

PACS numbers: 71.35.-y, 73.20.Mf, 73.21.-b, 73.22.Lp

## Диффузия когерентных экситонов в квазидвумерных наносистемах

С. И. Покутний, О. В. Науменко, С. Д. Макарук

*Институт металлофизики им. Г. В. Курдюмова НАН Украины,  
бульв. Акад. Вернадского, 36,  
03680, ГСП, Киев-142, Украина*

Исследована температурная зависимость коэффициента диффузии  $D(T)$  при двумерном движении когерентных экситонов в наносистемах (молекулярных наноплёнках, слоистых наноструктурах, биологических наномембранах). Показано, что температурная зависимость  $D(T)$  при двумерном движении экситонов существенно отличается от таковой для трёхмерной диффузии.

Досліджено температурну залежність коефіцієнта дифузії  $D(T)$  при двовимірному русі когерентних екситонів у наносистемах (молекулярних наноплівках, шаруватих наноструктурах, біологічних наномембранах). Показано, що температурна залежність  $D(T)$  при двовимірному русі екситонів суттєво відрізняється від такої для тривимірної дифузії.

The temperature dependence of the diffusion coefficient,  $D(T)$ , is studied for two-dimensional motion of coherent excitons in nanosystems (molecular nanofilms, layered nanostructures, biological nanomembranes). As shown, the temperature dependence of  $D(T)$  substantially differs from that for the three-dimensional diffusion.

**Ключевые слова:** когерентные экситоны, двумерное движение, диффузия.

*(Получено 17 ноября 2011 г.)*

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Одной из причин, стимулирующих исследования миграции энергии электронного возбуждения в квазидвумерных наносистемах, является изучение фотосинтезирующих наносистем с последующей задачей создания их искусственного аналога, а также возможная роль миграции энергии электронного возбуждения в биологических

наносистемах [1]. Определение температурной зависимости коэффициента диффузии  $D(T)$  является пока основным методом изучения степени когерентности экситонов, от которой зависит механизм экситонного переноса энергии. Определение этой зависимости становится актуальным в связи с проблемами переноса энергии электронного возбуждения в квазидвумерных наносистемах (молекулярных наноплёнках [2], слоистых наноструктурах [3], биологических наномембранах [4]).

В настоящей работе исследована температурная зависимость коэффициента диффузии  $D(T)$  при двумерном движении когерентных экситонов в квазидвумерных наносистемах.

## 2. МОДЕЛЬ

Рассмотрим эту задачу в простой модели изолированной изотропной двумерной экситонной зоны с квадратичным законом дисперсии:

$$E(\mathbf{k}) = \frac{(\hbar\mathbf{k})^2}{2m}, \quad (1)$$

где  $\mathbf{k}$  и  $m$  — волновой вектор и эффективная масса экситона соответственно. Будем считать температуру  $T$  достаточно низкой, такой, что средняя тепловая энергия экситонов меньше ширины экситонной зоны  $\Delta$ . Кроме того, будем предполагать рассеяние экситонов на фононах упругим, что справедливо при не слишком низких температурах, когда передаваемая при рассеянии энергия существенно меньше энергии экситонов. Оба эти условия выполняются при [5]:

$$\hbar\omega_0^\alpha, \left(\frac{mv^2}{2}\right) \equiv k_B T_0 \ll k_B T \ll \Delta, \quad (2)$$

где  $v$  — скорость звука;  $k_B$  — постоянная Больцмана;  $\omega_0^\alpha$  — частота  $\alpha$ -й ветви оптических фононов. При этом можно считать, что большинство экситонов имеет квазиимпульсы вблизи

$$k_T = (\overline{k^2})^{1/2} = \hbar^{-1}(2mk_B T)^{1/2} \ll a_0^{-1} \quad (3)$$

(где  $a_0$  — постоянная решётки).

При упругом рассеянии время релаксации  $\tau(k)$  можно вычислить, исходя из формулы Фрёлиха [5]. В результате с учётом процессов поглощения и испускания фонона имеем [6]:

$$\tau^{-1}(k) = \sum_q \frac{q_x}{k_x} [W_1^k(q) - W_2^k(q)], \quad (4)$$

где  $k_x$  и  $q_x$  — соответственно проекции волнового вектора экситона  $\mathbf{k}$

и фонона  $\mathbf{q}$  на направление  $x$ -градиента плотности экситонов;  $W_1^k(q)$  и  $W_2^k(q)$  — вероятности поглощения и испускания фононов экситоном.

В случае двумерного движения экситонов получим выражение для вклада в  $\tau^{-1}(k)$  акустических фононов:

$$\tau_{ac}^{-1}(k) = \frac{3|F_0^{ac}|^2 a_0^3 m}{\pi \hbar^3 k^2} \left( \frac{k_B T}{\hbar v} \right)^3 \int_0^\xi \frac{dx x^3}{(\xi^2 - x^2)^{1/2}} f(x), \quad (5)$$

где параметр  $\xi = 2k(\hbar v / k_B T)$ , а функция

$$f(x) = \frac{\exp(-x) - \exp(x)}{[\exp(x) - 1][\exp(-x) - 1]}. \quad (6)$$

В формулах (5) и (6) для безразмерной переменной  $0 \leq x \leq \xi$ .

При  $\xi \ll 1$ , заменяя функцию  $f(x)$  (6) на её значение  $f(x) \cong 2/x$  при малых  $x$ , получим:

$$\tau_{ac}^{-1}(k) = \frac{6|F_0^{ac}|^2 a_0^3 m k_B T}{\hbar^3 \hbar v}. \quad (7)$$

при

$$T \gg T_1 \equiv 8 \frac{m v^2}{k_B}. \quad (8)$$

При  $\xi \gg 1$  замена в формуле (5) функции  $f(x)$  (6) на  $f(x) \cong 1$  даёт:

$$\tau_{ac}^{-1}(k) = \frac{16|F_0^{ac}|^2 a_0^3 m}{\pi \hbar^3} k, \quad (9)$$

при

$$T \ll T_1. \quad (10)$$

В рамках условия (2) в  $\tau^{-1}(k)$  (4) дают вклад лишь самые низкочастотные ветви оптических фононов, для которых

$$\hbar \omega_0^\alpha \ll \Delta, \quad (11)$$

и только при достаточно высоких температурах:

$$k_B T \gg \hbar \omega_0^\alpha. \quad (12)$$

При

$$k_B T \leq \hbar \omega_0^\alpha \quad (13)$$

приближение упругого рассеяния неприменимо. Однако с ростом

$$\frac{\hbar \omega_0^\alpha}{k_B T} > 1, \quad (14)$$

процесс испускания оптического фонона резко подавлен из-за малого числа экситонов с энергией выше  $\hbar \omega_0^\alpha$ , способных к излучению, а процесс поглощения — из-за малых чисел заполнения фононных состояний также экспоненциально мал. Поэтому при

$$k_B T \ll \Delta \quad (15)$$

вклад оптических фононов может стать заметным только при существовании оптических колебаний низкой частоты и при больших ширинах экситонных зон, чтобы выполнялось неравенство:

$$\hbar \omega_0^\alpha \ll k_B T \ll \Delta. \quad (16)$$

При выполнении условия (16) вклад  $\tau^{-1}(k)$  (4), отвечающий рассеянию на оптических фононах, определяется выражением:

$$\tau_{op}^{-1}(k) = \frac{2a_0^2 m}{\hbar^3} \sum_\alpha |F_{0\alpha}^{op}|^2 \frac{k_B T}{\hbar \omega_0^\alpha}, \quad (17)$$

которое даёт зависимость, аналогичную (7).

При невыполнении неравенства (10), вкладом оптических фононов можно пренебречь. При этом время релаксации  $\tau(k)$  (4), в основном, определяется величиной  $\tau_{ac}(k)$  (9), т.е.

$$\tau(k) \cong \tau_{ac}(k). \quad (18)$$

Температурную зависимость коэффициента диффузии когерентных экситонов  $D(T)$  находим, исходя из газокинетического выражения для коэффициента диффузии [5]:

$$D(T) = \frac{1}{3} \overline{\tau(k) v_k^2(k)} = \frac{\hbar^2}{3m^2} \overline{\tau(k) k^2}, \quad (19)$$

где  $v_k = \hbar k / m$  — скорость экситона, а черта означает усреднение по распределению экситонов.

В рамках больцмановской статистики экситонов, используя выражения (5), (7), (17) и (19), получим температурную зависимость  $D(T)$ .

1. Для коэффициента диффузии  $D(T)$ , обусловленного рассеяни-

ем экситонов на акустических фононах в случае низких температур, таких, что

$$T_1 \gg T \gg T_0, \quad (20)$$

имеем

$$D_{ac}(T) \propto \bar{k} \propto T^{1/2}, \quad (21)$$

а с повышением температуры  $T \gg T_1$

$$D_{ac}(T) \propto \frac{\bar{k}^2}{T} = \text{const.} \quad (22)$$

2. Для коэффициента диффузии  $D(T)$ , вызванного рассеянием на оптических фононах, при низких температурах

$$T < \frac{\hbar\omega_0^\alpha}{k_B} \quad (23)$$

$$D_{op}(T) \ll D_{ac}(T) \propto \bar{k} \propto T^{1/2}, \quad (24)$$

а при достаточно высоких температурах

$$T \gg \frac{\hbar\omega_0^\alpha}{k_B} \quad (25)$$

$$D_{op}(T) \propto \frac{\bar{k}^2}{T} = \text{const.} \quad (26)$$

Следовательно, независимо от роли оптических фононов, согласно формулам (21), (24) и (26), при понижении температуры постоянное значение

$$D(T) = \text{const}$$

сменяется падением  $D(T)$  по закону

$$D(T) \propto T^{1/2}.$$

### 3. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

При двумерном движении молекулярных экситонов температурная зависимость коэффициента диффузии  $D(T)$  существенно отличается от таковой зависимости для трёхмерной диффузии, показывая уменьшение  $D(T) \propto T^{1/2}$  с понижением температуры, в отличие от

роста  $D(T) \propto T^{-1/2}$  для последней [5]. Такое качественное различие позволяет использовать зависимость  $D(T)$  не только для определения степени когерентности экситонов, но и даёт возможность судить о степени анизотропии их движения.

Полученная нами температурная зависимость коэффициента диффузии  $D(T)$  когерентных экситонов может, по-видимому, наблюдаться в квазиульмерных наносистемах, например, мономолекулярных слоях цианиновых красителей толщиной 2,0 нм с хромофорами, погруженными в жирные кислоты [7], и в биологических наномембранах [8], в которых была экспериментально обнаружена двумерная диффузия когерентных экситонов.

## ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. А. П. Шпак, С. И. Покутний, *Коллоидно-химические основы нанонауки* (Киев: Академперіодика: 2005).
2. V. M. Agranovich, *Solid Stat. Commun.*, **72**, No. 5: 487 (1989).
3. S. I. Pokutnyi, *Solid Stat. Phys.*, **43**, No. 4: 828 (2002).
4. S. I. Pokutnyi, *Solid Stat. Phys.*, **35**, No. 5: 1129 (1993).
5. В. М. Агранович, М. Д. Галанин, *Перенос энергии электронного возбуждения в конденсированных средах* (Москва: Наука: 1978).
6. А. И. Ансельм, *Введение в теорию полупроводников* (Москва: Наука: 1978).
7. Н. Д. Жевандров, *Оптическая анизотропия и миграция энергии в молекулярных кристаллах* (Москва: Наука: 1987).
8. О. В. Брагинская, Н. А. Ефремов, *ДАН СССР*, **268**, № 5: 1109 (1983).