https://doi.org/10.3176/phys.math.1985.4.08

EESTI NSV TEADUSTE AKADEEMIA TOIMETISED.
FÜÜSIKA * MATEMAATIKA
ИЗВЕСТИЯ АКАДЕМИИ НАУК ЭСТОНСКОЙ ССР. ФИЗИКА * МАТЕМАТИКА
PROCEEDINGS OF THE ACADEMY OF SCIENCES OF THE ESTONIAN SSR.
PHYSICS * MATHEMATICS

1985, 34, 4

УДК 535.37

Л. БРАГИНА

ТУННЕЛЬНЫЕ СОСТОЯНИЯ РТУТЕПОДОБНЫХ ПРИМЕСНЫХ ЦЕНТРОВ В МАГНИТНОМ ПОЛЕ

(Представил В. Хижняков)

Введение

При рассмотрении оптических свойств ртутеподобных центров (РЦ) в щелочно-галоидных кристаллах (ЩГК) выясняется, что при низкой температуре существенными становятся туннельные переходы между энергетически эквивалентными минимумами адиабатического потенциала. Подобные переходы не только приводят к дополнительному расщеплению уровней, но и могут значительно влиять на кинетику затухания и поляризацию люминесценции.

Мы будем исходить из модели, предложенной в [1] для электронных состояний sp-конфигурации РЦ в случае кристалла с сильным эффектом Яна—Теллера. В этой модели энергетическая поверхность ^3P-состояния имеет 3 тетрагональных минимума x, y, z. Каждый из них трехкратно вырожден по спину: $x_{x,y,z}$, $y_{x,y,z}$, $z_{x,y,z}$. Спин-орбитальное (СО) взаимодействие приводит к частичному снятию вырождения: получаются 3 эквивалентных дублетных излучательных минимума, в которых спин перпендикулярен оси искажения (x_y и x_z, y_x и y_z, z_x и z_y), и 3 эквивалентных синглетных метастабильных минимума, в которых спин параллелен оси искажения (x_x, y_y, z_z). Метастабильные минимумы расположены ниже излучательных на расстоянии δ, которое в зависимости от центра может принимать значения от 10^{-2} до 10^{-4} эВ.

В [2] было рассчитано влияние внешнего магнитного поля на рассматриваемые состояния без учета туннельных переходов. Расщепление туннельных состояний этих центров в магнитном поле было изучено качественно методами теории групп в [3].

Учет магнитного поля

В экспериментах по изучению люминесценции РЦ в ЩГК обычно используются магнитные поля, не превышающие 20 кГс. Величина расщепления уровней в таких полях составляет

$$h = g\mu_B H = 2\cdot 5{,}79\cdot 10^{-9}\cdot 10^4 \sim 10^{-4}\ \text{эВ}, \qquad (1)$$

где $g=2$ — множитель Ланде, $\mu_B = 5{,}79\cdot 10^{-9}$ эВ·Гс$^{-1}$ — магнетон Бора. $H\sim 10^4$ Гс — напряженность магнитного поля. Как видим, расщепление в таких полях меньше δ, поэтому влияние магнитного поля для большинства центров можно рассматривать в приближении $h/\delta \ll 1$. В этом приближении энергии и волновые функции для минимумов адиабатического потенциала в магнитном поле $\vec{H}\|\vec{z}$ равны следующему:

$$
\begin{aligned}
&E_{x1,y1}=-\delta-h^2/\delta,\\
&E_{x2,y2}=0,\\
&E_{x3,y3}=h^2/\delta,\\
&E_{z1}=-\delta,\\
&E_{z2,z3}=\pm h,\\
&|x_1\rangle=(1+h^2/\delta^2)^{-1/2}\left(x_x+i\frac{h}{\delta}x_y\right),\\
&|x_2\rangle=x_z,\\
&|x_3\rangle=(1+h^2/\delta^2)^{-1/2}\left(i\frac{h}{\delta}x_x+x_y\right),\\
&|z_1\rangle=z_z,\\
&|z_{2,3}\rangle=(z_x\pm iz_y)/\sqrt{2}.
\end{aligned}
\tag{2}
$$

Здесь $\alpha_\beta=|\alpha_-\rangle\,|\theta_\beta\rangle$, α, $\beta=x$, y, z, где $|\alpha_-\rangle=\frac{1}{\sqrt{2}}[|S(1)P_\alpha(2)\rangle-$ $-|S(2)P_\alpha(1)\rangle]$ — орбитали sp-состояния, а $|\Theta_\beta\rangle$ — триплетные спиновые функции. Волновые функции y-минимумов аналогичны волновым функциям x-минимумов. Расщепление в магнитном поле представлено на рис. 1 (вместо $x_2(y_3)$ следует читать $x_2(y_2)$).

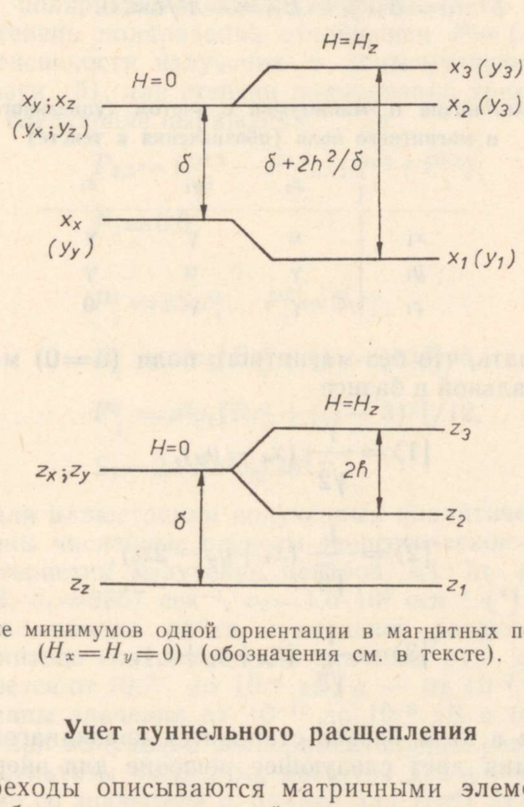

Рис. 1. Расщепление минимумов одной ориентации в магнитных полях $H=0$ и $H_z\neq 0$ ($H_x=H_y=0$) (обозначения см. в тексте).

Учет туннельного расщепления

Туннельные переходы описываются матричными элементами СО-взаимодействия колебательных состояний минимумов различной ориентации (табл. 1). Параметр туннельного расщепления $\gamma=\zeta e^{-f_0}$, где ζ — параметр СО-расщепления ($\zeta\sim 0{,}1$—$0{,}3$ эВ), e^{-f_0} — фактор редукции Хэма

Таблица 1

Матрица туннельного расщепления α_β- и α_α-минимумов

	y_z	z_y	x_z	z_x	x_y	y_x	x_x	y_y	z_z
y_z	0	γ	0	0	0	0	0	0	0
z_y	γ	0	0	0	0	0	0	0	0
x_z	0	0	0	γ	0	0	0	0	0
z_x	0	0	γ	0	0	0	0	0	0
x_y	0	0	0	0	0	γ	0	0	0
y_x	0	0	0	0	γ	0	0	0	0
x_x	0	0	0	0	0	0	0	γ	γ
y_y	0	0	0	0	0	0	γ	0	γ
z_z	0	0	0	0	0	0	γ	γ	0

($e^{-f_0} \sim 10^{-5}$—10^{-10}) [1]. Таким образом, $\gamma \sim 10^{-6}$—$10^{-11} \ll h$ (уравнение (1)), и поэтому, приняв влияние магнитного поля за нулевое приближение задачи, туннельное расщепление можно учитывать уже после магнитного.

Как видно из табл. 1, между α_α- и α_β-минимумами нет туннельных переходов. Поэтому можно учитывать туннельное расщепление α_α-минимумов независимо от туннельного расщепления α_β-минимумов.

1. Для α_α-минимумов, используя (2), с точностью до членов порядка h/δ получаем матрицу гамильтониана размерности 3×3, представленную в табл. 2. Разность энергий x_1, y_1 и z_1 состояний, обозначаемая как α, будет в данном случае параметром, зависимым от магнитного поля

$$\alpha = E_{x1,y1} - E_{z1} = -h^2/\delta < 0. \tag{3}$$

Таблица 2

Матрица гамильтониана α_α-минимумов с учетом туннельного расщепления и магнитного поля (обозначения в тексте)

	x_1	y_1	z_1
x_1	α	γ	γ
y_1	γ	α	γ
z_1	γ	γ	0

Можно показать, что без магнитного поля ($\alpha=0$) матрица (табл. 2) является диагональной в базисе

$$|1\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(x_x - y_y),$$

$$|2\rangle = \frac{1}{\sqrt{6}}(x_x + y_y - 2z_z), \tag{4}$$

$$|3\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}}(x_x + y_y + z_z),$$

а при $\alpha \neq 0$ она в этом базисе становится квазидиагональной. Полная ее диагонализация дает следующее решение для энергий и волновых функций:

$$E_{1,3} = \frac{\alpha+\gamma}{2}\left(1 \pm \sqrt{1 + \frac{8}{(1+\alpha/\gamma)^2}}\right), \quad E_2 = \alpha - \gamma,$$

$$\varphi_1=\sqrt{6}\,a\,[(E_1+\gamma)(|x_1\rangle+|y_1\rangle+|z_1\rangle)/\alpha-|z_1\rangle]/2,$$

$$\varphi_2=(|x_1\rangle-|y_1\rangle)/\sqrt{2}, \qquad (5)$$

$$\varphi_3=\sqrt{3}\,a[(E_3-2\gamma)(|x_1\rangle+|y_1\rangle-2|z_1\rangle)/\alpha+2|z_1\rangle]/2,$$

где

$$a=[1+(3E_3+3\gamma-\alpha)^2/2\alpha^2]^{-1/2}.$$

При определении кинетических характеристик излучения мы должны учесть, что СО-взаимодействие смешивает триплетные и синглетные состояния разной ориентации, поэтому рассматриваемые минимумы возбуждаются и излучают в поляризации, перпендикулярной оси тетрагонального искажения и спину [1]. Например, x_y- и y_x-минимумы возбуждаются и излучают по оси z с вероятностью v_2, а z_z-минимумы — перпендикулярно оси z с вероятностью v_1, причем $v_1 \gg v_2$. Из (5) для всех трех компонент получаются следующие вероятности излучения:

$$1/\tau_1=a^2[c_1^2S+(1-2c_1)^2v_1]/3,$$

$$1/\tau_2=1{,}5Bv_1, \qquad (6)$$

$$1/\tau_3=a^2[c_3^2S+(c_3-3)^2v_1]/6.$$

Здесь $B=(1-\alpha/\delta)^{-1}$, $S=B(v_1+4h^2v_2/\delta^2)$, $c_1=(1{,}5E_1-3\gamma)/\alpha$, $c_3=3(E_3+\gamma)/\alpha$.

Направим поляризацию возбуждающего света по оси z и будем определять степень поляризации отношением $P=(I_z-I_x)/(I_z+I_x)$, где I_z, I_x — интенсивности излучения в соответствующих направлениях. Тогда, используя (5), для степени поляризации трех компонент излучения получаем следующие выражения:

$$P_{1,3}=(P_{\parallel}^{1,3}-P_{\perp}^{1,3})/(P_{\parallel}^{1,3}+P_{\perp}^{1,3}),$$

$$P_2=0{,}6, \qquad (7)$$

где

$$P_{\parallel}^1=2S_1c_1^2,\quad P_{\parallel}^3=S_1c_3^2,$$

$$P_{\perp}^1=a^2v_1[Bc_1^2+(1-2c_1)^2]/6,$$

$$P_{\perp}^3=a^2v_1[Bc_3^2+(c_3-3)^2]/12,$$

$$S_1=2a^2Bh^2v_2/3\delta^2.$$

На ЭВМ для иллюстрации полученных аналитических зависимостей, были проведены численные расчеты энергетического спектра и кинетических характеристик излучения центров KI : In в магнитном поле ($\delta=0{,}0022$ эВ, $v_1=2857$ сек$^{-1}$, $v_2=1{,}6\cdot10^6$ сек$^{-1}$ [4] — в этих центрах была сделана попытка найти туннельное расщепление экспериментально). Магнитное поле пробегало значения от 1 до 20 кГс, h в этом случае изменяется от 10^{-5} до 10^{-4} эВ, α — от 10^{-7} до 10^{-5} эВ. Для γ были опробованы значения от 10^{-11} до 10^{-6} эВ с тем, чтобы уточнить эту величину при получении экспериментальных результатов. На рис. 2 приведены результаты численных расчетов для $\gamma=10^{-6}$ эВ. Это значение γ сравнимо со значением α, однако для $H \lessapprox 1$ кГс нарушается условие нашего приближения $\gamma \ll h$. В связи с этим для $H \lessapprox 1$ кГс кривые были экстраполированы к значениям E, $1/\tau$ и P, получаемым при $\alpha=0$. В программе ЭВМ три компоненты излучения из метастабильных минимумов были усреднены в одну, поскольку предполагалось, что в экспериментах вряд ли удастся их разделить.

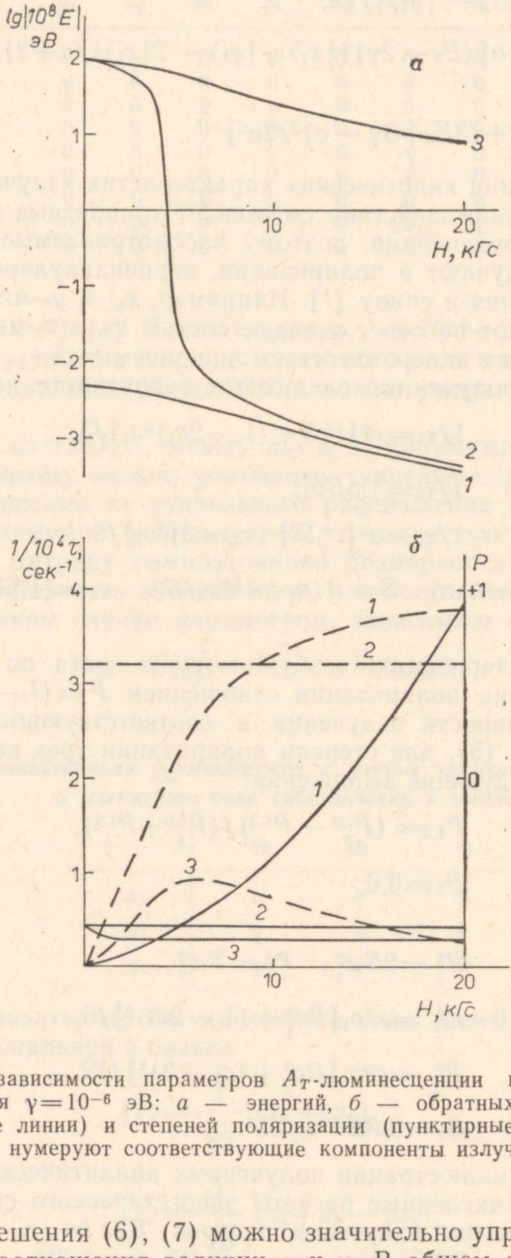

Рис. 2. Расчетные зависимости параметров A_T-люминесценции центров KI : In от магнитного поля для $\gamma = 10^{-6}$ эВ: *а* — энергий, *б* — обратных времен затухания (сплошные линии) и степеней поляризации (пунктирные линии). *1*, *2*, *3* нумеруют соответствующие компоненты излучения.

Полученные решения (6), (7) можно значительно упростить, рассмотрев возможные соотношения величин α и γ. В общем случае в зависимости от величины магнитного поля, от значения α и в силу указанной выше неопределенности γ могут реализоваться 2 предельных случая: $\alpha \ll \gamma$ (слабое по туннельному расщеплению магнитное поле) и $\alpha \gg \gamma$ (сильное по туннельному расщеплению магнитное поле). Для случая $\alpha \ll \gamma$ из (5) получаем следующие энергии и кинетические характеристики:

$$E_1^w = 2(\gamma + \alpha),$$

$$E_{2,3}^w = -\gamma \pm \alpha,$$

$$1/\tau_1^w = 4h^2 v_2/3\delta^2, \qquad P_1^w = \frac{4h^2/\delta^2 - v_1/v_2}{4h^2/\delta^2 + v_1/v_2}$$

$$1/\tau_2^w = 3v_1/2, \qquad P_2^w = 0{,}6, \tag{8}$$

$$1/\tau_3^w = 3v_1/2 + 2h^2 v_2/3\delta^2, \qquad P_3^w = \frac{h^2/\delta^2 - 9v_1/8v_2}{h^2/\delta^2 + 9v_1/8v_2},$$

а для $\alpha \gg \gamma$ эти же величины следующие:

$$E_{1,2}^s = \alpha \pm \gamma,$$

$$E_3^s = 0,$$

$$1/\tau_1^s = v_1/2 + 2h^2 v_2/\delta^2, \qquad P_1^s = \frac{h^2/\delta^2 - v_1/8v_2}{h^2/\delta^2 + v_1/8v_2}, \tag{9}$$

$$1/\tau_2^s = 3v_1/2, \qquad P_2^s = 0{,}6,$$

$$1/\tau_3^s = v_1, \qquad P_3^s = -1.$$

Расщепление α_α-минимумов в предельных случаях изображено на рис. 3. Сравнивая представленные на этом рисунке спектры энергии с точными решениями, полученными на ЭВМ для центров KI : In (рис. 2, *а*), мы видим, что в зависимости от соотношения α и γ, картина расщепления изменяется (от рис. 3, *б* к рис. 3, *в*). Зависимости же $1/\tau$ (H) и P (H) (рис. 2, *б*) в предельных случаях описываются уравнениями (8), (9).

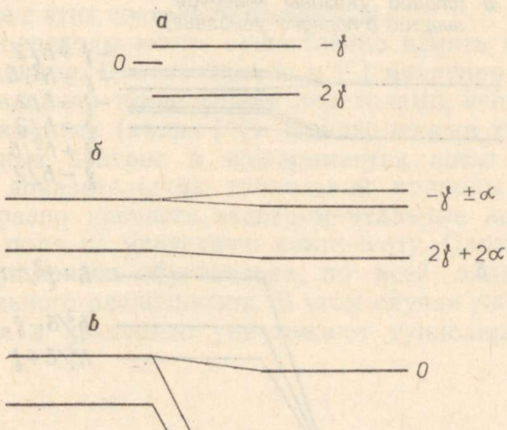

Рис. 3. Туннельное расщепление α_α-минимумов: *а* — без магнитного, *б* — в слабом магнитном поле ($\alpha \ll \gamma$), *в* — в сильном магнитном поле ($\alpha \gg \gamma$), ($\alpha < 0$, $\gamma < 0$).

Таблица 3

Матрица гамильтониана α_β-минимумов с учетом туннельного расщепления и магнитного поля

	x_2	y_2	z_2	z_3	x_3	y_3
x_2	0	0	$\gamma\sqrt{2}$	$\gamma\sqrt{2}$	0	0
y_2	0	0	$i\gamma/\sqrt{2}$	$-i\gamma/\sqrt{2}$	0	0
z_2	$\gamma/\sqrt{2}$	$-i\gamma\sqrt{2}$	h	0	0	0
z_3	$\gamma/\sqrt{2}$	$i\gamma/\sqrt{2}$	0	$-h$	0	0
x_3	0	0	0	0	h^2/δ	γ
y_3	0	0	0	0	γ	h^2/δ

2. Для α_β-минимумов, выбрав соответствующий базис электронных состояний и учитывая уравнения (2), получаем матрицу гамильтониана, представленную в табл. 3. Секулярное уравнение дает следующие значения энергии:

$$E_{1,2,3,4}=\pm\sqrt{\frac{h^2+2\gamma^2}{2}\pm\sqrt{\frac{h^4}{4}+h^2\gamma^2}},$$

$$E_{5,6}=h^2/\delta\pm\gamma. \tag{10}$$

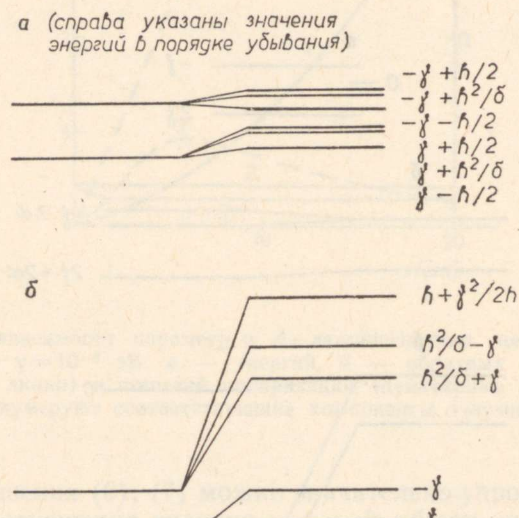

Рис. 4. Расщепление α_β-минимумов в магнитном поле с учетом туннельных переходов: *а* — при $h\ll\gamma$, *б* — при $h\gg\gamma$, $(h^2/\delta=h(h/\delta)<h,\ \gamma<0)$.

Аналогично α_α-минимумам рассмотрим 2 предельных случая $h \ll \gamma$ и $h \gg \gamma$. Используя (10), в случае $h \ll \gamma$ получаем следующие значения энергий:

$$E^w_{1,2,3,4} = \pm\gamma \pm h/2,$$

$$E^w_{5,6} = \pm\gamma + h^2/\delta,$$

а в случае $h \gg \gamma$

$$E^s_{1,2} = \pm(h + \gamma^2/2h),$$

$$E^s_{3,4} = \pm\gamma,$$

$$E^s_{5,6} = h^2/\delta \pm \gamma.$$

Расщепление α_β-минимумов в предельных случаях приведено на рис. 4.

Влияние магнитного поля на кинетику люминесценции рассматриваемых центров в экспериментах исследуется при температурах около 1 К. В таких условиях излучают только метастабильные α_α-минимумы. В связи с этим определение характеристик излучения α_β-минимумов пока интереса не представляет, и мы ограничимся для них рассмотрением энергетического спектра.

Заключение

Исследование влияния магнитного поля на A_T-излучение из нижайших туннельных состояний РЦ в ЩГК показало, что магнитное поле снимает вырождение с этих состояний полностью.

Туннельные переходы могут существенно влиять на кинетику затухания люминесценции. Предсказанная в [1] медленно затухающая компонента, обусловленная туннельными переходами, неоднократно наблюдалась в экспериментах (напр., [4]). Однако поиски туннельных состояний рассмотренных центров в экспериментах носят предварительный характер. Для доказательства туннельной природы наблюдавшегося факта целесообразно провести экспериментальные исследования влияния магнитного поля на указанную компоненту. Сложность проведения подобных экспериментов обусловлена, по всей видимости, малостью величины туннельного расщепления. В этом случае уже небольшие неоднородности поля в кристалле уничтожают туннелирование.

ЛИТЕРАТУРА

1. *Хижняков В. В.* Препринт, FI-36, Тарту, 1975.
2. *Hizhnyakov, V., Kalder, K., Mihkelsoo, V., Niedrais, H.* Phys. status solidi (b), **101**, 431 (1980).
3. *Брагина Л.* Расщепление туннельных состояний примесного иона в магнитном поле. Мат. студ. науч. конф., Тарту, 1977.
4. *Bragina, L., Hizhnyakov, V., Liidya, G., Nagirnyi, V., Soovik, T., Zazubovich, S., Janson, N.* Phys. status solidi (b), **120**, 463 (1983).

Институт физики
Академии наук Эстонской ССР

Поступила в редакцию
19/XII 1984

L. BRAGINA

ELAVHÕBEDASARNASTE LISANDITSENTRITE TUNNELSEISUNDID MAGNETVÄLJAS

On uuritud magnetvälja mõju elavhõbedasarnaste lisandioonide tunnelseisunditele tugeva Jahn-Telleri efektiga leelishalogeniidkristallides. On vaadeldud nimetatud tsentrite A_T-luminestsentsi kineetilisi ja polarisatsioonilisi karakteristikuid. Et illustreerida saadud tulemusi, on arvutused KI : In tsentrite jaoks tehtud elektronarvutil.

L. BRAGINA

TUNNEL STATES OF THE MERCURY-LIKE IMPURITY CENTRES IN A MAGNETIC FIELD

The effect of a magnetic field on the tunnel states of the mercury-like impurity centres in alkali halide crystals with strong Jahn-Teller effect was investigated. Decay kinetics and polarization of A_T-luminescence are considered for these centres. To illustrate the results, a calculation was carried out on the electronic computer for KI : In centres.