EESTI NSV TEADUSTE AKADEEMIA TOIMETISED. 25. KÕIDE
FÜÜSIKA * MATEMAATIKA. 1976, NR. 4

ИЗВЕСТИЯ АКАДЕМИИ НАУК ЭСТОНСКОЙ ССР. ТОМ 25
ФИЗИКА * МАТЕМАТИКА. 1976, № 4

УДК 539.21

Ф. СОКОЛОВ

ФУНКЦИЯ ПАМЯТИ ЭКСИТОНОВ ФРЕНКЕЛЯ

F. SOKOLOV. FRENKELI EKSITONIDE MÄLUFUNKTSIOON

F. SOKOLOV. MEMORY FUNCTION OF FRENKEL EXCITONS

Формализм обобщенного кинетического уравнения (ОКУ) является общим подходом к различным проблемам неравновесной статистической физики. В. Кенкре и Р. Нокс [1] предложили использовать ОКУ в теории переноса возбуждений в кристалле и рассмотрели процедуру нахождения функции памяти (ФП) для процесса миграции экситонов. В частности, было получено выражение для ФП через оптические спектры [1] и проведены расчеты ФП в рамках конкретной модели экситон-фононного взаимодействия [2]. В [3] были уточнены результаты [2] и получено затухание когерентной части ФП. В отмеченных работах при нахождении ФП в той или иной форме использовалась теория возмущений. Однако для более полного исследования свойств памяти в электронной системе представляет интерес нахождение ФП в рамках таких моделей, которые позволяют сделать это точно.

В данной работе получено точное выражение для ФП в модели, рассмотренной Р. Меррифилдом [4] в связи с изучением эволюции электронного возбуждения в кристалле. В этой модели предполагается ортогональность узельных волновых функций и используется приближение взаимодействия ближайших соседей; не учитывается влияние колебаний решетки на процесс распространения возбуждения. Здесь, кроме того, мы ограничимся рассмотрением случая линейной цепочки молекул.

Если в начальный момент времени ($t=0$) матрица плотности диагональна в представлении узельных функций $|n>$ ($|n>$ — состояние с возбуждением на n-м узле), то вероятность нахождения возбуждения в момент времени t на n-м узле $P_n(t)$ удовлетворяет следующему ОКУ [1]:

$$\frac{\partial P_n(t)}{\partial t} = \int\limits_0^t d\tau \sum_m W_{nm}(t-\tau)\,[P_m(\tau) - P_n(\tau)], \tag{1}$$

где $W_{nm}(\tau)$ — ФП, для нахождения которой можно использовать точную формулу [5]

$$W_{nm}(\tau) = -[L_1 \mathrm{e}^{-i\tau(1-D)L} L_1]_{nnmm}. \tag{2}$$

Здесь тетрадные операторы L и L_1 представляют собой соответственно оператор Лиувилля и его часть, связанную с гамильтонианом взаимодействия; D — проекционный оператор, выделяющий диагональные элементы матрицы плотности. Однако в рассматриваемой нами задаче для нахождения ФП проще воспользоваться тем, что вид функции $P_n(t)$ хорошо известен [4] и без решения ОКУ. Если $P_n(0) = \delta_{n0}$ (δ_{n0} — символ Кронекера), то

$$P_n(t) = J_n^2(b), \tag{3}$$

где $b = 2\lambda t$, λ — матричный элемент резонансного взаимодействия между ближайшими соседями, $J_n(b)$ — функция Бесселя первого рода n-го порядка.

Разложим $P_n(t)$ в ряд Фурье

$$P_n(t) = \frac{1}{N} \sum_k P(k; t) \cos(kn). \tag{4}$$

Здесь N — число узлов, k определяется из периодических граничных условий. Переходя к пределу $N \to \infty$ и используя (3), а также известную из теории функций Бесселя теорему сложения [6], получаем

$$P(k; t) = J_0(2b \sin k/2). \tag{5}$$

Учтем, что ФП зависит лишь от расстояния между узлами: $W_{nm}(\tau) \equiv W_g(\tau)$; $g = n - m$. Тогда ОКУ для $P(k; t)$ принимает вид

$$\frac{\partial P(k; t)}{\partial t} = \int_0^t d\tau W(k; t-\tau) P(k; \tau), \tag{6}$$

где

$$W(k; \tau) = \sum_g W_g(\tau) \cos(kg) \tag{7}$$

(в (7) учтено правило сумм [5]: $\sum_g W_g(\tau) = 0$).

Используя далее теорему об образе Лапласа свертки, а также известные образы Лапласа функций Бесселя, получаем из (5) и (6) для образа Лапласа

$$W(k; p) = \int_0^\infty d\tau\, e^{-p\tau} W(k; \tau) \tag{8}$$

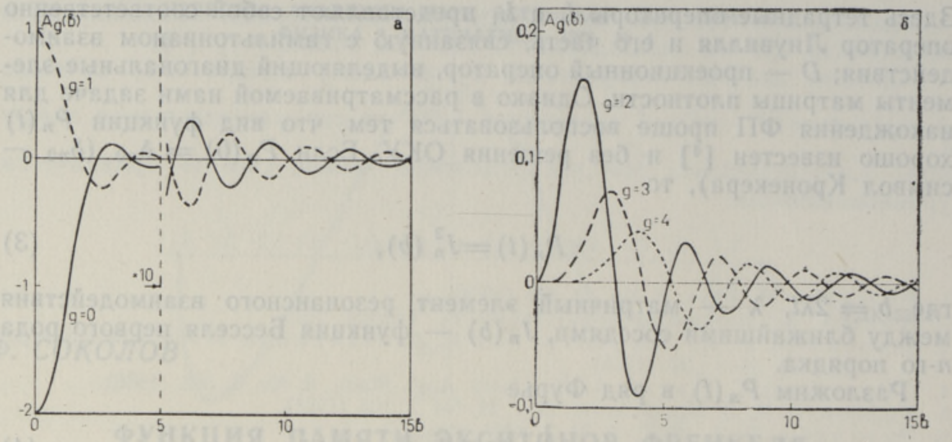
следующее выражение:

$$W(k; p) = -\frac{16\lambda^2 \sin^2 k/2}{p + \sqrt{p^2 + 16\lambda^2 \sin^2 k/2}}. \tag{9}$$

По таблицам (см., напр., [7]) находим соответствующий оригинал преобразования Лапласа

$$W(k; \tau) = -2\lambda^2 \sin^2 k/2 [J_0(2b \sin k/2) + J_2(2b \sin k/2)]. \tag{10}$$

Обращая далее преобразование Фурье (7), переходя от суммирования по k к интегрированию и используя табличный интеграл [6]



Функция $A_g(b) = W_g(\tau)/2\lambda^2$ для $g=0$ и 1 (*a*) и для $g=2-4$ (*б*).

$$\int\limits_0^\pi dx \cos(2\mu x) J_{2\nu}(2a \sin x) = \pi \cos(\mu\pi) J_{\nu-\mu}(a) J_{\nu+\mu}(a), \tag{11}$$

получаем окончательно

$$W_g(\tau) = 2\lambda^2 [J^2_{g-1}(b) + J^2_{g+1}(b) - 2J^2_g(b) + 2J_{g-1}(b) J_{g+1}(b) - \\ - J_g(b) J_{g+2}(b) - J_g(b) J_{g-2}(b)]. \tag{12}$$

Графики ФП (без множителя $2\lambda^2$) для нескольких значений g приведены на рисунке. При достаточно больших τ ФП имеет асимптотику

$$W^{ac}_g(\tau) = \frac{2}{\pi\tau^2} \sin(2b - \pi g + \pi/2). \tag{13}$$

Следует отметить, что найденная в приближении взаимодействия ближайших соседей ФП не равна тождественно нулю и при $|g| > 1$. Полученная ФП осциллирует и затухает со временем. Таким образом, в процессе распространения френкелевских электронных возбуждений в кристалле память затухает даже в том случае, когда экситонные состояния с определенными волновыми векторами являются стационарными.

Автор благодарен В. В. Хижнякову за обсуждение результатов и Г. С. Завту за помощь в численных расчетах.

ЛИТЕРАТУРА

1. Kenkre V. M., Knox R. S., Phys. Rev., **B9**, 5279 (1974).
2. Kenkre V., Rahman T., Phys. Lett., **A50**, 170 (1974).
3. Sokolov F. F., Hizhnyakov V. V., Phys. stat. sol., **75**, 669 (1976).
4. Merrifield R. E., J. Chem. Phys., **58**, 647 (1958).
5. Zwanzig R., Physica, **30**, 1109 (1964).
6. Градштейн И. С., Рыжик И. М., Таблицы интегралов, сумм, рядов и произведений, М., 1963.
7. Диткин В. А., Прудников А. П., Справочник по операционному исчислению, М., 1965.

Институт физики
Академии наук Эстонской ССР

Поступила в редакцию
17/III 1976