



UNIVERZITET U NOVOM SADU
PRIRODNO-MATEMATIČKI
FAKULTET
DEPARTMAN ZA FIZIKU



УНИВЕРЗИТЕТ У НОВОМ САДУ
ПРИРОДНО-МАТЕМАТИЧКИ ФАКУЛТЕТ

ПРИМЉЕНО:	06.03.2005
ОРГАНИЗЈЕД:	БРОЈ
0603	9/626

FRENKELOVI EKSITONI U NANOSTRUKTURNIM FILMOVIMA

- diplomski rad -

Mentor:
PROF. DR JOVAN ŠETRAJČIĆ

Kandidat:
STEVAN JANKOV

Novi Sad, 2005

Pređavor

U kvantnoj teoriji čvrstog stanja, a posebno u teoriji čvrstih dielektrika (molekulski kristali, feromagnetni i feroelektrični materijali) osnovni predmet izučavanja predstavljaju elementarna pobuđenja koja nastaju u elektronskom podsistemu čvrstog tela (kristala). Prebacivanje pobuđenja sa molekulama na molekul omogućava polje sila koje molekule drži na okupu, pa nastali talas pobuđenja ima karakteristike koje zavise i od kvanta energije koji ga je izazvao, i od stanja molekula u kome je nastao, i od međumolekularnih sila koje ga transportuju kroz kristal.

Na osnovu ovoga postaje jasno zbog čega su ovakvi talasi predmet intezivnog izučavanja u fizici: kroz analizu njihovih osobina dobija se kompletna informacija o tome kako mikroprocesi u kristalu utiču na njegovo makroskopsko ponašanje u zadatim spoljašnjim uslovima.

Izučavanje opisanih elementarnih pobuđenja vrši se primenom metoda kvantne teorije polja na kristalne strukture, a ovo opet zahteva uvođenje operatora koji kreiraju i anihiliraju ova elementarna pobuđenja. Pravilno određivanje hamiltonijana sistema elementarnih pobuđenja, kao i proračun doprinosa fizičkim karakteristikama sistema koji dolaze usled kinematičke interakcije predstavljaju jedan od problema savremene fizike čvrstog stanja, koji nosi naziv *problem kinematičke interakcije*.

Nakon što je izložen prelazak na hamiltonijan kinematičke interakcije u funkciji Pauli-operatora, u ovom radu je takav hamiltonijan metodom Grinovih funkcija iskorišćen za određivanje tenzora i koeficijenta difuzije elementarnih optičkih pobuđenja (eksitona) u nanostruktturnim filmovima.

Ovaj diplomski rad je urađen pod mentorstvom prof. dr Jovana Šetrajčića, kome se zahvaljujem na nesekičnoj podršci i podstreknu kako u toku studija, tako i pri izradi ovog rada.

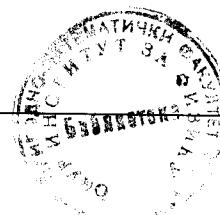
Ipak, najveću zahvalnost dugujem svojim roditeljima za bezgraničnu veru, strpljenje i ljubav svih 10 godina studija.

Rumenka, 25.11.2005.

Stevan Jankov

Sadržaj

1. Uvod	2
1.1. Model eksitonskog gasa.....	2
1.2. Dinamička i kinematička interakcija eksitona	6
1.3. Polariton, vibroni i soliton	7
2. Difuzija optičkih pobuđenja u tankim molekulskim filmovima ..	10
2.1. Korelaciona funkcija brzina eksitona.....	10
2.2. Eksitonske Grinove funkcije u tankom filmu	12
2.3. Korelaciona funkcija eksitona u tankom filmu.....	18
2.4. Tenzor difuzije u tankom molekulskom filmu	19
3. Zaključak	24
4. Literatura.....	25



1. Uvod

Eksitoni su pobuđenja koja u kristalima nastaju pod dejstvom svetlosti. Treba odmah naglasiti da se, zavisno od struktura na koje padaju svetlosni kvanti, mogu pojaviti dva tipa eksitona.

U poluprovodnicima pod dejstvom svetlosti nastaju eksitoni Vanije-Mota koji se još nazivaju eksitoni velikog radijusa. Upadni svetlosni kvant prebacuje elektron iz valentne u provodnu zonu poluprovodnika. Samim tim u valentnoj zoni se pojavljuje šupljina koja se ponaša kao čestica sa pozitivnim nanelektrisanjem. Elektron u provodnoj zoni i šupljina u valentnoj zoni povezani su privlačnom kulonovskom silom i predstavljaju elektroneutralan kompleks. Pomenuti proces se kolektivizuje tako da se u poluprovodniku dobija sistem optičkih pobuđenja velikog radijusa, tj. sistem eksitona Vanije-Mota. Spoljašnjim poljem elektron i šupljina se mogu razdvojiti i tada nastaju poluprovodničke struje: elektronska u provodnoj zoni i struja šupljina u valentnoj zoni.

Frenkelovi eksitoni su optička pobuđenja koja se javljaju u molekulskim kristalima (antracen, naftalin, naftacen, benzol u čvrstom stanju itd.). I kod molekulskih kristala svetlosni kvant stvara par elektron-šupljina ali ovaj par se, za razliku od poluprovodnika, zadržava u molekulu u kome je stvoren. Ovo se dešava zbog toga što se elektronske talasne funkcije susednih molekula slabo prekrivaju. Pošto par ostaje u granicama molekula (u relativno malom prostoru u odnosu na prostor koji par zauzima u poluprovodnicima) ovi eksitoni se nazivaju eksitoni malog radijusa.

1.1. Model eksitonskog gasa

U molekulskim kristalima međumolekulske interakcije su multipol-multipolnog tipa, pri čemu je dipol-dipolna interakcija

$$W_{n,m} = \frac{\vec{d}_{\vec{n}} \cdot \vec{d}_{\vec{m}}}{|\vec{n} - \vec{m}|^3} - 3 \frac{[(\vec{n} - \vec{m}) \cdot \vec{d}_{\vec{n}}] [(\vec{n} - \vec{m}) \cdot \vec{d}_{\vec{m}}]}{|\vec{n} - \vec{m}|^5} \quad (1.1)$$

najveća od njih i reda je 10^{-2} eV. U formuli (1.1) \vec{d} su električni dipolni momenti molekula, dok je intenzitet od $\vec{n} - \vec{m}$ rastojanje između dipola. Treba obratiti pažnju na drugi član u formuli (1.1), u kome se vidi da interakcija zavisi od ugla koji dipoli zaklapaju sa vektorom $\vec{n} - \vec{m}$. Zavisno od ovih uglova dipol-dipolna interakcija može biti i pozitivna i negativna. Zbog toga se kod eksitona govorи o pozitivnoj i negativnoj disperziji. Radi se o tome da dipol-dipolna interakcija određuje efektivnu masu eksitona. Ako je ova interakcija pozitivna, onda je efektivna masa eksitona negativna i energija eksitona opada sa porastom impulsa, tj. sa porastom talasnog vektora. Za ovakve eksitone se kaže da imaju negativnu disperziju. U suprotnom slučaju (dipol-dipolna interakcija negativna) eksitonimaju pozitivnu efektivnu masu i energija im raste sa porastom talasnog vektora). Ovo odgovara pozitivnoj disperziji eksitona.

Zavisnost dipol-dipolne interakcije od uglova dovodi do tzv. neanalitičnosti eksitonske energije, koja se sastoji u tome što pri nultoj vrednosti talasnog vektora eksitonimaju različite vrednosti energije. Za kristal antracena u literaturi detaljno su ispitani efekti neanalitičnosti.

Nastanak eksitonskog talasa može se opisati na sledeći način: svetlosni kvant prevede elektron iz osnovnog stanja koje karakteriše skup kvantnih brojeva koji ćemo označiti indeksom 0 u pobuđeno stanje koje karakteriše skup kvantnih brojeva f . Pošto molekuli interaguju između sebe, pobuđenje se prenosi na susedni molekul i sa ovoga se prenosi dalje. Na taj način stvara se talas pobuđenja koji se naziva Frenkelov eksiton. Ako se posmatraju osnovno stanje elektrona i samo jedno pubuđeno stanje sa indeksom f , onda su očigledne sledeće mogućnosti: i u osnovnom i u pobuđenom stanju nema elektrona; u osnovnom stanju se nalazi jedan elektron, a pobuđeno stanje je prazno; osnovno stanje je prazno, a u pobuđenom stanju se nalazi jedan elektron i osnovno i pobuđeno stanje sadrže po jedan elektron. To znači da je elektronski Hilbertov prostor u molekulu koji ćemo označiti sa h sadrži četiri vektora: $|0_0 0_f\rangle$; $|1_0 0_f\rangle$; $|1_f 0_0\rangle$ i $|1_0 1_f\rangle$. Prostor h može se razdvojiti na dva potprostora:

$$h_1 = \{|0_0 0_f\rangle, |1_0 1_f\rangle\}; \quad h_2 = \{|1_0 0_f\rangle, |1_f 0_0\rangle\}. \quad (1.2)$$

S obzirom na opisani nastanak Frenkelovog eksitona očigledno je da proizvod elektronskih operatora $a_f^+ a_0$ odgovara stvaranju pobuđenja molekula, dok proizvod $a_0^+ a_f$ odgovara gašenju pobuđenja. Navedeni proizvodi elektronskih operacija ostaju zavoreni u potprostoru h_2 što znači da delujući na vektore iz potprostora h_2 daju vektore koji takođe pripadaju potprostoru h_2 . Svojstvene vrednosti operatora $a_f^+ a_0$ i $a_0^+ a_f$ jednake su nuli u potprostoru h_1 . Takođe je očigledno da je zbir svojstvenih vrednosti operatora brojeva elektrona $a_f^+ a_f$ i $a_0^+ a_0$ jednak jedinici u potprostoru h_2 .

Proizvod operatora $a_f^\dagger a_0$ obeležava se sa P^+ i predstavlja operator kreacije eksitona, dok se operator $a_0^\dagger a_f$ označava sa P i predstavlja operator anihilacije eksitona. Operatori P^+ i P nazivaju se Pauli-operatori i ne zadovoljavaju ni bozonske ni fermionske komutatorske relacije (kaže se da imaju mešanu statistiku). Njihove komutacione relacije su date sa:

$$[P_{\vec{n}}, P_{\vec{m}}^+] = (1 - 2P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}}) \delta_{\vec{n}, \vec{m}}; \quad [P_{\vec{n}}, P_{\vec{m}}] = [P_{\vec{n}}^+, P_{\vec{m}}^+] = 0; \quad P_{\vec{n}}^2 = (P_{\vec{n}}^+)^2 = 0, \quad (1.3)$$

gde su \vec{n} i \vec{m} vektori kristalne rešetke molekulskog kristala. Iz (1.3) se vidi da su komutacione relacije za Pauli-operatore delimično bozonskog, a delimično fermionskog tipa.

Radi dalje analize eksitonskog sistema potrebno je sa elektronskog (fermionskog) hamiltonijana, datog u literaturi kao:

$$H = \sum_{\vec{n}f} \varepsilon_f F_{\vec{n}f}^+ F_{\vec{n}f} + \frac{1}{2} \sum_{\substack{\vec{n}\vec{m} \\ f_1 f_2 f_3 f_4}} W_{\vec{n}\vec{m}} (f_1 f_2 f_3 f_4) F_{\vec{n}f_1}^+ F_{\vec{n}f_4}^+ F_{\vec{m}f_2}^+ F_{\vec{m}f_3}^+, \quad (1.4)$$

preći na hamiltonian izražen preko Pauli-operatora. To se može učiniti tako što se u (1.4) razviju sume po indeksima f i uzme u obzir da elektron može biti preveden u samo jedno pobuđeno stanje, kao i definicije Pauli-operatora.

Za prvi član u (1.4) se može odmah pisati:

$$\begin{aligned} \sum_{\vec{n}f} \varepsilon_f F_{\vec{n}f}^+ F_{\vec{n}f} &= \sum_{\vec{n}} (\varepsilon_0 F_{\vec{n}0}^+ F_{\vec{n}0} + \varepsilon_f F_{\vec{n}f}^+ F_{\vec{n}f}) = \sum_{\vec{n}} [\varepsilon_0 + (\varepsilon_f - \varepsilon_0) F_{\vec{n}f}^+ F_{\vec{n}f}] = \\ &= \mathcal{N} \varepsilon_0 + \sum_{\vec{n}} (\varepsilon_f - \varepsilon_0) P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}}, \end{aligned} \quad (1.5)$$

gde je \mathcal{N} ukupan broj molekula (atoma) u kristalu.

Šema po kojoj se razvija četvorostruka suma po indeksima f u drugom članu hamiltonijana (1.4) je data u Tabeli 1.

U daljem izlaganju neće biti korišćena kompletan šema, već samo onaj njen deo koji se primenjuje u kristalooptici za kristale koji imaju centar inverzije. Osim toga, treba napomenuti da je prilikom izvođenja korišćena činjenica da veličine $W_{\vec{n}\vec{m}}$ zavise od razlike $\vec{n} - \vec{m}$ i da se u teorijama čvrstog stanja kristal smatra beskonačnim. Otuda:

$$\sum_{\vec{n}\vec{m}} W_{\vec{n}\vec{m}} = \sum_{\vec{n}\vec{m}} W_{\vec{n}-\vec{m}} = \sum_{\vec{n}} \sum_{\vec{l}} W_{\vec{l}} = \mathcal{N} \sum_{\vec{l}} W_{\vec{l}} = \mathcal{N} W_0; \quad W_0 = \sum_{\vec{l}} W_{\vec{l}} \quad (1.6)$$

i

$$\sum_{\vec{n}\vec{m}} W_{\vec{n}\vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}} = \sum_{\vec{n}\vec{m}} W_{\vec{n}-\vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}} = \sum_{\vec{n}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}} \sum_{\vec{l}} W_{\vec{l}} = W_0 \sum_{\vec{n}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}}. \quad (1.7)$$

U literaturi je pokazano da su za kristale sa centrom inverzije, pri čemu se centar inverzije kristala i molekula poklapaju, matrični elementi dipol-dipolne interakcije (1.1) jednaki nuli za vrste 2-5 i 12-15 u Tabeli 1. Razlog je sledeći: matrični elementi koji odgovaraju vrstama 2-5 proporcionalni su prvom stepenu dipolnog momenta prelaza iz stanja 0 u stanje f , dok matrični elementi iz vrsta 12-15 sadrže proizvode tri dipolna momenta prelaza. Pri operaciji inverzije ovi matrični elementi menjaju znak, te pošto je hamiltonijan invarijantan na operaciju inverzije, moraju biti jednaki nuli.

	f_1	f_2	f_3	f_4
1	0	0	0	0
2	f	0	0	0
3	0	f	0	0
4	0	0	f	0
5	0	0	0	f
6	f	f	0	0
7	f	0	f	0
8	f	0	0	f
9	0	f	f	0
10	0	f	0	f
11	0	0	f	f
12	f	f	f	0
13	f	f	0	f
14	f	0	f	f
15	0	f	f	f
16	f	f	f	f

Tabela 1.

Ako se navedeno uzme u obzir, hamiltonijan elektronskog podsistema u molekulima kristala (1.4), reprezentuje se na sledeći način preko Pauli-operatora, koji kreiraju i anihiliraju elementarna optička pobuđenja na molekulima:

$$\hat{H} = H_0 + \hat{H}_2 + \hat{H}_4, \quad (1.8)$$

gde su

$$H_0 = \mathcal{N} \left[\varepsilon_0 + \frac{1}{2} W_0(0000) \right], \quad (1.9)$$

$$\hat{H}_2 = \Delta \sum_{\vec{n}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}} + \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} C_{\vec{n}\vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{m}} + \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} F_{\vec{n}\vec{m}} (P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{m}}^+ + P_{\vec{m}} P_{\vec{n}}), \quad (1.10)$$

$$\Delta = \varepsilon_f - \varepsilon_0 + \frac{1}{2} [W_0(f00f) + W_0(0ff0)],$$

$$C_{\vec{n}\vec{m}} = W_{\vec{n}\vec{m}}(f0f0) + W_{\vec{n}\vec{m}}(0f0f),$$

$$F_{\vec{n}\vec{m}} = W_{\vec{n}\vec{m}}(ff00) = W_{\vec{n}\vec{m}}(00ff)$$

$$i \quad \hat{H}_4 = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} D_{\vec{n}\vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}} P_{\vec{m}}^+ P_{\vec{m}}, \quad (1.11)$$

$$D_{\vec{n}\vec{m}} = W_{\vec{n}\vec{m}}(ffff) + W_{\vec{n}\vec{m}}(0000) - W_{\vec{n}\vec{m}}(f00f) - W_{\vec{n}\vec{m}}(0ff0).$$

1.2. Dinamička i kinematička interakcija eksitona

U daljim analizama poslednji član u hamiltonijanu (1.10) neće biti uziman u obzir, jer se može pokazati da on daje neznatne doprinose energijama eksitona, koji su za faktor $\frac{W_0}{\Delta} \propto \frac{0,1}{5} = 0,02$ manje od doprinosa ostalih delova hamiltonijana. Prema tome, na dalje će biti korišćen sledeći, efektivni hamiltonijan:

$$\hat{H} = H_0 + \sum_{\vec{n}} \Delta P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}} + \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} C_{\vec{n}\vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{m}} + \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} D_{\vec{n}\vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}} P_{\vec{m}}^+ P_{\vec{m}}. \quad (1.12)$$

Na osnovu dobijenih rezultata može se zaključiti da je prelaskom sa operatora lokalizovanih elektrona F^+ i F na operatore P^+ i P koji kreiraju i anihiliraju elektronska pobuđenja na molekulima, dobar deo međumolekulskih interakcija, karakterisanih matričnim elementima $W_{\vec{n}\vec{m}}(f_1 f_2 f_3 f_4)$ uključen u formu \hat{H}_2 , koja je kvadratna po Pauli-operatorima i kao takva karakteriše prenos pobuđenja sa čvora na čvor kristalne rešetke. Na ovaj način stvorena je mogućnost da se relativno lako ispita uticaj međumolekulskih interakcija na prostiranje elektronskog pobuđenja kroz kristal. S druge strane, ovo preim秉tvo s tačke gledišta dinamičke analize, plaćeno je komplikovanom kinematikom Pauli-operatora, sadržanom u komutacionim relacijama (1.3).

Izražen preko Pauli-operatora eksitonski hamiltonijan sadrži forme drugog i četvrtog reda, pri čemu se forme četvrtog reda nazivaju dinamička interakcija eksitona. U teoriji se Pauli-operatori obično izražavaju preko Boze-operatora, zbog čega se usled

razlike u komutacionim relacijama za Pauli- i Boze- operatore, pojavljuju dopunski članovi trećeg i višeg reda po Boze operatorima koji se nazivaju kinematička interakcija eksitona.

Do otkrića lasera pobuđivanje molekulskih kristala svetlošću iz standardnih izvora (živina lampa na primer) stvaralo je male koncentracije eksitona reda 10^{-15} , pa je analiza eksitonskog sistema sa kvadratnim bozonskim hamiltonijanom davala rezultate koji su se slagali sa eksperimentom.

Laseri velike snage stvaraju eksitonske koncentracije reda 10^{-3} i tada se mora uzeti u obzir i kinematička i dinamička interakcija eksitona, da bi se objasnili eksperimenti. Posle otkrića lasera, naglo se razvila tzv. nelinearna optika, koja je proučavala efekte eksiton-eksitonske interakcije, kao što su stvaranje viših harmonika, pomeraj eksitonskih energetskih nivoa i multifotonska apsorpcija. Posebno je bio interesantan efekat multifotonske apsorpcije, koji se sastojao u tome što je molekulski kristal, osvetljen crvenom svetlošću, emitovao ljubičastu svetlost. Ovo se moglo objasniti time što je zbog visokih koncentracija eksitona i njihove međusobne interakcije dolazilo do fuzije dva crvena eksitona u jedan novi eksiton sa približno dvostrukom energijom. U današnjoj etapi izučavanja eksitona uglavnom se radi na problemima nelinearne optike.

1.3. Polariton, vibroni i soliton

U okviru harmonijske teorije eksitona, kada se eksitonski sistem analizira preko kvadratnog hamiltonijana po Boze-operatorima, ovaj ima oblik:

$$H = \Delta \sum_{\vec{n}} B_{\vec{n}}^+ B_{\vec{n}} - \sum_{\vec{n}, \vec{m}} W_{\vec{n}, \vec{m}} B_{\vec{n}}^+ B_{\vec{m}}, \quad (1.13)$$

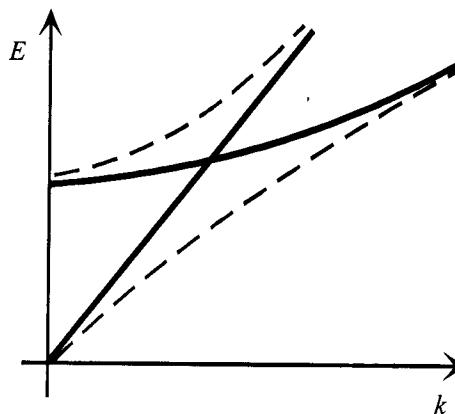
gde je Δ energija potrebna da se elektron u molekulu iz osnovnog stanja 0 prevede u pobuđeno stanje f . Ova energija pobuđenja izolovanog molekula iznosi oko 5 eV, dok je dipol-dipolna interakcija W , kako je to već rečeno, reda 10^{-2} eV. Zbog toga su eksitonii visoko-energetska pobuđenja sa slabim odstupanjem od konstantne vrednosti Δ pri promeni talasnog vektora.

U kristalu stvoreni eksitonii interaguju sa dolazećim "vakuumskim" fotonima retardovanom elektromagnetskom interakcijom, koja nastaje kada se impuls elektrona \vec{p} u elektromagnetskom polju zameni izrazom $\vec{p} - \frac{e}{c} \vec{A}$, gde je e – nanelektrisanje elektrona, c – brzina svetlosti i \vec{A} – vektorski potencijal elektromagnetskog polja. Zbog ovoga kinetička energija elektrona $\frac{p^2}{2m}$ dobija popravku $-2\frac{e}{c}\vec{p} \cdot \vec{A} + \frac{e^2}{c^2} A^2$. Impuls \vec{p}

se izražava preko eksitonskih operatora B^+ i B , dok se vektorski potencijal izražava preko operatora vakuumskih fotona a^+ i a . Proizvod $\vec{p} \cdot \vec{A}$ u kinetičkoj energiji predstavlja kvadratnu formu u kojoj se pojavljuju proizvodi eksitonskih i fotonskih operatora tipa B^+a i a^+B . Ovakav hamiltonian dovodi do hibridizacije eksitona i vakuumskih fotona tako da u kristalu nastaju nova, hibridizovana pobuđenja koja se nazivaju **polariton**. Polariton su realnija slika optičkih pobuđenja u molekulskim kristalima nego što su to Frenkelovi eksiton. Odnos polaritona i eksitona grafički je predstavljen na slici 1.1. Na ovoj slici punim linijama su predstavljeni zakoni disperzije eksitona i vakuumskih fotona, dok isprekidane linije predstavljaju zakone disperzije za polaritone.

Pošto se polaritonske grane ne presecaju, karakteristične optičke veličine (kao na primer permitivnost u polaritonskoj slici) nemaju singularitete, koje bi inače imale ako bi se optičko ponašanje molekulskog kristala opisivalo preko eksitona i vakuumskih fotona i njihove interakcije.

Karakteristična veličina u harmonijskoj optici je permitivnost koja povezuje vektore indukcije i jačine električnog polja. Veza između ove dve veličine u harmonijskoj optici, je linearna. U nelinearnoj optici, vektor indukcije se razvija po stepenima vektora jačine električnog polja, pa se pored permitivnosti kao koeficijenti razvoja pojavljuju i tenzori nelinearne polarizacije.



Slika 1.1: *Energetski spektri eksitona, vakuumskih fotona i polaritona*

Treba još naglasiti da upadni svetlosni kvanti ne moraju da deluju na elektrone u molekulu i da ih prevode iz osnovnog u pobuđeno stanje. Može se desiti da svetlosni kvanti menjaju stanja unutrašnje-molekulskih oscilacija. Eksiton koji nastaju promenom stanja unutrašnje-molekulskih oscilacija nazivaju se **vibroni**. Vibroni, za razliku od eksitona koji nastaju pobuđivanjem elektronskog podsistema, ponekad se nazivaju kulonovski eksiton. Vibronska pobuđenja poslužila su kao osnova za razvijanje teorije **solitona**, tj. talasa koji su dugoživeći i pri kretanju ne menjaju formu. Treba napomenuti da su soliton u molekulskim kristalima intenzivno izučavani u poslednje tri decenije, dok su soliton vodenih talasa poznati već više od jednog veka. Primer vodenog solitona je Cunami-talas koji dovodi do katastrofalnih razaranja.

Završavajući ovaj kratki pregled eksitonih talasa želimo da napomenemo da se u poslednje vreme ovi intezivno proučavaju u nanostrukturama. Osnovni cilj ovih istraživanja je odabiranje takvih graničnih uslova, koji bi pri laserskom osvetljavanju nanostrukturu doveli do povećanja eksitonih koncentracija. Maksimalno dostignute koncentracije u makrostrukturama, pomoću najjačih lasera ne premašuju vrednost od 10^{-3} . Očekuje se da bi podesnim izborom graničnih uslova u nanostrukturama eksitonske koncentracije mogle da se povećaju 10 do 100 puta.

2. Difuzija optičkih pobuđenja u tankim molekulskim filmovima

U ovom delu biće analizirana difuzija Frenkelovih eksitonu u tankom molekulskom filmu. Koeficijent difuzije je jedna od kinetičkih karakteristika materijala i zbog toga se analiza eksitonske difuzije može tretirati kao doprinos boljem poznavanju difuzionih procesa u molekulskim kristalima.

Prepostavljamo da je molekulski kristal "isečen" iz anizotropne kubne strukture (ortorombičke strukture) i da su mu konstante rešetke u pravcima x , y i z : a_x , a_y i a_z , respektivno. Takođe ćemo prepostaviti da padajući na molekul svetlosni kvanti prevode elektron iz osnovnog stanja u samo jedno pobuđeno stanje (dvonivoska šema molekulskih pobuđenja). Tada su eksitonski operatori-Pauli-operatori o kojima je bilo reči u uvodnom delu.

Tenzor difuzije je dat izrazom:

$$\bar{\mathcal{D}}_{\vec{m},\vec{n}} = \int_0^{\infty} dt e^{-\alpha} \langle v_{\vec{m}}(0) v_{\vec{n}}(t) \rangle; \quad \varepsilon \rightarrow 0+, \quad (2.1)$$

gde je $\langle v_{\vec{m}}(0) v_{\vec{n}}(t) \rangle$ korelaciona funkcija eksitonskih brzina.

2.1. Korelaciona funkcija brzina eksitona

Brzina eksitona definiše se kao izvod po vremenu vektora rešetke koji je dat u operatorskoj formi. Vektor rešetke je jednočestični operator, pa se preko elektronskih operatora a_s^+ i $a_{s'}^-$ daje u obliku kvadratne forme:

$$\hat{n} = \sum_{s,s'} \vec{M}_{ss'} a_{ns}^+ a_{ns'}^-, \quad (2.2)$$

gde su:

$$\vec{M}_{ss'} = \int d^3\xi_{\vec{n}} \psi_s^+(\xi_{\vec{n}}) \hat{\vec{n}} \psi_{s'}(\xi_{\vec{n}}), \quad (2.3)$$

matrični elementi operatora $\hat{\vec{n}}$, dok su $\xi_{\vec{n}}$ unutrašnje koordinate molekula.

Pošto je pretpostavljeno da je šema molekulskih pobuđenja dvonivoska, indeksi s i s' uzimaju vrednosti 0 i f . Dijagonalni matrični elementi $\vec{M}_{0,0}$ i $\vec{M}_{f,f}$ jednaki su nuli, pa zbog toga formulu (2.2) možemo napisati na sledeći način:

$$\hat{\vec{n}} = \vec{M}_{0,f} a_{\vec{n}0}^+ a_{\vec{n}f} + \vec{M}_{f,0} a_{\vec{n}f}^+ a_{\vec{n}0} = \vec{M}_{0,f} P_{\vec{n}} + \vec{M}_{f,0} P_{\vec{n}}^+; \quad \vec{M}_{f,0} = \vec{M}_{0,f}^*. \quad (2.4)$$

Naglašavamo da je poslednji stav u ovoj formuli dobijen na osnovu definicije uvedene u prethodnom odeljku, na osnovu koje je $P_{\vec{n}}^+ = a_{\vec{n}f}^+ a_{\vec{n}0}$, tj. $P_{\vec{n}} = a_{\vec{n}0}^+ a_{\vec{n}f}$.

Na osnovu definicije operatora brzine, može se pisati:

$$\vec{v}_{\vec{n}} = \dot{\vec{n}} = \frac{1}{i\hbar} [\vec{n}, H], \quad (2.5)$$

a kombinujući sa (2.4), dobijamo:

$$\vec{v}_{\vec{n}}(t) = \frac{1}{i\hbar} \left\{ \vec{M}_{0,f} [P_{\vec{n}}(t), H] + \vec{M}_{0,f}^* [P_{\vec{n}}^+(t), H] \right\}. \quad (2.6)$$

U trenutku $t = 0$ i $\vec{n} \rightarrow \vec{m}$, izraz (2.6) postaje

$$\vec{v}_{\vec{m}}(0) = \frac{1}{i\hbar} \left\{ \vec{M}_{0,f} [P_{\vec{m}}(0), H] + \vec{M}_{0,f}^* [P_{\vec{m}}^+(0), H] \right\}. \quad (2.7)$$

Kombinacijom dve poslednje formule dobija se izraz za korelacionu funkciju eksitonskih brzina:

$$\begin{aligned} < v_{\vec{m}}(0) v_{\vec{n}}(t) > = & \frac{1}{\hbar^2} \left\{ M_{0,f}^2 \left[P_{\vec{m}}(0), H \right] \cdot \left[P_{\vec{n}}(t), H \right]_t + \right. \\ & + \left(M_{0,f}^* \right)^2 \left[P_{\vec{m}}^+(0), H \right] \cdot \left[P_{\vec{n}}^+(t), H \right] + \left| M_{0,f} \right|^2 \left[P_{\vec{m}}(0), H \right] \cdot \left[P_{\vec{n}}^+(t), H \right] + \\ & \left. + \left| M_{0,f} \right|^2 \left[P_{\vec{m}}^+(0), H \right] \cdot \left[P_{\vec{n}}(t), H \right] \right\}. \end{aligned} \quad (2.8)$$

Korelacione funkcije koje figurišu u ovom izrazu mogu se odrediti preko paulionskih Grinovih funkcija i to:

- retardovane:

$$\Gamma_R = \langle\langle P_{\vec{n}}(t) | P_{\vec{m}}^+(0) \rangle\rangle, \quad (2.9)$$

– avansovane:

$$\Gamma_A = \langle\langle P_{\vec{n}}^+(t) | P_{\vec{m}}(0) \rangle\rangle. \quad (2.10)$$

Pošto operatori P^+ i P kreiraju i anihiliraju eksitone, funkcije Γ biće dalje nazivane eksitonske Grinove funkcije.

2.2. Eksitonske Grinove funkcije u tankom filmu

Za dvonivosku šemu molekulskih pobuđenja, hamiltonijan Frenkelovih eksitona (1.12), poprima oblik:

$$H = \sum_{\vec{n}, \vec{m}} A_{\vec{n}, \vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}} + \sum_{\vec{n}, \vec{m}} B_{\vec{n}, \vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{m}} + \sum_{\vec{n}, \vec{m}} C_{\vec{n}, \vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}} P_{\vec{m}}^+ P_{\vec{m}}, \quad (2.11)$$

gde su:

$$A_{\vec{n}, \vec{m}} = \Delta \delta_{\vec{n}, \vec{m}} + D_{\vec{n}, \vec{m}}; \quad D_{\vec{n}, \vec{m}} = D_{\vec{m}, \vec{n}}; \quad B_{\vec{n}, \vec{m}} = B_{\vec{m}, \vec{n}}; \quad C_{\vec{n}, \vec{m}} = C_{\vec{m}, \vec{n}}.$$

Prvo ćemo potražiti retardovanu Grinovu funkciju:

$$\Gamma_{\vec{n}, \vec{m}} = \langle\langle P_{\vec{n}}(t) | P_{\vec{m}}^+(0) \rangle\rangle = \theta(t) \langle [P_{\vec{n}}(t), P_{\vec{m}}^+(0)] \rangle, \quad (2.12)$$

gde je

$$\theta(t) = \begin{cases} 1, & t > 0; \\ 0, & t < 0, \end{cases}$$

Hevisajdova step-funkcija.

Diferencirajući izraz (2.12) po vremenu, dobijamo:

$$\frac{d}{dt} \Gamma_{\vec{n}, \vec{m}} = \delta_{\vec{n}, \vec{m}} \delta(t) (1 - 2 \langle P^+ P \rangle) + \theta(t) \left[\frac{dP_{\vec{n}}(t)}{dt}, P_{\vec{m}}^+(0) \right]. \quad (2.13)$$

Jednačine kretanja za operatore P su date sa:

$$\frac{dP_{\vec{n}}(t)}{dt} = \frac{1}{i\hbar} [P_{\vec{n}}(t), H]. \quad (2.14)$$

pa se posle zamene ovoga u (2.13) dobija:

$$i\hbar \frac{d}{dt} \Gamma_{\vec{n},\vec{m}} = i\hbar \delta_{\vec{n},\vec{m}} \delta(t) (1 - 2P^+ P)_+ << [P_{\vec{n}}, H]_t | P_{\vec{m}}^+(0) >>. \quad (2.15)$$

Pošto je, na osnovu (2.11) i (1.2):

$$[P_{\vec{n}}, H] = \Delta P_{\vec{n}} + D(0)P_{\vec{n}} + \sum_{\vec{g}} B_{\vec{n},\vec{g}} P_{\vec{g}} - 2 \sum_{\vec{g}} B_{\vec{n},\vec{g}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}} P_{\vec{g}} + 2 \sum_{\vec{g}} C_{\vec{n},\vec{g}} P_{\vec{g}}^+ P_{\vec{g}} P_{\vec{n}} \quad (2.16)$$

jednačina (2.15) postaje:

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d}{dt} \Gamma_{\vec{n},\vec{m}} = & i\hbar \delta_{\vec{n},\vec{m}} \delta(t) (1 - 2P^+ P)_+ + \Delta \Gamma_{\vec{n},\vec{m}}(t) + D(0) \Gamma_{\vec{n},\vec{m}}(t) + \\ & + \sum_{\vec{g}} B_{\vec{n},\vec{g}} << P_{\vec{g}}^+(0) >> - 2 \sum_{\vec{g}} B_{\vec{n},\vec{g}} << P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}} P_{\vec{g}} | P_{\vec{m}}^+(0) >> + \\ & + \sum_{\vec{g}} C_{\vec{n},\vec{g}} << P_{\vec{g}}^+ P_{\vec{g}} P_{\vec{n}} | P_{\vec{m}}^+(0) >>. \end{aligned} \quad (2.17)$$

Analizom izraza (2.17) vidi se da, pored jednočestičnih paulionskih Grinovih funkcija, ovde figurišu i dvočestične paulionske Grinove funkcije. Dvočestične Grinove funkcije izrazićemo preko jednočestičnih koristeći tjablikovsku aproksimaciju:

$$<< P_{\vec{n}}^+(t) P_{\vec{n}}(t) P_{\vec{m}}(0) | P_{\vec{l}}^+(0) >> \approx << P_{\vec{n}}^+(t) P_{\vec{n}}(t) >< P_{\vec{m}}(t) | P_{\vec{l}}^+(0) >>. \quad (2.18)$$

Navedena aproksimacija praktično znači da se proces rasejanja eksitona na realnom potencijalu zamenjuje procesom prenosa na "umekšanom" potencijalu, koji predstavlja proizvod realnog potencijala i srednjeg broja eksitona. Koristeći ovu aproksimaciju, jednačinu (2.17) svodimo na:

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d}{dt} \Gamma_{\vec{n},\vec{m}} = & i\hbar \delta_{\vec{n},\vec{m}} \delta(t) \sigma + [\Delta + D(0) + 2 < P^+ P > C(0)] \Gamma_{\vec{n},\vec{m}}(t) + \\ & + \sigma \sum_{\vec{g}} B_{\vec{n},\vec{g}} \Gamma_{\vec{g}\vec{m}}(t) \end{aligned} \quad (2.19)$$

Pošto analiziramo film "isečen" iz ortorombičke strukture, veličine navedene u (2.19) moramo predstaviti u obliku:

$$C(0) = 2C_x + 2C_y + 2C_z; \quad D(0) = 2D_x + 2D_y + 2D_z. \quad (2.20)$$

U toj jednačini figuriše i veličina σ , koja predstavlja parametar uređenosti eksitonskog sistema i koja je data sa:

$$1 - 2 < P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}} > = \sigma. \quad (2.21)$$

U eksitonском sistemu parametar uređenosti je blizak jedinici, pošto su najveće do sada postignute koncentracije eksitona $< P^+ P >$ reda 10^{-3} .

Poslednji član na desnoj strani jednačine (2.19) uzećemo u aproksimaciji najbližih suseda (ostali članovi u ovoj jednačini već su uzeti u ovoj aproksimaciji). Posle ovoga (2.19) postaje:

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d}{dt} \Gamma_{n_x, n_y, n_z; m_x, m_y, m_z}(t) &= i\hbar \delta_{\vec{n}, \vec{m}} \delta(t) \sigma + \\ &+ [\Delta + 2(D_x + D_y + D_z) + 4 < P^+ P > (C_x + C_y + C_z)] \Gamma_{n_x, n_y, n_z; m_x, m_y, m_z}(t) + \\ &+ \sigma \left\{ \Delta B_x [\Gamma_{n_x+1, n_y, n_z; m_x, m_y, m_z}(t) + \Gamma_{n_x-1, n_y, n_z; m_x, m_y, m_z}(t)] + \right. \\ &+ B_y [\Gamma_{n_x, n_y+1, n_z; m_x, m_y, m_z}(t) + \Gamma_{n_x, n_y-1, n_z; m_x, m_y, m_z}(t)] + \\ &\left. + B_z [\Gamma_{n_x, n_y, n_z+1; m_x, m_y, m_z}(t) + \Gamma_{n_x, n_y, n_z-1; m_x, m_y, m_z}(t)] \right\}, \end{aligned} \quad (2.22)$$

gde su B interakcije koje odgovaraju prenosu eksitona sa čvora na čvor uzete u aproksimaciji najbližih suseda.

U jednačini (2.22) izvršićemo Furije transformacije tipa vreme-frekvencija:

$$f(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega e^{-i\omega t} f(\omega); \quad \delta(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega e^{-i\omega t}, \quad (2.23)$$

a takođe i parcijalne transformacije tipa 2D prostor-talasni vektor

$$\begin{aligned} \Gamma_{n_x, n_y, n_z; m_x, m_y, m_z}(\omega) &= \frac{1}{N_x N_y} \sum_{k_x, k_y} \gamma_{n_z, m_z}(k_x, k_y, \omega) e^{ik_x a_x (n_x - m_x) + ik_y a_y (n_y - m_y)}; \\ \delta_{n_x, m_x} &= \frac{1}{N_x} \sum_{k_x} e^{ik_x a_x (n_x - m_x)}; \quad \delta_{n_y, m_y} = \frac{1}{N_y} \sum_{k_y} e^{ik_y a_y (n_y - m_y)}, \end{aligned} \quad (2.24)$$

u kojima je iskorišćena činjenica da je film translatorno invarijantan u XY ravnima. Na taj način jednačina (2.22) se svodi na:

$$b \gamma_{n_z+1, m_z} + b \gamma_{n_z-1, m_z} + \rho \gamma_{n_z, m_z} = f_{n_z, m_z}; \quad f_{n_z, m_z} \equiv -\frac{i\hbar}{2\pi} \sigma \delta_{n_z, m_z} \quad (2.25)$$

gde su:

$$\sigma B_z = b ; \quad (2.26)$$

$$\rho \equiv \rho(k_x, k_y) = \Delta + 2(D_x + D_y + D_z) + 4 < P^+ P > (C_x + C_y + C_z) + \\ + 2\sigma(B_x \cos a_x k_y + B_y \cos a_y k_x) - E . \quad (2.27)$$

Dobijena jednačina važi za idealnu strukturu, jer u njoj nisu iskorišćeni granični uslovi duž z pravca. Uzećemo da se ovi granični uslovi sastoje u odsustvu slojeva $n_z = -1$ i $n_z = N_z + 1$. S obzirom na ovo, granični uslovi se mogu formulisati na sledeći način:

$$B_{n_x, n_y, 0; n_x, n_y, -1} = B_{n_x, n_y, N_z; n_x, n_y, N_z + 1} = 0 ; \\ C(0) = 2C_x + 2C_y + C_z ; \quad D(0) = 2D_x + 2D_y + D_z . \quad (2.28)$$

Primenom navedenih graničnih uslova jednačina (2.25) se razbija na sistem od $(N_z + 1)$ diferencnih jednačina:

$$\underline{1 \leq n_z \leq N_z :} \quad b\gamma_{n_z+1, m_z} + b\gamma_{n_z-1, m_z} + \rho\gamma_{n_z, m_z} = f_{n_z, m_z} ; \quad (2.29)$$

$$\underline{n_z = 0 :} \quad b\gamma_{1, m_z} + (\rho - a_0)\gamma_{0, m_z} = f_{0, m_z} ; \quad (2.30)$$

$$\underline{n_z = N_z :} \quad b\gamma_{N_z-1, m_z} + (\rho - a_0)\gamma_{N_z, m_z} = f_{N_z, m_z} . \quad (2.31)$$

U ovim formulama veličina a_0 je data sa:

$$a_0 = D_z + 2 < P^+ P > C_z . \quad (2.32)$$

Treba naglasiti da parametar uređenosti takođe može da zavisi od n_z , jer zavisi od srednje vrednosti $< P^+ P >$. Ova zavisnost je zanemarena zbog malih vrednosti koje u eksitonskom sistemu imaju veličine $< P^+ P >$.

Rešenje sistema (2.29)–(2.31) potražićemo u obliku:

$$\gamma_{n_z, m_z} = \sum_{\mu=1}^{N'_z} [\alpha_{\mu, m_z} \sin(n_z + 1)\phi_{\mu} + \beta_{\mu, m_z} \sin n_z \phi_{\mu}] , \quad (2.33)$$

u kojoj će veličina gornje granice sume N'_z biti određena kasnije. Zamenom (2.33) u (2.29) dobijamo:



$$\sum_{\mu=1}^{N'_z} (2b \cos \varphi_\mu + \rho) [\alpha_{\mu, m_z} \sin(n_z + 1)\varphi_\mu + \beta_{\mu, m_z} \sin n_z \varphi_\mu] = f_{n_z, m_z}, \quad (2.34)$$

a zamena u (2.30) daje:

$$\sum_{\mu=1}^{N'_z} \left(2b \cos 2\varphi_\mu + \rho + b \frac{\beta_{\mu, m_z}}{\alpha_{\mu, m_z}} - a_0 \right) \alpha_{\mu, m_z} \sin \varphi_\mu = f_{0, m_z}. \quad (2.35)$$

Odavde je lako zaključiti da (2.35) postaje analogno jednačini (2.34) ako je:

$$b \frac{\beta_{\mu, m_z}}{\alpha_{\mu, m_z}} - a_0 = 0 \Rightarrow \beta_{\mu, m_z} = \frac{a_0}{b} \alpha_{\mu, m_z} \quad (2.36)$$

S obzirom na (2.36) izraz (2.33) za funkciju γ postaje:

$$\gamma_{n_z, m_z} = \sum_{\mu=1}^{N'_z} \alpha_{\mu, m_z} \left[\sin(n_z + 1)\varphi_\mu + \frac{a_0}{b} \sin n_z \varphi_\mu \right]. \quad (2.37)$$

Ako se ovaj izraz zameni u (2.31) dobija se:

$$\begin{aligned} & \sum_{\mu=1}^{N'_z} \left[\frac{b \sin N_z \varphi_\mu + a_0 \sin(N_z - 1)\varphi_\mu}{\sin(N_z - 1)\varphi_\mu + \frac{a_0}{b} \sin N_z \varphi_\mu} + \rho - a_0 \right] \alpha_{\mu, m_z} \\ & \cdot \left[\sin(N_z - 1)\varphi_\mu + \frac{a_0}{b} \sin N_z \varphi_\mu \right] = f_{N_z, m_z}, \end{aligned} \quad (2.38)$$

odakle je očigledno da ona postaje analogna relacijama (2.34) i (2.35), ako je ispunjen uslov

$$\frac{b \sin N_z \varphi_\mu + a_0 \sin(N_z - 1)\varphi_\mu}{\sin(N_z - 1)\varphi_\mu + \frac{a_0}{b} \sin N_z \varphi_\mu} + \rho - a_0 = 2b \cos \varphi_\mu,$$

koji se svodi na

$$b^2 \sin(N_z + 2)\varphi_\mu + a_0^2 \sin N_z \varphi_\mu + 2a_0 b \sin(N_z + 1)\varphi_\mu = 0. \quad (2.39)$$

U opštem slučaju jednačina (2.39) ima N'_z realnih rešenja. Može se pokazati da je $N'_z = N_z - 1$ ako je $\left| \frac{b}{a_0} \right| < 1$. Ukoliko je $\left| \frac{b}{a_0} \right| = 1$, broj N'_z jednak je N_z . Ukoliko je $\left| \frac{b}{a_0} \right| > 1$, dobija se da je $N'_z = N_z + 1$.

Rezime ove etape analize može se formulisati na sledeći način. Smena (2.33) svodi sve jednačine sistema (2.29)–(2.31) na jednu jedinstvenu jednačinu:

$$\sum_{\mu=1}^{N'_z} (2b\cos\varphi_{\mu} + \rho) \alpha_{\mu, m_z} \left(\sin(n_z + 1)\varphi_{\mu} + \frac{a}{b} \sin n_z \varphi_{\mu} \right) = -\frac{i\hbar}{2\pi} \sigma \delta_{n_z, m_z}, \quad (2.40)$$

koja važi za sve indekse $n_z = 0, 1, 2, \dots, N_z$ ukoliko je ispunjen uslov (2.39). Pošto je kod eksitonskog sistema $\left| \frac{b}{a_0} \right| < 1$, gornja granica sume je $N'_z = N_z - 1$.

Dalje ćemo uzeti da je α_{μ, m_z} u (2.37), koje zavisi od k_x , k_y i ω dato sa:

$$\alpha_{\mu, m_z}(k_x, k_y, \omega) = \Gamma_{\mu}(k_x, k_y, \omega) \sum_{\nu=1}^{N'_z-1} L_{\mu\nu} \sin(m_z + \nu) \varphi_{\mu}, \quad (2.41)$$

a Kronekerov simbol u obliku:

$$\delta_{n_z, m_z} = \sum_{\mu=1}^{N'_z-1} \left(\sin(n_z + 1)\varphi_{\mu} + \frac{a_0}{b} \sin n_z \varphi_{\mu} \right) \cdot \sum_{\mu=1}^{N'_z-1} L_{\mu\nu} \sin(m_z + \nu) \varphi_{\mu}. \quad (2.42)$$

Koeficijente $L_{\mu\nu}$ u ovim izrazima odredićemo kasnije.

Kombinujući (2.41), (2.42) i (2.40) dobijamo:

$$\Gamma_{\mu}(k_x, k_y, \omega) = -\frac{i\hbar}{2\pi} \sigma \frac{1}{2b\cos\varphi_{\mu} + \rho}. \quad (2.43)$$

Izraz za funkciju Γ može se napisati u obliku:

$$\Gamma_{\mu}(k_x, k_y, \omega) = -\frac{i\hbar}{2\pi} \sigma \frac{1}{E - E_k}, \quad (2.44)$$

gde je energija eksitona:

$$E_k = \Delta + 2(D_x + D_y + D_z) + 4 < P^+ P > (C_x + C_y + C_z) + \\ + 2\sigma (B_x \cos \alpha_x k_x + B_y \cos \alpha_y k_y + B_z \cos \phi_\mu); \quad < P^+ P > = \frac{1 - \sigma}{2}. \quad (2.45)$$

2.3. Korelaciona funkcija eksitona u tankom filmu

Spektralnu intezivnost funkcije Γ na osnovu opšte formule:

$$I_\Gamma(\omega) = \frac{\Gamma_\mu(\omega + i\delta) - \Gamma_\mu(\omega - i\delta)}{e^{\frac{\hbar\omega}{\Theta}} - 1}; \quad \delta \rightarrow +0; \quad \omega_k = \frac{E_k}{\hbar}, \quad (2.46)$$

gde je $\Theta = k_B T$, dobijamo u obliku:

$$I_\Gamma(\omega) = \sigma \frac{\delta(\omega - \omega_{k_x, k_y, \mu})}{e^{\frac{\hbar\omega_{k_x, k_y, \mu}}{\Theta}} - 1}. \quad (2.47)$$

Korelaciona funkcija u impulsnom prostoru na osnovu opšte formule:

$$< P_{k_x, k_y, \mu}^+(0) P_{k_x, k_y, \mu}(t) > = \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega e^{-i\omega_{k_x, k_y, \mu} t} I_\Gamma(\omega), \quad (2.48)$$

postaje: $< P_{k_x, k_y, \mu}^+(0) P_{k_x, k_y, \mu}(t) > = \sigma \frac{e^{-it\omega_{k_x, k_y, \mu}}}{e^{\frac{\hbar\omega_{k_x, k_y, \mu}}{\Theta}} - 1}. \quad (2.49)$

Izraz za korelacionu funkciju u konfiguracionom prostoru dobija se operatorskom primenom Kronekerovog simbola na korelacionu funkciju (2.49). Pod operatorskom primenom Kronekerovog simbola se podrazumeva sledeće: ako je Kronekerov simbol dat sa $\delta_{n,m} = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N e^{ik(n-m)}$, onda njegova operatorska primena na funkciju $F(k)$ znači primenu operatora $\frac{1}{N} \sum_{k=1}^N$ na proizvod $e^{ik(n-m)} \cdot F(k)$. Za neku drugu reprezentaciju Kronekerovog simbola funkcija $F(k)$ se množi faktorom $f_{n,m}(k)$, koji definiše Kronekerov simbol i na proizvod se primenjuje operator $\frac{1}{N'} \sum_{k=1}^{N'}$. Tako dobijamo:

$$\begin{aligned} \langle P_m^+(0)P_n(t) \rangle &= \frac{\sigma}{N_z N_y} \sum_{k_x, k_y, \mu} \frac{e^{-it\omega_{k_x, k_y, \mu}}}{\frac{e^{\frac{i\hbar\omega_{k_x, k_y, \mu}}{\Theta}} - 1}{e^{\frac{i\hbar\omega_{k_x, k_y, \mu}}{\Theta}} + 1}} e^{i(n_x - m_x)a_x k_x + i(n_y - m_y)a_y k_y} \\ &\cdot \left[\sin(n_z + 1)\phi_\mu + \frac{a}{b} \sin n_z \phi_\mu \right] \sum_{v=1}^{N'_z - 1} L_{\mu v} \sin(m_z + v)\phi_\mu. \end{aligned} \quad (2.50)$$

Pošto je Kronekerov simbol δ_{n_z, m_z} definisan relacijom (2.42), očigledno je da su koefficijenti $L_{\mu v}$ određeni sistemom algebarskih jednačina:

$$\delta_{n_z, n_z} = \begin{cases} 1, & n_z = m_z \\ 0, & n_z \neq m_z \end{cases}; \quad (2.51)$$

Formula (2.50) biće iskorišćena za nalaženje korelacione funkcije tipa brzina-brzina.

2.4. Tenzor difuzije u tankom molekulskom filmu

Tenzor difuzije se izražava preko korelacione funkcije $\langle v_{\vec{m}}(0)v_{\vec{n}}(t) \rangle$, koja je data formulom (2.8). Dva prva člana u tom izrazu jednaki su nuli, pošto su izraženi preko srednjih vrednosti koje ne sadrže jednak broj kreacionih i anihilacionih operatora. Srednja vrednost u četvrtom članu formule (2.8) može se odrediti preko retardovane Grinove funkcije (2.9). Srednje vrednosti u trećem članu (2.8) određuju se preko avansovane Grinove funkcije (2.10).

Iz opšte teorije Grinovih funkcija je poznato da za Furije-likove funkcija Γ_R i Γ_A , važi:

$$\Gamma_A(\omega) = \Gamma_R(-\omega). \quad (2.52)$$

Pošto je, na osnovu formule (2.44):

$$\Gamma_R(\omega) = \frac{i\sigma}{2\pi} \frac{1}{\omega - \omega_{k_x, k_y, \mu}}, \quad (2.53)$$

gde je $\omega_{k_x, k_y, \mu} \equiv \frac{E_k}{\hbar}$ – definisano izrazom (2.45), dobija se da je:

$$\Gamma_A(\omega) = -\frac{i\sigma}{2\pi} \frac{1}{\omega + \omega_{k_x, k_y, \mu}}. \quad (2.54)$$

Spektralna intenzivnost avansovane Grinove funkcije je onda:

$$I_\Gamma(\omega) = \frac{\Gamma(\omega + i\delta) - \Gamma(\omega - i\delta)}{e^{\frac{\hbar\omega}{\Theta}} - 1} = -\frac{i\sigma}{2\pi} \left(\frac{1}{\omega + \omega_0 + i\delta} - \frac{1}{\omega + \omega_0 - i\delta} \right). \\ \cdot \frac{1}{e^{\frac{\hbar\omega}{\Theta}} - 1} = -\frac{\sigma}{e^{\frac{\hbar\omega_{k_x, k_y, \mu}}{\Theta}} - 1} \delta(\omega + \omega_{k_x, k_y, \mu}), \quad (2.55)$$

dok je korelaciona funkcija u konfiguracionom prostoru data sa:

$$\langle P_{\vec{m}}(0)P_{\vec{n}}^+(t) \rangle = -\frac{\sigma}{N_x N_y} \sum_{k_z, k_y, \mu} \frac{e^{i t \omega_{k_x, k_y, \mu}}}{e^{\frac{\hbar\omega_{k_x, k_y, \mu}}{\Theta}} - 1} e^{-i(n_x - m_x)a_x k_x - i(n_y - m_y)a_y k_y} \\ \cdot \left[\sin(n_z + 1)\varphi_\mu + \frac{a}{b} \sin n_z \varphi_\mu \right] \cdot \sum_{v=1}^{M'} L_{\mu v} \sin(m_z + v)\varphi_\mu. \quad (2.56)$$

Korelaciona funkcija u četvrtom članu (2.8) sadrži dvočestičnu korelacionu funkciju, koja predstavlja srednju vrednost četiri operatora. Koristeći tjablikovsku aproksimaciju, mi ćemo izraziti ove korelacione funkcije preko jednočestičnih korelacionih funkcija, koje se određuju preko retardovane Grinove funkcije. Pri tome će svi članovi koji sadrže kvadrate eksitonskih koncentracija biti zanemareni.

U isto vreme za dvočestične korelacione funkcije, koje se pojavljuju u trećem članu formule (2.8), koristi se tjablikovska aproksimacija i one se izražavaju preko jednočestičnih avansovanih korelacionih funkcija, koje su date izrazom (2.56).

Koristeći formule (2.50) i (2.56) i aproksimaciju, kojom se u izrazu za $\langle v_{\vec{m}}(0)v_{\vec{n}}(t) \rangle$ zadržavaju samo članovi proporcionalni Δ^2 , $D \cdot \Delta$ i $B \cdot \Delta$, za korelacionu funkciju $\langle v_{\vec{m}}(0)v_{\vec{n}}(t) \rangle$ dobijamo sledeći izraz:

$$\begin{aligned}
 < v_{\vec{m}}(0) v_{\vec{n}}(t) > = & \frac{(M_{f0})^2}{(i\hbar)^2} \frac{\sigma}{N_z N_y} \sum_{k_x, k_y, \mu} e^{i(n_x - m_x)a_x k_x + i(n_y - m_y)a_y k_y} \\
 & \cdot \left[\sin(n_z + 1)\varphi_\mu + \frac{a_0}{b} \sin n_z \varphi_\mu \right] \\
 & \cdot \sum_{\nu=1}^{N'_z} L_{\mu\nu} \sin(m_z + \nu) \varphi_\mu \left(\frac{e^{-it\omega_{k_x, k_y, \mu}} - e^{it\omega_{k_x, k_y, \mu}}}{e^{\frac{\hbar\omega_{k_x, k_y, \mu}}{\Theta}} - 1} \right. \\
 & \left. - \frac{e^{-it\omega_{k_x, k_y, \mu}} - e^{it\omega_{k_x, k_y, \mu}}}{e^{\frac{-\hbar\omega_{k_x, k_y, \mu}}{\Theta}} - 1} \right). \tag{2.57}
 \end{aligned}$$

Na osnovu formule:

$$\vec{D}_{\vec{n}\vec{m}} = \int_0^\infty dt e^{-\alpha} < v_{\vec{m}}(0) v_{\vec{n}}(t) >; \alpha \rightarrow 0, \tag{2.58}$$

sledi da tenzor difuzije ima oblik:

$$\begin{aligned}
 \vec{D}_{\vec{n}\vec{m}} = & \frac{2(M_{f0})^2}{\hbar\Delta} \frac{\sigma}{N_z N_y} \sum_{k_x, k_y, \mu} \frac{1}{\omega_{k_x, k_y, \mu}} e^{i(n_x - m_x)a_x k_x + i(n_y - m_y)a_y k_y} \\
 & \cdot \left[\sin(n_z + 1)\varphi_\mu + \frac{a_0}{b} \sin n_z \varphi_\mu \right] \\
 & \cdot \sum_{\nu=1}^{N'_z} L_{\mu\nu} \sin(m_z + \nu) \varphi_\mu \left(\frac{1}{e^{\frac{\hbar\omega_{k_x, k_y, \mu}}{\Theta}} - 1} - \frac{1}{e^{\frac{-\hbar\omega_{k_x, k_y, \mu}}{\Theta}} - 1} \right). \tag{2.59}
 \end{aligned}$$

Dobijeni izraz je komplikovan, pa ćemo u cilju dobijanja jasnije predstave o uticaju narušene simetrije na difuziju izvršiti dalja uprošćavanja ove formule. Zanemarićemo sve članove izuzev člana proporcionalnog Δ . Takođe ćemo bozonsku raspodelu zamenniti bolcmanovskom, što se svodi na

$$\frac{1}{e^{\frac{\hbar\omega_{k_x, k_y, \mu}}{\Theta}} - 1} \approx e^{-\frac{\hbar\omega_{k_x, k_y, \mu}}{\Theta}}; \quad \frac{1}{e^{\frac{-\hbar\omega_{k_x, k_y, \mu}}{\Theta}} - 1} \approx -1$$

Pored toga navećemo samo dijagonalne elemente tenzora difuzije:

$$\begin{aligned} |\bar{\mathcal{D}}_{n_z}| = & \frac{(M_{f0})^2}{\hbar} \sigma \Delta \left\{ 1 + e^{-\frac{\Delta}{\Theta}} \left(1 - \frac{6D + 12 \langle P^+ P \rangle C}{\Theta} \right) + \right. \\ & \left. + \frac{2\sigma B_0}{\Theta} e^{-\frac{\Delta}{\Theta}} \sum_{\mu=1}^{N'_z} \left[\sin(n_z + 1)\varphi_\mu + \frac{a_0}{b_0} \sin n_z \varphi_\mu \right] \cdot \cos \varphi_\mu \cdot \sum_{\mu=1}^{N'_z} L_{\mu\nu} \sin(n_z + \nu) \varphi_\mu \right\}. \end{aligned} \quad (2.60)$$

Pošto su svi dijagonalni elementi tenzora difuzije međusobno jednaki, dalje možemo govoriti o koeficijentu difuzije eksitona. U formuli (2.60) je prepostavljeno da eksitoni imaju pozitivnu disperziju, pa je zbog toga b iz formule (2.59) zamenjeno sa $-b_0$, gde je $b_0 > 0$, dok je B zamenjeno sa $-B_0$.

Kao ilustrativni primer ispitaćemo koeficijent difuzije u tankom molekulskom filmu koji sadrži četiri molekulska sloja. Ovi slojevi označeni su sa $n_z = 0, 1, 2$ i 3 .

Uzećemo da je $\frac{a_0}{b_0} = 8$. Za navedeni izbor parametara jednačina (2.39), u kojoj je b zamenjeno sa $-b_0$, ima dva realna rešenja:

$$\varphi_1 = 1,12635 \text{ rad}; \quad \varphi_2 = 2,15902 \text{ rad}. \quad (2.61)$$

To znači da se u četvoroslojnem filmu pojavljuju samo dva eksitona. Ova dva eksitona, ako pretpostavimo da se oni nalaze u dva susedna sloja, mogu se nalaziti u slojevima $n_z = 0$ i $n_z = 1$, ili u slojevima $n_z = 1$ i $n_z = 2$ ili u slojevima $n_z = 2$ i $n_z = 3$. Potfilmovi 0–1 i 2–3 su potpuno ekvivalentni pa je dovoljno ispitati samo jedan od njih. Zbog toga ćemo ispitati samo subfilme 0–1 i 1–2.

Za subfilm 0–1 vrednosti koeficijenata L su:

$$\begin{aligned} L_{11} &= 2,01347; & L_{21} &= 2,02689; \\ L_{12} &= 4,25651; & L_{22} &= 6,54585. \end{aligned} \quad (2.62)$$

To znači da je korekciona član u (2.60) – treći član na desnoj strani te jednačine:

$$\delta |\bar{\mathcal{D}}_{n_z}| = 4 \frac{(M_{f0})^2}{\hbar} \Delta \cdot \frac{2\sigma^2 B_0}{\Theta} e^{-\frac{\Delta}{\Theta}}, \quad (2.63)$$

za $n_z = 0$. Za $n_z = 1$ ova korekcija je:

$$\delta|\vec{D}_{n_z}| = -4 \frac{(M_{f0})^2}{\hbar} \Delta \cdot \frac{2\sigma^2 B_0}{\Theta} e^{-\frac{\Delta}{\Theta}} \quad (2.64)$$

Zapaža se da u subfilmu 0–1 koeficijent difuzije zavisi od prostornog indeksa n_z , kojim se numerišu slojevi.

Za potfilm 1–2 koeficijenti L su dati sa:

$$\begin{aligned} L_{11} &= -0,07075; & L_{21} &= 0,08599; \\ L_{12} &= 0,09624; & L_{22} &= 0,06963. \end{aligned} \quad (2.65)$$

Kada se ove vrednosti uvrste u izraz za koeficijent difuzije dobija se da su obe korekcije $\delta|\vec{D}_{n_z}|$ i za $n_z = 1$ i za $n_z = 2$ jednake nuli. Ovaj rezultat je razumljiv pošto se slojevi 1 i 2 nalaze u istim poljima sila dipol-dipolne interakcije.

3. *Zaključak*

Izučavanje optičkih pobuđenja u materijalnim sredinama doživelo je svoj procvat posle otkrića lasera. Gusti laserski snopovi doveli su do relativno visoke koncentracije optičkih pobuđenja, a kao posledica povišene koncentracije pojavili su se viši harmonici, dvo i trofotonska apsorpcija i šiftovi energetskih nivoa. Izučavanje ovih efekata stvorilo je novu granu optičkih izučavanja nazvanu nelinearna optika. Na izvestan način izučavanje nelinearnih optičkih efekata i usavršavanje lasera bili su u obostrano korisnoj vezi. Usavršavanje lasera stvaralo je nove nelinearne efekte, a poznavanje nelinearnih efekata služilo je za usavršavanje lasera. Ovakvo stanje trajalo je nešto više od jedne decenije, a posle toga nastupio je izvestan zastoj u istraživanjima. Osamdesetih godina optička istraživanja doživljavaju nov uspon vezan za analizu solitonskih pobuđenja.

Izučavanje kinematičkih pobuđenja predstavlja široko i neispitano polje koje bi moglo da da nove i interesantne rezultate i da bude inspiracija za neke nove ideje i istraživanja.

Rezimirajući izvršene analize možemo navesti sledeće dve rezultatske činjenice:

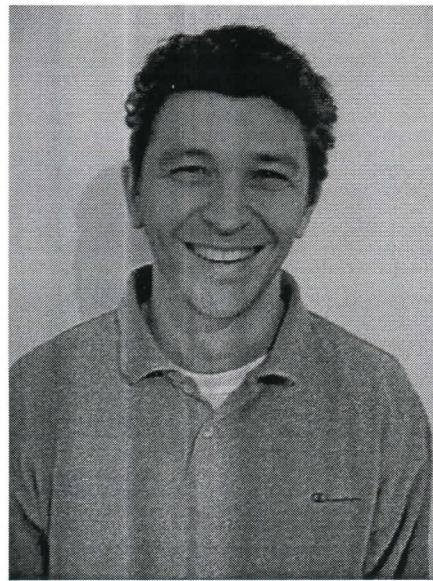
1. U tankom molekulskom filmu broj eksitona je manji od broja molekula u filmu za $2 \cdot 10^{16}$.
2. U graničnim slojevima četvoroslojnog filma (0–1 i 2–3) eksitoni imaju različite koeficijente difuzije. U centralnom sloju četvoroslojnog filma (1–2) eksitoni u oba sloja imaju isti koeficijent difuzije. Ovaj rezultat je fizički prihvatljiv s obzirom na činjenicu da se slojevi $n_z = 0$ i $n_z = 3$ nalaze u asimetričnim poljima sila dipol-dipolne interakcije, dok je polje ovih sila simetrično za molekule koji se nalaze u unutrašnjosti filma.

4. Literatura

1. V.M.Agranovich:
TEORIJA EKSITONOV,
Hayka, Moskva 1968.
2. L.L.Chang and L. Esaki,
Phys. Today Oct. 36 (1992).
3. M.G.Cottam and D.R.Tilley:
INTRODUCTION TO SURFACE AND
SUPERLATTICE EXCITATIONS,
Univ.Press, Cambridge 1989.
4. D.Raković:
FIZIČKE OSNOVE I KARAKTERISTIKE
ELEKTROTEHNIČKIH MATERIJALA,
Elektrotehnički fakultet, Beograd 1995.
5. G.Rickayzen:
GREEN'S FUNCTIONS AND CONDENSED MATTER,
Academic Press, London 1980.
6. B.S.Tošić:
STATISTIČKA FIZIKA,
PMF IF, Novi Sad 1978.
7. G.Mahan:
MANY PARTICLE PHYSICS,
Plenum Press, New York 1990.
8. V.M.Agranovich and V.L.Ginzburg:
CRYSTALOPTIC WITH SPACE DISPERSION
AND THEORY OF EXCITONS,
Nauka, Moskwa 1979.
9. I.D.Vragović, S.M.Vučenović, J.P.Šetrajić,
S.M.Stojković, D.Lj.Mirjanić i D.Raković:
OPTIČKE KARAKTERISTIKE DIELEKTRIČNIH FILMOVA,
Zbornik radova 2. Simpozijum industrijske elektronike, 33-37 (1999).
10. C.Kittel:
QUANTUM THEORY OF SOLIDS,
Wiley, New York 1963.



Kratka biografija autora



Rodjen 01.10.1976. u Novom Sadu. Završio osnovnu školu "22. oktobar" u Rumenci, a zatim gimnaziju "Jovan Jovanović Zmaj" u Novom Sadu. Prirodno-matematički fakultet, odsek za fiziku, smer diplomirani fizičar upisao 1995.

Novi Sad, 01.11.2005.

Stevan Jankov

A handwritten signature in blue ink, appearing to read "Stevan Jankov". It is written in a cursive, flowing style with a horizontal line underneath it.

UNIVERZITET U NOVOM SADU
PRIRODNO-MATEMATIČKI FAKULTET

KLJUČNA DOKUMENTACIJSKA INFORMACIJA

Redni broj:

RBR

Identifikacioni broj:

IBR

Tip dokumentacije:

Monografska dokumentacija

TD

Tip zapisa:

Tekstualni štampani materijal

TZ

Vrsta rada:

Diplomski rad

VR

Autor:

Stevan Jankov, br.dos. 103/95

AU

Mentor:

Dr Jovan Šetrajčić, redovni profesor, PMF, Novi Sad

MN

Naslov rada:

Frenkelovi eksitoni u nanostrukturnim filmovima

NR

Jezik publikacije:

srpski (latinica)

JP

Jezik izvoda:

srpski/engleski

JI

Zemlja publikovanja:

Srbija i Crna Gora

ZP

Uže geografsko područje:

Vojvodina

UGP

Godina:

2005

GO

Izdavač:

Autorski reprint

IZ

Mesto i adresa:

Prirodno-matematički fakultet, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad

MA

Fizički opis rada:

(4/26/10/1/1/1/2)

FO

Naučna oblast:

Fizika

NO

Naučna disciplina:

Fizika čvrstog stanja

ND

Predmetna odrednica/ ključne reči:

Eksitoni, nanostrukture, tanki molekulski filmovi, Grinove funkcije, tenzor difuzije

PO

UDK

Čuva se:

Biblioteka departmana za fiziku, PMF-a u Novom Sadu

ČU

Važna napomena:

Nema

VN

Izvod:

U radu je primjenjen metod dvovremenskih Grinovih funkcija na nalaženje korelace funkcije brzina-brzina. Ovaj izraz poslužio je za određivanje matričnih elemenata tenzora difuzije eksitona u nanostrukturnim molekulskim filmovima. Pokazana je dvodimenzionala slojevita difuzija eksitona.

IZ

Datum prihvatanja teme od NN veća:

27.10.2005.

DP

Datum odbrane:

06.12.2005.

DO

Članovi komisije:

KO

Predsednik:

Dr Srđan Rakić, docent, PMF, Novi Sad

član:

Dr Jovan Šetrajčić, redovni profesor, PMF, Novi Sad

član:

Dr Vjekoslav Sajfert, vanredni profesor, Tehnički fakultet, Zrenjanin

UNIVERSITY OF NOVI SAD
FACULTY OF SCIENCE AND MATHEMATICS

KEY WORDS DOCUMENTATION

<i>Accession number:</i>	
ANO	
<i>Identification number:</i>	
INO	
<i>Document type:</i>	Monograph publication
DT	
<i>Type of record:</i>	Textual printed material
TR	
<i>Content code:</i>	Final paper
CC	
<i>Author:</i>	Stevan Jankov
AU	
<i>Mentor/comentor:</i>	Dr Jovan Šetrajčić
MN	
<i>Title:</i>	Frenkel's Excitons in Nanostructure Films
TI	
<i>Language of text:</i>	Serbian (Latin)
LT	
<i>Language of abstract:</i>	English
LA	
<i>Country of publication:</i>	Serbia and Montenegro
CP	
<i>Locality of publication:</i>	Vojvodina
LP	
<i>Publication year:</i>	2005
PY	
<i>Publisher:</i>	Author's reprint
PU	
<i>Publication place:</i>	Faculty of Science and Mathematics, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad
PP	
<i>Physical description:</i>	(4/26/10/1/1/2)
PD	
<i>Scientific field:</i>	Physics
SF	
<i>Scientific discipline:</i>	Solid State Physics
SD	
<i>Subject/ Key words:</i>	Excitons, nanostructures, thin molecular films, Green's functions, diffusion tensor
SKW	
<i>UC</i>	
<i>Holding data:</i>	Library of Department of Physics, Trg Dositeja Obradovića 4
HD	
<i>Note:</i>	None
N	
<i>Abstract:</i>	The method of the two-time dependent Green's functions to researching speed-speed correlation function was applied. The obtained expression was used for determination of matrix elements of exciton diffusion tensor. It was shown two-dimensional layered excitonic diffusion.
AB	
<i>Accepted by the Scientific Board:</i>	
ASB	
<i>Defended on:</i>	27.10.2005
DE	
<i>Thesis defend board:</i>	06.10.2005.
DB	
<i>President:</i>	Dr Srđan Rakić, Assistant Professor, Faculty of Sciences, Novi Sad
<i>Member:</i>	Dr Jovan Šetrajčić, Full Professor, Faculty of Sciences, Novi Sad
<i>Member:</i>	Dr Vjekoslav Sajfert, Associated Professor, Technical Faculty, Zrenjanin