

## ТУННЕЛИРОВАНИЕ В СТЕКЛАХ И АНОМАЛЬНОЕ НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОЕ УШИРЕНИЕ ОПТИЧЕСКИХ ЛИНИЙ ПРИМЕСИ

*И.С.Осадько*

Если примесный центр обладает двухъямным адиабатическим потенциалом, то низкотемпературное уширение его оптических линий может иметь закон  $T^n$ , где  $1 < n < 2$ .

1. Измерение методом выжигания провала однородной полуширины  $\gamma(T)$  оптических бесфононных линий (БФЛ) примесных центров в органических стеклах выявило весьма странную зависимость  $T^n$ , где  $1 < n < 2$ , полуширины  $\gamma(T)$  от температуры  $1 - 4$ . Например, в температурном интервале  $0,4 < T < 20$  К, перекрывающем почти два порядка,  $\gamma \sim T^{1,3 - 2,3}$ . Существующие теории не могут объяснить такой температурной зависимости. Естественно предположить, что в низкотемпературном уширении БФЛ должны играть важную роль двухуровневые системы (ДС) стекол <sup>5</sup>.

Ранее <sup>6</sup> ДС уже привлекались для объяснения квадратичного закона уширения БФЛ в интервале  $10 < T < 300$  К, обнаруженного незадолго до этого <sup>7, 8</sup>. Хотя позднее <sup>9, 10</sup> было показано, что распространенная формула для полуширины даже количественно согласуется с экспериментальными данными <sup>7, 8</sup>, роль ДС в уширении БФЛ обсуждалась неоднократно <sup>11-13</sup>. Во всех этих работах предполагалось, что причиной уширения БФЛ является взаимодействие примесного центра с фононами через огромную совокупность ДС. Поэтому однородная полуширина БФЛ зависела от функции распределения ДС, а температура входила в формулу через среднее число фононов. В этом подходе весьма трудно объяснить, почему локализованный примесный центр взаимодействует не с одной-двумя ДС, а с огромным числом ДС.

В настоящей статье проблема температурного уширения БФЛ рассматривается в рамках традиционного подхода, т. е. причиной уширения является изменение колебательных состояний примесного центра. Однако, если принять во внимание, что адиабатический потенциал примесного центра в стекле может быть двухъямным, то в однородной полуширине БФЛ появляется дополнительное слагаемое, доминирующее в низкотемпературной области.

2. Опираясь на результаты работы <sup>14</sup>, колебательный гамильтониан примесного центра с двухъямным адиабатическим потенциалом можно представить в следующем виде:

$$H^g = \sum_{j=1,2} (E_j - \mu) c_j^+ c_j + U(R) (c_2^+ c_1 + c_1^+ c_2) + H_{ph} (R - a c_2^+ c_2). \quad (1)$$

Здесь  $E_1$  и  $E_2$  – нижайшие уровни глубокой и мелкой ямы,  $\mu$  – химический потенциал  $U(R)$  – оператор туннелирования,  $H_{ph}$  – гамильтониан гармонического осциллятора,  $a$  – смещение положения равновесия фононов при туннелировании. Операторы  $c_j$  и  $c_j^+$  подчиняются фермиевским коммутационным соотношениям. После электронного возбуждения примесного центра колебательный гамильтониан изменится:  $H^e = H^g + \Lambda$ . Возьмем изменение в простейшем виде:

$$\Lambda = R \frac{W}{2} + \Delta c_2^+ c_2. \quad (2)$$

Форма полосы поглощения света примесным центром определяется фурье-образом функции

$$I(T) = \text{Sp} \left\{ e^{-\frac{\Omega^g - H^g}{T}} e^{iH^g t} e^{-iH^e t} \right\} = e^{\varphi(t)}. \quad (3)$$

Вычисляя кумулянтную функцию  $\varphi(t)$  в первом исчезающем приближении по  $\Lambda$ , получаем  $\varphi(t) = it\delta - |t| \gamma/2 + f(t) - f(0)$ , где функция  $f(t)$ , стремящаяся к нулю при возрастании времени, определяет форму фононного крыла, а  $\gamma$  – полуширина БФЛ. Она описывается выражением

$$\gamma(T) = \gamma_W(T) + \gamma_\Delta(T) = W^2 \int_0^\infty \frac{d\nu}{\pi} \frac{\Gamma_W^2(\nu)}{\text{sh}^2(\nu/2T)} + \frac{\Delta^2}{2} \int_0^\infty \frac{d\nu}{\pi} \frac{\Gamma_\Delta^2(\nu, T)}{\text{ch}^2(\nu/2T)}. \quad (4)$$

Первое слагаемое описывает вклад в полуширину, обусловленный обычным квадратичным взаимодействием с фононами. Именно с помощью  $\gamma_W$  в работе <sup>10</sup> удалось на количественном уровне объяснить экспериментальные данные работ <sup>7, 8</sup>. Слагаемое  $\gamma_\Delta$  описывает дополнительное уширение БФЛ, обусловленное изменением параметров ДС при электронном возбуждении примесного центра. Функция  $\Gamma_\Delta(\nu, T)$  – мнимая часть фурье-компоненты запаздывающей функции Грина

$$G(t) = -i \text{Sp} \left\{ e^{-\frac{\Omega^g - H^g}{T}} [c_2(t) c_2^+(0) + c_2^+(0) c_2(t)] \right\} \theta(t), \quad (5)$$

где  $c_2(t) = \exp(iH^{\xi}t)c_2 \exp(-iH^{\xi}t)$ . Рассматривая туннелирование как возмущение, можем вычислить мацубаровскую функцию и с ее помощью найти  $G(t)$ . Пренебрегая упругим туннелированием и учитывая неупругое в однофононном приближении, получаем<sup>1)</sup>:

$$\Gamma_{\Delta}(\nu, 0) \approx \frac{1}{2} \left[ \frac{\gamma_1}{(\nu - \epsilon)^2 + \gamma_1^2} + p(\nu) \right], \quad (6)$$

где

$$p(\nu) \approx \nu^{-2} \exp\left(-\frac{a^2}{4}\right) \sum_q \left(\frac{\partial U}{\partial R_{q/a/2}}\right)^2 \delta(\nu - \nu_q). \quad (7)$$

Здесь  $\epsilon = E_2 - E_1$  — щель в ДС,  $\nu_q$  — частота фонона,  $\gamma_1 = \epsilon^2 p(\epsilon)/2$ .

Слагаемое  $\gamma_w$  в формуле (4) стремится к нулю как  $T^7$  и поэтому его вкладом в низкотемпературную полуширину можно пренебречь. Рассмотрим вклад ДС в полуширину БФЛ. Подставляя формулу (6) в (4) и аппроксимируя  $p(\nu)$  на интервале  $(0, \nu_D)$  ступенчатой функцией высотой  $p$ , получаем

$$\gamma_{\Delta}(T) = \frac{\Delta^2}{8} \left\{ \frac{1}{2\gamma_1} \operatorname{ch}^{-2}\left(\frac{\epsilon}{2T}\right) + 2p^2 T \operatorname{th}\left(\frac{\nu_D}{2T}\right) \right\}. \quad (8)$$

Здесь первое слагаемое при  $T > \epsilon$  почти не зависит от температуры, а при  $T < \epsilon$  экспоненциально мало. Второе слагаемое на интервале  $0 < T < \nu_D$  изменяется почти линейно. Численный расчет с функцией  $p(\nu)$ , аппроксимированной гауссовой функцией с полушириной  $300 \text{ см}^{-1}$  и максимумом при  $\nu_D/2 \approx 150 \text{ см}^{-1}$ , показывает, что  $\gamma_{\Delta} \sim T^{1.3}$  на интервале  $0,5 < T < 20 \text{ К}^2$ . Следовательно, изменение параметров ДС при электронном возбуждении примесного центра может привести к аномальному уширению БФЛ, обнаруженному в<sup>1-4</sup>.

#### Литература

1. Гороховский А.А., Кикас Я.В., Пальм В.В., Ребане Л.А. ФТТ, 1981, 23, 1040.
2. Thijssen H.P.T., Dicker A.I.M., Volker S. Chem. Phys. Lett., 1983, 92, 7.
3. Thijssen H.P.T., Volker S., Schmidt M., Port H. Chem. Phys. Lett., 1983, 94, 537.
4. Carter T.P., Fearey B.L., Hayes J.M., Small G.J. Chem. Phys. Lett., 1983, 102, 273.
5. Amorphous Solids; Low Temperature Properties. Ed. by W.A. Phillips (Springer-Verlag, Heidelberg, 1980).
6. Lyo S.K., Orbach R. Phys. Rev., 1980, B22, 4223.
7. Selzer P.M., Huber D.L., Hamilton D.S., Yen W.M., Weber M.J. Phys. Rev. Lett., 1976, 36, 813.
8. Hegarty J., Yen W.M. Phys. Rev. Lett., 1979, 43, 1126.
9. Осадько И.С. Письма в ЖЭТФ, 1981, 33, 640.
10. Osad'ko I.S., Zhdanow S.A. Opt. Comm., 1982, 42, 185.
11. Hayes J.M., Stout R.P., Small G.J. J. Chem. Phys., 1981, 74, 4266.

1) Учет многофононного туннелирования изменит, конечно, формулу (7), но не изменит основного результата.

2) Автор благодарит С.А.Жданова за проведение численных расчетов.

12. *Reineker R., Morawitz H.* Chem. Phys. Lett., 1982, 86, 359.
13. *Lyo S.K.* Phys. Rev. Lett., 1982, 48, 688.
14. *Kulagin S.A., Osad'ko I.S.* Phys. Stat. Sol., 1982, b42, 185.

Московский  
государственный педагогический институт  
им. В.И.Ленина

Поступила в редакцию  
16 февраля 1984 г.

---