UNIVERZITET U NOVOM SADU
PRIRODNO-MATEMATIČKI FAKULTET
INSTITUT ZA FIZIKU

DIPLOMSKI RAD

UTICAJ EKSITON-FONON INTERAKCIJE NA OPTIČKE KARAKTERISTIKE MOLEKULARNIH KRISTALA

Student:
Dokoza T. Antun

NOVI SAD, 1978.

S A D R Ž A J

	U V O D	1
I.	FRENKELOVI EKSITONI	2
II.	FONONI	10
III.	EKSITON-FONON INTERAKCIJA	13
IV.	EKVIVALENTNI HAMILTONIJAN EKSITONA	18
V.	GREENOVA FUNKCIJA I SPEKTRI ELEMENTARNIH EKSITACIJA NASTALIH RASPADOM EKSITONSKIH KAPLJI	23
VI.	TENZOR DIELEKTRIČNE KONSTANTE	32
	ZAKLJUČAK	42
	L I T E R A T U R A	43

U V O D

U ovom radu razmatraćemo neke posledice eksiton-fonon interakcije u molekularnim kristalima sa složenom rešetkom.

Pomoću Frelihove (Frölich) transformacije hamiltonijana eksitoni+fononi, pokazaćemo da efektivna eksiton-eksiton interakcija (usled virtuelne izmene fonona), dovodi do kreacije eksitonskih kaplji. Metodom dvovremenskih temperaturskih Greenovih funkcija, izračunaćemo spektar elementarnih eksitacija u sistemu, nastalih raspadom eksitonskih kaplji. Koristeći, dalje, vezu eksitonskih Greenovih funkcija i tenzora dielektrične konstante ε_{ij}, odredićemo koeficijent apsorpcije elektromagnetnog zračenja u molekularnim kristalima, koji je proporcionalan imaginarnom delu tenzora ε_{ij}. Osnovni cilj rada biće upravo analiza tenzora ε_{ij}, za kristale sa dve podrešetke, koji nam opisuje optičke osobine kristala.

I. FRENKELOVI EKSITONI

Pri interakciji svetlosti sa kristalima dolazi do pobudjivanja molekula, odnosno jona u kristalu, pri čemu ta pobudjivanja mogu biti čisto elektronska ili se pobudjuju i vibracioni nivoi molekula. U daljem radu posmatraćemo samo elektronska pobudjivanja molekula.

Pojavu optičkih pobudjivanja u molekularnim kristalima proučavali su prvi Frenkel i Pajerls, a u poluprovodnicima Vanije i Mot, te su optička pobudjivanja u molekularnim kristalima nazvana - Frenkelovi eksitoni, a u poluprovodničkim kristalima - - eksitoni Vanije-Mota.

U poluprovodnicima eksiton je u suštini vezani par eksiton-šupljina, koje drži na okupu kulonova sila, te se kao neutralna kvazičestica-eksiton kreće kroz kristal. Energija pobudjenja eksitona (energija prelaza elektrona iz valentne u provodnu zonu) je reda veličine eV, a radijus eksitona je nekoliko mikrona.

Pri optičkom pobudjivanju molekularnih kristala pobudjeni elektron ostaje na molekuli, te su Frenkelovi eksitoni mnogo manjeg radijusa (nekoliko angstrema), dok je energija pobudjivanja takodje reda veličine eV.

Usled medjumolekularne interakcije, pobudjivanje sa jednog molekula prenosi na drugo i tako se kreće kroz kristal. Ovaj talas pobudjenja (kvazičestica) u suštini i predstavlja Frenkelov eksiton. U ovom radu dalje će biti razmatrani samo Frenkelovi eksitoni.

Posmatrajmo kristal sa nekoliko molekula u elementarnoj celini. Operator energije tog sistema, u koordinatnoj reprezentaciji ima sledeći oblik:

$$\hat{H} = \sum_{n} \hat{H}_n + \frac{1}{2} \sum_{n,m} \hat{V}_{nm} \tag{1.1}$$

gde je $\hat{H}_n$ hamultnoijan izolovanog molekula, tj. molekula kada ne interaguje sa ostalim molekulama, a član $\hat{V}_{nm}$ predstavlja dipol-dipol interakciju izmedju molekula koji su na mestima n i m; $\vec{n}$ i $\vec{m}$ su vektori rešetke dati u obliku $n = \{\bar{n},\alpha\}$, $m = \{\bar{m},\beta\}$, gde α i β predstavljaju molekule u elementarnoj ćeliji.

S obzirom da je u reprezentaciji druge kvantizacije jednostavnije raditi nego u koordinatnoj reprezentaciji, mi ćemo preći na reprezentaciju druge kvantizacije. Preći ćemo na taj način što ćemo izabrati potpuni sistem funkcija koji karakteriše podsistem, odnosno svojstvene funkcije ϕ_n^f operatora slobodnih molekula $\hat{H}_n$. Stanje kristala karakterišemo sa okupacionim brojem N_{nf}, koji ukazuje da se molekula n nalazi u pobudjenom stanju f. Pošto se molekul može naliziti samo u jednom stanju, okupacioni brojevi N_{nf} zadovoljavaju sledeće relacije:

$$\sum_f N_{nf} = 1 \quad \text{i} \quad \sum_{n,f} N_{nf} = \sigma N \qquad (1.2)$$

gde je

σN - ukupan broj molekula u kristalu koji ima σ-molekula po elementarnoj ćeliji.

Za slučaj fermi čestica N_{nf} ima dve vrednosti 0 i 1. Okupacioni brojevi, N_{nf} se mogu izraziti preko fermijevih operatora pomoću relacije

$$N_{nf} = b_{nf}^{+} b_{nf}.$$

Operatori b_{nf}^{+} je operator kreacije elektrona u stanju f, a b_{nf} je operator anihilacije elektrona na mestu f. Svojstva ovih operatora su

$$b_{nf}^{+} \mid N_{nf} > = (1-N_{nf}) \quad \mid N_{nf}+1 > \qquad (1.3)$$

$$b_{nf} \mid N_{nf} \quad = N_{nf} \quad \mid N_{nf}^{-1} >$$

gde je $|N_{nf} >$ funkcija stanja.

Komutacione relacije za fermi operatore su sledeće:

$$[b_{nf}, b^+_{nf'}] = \delta^+_{ff'}; \; [b_{nf}, b_{nf'}] = [b^+_{nf}, b^+_{nf'}] = 0 \qquad (1.4)$$

Sada ćemo uvesti operatore polja preko sledećih relacija

$$\hat{\psi}(\xi) = \sum_{nf} b_{nf}\, \phi^f_n(\xi) \qquad \hat{\psi}^+(\xi) = \sum_{nf} b^+_{nf}\, \phi^{*f}_n(\ ) \qquad (1.5)$$

Kod operatora $\hat{N}_{nf}$, $\hat{H}_o$, $\hat{V}$ i $\hat{U}$ pri prelazu na reprezentaciju druge kvantizacije sa koordinatne reprezentacije koristimo sledeće relacije:

$$\hat{N} = \int \hat{\psi}^+(\xi)\, \hat{\psi}(\xi)\, d\xi = \sum_{nf} b^+_{nf}\, b_{nf} \qquad (1.6)$$

$$\hat{H}_o = \sum_n \hat{H}_n = \int \hat{\psi}^+(\xi) \sum_n \hat{H}_n\, \hat{\psi}(\xi) d\xi = \sum_{nf} b^+_{nf}\, b_{nf}\, \varepsilon_f$$

$$\hat{V} = \sum_n \hat{V}_n(\xi) = \int \psi^+(\xi) \sum_n \hat{V}_n(\xi)\, \hat{\psi}(\xi)\, d\xi =$$

$$= \sum_{nfj} b^+_{nf}\, b_{nf} < g|\hat{V}_n| f>$$

$$\hat{U} = \sum_{nm} \hat{U}_{nm} = \int \hat{\psi}^+(\xi)\, \hat{\psi}^+(\xi') \sum_{nm} \hat{U}_{nm}\, \hat{\psi}(\xi)\, \hat{\psi}(\xi')\, d\xi\, d\xi' =$$

$$= \sum_{nmfgf'g'} b^+_{nf'}, b^+_{mg'}, b_{mg}\, b_{nf} < f'g'\, \hat{U}_{nm}\, gf>$$

Koristeći relacije(1.6)operator energije (1.1) prevodimo u reprezentaciju kvantizacije i dobijamo sledeći oblik:

$$H = \sum_{nf} \varepsilon_f b^+_{nf} b_{nf} + \frac{1}{2} \sum_{nmff'gg'} b^+_{nf'}, b^+_{mg'}, b_{mg} b_{nf} <f'g'|V_{nm}|gf> \qquad (1.7)$$

Ako je koncentracija pobudjenja u kristalu mala, tada u hamiltonijanu 1.7 možemo zanemariti matrične elemente interakcije izmedju pobudjenih molekula tj. $<f'g'|V_{nm}|fg> \approx 0$, te u hamiltonijanu ostavljamo samo članove interakcije izmedju pobudjenih i nepobudjenih molekula.

Imamo nekoliko tipova te interakcije:

1) Ako se molekuli nalaze u osnovnom stanju, tada se njihova interakcija može predstaviti matričnim elementom oblika $<00|\hat{V}_{nm}|00>$;

2) Matrični element izmedju pobudjenog i nepobudjenog stanja molekula ima oblik $<of|\hat{V}_{nm}|fo>$;

3) Matrični elementi oblika $<of|\hat{V}_{nm}|fo> = M_n^f$ karakteriše prelaz pobudjenja sa jednog na drugi molekul;

4) Matrični elementi oblika $<00|\hat{V}_{nm}|ff> = <ff|\hat{V}_{nm}|00>$ karakteriše kreaciju ili anihilaciju pobudjenja na dva molekula.

Ako se uzmu u obzir samo linearni članovi,operator energije (1.7) ima oblik (u slučaju kada posmatramo samo jedan pobudjeni nivo, tj. f,g=0,1):

$$\hat{H} = \mathcal{E}_0 + \hat{H}_1 + \hat{H}_2 + \hat{H}_3 \qquad (1.8)$$

gde je:

$$\mathcal{E}_0 = N\,\sigma\,\varepsilon_0 + \frac{1}{2}\sum_{nm} <00|V_{nm}|00> \qquad (1.9)$$

$$\hat{H}_1 = \sum_n \Delta_f\,\hat{N}_{nf},\quad \Delta_f \equiv \varepsilon_f - \varepsilon_0 + \sum_m \{<of|V_{nm}|of> - <oo|V_{nm}|oo>|\} \qquad (1.10)$$

$$\hat{H}_2 = \sum_{nm} M_{nm}^f\, b_{no}^+\, b_{mf}^+\, b_{mo}\, b_{uf} \qquad (1.11)$$

$$\hat{H}_3 = \frac{1}{2}\sum_{nm} M_{nm}^f\,(b_{no}^+\, b_{mo}^+\, b_{mf}\, b_{ng} + b_{nf}^+\, b_{mf}^+\, b_{mo}\, b_{no}) \qquad (1.12)$$

Sada prelazimo na Pauli operatore P_{nf}^+ i P_{nf} preko relacije

$$P_{nf} = b_{nf}^+\, b_{nf} \qquad P_{nf}^+ = b_{nf}^+\, b_{no}. \qquad (1.13)$$

Oni zadovoljavaju sledeće komutacione relacije

$$[P_{nf'}, P_{mf}^+] = (1 - 2P_{nf}^+\, P_{nf'})\,\delta_{nm}\,\delta_{ff'} \qquad (1.14)$$

$$[P_{nf}, P_{mf'}] = [P_{mf}^+, P_{mf'}^+] = 0 \quad P_{nf}^2 = P_{nf}^{+2} = 0$$

Operatori energije (1.10); (1.11); (1.12), izraženi preko Paulijevih operatora imaju sledeće oblike:

$$\hat{H}_1 = \sum_n \Delta f \, P^+_{nf} \, P_{nf} \qquad H_2 = \sum_{nm} M^f_{nm} \, P^+_{mf} \, P_{nf} \tag{1.15}$$

$$\hat{H}_3 = \frac{1}{2} \;{}_{nm}\; M^f_{nm} \, (P^+_{mf} \, P^+_{nf} + P_{mf} \, P_{nf})$$

Pri malim koncentracijama $\langle N_{nf}\rangle \ll 1$ možemo Pauli operatore zameniti Boze operatorima preko sledećih relacija

$$P_{nf} \sim B_{nf} \quad \text{i} \quad P^+_{nf} \sim B^+_{nf}.$$

Medjutim, ako koncentracije $\langle N_{nf}\rangle$ nisu mnogo manje od jedinice, tada tačne relacije za prelaz sa Pauli na Boze operatore imaju sledeći oblik (vidi [1]):

$$P_{nf} = \left(\sum_{\nu=0}^{\infty} \frac{(-2)^\nu}{(1+\nu)!} \, B^{+\nu}_{nf} \, B^\nu_{nf} \right)^{\frac{1}{2}} B_{nf}$$

$$P^+_{nf} = B^+_{nf} \left(\sum_{=0}^{\infty} \frac{(-2)^\nu}{(1+\nu)!} \, B^+_{nf} \, B_{nf} \right)^{\frac{1}{2}}$$

Operator energije (1.8) posle ovih aproksimacija, prelaza na Boze-operatore i zanemarivanjem H_3, dobija sledeći oblik:

$$\hat{H} - \mathcal{E}_0 = \Delta\hat{H} = \sum_n \Delta f \, B^+_{nf} \, B_{nf} + \sum_{nm} M^+_{nm} \, B^+_{mf} \, B_{nf} \tag{1.16}$$

EKSITONI U KRISTALIMA SA NEKOLIKO
MOLEKULA U ELEMENTARNOJ ĆELIJI

S obzirom da ćemo dalje posmatrati samo jedan pobudjeni nivo molekula, f = 1, tako da hamiltonijan (1.16) dobija sledeći oblik:

$$H = \sum_{\vec{n}\alpha} \Delta\alpha \, B_{\vec{n}\alpha} + \sum_{\vec{n}\alpha\vec{m}\alpha} nM_{\vec{n}\alpha\vec{m}\beta} \, B^+_{\vec{m}\beta} \, B_{\vec{n}\alpha} \tag{1.17}$$

$$n = (\vec{n},\alpha) \qquad\qquad m = (\vec{m},\beta)$$

gde su $\vec{n}$ i $\vec{m}$ vektori koji karakterišu položaj elementarne ćelije, a α i β karakterišu položaj i orijentaciju molekula u elementarnoj ćeliji $\alpha,\beta=1,2\ldots\sigma$. Hamiltonijan (1.17) ćemo dijagonalizovati tako što prelazimo u impulsni prostor Furje transformacijom

$$B_{\vec{n}\alpha} = \frac{1}{N^{1/2}} \sum_{\vec{\kappa}} A_\alpha (\vec{k})\, e^{i\vec{k}\vec{r}_{n\alpha}} \tag{1.18}$$

Ako (1.18) zamenimo u (1.17) dobijamo

$$H = \sum_{\alpha\vec{k},\vec{k}} \Delta\alpha\, A_\alpha^+ (\vec{k})\, A_\alpha (\vec{k})\, \frac{1}{N} \sum_{\vec{n}} e^{i\vec{r}_{n\alpha}(\vec{k}-\vec{k})} +$$

$$+ \sum_{\alpha\vec{\kappa}\beta\kappa} A_\beta^+ (k)\, A_\alpha(\vec{k})\, \frac{1}{N} \sum_{\vec{n}\vec{m}} M_{\vec{n}\alpha\vec{m}\beta}\, e^{i\vec{k}r_{n\alpha}}\, e^{i\vec{k}'\vec{r}_{m\beta}}$$

S obzirom da je $\frac{1}{N} \sum_{\vec{n}} e^{i(\vec{k}-\vec{k}')r_{n\alpha}} = \delta kk'$ Hamiltonijan dobija sledeći oblik:

$$H = \sum_{\alpha\vec{\kappa}} \Delta\alpha\, A_\alpha^+ (\vec{k})\, A_\alpha(\vec{k}) + \sum_{\kappa\alpha\beta} L_{\alpha\beta} (\vec{k})\, A_\beta^+ (\vec{k})\, A_\alpha(\vec{k}) \tag{1.19}$$

Da bismo dijagonalizovali hamiltonijam (1.19) vršimo unitarnu transformaciju:

$$A_\alpha (\vec{k}) = \sum_{\mu=1}^{\sigma} U_{\alpha\mu}(\vec{\kappa}) B_\mu(\vec{\kappa}) \tag{1.20}$$

Ako (1.20) pomnožimo sa $U^*_{\alpha\mu}(\vec{k})$ i sumiramo po α, dobijamo

$$\sum_\alpha U^*_{\alpha\mu} (\vec{\kappa})\, A_\alpha (\vec{k}) = \sum B_\mu(\vec{k}) \sum_\alpha U^*_{\alpha\mu'}(\vec{k})\, U_{\alpha\mu}(\vec{k})$$

$$\sum_\alpha U^*_{\alpha\mu'} (k)\, U_{\alpha\mu} (\vec{k}) = \delta_{\mu\mu'}$$

pa je

$$B_\mu(\vec{k}) = \sum_\alpha U^*_{\alpha\mu}(\vec{k}) A_\alpha (\vec{k}) \tag{1.21}$$

Koristeći(1.20) hamiltonijam (1.19) dobija sledeći oblik:

$$\hat{H} = \sum_{\kappa\alpha\mu_1\mu_2} \Delta_\alpha U^*_{\alpha\mu_1} (\vec{k}) U_{\alpha\mu_2} (\vec{k}) B^+_{\mu_1} (\vec{k}) B_{\mu_2} (\vec{k}) +$$

$$\sum_{\kappa\alpha\beta\mu_1\mu_2} L_{\alpha\beta}(\vec{k}) U_{\beta\mu_1} (\vec{k}) B^+_{\mu_1} (\vec{k}) B_{\mu_2} (\vec{k}) =$$

$$= \sum_{\mu_1\vec{\kappa}} E_\mu (\vec{k}) B^+_{\mu_1} (\vec{k}) B_{\mu_1} (\vec{k}) \tag{1.22}$$

Da bismo našli energiju $E_\mu(\vec{k})$ koristićemo Hajzenbergovu jednačinu kretanja i relacije:

$$B_\mu(\vec{k},t) = B_\mu(\vec{k})\, e^{-iEt} \quad \text{i} \quad B^+_\mu(\vec{k},t) = B^+_\mu(\vec{k})\, e^{-iEt}$$

$$i \frac{d\, B_\mu(\vec{k},t)}{dt} = E\, B_\mu(\vec{k})\, e^{-iEt} = [B_\mu(\vec{k}), \hat{H}]$$

$$H = \sum_{\alpha\beta\kappa} L_{\alpha\beta} (\vec{k}) A^+_\beta (\vec{k}) A_\alpha(\vec{k})$$

$$B_\mu(\vec{k}) = \sum_\alpha U^*_{\alpha\mu'} (\vec{k}) A_\alpha (\vec{k})$$

$$\sum_\alpha U^*_{\alpha\mu_1} (\vec{k}) \sum_{\alpha\beta\kappa} L_{\alpha\beta}(\vec{k}) [A_\alpha(\vec{k}) A^+_\beta (\vec{k}) A_\alpha (\vec{k})] =$$

$$\sum_{\alpha\beta\kappa} U^*_\alpha (\vec{k}) \sum_{\alpha\beta\kappa} L_{\alpha\beta} (\vec{k}) A_\alpha (\vec{k}) A^+_\beta (\vec{k}) A_\alpha(\vec{k}) =$$

$$\sum_{\alpha\beta\kappa} U^{**}_{\beta\mu'} (\vec{k}) L_{\alpha\beta}(\vec{k}) A_\alpha(\vec{k})$$

$$E \sum_\alpha U^*_{\alpha\mu} (\vec{k}) A_\alpha(\vec{k}) = \sum_{\alpha\beta\kappa} U^*_\beta L_{\alpha\beta}(\vec{k}) A_\alpha (\vec{k})$$

$$\sum_{\alpha\kappa} A_\alpha(\vec{k}) [E_\mu(\vec{k}) U^+_{\alpha\mu} (\vec{k}) - \sum_\beta L_{\alpha\beta}(\vec{k}) U^+_{\beta\mu} (\vec{k})] =$$

$$E_\mu (\vec{k}) U^*_{\alpha\mu}(\vec{k}) = \sum_\alpha L_{\alpha\beta}(\vec{\kappa}) U^*_\beta (\vec{\kappa}) \tag{1.23}$$

Levu i desnu stranu jednačine pomnožimo sa $U_{\alpha}(\vec{k})$ i prosumiramo po α, te dobijamo:

$$E_{\mu}(\vec{k}) = \sum_{\alpha\beta} L_{\alpha\beta}(\vec{k})\, U_{\alpha\mu}(\vec{k})\, U^{*}_{\beta\mu}(\vec{k}) \tag{1.24}$$

Ako (1.23) uvrstimo u (1.22) dobijamo dijagonalizovani hamiltonijan

$$\hat{H} = \sum_{\vec{\kappa}} E_{\mu}(\vec{k})\, B^{+}_{\mu}(\vec{k})\, B_{\mu}(\vec{k}) \tag{1.25}$$

$$\mu = 1,2,\ldots\ldots,\sigma$$

Iz (1.25) sledi da se u kristalu pojavljuje σ-eksitonskih zona, a veličina $\delta\omega_{\mu\nu} = E_{\mu}(\vec{k}) - E_{\nu}(\vec{k})$ poznata je pod imenom Davidovljevskog cepanja (razdvajanja) eksitonskih zona.

II. FONONI

Energija vibracije kristalne rešetke je kvantovana i njen kvant se naziva fonon, analogno sa kvantom energije elektromagnetnog polja, fotonom. Fotoelektrični efekat je direktna eksperimentalna potvrda postojanja fotona. Do sada nije izvršen ni jedan eksperiment, direktno analogan fotoelektričnom efektu sa fononima. Eksperimentalni dokazi kvantovanja energije vibracije kristalne rešetke su:

1) Udeo kristalne rešetke u toplotnom kapacitetu čvrstog tela uvek teži nuli kada temperatura teži nuli i ovo se objašnjava jedino kvantovanjem vibracija rešetke.

2) X - zraci ili neutroni se neelastično rasejavaju na kristalima sa promenom energije i impulsa koje odgovara stvaranju ili apsorbovanju jednog ili više fonona. Mereći uzmak rasejanog X-zračenja ili nautrona mi možemo da odredimo svojstva pojedinih fonona.

Posmatrajmo kristale sa σ molekula u elementarnoj ćeliji, koja je odredjena sa vektorima translacije $\vec{a}_1$, $\vec{a}_2$, $\vec{a}_3$. Operator energije kristala možemo predstaviti u obliku:

$$\hat{H} = \frac{M}{2} \sum_{n\alpha} \dot{\vec{\xi}}^{\,2}_{n\alpha} + \frac{1}{2} \sum_{n\alpha m\beta} \hat{V}_{\alpha\beta}(\vec{n}-\vec{m})\, \vec{\xi}_{n\alpha}\, \vec{\xi}_{m\beta} \qquad (2.1)$$

gde je:

$\vec{r}_{n\alpha}$ - komponenta pomeranja molekula $\vec{n}\alpha$ iz ravnotežnog položaja

M - masa molekula

$\hat{V}_{\alpha\beta}(\vec{n}-\vec{m})$ - matrica operatora interakcije koja zadovoljava uslove:

$$V_{\alpha\beta}(\vec{n}-\vec{m}) = V_{\alpha\beta}(\vec{m}-\vec{n}); \qquad \sum_n V_{\alpha\beta}(\vec{n}-\vec{m}) = 0$$

Ako izvršimo sledeću smenu:

$$r_n = \frac{1}{\sqrt{NM}} \sum_k e_\alpha(\vec{k})\, A_{\vec{k}}\, e^{i\vec{k}\vec{n}} \qquad (2.2)$$

dobijamo hamiltonijan (2.1) u obliku:

$$H = \frac{1}{2} \sum_{\kappa\alpha} e_{\alpha}(\vec{k})\, e_{\alpha}(-\vec{k})\, \dot{A}_{\vec{k}}\, \dot{A}_{-\vec{k}} + \frac{1}{2} \sum_{\kappa\alpha\beta} D_{\alpha\beta}(\vec{\kappa}) e\, (\vec{k}) A_{\vec{k}} A_{\vec{k}} \quad (2.3)$$

gde je:

$$D_{\alpha\beta}(\vec{k}) = D^{+}_{\alpha\beta}\,(-\vec{k}) = \frac{1}{M} \sum_{n} V_{\alpha\beta}(\vec{n})\, e^{i\vec{k}\vec{n}}$$

Znajući da je Langraževa funkcija L = K - u, gde je k kinetička energija i koristeći jednačinu Langraža

$$\frac{d}{dt}\left(\frac{\partial L}{\partial q}\right) - \frac{\partial L}{\partial g} = 0 \quad \text{i} \quad q = e_{\alpha}\,(\vec{k})\, A_{\vec{k}}$$

dobijamo

$$e_{\alpha}\,(\vec{k})\, \ddot{A}_{\vec{k}} + \sum_{\beta} D_{\alpha\beta}(\vec{k})\, e_{\beta}\,(\vec{k})\, A_{\vec{k}} = 0 \quad (2.4)$$

Rešenje ovog sistema potražimo u obliku

$$A_{\vec{k}} = A_{\vec{k}}\,(0)\, e^{i\Omega t} \quad \text{tako da je} \quad \ddot{A}_{\vec{k}} = -\Omega^{2}\,(\vec{k})\, A_{\vec{k}}$$

Ako to zamenimo u (2.4) dobijamo sledeći sistem od 3σ jednačina za odredjivanje nepoznatih funkcija $e_{\alpha}(\vec{k})$ i $(\vec{\kappa})$.

$$\Omega^{2}(\vec{\kappa})\, e_{\alpha}\,(\vec{\kappa}) - \sum_{\beta} D_{\alpha\beta}(\vec{\kappa})\, e_{\beta}\,(\vec{\kappa}) = 0 \quad (2.5)$$

Ovaj sistem ima netrivijalna rešenja ako je ~~dat~~:

$$\det\left|\Omega^{2}\,(\vec{\kappa})\,\delta_{\alpha\beta} - D_{\alpha\beta}\,(\vec{\kappa})\right| = 0 \quad (2.6)$$

Matrica $D_{\alpha\beta}(k)$ je ermitska i jednačina (2.6) nam stoga daje 3σ realnih rešenja $\Omega^{2}_{\alpha\beta}(\vec{\kappa})$ $S = 1,2,\ldots,3\sigma$ i 3σ vektora $e_{\alpha}(\vec{\kappa})$.

Znajući da je impuls $P_{\vec{k}}$ odredjen izrazom $P_{\vec{k}} = \frac{\partial(k-u)}{\partial A_{ks}}$ (2.7)

dobijamo hamiltonijan (2.3) u obliku:

$$H = \frac{1}{2} \sum_{\vec{k}s} (P_{\vec{k}s} \cdot P_{-\vec{k}s} + \Omega_s^2 (\vec{k}) A_{\vec{k}s} A_{-\vec{k}s}) \tag{2.8}$$

Da bismo ovaj hamiltonijan napisali u reprezentaciji druge kvantizacije, koristićemo relacije:

$$P_{\vec{k}s} \to \hat{P}_{\vec{k}s} = i(\frac{1}{2} \hbar \Omega_s(\vec{k}))^{1/2} |b^+_{\vec{k}s} - b_{(-\vec{k}s)}| \tag{2.9}$$

$$A_{\vec{k}s} \to \hat{A}_{ks} = (\frac{\hbar}{2\Omega_s(k)})^{1/2} |b_{\vec{k}s} + b^+_{(-\vec{k}s)}|$$

Zamenjujući (2.9) u (2.8) dobijamo hamiltonijan u reprezentaciji druge kvantizacije:

$$\hat{H} = \sum_{\vec{k},s} \hbar \Omega_s(\vec{k}) (b^+_{\vec{k}s} b_{ks} + \frac{1}{2}) \tag{2.10}$$

a vektor pomeranja $\hat{r}_n$ u obliku

$$\hat{\vec{\xi}}_{\vec{n}\alpha} = (\frac{\hbar}{2M_\alpha N})^{1/2} \sum_{\vec{k}s} \frac{\vec{e}^{\,s}_\alpha(\vec{k})}{\Omega_s(\vec{k})^{1/2}} |b_{\vec{k}s} + b^+_{(-\vec{k}s)}| \, e^{i\vec{k}\vec{n}} \tag{2.11}$$

Recimo još da učestanost $\Omega_s(\vec{k})$ tri fononske grane (od ukupno 3σ) teži nuli kada talasni vektor k teži nuli. Te grane se nazivaju akustičnim granama i pri malim vrednostima talasnog vektora za te grane je $\Omega_s(\vec{k}) = C_s|\vec{k}|$ gde su C_s - brzine longitudinalnih, odnosno transverzalnih talasa. Ostale $3(\sigma-1)$ grane nazivaju se optičkim granama.

III. EKSITON - FONON INTERAKCIJA

Sada ćemo posmatrati optički pobudjen kristal u kojem dolazi do interakcije eksitona sa fononima. Eksiton-fonon interakciju posmatraćemo u graničnom slučaju jake eksiton-fonon sprege, kao u radu (2).

Polazimo od eksitonskog hemiltonijana u kofniguraciji onom prostoru koji ima oblik

$$H = \sum_{\vec{n}\alpha} \Delta_\alpha B^+_{\vec{n}\alpha} B_{\vec{n}\alpha} + \sum_{nm\alpha\beta} M_{\vec{n}\alpha\vec{m}\beta} B^+_{\vec{m}\beta} B_{\vec{n}\alpha} \tag{3.1}$$

i posmatramo ga u slučaju kada dolazi do oscilovanja molekula u rešetki.

Tada možemo pisati

$$\vec{r}_{\vec{n}\alpha} \rightarrow \vec{r}_{\vec{n}\alpha} + \vec{\xi}_{\vec{n}\alpha}$$

gde je $\vec{\xi}_{\vec{n}\alpha}$ fononski pomeraj, a $\vec{r}_{\vec{n}\alpha}$ vektor položaja molekula.

Fononski pomeraj $\vec{\xi}_{\vec{n}\alpha}$ zadovoljava sledeći uslov

$$|\vec{\xi}_{\vec{n}\alpha}| << |\vec{r}_{\vec{n}\alpha}|$$

Ako uvedemo δ-funkciju

$$\delta(\vec{r}_{\vec{n}\alpha} - \vec{r}_{\vec{m}\alpha}) = \delta_{\vec{n}\alpha,\vec{m}\alpha} = \frac{1}{N}\sum_{\vec{k}} e^{ik(\vec{r}_{n\alpha} - \vec{r}_{m\alpha})} \equiv \delta_{\vec{n}\vec{m}}$$

Hamiltonijan (3.1) možemo tada pisati u obliku

$$H = \sum_{n\alpha m\beta} \Delta_\alpha \delta_{\alpha\beta} \delta(\vec{r}_{\vec{n}\alpha} - \vec{r}_{\vec{m}\beta}) B^+_{n\alpha} B_{m\beta} +$$

$$+ \sum_{n\alpha m\beta} M(\vec{r}_{n\alpha} - \vec{r}_{m\beta}) B^+_{\vec{n}\alpha} B_{\vec{m}\beta} \tag{3.2}$$

Tada usled fononskih oscilacija imamo

$$\delta(\vec{r}_{\vec{n}\alpha}-\vec{r}_{\vec{m}\alpha}) \to \delta(\vec{r}_{\vec{n}\alpha}+\vec{\xi}_{\vec{n}\alpha}-\vec{r}_{\vec{m}\alpha}-\vec{\xi}_{\vec{m}\alpha}) =$$

$$= \frac{1}{N}\sum_{\vec{\kappa}} e^{i\vec{\kappa}(\vec{r}_{\vec{n}\alpha}-\vec{r}_{\vec{m}\alpha}) + i\vec{k}(\vec{\xi}_{\vec{n}\alpha}-\vec{\xi}_{\vec{m}\alpha})}$$

$$M(\vec{r}_{\vec{n}\alpha}-\vec{r}_{\vec{m}\beta}) \to M(\vec{r}_{\vec{n}\alpha}+\vec{\xi}_{\vec{n}\alpha}-\vec{r}_{\vec{m}\beta}-\vec{\xi}_{\vec{m}\beta}) =$$

$$= \frac{1}{N}\sum_{\vec{\kappa}} M_{\alpha\beta}(\vec{k})\, e^{i\vec{k}(\vec{r}_{\vec{n}\alpha}-\vec{r}_{\vec{m}\beta}) + i\vec{k}(\vec{\xi}_{\vec{n}\alpha}-\vec{\xi}_{\vec{m}\beta})}$$

Eksponencijalne funkcije razvijamo u red po fononskim pomerajima, zadržavajući se samo na prvom stepenu po fononskim pomerajima

$$e^{i\vec{k}(\vec{\xi}_{\vec{n}\alpha}-\vec{\xi}_{\vec{m}\alpha})} \sim 1 + e^{i\vec{k}(\vec{\xi}_{\vec{n}\alpha}-\vec{\xi}_{\vec{m}\beta})}$$

Ako operatore $B^+_{\vec{n}\alpha}$ i $B_{\vec{n}\alpha}$ izrazimo preko svojih Furije transforma

$$B_{\vec{n}\alpha} = \frac{1}{N}\Sigma A\alpha(\vec{k})\, e^{i\vec{k}\vec{n}}$$

$$B^+_{\vec{n}\alpha} = \frac{1}{N}\Sigma A^+_{\alpha}(\vec{k})\, e^{-i\vec{k}\vec{n}}$$

i to zamenimo u hamiltonijan 3.2 koristeći i stepene redove, dobijamo sledeći hamiltonijan.

$$\hat{H} = \frac{1}{N^2}\sum_{\vec{n}\vec{m}\alpha k\, \vec{k}_1\vec{k}_2} \Delta_\alpha\, A^+_\alpha(\vec{\kappa}_1)\, A\alpha(\vec{\kappa}_2)\, e^{i\vec{r}_{\vec{n}\alpha}(\vec{k}-\vec{k}_1) + i\vec{r}_{\vec{n}\alpha}(k_2-\vec{k})}\, [1+ik(\xi_{\vec{n}\alpha}-\xi_{\vec{m}\alpha})] + \frac{1}{N^2}\sum_{\vec{n}\vec{m}\alpha k k_1 k_2} M_{\alpha\beta}(\vec{k})\, A^+_\alpha(\vec{k}_1)$$

$$A_\beta(\vec{k}_2)\, e^{i\vec{r}_{\vec{n}\alpha}(\vec{k}-\vec{k}_1) + i\vec{r}_{\vec{n}\beta}(\vec{k}_2-\vec{k})}\, |1+i\vec{k}(\xi_{n\alpha}-\xi_{m\alpha})|$$

$$H = \sum_{\alpha k} \Delta_\alpha A_\alpha^+(\kappa) A_\alpha(\kappa) + \sum_{\alpha\beta\kappa} M_{\alpha\beta}(\vec{k}) A_\alpha^+(\vec{k}) A_\beta(\vec{k}) + H_{int}$$

$$H_{int} = \frac{i}{N^2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} \sum_{\vec{k}\vec{k}_1\vec{k}_2} \Delta_\alpha A_\alpha^+(\vec{k}_1) A_\alpha(\vec{k}_2)\, e^{i\vec{r}_{\vec{n}}(\vec{k}-\vec{k}_1)+i\vec{r}_{\vec{n}}(\vec{k}_2-\vec{k})}$$

$$\vec{K}(\xi_{n\alpha} - \xi_{m\alpha}) +$$

$$+ \frac{1}{N^2} \sum_{\vec{n}\vec{m}\alpha\beta\vec{k}\vec{k}_1\vec{k}_2} M_{\alpha\beta}(\vec{\kappa}) A_\alpha(\vec{\kappa}_1) A_\beta(\vec{k}_2)$$

$$e^{i\vec{r}_n(\vec{k}-\vec{k}_1)+i\vec{r}_n(\vec{k}_2-\vec{k})}\, \vec{K}(\xi_{n\alpha} - \xi_{m\alpha}) +$$

$$+ \frac{1}{N^2} \sum_{\vec{n}\vec{m}\alpha\beta\vec{k}\vec{k}_1\vec{k}_2} M_{\alpha\beta}(\vec{\kappa}) A_\alpha(\vec{\kappa}_1) A_\beta(\vec{\kappa}_2)\, e^{i\vec{r}_{\vec{n}\alpha}(\vec{k}-\vec{k}_1)+}$$

$$^{+i\vec{r}_{\vec{m}\alpha}(\vec{k}_2-\vec{k}_1)}\, \vec{K}(\xi_{\vec{n}\alpha} - \xi_{\vec{m}\alpha})$$

Sada ćemo fononske pomeraje izraziti preko operatora kreacije i anihilacije fonona relacijom

$$\vec{\xi}_{\vec{n}\alpha} = \sum_{\vec{j}\vec{q}} \left[\frac{\hbar}{2M_\alpha N \omega_j(g)}\right]^{1/2} \vec{e}_{\alpha j}(\vec{q}) \left[a_{\vec{g}\vec{j}}\, e^{i\vec{g}\vec{n}} + a_{\vec{g}\vec{j}}^+\, e^{-i\vec{g}\vec{n}}\right] \quad (3.4)$$

gde je:

$\omega_j(\vec{g})$ - energija j-te fononske grane j=1,2,3,...,3

$\vec{e}_{\alpha j}(\vec{g})$ - vektor polarizacije j

M_α - masa molekule na mestu α u ćeliji

N - broj elementarnih ćelija.

Za operatore $a_{\vec{g}\vec{j}}$ i $a_{\vec{g}\vec{j}}^+$ važe Boze komutacione relacije:

$$[a_{\vec{g}j}, a^+_{\vec{g}j}] = \sigma_{\vec{g}\vec{q}}, \sigma_{jj}$$

ako u (3.4) $\vec{g} \to -\vec{q}$ tako da imamo

$$\vec{\xi}_{\vec{n}\alpha} = \sum_{j\vec{q}} \left(\frac{\hbar}{2M_\alpha N\omega_j(q)}\right)^{1/2} \vec{e}_{\alpha q}(\vec{q})(a_{-qh} + a^+_{\vec{g}j})e^{-i\vec{q}\vec{n}} \qquad (3.5)$$

I ako to zamenimo u (3.3) dobijamo

$$H_{int} = H^{(1)}_{int} + H^{(2)}_{int}$$

gde je:

$$H^{(1)}_{int} = \frac{i}{N} \sum_{j\alpha kq} \left(\frac{\hbar}{2M_\alpha \omega g}\right)^{1/2} \Delta_\alpha A^+_\alpha(\vec{k}-\vec{q}) A_\alpha(\vec{k})$$

$$(a_{-\vec{g}j} + a^+_{\vec{g}j}) \vec{q}\, \vec{e}_{\alpha\beta}(\vec{g})$$

$$H^{(2)}_{int} = \frac{i}{N} \sum_{j\alpha\beta\vec{k}\vec{g}} \left(\frac{\hbar}{2M_\alpha \omega(g)}\right)^{1/2} [M_{\alpha\beta}(\vec{\kappa})\vec{\kappa}\, e_{\alpha j}(\vec{g}) - M_{\alpha\beta}(\vec{k}-\vec{q})\, \vec{e}_{\alpha j}$$

$$\cdot(\vec{g})] A^+_\alpha(\vec{k}-\vec{g}) A_\beta(\vec{k}) (a_{-\vec{g}j} + a^+_{\vec{g}j})$$

s obzirom da je $\Delta_\alpha >> |M_{\alpha\beta}(\vec{\kappa})|$ zanemarićemo $H^{(2)}_{int}$.

U kristalima s kubnom simetrijom, vektor polarizacije longitudinalne fononske grane je kolinearan sa talasnim vektorom fonona $\vec{q}$, tako da je u hamiltonijamu $H^{(1)}_{int}$

$$\vec{q}\, \vec{e}_{\alpha j}(\vec{g}) = \vec{q}\, \vec{e}_\alpha(\vec{q}) = (\vec{q})$$

za longitudinalnu granu, a za ostale je $\vec{q}\, \vec{e}_{\alpha j}(\vec{g}) = 0$ i zbog toga otpada suma po j, te imamo

$$H_{int} \simeq H^{(1)}_{int} = \frac{i}{N} \sum_{\alpha\vec{\kappa}\vec{g}} \Delta_\alpha \left(\frac{\hbar}{2M_\alpha \omega(g)}\right)^{1/2} \vec{q}\, \vec{e}\,(q)\, A^+_\alpha(\vec{k}-\vec{g})$$

$$\cdot A_\alpha(\kappa)(a_{-q} + a^+_q) \qquad (3.6)$$

ili:

$$H_{int} = \frac{1}{N^{1/2}} \sum_{\alpha \vec{k} \vec{g}} F_\alpha(\vec{g})\, A^+_\alpha(\vec{k}-\vec{g}) A_\alpha(\vec{k})(a_{-\vec{g}} + a^+_{\vec{g}}) \tag{3.7}$$

gde je:

$$F_\alpha(\vec{g}) = i\, \Delta_\alpha \left(\frac{\hbar}{2M\,(\vec{g})}\right)^{1/2} (\vec{g}\ \vec{e}_{\vec{g}}) \qquad \omega_{(\vec{g})} = \vec{v}(g) \tag{3.8}$$

U izrazu 3.7 ćemo preći sa operatora $A_\alpha(\vec{k})$ na operatore $B_\mu(\vec{\kappa})$ pomoću transformacije

$$A_\alpha(\vec{k}) = \sum_{\mu=1}^{\sigma} U_{\alpha\mu}(\vec{k})\, B_\mu(\vec{k})$$

$$H_{int} = \frac{1}{N^{1/2}} \sum_{kg} (a_{-\vec{g}} + a^+_{\vec{g}}) \sum_{\alpha\mu'\mu} U^*_{\alpha\mu}(\vec{k}-\vec{g})\, U_{\alpha\mu}(\vec{\kappa})\, F_\alpha(\vec{q})\, B^+(\vec{k}-g)$$

$$\cdot B_\mu(\vec{k})$$

ili

$$H_{int} = \sum_{\mu\mu' kg} \phi_{\mu\mu'}(\vec{k}\ \vec{g})\, B^+_\mu(\vec{k}-\vec{g}) B_\mu(\vec{k})(a_{-\vec{g}} + a^+_{\vec{g}}) \tag{2.9}$$

gde je:

$$\phi_{\mu\mu'} = \frac{1}{N^{1/2}} \sum_\alpha U^*_{\alpha\mu}(\vec{k}-\vec{g})\, U_{\alpha\mu'}(\vec{k})\, F_\alpha(\vec{g})$$

IV. EKVIVALENTNI EKSITONSKI HAMILTONIJAN

Ukupni hamiltonijan sistema eksitoni + fononi možemo napisati u obliku:

$$H = \sum_{\mu\vec{k}} E_\mu(\vec{k})\, B^+_\mu(\vec{k})\, B_\mu(\vec{k}) + \sum_{j\vec{k}} \hbar\, \omega_j(\vec{k})\, a^+_{j\vec{k}}\, a_{j\vec{k}} +$$

$$+ \sum_{\mu\mu'\vec{g}\vec{k}} \phi_{\mu\mu'}(\vec{k}-\vec{g})\, B^+_\mu(\vec{k}) \cdot B_\mu(\vec{k})(a_{-\vec{g}} + a^+_{\vec{g}})$$

S obzirom da posmatramo interakciju eksitona samo sa longitudinalnim fononima, od fononskog hamiltonijana uzećemo deo koji se odnosi na longitudinalne fonone. Hamiltonijan koji sadrži eksitonski deo, fononski deo i eksiton-fonon interakciju ima sledeći oblik

$$H = H_e + H_f + H_{ef} \tag{4.1}$$

gde je:

$$H_e = \sum_{\mu\kappa} E_\mu(\vec{k})\, B^+_\mu(\vec{k})\, B_\mu(\vec{k}) \tag{4.2}$$

$$H_f = \sum_{\kappa} E_f(\vec{k})\, a^+_{\vec{k}}\, a_{\vec{k}} \qquad E_f(\vec{k}) = \hbar v|\vec{k}| \quad v|\vec{k}| = \omega(\vec{k}) \tag{4.3}$$

$$H_{ef} = \sum_{\mu\vec{k}g} \phi_\mu(\vec{k}\,\vec{g})\, B_\mu(\vec{k}-\vec{g})\, B_\mu(\vec{k})(a_{-\vec{g}} + a^+_{\vec{g}}) \tag{4.4}$$

Operatori $B_\mu(\vec{k})$ i $B^+_\mu(\vec{k})$ se nazivaju eksitonski operatori, a a^+_k i a_k su fononski operatori. Hamiltonijan 4.1 je po strukturi sličan hamiltonijanu sistema elektrona sa dodatkom polja mehaničkih oscilacija u provodnicima, te možemo izvršiti unitarnu transformaciju hamiltonijana (4.1) po analogiji sa Frelihovom transformacijom u teoriji super provodljivosti. Unitarna transformacija koja novi hamiltonijan H_{eg} izražava preko starog u obliku

$$H_{eg} = e^{-S}H_e^{S} = H-[S_1H] + \frac{1}{2}[S_1[S,H]] \tag{4.5}$$

gde je:

$$S = S_1 - S_1^+ \qquad S^+ = -S \text{ antiermitski operator.}$$

S_1 ćemo uzeti u obliku

$$S_1 = \sum_{ij\alpha\beta} X_{ij}(\vec{\alpha}\ \vec{\beta})\, B_{i\vec{\alpha}-\vec{\beta}}\, B_{j\vec{\alpha}}\, a_{-\vec{\beta}} \tag{4.6}$$

$$S_1^+ = \sum_{ij\alpha\beta} X_{ij}^*(\vec{\alpha}\ \vec{\beta})\, B_{j\vec{\alpha}}^+\, B_{i\vec{\alpha}-\vec{\beta}}\, a_{-\vec{\beta}}^+ \ ;\ \vec{\alpha} = \vec{\alpha}'+\vec{\beta}' = \vec{\alpha}-\vec{\beta}'$$

$$S_1^+ = \sum_{ij\alpha\beta} X_{ij}^*(\vec{\alpha}-\vec{\beta},-\vec{\beta})\, B_{i,\vec{\alpha}-\vec{\beta}}^+\, B_{j\vec{\alpha}}\, a_{\vec{\beta}}^+ \tag{4.7}$$

Potražimo sada komutacione relacije za (4.5). Analogno sa Frelihovom transformacijom funkcije $X_{ij}(\vec{\alpha},\vec{\beta})$ odredićemo iz uslova da u ekvivalentnom hamiltonijanu eliminišemo članove linearne po H_{int}. Tako dobijeni ekvivalentni hamiltonijan ćemo usrednjiti zatim po fononskom vakumu. Za komutator $[S,H]$ koji figuriše u hamiltonijanu H_{eg} koristićemo jedan daleko pogodniji oblik za računanje

$$[S,H] = [S_1,H] - [S_1^+,H] = [S_1,H] + [S_1,H]^+ \tag{4.8}$$

potrebno je, dakle, odrediti samo $[S_1,H]$

$$[S_1,H] = [S_1,H_e] + [S_1,H_f] + [S_1,H_{ef}]$$

Polazeći od komutacionih relacija

$$[B_{\mu\vec{k}},\ B_{\mu\vec{k}}^+] = \delta_{\mu\mu}\ \delta_{\vec{k}\vec{k}}$$

$$[B_{\mu\vec{k}}^+,\ B_{\mu\vec{k}}^+] = 0$$

$$[a_{\vec{k}},\ a_{\vec{k}}^+] = \delta_{kk}$$

dobijamo:

$$[S_1,H_e] = \sum_{ij\alpha\beta} X_{ij}(\vec{\alpha},\vec{\beta})(E_j(\vec{\alpha}) - E_i(\vec{\alpha}-\vec{\beta})B^+_{i,\vec{\alpha}\vec{\beta}} B_{j\vec{\alpha}} a_{-\vec{\beta}}$$

$$[S_1,H_e] = \sum_{ij\alpha\beta} X_{ij}(\vec{\alpha},\vec{\beta})\ E_f(\vec{\beta})\ B^+_{i\vec{\alpha}-\vec{\beta}} B_j\ a_{-\vec{\beta}} \tag{4.10}$$

$$[S_1,H_{ef}] = \sum_{ij\alpha\beta\mu\nu kg} X_{ij}(\vec{\alpha},\vec{\beta})\ \phi_{\mu\nu}(\vec{k},\vec{g})$$

$$\{[B^+_{i\vec{\alpha}\ \vec{\beta}} B_{j\vec{\alpha}},\ B^+_{\mu,\vec{k}-g} B_{\nu k}]a_{-\vec{\beta}} a_{-\vec{g}} + [B^+_{i,\vec{\alpha}-\vec{\beta}} B_{j\vec{\alpha}},\ B^+_{\mu,k-g} B_{\nu\vec{\nu}}]$$

$$a_{-\vec{\beta}} a^+_{\vec{g}} + B^+_{i,\vec{\alpha}-\vec{\beta}} B_{j\vec{g}} B_{\mu,\vec{k}-\vec{g}},\ B_{\nu\vec{k}} [a_{-\vec{\beta}} a^+_{\vec{g}}]$$

S obzirom da ekvivalentni hamiltonijan H_{eg} usrednjen po fononskom vakumu $H=\langle 0_f|H_{eg}|0_f\rangle$, odnosno uzimamo u obzir samo spontanu energiju fonona, pri nalaženju komutara $[S_1,H_{eg}]$ možemo odbaciti one članove koji sadrže proizvod dva fononska operatora, tako da dobijamo:

$$[S_1,H_{ef}] = \sum_{ij\alpha\beta} X_{ij}(\vec{\alpha},\vec{\beta})\ \phi_j\ (\vec{\alpha}-\vec{\beta}-\vec{\beta})\ B^+_{i,\vec{\alpha}-\vec{\beta}} B_{\nu,\vec{\alpha}-\vec{\beta}} +$$

$$+ \sum_{ij\mu\nu\alpha\beta\vec{k}} X_{ij}(\vec{\alpha},\vec{\beta})\ \phi_{\mu\nu}(\vec{k},-\vec{\beta})\ B^+_{i,\vec{\alpha}-\vec{\beta}} B^+_{\mu\vec{k}-\beta} B_{j\vec{\alpha}} B_{\nu\vec{k}} \tag{4.11}$$

Kompletan komutator $[S,H]$ ima oblik:

$$[S,H] = \sum_{\mu\nu kg} X_{\mu\nu}(\vec{k},\vec{g})[E_\nu(\vec{k}) - E_\mu(\vec{k}-\vec{g}) + E_f(\vec{g})]\cdot$$

$$\cdot B^+_{\mu,\vec{k}-\vec{g}} B_{\nu\vec{k}} a_{-\vec{g}} + \sum_{\mu\nu kg} X^+_{\mu\nu}(\vec{k}-\vec{g},-\vec{g})[E_\nu(\vec{k}-\vec{g}) -$$

$$- E_\nu(\vec{k}) + E_f(\vec{g})] B^+_{\mu\vec{k}-\vec{g}} B_{\nu\vec{k}} a_g + \sum_{\mu_1\mu_2\mu_3\mu k_1k_2k_3}$$

$$\{X_{\mu_1\mu_2}(\vec{k}_3,\vec{k}_3-\vec{k}_1)\phi_{\mu_2\mu_4}(\vec{k}_1+\vec{k}_2-\vec{k}_3,\vec{k}_2-\vec{k}_3) +$$

$$+ X^*_{\mu_1\mu_2}(\vec{k}_2,\vec{k}_3-\vec{k}_1)\ \phi^*_{\mu_3\mu_1}(\vec{k}_1,\vec{k}_1-\vec{k}_3)\ B^+_{\vec{\mu}_1\vec{k}_1}\ B^+_{\vec{\mu}_2\vec{k}_2}\ \cdot$$

$$\cdot\ B_{\vec{\mu}_3\vec{k}_3}\ B_{\vec{\mu}_4,\vec{k}_1+\vec{k}_2-\vec{k}_3} \qquad (4.12)$$

Za nalaženje H_{eg} moramo naći još i komutar $[S,[S,H]]$ koji se analogno nalazi kao i u prethodnom slučaju i dobijamo

$$H_{eg} = H - [S,H] + \frac{1}{2}[S,[S,H]] \quad \text{u obliku}$$

$$H_{eg} \cong \sum_{\mu\vec{k}} E_\mu(\vec{k})\ B^+_{\mu\vec{k}}\ B_{\mu\vec{k}} + \sum_k E_f(\vec{k})\ a^+_{\vec{k}}\ a_{\vec{k}} + \sum_{\mu\nu\vec{k}\vec{g}} \not{\phi}(\vec{k},\vec{g})$$

$$\cdot\ B^+_{\mu,\vec{k}-\vec{g}}\ B_{\mu\vec{k}}\ a_{-\vec{g}} + \phi^*_{\mu\nu}(\vec{k}-\vec{g},-\vec{g})\ B^+_{\mu,\vec{k}-\vec{g}}\ B_{\nu\vec{k}}\ a^+_{\vec{g}}\} -$$

$$- \sum_{\mu\nu kg} X_{\mu\nu}(\vec{k},\vec{g})[E_\nu(\vec{k})-E_\mu(\vec{k}-\vec{g})+E_f(\vec{g})]\ B^+_{\mu,\vec{k}-\vec{g}}\ B_{\nu\vec{k}}\ a_{-g^+}$$

$$+ X^*_{\mu\nu}(\vec{k}-\vec{g},-\vec{g})[E_\mu(\vec{k}-\vec{g})-E_\nu(\vec{k})+E_f(\vec{g})]\ B^+_{\mu,\vec{k}-\vec{g}}\ B_{\nu\vec{k}}\ a^+_{\vec{g}}\} -$$

$$- \sum_{\mu_1\mu_2\mu_3\mu_4\vec{k}_1\vec{k}_2\vec{k}_3} X(\vec{k}_3,\vec{k}_3-\vec{k}_1)\ \phi_{\mu_2\mu_4}(\vec{k}_1+\vec{k}_2-\vec{k}_3,\vec{k}_1-\vec{k}_3) +$$

$$+ X^*_{\mu_1\mu_2}(\vec{k}_2,\vec{k}_3-\vec{k}_1)\ \phi_{\mu_1\mu_2}(\vec{k}_2,\vec{k}_3-\vec{k}_1)\ \phi_{\mu_2\mu_1}(\vec{k}_1,\vec{k}_1-\vec{k}_3)\}$$

$$\cdot\ B^+_{\mu_1\vec{k}_1}\ B^+_{\mu_2\vec{k}_2}\ B_{\mu_3\vec{k}_3}\ B_{\mu_4,\vec{k}_1+\vec{k}_2-\vec{k}_3} + \frac{1}{2}\sum_{\mu_1\mu_2\mu\nu\ \cancel{k_1 kg}}$$

$$\cdot\ \{X_{\mu_1\mu_2}(\vec{k}_1,-\vec{g})\ X^*_{\nu\mu}(\vec{k}-\vec{g},-\vec{g})[E_\mu(\vec{k}-\vec{g})-E_\nu(\vec{k})+E_f(\vec{g})] +$$

$$+ X^*_{\mu_2\mu_1}(\vec{k}_1+\vec{g},\vec{g})\ X_{\mu\nu}(\vec{k},\vec{g})[E_\nu(\vec{k}) - E_\mu(\vec{k}-\vec{g}) + E_f(\vec{g})]\}$$

$$\cdot\ B^+_{\mu,\vec{k}_1+g}\ B^+_{\mu,\vec{k}-\vec{g}}\ B_{\mu_2\vec{k}_1}\ B_{\nu\vec{k}} \qquad (4.13)$$

Eliminacijom članova linearnih po H_{int}, dobijamo:

$$X_{\mu\nu}(\vec{k},\vec{g}) = \frac{\phi_{\mu\nu}(\vec{k},\vec{g})}{E_{\nu}(\vec{k})-E_{\mu}(\vec{k}-\vec{g})+E_{f}(\vec{g})}$$

Ako sada hamiltonijan H_{eg} (4.13) usrednjimo po fononskom vakumu, dobićemo konačno hamiltonijan sa efektivnom eksiton-eksiton interakcijom kao posledica eksiton-fonon interakcije. Ovde nećemo navesti izraz za ceo hamiltonijan (vidi npr. /3/), već ćemo izdvojiti onaj deo koji dovodi do stvaranja eksitonskih kapi, tj. do slepljivanja dva eksitona sa suprotnim impulsima. Taj deo hamiltonijana ima sledeći oblik

$$H'_{eg} = \sum_{\mu\vec{k}} E_{\mu}(\vec{k})\, B^{+}_{\mu\vec{k}} B_{\mu\vec{k}} + \sum_{\mu\nu\vec{k}\vec{g}} J_{\mu\nu}(\vec{k},\vec{g})\, B^{+}_{\mu\vec{k}}\, B^{+}_{\mu-\vec{k}} \cdot B_{\nu-\vec{g}}\, B_{\nu\vec{g}} \qquad (4.14)$$

gde je

$$J_{\mu\nu}(k,g) = \frac{E_{f}(\vec{k}+\vec{g})\phi^{*}_{\mu\nu}(\vec{k},\vec{k}+\vec{g})\phi_{\mu\nu}(\vec{g},\vec{k}+\vec{g})}{[E_{\mu}(\vec{k})-E_{\nu}(\vec{g})]^{2} - E^{2}_{f}(\vec{k}+\vec{g})} \qquad (4.15)$$

$$\phi_{\mu\nu}(\vec{k},\vec{g}) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\alpha} U^{*}_{\alpha\mu}(\vec{k}-\vec{g})\, U_{\alpha\nu}(\vec{k})\, F_{\alpha}(\vec{g}) \qquad (4.16)$$

$$F_{\alpha}(\vec{g}) = i\, \Delta_{\alpha}\left(\frac{\hbar}{2M\, v}\right)^{1/2} (\vec{g})^{1/2}$$

Hamiltonijan (4.14) ćemo iskoristiti za dalji račun pri ispitivanju energetskog spektra eksitonskih kaplji.

V. SPEKTAR ELEMENTARNIH EKSITACIJA NASTALIH RASPADOM EKSITONSKIH KAPLJI

Usled eksiton-fononske interakcije, kao što je već rečeno, dolazi do stvaranja eksitonskih kaplji. Fizička slika bi bila sledeća: dva eksitona sa suprotnim impulsima zahvaćeni molekulom kreću se u molekulskom potencijalu veličine približno 2Δ. Ovakvo stanje molekula je metastabilno, te se ona deeksitira emisijom dvasvetlosna kvanta. Naš dalji zadatak jeste da pronadjemo spektar ovih eksitacija. U tom cilju koristićemo tehniku Greenovih funkcija, koja je razvijena u monografiji [4].

S obzirom na procese slepljivanja dva eksitona u kaplju i raspada kaplje na dve eksitacije, da bi odredili spektar elementarnih eksitacija u sistemu, moramo simultano rešavati jednačine za sledeće Greenove funkcije:

$$G_{\mu\nu}(\vec{k}) = \langle\langle B_\mu(\vec{k}) | B^+_\nu(\vec{k})\rangle\rangle$$

i

$$D_{\mu\nu}(\vec{k}) = \langle\langle B^+_\mu(-\vec{k})\ B^+_\nu(\vec{k})\rangle\rangle$$

Koristeći hamiltonijan:

$$\hat{H} = \sum_{\mu\vec{}} E_\mu(\vec{k})\ B^+_\mu(\vec{k})\ B_\mu(\vec{k}) + \sum_{\mu\nu\vec{k}\vec{g}} J_{\mu\nu}(\vec{k},\vec{g})$$

$$B^+_{\mu\vec{k}}(\vec{k}) B^+_\mu(-\vec{k})\ B_\nu(-\vec{g})\ B_\nu(\vec{g}) \tag{5.1}$$

$\mu\nu = 1,2,\ldots\sigma$ $\qquad$ σ - broj podrešetki

i jednačine za Greenove funkcije:

$$E\langle\langle B_\mu(\vec{k}) | B^+_\nu(\vec{k})\rangle\rangle = \frac{i}{2\pi}[B_\mu(\vec{k}), B^+_\nu(\vec{k})] + \langle\langle [B_\mu(\vec{k}), \hat{H}^*] | B^+_\nu(\vec{k})\rangle\rangle$$

$$E<<B^+_\mu(\vec{k})|B^+_\nu(\vec{k})>>=\frac{i}{2\pi}\ B^+_\mu(-\vec{k}),B^+_\nu(\vec{k})\ +<<|B^+_\mu(-\vec{k}),\hat{H}||B^+_\nu(\vec{k})>>$$

dobićemo tražene funkcije.Koristeći relacije:

$$[B_\alpha(\vec{k}),B_\beta(\vec{k})] = \delta_{\alpha\beta} \quad \text{i} \quad [B^+_\alpha(-\vec{k}),B^+_\beta(\vec{k})] = 0$$

potražićemo sledeće komutatore $[B_\alpha(\vec{k}),\hat{H}]$ i $[B^+_\alpha(-\vec{k}),\hat{H}]$

$$[B_\alpha(\vec{k}),\hat{H}] = \tilde{E}_\alpha(\vec{k})B_\alpha(\vec{k}) + \sum_{\nu\vec{g}} J_{\alpha\nu}(\vec{k},\vec{g})\ B^+_\alpha(-k)\ B_\nu(-\vec{g}) +$$

$$+ \sum_{\nu\vec{g}} J_{\alpha\nu}(-\vec{k},\vec{g})\ B^+_\alpha(-\vec{k})\ B_\nu(-\vec{g})\ B_\nu(\vec{g})$$

$$[B^+_\alpha(-\vec{k}),\hat{H}] = -\tilde{E}_\alpha(-\vec{k})\ B^+_\alpha(-\vec{k})\ - \sum_{\mu\vec{k}'} J_{\mu\alpha}(\vec{k}',\vec{k})B^+_\mu(\vec{k})B^+_\mu(-\vec{k})B_\alpha(\vec{k})-$$

$$- \sum_{\nu\vec{k}'} J_{\mu\alpha}(\vec{k}',-\vec{k})\ B^+_\mu(\vec{k}')\ B^+_\mu(-\vec{k})\ B_\alpha(\vec{k})$$

pa dobijamo sledeće Grinove funkcije:

$$E\ G_{\alpha\beta}(\vec{k}) = \frac{i}{2\pi}\ \delta_{\alpha\beta}+\tilde{E}_\alpha(\vec{k})<<B_\alpha(\vec{k})\ B^+_\beta(\vec{k})>>+$$

$$+ \sum_{\nu\vec{k}} |J_{\alpha\nu}(\vec{k},\vec{g})\ +\ J_{\alpha\nu}(-\vec{k},\vec{g})|<<$$

$$<<B^+_\alpha(-\vec{k})\ B_\nu(-\vec{g})\ B_\nu(\vec{g})\ |B^+_\beta(\vec{k})>>$$

$$E\ D_{\alpha\beta}(\vec{k}) = -\tilde{E}_\alpha(-\vec{k})<<B^+_\alpha(-\vec{k})\ B^+_\alpha(\vec{k})>>-\sum_{\nu\vec{g}} |J_{\nu\alpha}(\vec{g},\vec{k})\ +$$

$$+ J_{\nu\alpha}(\vec{g},-\vec{k})|<<B^+_\nu(\vec{g})B^+_\nu(\vec{g})B^+_\nu(-\vec{g})B_\alpha(\vec{k})\ B^+_\beta(\vec{k})>>$$

Potrebno je da izvršimo dekuplovanje:

$$<<B^+_\alpha(-\vec{k})\ B_\nu(-\vec{g})\ B_\nu(\vec{g})|B^+_\beta(\vec{k})>>\simeq<B_\nu(-\vec{g})\ B_\nu(\vec{g})><<$$

$$<<B^+_\alpha(-\vec{k})\; B^+_\beta(\vec{k})>>$$

$$<<B^+_\nu(\vec{g})B^+_\nu(-\vec{g})B_\alpha(\vec{k})|B_\alpha(\vec{k})>>\simeq<B^+_\nu(\vec{g})\; B^+_\nu(-\vec{g})><<B_\alpha(\vec{k})\; B^+_\beta(\vec{k})>>$$

Sada dobijamo sledeće izraze:

$$[E-\tilde{E}_\alpha(\vec{k})]G_{\alpha\beta}(\vec{k}) = \frac{i}{2\pi}\,\delta_{\alpha\beta}+\sum_{\nu\vec{g}}[J_{\alpha\nu}(\vec{k},\vec{g})+J_{\alpha\nu}(-\vec{k},\vec{g})]<$$

$$<B_\nu(-\vec{g})\; B_\nu(\vec{g})>D_{\alpha\beta}(\vec{k})$$

$$[E+\tilde{E}_\alpha(-\vec{k})]D_{\alpha\beta}(\vec{k}) = -\sum_{\nu\vec{g}}[J_{\nu\alpha}(g,k)+J_{\nu\alpha}(\vec{g},-\vec{k})]<$$

$$<B^+_\nu(\vec{g})\; B^+_\nu(-\vec{g})>G_{\alpha\beta}(\vec{k})$$

Uz uslove da je $\tilde{E}_\alpha(\vec{k})=\tilde{E}_\alpha(-\vec{k})$ i $J_{\alpha\beta}(\vec{k},\vec{g})=J^*_{\beta\alpha}(\vec{g},\vec{k})$ i uvodeći da je $T_{\alpha\nu}(\vec{k},\vec{g})=J_{\alpha\nu}(\vec{k},\vec{g})+J_{\alpha\nu}(\vec{g},-\vec{k})=2J_{\alpha\nu}(\vec{k},\vec{g})$ i $<B_\nu(-\vec{g})B_\nu(\vec{g})> =h_\nu(\vec{g})$ i $<B^+_\nu(\vec{g})B^+_\nu(-\vec{g})>=h^*_\nu(\vec{g})$ dobijamo sledeće sisteme jednačina sa Grinovim funkcijama:

$G_{\alpha\beta}(\vec{k})$ i $D_{\alpha\beta}(\vec{k})$

$$[E-\tilde{E}_\alpha(\vec{k})]G_{\alpha\beta}(\vec{k})-\sum_{\nu\vec{g}} T_{\alpha\nu}(\vec{k},\vec{g})\; h_\nu(\vec{g})\; D_{\alpha\beta}(\vec{k}) = \frac{i}{2\pi}\,\delta_{\alpha\beta}$$

$$\sum_{\nu\vec{g}} T^*_{\alpha\nu}(\vec{k},\vec{g})\; h^*_\nu(\vec{g})\; G_{\alpha\beta}(\vec{k}) + |E+\tilde{E}_\alpha(\vec{k})|\; D_{\alpha\beta}(\vec{k}) = 0$$

Da bismo jednostavnije računali uvodimo sledeće matrice:

$$\hat{E}=||E\delta_{\alpha\beta}||,\quad \hat{\tilde{E}}_\alpha(\vec{k})=||E_\alpha(\vec{k})\delta_{\alpha\beta}||,\quad \hat{G}=||G_{\alpha\beta}(\vec{k})||$$

$$\hat{D}=||D_{\alpha\beta}(\vec{k})||,\quad \hat{T}=||T_{\alpha\beta}||\quad \hat{h}_\alpha(\vec{g})=||h_\alpha(\vec{g})\delta_{\alpha\beta}||$$

$$\hat{h}^*=\hat{h}^+_\alpha(\vec{g})=||h^*_\alpha(\vec{g})\delta_{\alpha\beta}||$$

$$\hat{T}^* = ||T^*_{\alpha\beta}|| \quad \sum_\nu T_{\alpha\beta} h_\nu(\vec{g}) = \sum_\nu\{\sum_\nu T_{\alpha\nu} h_\nu \ \delta_{\alpha\nu}\} = \sum_\nu \{\hat{T}\hat{h}_\alpha\}_{\alpha\nu} =$$

$$\Delta_\alpha(\vec{k}) = \sum_{\nu\vec{g}} T_{\alpha\nu}(\vec{k},\vec{g}) \ h_\nu(\vec{g}) \qquad \hat{\Delta} = ||\hat{\Delta}_\alpha(\vec{k})\delta_{\alpha\beta}||$$

($\alpha,\beta = 1,2$ zbog toga što uzimamo kristale sa dve podrešetke. Sistem jednačina za Greenove funkcije u matričnom obliku glasi:

$$[\hat{E}-\tilde{E}_\alpha(\vec{k})] \, G \, (\vec{k}) - \Delta \, (\vec{k})\hat{D} \quad (\vec{k}) = \frac{i}{2\pi} \delta_{\alpha\beta}$$

$$\hat{\Delta}^*(\vec{k}) \ \hat{G} \ (\vec{k}) + [\hat{E}+\tilde{E}_\alpha(\vec{k})]\hat{D} \quad (\vec{k}) = 0$$

Ako uzmemo za $\alpha,\beta=1,2$ dobijamo dva sistema jednačina sa po dve nepoznate, funkcije $\sigma_{\mu\mu}$ i $D_{\mu\mu}$.

Prvi sistem jednačina izgleda ovako

$$[E-\tilde{E}_1(\vec{k})]G_{11}(\vec{k}) - \Delta_1(\vec{k}) \ D_{11}(\vec{k}) = \frac{i}{2\pi}$$

$$\Delta^*_1(\vec{k}) \ G_{11}(\vec{k}) + [E+\tilde{E}_1(\vec{k})]D_{11}(\vec{k}) = 0$$

a drugi

$$[E-E_2(\vec{k})]G_{22}(\vec{k}) - \Delta_2(\vec{k}) \ D_{22}(\vec{k}) = \frac{i}{2\pi}$$

$$\Delta^*_2(\vec{k}) \ G_{22}(\vec{k}) + [E+\tilde{E}_2(\vec{k})]D_{22}(\vec{k}) = 0$$

Determinanta prvog sistema ima sledeći oblik:

$$D_1 = \begin{vmatrix} E-\tilde{E}_1(\vec{k}) & -\Delta_1(\vec{k}) \\ \Delta^*_1(\vec{k}) & E+\tilde{E}_1(\vec{k}) \end{vmatrix} = E^2-\tilde{E}^2_1(\vec{k}) + |\Delta_1(\vec{k})|^2$$

a drugog

$$D_2 = \begin{vmatrix} E-\tilde{E}_2(\vec{k}) & -\Delta_2(\vec{k}) \\ \Delta^*_2(\vec{k}) & E+\tilde{E}_2(\vec{k}) \end{vmatrix} = E^2-\tilde{E}^2_2(\vec{k}) + |\Delta_2(\vec{k})|^2$$

Grinove funkcije: $G_{12}(\vec{k})$, $G_{21}(\vec{k})$, $D_{12}(\vec{k})$ i $D_{22}(\vec{k})$ su jednake nuli obzirom da je $\delta_{12}=\delta_{21}=0$, a različite su od nule samo u polovima, odnosno gde je $D=0$.

Grinove funkcije $G_{11}(\vec{k})$, $G_{22}(\vec{k})$, $D_{11}(\vec{k})$ i $D_{22}(\vec{k})$ imaju sledeće izraze

$$G_{11}(\vec{k}) = \frac{i}{2\pi} \frac{E+\tilde{E}_1(\vec{k})}{E^2-\tilde{E}_1^2(\vec{k})+|\Delta_1(\vec{k})|^2}$$

$$G_{22}(\vec{k}) = \frac{i}{2\pi} \frac{E+\tilde{E}_2(\vec{k})}{E^2-\tilde{E}_2^2(\vec{k})+|\Delta_2(\vec{k})|^2}$$

$$D_{11}(\vec{k}) = -\frac{i}{2\pi} \frac{\Delta_1^*(\vec{k})}{E^2-\tilde{E}_1^2(\vec{k})+|\Delta_1(\vec{k})^2}$$

$$D_{22}(\vec{k}) = -\frac{i}{2\pi} \frac{\Delta_2^*(\vec{k})}{E^2-\tilde{E}_1^2(\vec{k})+|\Delta_2(\vec{k})|^2}$$

Energije elementarnih eksitacija dobijamo kao polove Grinovih funkcija

$$\varepsilon_1(\vec{k}) = \sqrt{\tilde{E}_1^2(\vec{k})-|\Delta_1(\vec{k})|^2} \qquad \varepsilon_2(\vec{k}) = \sqrt{\tilde{E}_2^2(\vec{k})-|\Delta_2(\vec{k})|^2}$$

ili uopšteno

$$\varepsilon_\alpha(\vec{k}) = \sqrt{\tilde{E}_\alpha^2(\vec{k})-|\Delta_\alpha(\vec{k})|^2}$$

Da bi odredili realni i imaginarni deo Greenove funkcije, pišemo:

$$G_{\alpha\alpha}(\vec{k},E) = \frac{i}{2\pi}\frac{E+\tilde{E}_\alpha(\vec{k})}{(E-\tilde{E}_{\alpha\alpha}(\vec{k})||E+E_{\alpha\alpha}(\vec{k})} = \frac{i}{2\pi} \frac{A_\alpha}{E-\tilde{E}_{\alpha\alpha}(\vec{k})} +$$

$$+ \frac{i}{2\pi} \frac{B_\alpha}{E+\tilde{E}_{\alpha\alpha}(\vec{k})}.$$

Sada treba da nadjemo A_α i B_α:

$$A_\alpha + B_\alpha = 1$$

$$A_\alpha \varepsilon_\alpha - B_\alpha \varepsilon_\alpha = \tilde{E}_\alpha(\vec{k})$$

$$\varepsilon_\alpha - 2B_\alpha \varepsilon_\alpha = \tilde{E}_\alpha(\vec{k}) \qquad B_\alpha = \frac{\varepsilon_\alpha - \tilde{E}_\alpha(\vec{k})}{2\varepsilon_\alpha}$$

$$A_\alpha = \frac{\varepsilon_\alpha + \tilde{E}_\alpha(\vec{k})}{2\varepsilon_\alpha}$$

$$G_{\alpha\alpha}(\vec{k},\tilde{E}) = \frac{i}{2\pi} \frac{A_\alpha(\vec{k})}{E-\varepsilon_\alpha(\vec{k})+i\delta} + \frac{i}{2\pi} \frac{B_\alpha(\vec{k})}{E+\varepsilon_\alpha(\vec{k})+i\delta}$$

Analognim postupkom dobijamo:

$$D_{\alpha\alpha}(\vec{k},\vec{E}) = \frac{i}{2\pi} \frac{\tilde{A}_\alpha(\vec{k})}{E-\varepsilon_\alpha(\vec{k})+i\delta} + \frac{i}{2\pi} \frac{\tilde{B}_\alpha(\vec{k})}{E+\varepsilon_\alpha+i\delta}$$

$$\tilde{A}_\alpha(\vec{k}) = -\frac{\overset{*}{\Delta}_\alpha(\vec{k})}{2\varepsilon_\alpha(\vec{k})} \qquad \tilde{B}_\alpha(\vec{k}') = \frac{\overset{*}{\Delta}_\alpha(\vec{k})}{2\varepsilon_\alpha(\vec{k})}$$

Koristeći gornje izraze za Greenove funkcije možemo izračunati i koncentracije:

$$n_\alpha(\vec{k}) = \langle B^+_\alpha(\vec{k})\, B_\alpha(\vec{k})\rangle \text{ i } h^*_\alpha(\vec{k}) = \langle B^+_\alpha(\vec{k})\, B^+_\alpha(-\vec{k})\rangle$$

Znajući da je

$$\langle BA\rangle = 2 \int_{-\infty}^{\infty} R_e\, G_{AB}(\vec{k},\omega) \frac{1}{e^{\frac{\omega}{\theta}}-1}\, d\omega$$

$$2R_e G_{\alpha\alpha}(\vec{k},E) = A_\alpha(\vec{k})\delta(E-\varepsilon_\alpha) + B_\alpha(\vec{k})\delta(E+\varepsilon_\alpha)$$

$$2R_e D_{\alpha\alpha}(\vec{k},E) = \tilde{A}_\alpha(\vec{k})\delta(E-\varepsilon_\alpha) + \tilde{B}_\alpha(\vec{k})\delta(E+\varepsilon_\alpha)$$

dobijamo:

$$n_\alpha(\vec{k}) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{A_\alpha(\vec{k})}{e^{\frac{\omega}{\theta}}-1}\,\delta(\omega-\varepsilon_\alpha)\,d\omega + \int_{\infty}^{\infty} \frac{B_\alpha(\vec{k})}{e^{\frac{\omega}{\theta}}-1}\,\delta(\omega+\varepsilon_\alpha)\,d\omega =$$

$$= \frac{A_\alpha(\vec{k})}{e^{\frac{\varepsilon_\alpha}{\theta}}-1} + \frac{B_\alpha(\vec{k})}{e^{-\frac{\varepsilon_\alpha}{\theta}}-1} = \frac{1}{e^{\frac{\varepsilon_\alpha}{\theta}}-1} - B_\alpha(\vec{k})\frac{1}{e^{\frac{\varepsilon_\alpha}{\theta}}-1} +$$

$$+ \frac{1}{1-e^{\frac{\varepsilon_\alpha}{\theta}}} = \frac{1}{e^{\frac{\varepsilon_\alpha}{\theta}}-1} - \frac{\varepsilon_\alpha - E_\alpha(\vec{k})}{2\varepsilon_\alpha}\frac{1}{e^{\frac{\varepsilon_\alpha}{\theta}}-1} + \frac{1}{1-e^{-\frac{\varepsilon_\alpha}{\theta}}}$$

$$= \frac{1}{2}\frac{1}{e^{\frac{\varepsilon_\alpha}{\theta}}-1} + \frac{1}{2}\frac{E_\alpha(\vec{k})}{\varepsilon_\alpha}\frac{1}{e^{\frac{\varepsilon_\alpha}{\theta}}-1} + \frac{1}{1-e^{-\frac{\varepsilon_\alpha}{\theta}}} =$$

$$= \frac{1}{2}\frac{e^{-\frac{\varepsilon_\alpha}{2}} - e^{-\frac{\varepsilon_\alpha}{2}}}{e^{\frac{\varepsilon_\alpha}{2\theta}} - e^{-\frac{\varepsilon_\alpha}{2\theta}}} + \frac{1}{2}\frac{E_\alpha(\vec{k})}{\varepsilon_\alpha}\,\mathrm{cth}\,\frac{\varepsilon_\alpha}{2\theta} =$$

$$n_\alpha(\vec{k}) = \frac{1}{2}\;\frac{\tilde{E}_\alpha(\vec{k})}{\varepsilon_\alpha(\vec{k})}\left|\mathrm{cth}\,\frac{\varepsilon_\alpha}{2\theta} - 1\right|$$

analognim postupkom se dobija i

$$h_\alpha^*(\vec{k}) = -\frac{\Delta_\alpha^*(\vec{k})}{2\varepsilon_{\alpha\alpha}(\vec{k})}\,\mathrm{cth}\,\frac{\varepsilon_{\alpha\alpha}(\vec{k})}{2\theta}$$

$$h_\alpha^*(\vec{k}) = 2\int_{\infty} R_e D_{\alpha\alpha}(k,\omega)\,\frac{1}{e^{\frac{\omega}{\theta}}-1}\,d\omega = \frac{\tilde{A}_{\alpha\alpha}(\vec{k})}{e^{\frac{\varepsilon_{\alpha\alpha}}{\theta}}-1} + \frac{\tilde{B}_{\alpha\alpha}(\vec{k})}{e^{-\frac{\varepsilon_{\alpha\alpha}}{\theta}}-1} =$$

$$= \frac{\Delta_2^*(\vec{k})}{2\varepsilon_{\alpha\alpha}(\vec{k})}\left(\frac{1}{e^{-\frac{\varepsilon_{\alpha\alpha}}{\theta}}-1} - \frac{1}{e^{\frac{\varepsilon_{\alpha\alpha}}{\theta}}-1}\right) = -\frac{\Delta_\alpha^*(\vec{k})}{2\varepsilon_{\alpha\alpha}(\vec{k})}\cdot$$

$$\cdot\,\frac{e^{\frac{\varepsilon_{\alpha\alpha}(\vec{k})}{2\theta}} + e^{-\frac{\varepsilon_{\alpha\alpha}(\vec{k})}{\theta}}}{e^{\frac{\varepsilon_{\alpha\alpha}(\vec{k})}{2}} - e^{-\frac{\varepsilon_{\alpha\alpha}(\vec{k})}{2}}} = -\frac{\Delta_\alpha^*(\vec{k})}{2\varepsilon_{\alpha\alpha}(\vec{k})}\,\mathrm{cth}\,\frac{\varepsilon_{\alpha\alpha}(\vec{k})}{2\theta}$$

Energije elementarnih eksitacija date su relacijama:

$$\varepsilon_\alpha(\vec{k}) = \sqrt{\tilde{E}^2_\alpha(\vec{k}) - |\Delta_\alpha(\vec{k})\,|^2}; \qquad \tilde{E}_\alpha = E_\alpha - \mu_\alpha \tag{5.1}$$

a veličine $\Delta_\alpha(\vec{k})$ odredjuju se pomoću sistema integralnih jednačina:

$$\Delta_\alpha(\vec{k}) = -\Sigma_{\nu\vec{g}}\, T_{\alpha\nu}(\vec{k},\vec{g})\, \frac{\Delta_\nu(g)}{2\varepsilon_{\alpha\alpha}(\vec{g})}\, \mathrm{cth}\, \frac{\varepsilon_\alpha(\vec{g})}{2\theta} \tag{5.2}$$

Hemijski potencijal μ_ν kojeg smo uveli u račun jer polazni hemiltonijan odražava broj kvazičestica, odredićemo iz uslova da energija elementarnih eksitacija ne sadrži gep, tj. da $\varepsilon_\mu(\vec{k})\to 0$ kada $\vec{k}\to 0$, što znači da energiju $\varepsilon_\mu(\vec{k})$ računamo od dna eksitonske zone. Taj uslov daje:

$$|E_\mu(0)-\mu|^2 = |\Delta_\mu(0)|^2$$

$$E_\mu(0)-{}_\mu = \pm|\Delta_\mu(0)|$$

$$\mu = E_\mu(0) \pm |\Delta_\mu(0)|.$$

U poslednjoj jednačini uzećemo znak "-" zbog privlačne interakcije medju eksitonima, tako da za energiju elementarnih eksitacija dobijamo:

$$\varepsilon_\mu(\vec{k}) = \sqrt{|E'_\mu(\vec{k})+\Delta_\mu(0)|^2 - |\Delta_\mu(\vec{k})|^2}$$

gde je:

$$E'_\mu(\vec{k}) = E_\mu(\vec{k}) - E_\mu(0).$$

Ako zanemarimo zavisnost veličine $\Delta_\mu(\vec{k})$ od talasnog vektora, tj. stavimo $\Delta_\mu(\vec{k})\simeq\Delta_\mu(0) \equiv \Delta_\mu$ i energiju eksitona uzmemo u aproksimaciji efektivne mase, tj.

$$E'_\mu(\vec{k}) = E_\mu(\vec{k}) - E_\mu(0) = \frac{\hbar^2 k^2}{2m^*_\mu}$$

dobijamo:

$$\varepsilon_\mu(\vec{k}) = \left[\left(\frac{h^2k^2}{2m_\mu^*}\right)^2 + 2\Delta_\mu \frac{h^2k^2}{2m_\mu^*}\right]^{1/2}$$

Iz poslednje relacije lako zaključujemo da energija elementarnih eksitacija nastalih raspadom kaplji zadovoljavaju uslov superfluidnosti i da je za male vrednosti talasnog vektora

$$\varepsilon_\mu(\vec{k}) \simeq \frac{\Delta\mu}{m_\mu} p = C_\mu p,$$

gde je C_μ brzina zraka u sistemu elementarnih eksitacija.

VI. TENZOR DIELEKTRIČNE KONSTANTE

Za izučavanje monohromatskih normalnih ravnih talasa u dielektriku, potrebno je naći tenzor dielektrične konstante koji daje vezu izmedju vektora indukcije $\vec{D}$ i električnog polja $\vec{E}$. Indukcija $\vec{D}$ i polje $\vec{E}$ povezani su relacijom:

$$\vec{D} = \varepsilon \vec{E}.$$

Tenzor ε odredjuje makroskopska svojstva kristala. Transverzalni elektromagnetski talas, čije se električno polje menja po zakonu

$$\vec{E}(\theta,\omega) = \vec{e}E_0 e^{i(\vec{Q}\cdot\vec{r}-\omega t)} + hc. \qquad (6.1)$$

prouzrokuje u kristalu polarizaciju:

$$\vec{P}(\vec{n}) = \frac{\varepsilon(\vec{Q},\omega)-1}{4\pi}\vec{E}(\vec{Q},\omega)+h.c. \qquad (6.2)$$

Vidimo da ukoliko izračunamo polarizaciju $\vec{P}(\vec{n})$ možemo naći i dielektrični konstantu $\varepsilon(\vec{Q},\omega)$.
Operator interakcije kristala sa poljem (6.1) u nerelativističkoj aproksimaciji ima sledeći oblik (vidi npr. [5] gl. III).

$$\hat{H}_{int} = -\frac{e}{mc}\sum_{\vec{n}\alpha}(\vec{A}_0 e^{-i\vec{Q}\hat{\vec{r}}_{\vec{n}\alpha}}\vec{p}_{\vec{n}\alpha})e^{i\vec{Q}(\vec{n}+\vec{\rho}_\alpha)-i\omega t+\gamma t} \qquad (6.3)$$

gde je m - masa, e - naelektrisanje elektrona, c - brzina svetlosti, $\vec{A}_0=-ic/\omega\ \vec{E}_0$ - amplituda vektorskog potencijala pri Kulonovom kalibraciji, $\vec{\rho}_\alpha$ - koordinate molekula u podrešetki α, $\vec{r}_{\vec{n}\alpha}$ i $\vec{p}_{\vec{n}\alpha}$ - ukupni operatori koordinata i impulsa optičkih aktivnih elektrona. U eksitonskoj reprezentaciji, kada promatramo osnovni i jedan pobudjeni nivo: $|0\rangle$ i $|f\rangle$, operator (6.3) izražen preko eksitonskih operatora $B_{n\alpha}$ i $B^+_{n\alpha}$ ima sledeći oblik:

$$\hat{H}_{int} = -\frac{eA_0}{mc}\sum_{\vec{n}\alpha}\{<f|e^{i\vec{Q}\vec{r}_{\vec{n}\alpha}}\hat{p}_{n\alpha}|0>B^{+}_{\vec{n}\alpha} + <0|e^{i\vec{Q}\vec{r}_{\vec{n}\alpha}}\hat{p}_{n\alpha}|f>B_{\vec{n}\alpha}$$

$$e^{i\vec{Q}(\vec{n}+\vec{\rho}_\alpha)-i(\omega t-i\gamma t)}$$

U dugotalasnoj aproksimaciji $(Q\vec{r}_{\vec{n}\alpha})<<1$ imamo da je

$$e^{i\vec{Q}\vec{r}\vec{n}\alpha} \approx 1,\quad <f|\vec{p}_{\vec{n}\alpha}|0>=im\omega_f^\alpha<f|\vec{r}_{\vec{n}\alpha}|0> = i\,\frac{m\omega_f^\alpha}{e}\,\vec{d}\alpha$$

$$<0|\vec{p}_{\vec{n}\alpha}|f> = -im\omega_f<0|\vec{r}_{\vec{n}\alpha}|f>$$

gde je

$\vec{d}_{\vec{n}\alpha} \equiv \vec{d}_\alpha = e<f|\vec{r}_{\vec{n}\alpha}|0>$ - dipolni moment molekule podrešetke α.

Uvodeći operatore $B_\mu(\vec{k})$ umesto $B_{\vec{n}\alpha}$ preko relacije

$$B_{\vec{n}\alpha} = \sum_{\mu\vec{k}} B_\mu(\vec{k})\,\frac{U^*_{\mu\alpha}(\vec{k})}{\sqrt{N}}\,e^{i\vec{k}(\vec{n}+\vec{\rho}_\alpha)} \tag{6.4}$$

dobijamo

$$\hat{H}_{int} = -\frac{iA_0\sqrt{N}}{c}\sum_{\alpha\mu}\omega_\alpha\,\vec{d}_\alpha\{U_{\alpha\mu}(\vec{k})B^+_\mu(\vec{k})-U^*_{\alpha\mu}(-\vec{k})B_\mu(-\vec{k})\}\cdot$$

$$\cdot e^{-i(\omega t-\gamma t)} \tag{6.5}$$

Operator polarizacije kristala $\vec{P}$ ima sledeći oblik

$$\vec{P}(\vec{n}\alpha) = \frac{1}{v}(\vec{d}_{\vec{n}\alpha}\,B^+_{\vec{n}\alpha} + d^*_n\,B_{\vec{n}\alpha}) \tag{6.6}$$

gde je v - zapremina elementarne ćelije (vidi [6] , gl.IX).

Koristeći (6.4) u (6.6) dobijamo:

$$\vec{P}(\vec{n}\alpha) = \frac{1}{v\sqrt{N}} \sum_{\vec{\mu}} \{\vec{d}_\alpha\, U_{\alpha\mu}(-\vec{k}) B^{+}_{\mu}(-\vec{k}) + d^{*}_{\alpha}\, U^{*}_{\alpha\mu}(\vec{k}) B_{\mu}(\vec{k})\} \cdot$$

$$\cdot\, e^{i\vec{k}(\vec{n}+\rho_\alpha)} \tag{6.7}$$

Kvantomehanička srednja vrednost polarizacije data je relacijom

$$<\hat{P}(\vec{n}\alpha,t)> = S_p\{\hat{\rho}(t)\ \vec{P}(\vec{n}\alpha,t)\}.$$

U linearnoj aproksimaciji dobijamo:

$$<\hat{P}(\vec{n}\alpha,t)>\rho = <\hat{P}(\vec{n}\alpha,t)>\rho_0 - i\hbar\, S_p\{ \int_{\infty}^{t} |H_{int}(\tau)\rho_0| d_\tau\, \hat{P}(\vec{n}\alpha H)\}$$

S obzirom da je srednja vrednost polarizacije nepobudjenog molekularnog kristala jednaka nuli, stavljamo:

$$<\hat{P}(\vec{n}\alpha,t)>\rho_0 = 0$$

Uzimajući u obzir relaciju

$$S_p\{[\hat{H}_{int},\rho_0]\hat{P}\} = S_p\{\hat{H}_{int}\rho_0\hat{P} - \rho_0\hat{H}_{int}\ \hat{P}\} =$$

$$= S_p\{\rho_0[\hat{P},\hat{H}_{int}]\} = <[\hat{P},\hat{H}_{int}]>_{\rho_0},$$

dobijamo:

$$<\hat{P}(\vec{n}\alpha,t)> = -\frac{E_0}{iv\hbar\omega}\, e^{i\vec{k}(\vec{n}+\vec{\rho}_\alpha)-i\omega t+\gamma t} \cdot \int_{-\infty}^{t} d\tau\, e^{i\omega(t-\tau)-\gamma(t-\tau)}$$

$$\cdot\, S_p\{\rho_0[\hat{P}_{(\vec{n}\alpha,t)}, \hat{H}_{int}(\tau)]\} =$$

$$= -\frac{E_0}{iv\hbar\omega} e^{i\vec{k}(\vec{n}+\vec{\rho}_\alpha)-i\omega t+\gamma t} \cdot \int_{-\infty}^{\infty} d\tau\, e^{i\omega(t-\tau)-\gamma(t-\tau)} \cdot$$

$$\cdot\ \theta(t-\tau)\ S_p\{\rho_o[\hat{P}_{(\vec{n}\alpha,t)}\ \hat{H}_{int}(\tau)]\}$$

Koristeći definiciju dvovremensko-temperaturskih Greenovih funkcija, možemo pisati:

$$<\hat{P}(\vec{n}\alpha,t)> = -\ \frac{E_o}{iv\hbar\omega}\ e^{i\vec{k}(\vec{n}+\rho_\alpha)-i\omega t+\gamma t} \cdot <<\hat{P}_{(\vec{n}\alpha)}|\hat{H}_{int}>>_{\tilde{\omega}} \quad (6.8)$$

$$\tilde{\omega} = \omega + i\gamma$$

$$<<\hat{P}(\vec{n}\alpha)\hat{H}_{int}>>_{\tilde{\omega}} = \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\tilde{\omega}t}\theta(t) S_p\{\rho_o[\hat{P}_{\vec{n}\alpha}(t)\hat{H}_{int}(0)]\} =$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\tilde{\omega}t} dt\ \theta(t) \sum_{\mu\vec{k}\alpha',\nu} \{\vec{d}_\alpha(\vec{e}\cdot\vec{d}_{\alpha'})\omega_\alpha U_{\alpha\mu}(-\vec{k})U_{\alpha\nu}(\vec{Q})\ \cdot$$

$$\cdot\ <[B_\mu^+(-\vec{k},t)B_\nu^+(\vec{Q},0)]>-\omega_\alpha\cdot\vec{d}_\alpha(\vec{e}\cdot\vec{d}_{\alpha'}^*)U_{\alpha\mu}(-\vec{k})U_{\alpha',\nu}^*(-\vec{Q})\ \cdot$$

$$\cdot\ <[B_\mu^+(-\vec{k},t)B_\nu(-\vec{Q},o)]>+\omega_{\alpha'}d_\alpha^*(\vec{e}\cdot\vec{d}_{\alpha'})U_{\alpha\mu}^*(\vec{k})U_{\alpha',\nu}(\vec{Q})\ \cdot$$

$$\cdot\ <[B_\mu(\vec{k},t)B_\nu^+(\vec{Q})]>-\omega_{\alpha'} d_\alpha^*(\vec{e}\cdot\vec{d}_{\alpha'}^*)U_{\alpha\mu}^*(\vec{k})U_{\alpha',\nu}^*(-Q)$$

$$\cdot<[B_\mu(\vec{k},t)B_\nu(-\vec{Q},0)]>\} = \sum_{\mu\nu\alpha'} \{\vec{d}_\alpha(\vec{e}\cdot\vec{d}_{\alpha'})\omega_\alpha\cdot U_{\alpha\mu}(-\vec{k})\cdot$$

$$\cdot\ U_{\alpha',\nu}(\vec{k})<<B_\mu^+(-\vec{k})|B_\nu^+(\vec{k})>>_{\tilde{\omega}} - \vec{d}_\alpha(\vec{e}\cdot\vec{d}_{\alpha'})\omega_{\alpha'}U_{\alpha\mu}(-\vec{k})\cdot$$

$$\cdot\ U_{\alpha',\nu}^*(-\vec{k})<<B_\mu^+(-\vec{k})|B_\nu(-\vec{k})>>_{\tilde{\omega}} + \vec{d}_\alpha^*(\vec{e}\cdot\vec{d}_{\alpha'})\omega_{\alpha'}U_{\alpha\mu}^*(\vec{k})\cdot$$

$$\cdot\ U_{\alpha',\nu}(\vec{k})<<B_\mu(\vec{k})|B_\nu^+(\vec{k})>>_{\tilde{\omega}} - \vec{d}_\alpha^*(\vec{e}\cdot\vec{d}_{\alpha'}^*)\omega_{\alpha'}U_{\alpha\mu}^*(\vec{k})\cdot$$

$$\cdot\ U_{\alpha',\beta}(-\vec{k})<<B_\mu(\vec{k})|B_\nu(-\vec{k})>>_{\tilde{\omega}}\}$$

Uvodeći oznake:

$$A_{\alpha\mu}(\vec{k}) = \sum_{\alpha'}(\vec{e}\cdot\vec{d}_{\alpha'})\omega_{\alpha'} U^{*}_{\alpha\mu}(\vec{k})\ U_{\alpha',\mu}(\vec{k})$$

$$A'_{\alpha\mu}(-\vec{k}) = \sum_{\alpha'}(\vec{e}\cdot\vec{d}^{*}_{\alpha'})\omega_{\alpha'} U_{\alpha\mu}(-\vec{k})\ U^{*}_{\alpha',\mu}(-\vec{k})$$

$$B_{\alpha\mu}(\vec{k}) = \sum_{\alpha'}(\vec{e},d_{\alpha'})\omega_{\alpha'} U_{\alpha\mu}(-\vec{k})\ U_{\alpha',\mu}(\vec{k})$$

$$B'_{\alpha\mu}(-\vec{k}) = \sum_{\alpha'}(\vec{e}\ \vec{d}^{*}_{\alpha'})\omega_{\alpha'} U^{*}_{\alpha\mu}(\vec{k})\ U_{\alpha',\mu}(-\vec{k})$$

dobijamo (s obzirom da je $G_{\mu\nu}=D_{\mu\nu}=0$) da je:

$$<\hat{P}(\vec{n}\alpha,t)> = -\frac{E_0}{iv\hbar\omega}\, e^{i\vec{k}\vec{n}_\alpha - i\omega t+\gamma t}\cdot \sum_{\mu}\{A_{\alpha\mu}(\vec{k})d^{*}_{\alpha}G_{\mu\mu}(\vec{k},\tilde{\omega}) -$$

$$- d_{\alpha}A'_{\alpha\mu}(-\vec{k})G^{+}_{\mu\mu}(-\vec{k},\tilde{\omega}) + d_{\alpha}B_{\alpha\mu}(\vec{k})\ D_{\mu\mu}(\vec{k},\tilde{\omega}) -$$

$$- d^{*}_{\alpha}B'_{\alpha\mu}(-\vec{k})\ D^{+}_{\mu\mu}(\vec{k},\tilde{\omega})\} \qquad (6.9)$$

Greenove funkcije $G_{\mu\mu}(k,\tilde{\omega})$ i $D_{\mu\mu}(k,\tilde{\omega})$ smo izračunali u V glavi, a funkcije: $G^{+}_{\mu\mu}(-\vec{k},\tilde{\omega}) \equiv \langle\langle B^{+}_{\mu}(-\vec{k})|B_{\nu}(-\vec{k})\rangle\rangle_{\tilde{\omega}}$ i

$$D^{+}_{\mu\mu}(\vec{k},\tilde{\omega}) \equiv \langle\langle B_{\mu}(\vec{k})|B_{\nu}(-\vec{k})\rangle\rangle_{\tilde{\omega}}$$

izračunaćemo koristeći hamiltonijan (4.17).

Polazeći od jednačina:

$$E\langle\langle B^{+}_{\mu}(-\vec{k})|B_{\nu}(-\vec{k})\rangle\rangle_{\tilde{\omega}} = \frac{i}{2\pi}[B^{+}_{\mu}(-\vec{k}), B_{\nu}(-\vec{k})] + \langle\langle [B^{+}_{\mu}(-\vec{k}), H]$$

$$|B_{\nu}(-\vec{k})\rangle\rangle_{\tilde{\omega}}$$

$$E\langle\langle B_{\mu}(\vec{k})|B_{\nu}(-\vec{k})\rangle\rangle_{\tilde{\omega}} = \frac{i}{2\pi}[B_{\mu}(\vec{k}), B_{\nu}(-\vec{k})] + \langle\langle [B_{\mu}(\vec{k}), H]$$

$$|B_{\nu}(-\vec{k})\rangle\rangle_{\tilde{\omega}}$$

uz iste aproksimacije kao i u gl. V, dobijamo sledeći sistem jednačina za funkcije $G^{+}_{\mu\mu}$ i $D^{+}_{\mu\mu}$:

$$[E+\tilde{E}_{\mu}(\vec{k})]\,G^{+}_{\mu\mu}(-\vec{k}) - \sum_{\nu\vec{g}} T_{\mu\nu}(\vec{k},\vec{g})\; n^{*}_{\mu}(\vec{g})\; D^{+}_{\mu\mu}(\vec{k}) = \frac{i}{2\pi}$$

$$\Sigma T^{*}_{\mu\nu} n_{\nu}(\vec{g})\; G^{+}_{\mu\mu}(-\vec{k}) + [E-\tilde{E}_{\mu}(\vec{k})]\,D_{\mu\nu}(\vec{k}) = 0.$$

Rešavajući gornji sistem jednačina dobijamo:

$$G^{+}_{\mu\mu}(-\vec{k}) = \frac{i}{2\pi}\;\frac{E - E_{\mu}(\vec{k})}{E^{2}-\tilde{E}^{2}_{\mu}(\vec{k})+|\Delta^{*}_{\mu}(k)|^{2}}$$

$$D^{+}_{\mu\mu}(\vec{k}) = -\frac{i}{2\pi}\;\frac{\Delta^{*}_{\mu}(\vec{k})}{E^{2}-\tilde{E}^{2}(\vec{k})+|\Delta^{+}_{\mu}\;(\vec{k})|^{2}}$$

$$\Delta_{\mu}(\vec{k}) = \sum_{\nu\vec{g}} T_{\mu\nu}(\vec{k},\vec{g})\,n_{\nu}(\vec{g})$$

S obzirom da je formula za izračunavanje polarizacije data jednačinom (6.9) komplikovana, u daljnjem računu zadržaćemo se u oblasti eksiton-fonon rezonance, tj. kada je energija upadnog zračenja Ω približno jednaka energiji pobudjenja molekula

$$\Delta^{\mu}_{f} = \varepsilon^{\mu}_{f} - \varepsilon^{\mu}_{o} \quad \text{tj.} \quad \Omega \approx \Delta^{\mu}_{f} \qquad \mu = 1,2).$$

Kako sada posmatramo interakciju kristala sa fotonima, energije eksitacija ne možemo računati od dna zone, već od osnovnog stanja molekula, te u Greenovim funkcijama moramo uvesti smenu:

$$\tilde{E} = \tilde{\Omega} - \Delta_{f}, \;\text{tj.}\; G_{\mu\mu}(\vec{k},\tilde{\Omega}) \rightarrow G_{\mu\mu}(\vec{k},\tilde{E}) \;\text{itd.}$$

Lako možemo zaključiti da u okolini eksiton-fonon rezonanse Greenova funkcija $G_{\mu\mu}(\vec{k},\tilde{\Omega})$ igra dominantnu ulogu u izrazu za polarizaciju kristala

$(G_{\mu\mu} >> G^+_{\mu\mu}, D_{\mu\mu}, D^+_{\mu\mu})$ tako da formula (6.9) u toj oblasti poprima sledeći oblik:

$$<\hat{\vec{P}}(\vec{n}\alpha,t)> = -\frac{E_0}{iv\hbar\omega}e^{i\vec{k}\vec{n}_\alpha - i\Omega t+\gamma t}\cdot\sum_\mu A_{\alpha\mu}(\vec{k})\vec{d}^{\,*}_\alpha G_{\mu\mu}(\vec{k},\tilde{E}) \quad (6.10)$$

$$\tilde{E} = \Omega - \Delta_f + i\delta$$

U daljem računu posmatraćemo dva slučaja i to:

a) kada imamo dve identične molekule po elementarnoj ćeliji $\Delta_f^1 = \Delta_f^2$ i

b) kada imamo dve različite, tj. $\Delta_f^1 \neq \Delta_f^2$.

a) $\Delta_f^1 = \Delta_f^2 = \Delta_f$ tada (6.10) dobija oblik:

$$<\hat{\vec{P}}(n\alpha,t)> \simeq -\frac{E_0}{2\pi v\hbar\Omega}e^{i\vec{k}\vec{n}_\alpha - i\Omega t+\delta t}\cdot\sum_{\mu=1}^{2} A_{\alpha\mu}(\vec{k})\,\vec{d}^{\,*}_\alpha$$

$$\left\{\frac{[n_\mu(\vec{k})+\frac{1}{2}]\cdot\text{th}\,\frac{\varepsilon_\mu(\vec{k})}{2\theta}+\frac{1}{2}}{\Omega-\Delta_f^{\bullet}-\varepsilon_\mu(\vec{k})+i\delta} - \frac{[n_\mu(\vec{k})+\frac{1}{2}]\text{th}\,\frac{\varepsilon_\mu^{\mu}(\vec{k})}{2\theta}-\frac{1}{2}}{\Omega-\Delta_f^{\bullet}+\varepsilon_\mu(\vec{k})+i\delta}\right\} \quad (6.11)$$

b) $\Delta_f^1 \neq \Delta_f^2$

Uz pretpostavku da upadno monohromatsko zračenje stupa u rezonancu samo sa molekulima jedne podrešetke u jednačini (6.10) otpada sumiranje, te dobijamo:

$$<\hat{\vec{P}}\cdot(\vec{n}_\alpha,t)> = -\frac{E_0}{2\pi v_0\hbar\Omega}A_{\alpha\mu}(\vec{k})\,\vec{d}^{\,*}_\alpha\left\{\frac{|(\vec{n}_\mu(\vec{k})+\frac{1}{2}|\,\text{th}\,\frac{\varepsilon_\mu(\vec{k})}{2\theta}+\frac{1}{2}}{\Omega-\Delta_f^\mu-\varepsilon_\mu(\vec{k})+i\delta} - \right.$$

$$\left. - \frac{|n_\mu(\vec{k})+\frac{1}{2}|\,\text{th}\,\frac{\varepsilon_\mu(\vec{k})}{2\theta}-\frac{1}{2}}{\Omega-\Delta_f^\mu+\varepsilon_\alpha(\vec{k})+i\delta}\right\}e^{i\vec{k}\vec{n}_\alpha - i\Omega t+\delta t} \quad (6.12)$$

$\mu = 1,2.$

Na temperaturama blizu apsolutne nule imamo: $\theta \approx 0$; $th\ \frac{\varepsilon_\mu(\vec{k})}{2\theta} \to 1$, pa jednačina (6.12) dobija oblik:

$$<\hat{\vec{P}}(n\alpha,t)> = -\frac{E_0}{2\pi v\hbar\Omega}A_{\alpha\mu}(\vec{k})d_\alpha^*\left\{\frac{\bar{n}_\alpha(\vec{k})+1}{\Omega-\Delta_f^\mu-\varepsilon_\mu(\vec{k})+i\delta} - \frac{\bar{n}_\mu(\vec{k})}{\Omega-E_\mu^0+\varepsilon_\mu(\vec{k})+i\delta}\right\}e^{i\vec{k}\vec{n}_\alpha-i\Omega t+\delta t} \qquad (6.13)$$

Poslednju relaciju ćemo koristiti za izračunavanje tenzora dielektrične konstante.

Obzirom da je koeficijent apsorpcija zračenja proprocioanlan imaginarnom delu tenzora dielektrične konstante, izračunaćemo samo imaginarni deo polarizacije, koristeći formulu:

$$\frac{1}{X-Q+i\delta} = \frac{P}{X-Q} - i\pi\delta(X-Q) \qquad (6.14)$$

Iz relacije $<\hat{\vec{P}}(\vec{n}\alpha,t)> = 4\pi X_{ij}E_{ij}$ možemo odrediti tenzor električne susceptibilnosti χ_{ij}, a preko njega i tenzor dielektrične konstante ε_{ij} relacijom

$$\varepsilon_{ij} = 1 + 4\pi\,\chi_{ij}$$

Iz poslednje relacije sledi:

$$J_m\{\varepsilon_{ij}\} = 4\pi\ J_m\{\chi_{ij}\} \qquad (6.15)$$

Koristeći jednačine (6.13), (6.14) i definiciju veličina $A_{\alpha\mu}(\vec{\mu})$ možemo odrediti komponente tenzora χ_{ij}, odnosno ε_{ij}.

Kao što je pokazano u [6], funkcije U_α $(\vec{k})$ ne zavise od talasnog vektora $\vec{k}$, ako $\vec{k}$ leži u ravni simetrije kristala ili je normalan na ravan simetrije. U tom slučaju ni $A_{\alpha\mu}(\vec{n})$ neće zavisiti od talasnog vektora. Upravo za te prevce mi ćemo izračunati

$J_m\{\chi_{ij}\}$, s obzirom da se odgovarajuće formule uprošćavaju . Tako npr. za $J_m\{\chi_y\}$ dobijamo:

$$J_m\{\chi_{xy}\} = \frac{\omega_1 d_{1y} d_{1x} + \omega_2 d_{2y} d_{1x}}{16\pi v\hbar\Omega} \cdot \{[n_\mu(\vec{k})+1]\delta[\Omega-\Delta_f^\mu-\varepsilon_\mu(\vec{k})] -$$

$$- n_\mu(\vec{k})\delta[\Omega-\Delta_f^\mu+\varepsilon_\alpha(\vec{k})]\} \quad \mu=1,2,\ldots \tag{6.16}$$

Ostale komponente nećemo navesti s obzirom da se medjusobno razlikuju samo za faktor koji stoji ispred velike zagrade, a za našu analizu upravo članovi u zagradi igraju bitnu ulogu.

Kao što smo ranije pomenuli, koeficijent apsorpcije zračenja proporcionalan je imaginarnom delu tenzora dielektrične konstante, te pomoću jednačine (6.16) možemo videti glavne karakteristike apsorpcije zračenja u molekularnim kristalima u kojima se odigravaju procesi slepljivanja eksitona u eksitonsku kaplju usled virtuelne izmene fonona.

Prvi član u (6.16) daje nam pozitivnu apsorpciju fotona sa energijom

$$\Omega_1 = \Delta_f + \varepsilon_\mu(\vec{k}) \tag{6.17}$$

i kreacija eksitona sa istom energijom, gde je $\varepsilon_\mu(\vec{k})$ dato jednačinom (5.1) prethodne glave. Ovaj proces je proporcionalan faktoru $n_\mu(k)+1$, tj. sadržava i spontano i stimulisano kreiranje eksitacija, što sledi i iz opšte teorije nestacionarnih perturbacija.

Drugi član u jednačini (6.16) predstavlja negativnu apsorpciju fotona energije

$$\Omega_2 = \Delta_f - \varepsilon(\vec{k}), \tag{6.18}$$

koja je proporcionalna faktoru $n_\mu(\vec{k})$, odnosno predstavlja stimulisanu emisiju fotona energije Ω_2. Stimulisanu emisiju fotona možemo objasniti upravo procesima kreacije eksitonske kaplje i dezintegracije kaplje na dve nove eksitacije. Naime, pri dezintegraciji kaplje energije $2\Delta_f$ i kvaziimpulsa $0=\vec{k}+(-\vec{k})$ stvaraju se dve eksitacije energije

$$\Omega_1 = \Delta_f+\varepsilon_\mu(\vec{k}) \quad i \quad \Omega_2 = \Delta_f-\varepsilon_\mu(-\vec{k})$$

sa suprotnim impulsima, pri čemu se druga eksitacija emituje kao foton iste energije Ω_2. Za taj proces važe zakoni održanja energije i kvaziimpulsa:

$$2\Delta_f = \Delta_f + \varepsilon_\mu(\vec{k}) + \Delta_f - \varepsilon_\mu(-\vec{k}) \qquad (\varepsilon_\mu(\vec{k})=\varepsilon_\mu(-\vec{k}))$$

$$0 = \vec{k} + (-\vec{k})$$

Razlika energija izmedju linija apsorpcije i emisije fotona u molekularnim kristalima iznosi:

$$\Omega_1 - \Omega_2 = 2\varepsilon_\mu(\vec{k}).$$

Eksperimentalno odredjivanje ove razlike potrvrdilo bi gore izloženu teoriju.

Realni deo tenzora dielektrične konstante, koji opisuje disperziju zračenja u kristalu, nismo izračunali, s obzirom da on pokazuje rezonantne linije na frekvencama Ω_1 i Ω_2, tj. na frekvencama apsorpcije i emisije, a to je rezultat koji sledi i u slučaju kada ne posmatramo procese kreiranja eksitonskih kaplji.

ZAKLJUČAK

Rezultate ovog rada možemo ukratko rezimirati na sledeći način:

1) Primenom Frölichove transformacije operatora eksiton+fononi, pokazali smo da eksiton-fonon interakcija može da dovede do efektivne eksiton-eksiton interakcije, koje je u izvesnoj oblasti impulsa privlažna. Ta interakcija dovodi do kreiranja eksitonskih kaplji.

2) Metodom Greenovih funkcija odredili smo spektar elementarnih eksitacija u kristalu nastalih raspadom kaplje i pokazali da zadovoljava Landauov uslov superfluidnosti.

3) Koristeći vezu izmedju eksitonskih Greenovih funkcija i tenzora dielektrične konstante ε_{ij} izračunali smo koeficijent apsorpcije zračenja u kristalu, koji je proporcionalan imaginarnom delu tenzora ε_{ij}.

Konkretan račun i analizu apsorpcije zračenja izvršili smo za slučaj kristala sa dve podrešetke. Pokazano je da dolazi do apsorpcije zračenja na frekvenci $\Omega_1=\Delta_f+\varepsilon_\mu(\vec{k})$ i do stimulisane emisije na frekvenci $\Omega_2=\Delta_f-\varepsilon_\mu(\vec{k})$. Razlike izmedju linija apsorpcije i emisije $\Omega_1-\Omega_2$ mogla bi poslužiti za eksperimentalno testiranje predložene teorije.

Napomenimo na kraju, da u ovom radu nije razmatrana repulzija medju eksitonima (rasejanje na δ-potencijalu), jer ona nema bitnog uticaja na formiranje eksitonskih kaplji pri malim koncentracijama eksitona, jer se tada interakcija medju samim eksitonima može zanemariti. Pored toga, ovo je značajno samo na malim rastojanjima ($\lesssim 10^{-7}$ cm), dok je dimenzija eksitonskih kaplji reda veličine $R\sim 10^{-5}$ cm (vidi [7]).

L I T E R A T U R A

|1| Agranovič, V.M.: Tošič,B.S. — časopis "ŽETF" 53, 149, (1967.)

|2| Kapor,D.V. : Stojanović,S.D. Škrinjar,M.J. Tošić,B.S. — PHYS.STAT. SOL(b) 74, 103, (1976.)

|3| Miličević,Dj.S.: — SUPERFLUIDNOST OPTIČKIH POBUDJENJA U KRISTALIMA SA DVE PODREŠETKE, Diplomski rad, Novi Sad, 1978.

|4| Tjablikov,S.V.: — METODI KVANTAVAJA TEORIJI MAGNETIZMA

|5| Agrinovič,V.M.: — TEORIJA EKSITONOV, Izd. "Nauka", Moskva, 1968.

|6| Davidov,A.S.: — TEORIJA TVJORDOVA TELA, Izd. "Nauka", Moskva, 1976.

|7| Stojanović,S.V.: — PHYS.STAT. SOL(b), 84, k 101, (1977.)