

АНАЛОГ ОСОБЕННОСТИ МИГДАЛА–КОНА И РАДИАЦИОННАЯ ШИРИНА ВЫСОКОЧАСТОТНОЙ ВЕТВИ ПОЛЯРИТОННОГО СПЕКТРА ОГРАНИЧЕННОГО КРИСТАЛЛА ТИПА J -АГРЕГАТА

*О. А. Дубовский**

*Государственный научный центр Российской Федерации — Физико-энергетический институт
249020, Обнинск, Калужская обл., Россия*

Поступила в редакцию 10 июля 2003 г.

Исследуются спектры возбуждений кристаллических ансамблей когерентно излучающих взаимодействующих квантовых электрических дипольных осцилляторов. Для одномерного кристалла типа J -агрегата получена система динамических уравнений, которая в различных предельных случаях может быть использована для исследования излучения оптических фотонов, рентгеновских и γ -квантов. Получено точное аналитическое решение дисперсионного уравнения для поляритонов — смешанных состояний экситонов Френкеля и поперечных фотонов. Показано, что высокочастотная поляритонная ветвь с аномально высоким радиационным уширением имеет предельный волновой вектор окончания спектра не вследствие того, что, как полагалось ранее, уширение становится сравнимым с частотой, а вследствие того, что при этом происходит гладкая стыковка этой поляритонной ветви со второй, определяемой из дисперсионного уравнения, нефизической ветвью. В этой точке производная дисперсионной кривой обращается в бесконечность, что является аналогом известной особенности Мигдала–Кона в фононных спектрах металлов. Показано, что вследствие точного учета собственной радиационной ширины изолированного осциллятора низкочастотная поляритонная ветвь также имеет небольшое уширение.

PACS: 71.36.+c, 71.35.Aa

1. ВВЕДЕНИЕ

Исследования спектральных характеристик когерентного электромагнитного дипольного излучения кристаллических систем из атомов и молекул с разрешенными электрическими дипольными переходами ведутся уже длительное время [1–4]. Когерентное γ -излучение кристаллической цепочки «выстроенных» ядер в атомах изучалось в [1], сдвиг и уширение мессбауэровской линии в трехмерном кристалле исследовалось в [2]. В низкочастотной оптической области спектра изучение аналогичных спектральных характеристик кристаллов различного типа проводилось для поляритонов — когерентных смешанных состояний кулоновских экситонов Френкеля и поперечных фотонов [3, 4]. При всей существенной разности отношения длины волны излучения λ к постоянной решетки a с $\lambda/a \ll 1$ для γ -квантов и $\lambda/a \gg 1$ для оптических фотонов

соответствующие когерентные состояния являются предельными волновыми решениями одного и того же дисперсионного уравнения. Поэтому по особенностям спектра в одном оптическом пределе можно судить о возможности аналогичной особенности в другом пределе γ -излучения. В оптической области исследований отдельное место занимает экспериментальное и теоретическое изучение спектра поляритонов в ограниченных кристаллах — J -агрегатах, молекулярных кристаллических цепочках бесконечной [5] и ограниченной длины [6], в двумерных кристаллах типа монослоя, стопках плоскостей [7, 8], сверхрешетках и т. д. [9]. Интерес к этим исследованиям связан с тем обстоятельством, что в ограниченных кристаллах из мономеров с дипольными оптическими переходами вследствие запаздывающего взаимодействия одна из двух найденных ранее в [3, 5] поляритонных ветвей (высокочастотная) в одномерных и двумерных кристаллах имеет большую радиационную ширину, определяемую вероятностью излучения фотонов в пространство вне кри-

*E-mail: dubov@ippe.obninsk.ru

стала. В модели неограниченного трехмерного кристалла такая радиационная ширина для поляритонов высокочастотной ветви не найдена [3].

В работах [3, 5] было показано, что радиационные полуширины поляритонов $\hbar\Gamma$ в одномерных и двумерных кристаллах соответственно равны

$$\hbar\Gamma^{(1)} \approx \hbar\gamma(\lambda/a), \quad \hbar\Gamma^{(2)} \approx \hbar\gamma(\lambda/a)^2,$$

где $\hbar\gamma$ — собственная полуширина линии излучения изолированного дипольного осциллятора. Для оптических переходов с типичными для молекулярных кристаллов типа антрацена энергиями дипольного перехода в мономере $E_0 \approx 5$ эВ, $\lambda \approx 10^{-6}$ см, $a \approx 10^{-8}$ см увеличение Γ по сравнению с γ составляет несколько порядков. Для оптических переходов с дипольным моментом перехода $P \approx 2e \cdot 10^{-8}$ см и $\hbar\gamma = E_0^3 P^2 / \hbar^3 c^3 \approx 10^{-2}$ МэВ величина $\hbar\Gamma$ составляет уже относительно большую величину (1–100 МэВ). Этот эффект аномально большого уширения, найденного в [5], был впоследствии обнаружен экспериментально с использованием пикосекундных лазеров [10, 11]. В настоящее время он известен как эффект «superradiance» [12].

При изучении спектра поляритонов в одномерных кристаллах было показано [5], что в области волновых векторов $k < E_0/\hbar c$ при одном и том же k существуют две поляритонные ветви с энергиями $E_k^{(r,n)}$ — высокочастотная с энергией $E_k^{(r)} > k\hbar c$ с большой радиационной полушириной $\Gamma_k^{(r)}$, обрывавшейся выше, и низкочастотная с энергией $E_k^{(n)} < k\hbar c$ без радиационной ширины. При $k = 0$ энергия $E_k^{(r)}$ примерно равна энергии кулоновского экситона, а затем при увеличении k энергия $E_k^{(r)}$ понижается, приближаясь к световой оси $E = \hbar kc$. При этом полуширина $\Gamma_k^{(r)}$ для рассмотренного в [3, 5] угла наклона диполей к оси кристалла существенно возрастает вблизи этой оси. Вследствие сближения понижающейся частоты и увеличивающегося уширения вблизи световой оси ранее полагалось, что понятие квазичастицы теряет смысл, дисперсионная кривая обрывалась, поэтому эта область окончания спектра детально не исследовалась. Энергия низкочастотной ветви $E_k^{(n)}$ при увеличении k и в области $k < E_0/\hbar c$, и в области $k > E_0/\hbar c$ монотонно возрастает, приближаясь к E_0 . Отметим, что в [3, 5] в явном виде не учитывалась собственная радиационная полуширина $\hbar\gamma$, поэтому при вычислениях пришлось вводить дополнительный параметр — волновой вектор обрезания одного из расходящихся интегралов.

В настоящей работе спектр поляритонов одно-

мерного кристалла (как первого в ряду ограниченных кристаллов) изучен более детально без привлечения дополнительных параметров с учетом собственного затухания изолированного мономера при различных углах наклона дипольного момента перехода к оси кристалла. Получено соответствующее дисперсионное уравнение. При критическом угле θ наклона дипольного момента перехода к оси кристалла $\theta = \theta_0 = \arccos(1/\sqrt{3})$, когда кулоновское взаимодействие диполей тождественно равно нулю, найдены три точных аналитических решения этого дисперсионного уравнения, и эти решения наиболее наглядно выявляют следующие характерные особенности поляритонного спектра. Самое высокочастотное и самое низкочастотное из этих решений отвечают поляритонным ветвям $E_k^{(r)}$ и $E_k^{(n)}$. Третье решение с промежуточной между первыми двумя частотой определяет ветвь нефизических состояний. Эта нефизическая ветвь представляет интерес лишь в той мере, в какой ее дисперсионная зависимость определяет поведение реальных поляритонных ветвей, поскольку они все являются решениями одного дисперсионного уравнения. Решение дисперсионного уравнения показывает, что с увеличением k при определенном $k = k_c$ происходит гладкое соединение ветви $E_k^{(r)}$ и ветви нефизических состояний. В точке соединения, являющейся точкой окончания ветви $E_k^{(r)}$, производная

$$\left| \frac{dE_k^{(r)}}{dk} \right| = \infty,$$

т. е. в крайней точке спектра присутствует особенность — аналог особенности Мигдала–Кона в фоновых спектрах металлов с сильным экранированием ион-ионного взаимодействия электронной подсистемой [13]. Аномально большая радиационная полуширина $\hbar\Gamma_k^{(r)}$ («superradiance») с увеличением k возрастает, но в точке окончания ветви имеет вполне определенную величину, существенно меньшую энергии ветви в этой точке. Поэтому окончание ветви определяется не тем обстоятельством, что уширение становится сравнимым с энергией, а тем, что происходит гладкое соединение этой ветви с ветвью нефизических состояний и в точке соединения наблюдается аналог особенности Мигдала–Кона. Наличие этой ранее не отмеченной особенности в поляритонном спектре может представлять интерес для последующих экспериментальных исследований, аналогичных многочисленным экспериментальным исследованиям особенности Мигдала–Кона. Отметим, что низкочастотная поляритонная ветвь $E_k^{(n)}$ вследствие

учета γ , в отличие от [3, 5], также имеет некоторое зависящее от k слабое, но конечное уширение $\Gamma_k^{(n)} < \gamma$. При углах наклона, отличных от θ_0 , вследствие того что некоторые кулоновские диполь-дипольные суммы аналитически не представляются, использовалось численное решение полученного дисперсионного уравнения. При этом в некоторой критической точке $k = k_c$ по-прежнему наблюдается окончание радиационной ветви с аналогом особенности Мигдала-Кона. Общее поведение поляритонных ветвей и их радиационных уширений вполне аналогичны отмеченным выше. Некоторые количественные изменения обсуждаются ниже. Отметим, что представляет интерес исследование возможности проявления аналогов обнаруженных особенностей спектра поляритонов в ограниченных двумерных кристаллах в развитии [7, 8] и в трехмерных кристаллах конечного объема, в том числе в развитии [2] для γ -квантов.

2. ВЫВОД ДИСПЕРСИОННОГО УРАВНЕНИЯ

Рассмотрим одномерный кристалл с мономерами в узлах na ($n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$), ориентированными так, что дипольный момент оптического перехода в каждом мономере составляет угол θ с осью кристалла. Исследуем собственные дипольные колебания этой системы, как и для изолированного осциллятора в [14], первоначально в классическом подходе, а затем в квантовой теории в представлении вторичного квантования. В классической теории электромагнитного излучения системы дипольных осцилляторов при учете запаздывающего взаимодействия на частоте ω при временной зависимости $\exp(-i\omega t)$ генерируемая диполем в n -узле с фурье-компонентой $\mathbf{d}_{n\omega}$ напряженность электрического поля $\mathbf{E}_{m\omega}(n)$, действующего на диполь в узле m , равна [15]

$$\mathbf{E}_{m\omega}(n) = \left((\mathbf{d}_{n\omega} - 3\mathbf{s}_c(\mathbf{s}_c\mathbf{d}_{n\omega})) \times \left(-\frac{1}{|n-m|^3 a^3} + \frac{i\omega/c}{|n-m|^2 a^2} \right) + (\mathbf{d}_{n\omega} - \mathbf{s}_c(\mathbf{s}_c\mathbf{d}_{n\omega})) \frac{\omega^2/c^2}{a|n-m|} \right) \exp\left(i\frac{\omega a}{c}|n-m|\right). \quad (1)$$

В (1) \mathbf{s}_c — единичный вектор в направлении оси кристалла. Первый член с $|n-m|^{-3}$ определяет поле в ближайшей кулоновской неволновой зоне, второй член с $|n-m|^{-2}$ поле в промежуточной зоне и третий член с $|n-m|^{-1}$ — поле в волновой зоне. Динамическое уравнение движения классического дипольно-

го осциллятора как пары зарядов $(-e, e)$ с массами $(M \rightarrow \infty, \mu)$, связанных упругой силой с частотой ω_0 собственных колебаний, имеет вид [14]

$$(\omega^2 - \omega_0^2 + i2\gamma\omega_0) \mathbf{d}_{m\omega} = -T \sum_n \mathbf{E}_{m\omega}(n), \quad (2)$$

$$T = \frac{e^2}{\mu}, \quad \gamma = \frac{1}{3} T \frac{\omega_0^2}{c^3},$$

где γ — полуширина линии излучения ($\gamma < \omega_0$) изолированного дипольного осциллятора, определяющая его затухание вследствие лучистого трения [14], T — соответствующая константа связи, определяемая этой же константой γ . Константы T и γ перенормируются ниже в квантовом подходе. Поскольку все дипольные моменты ориентированы в одном направлении $\mathbf{d}_{n\omega} = d_{n\omega} \mathbf{s}_d$ с единичным вектором \mathbf{s}_d вдоль направления диполей, для амплитуды $d_{n\omega}$ после проецирования (2) на \mathbf{s}_c подстановка (1) в (2) приводит к системе секулярных уравнений

$$(\omega^2 - \omega_0^2 + i2\gamma\omega_0) d_{m\omega} = T \sum_{n \neq m} \left(\alpha \left(\frac{1}{|n-m|^3 a^3} - \frac{i\omega/c}{|n-m|^2 a^2} \right) - \beta \frac{\omega^2/c^2}{|n-m|a} \right) \exp\left(i\frac{\omega a}{c}|n-m|\right) d_{n\omega}, \quad (3)$$

$$\alpha = 1 - 3 \cos^2 \theta, \quad \beta = \sin^2 \theta.$$

В квантовой теории в представлении вторичного квантования соответствующий гамильтониан имеет следующий вид [3, 16]:

$$\begin{aligned} H &= H_0 + H_f + H_{int}, \quad H_0 = \sum_n \hbar\omega_0 B_n^+ B_n, \\ H_f &= \sum_{\mathbf{q}j} \hbar q c a_{\mathbf{q}j}^+ a_{\mathbf{q}j}, \\ H_{int} &= - \sum_n \mathbf{P}_n \mathbf{E}_n, \quad \mathbf{P}_n = \mathbf{s}_d P (B_n^+ + B_n), \\ P &= \sqrt{\frac{\hbar e^2}{2\mu\omega_0}}, \\ \mathbf{E}_n &= i \sum_{\mathbf{q}j} \mathbf{e}_{\mathbf{q}j} C_q (a_{\mathbf{q}j} - a_{-\mathbf{q}j}^+) \exp(ina(\mathbf{q}\mathbf{s}_c)), \\ C_q &= \sqrt{\frac{2\pi\hbar c q}{V}}. \end{aligned} \quad (4)$$

В (4) $B_n^+, B_n, a_{\mathbf{q}j}^+, a_{\mathbf{q}j}$ — бозе-операторы рождения, уничтожения возбуждений квантовых гармонических осцилляторов и фотонов с волновым вектором \mathbf{q} и двумя ($j = 1, 2$) нормальными к \mathbf{q} ортами поляризации $\mathbf{e}_{\mathbf{q}j}$, P — соответствующий матричный

элемент оператора дипольного момента перехода между состоянием нулевых колебаний и первым возбужденным состоянием, V — основной объем квантования фотонов. Квадратичный гамильтониан (4) может быть диагонализирован стандартным u, v преобразованием Боголюбова–Тябликова [3]. При этом система уравнений для функций $u_n, v_n, u_{\mathbf{q}j}, v_{\mathbf{q}j}$, осуществляющих переход от операторов $B_n^+, B_n, a_{\mathbf{q}j}^+, a_{\mathbf{q}j}$ к операторам рождения и уничтожения поляритонов ξ^+, ξ [3] с энергией E , имеет следующий вид

$$(E - \hbar\omega_0)u_n = -iP \sum_{\mathbf{q}j} C_q (\mathbf{s}_d \mathbf{e}_{\mathbf{q}j}) (u_{\mathbf{q}j} - v_{-\mathbf{q}j}) \times \exp(ina(\mathbf{q}\mathbf{s}_c)), \quad (5a)$$

$$(E - \hbar qc)u_{\mathbf{q}j} = iPC_q (\mathbf{s}_d \mathbf{e}_{\mathbf{q}j}) \times \sum_m (u_m + v_m) \exp(-ima(\mathbf{q}\mathbf{s}_c)), \quad (5б)$$

$$v_n = \frac{\hbar\omega_0 - E}{\hbar\omega_0 + E} u_n, \quad v_{-\mathbf{q}j} = \frac{E - \hbar cq}{E + \hbar cq} u_{\mathbf{q}j}. \quad (5в)$$

Подстановка (5б) в (5в) и затем в (5а) приводит к уравнению для u_m

$$(E^2 - \hbar^2\omega_0^2) u_n = \frac{8P^2\pi\hbar\omega_0}{V} \times \sum_{m\mathbf{q}j} (\mathbf{s}_d \cdot \mathbf{e}_{\mathbf{q}j})^2 \frac{(\hbar cq)^2 \exp(i(n-m)a(\mathbf{q}\mathbf{s}_c))}{E^2 - (\hbar cq)^2} u_m. \quad (6)$$

Переходя в (6) от суммирования по \mathbf{q} к интегрированию:

$$V^{-1} \sum \rightarrow (2\pi)^{-3} \int d\mathbf{q}$$

и выбирая запаздывающие волны соответствующим образом полюса в фотонной функции Грина

$$\frac{1}{E^2 - (\hbar cq)^2 + i\varepsilon} = P \frac{1}{E^2 - (\hbar cq)^2} - i\pi\delta(E^2 - \hbar^2 c^2 q^2), \quad \varepsilon \rightarrow +0, \quad (7)$$

приходим после вычислений соответствующих интегралов к уравнению

$$(E^2 - \hbar^2\omega_0^2 + i\hbar^2 2\gamma\omega_0) u_n = T\hbar^2 \sum_{m \neq n} \left(\alpha \left(\frac{1}{|n-m|^3 a^3} - \frac{iE/\hbar c}{|n-m|^2 a^2} \right) - \beta \frac{E^2/\hbar^2 c^2}{a|n-m|} \right) \exp\left(i \frac{Ea}{\hbar c} |n-m|\right) u_m, \quad (8)$$

$$T = \frac{2P^2\omega_0}{\hbar}, \quad \gamma = \frac{2P^2\omega_0^3}{3\hbar c^3}.$$

Уравнение (8) является квантовым аналогом уравнения (3) с переопределенными константами γ, T . При переходе от (6) к (8) для члена самодействия с $n = m$ в (6) полагалось, что расходящаяся действительная часть определяет бесконечную полевую массу, включенную в μ в соответствии с общим подходом [14]. В неявном виде именно эта процедура была проведена в [3, 5] введением дополнительного параметра для обрезания соответствующего расходящегося интеграла, что и определило ранее выдвигавшуюся причину окончания радиационной ветви. Мнимая составляющая в (7) для члена с $n = m$ определяет собственную переопределенную полуширину $\hbar\gamma$.

Вследствие трансляционной инвариантности уравнение (8) имеет решение в виде плоской волны

$$u_n = u \exp(ikan)$$

с волновым вектором k . Для этого решения подстановка в (8) приводит для волнового вектора k и частоты $\omega = E/\hbar$ к следующему дисперсионному уравнению:

$$\omega^2 - \omega_0^2 + i2\gamma\omega_0 = 2T \sum_{r=1}^{\infty} \left(\alpha \left(\frac{1}{r^3 a^3} - \frac{i\omega/c}{r^2 a^2} \right) - \beta \frac{\omega^2/c^2}{ra} \right) \times \cos(kra) \exp\left(\frac{i\omega ra}{c}\right). \quad (9)$$

Нетрудно видеть, что когда запаздывающее взаимодействие исключается, т.е. при $c \rightarrow \infty$, в правой части (9) остается только диполь-дипольная кулоновская сумма, определяющая энергию кулоновских экситонов [3].

В безразмерных переменных $\Omega = \omega a$ и $K = ka$ пять из входящих в правую часть (9) шести сумм

$$S_{\omega k}^{r,m} = \sum_{r=1}^{\infty} r^{-m} \cos(\Omega r) \cos(Kr), \quad (10)$$

$$S_{\omega k}^{i,m} = \sum_{r=1}^{\infty} r^{-m} \sin(\Omega r) \cos(Kr), \quad m = 1, 2, 3,$$

после некоторых вычислений [17] могут быть представлены аналитически

$$S_{\omega k}^{r,1} = -\frac{1}{4} \ln [1 - \cos(\Omega - K) (1 - \cos(\Omega + K))], \quad (11a)$$

$$S_{\omega k}^{i,1} = \frac{\pi}{2} \theta(\Omega - K) - \frac{\Omega}{2}, \quad (11б)$$

$$S_{\omega k}^{r,2} = \frac{1}{2} \left(\frac{\pi^2}{3} + \frac{\Omega^2 + K^2}{2} \right) - \frac{\pi}{2} (\Omega \theta(\Omega - K) + K \theta(K - \Omega)), \quad (11в)$$

$$S_{\omega k}^{i,3} = \frac{1}{2} \left(\frac{\pi^2 \Omega}{3} + \frac{\Omega^3 + 3\Omega K^2}{6} \right) - \frac{\pi}{2} \left(\frac{\Omega^2 + K^2}{2} \theta(\Omega - K) + K\Omega \theta(K - \Omega) \right), \quad (11\Gamma)$$

$$S_{\omega k}^{i,2} = -\Omega \ln 2 - L \left(\frac{\pi - \Omega - K}{2} \right) + \left(2L \left(\frac{\pi}{2} \right) - L \left(\frac{\pi - \Omega + K}{2} \right) \right) \theta(\Omega - K) + L \left(\frac{\pi - K + \Omega}{2} \right) \theta(K - \Omega). \quad (11\Delta)$$

В (11) ступенчатая функция $\theta(x) = 1$ при $x > 0$ и 0 при $x < 0$, $L(x)$ — известная специальная функция Лобачевского с соответствующим интегральным представлением, удобным для численных расчетов [17]. Отметим, что соотношения (11а) и (11б) использовались в работе [1] как основные при исследовании когерентного излучения γ -квантов. Для функции $S_{\omega k}^{r,3}$ — кулоновской диполь-дипольной суммы — аналитического представления не существует, однако это быстро сходящаяся сумма и ее вычисление в численных расчетах не представляет трудностей.

Для соответствующей системе уравнений (9) функции Грина $G_{\omega k}$, представляющей отклик системы на внешнее воздействие, имеем, очевидно, следующее представление:

$$G_{\omega k} = \frac{1}{\omega^2 - \omega_0^2 + i2\gamma\omega_0 - W'_{\omega k} + iW''_{\omega k}}. \quad (12)$$

В (12) величины $W'_{\omega k}$, $W''_{\omega k}$, представляющие с точностью до размерных коэффициентов действительную и мнимую составляющие собственно-энергетической части, в соответствии с (9) имеют вид

$$W'_{\omega k} = -2T \left(\beta \frac{\omega^2}{c^2 a} S_{\omega k}^{r,1} - \alpha \frac{1}{a^3} S_{\omega k}^{r,3} - \alpha \frac{\omega}{ca^2} S_{\omega k}^{i,2} \right), \quad (13a)$$

$$W''_{\omega k} = 2T \left(\beta \frac{\omega^2}{c^2 a} S_{\omega k}^{i,1} - \alpha \frac{1}{a^3} S_{\omega k}^{i,3} + \alpha \frac{\omega}{ca^2} S_{\omega k}^{r,2} \right). \quad (13б)$$

Отметим, что в $W''_{\omega k}$ входят величины $S_{\omega k}^{i,1}$, $S_{\omega k}^{i,3}$, $S_{\omega k}^{r,2}$, имеющие аналитическое представление в (11). После подстановки (11) в (13б) имеем

$$W''_{\omega k} = 2T \frac{1}{a^3} \left(\left(\beta \frac{\Omega^2(\pi - \Omega)}{2} - \alpha \frac{1}{2} \left(\frac{\pi(\Omega^2 - K^2)}{2} - \frac{2\Omega^3}{3} \right) \right) \theta(\Omega - K) + \frac{\Omega^3}{3} \theta(K - \Omega) \right). \quad (14)$$

Для поляритонов, как полюсов $G_{\omega k}$, зависимость частоты ω от волнового вектора $\omega = \omega(k)$ определяется как решение дисперсионного уравнения

$$\omega^2 - \omega_0^2 - W'_{\omega k} = 0. \quad (15)$$

Зависимости от k радиационных полуширин $\Gamma(k)$ поляритонных ветвей могут быть при фиксированном k определены стандартным образом из соответствующей частотной зависимости мнимой части функции Грина, определяющей плотность поляритонных состояний, сечения рассеяния, поглощения и т. д.:

$$\sigma_k(\omega) = \frac{2\gamma\omega_0 + iW''_{\omega k}}{(\omega^2 - \omega_0^2 - W'_{\omega k})^2 + (2\gamma\omega_0 + W''_{\omega k})^2}. \quad (16)$$

Такой подход наиболее удобен, когда имеется не один изолированный резонанс и можно провести выделение одного нуля и соответствующей ненулевой производной при нем в разложении G^{-1} , а два сближающихся резонанса.

3. ДИСПЕРСИОННЫЕ ЗАВИСИМОСТИ ПОЛЯРИТОНОВ

Для принципиального доказательства существования третьей ветви рассмотрим исключительный случай угла

$$\theta_0 = \arccos(1/\sqrt{3}) = 54^\circ 45'.$$

При этом $\alpha \equiv 0$, $\beta = \beta_0 = 2/3$, кулоновская составляющая взаимодействия мономеров и взаимодействие в промежуточной области отсутствуют. В этом случае уравнение (15) для определения частоты поляритонов имеет вид

$$\omega^2 - \omega_0^2 - \frac{1}{2} T \beta_0 \frac{\omega^2}{c^2 a} \times \ln \left(4 \left(1 - \cos \left(\frac{\omega a}{c} - ka \right) \right) \times \left(1 - \cos \left(\frac{\omega a}{c} + ka \right) \right) \right) = 0. \quad (17)$$

Будем искать вместо зависимости $\omega = \omega(k)$ инвертированную зависимость $k = k(\omega)$. Преобразуем (17) к виду

$$\left(1 - \cos \left(\frac{\omega a}{c} - ka \right) \right) \left(1 - \cos \left(\frac{\omega a}{c} + ka \right) \right) = \frac{1}{4} \exp \left(\frac{\omega^2 - \omega_0^2}{A\omega^2} \right), \quad A \equiv \frac{T\beta_0}{2c^2 a}. \quad (18)$$

Левая часть (18) тождественно равна $(\cos(ka) - \cos(\omega a/c))^2$, и два решения (18) для $k = k(\omega)$ имеют вид

$$k = \frac{1}{a} \arccos \left(\cos \left(\frac{\omega a}{c} \right) + \frac{1}{2} \exp \left(\frac{\omega^2 - \omega_0^2}{2A\omega^2} \right) \right), \quad (19a)$$

$$k = \frac{1}{a} \arccos \left(\cos \left(\frac{\omega a}{c} \right) - \frac{1}{2} \exp \left(\frac{\omega^2 - \omega_0^2}{2A\omega^2} \right) \right). \quad (19б)$$

Обратим внимание на то, что функция частоты в аргументе \arccos в (19а) имеет провал в точке $\tilde{\omega}$, определяемой из уравнения

$$\frac{a}{c} \sin \left(\frac{\tilde{\omega} a}{c} \right) = \frac{\omega_0^2}{2A\tilde{\omega}^3} \exp \left(\frac{\tilde{\omega}^2 - \omega_0^2}{2A\tilde{\omega}^2} \right), \quad (20)$$

поскольку первая составляющая в (19а) уменьшается с увеличением частоты, а вторая увеличивается. Поэтому при фиксированном k , меньшем некоторого k_c , определяемого параметром A , существуют две частоты $\omega_r(k)$, $\omega_c(k)$ с $k < \omega_c(k)/c < \omega_r(k)/c$, удовлетворяющие (19а), а при $k > k_c$ этих ветвей вообще не существует. Наиболее высокая из этих частот $\omega_r(k)$ отвечает найденной ранее поляритонной ветви с энергией $E_k^{(r)}$. Частота $\omega_c(k)$ с $k < \omega_c(k)/c$ является нефизическим решением, обсуждавшимся выше. Для этой ветви, как это видно из (19), вследствие изменения знака соответствующей производной в решениях (19а), (17) полюс G имеет вид $\omega_c(k) - \omega + i\Gamma$, отвечающий нарастающей во времени амплитуде $\exp(-i\omega_c(k)t + \Gamma t)$. Кроме того, у этой нефизической ветви, как это будет видно ниже, групповая скорость превышает световую. Третья поляритонная ветвь $\omega_n(k)$ с $k > \omega_n(k)/c$ определяется из уравнения (19б) и является второй низкочастотной ветвью $E_k^{(n)}$ [3, 5].

Зависимости $k = k(\omega)$ (19) представлены на рис. 1 в безразмерных переменных $\nu = \omega/\omega_0$, $q = kc/\omega_0$ в виде прямой зависимости $\nu = \nu(q)$ при двух базовых, близких к экспериментальным значениям параметрах $\omega_0 a/c = 0.01$ и $2T/ac^2 = 0.1$. Представлен основной квадрат фазовой плоскости $0 < \nu < 1$, $0 < q < 1$, где присутствуют все поляритонные ветви и происходят их наибольшие изменения. Кривая 1, отвечающая высокочастотной составляющей (19а) $\omega_r(k)$, представляет радиационную ветвь. Кривая 2, отвечающая низкочастотной составляющей (19а), в данном масштабе в основном вплотную прилегает с высокочастотной сторо-

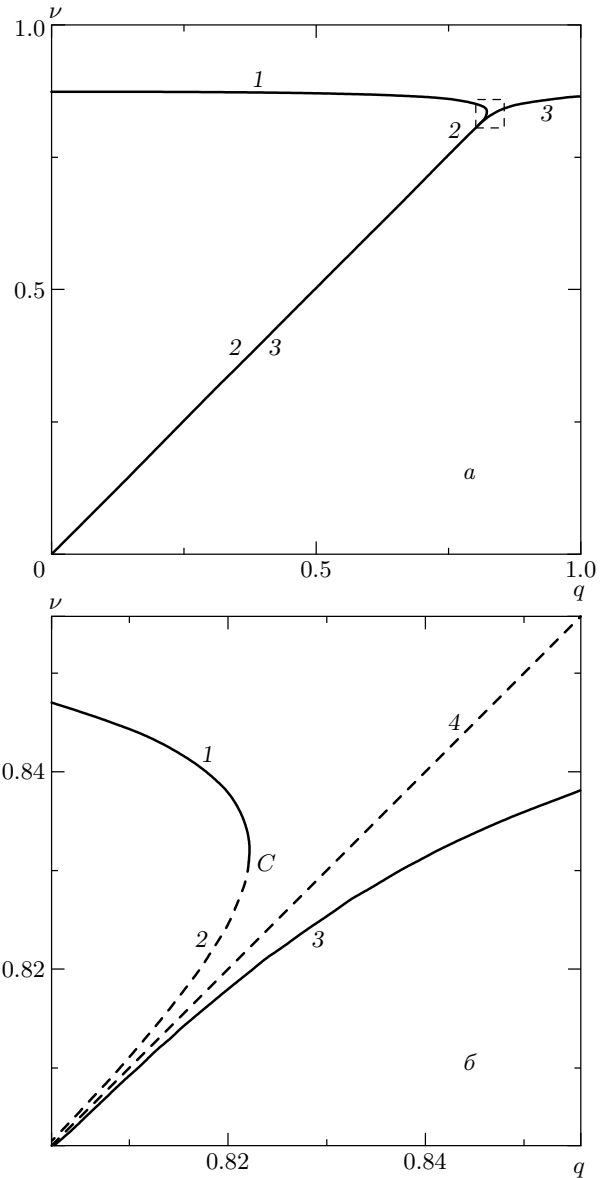


Рис. 1. Дисперсионные зависимости поляритонов: а — дисперсионные кривые при $\theta = \theta_0$, б — аналог особенности Мигдала–Кона в радиационной ветви

ны к световой оси $\nu = q$ и только в квадратной области, обведенной штриховой линией, существенно отходит от световой оси и соединяется с кривой 1 при бесконечных производных. Кривая 3, как решение (19б) отвечающая нерадиационной поляритонной ветви $\omega_n(k)$, при малых q прилегает к световой оси с низкочастотной стороны, а при увеличении $q > 1$ асимптотически стремится к $\nu = 1$ при приближении к границе зоны Бриллюэна $k = \pi/a$. В более крупном масштабе на рис. 1 постепенное уве-

личение отщепления кривой 2 от световой оси при увеличении q отчетливо видно, начиная с $q = 0.8$. Поскольку основные изменения дисперсионных кривых происходят в области, обведенной на рис. 1а штриховой линией, именно эта область представлена на рис. 1б в более крупном масштабе. Нумерация ветвей 1, 2, 3 та же, что и на рис. 1а. Прямая 4 представляет световую ось. На рис. 1б отчетливо видно, что кривая 1 радиационных поляритонов и кривая 2 нефизических состояний стыкуются в точке C с бесконечными производными $|dv/dq| = \infty$. Представляется интересным то обстоятельство, что вследствие окончания ветви 1 в точке C состояния 1 не могут эффективно возбуждаться фотонами с поперечным волновым вектором

$$k_{tr} < \sqrt{(\omega_c/c)^2 - k^2},$$

поскольку ветвь таких фотонов не пересекается с кривой 1.

Для определения $\Gamma(k)$ использовалась, как указано выше, частотная зависимость $\sigma_k(\omega)$. На рис. 2а эта зависимость представлена для $q = 0.81$. Высокочастотный широкий резонанс 1 (сплошная линия) отвечает радиационной ветви 1 на рис. 1. Более узкий резонанс 2 с меньшей частотой (штриховая линия) отвечает нефизическим состояниям. Высокий, уменьшенный в 30 раз пик с наиболее низкой частотой и малой, но, отметим, конечной шириной, отвечает ветви 3. Естественно, необходимо разделение двух резонансов 1 и 2 и исключение нефизического резонанса 2. Однако на данном этапе разделение двух резонансов 1 и 2 так же, как это делается при обработке экспериментальных данных, представляется излишним. Радиационная полуширина Γ ветви 1 определялась стандартным образом как разность частот резонансного максимума 1 и частоты на высокочастотном крыле резонанса 1, при которой σ уменьшается в два раза по сравнению с максимальным значением в резонансе. Зависимость $\Gamma(k)/\omega_0$ для радиационной ветви представлена на рис. 2б кривой 1. Видно, что Γ увеличивается с ростом k . В точке C окончания спектра аномально большая полуширина $\Gamma_c = 4.8 \cdot 10^{-2}\omega_0$ как проявление «superradiance» существенно (на два порядка) превышает собственную полуширину $\gamma = 1.67 \cdot 10^{-4}\omega_0$ и в то же время мала по сравнению с частотой поляритонной ветви в этой точке C , равной $\omega_r(k_c) = 0.843\omega_0$, т. е. $\gamma \ll \Gamma_c \ll \omega_r(k_c)$. На рис. 2б кривой 3 представлена увеличенная в 10^3 раз зависимость от k полуширины пика 3, условно говоря, нерадиационной ветви 3. Величина этой полуширины определялась как разность частоты для мак-

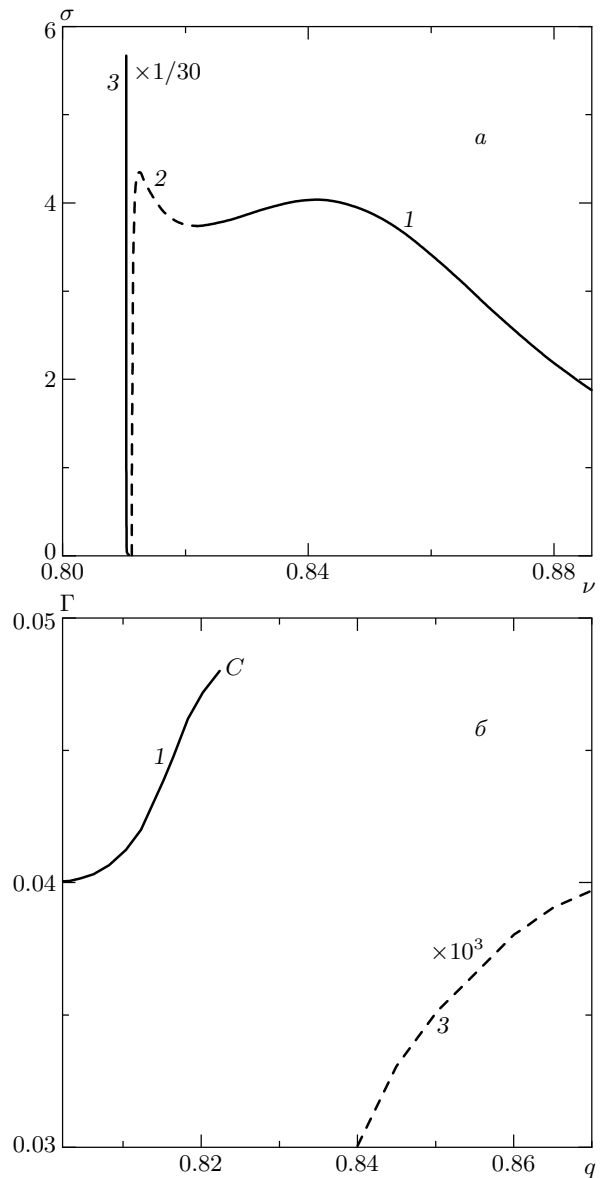


Рис. 2. Частотная зависимость плотности поляритонных состояний (а) и соответствующие зависимости радиационных ширин поляритонов от волнового вектора (б)

симула пика 3 на рис. 2а и частоты на низкочастотном крыле пика, где величина σ уменьшалась в два раза. Уже из общих соображений ясно, что ширина этой ветви равна нулю при $k = 0$. При увеличении k появляется незначительная полуширина этой ветви, меньшая γ . Ее значение составляет на рис. 3 величину $3.5 \cdot 10^{-5}\omega_0 < \gamma$, и при увеличении k полуширина асимптотически стремится к γ . То, что существуют поляритонные состояния с шириной меньше γ , следует уже из рассмотрения системы из двух осцил-

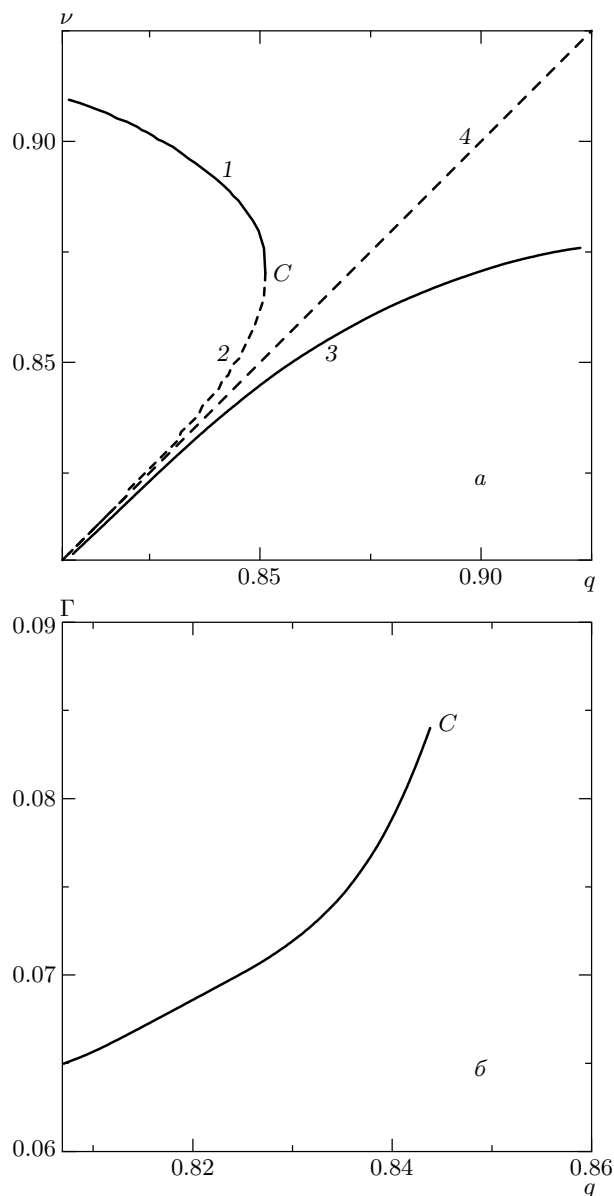


Рис. 3. Дисперсионные зависимости поляритонных ветвей с аналогом особенности Мигдала–Кона (а) и соответствующая радиационная ширина поляритонов (б) для $\theta = \pi/2$

ляторов [1], для которой высокочастотный из двух расщепившихся термов, отвечающий $k = 0$, имеет ширину больше γ , а низкочастотный, отвечающий $k = \pi/a$, меньше γ .

Полученные выше аналитические соотношения позволили проследить эволюцию спектров при варьировании угла θ . На рис. 3 представлены дисперсионные зависимости для кристалла с $\theta = \pi/2$, исследовавшегося в [3, 5]. Использовались те же, что

и выше, значения основных параметров. При этом, поскольку энергия кулоновского взаимодействия существенно возросла, частота кулоновского ($c \rightarrow \infty$) экситона при $k = 0$ составила, как это видно из (9), величину

$$\omega_{Cul} = (\omega_0^2 + 2T\zeta(3)/a^3)^{1/2} = 0.347c/a,$$

где ζ — дзета-функция Римана ($\zeta(3) = 1.202$). Соответственно, в абсолютных единицах все дисперсионные кривые сдвинуты в область более высоких по сравнению с прежним частот и волновых векторов. Для сравнения с предыдущими результатами для построения рис. 3 использовались переменные, нормированные на ω_{Cul} , т.е. безразмерные $\nu = \omega/\omega_{Cul}$ и $q = kc/\omega_{Cul}$. Из рис. 3 видно, что картина качественно не изменилась по сравнению с рис. 1б. Количественно же даже в этих перенормированных переменных произошел определенный сдвиг всей системы дисперсионных ветвей в область больших частот и больших волновых векторов. На рис. 3б представлена зависимость от q полуширины радиационной ветви. Она имеет тот же общий вид, что и на рис. 2б, однако полуширина увеличена в два раза по сравнению с рис. 2б, что естественно, поскольку при $\theta = \pi/2$ запаздывающее взаимодействие максимально, а при $\theta = 0$ в волновой зоне оно вообще отсутствует. При уменьшении θ относительно θ_0 наблюдались изменения дисперсионных кривых и уширений в противоположном относительно рис. 3 направлении. Очевидно, что при уменьшении константы связи, соответствующей силе осциллятора дипольного перехода в изолированном мономере, поляритонные ветви «прижмутся» к линиям $\nu = 1$, $\nu = q$, уширения соответственно уменьшатся так, что уширение в критической точке будет существенно меньше критической частоты. Поэтому не сравнимость уширения и частоты радиационной ветви, а именно указанный выше механизм окончания спектра с аналогом особенности Мигдала–Кона является определяющим. Эта ранее неизвестная особенность поляритонного спектра может представлять интерес для экспериментальных исследований, аналогичных тем многочисленным исследованиям, которые проводились для изучения особенности Мигдала–Кона.

В заключение автор считает своим долгом выразить искреннюю признательность В. М. Аграновичу и Ю. Е. Лозовику за полезные замечания. Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 03-02-96344) и администрации Калужской

области. Работа выполнена при поддержке Российской государственной научно-технической программы «Актуальные направления в физике конденсированных сред».

ЛИТЕРАТУРА

1. М. И. Подгорецкий, И. И. Ройзен, ЖЭТФ **39**, 1473 (1960).
2. Ч. Музикарж, ЖЭТФ **41**, 1168 (1961).
3. В. М. Агранович, *Теория экситонов*, Наука, Москва (1968).
4. В. М. Агранович, В. Л. Гинзбург, *Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов*, Наука, Москва (1965).
5. В. М. Агранович, О. А. Дубовский, Письма в ЖЭТФ **3**, 345 (1966).
6. О. А. Дубовский, ФТТ **40**, 2136 (1998).
7. V. M. Agranovich, O. A. Dubovsky, T. A. Leskova, Th. Neidlinger, and P. Reineker, Chem. Phys. **203**, 11 (1996).
8. V. M. Agranovich, O. A. Dubovsky, and D. Basko, J. Chem. Phys. **106**, 3896 (1997).
9. J. Knoester, Phys. Rev. Lett. **68**, 654 (1992).
10. Я. Аавиксоо, Я. Липмаа, Т. Рейнот, Опт. и спектр. **62**, 419 (1987).
11. B. Deveaud, F. Clerot, N. Roy, K. Satzke, B. Sermage, and D. S. Kutzer, Phys. Rev. Lett. **67**, 2355 (1987).
12. V. M. Agranovich and S. Mukamel, Phys. Lett. **147**, 155 (1990).
13. Н. Ашкрофт, Н. Мермин, *Физика твердого тела*, Мир, Москва (1979), т. 2, с. 141.
14. В. Гайтлер, *Квантовая теория излучения*, Изд-во иностр. лит., Москва (1956).
15. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теория поля*, Наука, Москва (1973), с. 248.
16. А. С. Давыдов, *Квантовая механика*, ГИФиз.-Мат., Москва (1963), с. 629.
17. И. С. Градштейн, И. М. Рыжик, *Таблицы интегралов, сумм, рядов и произведений*, ГИФиз.-Мат., Москва (1963).