UNIVERZITET U NOVOM SADU

PRIRODNO-MATEMATIČKI FAKULTET
grupa FIZIKA

DIPLOMSKI RAD

tema: Bipolaritoni

Monjov D. Joza

NOVI SAD 1975

Najiskrenije se zahvaljujem profesoru Dr Bratislavu S. Tošiću na pomoći ukazanoj pri izradi ovog rada.

SADRŽAJ

UVOD

Cilj ovog diplomskog rada je da se ispitaju vezana stanja dva normalna elektromagnetna talasa (polaritona) u kondenzovanoj sredini. Do danas je mnogo pažnje posvećeno analizi bieksitona. Poznato je da polariton predstavlja realniji model za optička pobuđenja u kristalima nego eksiton pa je zato istraživanje osobina bipolaritona tema koja ima veći praktični značaj nego ispitivanje bieksitona.

I EKSITONI I POLARITONI

I 1. Eksitoni

Frenkel i Pajersl su prvi dali teoriju o optičkim pobudenjima u kristalima i to za molekulorne kristale a Vanije i Mot za poluprovodnike. Ovakva pobudenja, izazvana fotonima nazivaju se eksitoni.

Frenkelovim eksitonima nazivamo eksitone u molekularnim kristalima, dok se eksitoni u poluprovodnicima zovu eksitoni Vanije-Mota. U energetskom smislu oba pomenuta tipa eksitona su veoma slični, jer im je energija reda veličine vidljive svetlosti koja ih indukuje (stvara).

Bitna razlika izmedu ova dva tipa eksitona je u veličini njihovog radijusa, ukoliko ih shvatimo kao kvazičestice sfernog oblika. Radijus Frenkelovih eksitona je reda veličine nekoliko angstrema, dok je radijus eksitona Vanije-Mota i do nekoliko mikrona.

Eksiton Vanije-Mota nastaje tako da svetlost iz popunjene energetske zone u poluprovodniku izbaci jedan elektron u provodnu zonu. Znači u popunjenoj zoni nastaje „šupljina", koja se ponaša kao pozitivno naelektrisanje. Elektron iz provodne zone, i „supljina" interaguju Kulonovom interakcijom. Dok je Kulonova sila dovoljno jaka da ih drži vezane u poluprovodniku ne teče struja, već se ovaj vezani kompleks elektron-„šupljina" ponaša kao neutralna celina. Ovaj neutralni kompleks ponaša se tako da se pomera kroz kristal kao neki talas (kvazičestica) i taj talas se naziva eksiton Vanije-Mota. Ako se Kulonova veza prekine i dođe do razdvajanja elektrona i „šupljine", onda eksiton Vanije Mota prestaje da postoji. Tada se elektron i „šupljina" kreću nezavisno jedno od drugog i kroz poluprovodnik teče struja, u provodnoj zoni struja elektrona a u popunjenoj zoni struja „šupljina".

Kod Frenkelovih eksitona svetlost takođe stvara elektron i „šupljinu" ali ovaj neutralni kompleks ostaje na samom molekulu. Zato Frenkelovi eksitoni imaju mali radijus u odnosu na eksitone Vanije-Mota. Međutim to ne znači da ekscitacija jednog molekula ostaje lokalizovana na samom molekulu. Kad se jedan molekul u kristalu ekscitira to odmah izaziva promenu matričnih elemenata interakcije između molekula i ekscitacija, usled ovog prelazi na sledeći molekul tako da se posle izvesnog vremena prenese na sve molekule kristala. Ovakav talas pobuđenja naziva se Frenkelov eksiton.

Frenkelovi eksitoni najčešće se javljaju u molekularnim kristalima. U molekularne kristale spadaju: antracen naftalin, benzol u čvrstom stanju i plemeniti gasovi takođe u čvrstom stanju. Molekuli ovakvih kristala su jako izraženi dipoli i zbog toga između njih deluju sile dipol-dipolnog tipa. Potencijal dipol-dipolne interakcije između molekula ima oblik:

$$V_{nm} = e^2 \frac{\vec{r}_{\vec{n}} \cdot \vec{r}_{\vec{m}}}{|\vec{n}-\vec{m}|^3} - 3e^2 \frac{[\vec{r}_{\vec{n}} \cdot (\vec{n}-\vec{m})\, \vec{r}_{\vec{m}} (\vec{n}-\vec{m})]}{|\vec{n}-\vec{m}|^5} \qquad (I\,1.1)$$

gde je e - naelektrisanje elektrona; $\vec{n}, \vec{m}$ vektori kristalne rešetke a $\vec{r}_{\vec{n}}$ i $\vec{r}_{\vec{m}}$ - vektori dipola molekula na mestu $\vec{n}$ i $\vec{m}$ u kristalnoj rešetci. Dipol-dipolna interakcija ima dva dela koja su bitno različita. Prvi deo zavisi samo od intenziteta rastojanja između molekula i ovaj deo se naziva analitički deo dipol-dipolne interakcije. Drugi deo zavisi od intenziteta rastojanja i od uglova koje vektori-dipoli zaklapaju sa rastojanjima $\vec{n}$ i $\vec{m}$ i naziva se neanalitički deo dipol-dipolne interakcije. Naziv „neanalitički" se koristi zbog toga što Furije lik ovog dela interakcije zavisi od pravca prostiranja eksitona, tako da za svaki pravac prostiranja eksiton ima drugačiji zakon disperzije. Često se u računima iz raznoraznih razloga „neanalitički" deo zakona disperzije odbacuje i eksitoni dobijeni u ovakvoj aproksimaciji nazivaju se mehanički eksitoni. Fotoni koji stvaraju eksitone u molekulima mogu da izazovu dva efekta. Prvi efekat sastoji se u promeni stanja unutrašnjih molekulskih vibracija. Ove druge promene do kojih dovodi svetlost manjih energija (infracrvena svetlost) kolektivizuju u kristalu i ovakve kolektivne eksitacije ponekad se nazivaju eksitoni Frenkela a češće vibronima. Dalja razmatranja biće usmerena isključivo na čiste eksitone Frenkela tj. na one eksitone koji nastaju usled promene stanja elektrona u individualnim molekulima.

Ako se ograničimo samo na ovaj slučaj onda hamiltonijan molekularnog kristala u odnosu na proces optičkih pobuđivanja njegovog elektronskog podsistema možemo da posmatramo kao hamiltonijan sa dvočestičnim fermionskim interakcijama. U reprezentaciji druge kvantizacije ovakav Hamitonijan ima oblik:

$$H = \sum_{\vec{n}f} E_{\vec{n}f}\, a^{+}_{\vec{n}f}\, a_{\vec{n}f} + \frac{1}{2} \sum_{\substack{\vec{n}\vec{m} \\ f_1 f_2 f_3 f_4}} V_{\vec{n}\vec{m}}(f_1 f_2 ; f_3 f_4)\, a^{+}_{\vec{n}f_1}\, a^{+}_{\vec{m}f_2}\, a_{\vec{m}f_3}\, a_{\vec{n}f_4} \qquad (I1.2)$$

gde $\vec{n}, \vec{m}$ označavaju čvorove rešetke, f, f_1, f_2, f_3, f_4, predstavljaju skupove kvantnih brojeva koji karakterišu stanje elektrona, $E_{\vec{n}f}$ su energije elektrona u stanju f; a $V_{\vec{n}\vec{m}}(f_1 f_2; f_3 f_4)$ su matrični elementi operatora dipol dipolne interakcije po svojstvenim stanjima elektrona u izolovanom molekulu. Operatori $a^+_{\vec{n}f}$ i $a_{\vec{n}f}$ kreiraju, odnosno anihiliraju elektron na čvoru $\vec{n}$ u stanju f. Ako sa $H_{\vec{n}}$ označimo hamiltonijam molekula na mestu $\vec{n}$, onda njegov svojstveni problem možemo zapisati kao:

$$H_{\vec{n}} \varphi^f_{\vec{n}} = E^f_{\vec{n}} \varphi^f_{\vec{n}} \qquad (I1.3)$$

na osnovu ovog vidimo da su $E^f_{\vec{n}}$ energije izolovanog molekula, dok su funkcije $\varphi^f_{\vec{n}}$ svojstvene funkcije hamiltonijana izolovanog molekula. Matrični element interakcije dva molekula sa raznim nivoima $f_1 f_2 f_3 f_4$ ima oblik:

$$V_{\vec{n}\vec{m}}(f_1 f_2; f_3 f_4) = \int \varphi^{*f_1}_{\vec{n}} \varphi^{*f_2}_{\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}} \varphi^{f_3}_{\vec{m}} \varphi^{f_4}_{\vec{n}} d\tau_{\vec{n}} d\tau_{\vec{m}} \qquad (I1.4)$$

gde $d\tau_{\vec{n}}$, $d\tau_{\vec{m}}$ predstavljaju elemente zapremine prostora koji zauzimaju molekuli na mestima $\vec{n}$ i $\vec{m}$. Talasne funkcije φ jako brzo opadaju sa rastojanjem pa se integral (I1.4) može shvatiti bez velike pogreške kao integral po beskonačnoj zapremini. Pri daljoj analizi smatraćemo da elektron u molekulu može da se nađe samo u dva stanja, osnovnom „0" i pobuđenom f. Ovakva šema naziva se šema sa dva nivoa i ona je opravdana ili u slučaju kada kristal pobuđujemo monohromatskim fotonima ili ako fotoni nisu monohromatski, šema je opravdana ako su ostali mogući nivoi energetski jako različiti od nivoa f.

Razmatrati hamiltonijan (I1.2) kao elektronski hamiltonijan nije zgodno ni sa matematičke tačke gledišta a ni sa fizičke tačke gledišta, jer fizički posmatrano, eksiton nije pobuđen elektron već kvant pobuđenja molekula kristala. Zbog toga se umesto fermi operatora $a_{\vec{n}f}$ uvode novi operatori $p_{\vec{n}}$ i to na sledeći način:

$$P_{\vec{n}}^{+} = a_{\vec{n}f}^{+} a_{\vec{n}o} \qquad P_{\vec{n}} = a_{no}^{+} a_{\vec{n}f} \qquad (I1.5)$$

Fizički smisao novo uvedenih operatora je očigledan. Prema gornjoj definiciji operator $p_{\vec{n}}^{+}$ opisuje proces u kome je nestao jedan elektron u osnovnom stanju, a rodio se jedan elektron u pobuđenom stanju f. Prema tome operator $p_{\vec{n}}^{+}$ kreira kvant pobuđenja sa energijom $E_{\vec{n}f} - E_{\vec{n}o}$. Operator $p_{\vec{n}}$ opisuje proces u kome je iščezao elektron u pobuđenom stanju a „rodio" se u osnovnom stanju „0". Prema tome operator $p_{\vec{n}}$ uništava (anihilira) kvant pobuđenja sa energijom $E_{\vec{n}f} - E_{\vec{n}o}$.

Operatori $p_{\vec{n}}$ i $p_{\vec{n}}^{+}$ nemaju fermiomne komutacione relacije a ni bozonske i sa statističke tačke gledišta predstavljaju sredinu između Boze i Fermi operatora. Ovakvi operatori nazivaju se Pauli operatori. Komutacione osobine za Pauli operatore možemo izvesti na osnovu komutacionih osobina za Fermi operatore uz jedan dopunski uslov koji ćemo detaljnije objasniti. Ako je elektronu dopušteno da zauzima svega dva stanja „0" i f, onda zbog Paulijevog principa za svaki čvor rešetke kompletan fermionski prostor izgleda ovako:

$$|0_o \quad 0_f\rangle \qquad |1_o \quad 1_f\rangle \qquad (I1.6)$$

$$|1_o \quad 0_f\rangle \qquad |0_o \quad 1_f\rangle \qquad (I1.7)$$

Obzirom na definiciju Pauli operatora (I1.5) lako se vidi da su oni identički ravni nuli u podprostoru (I1.6) što znači da ovaj podprostor ne može uticati na fizičke karakteristike sistema, pa ga isključujemo iz daljih razmatranja. U podprostoru (I1.7) Pauli operatori nisu ravni nuli i što je još važnije, delujući na funkcije iz ovog podprostora oni daju funkcije iz tog podprostora pa je zbog toga isključivanje podprostora (I1.6) opravdano. Takođe je očigledno da u podprostoru (I1.7) važi uslov:

$$a^{+}_{\vec{n}f}\, a_{\vec{n}f} + a^{+}_{\vec{n}o}\, a_{\vec{n}o} = 1 \qquad (I1.8)$$

Kombinovanjem ovog uslova sa poznatim komutacionim relacijama za Fermi operatore, za Pauli operatore (I1.5) dobijamo sledeće komutacione zakone:

$$\begin{aligned}
&[P_{\vec{n}}, P^{+}_{\vec{m}}] = (1 - 2P^{+}_{\vec{n}} P_{\vec{n}})\,\delta_{\vec{n}\vec{m}} \\
&[P_{\vec{n}}, P_{\vec{m}}] = [P^{+}_{\vec{n}}, P^{+}_{\vec{m}}] = 0 \qquad m \neq n \qquad (I1.9) \\
&P^{2}_{\vec{n}} = P^{+2}_{\vec{n}} = 0 \\
&P^{+}_{\vec{n}} P_{\vec{n}} = a^{+}_{\vec{n}f}\, a_{\vec{n}f} = 0 \ \text{ili}\ 1
\end{aligned}$$

odavde se vidi da se za jedan čvor rešetke Pauli operatori ponašaju kao Fermi operatori, dok se za različite čvorove rešetke ponašaju kao Boze operatori.

Ako u hamiltonijanu (I1.2) uzmemo u obzir činjenicu da indeksi f, f_1, f_2, f_3, f_4 mogu uzimati samo dve vrednosti 0 i f, iskoristimo definiciju Pauli operatora i njihove komutacione relacije dobijamo Hamiltonijan sistema u paulionskoj reprezentaciji u obliku:

$$H=\mathcal{E}_0+\Delta\sum_{\vec{n}}P_{\vec{n}}^{+}P_{\vec{n}}+\sum_{\vec{n}\vec{m}}\tilde{\alpha}_{\vec{n}\vec{m}}P_{\vec{n}}^{+}P_{\vec{m}}+$$

$$+\frac{1}{2}\sum_{\vec{n}\vec{m}}\beta_{\vec{n}\vec{m}}\left(P_{\vec{n}}^{+}P_{\vec{m}}^{+}+P_{\vec{m}}P_{\vec{n}}\right)+\sum_{\vec{n}\vec{m}}\gamma_{\vec{n}\vec{m}}P_{\vec{n}}^{+}P_{\vec{m}}^{+}P_{\vec{m}}P_{\vec{n}} \quad (I1.10)$$

oznake su sledeće:

$$\mathcal{E}_0=N[E_0+\tfrac{1}{2}V_0(00;00)$$

$$\Delta=E_{\vec{n}f}-E_{\vec{n}0}-V_0(00;00)+\tfrac{1}{2}V_0(f0;0f)+\tfrac{1}{2}V_0(0f;f0)$$

$$2\tilde{\alpha}_{\vec{n}\vec{m}}=V_{\vec{n}\vec{m}}(f0;f0)+V_{\vec{n}\vec{m}}(0f;0f)$$

$$\beta_{\vec{n}\vec{m}}=V_{\vec{n}\vec{m}}(ff;00)=V_{\vec{n}\vec{m}}(00;ff)$$

$$2\gamma_{\vec{n}\vec{m}}=V_{\vec{n}\vec{m}}(ff;ff)+V_{\vec{n}\vec{m}}(00;00)-V_{\vec{n}\vec{m}}(f0;0f)-V_{\vec{n}\vec{m}}(0f;f0)$$

$$V_0(f_1,f_2,f_3,f_4)=\sum_{\vec{n}}V_{\vec{n}\vec{m}}(f_1,f_2,f_3,f_4) \quad (I1.11)$$

Pri dobijanju Hamiltonijana (I1.10) iskorišćena je činjenica da se molekuli međusobno ne razlikuju pa $E_{\vec{n}f}$ i $E_{\vec{n}0}$ ne zavise od indeksa rešetke $\vec{n}$. Osim toga predpostavljeno je da kristal ima centar inverzije i on se poklapa sa centrom inverzije izdvojenog molekula pa su zbog toga matrični elementi tipa:

$$V_{\vec{n}\vec{m}}(f0;00)\quad V_{\vec{n}\vec{m}}(0f;00)\quad V_{\vec{n}\vec{m}}(00;f0)\quad V_{\vec{n}\vec{m}}(00;0f)$$

$$V_{\vec{n}\vec{m}}(ff;00)\quad V_{\vec{n}\vec{m}}(ff;0f)\quad V_{\vec{n}\vec{m}}(f0;ff)\quad V_{\vec{n}\vec{m}}(0f;ff)$$

ravni nuli.

Bitna činjenica koju ovde treba napomenuti je ta da prelazeći sa Fermi na Pauli operatore, kao što se vidi iz dobijenih formula, veliki deo fermionskih interakcija je uključen u kvadratni deo paulionskog hamiltonijana. Fizički to znači da smo ovakvim prelaskom uključili interakcije čestica u hamiltonijan gasa kvazičestica. Autor ove ideje je Bogoljubov, som metod se zove metod približne druge kvantizacije a njegova fizička suština je zamena sistema jako interagujućih čestica sistemom slabo interagujućih kvazičestica.

Sledeći korak u analizi je zamena Pauli operatora u hamiltonijanu (I1.10) Boze operatorima B^+ i B po približnim formulama:

$$P_{\vec{n}} = B_{\vec{n}} \qquad P_{\vec{n}}^{+} = B_{\vec{n}}^{+} \tag{I1.12}$$

Treba odmah napomenuti da prosta zamena Pauli operatora Boze operatorima unosi u račun izvesnu grešku koja je utoliko manja ukoliko je broj ekscitiranih molekula u kristalu manji. Tačna formula za prelaz sa Pauli operatora na Boze operatore ima oblik:

$$P_{\vec{n}} = \Big[\sum_{\nu=0}^{\infty} \frac{(-2)^{\nu}}{(1+\nu)!} B_{\vec{n}}^{+\nu} B_{\vec{n}}^{\nu} \Big]^{1/2} B_{\vec{n}}$$

$$P_{\vec{n}}^{+} = B_{\vec{n}}^{+} \Big[\sum_{\nu=0}^{\infty} \frac{(-2)^{\nu}}{(1+\nu)!} B_{\vec{n}}^{+\nu} B_{\vec{n}}^{\nu} \Big]^{1/2}$$

$$P_{\vec{n}}^{+} P_{\vec{n}} = \sum_{\nu=0}^{\infty} \frac{(-2)^{\nu}}{(1+\nu)!} B_{\vec{n}}^{+\nu+1} B_{\vec{n}}^{\nu+1} \tag{I1.13}$$

Ako poslednji deo formule (I1.13) razvijemo dobićemo:

$$P_{\vec{n}}^{+} P_{\vec{n}} \cong B_{\vec{n}}^{+} B_{\vec{n}} - B_{\vec{n}}^{+} B_{\vec{n}}^{+} B_{\vec{n}} B_{\vec{n}} = \hat{N}_{\vec{n}} - \hat{N}_{\vec{n}} (\hat{N}_{\vec{n}} - 1)$$

i na osnovu ovog vidimo da broj pauliona P^+P dobija pravilne vrednosti 0 i 1 samo dok je broj bozona ravan 0, 1, 2. Već za $N=3$ dobijamo nepravilan rezultat za broj pauliona P^+P. Na ovaj način ilustrovali smo gornju tvrdnju da je zamena Pauli operatora bozonima po formuli (I 1.12) dobra samo za mali broj bozona tj. dok je sistem slabo ekscitiran. Zbog toga se metod približne druge kvantizacije sastoji ne samo u zameni Pauli operatora bozonima već i u odbacivanju svih članova četvrtog reda po Boze operatorima. Odbacivanje članova četvrtog reda je nužno, jer su prve korekcije koje dolaze usled razlike između Pauli i Boze komutacionih relacija četvrtog i viših redova po Boze operatorima.

Na osnovu ovog, hamiltonijan metode približne druge kvantizacije za eksitonski sistem ima oblik:

$$H = \mathcal{E}_0 + \Delta \sum_{\vec{n}} B_{\vec{n}}^{+} B_{\vec{n}} + \sum_{\vec{n}\vec{m}} \tilde{\alpha}_{\vec{n}\vec{m}} B_{\vec{n}}^{+} B_{\vec{m}} +$$

$$+ \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} \beta_{\vec{n}\vec{m}} (B_{\vec{n}}^{+} B_{\vec{m}}^{+} + B_{\vec{m}} B_{\vec{n}}) \qquad (I\,1.14)$$

Posle Furije transformacije Boze operatora:

$$B_{\vec{n}} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{k}} B_{\vec{k}} e^{i\vec{k}\vec{n}} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{k}} B_{-\vec{k}} e^{-i\vec{k}\vec{n}}$$

$$B_{\vec{n}}^{+} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{k}} B_{\vec{k}}^{+} e^{-i\vec{k}\vec{n}} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{k}} B_{-\vec{k}}^{+} e^{i\vec{k}\vec{n}} \qquad (I\,1.15)$$

Hamiltonijan (I 1.14) postaje:

$$H=\mathcal{E}_0+\sum_{\vec{k}}(\Delta+\tilde{\alpha}_{\vec{k}})B^+_{\vec{k}}B_{\vec{k}}+\frac{1}{2}\sum_{\vec{k}}\beta_{\vec{k}}(B^+_{\vec{k}}B^+_{-\vec{k}}+B_{-\vec{k}}B_{\vec{k}})$$

$$\tilde{\alpha}_{\vec{k}}=\sum_{\vec{n}}\tilde{\alpha}_{\vec{n}o}e^{i\vec{k}\vec{n}}$$

$$\beta_{\vec{k}}=\sum_{\vec{n}}\beta_{\vec{n}o}e^{i\vec{k}n} \qquad \text{(I 1.16)}$$

Ovako dobijeni hamiltonijan može dalje da se dijagonalizuje prelaskom na nove Boze operatore $B_{\vec{k}}$ na sledeći način:

$$B_{\vec{k}}=U_{\vec{k}}b_{\vec{k}}+V_{\vec{k}}b^+_{-\vec{k}}$$

$$B^+_{\vec{k}}=U_{\vec{k}}b^+_{\vec{k}}+V_{\vec{k}}b_{-\vec{k}} \qquad \text{(I 1.17)}$$

Transformacione funkcije $U_{\vec{k}}$ i $V_{\vec{k}}$ su po predpostavci parne i realne. Da bi $b_{\vec{k}}$ bili Boze operatori na funkcije U i V treba postaviti takozvani uslov kanoničnosti transformacije. Ako obrazujemo komutator operatora B^+ i B na osnovu formule (I 1.17) dobijamo:

$$[B_{\vec{k}},B^+_{\vec{k}}]=U^2_{\vec{k}}[b_{\vec{k}},b^+_{\vec{k}}]+V_{\vec{k}}[b^+_{-\vec{k}},b_{-\vec{k}}]+$$
$$+U_{\vec{k}}V_{\vec{k}}\{[b_{\vec{k}},b_{-\vec{k}}]+[b^+_{-\vec{k}},b^+_{\vec{k}}]\}$$

Da bi b^+, b bili Boze operatori mora biti:

$$[b_{\vec{k}},b^+_{\vec{k}}]=1 \qquad [b^+_{-\vec{k}},b_{-\vec{k}}]=-1$$

$$[b_{\vec{k}}, b_{-\vec{k}}] = [b^+_{-\vec{k}}, b^+_{\vec{k}}] = 0$$

Kako je: $[B_{\vec{k}}, B^+_{\vec{k}}] = 1$ uslov kanoničnosti postaje:

$$U^2_{\vec{k}} - V^2_{\vec{k}} = 1 \qquad (I1.18)$$

zamenom (I.1.17) u (I1.16) dobijamo:

$$H = \mathcal{E}_0 + \sum_{\vec{k}} [V^2_{\vec{k}}(\Delta + \tilde{\alpha}_{\vec{k}}) + U_{\vec{k}} V_{\vec{k}} \beta_{\vec{k}}] + \sum_{\vec{k}} \{(\Delta + \tilde{\alpha}_{\vec{k}})(U^2_{\vec{k}} + V^2_{\vec{k}}) +$$

$$+ 2U_{\vec{k}} V_{\vec{k}} \beta_{\vec{k}}\} b^+_{\vec{k}} b_{\vec{k}} + \sum_{\vec{k}} \{(\Delta + \tilde{\alpha}_{\vec{k}}) U_{\vec{k}} V_{\vec{k}} +$$

$$+ \frac{1}{2} \beta_{\vec{k}} (U^2_{\vec{k}} + V^2_{\vec{k}})\} (b^+_{\vec{k}} b^+_{-\vec{k}} + b_{-\vec{k}} b_{\vec{k}}) \qquad (I1.19)$$

da bi se oslobodili nedijagonalnih članova proporcionalnih $b^+_{\vec{k}} b^+_{-\vec{k}} + b_{-\vec{k}} b_{\vec{k}}$ izjednačićemo koeficijent koji stoji uz njih sa nulom. Tako dobijamo:

$$(\Delta + \tilde{\alpha}_{\vec{k}}) U_{\vec{k}} V_{\vec{k}} + \frac{1}{2} \beta_{\vec{k}} (U^2_{\vec{k}} + V^2_{\vec{k}}) = 0$$

$$U^2_{\vec{k}} - V^2_{\vec{k}} = 1$$

Rešavajući ovaj sistem jednačina imamo:

$$U^2_{\vec{k}} = \frac{1}{2}\left[\frac{\Delta + \tilde{\alpha}_{\vec{k}}}{\sqrt{(\Delta + \tilde{\alpha}_{\vec{k}})^2 - \beta^2_{\vec{k}}}} + 1\right];$$

$$V^2_{\vec{k}} = \frac{1}{2}\left[\frac{\Delta + \tilde{\alpha}_{\vec{k}}}{\sqrt{(\Delta + \tilde{\alpha}_{\vec{k}})^2 - \beta^2_{\vec{k}}}} - 1\right]$$

$$U_{\vec{k}} V_{\vec{k}} = -\frac{1}{2} \frac{\beta_{\vec{k}}}{\sqrt{(\Delta + \tilde{\alpha}_{\vec{k}})^2 - \beta^2_{\vec{k}}}} \quad ; \quad U^2_{\vec{k}} + V^2_{\vec{k}} = \frac{\Delta + \tilde{\alpha}_{\vec{k}}}{\sqrt{(\Delta + \tilde{\alpha}_{\vec{k}})^2 - \beta^2_{\vec{k}}}} \qquad (I1.20)$$

Zamenom ovih rezultata u izraz (I 1.19) dobijamo dijagonalizovan eksitonski hamiltonijan u obliku:

$$H=\mathcal{E}_0+\frac{1}{2}\sum_{\vec{k}}\{\sqrt{(\Delta+\tilde{\alpha}_{\vec{k}})^2-\beta_{\vec{k}}^2}-\Delta-\tilde{\alpha}_{\vec{k}}+\sum_{\vec{k}}\sqrt{(\Delta+\tilde{\alpha}_{\vec{k}})^2-\beta_{\vec{k}}^2}\,b_{\vec{k}}^+b_{\vec{k}} \qquad (I1.21)$$

Zakon disperzije za eksitone dobijamo:

$$E_e(k)=\frac{\partial H}{\partial b_{\vec{k}}^+ b_{\vec{k}}}=\sqrt{(\Delta+\tilde{\alpha}_{\vec{k}})^2-\beta_{\vec{k}}^2} \qquad (I 1.22)$$

Napred je napomenuto da je Δ reda veličine nekoliko eV-a, dok su α i β 0,1–0,01 eV. Na osnovu ovog možemo koren u formuli (I.22) razviti u red:

$$E_e(k)=\sqrt{(\Delta+\tilde{\alpha}_{\vec{k}})^2-\beta_{\vec{k}}^2}=(\Delta+\tilde{\alpha}_{\vec{k}})\sqrt{1-\frac{\beta_{\vec{k}}^2}{(\Delta+\alpha_{\vec{k}}^2)}}=$$

$$\cong(\Delta+\tilde{\alpha}_{\vec{k}})\left\{1-\frac{1}{2}\frac{\beta_{\vec{k}}^2}{(\Delta+\tilde{\alpha}_{\vec{k}}{}^2)}\right\}=\Delta+\tilde{\alpha}_{\vec{k}}-\frac{1}{2}\frac{\beta_{\vec{k}}^2}{\Delta+\tilde{\alpha}_{\vec{k}}}\cong$$

$$\cong\Delta+\tilde{\alpha}_{\vec{k}}-\frac{\beta_{\vec{k}}^2}{2\Delta}$$

Znači približan izraz za energiju eksitona glasi:

$$E_e(k)=\Delta+\tilde{\alpha}_{\vec{k}}-\frac{\beta_{\vec{k}}^2}{2\Delta} \qquad (I 1.23)$$

Da bismo još određenije upoznali karakteristike eksitona mi ćemo predpostaviti:

a) da je u $\tilde{\alpha}_{\vec{k}}$ i $\beta_{\vec{k}}$ bitan samo analitički deo operatora dipol-dipolne interakcije,

b) da je aproksimacija najbližih suseda dobra aproksimacija

c) ograničemo se na oblast malih talasnih vektora i

d) posmatraćemo kristal proste kubne strukture.
Na osnovu a, b i d imamo:

$$\tilde{\alpha}_{\vec{k}} = 2\tilde{\alpha}(\cos k_x a + \cos k_y a + \cos k_z a)$$

$$\beta_{\vec{k}} = 2\beta(\cos k_x a + \cos k_y a + \cos k_z a)$$

gde su $\alpha_{\vec{k}}$ i $\beta_{\vec{k}}$ matrični elementi interakcije za najbliže susede i (a) je konstanta rešetke, dok na osnovu (c) imamo:

$$\tilde{\alpha}_{\vec{k}} \cong 6\tilde{\alpha} - \tilde{\alpha} a^2 k^2$$

$$\beta_{\vec{k}} \cong 6\beta - \beta a^2 k^2$$

ako poslednji izraz zamenimo u izraz za energiju eksitona dobijamo:

$$E_e(k) = \Delta + 6\tilde{\alpha} - \frac{18\beta^2}{\Delta} - \tilde{\alpha} a^2 k^2 + \frac{12\beta^2 a^2 k^2}{2\Delta} - \frac{\beta^2 a^4 k^4}{2\Delta}$$

i ako se zanemari član proporcionalan k^4:

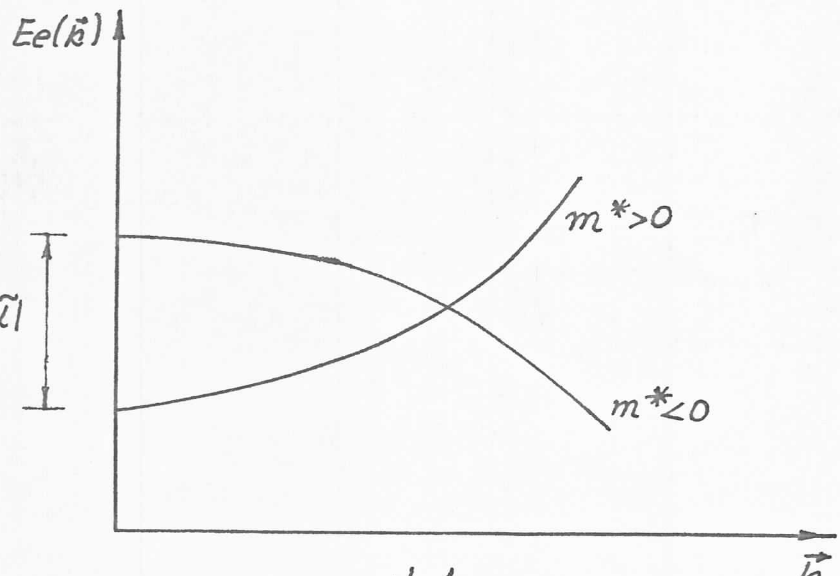
$$E_e(\vec{k}) = \tilde{\Delta} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m^*}$$

$$\tilde{\Delta} = \Delta + 6\tilde{\alpha} - \frac{18\beta^2}{\Delta}$$

$$m^* = -\frac{\hbar^2}{2a^2\left(\tilde{\alpha} - \frac{6\beta}{\Delta}\right)} \qquad (I\,1.24)$$

Odavde se vidi da se eksiton u oblasti malih talasnih vektora ponaša kao čestica sa efektivnom masom m^*. Od znaka matričnog elementa $\tilde{\alpha}$ zavisi da li će eksiton imati pozitivnu ili negativnu masu ili drugim rečima koristeći se terminima klasične optike, da li će svetlost u kristalu imati pozitivnu ili negativnu disperziju.

U slučaju da je $\tilde{\alpha}<0$ eksiton ima pozitivnu efektivnu masu (pozitivna disperzija), dok za $\tilde{\alpha}>0$ eksiton ima negativnu efektivnu masu (negativna disperzija). Grafički ova dva slučaja se mogu predstaviti na sledeći način:



sl. 1

Na kraju treba napomenuti da eksiton ima „gep" zakon disperzije. Fizički smisao ovog „gep"-a je očigledan: to je energija pobudivanja izolovanog molekula.

I2 Polaritoni

Do sada su analizirane elementarne optičke eksitacije kristala (eksitoni), čiji je karakter definisan isključivo hamiltonijanom kristala. U praksi, ako osvetljavajući kristal stvorimo eksitone, moramo voditi računa i o svetlosti (polju fotona) koja stvara eksitone i o interakciji između stvorenih eksitona i upadne svetlosti. Znači, kompletan i najopštiji prilaz problemu optičkih eksitacija u kristalu zahteva analizu sistema čiji se hamiltonijan sastoji iz tri dela i to: hamiltonijan kristala, hamiltonijan polja transverzalnih fotona i hamiltonijan interakcije između već stvorenih eksitona i fotona koji i dalje padaju na kristal.

Da ovako treba analizirati ceo problem pokazale su i eksperimentalne činjenice. Naime, ispostavilo se da je pored zakona disperzije jako sličnog zakonu disperzije za eksitone, nađen još jedan zakon disperzije koji eksitonska teorija nije mogla da objasni. Ove druge kvazičestice bile su po svojim osobinama više slične fotonima nego eksitonima.

Prvu ideju da je eksiton suviše idealizovana predstava za optičke eksitacije u kristalu dao je 1956 godine Fano. Godine 1957 Hopfild je došao na ideju da umesto eksitona i fotona u kristalu postoje neke hibridne eksitacije koje su u najgrubljim crtama rečeno smeša eksitona i transverzalnih fotona. Agranovič je 1959 godine dao konačnu matematičku teoriju ovih hibridnih eksitacija i nazvao ih je polaritonima.

I danas u literaturi eksitonski i fotonski sistemi posmatraju se odvojeno a interakcija između njih smatra se za malu perturbaciju. Ovakav prilaz je pogrešan iz dva razloga:

a) interakcija između eksitona i fotona u najvećem broju slučajeva je istog reda veličine kao i energije samih eksitona i fotona, pa se zato ne može shvatiti kao perturbacija,

b) ovakav prilaz je nailazio na teškoće u domenu eksiton-foton rezonance, jer se u ovoj oblasti pojavljuju singulariteti u svim fizičkim veličinama koje karakterišu optičke pojave. Ovi singulariteti otklanjani su uvođenjem dopunskih uslova koji su od autora uzimani dosta proizvoljno.

Zbog toga je neophodno da se pri analiziranju optičkih fenomena pređe u tzv. polaritonsku reprezentaciju, jer samo u tom slučaju sve napred pomenute teškoće nestaju. Kompletno i realno opisivanje optičkih pojava u kristalu zahteva analizu hamiltonijana koji se sastoji iz tri dela:

$$H = H_{eks} + H_{fot} + H_{int} \qquad (I2.1)$$

gde je H_{eks} – hamiltonijan eksitona, koji je detaljno analiziran u prethodnom paragrafu i dat je formulom (I1.10). Hamiltonijan polja transverzalnih fotona H_{fot} dat je izrazom:

$$H_{fot} = \sum_{\vec{k}j} \hbar c |\vec{k}| \alpha^{+}_{\vec{k}j} \alpha_{\vec{k}j} \qquad (I2.2)$$

gde je c brzina svetlosti, $\vec{k}$ talasni vektor svetlosti, j-označava dve transverzalne grane polarizacije $\alpha^{+}_{\vec{k}j}$ i $\alpha_{\vec{k}j}$ su operatori kreacije i anihilacije fotona sa talasnim vektorom $\vec{k}$ i polarizacije j. Treba napomenuti da je u izrazu (I2.2) ispuštena energija nultih oscilacija elektromagnetnog polja tj. član oblika: $\frac{1}{2}\sum_{\vec{k}j} \hbar c|\vec{k}|$.

Najveću pažnju u ovom delu, zahteva operator interakcije između eksitona i fotona. Kako su eksitonska pobuđenja ustvari pobuđenja elektronskog podsistema u kristalu, dok se polje fotona karakteriše vektorskim potencijalom elektromagnetnog polja, jasno je da se do hamiltonijana interakcije može doći razmatranjem ponašanja elektrona u elektromagnetnom polju.

Iz klasične elektrodinamike poznato je da je impuls $\vec{Q}$ elektrona u elektromagnetnom polju:

$$\vec{Q} = \vec{P} - \frac{e}{c}\vec{A} \qquad (I2.3)$$

gde je $\vec{P}$ stvarni impuls elektrona, e-naelektrisanje elektrona a $\vec{A}$-vektorski potencijal elektromagnetnog polja. Na osnovu ovakvog izraza za impuls energija elektrona u elektromagnetnom polju data je izrazom:

$$E_e = \frac{\vec{Q}^2}{2m_e} = \frac{\vec{p}^2}{2m_e} - \frac{e}{m_e c}\vec{A}\vec{P} + \frac{e^2}{2m_e c^2}\vec{A}^2 \qquad (I2.4)$$

prvi član $\frac{\vec{p}^2}{2m}$ ušao je u hamiltonijan $H_{\vec{n}}$ dok treći član $\frac{e^2}{2m_e c}\vec{A}^2$ definiše energiju tzv. „plazmenih" oscilacija i ovde nije uzet u obzir, jer energiju optičkih sistema očitavamo od nivoa plazmenih oscilacija. Prema tome hamiltonijan interakcije elektrona sa poljem transverzalnih fotona predstavlja član $-\frac{e}{m_e c}\vec{P}\vec{A}$.

U kristalu ovakvu interakciju vrši svaki elektron na svakom čvoru, pa se ukupan hamiltonijan interakcije dobija kada se izraz tipa $-\frac{e}{m_e c}\vec{P}\vec{A}$ sumira po svim molekulima i po svim naelektrisanjima unutar jednog molekula.

$$H_{int} = -\frac{Ge}{c m_e}\sum_{\vec{n}} \vec{P}_{\vec{n}}\vec{A}_{\vec{n}} \qquad (I2.5)$$

ovde G predstavlja broj elektrona u molekulu.

Elektronski impuls je jednočestični fermionski operator i u skladu sa onim što je rečeno u predhodnom paragrafu može se u reprezentaciji druge kvantizacije predstaviti kao:

$$\vec{P}_{\vec{n}} = -i\hbar \sum_{f_1 f_2} \left[\int \varphi_{\vec{n}}^{*f_1} \nabla_{\vec{n}} \varphi_{\vec{n}}^{f_2} d\tau_{\vec{n}} \right] a^{+}_{\vec{n}f_1} a_{\vec{n}f_2} \qquad (I2.6)$$

Kako za indekse f_1 i f_2 možemo uzeti samo vrednosti 0 i f to je očigledno da se operator $\vec{P}_n$ može izraziti preko Pauli operatora. Predhodno je potrebno izvršiti Furije transformacije funkcija stanja elektrona na sledeći način:

$$\varphi_{\vec{n}}^{*f_1} = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \int d^3\vec{k}_1 \varphi_{\vec{k}_1}^{*f_1} e^{-i\vec{k}_1\vec{n}}$$

$$\varphi_{\vec{n}}^{f_2} = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \int d^3\vec{k}_2 \varphi_{\vec{k}_2}^{f_2} e^{i\vec{k}_2\vec{n}}$$

Nakon toga operator $\vec{P}_{\vec{n}}$ može se napisati kao:

$$\hat{\vec{P}}_{\vec{n}} = \sum_{f_1 f_2} \vec{\mathcal{P}}_{f_1 f_2} a^{+}_{\vec{n}f_1} a_{\vec{n}f_2} \qquad (I2.7)$$

gde je:

$$\vec{\mathcal{P}}_{f_1 f_2} = \frac{\hbar}{(2\pi)^3} \int d^3_{\vec{k}_1} d^3_{\vec{k}_2} d\tau_{\vec{n}} \varphi_{\vec{k}_1}^{*} \varphi_{\vec{k}_2}^{f_2} \vec{k}_2 e^{i\vec{n}(\vec{k}_2-\vec{k}_1)} \qquad (I2.8)$$

Izraz (I2.7) može se napisati u obliku:

$$\hat{\vec{P}}_{\vec{n}} = \vec{\mathcal{P}}_{00} a^{+}_{\vec{n}0} a_{n0} + \vec{\mathcal{P}}_{ff} a^{+}_{\vec{n}f} a_{\vec{n}f} + \vec{\mathcal{P}}_{f0} a^{+}_{nf} a_{\vec{n}f} +$$

$$+ \vec{\mathcal{P}}_{0f} a^{+}_{\vec{n}0} a_{\vec{n}f} = \vec{\mathcal{P}}_{00} + (\vec{\mathcal{P}}_{ff} - \vec{\mathcal{P}}_{00}) P^{+}_{\vec{n}} P_{\vec{n}} + \vec{\mathcal{P}}_{f0} P^{+}_{\vec{n}} + \vec{\mathcal{P}}_{0f} P_{\vec{n}}$$

Prilikom zamene u hamiltonijanu interakcije član proporcionalnosti $\vec{\mathcal{P}}_{00}$ daje konstantnu popravku energije pa se ne uzima u obzir, dok član proporcionalan $(\vec{\mathcal{P}}_{ff}-\vec{\mathcal{P}}_{oo})$ odgovara procesima slepljivanja ili razgradivanja elementarnih eksitacija. U daljem računu zadržavamo se na procesima rasejanja eksitacija, tako da ovaj član nećemo uzeti u obzir jer on ne opisuje takav proces. Prema tome uzimajući da je $\vec{\mathcal{P}}_{fo}=\vec{\mathcal{P}}_{of}\equiv\vec{\mathcal{P}}_{f}$, efektivni izraz za operator impulsa može se napisati kao:

$$\vec{P}_{\vec{n}}=\vec{\mathcal{P}}_{f}(P^{+}_{\vec{n}}+P_{\vec{n}}) \qquad (I\,2.9)$$

Iz teorije kvantovanja elektromagnetnog polja znamo da je:

$$\vec{A}_{\vec{n}}=\sum_{\vec{k}j}\sqrt{\frac{2\pi\hbar c}{Na^{3}|\vec{k}|}}\,\vec{\ell}_{\vec{k}j}\left\{\alpha_{\vec{k}j}+\alpha_{-\vec{k}j}\right\}e^{i\vec{k}\vec{n}} \qquad (I\,2.10)$$

Ako je u (I 2.9) izvršena Furije transformacija Pauli operatora dobija se:

$$P_{\vec{n}}=\frac{1}{\sqrt{N}}\sum_{\vec{k}}P_{-\vec{k}}e^{-i\vec{k}\vec{n}}\;;\quad P^{+}_{\vec{n}}=\frac{1}{\sqrt{N}}\sum_{\vec{k}}P^{+}_{\vec{k}}e^{-i\vec{k}\vec{n}} \qquad (I\,2.11)$$

Zatim kombinujemo formule (I 2.5), (I 2.9), (I 2.10) i (I 2.11) i dobijamo:

$$H_{int}=\sum_{\vec{k}j}\vec{\Omega}^{+}\vec{\ell}_{\vec{k}j}(\alpha_{\vec{k}j}+\alpha_{-\vec{k}j})(P^{+}_{\vec{k}}+P_{-\vec{k}}) \qquad (I\,2.12)$$

gde je:

$$\vec{\Omega}^{+}_{\vec{k}}=-\frac{6e}{me}\sqrt{\frac{2\pi\hbar N}{a^{3}|\vec{k}|c}}\,\vec{\mathcal{P}}_{f} \qquad (I\,2.13)$$

Veličinu $\Omega^{+}_{\vec{k}}$ zovemo dipolni moment prelaza u molekulu.

Na osnovu formule pomoću koje se prelazi sa Pauli na Boze operatore:

$$P_{\vec{n}}=B_{\vec{n}}-B^{+}_{\vec{n}}B_{\vec{n}}B_{\vec{n}}$$

posle Furije transformacije operatora $P_{\vec{n}}$ i $B_{\vec{n}}$ dobijamo:

$$P_{\vec{k}} = B_{\vec{k}} - \frac{1}{N}\sum_{\vec{q}_1,\vec{q}_2} B^+_{\vec{q}_2} B_{\vec{q}_1} B_{\vec{k}-\vec{q}_1+\vec{q}_2} \qquad (I2.14)$$

odnosno:

$$P^+_{\vec{k}} = B^+_{\vec{k}} - \frac{1}{N}\sum_{\vec{q}_1\vec{q}_2} B^+_{\vec{k}-\vec{q}_1+\vec{q}_2} B^+_{\vec{q}_1} B_{\vec{q}_2} \qquad (I2.15)$$

Ako se ograničimo samo na prve članove gore navedenih formula i njih zamenimo u (I2.12) i predpostavimo da eksiton interaguje samo sa jednom fotonskom granom dobidemo hamiltonijan interakcije eksitona i fotona u harmonijskoj aproksimaciji:

$$H_{int} = \sum_{\vec{k}} T_{\vec{k}} \left(B^+_{\vec{k}} \alpha_{\vec{k}} + \alpha^+_{\vec{k}} B_{\vec{k}} + B^+_{\vec{k}} \alpha^+_{-\vec{k}} + \alpha_{-\vec{k}} B_{\vec{k}} \right) \qquad (I2.16)$$

gde je:

$$T_{\vec{k}} = \vec{\Omega}^+ \vec{l}_{\vec{k}} \qquad (I2.17)$$

Treba napomenuti da eksiton interaguje samo sa jednom granom fotona ako vektori $\vec{\Omega}^+_{\vec{k}}$ i $\vec{l}_{\vec{k}}$ leže u ravni na koju je drugi vektor polorizacije normalan. U praksi je ovo najčešće kod kristala naftalina. Zamenom operatora $B_{\vec{k}}$ po formulama (I1.17) hamiltonijan (I2.1) možemo napisati u obliku:

$$H = \sum_{\vec{k}} E_e(\vec{k}) b^+_{\vec{k}} b_{\vec{k}} + \sum_{\vec{k}} E_\phi(\vec{k}) \alpha^+_{\vec{k}} \alpha_{\vec{k}} +$$

$$+ \sum_{\vec{k}} \phi_{\vec{k}} \left(B^+_{\vec{k}} \alpha_{\vec{k}} + \alpha^+_{\vec{k}} B_{\vec{k}} + B^+_{\vec{k}} \alpha^+_{-\vec{k}} + \alpha_{-\vec{k}} B_{\vec{k}} \right) \qquad (I2.18)$$

gde je:

$$E_e(\vec{k}) = \sqrt{(\Delta + \tilde{\alpha}_{\vec{k}})^2 - \beta^2_{\vec{k}}}$$

$$E_\phi(\vec{k}) = \hbar c |\vec{k}|$$

$$\phi_{\vec{k}} = \frac{\Delta + \tilde{\alpha}_{\vec{k}}}{E_e |\vec{k}|} T_{\vec{k}} \qquad (I2.19)$$

Na kraju treba reći da ovaj hamiltonijan opisuje harmonijski proces u sistemu eksitona i fotona.

Hamiltonijan (I2.18) treba dijagonalizovati i zato ga pišemo u pogodnijem obliku:

$$H=\sum_{s,s'=1}^{2} M_{ss'} b_s^+ b_{s'} + \frac{1}{2}\sum_{s,s'=1} N_{ss'} (b_s^+ b_{s'}^+ + b_{s'} b_s) \qquad (I2.20)$$

gde je:

$$M_{11} \equiv E_e(\vec{k}) \qquad M_{22} \equiv E_\phi(\vec{k}) \qquad M_{12} = M_{21} = \phi_{\vec{k}}$$

$$N_{11} = 0 \qquad N_{22} = 0 \qquad N_{12} = N_{21} = \phi_{\vec{k}}$$

$$b_1 \equiv b_{\vec{k}} \qquad b_2 = \alpha_{\vec{k}} \qquad (I2.21)$$

Ovaj hamiltonijan mogli bi dijagonalizovati na isti način kao i ranije, ali bi nas to dovelo do mnoštva jednačina. Zato ćemo iskoristiti Hajzenbergove jednačine kretanja i izvršiti dijagonalizaciju po Tjablikovu, koja direktno daje zakon disperzije polaritona.

Hajzenbergova jednačina kretanja za ma koji ermitski operator neke fizičke veličine glasi:

$$i\hbar \frac{dF}{dt} = [F, H]$$

a kod nas:

$$i\dot{b}_s(t) = [b_s, H]_{t=0} = \sum_{s'=1}^{2} M_{ss'} b_{s'} + \sum_{s'=1}^{2} N_{ss'} b_{s'}^+ \qquad (I2.22)$$

time smo uveli naš hamiltonijan u Hajzenbergove jednačine kretanja. Pošto $b_s(t)$ nije konstanta kretanja, prelazimo na nove operatore $C_\sigma(t)$ sledećom transformacijom:

$$b_s(t) = \sum_{\sigma=1}^{2} [U_{s\sigma} C_\sigma e^{-iEt} + V_{s\sigma}^* C^+ e^{iEt}] \qquad (I2.23)$$

Da bi transformacija (I2.23) bila konačna operatori C_σ, C_σ^+, moraju biti Boze operatori b_s, b_s^+. Uslove kanoničnosti transformacije izvešćemo za momenat $t=0$.

$$b_s = \sum_{\sigma=1}^{2} (u_{s\sigma} C_\sigma + v_{s\sigma}^* C_\sigma)$$

$$b_{s'}^+ = \sum_{\sigma'=1}^{2} (u_{s'\sigma'}^* C_{\sigma'}^+ + v_{s'\sigma'} C_{\sigma'})$$

odavde:
$$\delta_{ss'} = [b_s, b_{s'}^+] = \sum_{\sigma,\sigma'=1} \{u_{s\sigma} u_{s'\sigma'}^* [C_\sigma, C_{\sigma'}^+] + v_{s\sigma}^* v_{s'\sigma'} [C_\sigma^+, C_{\sigma'}] +$$

$$+ u_{s\sigma} v_{s\sigma'} [C_\sigma, C_{\sigma'}] + u_{s'\sigma'} v_{s\sigma}^* [C_\sigma^+, C_{\sigma'}^+]\} =$$

$$= \sum_{\sigma,\sigma'=1}^{2} (u_{s\sigma} u_{s'\sigma'}^* - v_{s\sigma}^* v_{s'\sigma'}) \delta_{\sigma\sigma'} \qquad (I2.24)$$

$$\sum_{\sigma=1}^{2} (u_{s\sigma} u_{s'\sigma}^* - v_{s\sigma}^* v_{s'\sigma}) = \delta_{ss'}$$

Osim toga:
$$O = [b_s, b_{s'}] = \sum_{\sigma,\sigma'=1}^{2} \{u_{s\sigma} u_{s'\sigma'} [C_\sigma, C_{\sigma'}] + u_{s\sigma} v_{s'\sigma'}^* [C_\sigma, C_\sigma^+] +$$

$$+ u_{s'\sigma'} v_{s\sigma}^* [C_\sigma^+, C_\sigma] + v_{s\sigma}^* v_{s'\sigma'}^* [C_\sigma^+, C_{\sigma'}^+]\} =$$

$$= \sum_{\sigma,\sigma'=1}^{2} (u_{s\sigma} v_{s'\sigma'}^* - u_{s'\sigma'} v_{s\sigma}^*) \delta_{\sigma\sigma'}$$

pa je:
$$\sum_{\sigma=1}^{2} (u_{s\sigma} v_{s'\sigma}^* - u_{s'\sigma} v^*) = 0 \qquad (I2.25)$$

Relacije (I2.24); (I2.25) nam obezbeđuju potrebnu kanoničnost.

Da bi transformacija (I2.23) imala inverznu transformaciju i to analognu samoj sebi (to znači da i u inverznoj transformaciji funkcija U stoji uz operator istog tipa kao i u direktnoj transformaciji) treba postupiti na sledeći način:

$$b_s = \sum_{\delta'=1}^{2} (U_{s\delta'} C_{\delta'} + V^*_{s\delta'} C^+_{\delta'}) \qquad b^+_s = \sum_{\delta'=1}^{2} (U^*_{s\delta'} C^+_{\delta'} + V_{s\delta'} C_{\delta'})$$

Prvu jednačinu množimo sa $U^*_{s\delta}$ a drugu sa $-V^*_{s\delta}$, dobijene rezultate saberemo i izvršimo sumaciju po s na obe strane ovako dobijene relacije. Rezultat je:

$$\sum_{s=1}^{2} (U^*_{s\delta} b_s - V^*_{s\delta} b^+_s) = \sum_{\delta'=1}^{2} C_{\delta'} [\sum_{s=1}^{2} (U_{s\delta'} U^*_{s\delta} - V_{s\delta'} V^*_{s\delta})] +$$

$$+ \sum_{\delta'=1}^{2} C^+_{\delta'} [\sum_{s=1}^{2} (U^*_{s\delta} V^*_{s\delta'} - U^*_{s\delta'} V^*_{s\delta})]$$

ako uvedemo uslove:

$$\sum_{s=1}^{2} (U_{s\delta'} U^*_{s\delta} - V_{s\delta'} V^*_{s\delta}) = \delta_{\delta\delta'} \qquad (I\,2.26)$$

$$\sum_{s=1}^{2} (U^*_{s\delta} V^*_{s\delta'} - U^*_{s\delta'} V^*_{s\delta}) = 0 \qquad (I\,2.27)$$

inverzna transformacija glasi:

$$C_\delta = \sum_{s=1}^{2} (U^*_{s\delta} b_s - V^*_{s\delta} b^+_s) \qquad (I\,2.28)$$

Kao što se vidi odavde ispunjen je polazni zahtev tj. na levoj strani jednačine imamo anihilacioni operator C a na desnoj funkcija U množi takođe anihilacioni operator b. Zamenom (I 2.23) u (I 2.22) dobijamo:

$$\sum_{\delta=1}^{2} \{ C_\delta e^{-iEt} [E U_{s\delta} - \sum_{s'=1}^{2} (M_{ss'} U_{s'\delta} + N_{ss'} V_{s'\delta})] +$$

$$+ C^+_\delta e^{iEt} [-E V^*_{s\delta} - \sum_{s'=1}^{2} (M_{ss'} V^*_{s'\delta} + N_{ss'} U^*_{s'\delta})] \} = 0$$

ako koeficijente uz operatore C i C^+ izjednačimo sa nulom i uzmemo u obzir da su matrični elementi $M_{ss'}$ i $N_{ss'}$ realni dobijamo:

$$
\begin{aligned}
EU_{s\delta} &= \sum_{s'=1}^{2} \left(M_{ss'} U_{s'\delta} + N_{ss'} V_{s'\delta} \right) \\
-E V_{s\delta} &= \sum_{s'=1}^{2} \left(N_{ss'} U_{s'\delta} + M_{ss'} V_{s'\delta} \right)
\end{aligned}
\qquad (I2.29)
$$

što u razvijenom obliku glasi:

$s=1$

$$EU_{1\delta} = M_{11} U_{1\delta} + M_{12} U_{2\delta} + N_{11} V_{1\delta} + N_{12} V_{2\delta}$$

$$-E V_{1\delta} = N_{11} U_{1\delta} + N_{12} U_{2\delta} + M_{11} V_{1\delta} + M_{12} V_{2\delta}$$

$s=2$

$$EU_{2\delta} = M_{21} U_{1\delta} + M_{22} U_{2\delta} + N_{21} V_{1\delta} + N_{22} V_{2\delta}$$

$$-E V_{2\delta} = N_{21} U_{1\delta} + N_{22} U_{2\delta} + M_{21} V_{1\delta} + M_{22} V_{2\delta}$$

Ako zamenimo vrednosti za $M_{ss'}$ i $N_{ss'}$, te posle sredivanja sistema (I2.29) sledi:

$$[E - E_e(\vec{k})] U_{1\delta} - \Phi_{\vec{k}} U_{2\delta} - 0 \cdot V_{1\delta} - \Phi_{\vec{k}} V_{2\delta} = 0$$

$$-\Phi_{\vec{k}} U_{1\delta} + [E - E_\phi(\vec{k})] U_{2\delta} - \Phi_{\vec{k}} V_{1\delta} - 0 \cdot V_{2\delta} = 0$$

$$0 \cdot U_{1\delta} + \Phi_{\vec{k}} U_{2\delta} + [E + E_e(\vec{k})] V_{1\delta} + \Phi_{\vec{k}} V_{2\delta} = 0$$

$$\Phi_{\vec{k}} U_{1\delta} + 0 \cdot U_{2\delta} + \Phi_{\vec{k}} V_{1\delta} + [E + E_\phi(\vec{k})] V_{2\delta} = 0 \qquad (I2.30)$$

da bi ovaj sistem imao rešenja različita od nule, moramo determinantu izjednačiti sa nulom tj:

$$\begin{vmatrix} E-E_e(\vec{k}) & -\phi_{\vec{k}} & 0 & -\phi_k \\ -\phi_{\vec{k}} & E-E_\phi(\vec{k}) & -\phi_k & 0 \\ 0 & \phi_{\vec{k}} & E+E_e(\vec{k}) & \phi_{\vec{k}} \\ \phi_{\vec{k}} & 0 & \phi_{\vec{k}} & E+E_\phi(\vec{k}) \end{vmatrix} = 0$$

kao rešenja dobijamo bikvadratnu jednačinu iz koje se određuju vrednosti parametara E. Te vrednosti su:

$$\mathcal{E}_{1,2}(\vec{k}) = \sqrt{\frac{E_e^2(\vec{k})+E_\phi^2(\vec{k})}{2} \pm \sqrt{\left[\frac{E_e^2(\vec{k})-E_\phi(\vec{k})}{2}\right]^2 + 4E_e(\vec{k})E_\phi(\vec{k})\phi_k^2}} \qquad (I\,2.31)$$

Očigledno, pojavile su se dve vrednosti $\mathcal{E}_{1,2}$, koje predstavljaju dveju polaritonskih grana. Rezultat izvedene procedure je da se hamiltonijan (I 2.28) dijagonalizuje po operatorima C i ima oblik:

$$H = \sum_{\vec{k}} [\mathcal{E}_1(\vec{k}) C^+_{1\vec{k}} C_{1\vec{k}} + \mathcal{E}_2(\vec{k}) C^+_{2\vec{k}} C_{2k}] \qquad (I\,2.32)$$

Koristeći se sistemom jednačina (I 2.30) i uslovom (I 2.26) dobijamo eksplicitne izraze za transformacione funkcije U i V koje glase:

$$U_{1b} = \frac{-2\phi_{\vec{k}} E_\phi(k)}{[E_b - E_e(\vec{k})][E_b - E_\phi(\vec{k})]} V_{2b}$$

$$U_{2b} = -\frac{E_b + E_\phi(\vec{k})}{E_b - E_\phi(\vec{k})} V_{2b}$$

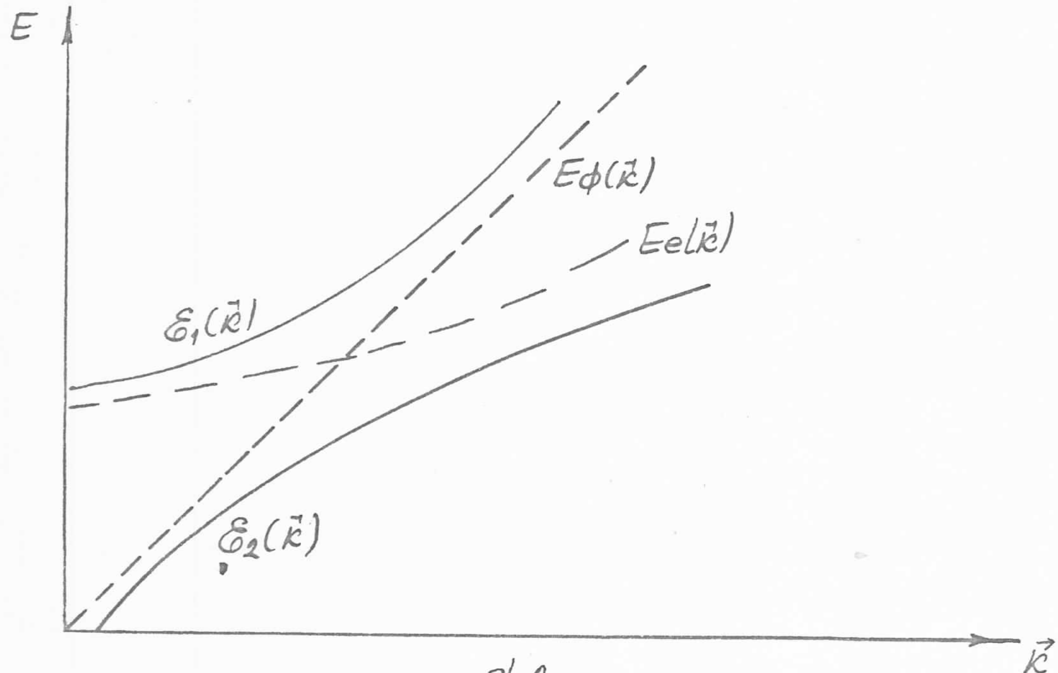
$$V_{1b} = \frac{2\phi_{\vec{k}} E_\phi(\vec{k})}{[E_b + E_e(\vec{k})][E_b - E_\phi(\vec{k})]} V_{2b}$$

$$\vartheta_{2b} = \frac{1}{\sqrt{\left[\frac{E_b - E_\phi(\vec{k})}{E_b - E_\phi(\vec{k})}\right]^2 + \frac{4\Phi_{\vec{k}}^2 E_\phi^2(\vec{k})}{[E_b - E_e(\vec{k})]^2[E_b - E_\phi(\vec{k})]^2} - \frac{1}{[E_b + E_e(\vec{k})]^2[E_b - E_\phi(\vec{k})]^2}^{-1}}}$$

$E_1 \equiv \mathcal{E}_1(\vec{k})$ $\qquad\qquad$ $E_2 \equiv \mathcal{E}_2(\vec{k})$

Pošto su svi elementi $M_{ss'}$ i $N_{ss'}$ realni i funkcije $\mathcal{U}$ i ϑ su realne,

Dobijene vrednosti za $\mathcal{E}_1(\vec{k})$ i $\mathcal{E}_2(\vec{k})$ predstavljaju energije realnih optičkih eksitacija u kristalu polaritona. Grafički se to može predstaviti na sledeći način:



sl 2

Kao što vidimo dve polaritonske grane $\mathcal{E}_1$ i $\mathcal{E}_2$ se ne presecaju kao što to čine energije eksitona i fotona, pa zbog toga ako se kristal analizira u polaritonskoj reprezentaciji otpadaju napred pomenute teškoće povezane sa singularitetima u tački preseka eksitonske i fotonske energije.

II VEZANA STANJA DVE EKSITACIJE

II 1. O vezanim stanjima uopšte

Ubacivanjem energije u kristal izazivamo pojavu elementarnih eksitacija u njemu. Ako je više molekula kristala apsorbovalo ubačenu energiju onda svaki od tih molekula možemo shvatiti kao izvor talasa koji se rasprostiru po celom kristalu. Ovi talasi nazivaju se slobodne elementarne eksitacije. Takve slobodne elementarne eksitacije su fononi (ako se radi o mehaničkim pobuđenjima), eksitoni (ako se radi o optičkim pobuđenjima), magnoni (u slučaju pobuđenja spinskog sistema), itd.

Osim ovakve situacije koja je izložena logički se može predpostaviti i jedna druga energetska situacija. Deo ubačene energije u kristal može da se utroši na čvršće povezivanje parova ili trojnih ili više molekula tako da kada ih ostatak energije ubačene u kristal pobuđuje ovi kompleksi istupaju kao jedinka a sam talas pobuđenja prenosi se ne sa molekula na molekul nego sa jednog vezanog kompleksa na drugi. Elementarna pobuđenja ovakvog tipa nazivaju se vezana stanja. Matematički najpogodnije je ispitivati vezana stanja dve eksitacije. Ako se vezuju tri ili više eksitacije onda se sa matematičke tačke gledišta dobija se poznati problem tri ili četiri tela i zna se da ovaj problem do danas nije rešen na zadovoljavajući način. Vezana stanja dve eksitonske eksitacije nazivaju se bieksitoni, vezana stanja dve spinske eksitacije nazivaju se bimagnoni, itd.

S obzirom na izloženu sliku o nastanku vezanih stanja očigledno je da vezano stanje dve eksitacije mora da ima manju energiju nego što je suma energija dve slobodne eksitacije, jer kao što je rečeno deo ubačene energije u kristal troši se na vezivanje para molekula ili kako se to češće kaže na vezivanje dve eksitacije u jednu. Isto pravilo važi i ako imamo vezana stanja više eksitacija.

II 2 Bieksitoni

Da bismo izvršili teorijsku analizu bieksitona u prostoj rešetci polazimo od hamiltonijana H_{eff} napisanog u paulionskoj reprezentaciji:

$$H_{eff} = \sum_{\vec{n}} \Delta P_{\vec{n}}^{+} P_{\vec{n}} + \sum_{\vec{n}\vec{m}} \alpha_{\vec{n}\vec{m}} P_{\vec{n}}^{+} P_{\vec{m}} + \sum_{\vec{n}\vec{m}} \gamma_{\vec{n}\vec{m}} P_{\vec{n}}^{+} P_{\vec{n}} P_{\vec{m}}^{+} P_{\vec{m}} \qquad (II\,2.1)$$

Formulu (II 2.1) napisaćemo u aproksimaciji najbližih suseda na sledeći način:

$$H_{eff} = \Delta_{\vec{n}} P_{\vec{n}}^{+} P_{\vec{n}} + \alpha \sum_{\vec{n}\vec{\lambda}} P_{\vec{n}}^{+} P_{\vec{n}+\lambda} + \gamma \sum_{\vec{n}\lambda} P_{\vec{n}}^{+} P_{\vec{n}} P_{\vec{n}+\lambda}^{+} P_{\vec{n}+\lambda} \qquad (II\,2.2)$$

gde su α i γ matrični elementi dipol-dipolne interakcije za najbliže susede za dati čvor $\vec{n}$. Predpostavićemo da kristal ima prostu kubnu strukturu.

Energiju bieksitona mogli bismo da tražimo ispitujući polove dvočestične paulionske funkcije Grina.

$$\mathcal{D}(\vec{n},\vec{m}) = \sum_{\vec{n}_1,\vec{m}_1} \langle\langle P_{\vec{n}_1} P_{\vec{m}_1} \mid P_{\vec{n}}^{+} P_{\vec{m}}^{+} \rangle\rangle \qquad (II\,2.3)$$

Međutim, pošto je $P_{\vec{n}}^{+2} = 0$ ova funkcija je nepodesna jer je za čitav niz od N vrednosti ravna nuli. Drugim rečima pri $\vec{n}=\vec{m}$ jednačine kretanja ostaju nedefinisane, pa se ova nedefinisanost mora regulisati uvođenjem nekog dopunskog uslova.

Da bismo ovo izbegli, mi ćemo od Pauli operatora preći na Boze operatore i hamiltonijan (II 2.2) napisati u Boze reprezentaciji sa tačnošću dovoljnom za ispitivanje dvočestičnih stanja, a to znači da ćemo se zadržati do članova četvrtog reda, zaključno, u ekvivalentnom bozonskom hamiltonijanu. Ovi članovi moraju biti napisani u obliku normalnog produkta.

Da bismo postigli ovo, koristićemo ekzaktnu bozonsku reprezentaciju za Pauli operatore, koja glasi:

$$P_{\vec{n}} = \left[\sum_{\nu=0}^{\infty} \frac{(-2)^{\nu}}{(1+\nu)!} B_{\vec{n}}^{+\nu} B_{\vec{n}}^{\nu}\right]^{1/2} B_{\vec{n}}$$

$$P_{\vec{n}}^{+} = B_{\vec{n}}^{+}\left[\sum_{\nu=0}^{\infty} \frac{(-2)^{\nu}}{(1+\nu)!} B_{\vec{n}}^{+\nu} B_{\vec{n}}^{\nu}\right]^{1/2} \qquad (\text{II } 2.4)$$

$$P_{\vec{n}}^{+} P_{\vec{n}} = \sum_{\nu=0}^{\infty} \frac{(-2)^{\nu}}{(1+\nu)!} B_{n}^{+\nu+1} B_{\vec{n}}^{\nu+1}$$

Operatorske funkcije na desnoj strani jednačine konstruisane su tako da u prostoru bozonskih stanja zadovoljavaju sve komutacione relacije za Pauli operatore.

S obzirom da nam je potreban ekvivalentan bozonski hamiltonijan sa tačnošću do četvrtog reda po Boze operatorima, mi ćemo umesto tačnih formula (II 2.4) koristiti približne, koje iz njih slede:

$$P_{\vec{n}} \cong B_{\vec{n}} - B_{\vec{n}}^{+} B_{\vec{n}} B_{\vec{n}}$$

$$P_{\vec{n}}^{+} \cong B_{\vec{n}}^{+} - B_{\vec{n}}^{+} B_{\vec{n}}^{+} B_{\vec{n}} \qquad (\text{II } 2.5)$$

$$P_{\vec{n}}^{+} P_{\vec{n}} \cong B_{\vec{n}}^{+} B_{\vec{n}} - B_{\vec{n}}^{+} B_{\vec{n}}^{+} B_{\vec{n}} B_{\vec{n}}$$

Ako formulu (II 2.5) uvrstimo u hamiltonijan (II 2.2) i zadržimo samo članove četvrtog reda po Boze operatorima dobijamo ekvivalentni bozonski operator u obliku:

$$H_B = \Delta \sum_{\vec{n}} B_{\vec{n}}^{+} B_{\vec{n}} + \alpha \sum_{\vec{n}\lambda} B_{\vec{n}}^{+} B_{\vec{n}+\vec{\lambda}} - \Delta \sum_{\vec{n}} B_{\vec{n}}^{+} B_{\vec{n}}^{+} B_{\vec{n}} B_{\vec{n}} -$$

$$-\alpha\sum_{\vec{n}\vec{\lambda}} B^+_{\vec{n}} B^+_{\vec{n}+\vec{\lambda}} B_{\vec{n}+\vec{\lambda}} B_{\vec{n}+\vec{\lambda}} - \alpha\sum_{\vec{n}\vec{\lambda}} B^+_{\vec{n}} B^+_{\vec{n}} B_{\vec{n}} B_{\vec{n}+\vec{\lambda}} +$$

$$+\gamma\sum_{\vec{n}\vec{\lambda}} B^+_{\vec{n}} B^+_{\vec{n}+\vec{\lambda}} B_{\vec{n}+\vec{\lambda}} B_{\vec{n}} \qquad (II\,2.6)$$

Problem vezanih stanja zgodnije je rešavati odmah u impulsnom prostoru, pa ćemo zbog toga izvršiti Furije transformacije Boze operatora:

$$B_{\vec{n}} = \frac{1}{\sqrt{N}}\sum_{\vec{k}} B_{\vec{k}}\, e^{i\vec{k}\vec{n}} \; ; \quad B^+_{\vec{n}} = \frac{1}{\sqrt{N}}\sum_{\vec{k}} B^+_{\vec{k}}\, e^{-i\vec{k}\vec{n}} \qquad (II\,2.7)$$

posle čega H_B postaje:

$$H_B = \sum_{\vec{k}} (\Delta + \alpha_{\vec{k}}) B^+_{\vec{k}} B_{\vec{k}} - \frac{1}{N}\sum (\Delta + \alpha_{\vec{k}_1} + \alpha_{\vec{k}_3} - \gamma_{\vec{k}_1 - \vec{k}_3}) B^+_{\vec{k}_1} B^+_{\vec{k}_2} B_{\vec{k}_3} B_{\vec{k}_1+\vec{k}_2-\vec{k}_3} \qquad (II\,2.8)$$

gde je:
$$\alpha_{\vec{k}} = 2\alpha\sum_{\vec{\lambda}>0} \cos\vec{k}\vec{\lambda} \; ; \quad \gamma_{\vec{n}} = 2\gamma\sum_{\vec{\lambda}>0} \cos\vec{k}\vec{\lambda} \qquad (II\,2.9)$$

Vezana stanja ispitivaćemo pomoću jednačine za dvočestičnu bozonsku funkciju Grina napisanu u impulsnom prostoru. Ova funkcija ima oblik:

$$G(\vec{q}_1,\vec{q}_2) = \sum_{\vec{q}_3} \langle\langle B_{\vec{q}_1+\vec{q}_2-\vec{q}_3} B_{\vec{q}_3} \,|\, B^+_{\vec{q}_1} B^+_{\vec{q}_2} \rangle\rangle \qquad (II\,2.10)$$

gde su $\vec{q}_1, \vec{q}_2, \vec{q}_3$ talasni vektori. Treba naglasiti da simbol $\langle\langle \ldots \rangle\rangle$ označava srednju vrednost po Bozonskom vakuumu, pa zbog toga svi ispušteni članovi ekvivalentnog bozonskog hamiltonijana, a to su članovi šestog i višeg reda, ne daju nikakav doprinos pri izračunavanju funkcije tipa (II 2.10).

Na osnovu opšte jednačine za funkciju Grina (vidi dodatak) možemo napisati:

$$E\sum_{\vec{q}_3} \langle\langle B_{\vec{q}_1+\vec{q}_2-\vec{q}_3} B_{\vec{q}_3} \mid B^+_{\vec{q}_1} B^+_{\vec{q}_2} \rangle\rangle =$$

$$= \frac{i}{2\pi}\sum_{q_3} \langle [B_{\vec{q}_1+\vec{q}_2-\vec{q}_3} B_{\vec{q}_3}, B^+_{\vec{q}_1} B^+_{\vec{q}_2}] \rangle - \sum_{q_3} \langle\langle B_{\vec{q}_1+\vec{q}_2-\vec{q}_3} B_{\vec{q}_3} \mid [B^+_{\vec{q}_1} B^+_{\vec{q}_2}, H_B] \rangle\rangle \qquad (\text{II}\,2.11)$$

posle nalaženja komutatora koji figurišu u (II 2.11) ova jednačina se svodi na:

$$(E-2\Delta-\alpha_{\vec{q}_1}-\alpha_{\vec{q}_2})G(q_1,q_2) = \frac{i}{\pi} - \frac{1}{N}\sum_{\vec{k}_1}(2\Delta+\alpha_{k_1}\cdot 2+\alpha_{\vec{q}_1}+\alpha_{\vec{q}_2} -$$

$$- \gamma_{\vec{k}_1-\vec{q}_1} - \gamma_{\vec{k}_1-\vec{q}_2})G(\vec{k}_1, \vec{q}_1+\vec{q}_2-\vec{k}_1) \qquad (\text{II}\,2.12)$$

Da bi se ova jednačina zatvorila na funkciji Grina jednog tipa uvešćemo sledeće smene za talasne vektore:

$$\vec{q}_1 = \frac{\vec{Q}}{2} + \vec{q} \quad ; \quad \vec{q}_2 = \frac{\vec{Q}}{2} - \vec{q} \quad ; \quad \vec{k}_1 = \frac{Q}{2} + \vec{q} \qquad (\text{II}\,2.13)$$

Ovakve smene za talasne vektore odgovaraju prelasku na sistem centra masa u konfiguracionom prostoru. S obzirom na ove smene funkcija Grina postaje:

$$G(\vec{q}_1,\vec{q}_2) = \sum_{\vec{q}_3} \langle\langle B_{\vec{q}_1+\vec{q}_2-\vec{q}_3} B_{\vec{q}_3} \mid B^+_{\vec{q}_1} B^+_{\vec{q}_2} \rangle\rangle =$$

$$= \sum_{\vec{q}_3} \langle\langle B_{\vec{Q}-\vec{q}_3} B_{\vec{q}_3} \mid B^+_{\frac{\vec{Q}}{2}+\vec{q}} B_{\frac{\vec{Q}}{2}-\vec{q}} \rangle\rangle \equiv \Gamma_{\vec{Q}}(\vec{q}) \qquad (\text{II}\,2.14)$$

Pošto dva kreaciona Boze operatora komutiraju očigledno je da je $\Gamma_{\vec{Q}}(\vec{q})$ parna funkcija: tj:

$$\Gamma_{\vec{Q}}(\vec{q}) = \Gamma_{\vec{Q}}(-\vec{q}) \qquad (\text{II}\,2.15)$$

Posle upotrebljene smene (II 2.13) jednačina (II 2.12) postaje:

$$\left[E-2\Delta-\alpha_{\frac{\vec{Q}}{2}+\vec{q}}-\alpha_{\frac{\vec{Q}}{2}-\vec{q}}\right]\Gamma_{\vec{Q}}(\vec{q})=$$

$$=\frac{i}{\pi}-\frac{1}{N}\sum_{\vec{q}'}\left\{2\Delta+2\alpha_{\frac{\vec{Q}}{2}+\vec{q}'}+\alpha_{\frac{\vec{Q}}{2}+\vec{q}}+\alpha_{\frac{\vec{Q}}{2}-\vec{q}}-\gamma_{\vec{q}'-\vec{q}}-\gamma_{\vec{q}'+\vec{q}}\right\}\Gamma_{\vec{Q}}(\vec{q}) \tag{II 2.16}$$

U daljem računu ograničićemo se na slučaj jednodimenzionalnog lanca molekula, jer se dvo i trodimenzionalni problemi ne mogu rešiti bez kompjutera. Ne treba misliti da račun za jednodimenzionalnu strukturu nema nikakvog praktičnog značaja jer baš u teoriji eksitona, polimeri i neke biostrukture pokazuju sve osobine jednodimenzionog lanca molekula.

Za slučaj jedne dimenzije jednačina za funkciju Grina glasi:

$$\left(E-2\Delta-4\alpha D_Q\cos q_a\right)\Gamma_Q(q_a)=\frac{i}{\pi}-\frac{1}{N}\sum_{\vec{q}'}\left\{2\Delta+4\alpha D_Q\cos q'_a+\right.$$

$$\left.+4\alpha D_Q\cos q_a-4\gamma\cos q_a\cos q'_a\right\}\Gamma_Q(q'_a) \tag{II 2.17}$$

gde je: $$D_Q=\cos\frac{Q_a}{2} \tag{II 2.18}$$

Treba napomenuti da je pri dobijanju jednačine (II 2.17) iz (II 2.16) iskorišćena činjenica da je funkcija Γ parna funkcija talasnog vektora $\vec{q}$ i da suma ima simetrične granice.

Ako u formuli (II 2.17) pređemo sa sume na integral po formuli:

$$\frac{1}{N}\sum_{q}=\frac{Q}{2\pi}\int_{-\frac{\pi}{a}}^{\frac{\pi}{a}}dq \tag{II 2.19}$$

posle zamene $q_a=x$ i $q'_a=Y$ za funkciju Γ dobijamo sledeću integralnu jednačinu:

$$\left(D_Q\cos x+\frac{2\Delta-E}{4\alpha}\right)\Gamma_{Q(x)}=-\frac{i}{4\pi\alpha}+$$

$$+\frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{\pi}\left[\frac{\Delta}{2\alpha}+D_Q\cos x+\left(D_Q-\frac{\gamma}{\alpha}\cos x\right)\cos y\right]\Gamma_Q(y)\,dy \qquad (II\,2.20)$$

integralna jednačina (II 2.20) ima separabilno jezgro i može se svesti na sistem (dodatak) linearnih algebarskih jednačina. U datom slučaju imamo:

$$\Gamma_{(x)}=\frac{i}{4\pi\alpha(D\cos x+R)}+\frac{D\cos x+S}{D\cos x+R}C_1+\frac{-T\cos x-D}{D\cos x+R}C_2 \qquad (II\,2.21)$$

gde su uvedene oznake:

$$D\equiv D_Q\;;\quad \frac{2\Delta-E}{4\alpha}=R\;;\quad \frac{\Delta}{2\alpha}=S\;;\quad \frac{\gamma}{\alpha}=T \qquad (II\,2.22)$$

i:
$$C_1=\frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{\pi}dy\,\Gamma(y)\quad;\quad C_2=\frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{\pi}dy\,\Gamma(y)\cos y \qquad (II\,2.23)$$

Množeći jednačinu (II 2.23) sa $\frac{dx}{2\pi}$ i integraleći u granicama od $-\pi$ do π, a zatim množeći istu jednačinu sa $\frac{dx\cos x}{2\pi}$ integraleći u granicama od $-\pi$ do π, dobijamo sledeći sistem nehomogenih diferencijalnih jednačina po nepoznatim C_1 i C_2.

$$\left\{1-\frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{\pi}\frac{D\cos x+S}{D\cos x+R}dx\right\}C_1+\left\{-\frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{\pi}\frac{-T\cos x+D}{D\cos x+R}dx\right\}C_2=-\frac{i}{8\pi^2\alpha}\int_{-\pi}^{\pi}\frac{dx}{D\cos x+R}$$

$$\left\{-\frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{\pi}\frac{D\cos^2x+S\cos x}{D\cos x+R}dx\right\}C_1+\left\{1-\frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{\pi}\frac{-T\cos^2x+D\cos x}{D\cos x+R}\right\}C_2=$$

$$=-\frac{i}{8\pi^2\alpha}\int_{-\pi}^{\pi}\frac{dx\cos x}{D\cos x+R} \qquad (II\,2.24)$$

Odavde nalazimo:

$$C_1=\frac{\delta_1}{\delta}\quad;\quad C_2=\frac{\delta_2}{\delta} \qquad (II\,2.25)$$

gde je:

$$\delta = \begin{vmatrix} 1-J_{11} & -J_{12} \\ -J_{21} & 1-J_{22} \end{vmatrix} \qquad (II\ 2.26)$$

$$\delta_1 = \begin{vmatrix} j_1 & -J_{12} \\ j_2 & 1-J_{22} \end{vmatrix} \qquad (II\ 2.27)$$

$$\delta_2 = \begin{vmatrix} 1-J_{11} & j_1 \\ -J_{21} & j_2 \end{vmatrix} \qquad (II\ 2.28)$$

$$J_{11} = \frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{\pi}\frac{D\cos x + S}{D\cos x + R}\,dx \ ; \quad J_{12} = \frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{\pi}\frac{-T\cos x + D}{D\cos x + R}\,dx$$

$$(II\ 2.29)$$

$$J_{21} = \frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{\pi}\frac{D\cos^2 x + S\cos x}{D\cos x + R}\,dx \ ; \quad J_{22} = \frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{\pi}\frac{-T\cos^2 x + D\cos x}{D\cos x + R}\,dx$$

$$j_1 = -\frac{i}{\delta\pi^2\alpha}\int_{-\pi}^{\pi}\frac{dx}{D\cos x + R}$$

$$(II\ 2.30)$$

$$j_2 = \mp\frac{i}{\delta\pi^2\alpha}\int_{-\pi}^{\pi}\frac{\cos x}{D\cos x + R}\,dx$$

To znači da je tražena funkcija Grina (II 2.21) oblika:

$$\Gamma(x) = \frac{-i}{4\pi\alpha(D\cos x + R)} + \frac{D\cos x + S}{D\cos x + R}\cdot\frac{\delta_1}{\delta} + \frac{-T\cos x + D}{D\cos x + R}\,\frac{\delta_2}{\delta} \qquad (II\ 2.31)$$

Polove ove funkcije, tj. one tačke u kojima postaje beskonačna dobićemo očigledno iz sledećih uslova:

$$D\cos x + R = 0 \qquad (II\ 2.32)$$

$$\delta = 0 \qquad (\text{II } 2.33)$$

Ako se eksplicitno reši integral (II 2.29) uslov (II 2.33) glasi:

$$\begin{vmatrix} (R-S)\Omega & \frac{I}{D} - D\Omega - \frac{RT\Omega}{D} \\ (R-S)\left(\frac{1}{D} - \frac{R\Omega}{D}\right) & -\frac{RT}{D^2} + R\Omega + \frac{R^2T\Omega}{D^2} \end{vmatrix} = 0 \qquad (\text{II } 2.34)$$

gde je: $\Omega = (R^2 - D^2)^{-1/2}$ $\qquad (\text{II } 2.35)$

Rešavajući uslov (II 2.32) eksplicitno po energiji dobijamo rezultat:

$$E_{2f} = 2\Delta + 4\alpha \cos\frac{Qa}{2} \cos qa \qquad (\text{II } 2.36)$$

i ovaj pol Grinove funkcije predstavlja sumu energije dva slobodna eksitona, čiji su talasi interferirali. Ako bismo se vratili na smenu:

$$Q = q_1 + q_2 \quad ; \quad q = \frac{q_1 - q_2}{2}$$

izraz (II 2.36) bi glasio:

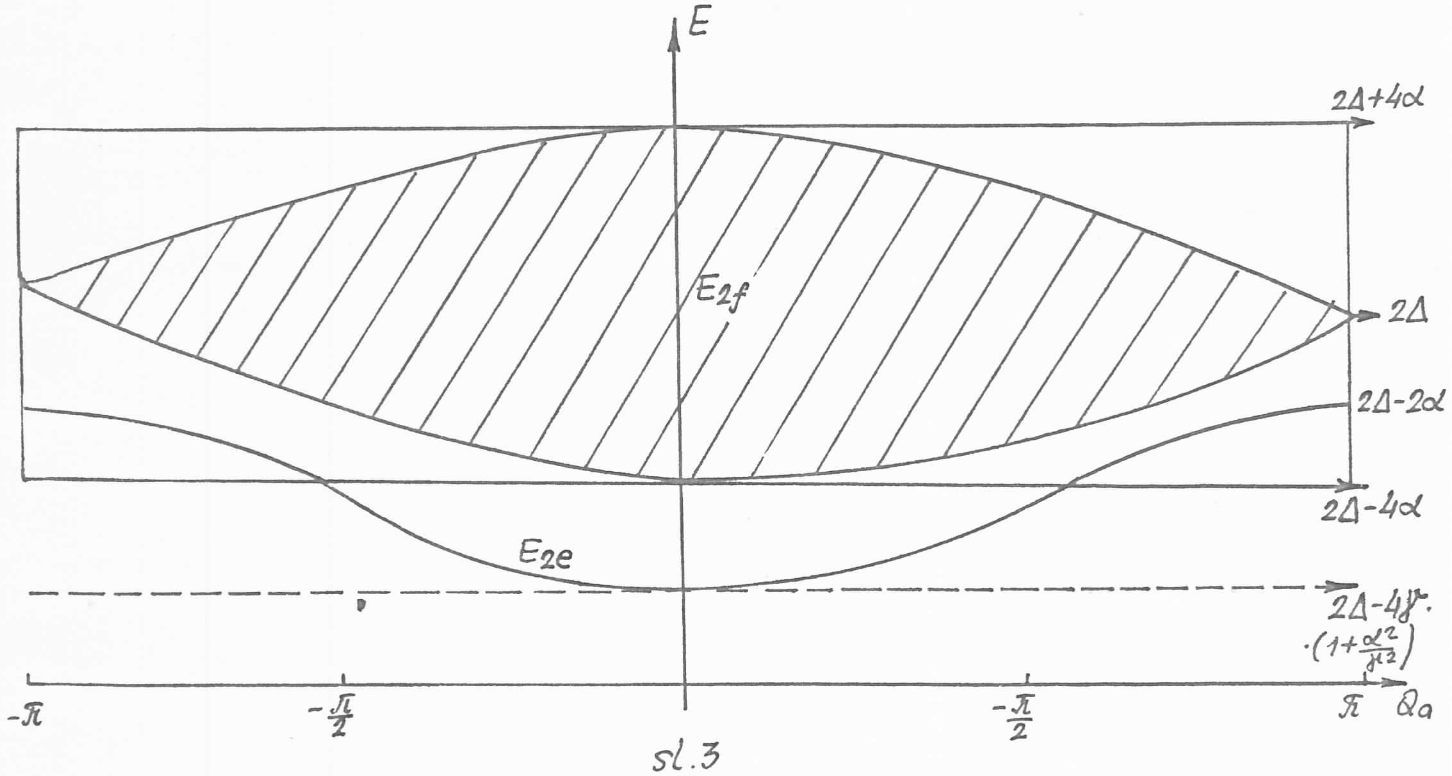
$$E_{2f} = 2\Delta + 2\alpha \cos q_1 a + 2\alpha \cos q_2 a \qquad (\text{II } 2.37)$$

odakle je očiglednije da je ovo rešenje suma energije dva slobodna eksitona.

Uslov (II 2.33) daje dva nivoa i to $E_0 = 0$ koji nema fizičkog smisla i:

$$E_{2e} = 2\Delta + 2\gamma\left(1 + \frac{\alpha^2}{\gamma^2}\cos^2\frac{Qa}{2}\right) \qquad (\text{II } 2.38)$$

Ovo drugo rešenje zavisi samo od jednog talasnog vektora Q, koji je suma q_1 i q_2 i predstavlja ukupni talasni vektor vezanih stanja. Prema tome (II 2.38) predstavlja traženu energiju vezanih stanja dva eksitona, tj. energiju bieksitona. Lako je videti da samo ako je $\gamma < 0$ (II 2.39) energija bieksitona ima manju vrednost nego suma energije dva slobodna eksitona. Kao što smo napred rekli bieksiton mora imati manju energiju nego dva slobodna eksitona, pa je obrazovanje bieksitona moguće jedino onda ako je $\gamma < 0$, tj. ako je takozvana dinamička interakcija sistema privlačna. Grafička rešenja (II 2.37) i (II 2.38) se mogu predstaviti na sledeći način:



sl.3

Na ovoj slici je uzeto da je $\gamma < 0$ i da je $\alpha > |\gamma|$. Kao što vidimo u jednodimenzionoj strukturi bieksiton je definisan za sve vrednosti svoga talasnog vektora Q. Na kraju treba napomenuti da u dvodimenzionoj i trodimenzionoj strukturi bieksiton postoji samo za velike vrednosti talasnog vektora Q, tj. za one vrednosti koje su bliže krajevima Briluenove zone.

III SPEKTAR BIPOLARITONA

III 1. Korektan polaritonski spektar

Kao što je dakle rečeno polaritoni su najrealističniji model za optička pobuđenja u kondenzovanim sredinama. Spektar polaritona dobija se kao harmonijska stanja Hamiltonijana:

$$H = H_{eks} + H_{fot} + H_{int} \qquad (III\ 1.1)$$

gde je:

$$H_{eks} = \Delta \sum_n P_n^+ P_n + \sum_{mn}{}' \alpha_{mn} P_n^+ P_m +$$

$$+ \frac{1}{2} \sum{}' \beta_{mn} (P_n^+ P_m^+ + P_m P_n) + \sum_{mn}{}' \gamma_{mn} P_n^+ P_m^+ P_m P_n \ldots \qquad (III\ 1.2)$$

$$H_{fot} = \sum_{kj} \mathcal{E}_{kj} C_{kj}^+ C_{kj}\,; \qquad \mathcal{E}_{kj}^2 = (\hbar c k)^2 + (\hbar \omega_0)^2,$$

$$\omega_0^2 = 4\pi e^2 N / mV \qquad (III\ 1.3)$$

$$H_{int} = \sum_{nkj} Z_j(nk) \left(P_n^+ C_{kj} - C_{-kj}^+ P_n + P_n^+ C_{-kj}^+ - C_{kj} P_n \right) \qquad (III\ 1.4)$$

$$Z_j(nk) = (2\pi \hbar^2 e^2 / V m^2 \mathcal{E}_k)^{1/2} (M \ell_{kj}) e^{ikn} \qquad (III\ 1.5)$$

$$Z_j(nk) = i(\omega_0 \hbar / 2N^{1/2})(E_f / \mathcal{E}_k)^{1/2} F_j e^{ikn} \qquad (III\ 1.6)$$

$$(-F_j)^{1/2} = (2m E_f / e^2 \hbar^2)^{1/2} (d^{0f} \ell_{kj}) \qquad (III\ 1.7)$$

Navedeni Hamiltonijan (III 1.1) ne komutira ni sa totalnim okupacionim brojem eksitona, ni sa totalnim okupacionim brojem fotona pa korektna okolina sistema zahteva da se efekti neodržanja totalnog broja kvazičestica eliminišu iz Hamiltonijana. To ćemo postići unitarnom transformacijom Hamiltonijana (III 1.1)

$$H_{eq} = e^{-S} H e^{S} \cong H - [S,H] + \frac{1}{2}[S,[S,H]]$$

gde je:

$$S = \frac{1}{4\Delta}\sum_{nm} \beta_{nm}(P_n P_m - P_m^+ P_n^+) - \sum_{nkj}{}' \frac{Z_j(nk)}{\Delta + \mathcal{E}_{kj}} (P_n C_{kj} + C_{-kj}^+ P_n^+)$$

(III 1.8)

Treba napomenuti da je u ovoj aproksimaciji efekat nekonzervacije eliminisan sa tačnošću do prvog stepena malih parametara:

$$\frac{\beta_{mn}}{\Delta} \quad i \quad \frac{Z_j(nk)N^{1/2}}{\Delta + \mathcal{E}_{kj}}$$

Kao rezultat eliminacije dobija se ekvivalentni Hamiltonijan:

$$H_2 = \sum_k \Big((\tilde{\Delta} + \tilde{\alpha}_k) B_k^+ B_k + \sum_{j=1,2}{}' E_{kj} b_{kj}^+ b_{kj} + \sum_{j=1,2}{}' \Phi_{kj} (B_k^+ b_{kj} - b_{kj}^+ B_k) \Big) \qquad (III\ 1.9)$$

gde je:

$$\tilde{\Delta} = \Delta + \frac{\ell \beta^2}{\Delta} + \frac{\hbar^2 \omega_0^2}{2N} \sum_{kk}{}' \frac{E_f F_j}{\mathcal{E}_k(\Delta + \mathcal{E}_k)} ,$$

$$\tilde{\alpha}_k = \alpha_k - \frac{\beta_k^2}{2\Delta} + \frac{\ell \beta^2}{\Delta} - \frac{\hbar^2 \omega_0^2}{4(\Delta + \mathcal{E}_k)} \frac{E_f}{\mathcal{E}_k} \sum{}' F_j$$

$$E_{kj} = \sum_s \tilde{\Phi}_{ks} \rho_{sj} ; \qquad \tilde{\Phi}_{kj} = I \varphi_{kj} ;$$

$$I = 1 + \frac{\beta_k}{2(\Delta + \mathcal{E}_k)} + \frac{\beta_k}{4\Delta}$$

Za analizu bipolaritonskih stanja biće nam potreban i deo Hamiltonijana četvrtog reda i to onaj koji sadrži jednak broj kreacionih i anihilacionih operatora, ovaj deo Hamiltonijana ima oblik:

$$H_4^{2\rightleftarrows 2} = (1/N) \sum_{k_1 k_2 k_3} F(k_1 k_2 k_3) B_{k_1}^+ B_{k_2}^+ B_{k_3} B_{k_1+k_2-k_3} +$$

$$+ (1/N)\sum_{k_1k_2k_3}\left[F_j(k_1k_2k_3)B^+_{k_1}B^+_{k_2}C_{k_3j}B_{k_1+k_2-k_3} + C.C\right] +$$

$$+ (1/N)\sum_{k_1k_2k_3}\left[F_{jl}(k_1k_2k_3)B^+_{k_1}C^+_{k_2j}C_{k_3l}B_{k_1+k_2-k_3} + C.C\right] \qquad (III\ 1.10)$$

gde je: $F(k_1k_2k_3) = \mathcal{H}_{k_1-k_3} + \frac{1}{\Delta}(\beta_{k_1}\beta_{k_3} - \beta\beta_{k_1-k_3}) + V_{eff} - \tilde{\alpha}_{k_1} - \tilde{\alpha}_{k_3}$,

$$F_j(k_1k_2k_3) = -\left(\frac{1}{2\Delta} + \frac{1}{\Delta+\mathcal{E}_{k_3}}\right)\beta_{k_1}\varphi_{k_3j} - \phi_{k_3j},$$

$$F_{jl}(k_1k_2k_3) = -\frac{1}{\Delta+\mathcal{E}_{k_3}}\varphi_{k_2j}\varphi_{k_3l},$$

$$\varphi_{kj} = i\frac{1}{2}\hbar\omega_0(E_f/\mathcal{E}_k)^{1/2}F_j^{1/2} \qquad (III\ 1.11)$$

Hamiltonijan H_2 dijagonalizuje se unitarnom transformacijom:

$$C_s = \sum_{\rho=1}^{3}\theta_{s\rho}\xi_\rho \qquad (III\ 1.12)$$

gde je: $C_1 = B_{\bar{k}}$; $C_2 = b_{\bar{k}_1}$; $C_3 = b_{\bar{k}_2}$

Po novim operatorima ξ Hamiltonijan se dijagonalizuje i dobijamo tri nivoa energije:

$$E_{1,2} = \frac{1}{2}(E_{eks} + \mathcal{E}'_k) \pm \frac{1}{2}\left[(E_{eks} - \mathcal{E}'_k)^2 + (E_f/\mathcal{E}_k)I^2\omega_0^2\sum_j{}' F_j\right]^{1/2} \qquad (III\ 1.13)$$

$$E_3 = \mathcal{E}_k$$

gde je: $\mathcal{E}'_k = E_{k1}$ i $I^2 \approx 1 + \beta_k/(\Delta+\mathcal{E}_k) + \beta_k/2\Delta$

Transformacione formule θ date su formulama:

$$\theta_{11} = \frac{r_1}{(r_1^2+|C|^2)^{1/2}}\ ; \quad \theta_{21} = \frac{-C}{(r_1^2+|C|^2)^{1/2}}\ ; \quad \theta_{31} = 0\ ; \quad \xi = \frac{r_1B_k + Cb_{k_1}}{(r_1^2+|C|^2)^{1/2}} \qquad (III\ 1.14)$$

$$\theta_{12} = \frac{r_2}{(r_2^2+|C|^2)^{1/2}}\ ;\quad \theta_{22} = \frac{-C}{(r_2^2+|C|^2)^{1/2}}\ ;\quad \theta_{32}=0\ ;\quad \xi_2 = \frac{r_2 B_K + C b_{K1}}{(r_2^2+|C|^2)^{1/2}} \tag{III 1.15}$$

gde je:

$$r_2 = A - E_1 = \frac{1}{2}(A-B')$$

$$r_1 = E_1 - B' = \frac{1}{2}(A-B')$$

Ako sa ovim transformacijama uđemo u Hamiltonijan četvrtog reda $H_4^{2\rightleftarrows 2}$ ovaj dobija oblik:

$$H_4^{2\rightleftarrows 2} = (1/N)\sum_{\substack{\rho_1\rho_2\rho_3\rho_4\\ k_1k_2k_3}} \Gamma_{\rho_1\rho_2\rho_3\rho_4}(k_1k_2k_3)\,\xi^+_{\rho_1}(k_1)\,\xi^+_{\rho_2}(k_2)\,\xi_{\rho_3}(k_3)\,\xi_{\rho_4}(k_1+k_2-k_3) \tag{III 1.16}$$

gde je:

$$\begin{aligned}
\Gamma(\rho_1\rho_2\rho_3\rho_4(k_1k_2k_3) &= F(k_1k_2k_3)\,x^*_{\rho_1}(k_1)\,x^*_{\rho_2}(k_2)\,x_{\rho_3}(k_3)\,x_{\rho_4}(k_1+k_2-k_3) +\\
&+\Big\{\Big[F_1(k_1k_2k_3)\,x^*_{\rho_1}(k_1)\,x^*_{\rho_2}(k_2)\,y_{\rho_3}(k_3)\,x_{\rho_4}(k_1+k_2-k_3)+\\
&+F_2(k_1k_2k_3)\,x^*_{\rho_1}(k_1)\,x^*_{\rho_2}(k_2)\,z_{\rho_3}(k_3)\,x_{\rho_4}(k_1+k_2-k_3)+\\
&+F_{11}(k_1k_2k_3)\,x^*_{\rho_1}(k_1)\,y^*_{\rho_2}(k_2)\,y_{\rho_3}(k_3)\,x_{\rho_4}(k_1+k_2-k_3)+\\
&+F_{22}(k_1k_2k_3)\,x^*_{\rho_1}(k_1)\,z^*_{\rho_2}(k_2)\,z_{\rho_3}(k_3)\,x_{\rho_4}(k_1+k_2-k_3)+\\
&+F_{12}(k_1k_2k_3)\,x^*_{\rho_1}(k_1)\,y^*_{\rho_2}(k_2)\,z_{\rho_3}(k_3)\,x_{\rho_4}(k_1+k_2-k_3)+\\
&+F_{21}(k_1k_2k_3)\,x^*_{\rho_1}(k_1)\,z^*_{\rho_2}(k_2)\,y_{\rho_3}(k_3)\,x_{\rho_4}(k_1+k_2-k_3)\Big]+\text{c.c}\Big\}
\end{aligned}$$

i

$$x_j = \frac{r_j}{(r_j^2+|C|^2)^{1/2}}\ ,\qquad r_3 = 0$$

$$y_1 = \frac{-\tilde{\Phi}_{K1}}{(r_1^2+|C|^2)^{1/2}}\ ,\qquad y_2 = \frac{-\tilde{\Phi}_{K1}}{(r_2^2+|C|^2)^{1/2}}\ ,\qquad y_3 = \rho_{12}$$

$$z_1 = -\frac{\tilde{\Phi}_{K2}}{(r_1^2+|C|^2)^{1/2}}\ ,\qquad z_2 = \frac{-\tilde{\Phi}_{K2}}{(r_2^2+|C|^2)^{1/2}}\ ,\qquad z_3 = \rho_{22}$$

$$|C|^2 = I^2 (E_f/\mathcal{E}_K)^{1/2}\,\hbar^2\omega_0^2 \sum_j F_j$$

III 2. Osnovni sistem jednačina za definisanje bipolaritonskog spektra

Hamiltonijan sistema polaritona je relevantan za određivanje spektra bipolaritona ima sledeći oblik:

$$H = H_2 + H_4^{2\rightleftarrows 2} \qquad (III\ 2.1)$$

gde je:

$$H_2 = \sum_{k\rho} E_\rho(k)\xi_\rho^+(k)\xi(k) \qquad (III\ 2.2)$$

i:

$$H_4^{2\rightleftarrows 2} = \frac{1}{N}\sum_{\substack{k_1 k_2 k_3\\ \rho_1\rho_2\rho_3\rho_4}}\left[\Gamma_{\rho_1\rho_2\rho_3\rho_4}(k_1 k_2 k_3)\xi_{\rho_1}(k_1)\xi_{\rho_2}^+(k_2)\xi_{\rho_3}(k_3)\xi_{\rho_4}(k_1+k_2-k_3)+c.c\right] \qquad (III\ 2.3)$$

U formulama (III 2.2) i (III 2.3) uvedene oznake znače:

$$E_{1,2}(k) = \frac{1}{2}(E_{eks}+E_k') \pm \frac{1}{2}\left[(E_{eks}-\mathcal{E}_k')^2 + \frac{E_t}{\mathcal{E}_k}I^2\hbar^2\omega_0^2\sum_j F_j\right]^{1/2} \qquad (III\ 2.4)$$

$$E_3(k) = \mathcal{E}_k$$

$$\Gamma_{\rho_1\rho_2\rho_3\rho_4}(k_1 k_2 k_3) = \frac{1}{2}F(k_1 k_2 k_3)X_{\rho_1}^*(k_1)X_{\rho_2}^*(k_2)x_{\rho_3}(k_3)x_{\rho_4}(k_1+k_2-k_3)$$

$$+ F_1(k_1 k_2 k_3)x_{\rho_1}^*(k_1)x_{\rho_2}^*(k_2)y_{\rho_3}(k_3)x_{\rho_4}(k_1 k_2 k_3) +$$

$$+ F_2(k_1 k_2 k_3)x_{\rho_1}^*(k_1)x_{\rho_2}^*(k_2)z_{\rho_3}(k_3)x_{\rho_4}(k_1+k_2-k_3) +$$

$$+ F_{11}(k_1 k_2 k_3)x_{\rho_1}^*(k_1)y_{\rho_2}(k_2)y_{\rho_3}(k_3)x_{\rho_4}(k_1+k_2-k_3) +$$

$$+ F_{22}(k_1 k_2 k_3)x_{\rho_1}^*(k_1)z_{\rho_2}(k_2)z_{\rho_3}(k_3)x_{\rho_4}(k_1+k_2-k_3) +$$

$$+ F_{12}(k_1 k_2 k_3)x_{\rho_1}^*(k_1)y_{\rho_2}^*(k_2)z_{\rho_3}(k_3)x_{\rho_4}(k_1+k_2-k_3) +$$

$$+ F_{21}(k_1 k_2 k_3)x_{\rho_1}^*(k_1)z_{\rho_2}^*(k_2)y_{\rho_3}(k_3)x_{\rho_4}(k_1+k_2-k_3) \qquad (III\ 2.5)$$

$$F(k_1 k_2 k_3) = \mathcal{H}_{k_1 - k_3} + \frac{1}{\Delta}(\beta_{k_1}\beta_{k_3} - \beta\beta_{k_1-k_3}) - \tilde{\Delta} - \tilde{\alpha}_{k_1} - \tilde{\alpha}_{k_3}$$

$$F_j(k_1 k_2 k_3) = -\phi_{k_3 j} - \left(\frac{1}{2\Delta} + \frac{1}{\Delta + \mathcal{E}_{k_3}}\right)\beta_{k_1}\varphi_{k_3 j} \qquad (\text{III } 2.6)$$

$$F_{jl}(k_1 k_2 k_3) = -\frac{1}{\Delta + \mathcal{E}_{k_3}}\varphi_{k_2 j}\varphi_{k_3 l}$$

Da bismo ispitali energije bipolaritona formiraćemo dvopolaritonsku talasnu funkciju:

$$\Phi_{s_1 s_2}(q_1, q_2) = \xi^+_{s_1}(q_1)\xi^+_{s_2}(q_2)|0\rangle \qquad (\text{III } 2.7)$$

gde s_1 i s_2 prelaze preko sve tri polaritonske grane.

Na osnovu Hajzenbergovih jednačina kretanja za operator $\xi^+_{s_1}(q_1)\xi^+_{s_2}(q_2)$ lako dolazimo do zaključka da se funkcija Φ određuje iz jednačine:

$$E\Phi_{s_1 s_2}(q_1 q_2) = [H, \xi^+_{s_1}(q_1)\xi^+_{s_2}(q_2)]|0\rangle \qquad (\text{III } 2.8)$$

Posle prelaska na sistem centra mase koji se svodi na zamenu talasnih vektora:

$$q_1 = \frac{Q}{2} + q \quad ; \quad q_2 = \frac{Q}{2} - q \quad ; \quad k_1 = \frac{Q}{2} + q' \qquad (\text{III } 2.9)$$

dobijamo fundamentalnu jednačinu za određivanje bipolaritonskih stanja i energija:

$$\left[E - E_{s_1}\left(\frac{Q}{2}+q\right) - E_{s_2}\left(\frac{Q}{2}-q\right)\right]\Phi^{(Q)}_{s_1 s_2}(q) =$$

$$= \frac{1}{N}\sum_{\varsigma_1 \varsigma_2 q'}\left[\Gamma_{\varsigma_1\varsigma_2 s_1 s_2}\left(\frac{Q}{2}+q', \frac{Q}{2}-q', \frac{Q}{2}+q\right) + \right.$$

$$\left. + \Gamma_{\varsigma_1\varsigma_2 s_2 s_1}\left(\frac{Q}{2}+q', \frac{Q}{2}-q', \frac{Q}{2}-q\right)\right]\cdot\Phi^{(Q)}_{\varsigma_1\varsigma_2}(q') \qquad (\text{III } 2.10)$$

gde je:

$$\Phi^{(Q)}_{s_1 s_2}(q) = \xi^+_{s_1}\left(\frac{Q}{2}+q\right)\xi^+_{s_2}\left(\frac{Q}{2}-q\right)|0\rangle \qquad (\text{III } 2.11)$$

i očigledno ima sledeće osobine simetrije:

$$\Phi^{(Q)}_{s_1 s_2}(q) = \Phi^{(Q)}_{s_2 s_1}(-q) \qquad (\text{III } 2.12)$$

III 3. Zakon disperzije za bipolaritone u blizini eksiton-foton rezonance

Pošto jednačina (III 2.10) zahteva rešavanje pomoću računara mi ćemo se ograničiti na slučaj jednodimenzionalne rešetke i samo dve polaritonske grane. Takođe ćemo posmatrati slučaj u okolini eksiton-foton rezonance kada se transformacione funkcije mogu približno uzeti kao:

$$x_j = \frac{(-1)^{j+1}}{\sqrt{2}} + \vartheta(\tau) \quad ; \quad y_j = \frac{i}{\sqrt{2}} + \vartheta(\tau) \qquad (\text{III } 3.1)$$

gde je:

$$\tau \sim |E_{eks} - E_{fot}| \qquad (\text{III } 3.2)$$

tada se opšta jednačina (III 2.10) svodi na:

$$\left(\rho - \mathcal{H}'\cos x - \frac{(-1)^{s_1} + (-1)^{s_2}}{2}\cdot s\right)\Phi_{s_1 s_2}(x) =$$

$$= \sum_{\rho_1,\rho_2} \frac{1}{2\pi} \int_{-\pi}^{\pi} \frac{(-1)^{\rho_1+\rho_2+s_1+s_2}}{4} \Big\{ D - \mathcal{H}'\cos x + \frac{s}{2}\left[(-1)^{\rho_1} + (-1)^{\rho_2} + (-1)^{s_1} + (-1)^{s_2}\right] -$$

$$- (\mathcal{H}' + 2R\cos x)\cos y \Big\} \Phi_{\rho_1\rho_2}(y)\, dy \qquad (\text{III } 3.3)$$

gde su uvedene oznake:

$$\rho = \frac{2\Delta - E}{-4\alpha} \; ; \; D = \frac{\Delta}{-2\alpha} \; ; \; R = \frac{\mathcal{H}}{-2\alpha} \; ; \; s = \frac{t}{-2\alpha}$$

$$t = \frac{\hbar\omega_0}{2}\sqrt{F} \; ; \; \mathcal{H}' = \cos\frac{Qa}{2} \; ; \; x = qa \; ; \; y = q'a \qquad (\text{III } 3.4)$$

Formula (32.10) predstavlja sistem integralnih jednačina sa separabilnim jezgrom :

$$\Phi_{11}(x) = f_1(A_1 - A_5) + f_2(A_2 + A_5 - 2A_6) + f_3(A_3 - A_5)$$

$$\Phi_{22}(x) = f_4(A_1 - A_5) + f_5(A_2 + A_5 - 2A_6) + f_6(A_3 - A_5) \qquad (\text{III } 3.5)$$

$$\Phi_{12}(x) = f_7(A_1 - A_5) + f_8(A_2 + A_5 - 2A_6) + f_9(A_3 - A_5)$$

gde je:

$$A_1 = \frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{\pi}\Phi_{11}(y)dy \; ; \; A_2 = \frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{\pi}\Phi_{11}(y)\cos y dy \; ; \; A_3 = \frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{\pi}\Phi_{22}(y)dy$$

$$A_4 = \frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{\pi}\Phi_{22}(y)\cos y dy \; ; \; A_5 = \frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{\pi}\Phi_{12}(y)dy = \frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{\pi}\Phi_{21}(y)dy$$

$$A_6 = \frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{\pi}\Phi_{12}(y)\cos y dy = \frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{\pi}\Phi_{21}(y)\cos y dy \qquad (\text{III } 3.6)$$

$$f_1 = \frac{D - \mathcal{H}'\cos x - 2S}{4(\rho - \mathcal{H}'\cos x + S)} \; ; \; f_2 = \frac{-\mathcal{H}' - 2R\cos x}{4(\rho - \mathcal{H}'\cos x + S)} \; ; \; f_3 = \frac{D - \mathcal{H}'\cos x}{4(\rho - \mathcal{H}'\cos x + S)}$$

$$f_4 = \frac{D - \mathcal{H}'\cos x}{4(\rho - \mathcal{H}'\cos x - S)} \; ; \; f_5 = \frac{-\mathcal{H}' - 2R\cos x}{4(\rho - \mathcal{H}'\cos x - S)} \; ; \; f_6 = \frac{D - \mathcal{H}'\cos x + 2S}{4(\rho - \mathcal{H}'\cos x - S)}$$

$$f_7 = \frac{-D + \mathcal{H}'\cos x + S}{4(\rho - \mathcal{H}'\cos x)} \; ; \; f_8 = \frac{\mathcal{H}' + 2R\cos x}{4(\rho - \mathcal{H}'\cos x)} \; ; \; f_9 = -\frac{D + \mathcal{H}'\cos x - S}{4(\rho - \mathcal{H}'\cos x)}$$

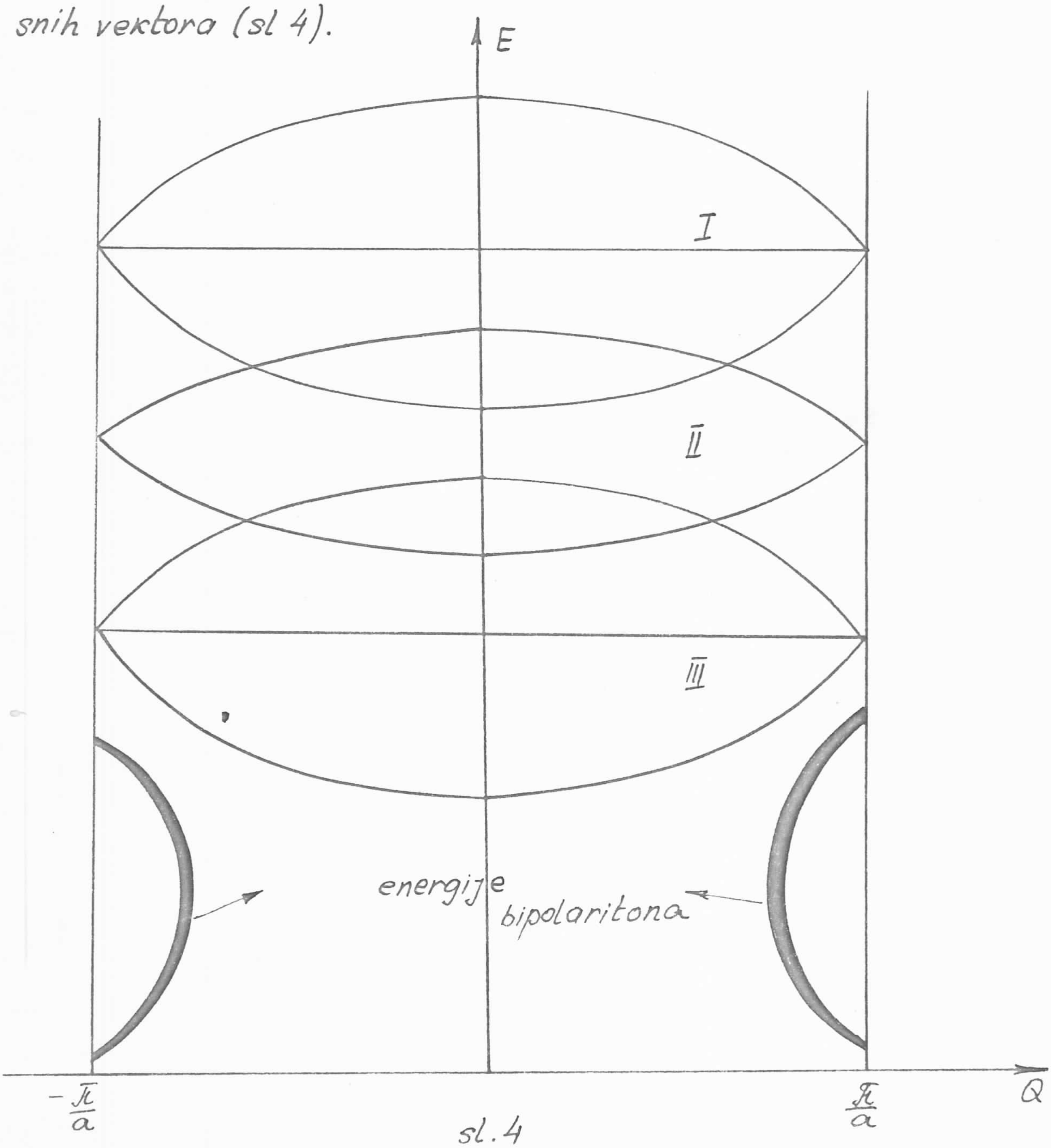
Po konstantama A_i imamo sistem homogenih algebarskih jednačina. Uslov da ovaj sistem ima netrivijalna rešenja svodi se na:

$$\begin{vmatrix} \bar{f}_1 - \bar{f}_7 - 1 & \bar{f}_3 - \bar{f}_9 & \bar{f}_2 - \bar{f}_8 \\ \bar{f}_4 - \bar{f}_7 & \bar{f}_6 - \bar{f}_9 - 1 & \bar{f}_5 - \bar{f}_8 \\ \bar{\bar{f}}_1 + \bar{\bar{f}}_4 - 2\bar{\bar{f}}_7 & \bar{\bar{f}}_3 + \bar{\bar{f}}_6 - 2\bar{\bar{f}}_9 & \bar{\bar{f}}_2 + \bar{\bar{f}}_5 - 2\bar{\bar{f}}_8 - 1 \end{vmatrix} = 0 \qquad (\text{III } 3.7)$$

gde su elementi determinante dati sa:

$$\bar{f}_j = \frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{\pi} f_j(x)dx \quad ; \quad \bar{\bar{f}}_j = \frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{\pi} f_j(x)\cos x\, dx \qquad (\text{III } 3.8)$$

Numerički račun za ovaj slučaj pokazuje da bipolaritoni imaju dvoznačan zakon disperzije i da postoje u oblasti velikih talasnih vektora (sl 4).



sl.4

Oblasti I, II, III su zone slobodnih polaritona

III 4. Zakon disperzije za polaritone u oblasti dalekoj od eksiton foton rezonance

Pod oblašću dalekom od rezonance podrazumevaćemo onu oblast talasnih vektora u kojoj je energija eksitona daleko veća od energije fotona i od energije eksiton-foton interakcije. To jest radićemo u aproksimaciji:

$$E_{eks} \gg E_{fot} \quad ; \quad E_{eks} \gg t$$

U ovom slučaju polaritonske energije postaju:

$$E_1 \approx \Delta + \alpha_k + \frac{2t^2}{\mathcal{E}_k} \quad ; \quad E_2 = \mathcal{E}_k - \frac{t^2}{\mathcal{E}_k} \qquad (\text{III } 4.1)$$

Transformacioni koeficijenti imaju oblik:

$$x_{\rho_S} = \delta_{1\rho_S} \quad ; \quad y_{\rho_S} = -i\delta_{2\rho_S} \qquad (\text{III } 4.2)$$

Koristeći relacije (III 4.1) i (III 4.2) za talasne funkcije bipolaritona dobijamo sledeće jednačine:

$$\Phi_{11}(x) = \varphi_1 A_1 + \varphi_2 A_2 + \varphi_3 A_5$$

$$\Phi_{12}(x) = \varphi_4 A_1 \qquad (\text{III } 4.3)$$

$$\Phi_{22}(x)(E - 2\hbar\omega_0) = 0$$

gde je:

$$\varphi_1 = \frac{-D' + \cos x}{\beta' + \cos x} \quad ; \quad \varphi_2 = \frac{1 + 2R'\cos x}{\beta' + \cos x}$$

$$\varphi_3 = \frac{-\sqrt{\frac{\Delta}{\hbar\omega_0}}\, S'}{\beta' + \cos x} \quad ; \quad \varphi_4 = \frac{-\sqrt{\frac{\Delta}{\hbar\omega_0}}\, S}{\beta'' + \cos\left(\frac{Qa}{2} + x\right)}$$

$$\beta' = -\frac{\rho}{\mathcal{H}'} \; ; \; \beta'' = -2\rho + \frac{\hbar\omega_0}{2\alpha} \; ; \; D' = \frac{D}{\mathcal{H}'} \; ; \; R' = \frac{R}{\mathcal{H}'} \; ; \; S' = \frac{S}{\mathcal{H}'}$$

Ovaj sistem jednačina posle kraćeg računa dovodi do sledećih zakona disperzije za bipolaritone.

$$E_1 = 2\Delta + 2\mathcal{H} + 2\mathcal{H}'^2 \frac{\alpha^2}{\mathcal{H}} \qquad (\text{III } 4.4)$$

$$E_2 = 2\Delta - \sqrt{\frac{t^4}{(\hbar\omega_0)^2} + 4\alpha^2} + \hbar\omega_0 \qquad (\text{III } 4.5)$$

$$E_3 = 2\hbar\omega_0 \qquad (\text{III } 4.6)$$

Kao što se vidi u ovom slučaju dva polaritona iz gornje grane (energija E_1) imaju sličan zakon disperzije kao bieksitoni, dok dva polaritona iz donje grane (energija E_3) imaju zakon disperzije kao par vezanih fotona. Najinteresantnije je svakako novo stanje (energija E_2) koje je nastalo vezivanjem jednog polaritona gornje i jednog polaritona donje grane. Pojava ovoga nivoa je potpuno novi efekat i dolazi kao posledica cepanja eksitonskih nivoa usled interakcije sa fotonima.

ZAKLJUČAK

Rezultati diplomskog rada mogu se rezimirati na sledeći način:

1) Korišćenjem Vajlovog identiteta dobijen je ekvivalentan Hamiltonijan sistema kristal + elektromagnetno polje. Ovaj ekvivalentan Hamiltonijan pogodan je zbog toga što se njegovim korišćenjem dobijaju prostije transformacione funkcije između eksiton-fotonskih i polaritonskih stanja. U ovom Hamiltonijanu eliminisan je efekat neodržanja kvazičestica pa on daje korektne rezultate nego do sada korišćeni Hamitonijan.

2) Sa ovako dobijenim rezultatima za slobodne polaritone formirana je opšta jednačina za analizu energija bipolaritona. Ova jednačina se ne može rešiti bez upotrebe računara, pa su zato razmatrani neki slučajevi koji se mogu analitički rešiti.

3) Jedan od slučajeva koji se mogu analitički rešiti je jednodimenzionalni lanac molekula u kome se razmatraju oblasti energija u okolini eksiton-foton interakcije. Za ovaj slučaj pokazano je da bipolaritoni imaju dvoznačan zakon disperzije i da postoje samo u onoj oblasti talasnih vektora bliskih kraju Briluenove zone.

4) Drugi slučaj koji dopušta analitičko rešenje je jednodimenzionalni lanac molekula i oblast energija daleko od energije eksiton-foton interakcije. U ovom slučaju postoje tri zakona disperzije za bipolaritone i to jedan koji je blizak energiji bieksitona, drugi koji je blizak energiji dva vezana fotona i treći koji nastaje kao posledica cepanja nivoa slobodnih eksitona u prisustvu elektromagnetnog polja.

LITERATURA:

А.С. ДАВЫДОВ
Теория молекулярных экситонов
Наука Москва 1968

В.М. АГРАНОВИЧ
Теория экситонов
Наука Москва 1969

Ž. ŠKRBIĆ
Diplomski rad
Pmf 1974

M.M. MARINKOVIĆ, J. MAKSIMOV i Ž. ŠKRBIĆ:
Phisica 80, 585 (1975)