

Экситонный полярон в модели молекулярного кристалла. Приближение нелокального динамического когерентного потенциала

© С.В. Извеков

Киевский государственный университет им. Т. Шевченко,
252022 Киев, Украина

(Поступила в Редакцию 11 апреля 1997 г.)

Сформулировано приближение нелокального динамического когерентного потенциала (НДКП), которое является дальнейшим развитием метода динамического когерентного потенциала. Приближение НДКП является эффективным методом нахождения одноэкситонной функции Грина в модели с гамильтонианом в приближении сильной связи, в котором предполагается оптический спектр фононов, а оператор экситон-фононного взаимодействия является линейным или квадратичным по фононным операторам. Получена система рекуррентных уравнений, из которой находится когерентный потенциал как функция энергии E и волнового вектора k . Получено аналитическое выражение для одноэкситонной функции Грина в случае линейного по фононным операторам экситон-фононного взаимодействия и узких (по сравнению с энергией фононов) экситонных зон. Для больших величин ширины экситонной зоны и более сложного экситон-фононного взаимодействия система уравнений, определяющая когерентный потенциал, представляет собой рекуррентный алгоритм, который может быть эффективно реализован численно.

Экситон, взаимодействующий с решеточными или молекулярными колебаниями, можно рассматривать как новое одночастичное состояние — соответственно решеточный или молекулярный экситонный полярон. Модель полярона, будучи одной из наиболее простых, представляет собой в то же время один из наиболее важных и находящих многочисленные применения примеров описания свойств многочастичных систем в терминах квазичастиц. Эта модель неоднократно служила объектом теоретических исследований и использовалась для объяснения экспериментальных данных. Разнообразие поставленных целей приводило к широте используемых теоретических методов и подходов (это и квантоволевые методы теории возмущений [1]), и разнообразные вариационные и интерполяционные методы [2], и методы теории полярона малого радиуса, основанной на применении канонического преобразования [3,4]. Применение того или иного метода ограничено определенной областью изменения параметров системы и видом экситон-фононного взаимодействия и часто дает информацию лишь о части характеристик полярона. Например, вариационные методы, как правило, позволяют исследовать лишь нижайшие по энергии поляронные состояния.

Нахождение полной информации о физических свойствах полярона (энергетическом спектре, спектральных функциях) сводится фактически к вычислению одноэкситонной функции Грина для соответствующего модельного гамильтониана, что в свою очередь требует вычисления собственно энергетической функции (массового оператора) полярона. Наиболее эффективными из методов вычисления собственно энергетической функции представляются методы, основанные на приближении когерентного потенциала. Известно, что метод (статического) когерентного потенциала является одним из наиболее разработанных приближений виртуально-

го кристалла для расчета электронных энергетических спектров в неупорядоченных системах [5–7]. Первым примером применения приближения когерентного потенциала к упорядоченным твердым телам, где роль беспорядка играют элементарные возбуждения, взаимодействующие с электроном, была $s-d$ -модель магнитного полупроводника [8,9]. Практически одновременно с методом когерентного потенциала для магнитных полупроводников Суми [10–12] предложил приближение (локального) динамического когерентного потенциала (ДКП) для исследования случая экситона, взаимодействующего с эйнштейновскими фононами при условии, что взаимодействие диагонально по экситонным и фононным индексам и линейно по фононным операторам. Достоинством метода ДКП является то, что он позволяет последовательно учесть многократные неупругие рассеяния экситона фононным полем на каждом узле, тогда как приближение статического когерентного потенциала применимо лишь для упругих процессов рассеяния. Однако приближение ДКП в том варианте, в котором оно было предложено Суми, оказывается абсолютно непригодным в более сложных случаях, например при недиагональном экситон-фононном взаимодействии, поскольку в этом случае существенны корреляции в рассеянии экситона фононным полем на различных узлах. Другим недостатком метода ДКП является то, что он сложен для практического применения: для нахождения когерентного потенциала приходится решать систему функциональных нелинейных уравнений. Позже предпринимались попытки преодолеть в какой-то мере эти недостатки метода ДКП и расширить область его применения [13–17]. В [13] метод ДКП был переформулирован в терминах локаторов, что позволило упростить уравнения, определяющие когерентный потенциал, и сократить их число. Абе развил метод (локального) ДКП для вычисления двухчастичных функций Грина [14,15], а также обобщил

его на случай системы экситонов, взаимодействующих со слабодисперсионными фононами [16,17]. Приближение (локального) ДКП применялось для расчета энергетических спектров [10], спектров поглощения и люминесценции [11,16], спектров с временным разрешением и рамановских резонансных спектров [15] экситонных поляронов в довольно широком диапазоне величин экситон-фононного взаимодействия и ширин экситонной зоны. Этот метод также с успехом применялся для объяснения экспериментов по наблюдению спектров поглощения в молекулярных кристаллах [18,19].

Настоящая работа носит чисто теоретический характер и посвящена дальнейшему развитию метода ДКП — фактически его переформулировке. Результаты конкретных расчетов с использованием предложенной формулировки метода предполагается представить в отдельной статье.

Известно, что одним из путей улучшения метода (статического) когерентного потенциала, позволяющего в какой-то мере учесть локальное окружение, является введение нелокального когерентного потенциала, зависящего только от расстояния между двумя узлами [20]. Фурье-образ потенциала при этом оказывается функцией квазиимпульса. Понятно, что введение трансляционно инвариантного нелокального статического когерентного потенциала представляет собой новый уровень приближения, поскольку неупорядоченная система не обладает трансляционной симметрией. Иная ситуация складывается в случае динамического беспорядка (привнесенного фононами), в этом случае введение нелокального когерентного потенциала является естественным, при этом не делается никаких приближений. Данный подход — введение нелокального динамического когерентного потенциала (НДКП) — использован в настоящей работе для дальнейшего развития метода ДКП. Приближение НДКП является существенным улучшением метода (локального) ДКП, поскольку он в принципе применим в случае произвольного вида экситон-фононного взаимодействия. Кроме того, этот метод более прост с точки зрения практического применения: процедура вычисления когерентного потенциала в отличие от приближения (локального) ДКП, представляется в виде рекуррентного алгоритма. Алгоритм значительно упрощается в предположении, что процессы рассеяния экситона фононами носят чисто неупругий характер (т.е. можно пренебречь импульсной зависимостью энергии экситона и фононов). Как показано далее, реализация такой ситуации возможна в случае оптического спектра фононов и в антиадиабатическом пределе (ширина экситонной зоны намного меньше энергии фононов). В этом случае при нулевой температуре когерентный потенциал можно найти аналитически — представить в виде непрерывной дроби. В целом же в силу рекуррентного характера алгоритма приближение НДКП весьма эффективно и позволяет довести расчеты до высоких по числу фононов порядков. Метод НДКП является одним из способов исключения степеней свободы системы, связанных с

фононными операторами. Поэтому он применим также и в случае учета взаимодействия между экситонами. По сути приближение НДКП представляет собой выход за рамки теории возмущений в расчетах массового оператора полярона.

Построение статьи следующее. В разделе 1 вводится модельный гамильтониан. В разделе 2 представлен метод НДКП при нулевой температуре. Получена рекуррентная система уравнений, позволяющая определить когерентный потенциал. Когерентный потенциал, а следовательно, и одночастичная функция Грина определены аналитически в антиадиабатическом пределе.

1. Модельный гамильтониан

В настоящей работе приближение НДКП использовано для вычисления одноэкситонной функции Грина в случае модели с гамильтонианом

$$H = \sum_k E_k a_k^+ a_k + \sum_q \omega(q) \left(b_q^+ b_q + \frac{1}{2} \right) + \frac{1}{N^{1/2}} \sum_{n,q} a_n^+ a_n \chi(q) e^{iqn} (b_q^+ + b_{-q}). \quad (1)$$

Здесь a_k , a_n — соответственно операторы уничтожения экситона в импульсном представлении с импульсом k и энергией E_k и в узельном представлении экситона, локализованного на узле n , b_q — оператор уничтожения фонона с импульсом q и энергией $\omega(q)$, $\chi(q)$ — функция связи экситона с фононами в приближении сильной связи, N — число молекул в кристалле, $E_k = \varepsilon_0 + t_k$ — энергия экситона, где ε_0 — энергия возбуждения молекулы в кристалле, t_k — Фурье-образ матричных элементов резонансного перехода.

Модель с таким гамильтонианом далее называется моделью молекулярного кристалла [10], поскольку она описывает в линейном приближении и в приближении сильной связи взаимодействие френкелевских экситонов с решеточными или молекулярными колебаниями в молекулярных кристаллах с одной молекулой в элементарной ячейке. Эта модель не только является простейшей теоретической моделью системы экситонов, взаимодействующих с фононами, но и довольно часто может быть выбрана для рассмотрения реальных задач взаимодействия носителей заряда или френкелевских экситонов с локальным окружением в твердых телах [21–25]. При добавлении членов, учитывающих взаимодействие между электронами, модель (1) эквивалентна некоторым моделям теории сверхпроводимости [26–28]. Как было отмечено выше, приближение НДКП в этом случае также применимо для расчета собственно энергетических функций поляронных состояний.

2. Приближение нелокального динамического когерентного потенциала

Введем нелокальный когерентный потенциал $v_k(E)$, который зависит как от энергии, так и от импульса, т.е. в узельном представлении потенциал является трансляционно инвариантным. Гамильтониан (1) с введенным когерентным потенциалом приобретает вид

$$H = H^{\text{eff}} + H', \tag{2}$$

где

$$H^{\text{eff}} = \sum_k (E_k + v_k) a_k^\dagger a_k + \sum_q \omega(q) \left(b_q^\dagger b_q + \frac{1}{2} \right),$$

$$H' = \sum_n a_n^\dagger a_n \varphi_n - \sum_{n,m} v_{n,m} a_n^\dagger a_m.$$

В последней формуле использовано узельное представление, а

$$\varphi_n = \sum_m g_{n,m} (b_m^\dagger + b_m), \tag{3}$$

где

$$b_m = \frac{1}{N^{1/2}} \sum_q b_q e^{iqm}$$

— оператор уничтожения фонона в узельном представлении,

$$g_{n,m} = \frac{1}{N} \sum_q \chi(q) e^{iq(n-m)},$$

$$v_{n,m} = \frac{1}{N} \sum_k v_k e^{ik(n-m)}.$$

Когерентный потенциал определяется самосогласованным условием так, чтобы учесть процессы рассеяния экситона фононным полем на всех узлах решетки. Выкладки удобнее проводить, представляя функцию Грина как ядро резольвентного оператора соответствующего гамильтониана. Введем одноэкситонную запаздывающую функцию Грина системы с гамильтонианом H^{eff} в представлении вторичного квантования по фононным переменным и в узельном представлении по экситонным

$$G_{ml}^{\text{eff}}(z) = \frac{1}{N} \sum_k \sum_{s=0}^{\infty} \frac{1}{s!} \frac{1}{N^s} \times \sum_{\substack{q_1, \dots, q_s \\ i_1, \dots, i_s \\ j_1, \dots, j_s}} \frac{e^{ik(m-l)} e^{iq_1(i_1-j_1) + \dots + iq_s(i_s-j_s)}}{z - E_k - v_k(z) - \omega(q_1) - \dots - \omega q_s} \times |i_1, \dots, i_s\rangle \langle j_1, \dots, j_s|, \tag{4}$$

где

$$|i_1, \dots, i_m\rangle = b_{i_1}^\dagger \dots b_{i_m}^\dagger |0\rangle,$$

$z = E + i\gamma$. Малая положительная величина γ характеризует естественное затухание электронного возбуждения, например радиационное затухание. В дальнейших формулах использовано следующее соглашение: если встречаются индексы вида $s, s_i, i = 1, 2, \dots$, то по ним идет суммирование. Функция Грина $G_{ml}(z)$ системы с гамильтонианом H при разложении в ряд по степеням пропагатора $G^{\text{eff}}(z)_{ml}$ имеет вид

$$G_{ml}(z) = [z - H^{\text{eff}} - (\hat{\varphi} - \hat{v}(z))]_{ml}^{-1} = G_{ml}^{\text{eff}}(z) + G_{ms}^{\text{eff}}(z) (\hat{\varphi} - \hat{v}(z))_{ss_1} G_{s_1 l}^{\text{eff}}(z) + \dots \tag{5}$$

Здесь под $\hat{\varphi}$ и $\hat{v}(z)$ понимаются соответственно матрицы с элементами

$$\varphi_{mn} = \delta_{mn} \varphi_n \tag{6}$$

и $v_{mn}(z)$.

Мы ограничимся применением метода НДКП в случае нулевой температуры. Случай ненулевой температуры рассматривается абсолютно аналогично и не вносит в методологию ничего нового, однако выкладки будут значительно более громоздкими. При нулевой температуре когерентный потенциал выбирается из условия совпадения усредненных по фононному вакууму невзаимодействующих частиц одноэкситонных функций Грина $G_{ml}(z)$ и $G_{ml}^{\text{eff}}(z)$

$$\langle 0 | G_{ml}(z) | 0 \rangle = \langle 0 | G_{ml}^{\text{eff}}(z) | 0 \rangle. \tag{7}$$

В случае ненулевой температуры в (7) должно проводиться температурное усреднение по заселенностям фононов. Используя (7) и (5), получаем следующее уравнение для когерентного потенциала:

$$\langle 0 | (\hat{\varphi} - \hat{v}(z))_{ml} + (\hat{\varphi} - \hat{v}(z))_{ms} G_{ss_1}^{\text{eff}}(z) (\hat{\varphi} - \hat{v}(z))_{s_1 l} + \dots | 0 \rangle = \langle 0 | T_{ml} | 0 \rangle = 0. \tag{8}$$

Приравнивания к нулю фононное вакуумное среднее (8) от t -матричного оператора \hat{T} , мы фактически требуем, чтобы рассеяние экситона в эффективном поле, задаваемом когерентным потенциалом, было эквивалентно рассеянию экситона фононами при отсутствии ”термических” фононов. Ясно, что найденный из уравнения (8) когерентный потенциал, обеспечивающий равенство фононных вакуумных средних от $G_{ml}(z)$ и $G_{ml}^{\text{eff}}(z)$, уже не будет давать такого равенства для матричных элементов на других фононных состояниях (это отвечало бы случаю точной диагонализации функции Грина). Условие (7) можно заменить равенством матричных элементов на каких-либо других фононных состояниях или равенством их линейных комбинаций (что, например, делается при температурном усреднении). Найденный когерентный потенциал при этом будет, естественно, отличаться от полученного из уравнения (7). Другими словами, когерентный потенциал вводится так, чтобы учесть взаимодействие (рассеяние) экситона с фононами при заданном состоянии фононной системы.

Ряд для оператора \hat{I} в (8) легко суммируется, после чего (8) преобразуется к виду

$$\langle 0 | [\hat{I} - (\hat{\varphi} - \hat{v}(z)) \hat{G}^{\text{eff}}(z)]^{-1} (\hat{\varphi} - \hat{v}(z)) | 0 \rangle = 0. \quad (9)$$

Здесь \hat{I} — единичная матрица. Введем теперь оператор $\hat{F}(z)$, определяемый соотношением

$$\hat{F}^{-1}(z) = \hat{G}^{\text{eff}-1}(z) + \hat{v}(z), \quad (10)$$

который фактически представляет собой функцию Грина гамильтониана (1) без учета экситон-фононного взаимодействия (и, естественно, не зависит от когерентного потенциала). С использованием введенного оператора $\hat{F}(z)$ после несложных преобразований уравнение (9) можно переписать в виде

$$\langle 0 | [\hat{I} - \hat{\varphi} \hat{F}(z)]^{-1} \hat{\varphi} | 0 \rangle = \langle 0 | [\hat{I} - \hat{\varphi} \hat{F}(z)]^{-1} | 0 \rangle \hat{v}(z). \quad (11)$$

В методе скалярного когерентного потенциала [10] оператор $\hat{F}(z)$ вводился так, чтобы его диагональный элемент был равен $G^{\text{eff}}(z)^{-1} + v(z)$, где $G^{\text{eff}}(z)$ — диагональный элемент функции Грина $\hat{G}^{\text{eff}}(z)$, $v(z)$ — скалярный когерентный потенциал. Это приводило к зависимости $\hat{F}(z)$ от когерентного потенциала, что в свою очередь резко усложняло результирующие уравнения: когерентный потенциал входил в них со смещенным аргументом. Используя операторное уравнение (11), можно сразу записать формальное выражение, определяющее $\hat{v}(z)$. Экситонный полярон определяется функцией Грина экситона в эффективной среде, задаваемой когерентным потенциалом

$$\langle 0 | G_{ml}^{\text{eff}}(z) | 0 \rangle = \frac{1}{N} \sum_k \frac{e^{ik(m-l)}}{z - E_k - v_k(z)}. \quad (12)$$

Для вычисления когерентного потенциала $\hat{v}(z)$ необходимо вычислить вакуумные средние в (11). Далее выводится система уравнений, позволяющая определить эти вакуумные средние.

Пусть $\tilde{i}_n, \tilde{i}_n + i_k$ и $\tilde{i}_n - i_k$ представляют соответственно множества узлов кристаллической решетки (i_1, \dots, i_n) , (i_1, \dots, i_n, i_k) и $(i_1, \dots, i_{k-1}, i_{k+1}, \dots, i_n)$. (0) и (i_1) обозначают соответственно пустое и одноузельное множества. В последующих выражениях мы иногда не будем явно указывать зависимость операторов $\hat{F}(z)$, $\hat{v}(z)$ от энергии. Все вычисления производятся при $\hat{F}(z)$, $\hat{v}(z)$, взятых при одной и той же энергии. В этом, как это было отмечено выше, состоит одно из преимуществ данного метода перед ранее предложенными вариантами метода динамического когерентного потенциала. Обозначим далее

$$a_{ml}^{\tilde{i}_n} = \langle 0 | [\hat{I} - \hat{\varphi} \hat{F}]_{ml}^{-1} | i_1, \dots, i_n \rangle. \quad (13)$$

Тогда, используя (11), (6) и (3), когерентный потенциал представляем в виде

$$v_{ml} = [a_{ms}^{(0)}]_{ms}^{-1} a_{sl}^{(s_1)} g_{s_1 l}. \quad (14)$$

Используя теперь очевидное операторное тождество

$$[\hat{I} - \hat{\varphi} \hat{F}]^{-1} = \hat{I} + [\hat{I} - \hat{\varphi} \hat{F}]^{-1} \hat{\varphi} \hat{F} \quad (15)$$

и определение (13), находим, что матричные элементы $a_{ml}^{\tilde{i}_n}$ удовлетворяют следующей системе уравнений:

$$a_{ml}^{(0)} = \delta_{ml} + a_{ms}^{(s_1)} g_{s_1 l} F_{sl}^{(0),(0)},$$

$$a_{ml}^{\tilde{i}_n} = a_{ms}^{\tilde{i}_n + s_1} (n_{\tilde{s}_n, s_1} + 1)^{1/2} g_{s_1 l} \begin{matrix} \vdots \\ F_{sl}^{\tilde{i}_n, \tilde{i}_n} \\ \vdots \end{matrix}$$

$$+ a_{ms}^{\tilde{i}_n - s_1} (n_{\tilde{s}_n, s_1})^{1/2} g_{s_1 l} F_{sl}^{\tilde{i}_n, \tilde{i}_n}. \quad (16)$$

Здесь

$$F_{ml}^{\tilde{i}_n, \tilde{j}_n}(z) = \frac{1}{N^{n+1}} \times \sum_{k, q_1, \dots, q_n} \frac{e^{ik(m-l)} e^{iq_1(i_1 - j_1) + \dots + iq_n(i_n - j_n)}}{z - E_k - \omega(q_1) - \dots - \omega(q_n)} \quad (17)$$

— n -фононный матричный элемент оператора \hat{F} , $n_{\tilde{i}_n, i_k} = (\delta_{i_1, i_k} + \dots + \delta_{i_n, i_k})$. Уравнения (16) представляют собой рекуррентную систему линейных уравнений, позволяющую определить $a_{ml}^{(0)}$ и $a_{ml}^{(i_1)}$, подставляя которые затем в (14), окончательно можно определить и когерентный потенциал. Уравнения (16) существенно упрощаются при допущениях, позволяющих пренебречь недиагональными по экситонным и фононным индексам матричными элементами $F_{ml}^{\tilde{i}_n, \tilde{j}_n}$ (в случае бездисперсионных фононов недиагональные по фононным индексам матричные элементы точно равны нулю). В этом случае уравнения (16) содержат только $F_{mn}^{\tilde{i}_n, \tilde{i}_n}$, которые обозначены ниже как

$$F^{(n)}(z) = \frac{1}{N^{n+1}} \times \sum_{k, q_1, \dots, q_n} \frac{1}{z - E_k - \omega(q_1) - \dots - \omega(q_n)}. \quad (18)$$

Недиагональными $F_{ml}^{\tilde{i}_n, \tilde{j}_n}$, очевидно, можно пренебречь, если пренебречь импульсной зависимостью энергий экситона и фононов в n -фононных процессах рассеяния экситона (или, иными словами, считать рассеяние чисто неупругим). Это возможно при энергиях E , удовлетворяющих следующему условию:

$$|E - \varepsilon_0 - n\omega(0)| \gg B + n\Omega, \quad (19)$$

где B и Ω — соответственно ширины экситонной и фононной зон. С другой стороны, невыполнение этого условия при некоторой энергии E указывает на то, что при расчете поляронных состояний с этой энергией должны быть учтены n -фононные процессы рассеяния

экситона с передачей импульса. В уравнениях (16) можно ограничиться учетом только $F^{(n)}$, если предположить, что спектр полярона расположен в области таких значений энергий, при которых выполняется условие (19). Этот случай может реализоваться при малой дисперсии фононов $\Omega \ll \omega(0)$ и узких экситонных зонах $B \ll \omega(0)$ (антиадиабатическом пределе). Как будет показано далее, спектр полярона смещается на величину энергии локализации экситона. При достаточной величине этого смещения спектр полярона (весь или в некоторой части) может удовлетворять условию (19). В случае невыполнения условия (19) для какой-либо поляронной зоны при определенном n необходимо принимать во внимание импульсную зависимость энергии экситона и фононов в n -фононных процессах рассеяния экситона, т.е. оставить в уравнениях (16) с $a_{ml}^{\tilde{i}_n}$ в левой части недиагональные $F_{ml}^{\tilde{i}_n, \tilde{j}_n}$. Очевидно, что в случае акустических фононов условие (19) нарушается, начиная с достаточно больших n при любых значениях энергии полярона E , и, следовательно, в системе (16) недиагональные $F_{ml}^{\tilde{i}_n, \tilde{j}_n}$ не могут быть отброшены.

Рассмотрим случай энергий полярона, при которых условие (19) выполняется. При этих энергиях в системе (16) следует оставить только $F^{(n)}$. Достаточно легко проверить, что в этом случае имеет место соотношение

$$\frac{a_{ml}^{\tilde{i}_n+p}}{a_{ml}^{\tilde{i}_n+p'}} = \frac{g_{lp}}{g_{l'p'}} \frac{(n_{\tilde{i}_n, p'})^{1/2}}{(n_{\tilde{i}_n, p})^{1/2}}. \tag{20}$$

Следовательно, уравнения (16) содержат только $a_{ml}^{\tilde{p}_n}$, где $\tilde{p}_n = \underbrace{(p, \dots, p)}_n$. Легко также увидеть, что $a_{ml}^{\tilde{p}_n} = 0$,

когда $m, l \neq p$, что совместно с (14) и (20) свидетельствует о том, что матрица когерентного потенциала имеет отличными от нуля только диагональные элементы $v(z)_{nm} = v(z)$, т.е. когерентный потенциал не зависит от импульса экситона. Окончательно приходим к заключению, что в действительности уравнения (16) представляют собой тридиагональную систему для величин $a_{pp}^{\tilde{p}_n}$. Это в свою очередь позволяет представить когерентный потенциал в виде непрерывной дроби. Действительно, введем величины

$$t^{(n)} = \frac{a_{pp}^{\tilde{p}_n}}{a_{pp}^{\tilde{p}_n-1}} \frac{1}{n^{1/2}}. \tag{21}$$

Тогда (16) совместно с (14) и (20) дает

$$v(z) = t^{(1)} \frac{G}{g_{00}},$$

$$t^{(n)} = \frac{\begin{matrix} \vdots \\ g_{00} \\ \vdots \end{matrix}}{\frac{1}{F^{(n)}(z)} - (n+1)t^{(n+1)} \frac{G}{g_{00}}}, \tag{22}$$

$$\begin{matrix} \vdots \\ \vdots \end{matrix}$$

где $g_{00} = g_{pp}$,

$$G = \sum_s g(s)^2 = \frac{1}{N} \sum_q |\chi(q)|^2.$$

Из уравнений (22) получаем когерентный потенциал $v(z)$ в виде непрерывной дроби

$$v(z) = \frac{G}{\frac{1}{F^{(1)}(z)} - \frac{2G}{\frac{1}{F^{(2)}(z)} - \dots}}. \tag{23}$$

Энергетический спектр экситонного полярона находим, решая относительно z уравнение (энергия дается вещественной частью решения)

$$z - E_k - v_k(z) = 0. \tag{24}$$

Уравнение (24) при $v_k(z) = v(z)$ можно упростить далее, если предположить эйнштейновский спектр фононов ($\omega(q) = \omega_0$) и пренебречь в $F^{(n)}$ элементами матрицы резонансного перехода (в этом случае $F^{(n)-1}(z) = z - \varepsilon_0 - n\omega_0$). Тогда с использованием формулы [29]

$$\sum_{n=0}^{\infty} \frac{a^n/n!}{z + a - n} e^{-a} = \frac{1}{z - \frac{a}{z-1 - \frac{2a}{z-2 - \dots}}},$$

справедливой для z с исчезающей мнимой частью, находим, что уравнение (24) приобретает вид

$$t_k - \frac{1}{\sum_{n=0}^{\infty} \left(\frac{1}{z - \varepsilon_0 + S\omega_0 - n\omega_0} \right) \frac{S^n}{n!} e^{-S}} = 0, \tag{25}$$

где $S = G/\omega_0^2$. Закон дисперсии в n_0 -й энергетической зоне полярона можно грубо описать формулой

$$E = \varepsilon_0 - S\omega_0 + n_0\omega_0 + \frac{S^{n_0}}{n_0!} e^{-S} t_k. \tag{26}$$

Эта формула получается из (25), если оставить в знаменателе слагаемое с $n = n_0$, которое будет наибольшим при энергиях из n_0 -поляронной зоны. $S\omega_0$ представляет собой энергию локализации экситона. Отсюда видно, что в рамках приближения НДКП происходит экспоненциальная перенормировка ширины экситонной зоны. Это находится в соответствии с результатами, полученными, например, в рамках теории полярона малого радиуса, основанной на применении канонического преобразования Ланга–Фирсова [3,4]. В целом же формула (25) учитывает конфигурационное смешивание поляронных состояний с различным числом колебательных квантов. Существенно отметить, что условие (19), а следовательно, и уравнение (25) справедливы в случае $S \gg B/\omega_0$ при произвольных величинах B/ω_0 для нижней энергии экситонного полярона. Поэтому уравнение (25) допустимо использовать для нахождения энергии автолокализованного состояния, когда энергия решеточной (или колебательной в случае молекулярных фононов) релаксации намного больше ширины экситонной зоны при произвольном соотношении ширины экситонной зоны и энергии фононов.

Из приведенных выкладок видно, что изменения гамильтониана (1), не затрагивающие экситон-фононного

взаимодействия (например, учет взаимодействия между экситонами), приведет лишь к соответствующему изменению величин $F^{(n)}$ в системе (16).

Предложена новая формулировка метода динамического когерентного потенциала — метод нелокального динамического когерентного потенциала, который пригоден для расчета одночастичных функций Грина экситона, взаимодействующего с фононами в модели сильной связи. Метод НДКП основан на замене экситон-фононного взаимодействия трансляционно-инвариантным нелокальным динамическим когерентным потенциалом, который выбирается из условия совпадения усредненных по распределению заселенностей фононов функций Грина для исходного гамильтониана и эффективного гамильтониана, полученного из исходного введением когерентного потенциала вместо члена, описывающего взаимодействие экситона с фононами (см. (7)). Усреднение в (7) можно проводить помимо равновесного распределения заселенностей фононов и по неравновесным распределениям. Примечательно, что и в этом случае условия типа (7) приводят к рекуррентному алгоритму для определения когерентного потенциала, независимо от вида экситон-фононного взаимодействия. Эта система уравнений получается при использовании (13)–(15) аналогично тому, как это было в случае системы (16). Алгоритм значительно упрощается в случае пренебрежения при рассеянии экситона фононами импульсной зависимостью энергий экситона и фононов. Реализация такой ситуации возможна для оптического спектра фононов и в антиадиабатическом пределе. В этом случае выражение для когерентного потенциала удастся получить в виде непрерывной дроби. В более сложных случаях метод НДКП реализуется в виде эффективного численного алгоритма (14), (16), который позволяет довести расчет до высоких по числу фононов порядков. Например, в случае квадратичного по фононным операторам экситон-фононного взаимодействия в антиадиабатическом пределе система (16) пятидиагональна, и когерентный потенциал определяется достаточно легко численно.

Список литературы

- [1] А.А. Абрикосов, Л.П. Горьков, И.Е. Дзялошинский. Методы квантовой теории поля в статистической физике. М. (1962). С. 443.
- [2] L.D. Lee, D. Pines. Phys. Rev. **88**, 960 (1952).
- [3] Ю.А. Фирсов. В сб.: Поляроны / Под ред. Ю.А. Фирсова. М. (1975). С. 205.
- [4] Y.B. Levinson, E.I. Rashba. Rep. Progr. Phys. **36**, 1499 (1973).
- [5] P. Soven. Phys. Rev. **156**, 809 (1967).
- [6] D.W. Taylor. Phys. Rev. **156**, 1017 (1967).
- [7] B. Velicky, S. Kirkpatrick, H. Ehrenreich. Phys. Rev. **175**, 747 (1968).
- [8] Y. Rangement, Y. Yanase, J. Kübler. Solid State Commun. **12**, 171 (1973).
- [9] K. Kubo. J. Phys. Soc. Jpn. **36**, 32 (1974).
- [10] H. Sumi. J. Phys. Soc. Jpn. **36**, 770 (1974).
- [11] H. Sumi. J. Phys. Soc. Jpn. **38**, 825 (1975).
- [12] H. Sumi. J. Chem. Phys. **67**, 2943 (1977).
- [13] V. Čhápek, V. Špička. Czech. J. Phys. **B 34**, 115 (1984).
- [14] S. Abe. J. Phys. Soc. Jpn. **57**, 4029 (1988).
- [15] S. Abe. J. Phys. Soc. Jpn. **57**, 4036 (1988).
- [16] S. Abe. J. Lumin. **45**, 272 (1990).
- [17] S. Abe. Rev. Sol. Stat. Sci. **4**, 191 (1990).
- [18] Y. Tokura, T. Koda. Solid State Commun. **40**, 299 (1981).
- [19] Y. Wada, Y. Tokura, T. Koda. J. Chem. Phys. **86**, 3009 (1987).
- [20] N.F. Berk, D.J. Shazeer, R.A. Tahir-Kheli. Phys. Rev. **B8**, 2496 (1973).
- [21] С.В. Тябликов. ЖЭТФ **23**, 381 (1952).
- [22] Э.И. Рашба. Опт. и спектр. **3**, 568 (1957).
- [23] Y. Toyozawa. Prog. Theor. Phys. **26**, 29 (1961).
- [24] R. Silbey. Ann. Rev. Phys. Chem. **27**, 203 (1976).
- [25] J. Singh, A. Matsui. Phys. Rev. **B36**, 6094 (1986).
- [26] T. Holstien. Ann. Phys. (N.Y.) **8**, 325 (1959).
- [27] J. Ranninger. Phys. Rev. **B48**, 13166 (1993).
- [28] Y.J. Takada. J. Phys. Chem. Sol. **54**, 1779 (1993).
- [29] W. Gautschi. In: Handbook of Mathematical Functions / Ed. M. Abramowitz and I.A. Stegun. Dover, N.Y. (1964). P. 295.