\Delta_1=0$ ) и их инверсии при дальнейшем увеличении давления. Такая тенденция поведения  $\Delta_1$  от давления до 15 МПа была обнаружена в [4]. Сведения об энергетическом спектре трехвалентного церия в исследуемом кристалле необходимы также для установления природы спин-спинового взаимодействия между ионами церия, имеющего в данном кристалле ряд особенностей [5].

Кристаллическое поле ЭТС La с симметрией  $C_{3h}$  расщепляет основной мультиплет иона  $Cl^{3+} - 2F_{5/2}$  на три крэммеровских дублета:  $|\pm 1/2\rangle$ ,  $|\pm 3/2\rangle$ ,  $|\pm 5/2\rangle$ . Исследования магнитной восприимчивости и спектра ЭПР при атмосферном давлении однозначно указывают на то, что магнитные свойства иона определяются дублетом  $|\pm 1/2\rangle$ , который является основным и отделен от ближайшего по энергии возбужденного дублета  $|\pm 5/2\rangle$  энергетическим расстоянием  $\Delta_1=2 \text{ см}^{-1}$  [1]. Дублет  $|\pm 3/2\rangle$  расположен еще выше  $\Delta_2 \approx 80 \text{ см}^{-1}$  и заметного влияния на магнитные свойства при низких температурах не оказывает.