

一维反铁磁体二水 CsMnCl_3 中激子的 振动猝灭和黄昆-Rhys 因子

贾 惟 义

(中国科学院物理研究所)

严懋勋 (W. M. Yen)

(Physics Department, University of Wisconsin-Madison, U. S. A.)

1982 年 2 月 26 日收到

提 要

在一维反铁磁体 $\text{CsMnCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 中,用 D_2O 代替其中的结晶水之后,对于 ${}^4T_1 \rightarrow {}^6A_1$ 激子跃迁,观察到三种明显的效应:激子线红移 18cm^{-1} ;激子讯号增强近一个数量级;激子寿命由 0.58ms 变为 9.2ms ,增加 15 倍.这后一种效应在文献中尚未见报道,它说明这种同位素替代使振动猝灭受到很大的减弱.利用多声子辐射和无辐射跃迁理论,讨论了实验结果.分析表明,同位素替代改变了晶格振动的频谱,对无辐射跃迁产生很大的影响.电声子耦合强度没有明显的变化,黄昆-Rhys 因子基本保持常数.卷入多声子辐射跃迁的声子模和卷入无辐射跃迁的声子模是不相同的,其能量有相当大的差别:前一种声子模与 H_2O 振动没有很大关系;而后一种声子模却与 H_2O 振动紧密相关.

一、引 言

近十几年来,浓的磁性离子系统的光学性质引起许多固体物理学家的兴趣.在这类系统中,由于磁性离子间的超交换作用,在某一转变温度以下,形成某种磁有序.磁性离子之间的强的相互作用,使得离子的激发态不再是孤立的,而带有某种集体的性质,形成所谓 Frenkel 激子态.除此之外,磁性离子,特别是 $3d$ 过渡元素,与晶格场之间存在着强的相互作用,电声子耦合较强.因此,浓的磁性离子系统是研究激子、磁振子和声子等元激发之间相互作用的最好的对象.

本文讨论的 $\text{CsMnCl}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ (CMC $\cdot 2\text{H}_2\text{O}$) 晶体是一种准一维的反铁磁体^[1]. 由于晶体结构上的特点,在它内部存在着 $\text{Mn}-\text{Cl}-\text{Mn}$ 强交换作用链,而链间的交换作用却十分微弱,只有强交换链的几百分之一. Neél 温度为 4.89K . 低于 Neél 温度,系统是三维有序的,但可以近似地认为是一维的反铁磁体.

在先前的文献中^[2],曾报道了 CMC $\cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 中 Mn^{2+} 离子 ${}^4T_1 \rightarrow {}^6A_1$ 激子跃迁,这一跃迁是自旋禁戒的,跃迁几率很低,激子讯号很弱.按照通常的概念,这种禁戒跃迁的寿命应该相当长.实验结果有点出乎意料,与一般锰化合物相比(寿命一般为 $1-10\text{ms}$),CMC $\cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 的寿命比较短,在 1.6K 约为 0.58ms . 在一维反铁磁体中,由于维度的关系

和自旋势垒的存在, 激发态是相当局域化的, 低温下, 激发态的能量转移速度很慢, 样品中混入的微量杂质不会产生明显的影响, 较短的激子寿命和弱的强度不会是来自杂质的影响. 事实上, 使用 99.0% 纯度的原材料生长的晶体和使用 99.999% 纯度的原材料, 激子的强度和寿命没有可观测到的影响. 一个猜测性的因素是, 晶体中含有结晶水 H_2O , 水分子的振动(转动)将产生强烈的振动猝灭或多声子跃迁, 导致激子讯号的减弱和寿命的缩短.

在 $\text{CMC} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 中, Mn^{2+} 离子处于由 4 个 Cl^- 和 2 个 O^{2-} 组成的八面体中, O^{2-} 离子是承担磁性链之间微弱的超交换作用的中界体. 每个氧原子同时又联接着两个氢原子. 在光跃迁中, 参与多声子过程的是光学声子. 由于氢原子质量小, 可以预计, 由 H_2O 分子振动引起的多声子过程将起着最重要的作用. 采用同位素替代, 用 D_2O 代替 H_2O , 将会观测到光跃迁过程的变化.

二、实验方法与结果

$\text{CsMnCl}_3 \cdot 2\text{D}_2\text{O}$ ($\text{CMC} \cdot 2\text{D}_2\text{O}$) 单晶是自 100% 的重水中生长的. 原材料的纯度为 99.999% CsCl , 99.99% $\text{MnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$. 后者未经脱水, 由此造成的结晶重水的不纯度估计小于 1%. 脱水过程将引起少量 MnCl_2 分解进而氧化, 影响晶体质量. 晶体生长条件类似于文献 [2] 所述.

实验中使用氩激光器的 5145 Å 线, 泵浦 Mn^{2+} 离子的 ${}^4\text{T}_1$ 声子边带(吸收谱). 使用 RCA31034A 光电倍增管和微微安电流放大器检测荧光讯号. 这种光电倍增管在 2500—8500 Å 之间具有相当平坦的光谱响应. 在寿命测量中, 使用 N_2 分子激光器泵浦的染料

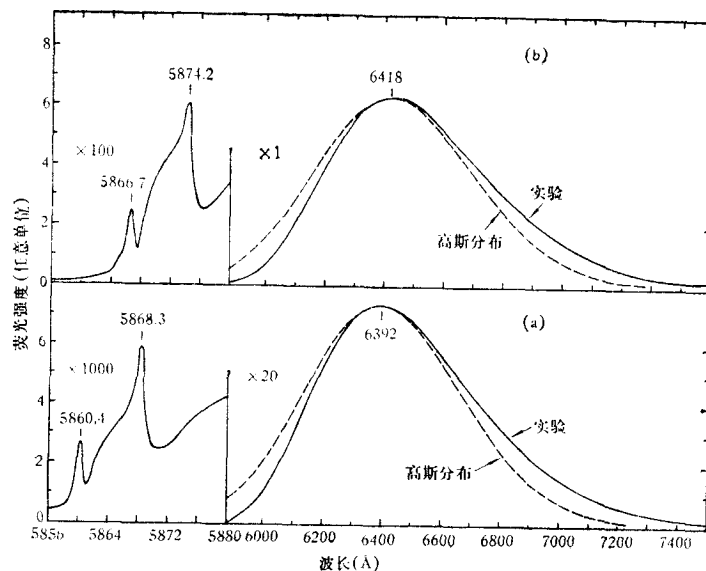


图 1 $\text{CMC} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ (a) 和 $\text{CMC} \cdot 2\text{D}_2\text{O}$ (b) 中激子谱及其磁子边带与声子边带 (π -Polarization, $T = 1.6\text{K}$)

激光器,用光子计数器测量荧光衰减讯号. 测量时样品浸没在超流氦中 (1.6 K).

CMC · 2H₂O 和 CMC · 2D₂O 的激子线(即零声子线)及其声子边带分别示于图 1(a) 和 (b). 图 2 是两种晶体中激子跃迁的荧光衰减曲线. 由这些图可以看出三个主要结果: (1) 由于同位素替代,激子线发生位移,由 CMC · 2H₂O 的 17063.6cm⁻¹,移动到 CMC · 2D₂O 的 17045.6cm⁻¹,红移 18cm⁻¹. 声子边带分别处于 15645cm⁻¹ 和 15580cm⁻¹,约红移 65cm⁻¹. (2) 激子讯号约增强 8 倍. (3) 激子的寿命有相当大的延长. 对 CMC · 2H₂O, $\tau_H = 0.58\text{ms}$,而对 CMC · 2D₂O, $\tau_D = 9.2\text{ms}$,增长了 15 倍. 两种晶体的激子衰变曲线都是典型的指数式的,说明杂质猝灭的影响可以忽略,激发态是局域化的.

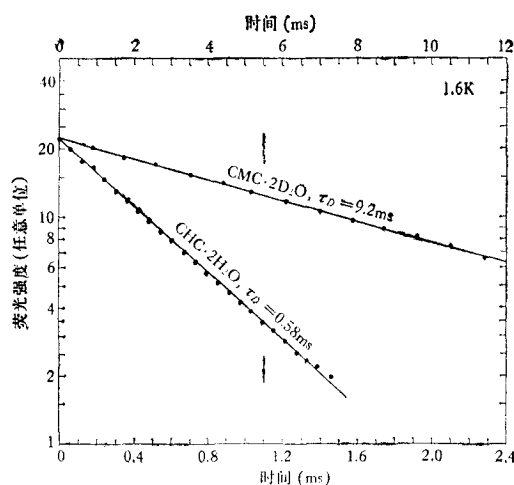


图 2 CMC · 2H₂O 及 CMC · 2D₂O 中激子的指数衰减过程

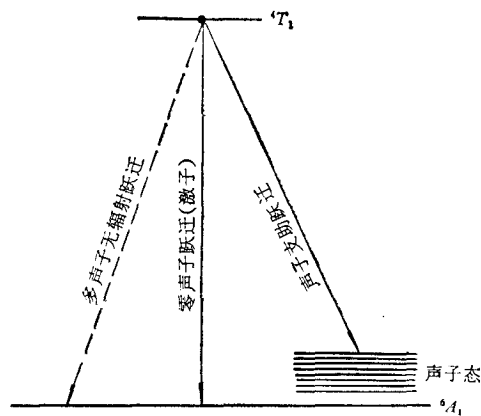


图 3 处于激发态的离子,通过三种过程回到基态

三、讨 论

1. 黄昆-Rhys 因子

在色心和杂质中心的光谱理论中,曾广泛研究了晶格振动对光吸收和光发射的影响^[3-5]. 黄昆和 Rhys 最早提出了多声子跃迁的量子理论^[3]. 最近黄昆又对多声子辐射和无辐射跃迁理论做了进一步的阐明和发展^[6,7]. 由于光激活中心处于基态和激发态时,原子的平衡位置不同,因此,伴随着电子的跃迁,将会发生晶格弛豫,或称位移反冲. 在晶格弛豫过程中,将会有声子的发射或吸收. 晶格振动引起零声子线发生位移和加宽,出现零声子线的多声子边带(声子支助的电子跃迁),以及引起多声子无辐射跃迁,使激发态能量以一定的几率无辐射地转变为多个声子,使离子回到基态(图 3).

上述影响的大小,取决于电声子耦合强度,耦合声子的频谱和态密度,以及电子能隙的大小. 耦合声子可以是单一频率的振动模,也可能是连续谱振动模或束缚于光激活中心周围的局域模. 对于连续谱声子,电子发射跃迁的多声子光谱分布为^[7]

$$F(E = \omega_{ji} - \hbar\bar{\omega}) = |M_{ji}|^2 e^{-S} \left\{ \delta(\bar{\omega}) + \sigma_1(\bar{\omega}) + \frac{1}{2} \sigma_2(\bar{\omega}) + \cdots + \frac{1}{n!} \sigma_n(\bar{\omega}) + \cdots \right\}. \quad (1)$$

这里 M_{ji} 是在态 j 和 i 之间电偶极子跃迁矩阵元, 采用康登近似后, 它与原子坐标无关. W_{ji} 为无声子参加时电子跃迁的能量,

$$\begin{aligned} W_{ji} &= W_{ji}^0 - \frac{1}{N} \int \frac{1}{2} \omega_s^2 (\Delta_{js}^2 - \Delta_{is}^2) d\omega_s \\ &= W_{ji}^0 - \Delta W_{ji}. \end{aligned} \quad (2)$$

W_{ji}^0 是不考虑晶格弛豫时电子跃迁能, ΔW_{ji} 是考虑晶格弛豫时的形变能. ω_s 是 s 模声子频率. Δ_{is} 和 Δ_{js} 是由于 s 模声子使处于 i 和 j 态的离子发生的位移. 在 (1) 式中, $\bar{\omega}$ 是以零声子线为参考点的频移. $\delta(\bar{\omega})$ 代表零声子线. $\sigma_1(\bar{\omega})$ 是单声子跃迁的贡献,

$$\sigma_1(\bar{\omega}) = \left\{ \Delta_{jis}^2 \left(\frac{\omega_s}{2\hbar} \right) [1 - \exp(-\hbar\omega_s/kT)]^{-1} \rho(\omega_s) \right\}_{\omega_s=\bar{\omega}}, \quad (3)$$

$\sigma_2(\bar{\omega}) \cdots \sigma_n(\bar{\omega})$ 则分别是双声子及 n 阶声子跃迁的贡献. n 阶声子跃迁的贡献是 $(n-1)$ 阶声子跃迁的卷积,

$$\sigma_n(\bar{\omega}) = \int \sigma_1(\bar{\omega} - \omega_s) \sigma_{n-1}(\omega_s) d\omega_s. \quad (4)$$

$\rho(\omega_s)$ 是声子的态密度函数. $\Delta_{jis} = \Delta_{js} - \Delta_{is}$, 是晶格弛豫参数. (1) 式中的 S 称为黄昆-Rhys 因子, 其大小反映了电声子耦合强度,

$$\begin{aligned} S(T) &= \int \Delta_{jis}^2 \left(\frac{\omega_s}{2\hbar} \right) \coth \frac{1}{2} \left(\frac{\hbar\omega_s}{kT} \right) \rho(\omega_s) d\omega_s \\ &= \int \Delta_{jis}^2 \left(\frac{\omega_s}{2\hbar} \right) (2\bar{n}_s + 1) \rho(\omega_s) d\omega_s, \end{aligned} \quad (5)$$

$\bar{n}_s$ 是处于 ω_s 模的热平均声子数. 对于零声子线, $\bar{\omega} = 0$, $\delta(\bar{\omega}) = 1$; $\sigma_1(\bar{\omega}) = \sigma_2(\bar{\omega}) = \cdots = \sigma_n(\bar{\omega}) = 0$, 电子跃迁强度

$$\begin{aligned} F(W_{ji}) &= |M_{ji}|^2 e^{-S} \\ &= F_0 e^{-S}. \end{aligned} \quad (6)$$

F_0 是包括零声子线和多声子边带在内的电子跃迁的总积分强度. 可以证明, (1) 式在 $\bar{\omega} = 0, \infty$ 之间的积分将等于 F_0 . 由 (6) 式可以得到黄昆-Rhys 因子

$$S = \ln F_0 / F. \quad (7)$$

实验上, 测量出电子跃迁的总积分强度 F_0 和零声子线的积分强度 F , 由 (7) 式可求出 S 因子.

杂质光谱的多声子跃迁理论, 曾经成功地用来分析反铁磁系统 MnF_2 ^[8] 和 RbMnF_3 ^[9] 的 ${}^4T_{1g}$ 吸收边带的多声子过程. 在这些系统中, 分析表明, 多声子边带是由单声子一直到 5 声子跃迁叠加而成的. 在使用多声子跃迁理论到浓的磁性离子系统时, 需要假定, 激发态是相对局域化的, 陷阱的影响可以忽略. 对于一维反铁磁体 CMC, 这些假定是满足的. 在这里, 零声子线是由激子线和单磁子边带组成 (图 1). 忽略多磁子边带的贡献^[10], 忽略磁子-声子相互作用, 由图 1(a) 和 (b), 可求出激子线和磁子线的积分强度 (近似地

等于谱线下面的面积. 下同), 以及总的跃迁积分强度, 从而得到黄昆-Rhys 因子. 对于 $\text{CMC} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$

$$S = \ln F_{\text{O,H}}/F_{\text{H}} = 9.5,$$

对于 $\text{CMC} \cdot 2\text{D}_2\text{O}$

$$S = \ln F_{\text{O,D}}/F_{\text{D}} = 9.7.$$

因此, 黄昆-Rhys 因子基本保持不变. 这意味着同位素替代不影响电声子耦合强度.

2. 多声子边带线型和半宽

在强耦合近似下, 多声子跃迁谱形函数 (1) 式可以近似地表示为^[7]

$$F(E) = \frac{|M_{ji}|^2}{[2\pi S(T)(\hbar\omega_s)_T]^{\frac{1}{2}}} e^{-\frac{(E-\bar{E})^2}{2S(T)(\hbar\omega_s)_T^2}}. \quad (8)$$

由此可见, 多声子边带具有高斯对称分布形状. 谱的中心(最大值)处在

$$E = \bar{E} = W_{ji} - S(\hbar\omega_s)_T. \quad (9)$$

在峰值一半处的谱宽度为

$$N = 2\sqrt{2\ln 2 \cdot S(T) \cdot \hbar\omega_s^2}. \quad (10)$$

由图 1 看出, 声子边带是不对称的, 与高斯分布有相当大的偏差. 低频边拖出一个缓慢变化的尾巴. 这可能是电声子耦合的非线性项引起的, 而不是来自陷阱的跃迁, 因为一维磁系统的陷落几率很低. 为证明这点, 测量了室温下的多声子边带, 不管是 $\text{CMC} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 还是 $\text{CMC} \cdot 2\text{D}_2\text{O}$, 和 1.6K 结果相比, 声子边带中心都发生蓝移, 约 420cm^{-1} . 这种蓝移是晶场参数的温度变化引起的. 对于陷落几率较大的三维反铁磁体, 如 MnF_2 , 温度升高时, 来自陷阱的跃迁几率如此之强, 以致于掩盖了晶场参数改变引起的蓝移, 而给出明显的红移.

如果近似地把声子边带看成是高斯分布的, 利用 (9) 式可以计算出平均声子能量. 对于 $\text{CMC} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$

$$(\hbar\omega_s)_T \approx 149\text{cm}^{-1};$$

对于 $\text{CMC} \cdot 2\text{D}_2\text{O}$

$$(\hbar\omega_s)_T \approx 150\text{cm}^{-1}.$$

由此可见, 在 $\text{CMC} \cdot 2\text{D}_2\text{O}$ 中, 卷入多声子辐射跃迁的平均声子能量与 $\text{CMC} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 中的平均声子能量大致相等. 这个结果有点使人困惑不解. 因为同位素质量增加时, 与它相关的光声子的频率应降低. 两者的平均声子能量相等, 似乎意味着卷入多声子辐射跃迁过程的声子模不属于直接与 H_2O 分子振动相关的模.

按照 (10) 式, 假定 $\hbar\omega_s \sim (\hbar\omega_s^2)^{\frac{1}{2}}$, 可以计算出多声子边带宽度. 对于 $\text{CMC} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, $N_{\text{H}} = 1080\text{cm}^{-1}$, 对于 $\text{CMC} \cdot 2\text{D}_2\text{O}$, $N_{\text{D}} = 1100\text{cm}^{-1}$. 两者的实验值分别为 1500cm^{-1} 和 1520cm^{-1} . 实验值与计算值的差别, 反映了实验曲线与高斯分布的偏离.

3. 零声子线位移

同位素替代引起零声子线移动, 早就被观测到. Imbusch 和严懋勋等人^[11]在红宝石和 MgO:Cr³⁺ 中发现不同的 Cr³⁺ 同位素其零声子线位置不同. 质量数每增加 1, 零声子线向蓝光方向移动 0.13 cm⁻¹. 在这里基质原子质量不改变, 改变的仅是 Cr³⁺ 离子. Hughes 在 Li⁶F 和 Li⁷F 的色心光谱中, 由 Li⁶ 到 Li⁷, 发现色心的零声子线也发生蓝移^[12]. 例如, 对 4874 Å 线, 蓝移 6.8 cm⁻¹. CMC 情况类似于 LiF, 同位素替代发生在基质原子, 影响到整个基质晶格的声子谱. 不过光激活离子 Mn²⁺ 本身是保持不变的. 当用 D₂O 代替 H₂O, 质量数增加时, 引起 18 cm⁻¹ 的红移.

同位素替代所引起的线移可分为两部分^[10,11]. 一是静态线移, 它是由于零点振动能的改变引起晶格常数发生微小变化, 从而导致线移, 这种线移与温度无关; 二是动态线移, 它是由晶格热振动的变化引起的, 不同同位素使卷入电子跃迁的声子能量不同, 并引起热膨胀率的改变, 由此引起的零声子线移动是与温度相关的. 在 CMC · 2H₂O 中, 用质量数大的同位素 D 进行替代后, 有关振动模的零点振动能趋向减小, 晶格将收缩, 晶场强度将增加. 根据 Mn²⁺ 的 ⁴T₁ 能级的特性, 这将导致零声子线发生红移. 如果声子能量的减小会使得热膨胀减小, 那末 CMC 中的动态线移也可能向着红光方向, 结果在 CMC 中, 将会观察到较大的红移. 这与实验结果是一致的.

4. 多声子无辐射跃迁

电子由激发态跃迁到基态时辐射出的能量可以完全由多声子发射而得到补偿, 结果产生多声子无辐射跃迁. 在高温强耦合近似下, 无辐射跃迁几率可写为^[7]

$$P = \frac{1}{\hbar} \left(\frac{\pi k T}{S \hbar \omega_s} \right)^{\frac{1}{2}} \left(\sum_l \left(\frac{1}{\omega_l^2} \langle i | u_l | j \rangle^2 \right) \right) e^{-\frac{(\omega_{ji} - S \hbar \omega_s)^2}{4 k T S \hbar \omega_s}}, \quad (11)$$

u_e 为电声子耦合算符, 求和对所有声子模进行. $\langle i | u_l | j \rangle^2$ 的物理意义是, 由于电声子耦合, 基态和激发态的混合程度. 由 (11) 式看出, 无辐射多声子跃迁是一个热激活过程, 激活能为

$$\Delta E = \frac{(\omega_{ji} - S \hbar \omega_s)^2}{4 S \hbar \omega_s}. \quad (12)$$

实际的实验情况稍复杂一些, 属于低温、强耦合情形. 这里, 我们将无辐射跃迁强度写成下面更一般的形式:

$$P = G(S, \hbar \omega_s, k T) e^{-\frac{(\omega_{ji} - S \hbar \omega_s)^2}{2 S (T) (\hbar \omega_s)^2}}, \quad (13)$$

G 为温度、电声耦合因子和声子能量的缓变函数. 无辐射跃迁几率和卷入的声子的能量、声子的阶数以及能隙的大小有关. 能隙越小, 声子的能量越大, 声子的阶数越小, 跃迁几率越大. 对于 CMC · 2H₂O, 激子跃迁的能量 $W_{ji} = 17064 \text{ cm}^{-1}$, 如用多声子过程中

的平均声子能量 149cm^{-1} , 将需要 114 阶声子参加. 这样多声子参加跃迁的几率是极小的. 因此, 我们不得不做出假定, 在电子跃迁过程中, 卷入多声子跃迁的声子能量和卷入无辐射跃迁过程的声子能量是不相同的, 相应的电声子耦合常数 S 也可能有所不同. 这里或许存在着某种选择定则, 使得某些声子模参与多声子辐射跃迁, 而另一些能量更高的声子参与无辐射跃迁.

远红外光谱测量表明, CMC 晶体中 OH 基和 OD 基的振动频率约分别等于 3400cm^{-1} 和 2500cm^{-1} . 假若正是这些基的振动卷入多声子无辐射跃迁, 换句话说, 无辐射跃迁过程中平均声子能量分别取上述值, 那末对于 $\text{CMC} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, 声子的阶数为 5, 而对于 $\text{CMC} \cdot 2\text{D}_2\text{O}$, 声子的阶数为 7. 由此可见, $\text{CMC} \cdot 2\text{D}_2\text{O}$ 中的无辐射跃迁强度要弱很多.

在无辐射跃迁过程中, 声子模的电声子耦合强度与多声子辐射过程是不相同的. 这里, 假定同位素替代对黄昆-Rhys 因子不产生明显的影响, 并且激子的寿命主要决定于无辐射跃迁速率, 那末, 我们可根据 $\text{CMC} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 和 $\text{CMC} \cdot 2\text{D}_2\text{O}$ 的激子寿命数据, 利用 (13) 式来估算相应的 S 因子

$$\frac{P_H}{P_D} = \frac{\tau_D}{\tau_H} = \frac{G_H}{G_D} \exp \left\{ \left[\frac{(\bar{\omega}_{ji} - S\bar{\hbar}\omega_s)^2}{2S(\bar{\hbar}\omega_s)^2} \right]_D - \left[\frac{(\bar{\omega}_{ji} - S\bar{\hbar}\omega_s)^2}{2S(\bar{\hbar}\omega_s)^2} \right]_H \right\}. \quad (14)$$

取 $\tau_D = 9.2\text{ms}$, $\tau_H = 0.58\text{ms}$, $G_H/G_D \sim 1$, $(W_{ji})_H = 17064\text{cm}^{-1}$, $(W_{ji})_D = 17046\text{cm}^{-1}$, $(\bar{\hbar}\omega_s)_H = \sqrt{(\hbar\omega_s)_H^2} = 3400\text{cm}^{-1}$, $(\bar{\hbar}\omega_s)_D = \sqrt{(\hbar\omega_s)_D^2} = 2500\text{cm}^{-1}$, 则得到

$$S = 2.3.$$

这意味着, 对于高频声子, 电声子耦合相对弱一些.

这里我们不必去注意这些具体的数字, 因为我们曾做过许多近似假设. 应该强调的是, 由 OH 或 OD 基振动或直接受它们影响的高频声子, 在无辐射跃迁中起着关键作用, 这是确定无疑的.

四、结 语

在 CMC 中, 通过同位素替代, 减弱了 H_2O 分子振动引起的激发态的猝灭, Mn^{2+} 离子的 ${}^6T_1 \rightarrow {}^6A_1$ 激子跃迁发生了红移, 激子讯号增强, 激子的寿命增加 15 倍. 利用多声子辐射和无辐射理论, 讨论了实验结果. 分析表明, 同位素替代改变了晶格的声子谱, 导致了零声子线位移, 对无辐射过程影响很大. 电声子耦合强度没有明显的变化, 黄昆-Rhys 因子近似地保持为常数. 参与多声子辐射和无辐射跃迁过程的声子模是不相同的, 前者与 H_2O 分子振动没有什么关系, 而后者与 H_2O 分子振动紧密相关, 两者在能量上有很大的差别. 这些结果表明, 同位素替代可能是研究多声子无辐射跃迁过程的有用的技术.

这里的分析是定性的, 特别是关于无辐射跃迁过程的讨论相当粗略, 虽然这是一个十分有趣的问题. 为进一步弄清同位素替代对无辐射跃迁过程的影响, 进一步的实验和理论工作是很需要的. 我们正在测量 $\text{CMC} \cdot \text{D}_2\text{O}$ 和 $\text{CMC} \cdot \text{H}_2\text{O}$ 的低温红外光谱及 Raman 散射谱, 试图确定出究竟哪一支振动模卷入了多声子无辐射跃迁.

黄昆教授对本工作提供了一些宝贵的意见, 做了一些有益的分析 and 讨论; R. Macfarlane 教授和 E. Strauss 博士对本工作提出了很好的建议, 在此, 我们表示十分感谢。

参 考 文 献

- [1] J. Skalyo, Jr., G. Shirane, S. A. Friedberg and H. Kobayashi, *Phys. Rev. B*, **2**(1970), 4632.
- [2] W. Jia, E. Strauss and W. M. Yen, *Phys. Rev. B*, **23**(1981), 6075.
- [3] K. Huang and A. Rhys, *Proc. Roy. Soc.*, **A204**(1950), 406.
- [4] D. B. Fitchen, in "Physics of color centers", Ed. by W. B. Fowler, p. 293, Academic Press, New York, (1968).
- [5] A. A. Maradudin, *Solid State. Phys.*, **18**(1966), 273.
- [6] 黄昆, 中国科学, (10) (1980), 949.
- [7] 黄昆, 物理学进展, **1** (1981), 31.
- [8] V. Röder, W. Von der Osten and W. Gebhardt. *Solid State Comm.*, **9**(1971), 733.
- [9] R. Heumüller, W. Gebhardt and W. Von der Osten. *Phys. Stat. Sol. (b)*, **70**(1975), 107.
- [10] W. Jia and W. M. Yen, Submitted to *Phys. Rev. B*.
- [11] G. F. Imbusch, W. M. Yen, A. L. Schaulow, G. E. Devlin and J. P. Remeika, *Phys. Rev.*, **136** (1964), A481.
- [12] A. E. Huphes, *Proc. Phys. Soc. London*, **88**(1966), 449.

THE VIBRATION-QUENCHING OF THE EXCITON AND THE HUANG-RHYS FACTOR IN THE QUASI ONE- DIMENSIONAL ANTIFERROMAGNET CMC

JIA WEI-YI

(Institute of Physics, Academia Sinica)

W. M. YEN

(Department of Physics, University of Wisconsin-Madison, USA)

ABSTRACT

The exciton transition ${}^4T_1 \rightarrow {}^6A_1$ of M_n^{2+} ions in quasi one-dimensional antiferromagnet $CsMnCl_3 \cdot 2H_2O$ is very weak in intensity with a shorter lifetime due to the vibration-quenching. Replacing H_2O by D_2O , three important effects have been observed: the exciton line is shifted to the red by 18 cm^{-1} , the intensity of the exciton is increased by almost one order, the lifetime is lengthened from 0.58 ns to 9.2 ns. These facts show that the vibration-quenching has been weakened. The experimental results are analysed by means of the theory of multi-phonon radiative and non-radiative transitions. It has been shown that the isotope substitution changes the spectrum of lattice vibration, and brings forth a great influence on the non-radiative transition. The electron-phonon coupling intensity does not show any obvious change, and the Huang-Rhys factor remains constant. The phonon modes involved in the multi-phonon radiative transition are different from those involved in the multi-phonon nonradiative process, their average energies are quite different from each other.