D-156

INSTITUT ZA FIZIKU

PRIRODNO - MATEMATIČKI FAKULTET

UNIVERZITET U NOVOM SADU

VUCA V. PETAR

METASTABILNA HIBRIDIZACIJA OPTIČKIH I MEHANIČKIH TALASA U KRISTALIMA I NEKE POSLEDICE OVOG EFEKTA

(DIPOLOMSKI RAD)

NOVI SAD,

1977.

— BIBLIOTECI —

Zahvaljujem se dr Bratislavu Tošiću na nesebičnoj pomoći i korisnim sugestijama koje mi je pružio prilikom izrade ovog rada.

U Novom Sadu, oktobra 1977.g.

Vuca V. Petar

S A D R Ž A J

U V O D

Cilj ovog diplomskog rada je da ispita mogućnost jednog specifičnog oblika uzajamne transformacije vibracione i elektromagnetne energije u kondenzovanoj sredini. Poznato je da optička pobudjenja u kristalima interaguju sa mehaničkim oscilacijama molekula, ali u stanju termodinamičke ravnoteže mehanizam interakcije je takav da ne dopušta direktnu transformaciju svetlosne energije u mehaničku i obrnuto.

Zbog toga će ovde biti razmatrana jedna fizička situacija koja može da nastane pre uspostavljanja termodinamičke ravnoteže, a to je situacija kada se optička i vibraciona pobudjenja hibridiziraju. Ako do procesa hibridizacije dodje, za vreme trajanja ovakvog stanja, optičke i vibracione karakteristike kristala se veoma čvrsto povezuju i mogu da dovedu do izvesnih specifičnih pojava, koje bi se uopšteno govoreći, mogle nazvati Mesbauerovim efektom u vidljivom domenu elektromagnetnih talasa. Naš cilj je da bliže ispitamo karakteristike ovakvih fenomena.

1. EKSITONI I DIPOLNI OPERATOR

Eksitoni su optička pobudjenja u molekularnim kristalima i sastoje se od talasa pobudjenja tipa elektron-šupljina. Pod dejstvom svetlosti kojom osvetljavamo kristal, elektron iz osnovnog stanja predje u neko pobudjeno stanje, tako da u osnovnom stanju imamo šupljinu, a u pobudjenom elektron; i ovaj par ostaje u samom molekulu. Pošto molekuli interaguju, opisano pobudjenje jednog molekula prenosi se i na ostale molekule kristala i tako nastaje talas koji se naziva Frenkelov eksiton.

U molekularnim kristalima (antracen, naftalin, nafttalen, benzol u čvrstom stanju, plemeniti gasovi u čvrstom stanju) osnovne interakcije izmedju molekula su dipol-dipolne interakcije koje imaju sledeći oblik:

$$V_{\vec{n}\vec{m}} = e^2 \left\{ \frac{\vec{\xi}_{\vec{n}}\,\vec{\xi}_{\vec{m}}}{|\vec{n}-\vec{m}|^3} - 3\,\frac{[(\vec{n}-\vec{m})\vec{\xi}_{\vec{n}}]\,[(\vec{n}-\vec{m})\vec{\xi}_{\vec{m}}]}{|\vec{n}-\vec{m}|^5} \right\} \qquad (I.1.1.)$$

U formuli I.1.1. e je naelektrisanje elektrona, $\vec{n}$ i $\vec{m}$ su vektori čvorova kristalne rešetke u kojima se nalaze molekuli, a $\vec{\xi}_{\vec{n}}$ i $\vec{\xi}_{\vec{m}}$ su skupovi unutrašnjih koordinata molekula u čvorovima $\vec{n}$ i $\vec{m}$.

Kao što je napred rečeno, ekscitoni nastaju zbog pobudjivanja elektrona u molekulima, pa se u teoriji ekscitona startuje od hamiltonijana elektronskog podsistema. Ako se ograničimo na elektronski podsistem i pretpostavimo da svetlosni kvant pobudjuje elektron iz osnovnog stanja, koje ćemo označiti indeksom 0, u samo jedno pobudjeno stanje, koje ćemo označiti indeksom f, onda se hamiltonijan sistema koji ima oblik:

$$H = \sum_{\vec{n}} H_{\vec{n}} + \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}} \qquad (I.1.2.)$$

gde je $H_{\vec{n}}$ hamiltonijan minimuma na čvoru $\vec{n}$, može napisati u reprezentaciji druge kvantizacije kao:

$$H = \sum_{\vec{n}\mu} E_\mu a^+_{\mu\vec{n}} a_{\mu\vec{n}} + \frac{1}{2} \cdot \sum_{\vec{n}\vec{m}\mu_1\mu_2\mu_3\mu_4} V_{\vec{n}\vec{m}}(\mu_1\mu_2\mu_3\mu_4) a^+_{\mu_1\vec{n}} a^+_{\mu_3\vec{m}} a_{\mu_4\vec{m}} a_{\mu_2\vec{n}} \qquad (I.1.3.)$$

gde su $a^+_{\mu n}$ i $a_{\mu n}$ operatori kreacije i anihilacije elektrona na čvoru $\vec{n}$ u kvantnom stanju μ, E_μ su svojstvene vrednosti hamiltonijana $H_{\vec{n}}$, tj.

$$H_{\vec{n}} \phi_\mu(\vec{\xi}_{\vec{n}}) = E_\mu \, \phi_\mu(\vec{\xi}_{\vec{n}}) \qquad (I.1.4.)$$

$$V_{\vec{n}\vec{m}}(\mu_1\mu_2\mu_3\mu_4) = \int d^3\vec{\xi}_{\vec{n}} d^3\vec{\xi}_{\vec{m}} \, \phi^*_{\mu_1}(\vec{\xi}_{\vec{n}}) \, \phi^*_{\mu_3}(\vec{\xi}_{\vec{m}}) V_{\vec{n}\vec{m}} \, \phi_{\mu_4}(\vec{\xi}_{\vec{m}}) \phi_{\mu_2}(\vec{\xi}_{\vec{n}}) \qquad (I.1.5.)$$

su matrični elementi operatora dipol-dipolne interakcije po svojstvenim funkcijama $\phi_\mu(\vec{\xi}_{\vec{n}})$ hamiltonijana $H_{\vec{n}}$ izolovanog molekula. Indeksi $\mu, \mu_1, \dots, \mu_n$ uzimaju samo dve vrednosti i to: 0 i f, a elektronski operatori a^+ i a zadovoljavaju fermionske komutacione relacije.

Pošto se pretpostavlja da se elektronske talasne funkcije različitih molekula slabo prekrivaju, može se uzeti da elektronski operatori za svaki čvor ne deluju u ukupnom mogućem prostoru elektronskih stanja,

$$\chi \equiv \{|0_o\, 0_f>; |1_o\, 1_f>; |1_o\, 0_f>; |0_o\, 1_f>\} \qquad (I.1.6.)$$

već samo u podprostoru

$$\chi_1 \equiv \{|1_o\, 0_f>; |0_o\, 1_f>\} \qquad (I.1.7.)$$

Ukupni fermionski prostor za ceo kristal je direktan produkt stanja koja ulaze u χ (može se pokazati da je hamiltonijan (I.1.3.) zbog slabog prekrivanja talasnih funkcija zatvoren u podprostoru, koji je direktan produkt samo stanja koja ulaze u χ_1. Ova činjenica daje mogućnost da se umesto elektronskih operatora a^+ i a uvedu operatori koji kreiraju pobudjenje u molekulu. Ovi operatori definišu se kao

$$P^+_{\vec{n}} = a^+_{f\vec{n}}\, a_{0\vec{n}}\,; \qquad P_{\vec{n}} = a^+_{0\vec{n}}\, a_{f\vec{n}} \qquad (I.1.8.)$$

i nazivaju se pauli-operatori. Na osnovu (I.1.8.) fizički smisao pauli-operatora je očigledan: operator P^+ kreira pobudjenje tipa f, a operator P uništava ovo pobudjenje.

Za operator χ_1 očigledno važi,

$$a^+_{o\vec{n}}\, a_{o\vec{n}} + a^+_{f\vec{n}}\, a_{f\vec{n}} = 1 \qquad (I.1.9.)$$

pa sledi

$$P^+_{\vec{n}}\, P_{\vec{n}} = a^+_{f\vec{n}}\, a_{o\vec{n}}\, a^+_{o\vec{n}}\, a_{f\vec{n}} = a^+_{f\vec{n}}(1 - a^+_{o\vec{n}}\, a_{o\vec{n}})a_{f\vec{n}} =$$

$$= a^+_{f\vec{n}}\, a_{f\vec{n}} - a^+_{f\vec{n}}\, a^+_{o\vec{n}}\, a_{o\vec{n}}\, a_{f\vec{n}}$$

i pošto je $a^+_{f\vec{n}}\, a^+_{o\vec{n}}\, a_{o\vec{n}}\, a_{f\vec{n}}$ ravno nuli na svim stanjima u χ_1 dobijamo:

$$P^+_{\vec{n}}\, P_{\vec{n}} = a^+_{f\vec{n}}\, a_{f\vec{n}} \qquad (I.1.10.)$$

i očigledno

$$P_{\vec{n}}\, P^+_{\vec{n}} = a_{f\vec{n}}\, a^+_{f\vec{n}}$$

tako da je

$$P_{\vec{n}}\, P^+_{\vec{n}} + P^+_{\vec{n}}\, P_{\vec{n}} = a_{f\vec{n}}\, a^+_{f\vec{n}} + a^+_{f\vec{n}}\, a_{f\vec{n}} = 1 \qquad (I.1.11.)$$

Takodje je jasno:

$$P^2_{\vec{n}} = a^+_{o\vec{n}}\, a_{f\vec{n}}\, a^+_{o\vec{n}}\, a_{f\vec{n}} = - a^+_{o\vec{n}}\, a^+_{o\vec{n}}\, a_{f\vec{n}}\, a_{f\vec{n}} = 0$$

$$P^2_{n} = a^+_{f\vec{n}}\, a_{o\vec{n}}\, a^+_{f\vec{n}}\, a_{o\vec{n}} = - a^+_{f\vec{n}}\, a^+_{f\vec{n}}\, a_{o\vec{n}}\, a_{o\vec{n}} = 0$$

Za različite čvorove Pauli-operatori komutiraju,

$$\underset{\vec{n}\neq\vec{m}}{P_{\vec{n}}\, P^+_{\vec{m}} - P^+_{\vec{m}}\, P_{\vec{n}}} = a^+_{o\vec{n}}\, a_{f\vec{n}}\, a^+_{f\vec{m}}\, a_{o\vec{m}} - a^+_{f\vec{m}}\, a_{o\vec{m}}\, a^+_{o\vec{n}}\, a_{f\vec{n}} =$$

$$= - a^{+}_{o\vec{n}} a^{+}_{f\vec{m}} a_{f\vec{n}} a_{o\vec{m}} + a^{+}_{f\vec{m}} a^{+}_{o\vec{n}} a_{o\vec{m}} a_{f\vec{n}} =$$

$$= - a^{+}_{f\vec{m}} a^{+}_{o\vec{n}} a_{o\vec{m}} a_{f\vec{n}} + a^{+}_{f\vec{m}} a^{+}_{o\vec{n}} a_{o\vec{m}} a_{f\vec{n}} = 0$$

tako da komutacione relacije za Pauli-operatore možemo napisati u obliku:

$$\left.\begin{aligned} &\left[P_{\vec{n}}, P^{+}_{\vec{m}}\right] = (1 - 2 P^{+}_{\vec{n}} P_{\vec{n}})\, \delta_{\vec{n}\vec{m}} \\ &P_{\vec{n}}^{2} = P^{+2}_{\vec{n}} = 0\, ; \left[P_{\vec{n}}, P_{\vec{m}}\right] = \left[P^{+}_{\vec{n}}, P^{+}_{\vec{m}}\right] = 0 \\ &P^{+}_{\vec{n}} P_{\vec{n}} = a^{+}_{f\vec{n}} a_{f\vec{n}} \end{aligned}\right\} \quad (I.1.12.)$$

Pošto smo našli komutacione relacije za Pauli-operatore, koje su kao što vidimo "smeša" bozonskih i fermjonskih komutacionih relacija; hamiltonijan (I.1.3.) možemo predstaviti preko Pauli-operatora. Pri ovome ćemo pretpostaviti da kristal ima centar inverzije i da se kristalni centar inverzije poklapa sa centrom inverzije svakog od molekula. Tada su matrični elementi $V_{\vec{n}\vec{m}}(\mu_1\mu_2\mu_3\mu_4)$ ravni nuli, ako su u njima tri indeksa μ ravni nuli, ili ako je samo jedan indeks μ jednak nuli. Ovo sledi na osnovu činjenica da su $V_{\vec{n}\vec{m}}$ sa neparnim brojem indeksa proporcionalni produktu neparnog broja dipolnih momenata prelaza, a ovakvi proizvodi pri operaciji inverzije $(\vec{r} \to -\vec{r})$ menjaju znak. Pošto pri operaciji inverzije hamiltonijan mora ostati nepromenjen svi njegovi delovi koji pri ovoj operaciji menjaju znak, moraju identički biti jednaki nuli.

Uz ovu predpostavku sumu u formuli (I.1.3.) možemo rastaviti po sledećoj šemi:

μ_1	μ_2	μ_3	μ_4	red. broj
0	0	0	0	I
f	f	0	0	II
f	0	f	0	III
f	0	0	f	IV
0	f	f	0	V
0	f	0	f	VI
0	0	f	f	VII
f	f	f	f	VIII

Članovi hamiltonijana koji odgovaraju šemi su:

$$\mathrm{I} = \frac{1}{2} \sum_{\vec n \vec m} V_{\vec n \vec m}(0000)\, a^{+}_{o\vec n}\, a^{+}_{o\vec m}\, a_{o\vec m}\, a_{o\vec n} =$$

$$= \frac{1}{2} \sum_{\vec n \vec m} V_{\vec n \vec m}(0000)\, a^{+}_{o\vec n}\, a_{o\vec n}\, a^{+}_{o\vec m}\, a_{o\vec m} =$$

$$= \frac{1}{2} \sum_{\vec n \vec m} V_{\vec n \vec m}(0000)\, (1-a^{+}_{f\vec n}\, a_{f\vec n})\, (1-a^{+}_{f\vec m}\, a_{f\vec m}) =$$

$$= \frac{1}{2} \sum_{\vec n \vec m} V_{\vec n \vec m}(0000)\, (1-P^{+}_{\vec n} P_{\vec n})\, (1-P^{+}_{\vec m} P_{\vec m}) =$$

$$= \frac{1}{2} \sum_{\vec n \vec m} V_{\vec n \vec m}(0000) - \frac{1}{2} \sum_{\vec n \vec m} V_{\vec n \vec m}(0000)\, P^{+}_{\vec n}\, P_{\vec n} -$$

$$- \frac{1}{2} \sum_{\vec n \vec m} V_{\vec n \vec m}(0000)\, \underset{\vec n \rightleftarrows \vec m}{P^{+}_{\vec m} P_{\vec m}} + \frac{1}{2} \sum_{\vec n \vec m} V_{\vec n \vec m}(0000)\, P^{+}_{\vec n} P_{\vec n} P^{+}_{\vec m} P_{\vec m}$$

Pošto $V_{\vec{n}\vec{m}}$ zavisi od razlike $\vec{n} - \vec{m}$, možemo pisati:

$$\sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(0000) = \sum_{\substack{\vec{n}\vec{m} \\ \vec{n}-\vec{m}=\vec{\ell}}} V_{\vec{n}-\vec{m}}(0000) = \sum_{\vec{\ell}\vec{n}} V_{\vec{\ell}}(0000) =$$

$$\sum_{\vec{\ell}} V_{\vec{\ell}}(0000) \sum_{\vec{n}} 1 = N\ \phi(0000)$$

gde je

$$\phi(0000) = \sum_{\vec{\ell}} V_{\vec{\ell}}(0000) \qquad (I.1.13.)$$

Takodje je:

$$\sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(0000)\ P^{+}_{\vec{n}} P_{\vec{n}} = \sum_{\substack{\vec{n}\vec{m} \\ \vec{n}-\vec{m}=\vec{\ell}}} V_{\vec{n}-\vec{m}}(0000)\ P^{+}_{\vec{n}} P_{\vec{n}} =$$

$$= \sum_{\vec{\ell}} W_{\vec{\ell}}(0000) \sum_{\vec{n}} P^{+}_{\vec{n}} P_{\vec{n}} = \phi(0000) \sum_{\vec{n}} P^{+}_{\vec{n}} P_{\vec{n}}$$

pa je konačno:

$$I = \frac{1}{2} N\phi(0000) - \phi(0000) \sum_{\vec{n}} P^{+}_{\vec{n}} P_{\vec{n}} + \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(0000) P^{+}_{\vec{n}} P_{\vec{n}} P^{+}_{\vec{m}} P_{\vec{m}}$$

Ostali članovi šeme izračunavaju se na sledeći način:

$$II = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(ff00) a^{+}_{f\vec{n}}\, a^{+}_{o\vec{m}}\, a_{o\vec{m}}\, a_{f\vec{n}} = \frac{1}{2} \sum_{nm} V_{\vec{n}\vec{m}}(ff00) \cdot$$

$$\cdot\ a^{+}_{f\vec{n}}\, a_{f\vec{n}}\, a^{+}_{o\vec{m}}\, a_{o\vec{m}} = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(ff00) P^{+}_{\vec{n}} P_{\vec{n}} (1 - a^{+}_{f\vec{m}}\, a_{f\vec{m}}) =$$

$$= \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(ff00) P^{+}_{\vec{n}} P_{\vec{n}} (1 - P^{+}_{\vec{m}} P_{\vec{m}}) = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(ff00) P^{+}_{\vec{n}} P_{\vec{n}} -$$

$$- \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(ff00) P^{+}_{\vec{n}} P_{\vec{n}} P^{+}_{\vec{m}} P_{\vec{m}} = \frac{1}{2}\ \phi(ff00) \sum_{\vec{n}} P^{+}_{\vec{n}} P_{\vec{n}} -$$

$$- \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(ff00)\, P^{\pm}_{\vec{n}} P_{\vec{n}} P^{\pm}_{\vec{m}} P_{\vec{m}}$$

$$VII = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(00ff)\ a^{+}_{o\vec{n}}\ a^{+}_{f\vec{m}}\ a_{f\vec{m}}\ a_{o\vec{n}} =$$

$$= \frac{1}{2} \sum_{\substack{\vec{n}\vec{m} \\ \vec{n} \rightleftarrows \vec{m}}} V_{\vec{n}\vec{m}}(00ff)\ a^{+}_{f\vec{m}}\ a_{f\vec{m}}\ a^{+}_{o\vec{n}}\ a_{o\vec{n}}$$

$$= \frac{1}{2}\ \phi(00ff) \sum_{\vec{n}} P^{\pm}_{\vec{n}}\ P_{\vec{n}} - \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(00ff)\ P^{\pm}_{\vec{n}}\ P_{\vec{n}}\ P^{\pm}_{\vec{m}}\ P_{\vec{m}}$$

$$III = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(f0f0)\, a^{+}_{f\vec{n}}\ a^{+}_{f\vec{m}}\ a_{o\vec{m}}\ a_{o\vec{n}} = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(f0f0) \cdot$$

$$\cdot\ a^{+}_{f\vec{n}}\ a_{o\vec{n}}\ a^{+}_{f\vec{m}}\ a_{o\vec{m}} = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(f0f0)\ P^{\pm}_{\vec{n}} P^{\pm}_{\vec{m}}$$

$$VI = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(0f0f)\ a^{+}_{o\vec{n}}\ a^{+}_{o\vec{m}}\ a_{f\vec{m}}\ a_{f\vec{n}} = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(0f0f) \cdot$$

$$\cdot\ a^{+}_{o\vec{n}}\ a_{f\vec{n}}\ a^{+}_{o\vec{m}}\ a_{f\vec{n}} = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(0f0f)\, P_{\vec{n}} P_{\vec{m}}$$

$$IV = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(f00f)\ a^{+}_{f\vec{n}} a^{+}_{o\vec{m}}\ a_{f\vec{m}}\ a_{o\vec{n}} = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(f00f) \cdot$$

$$a^{+}_{f\vec{n}}\ a_{o\vec{n}}\ a^{+}_{o\vec{m}}\ a_{f\vec{m}} = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(f00f)\, P^{\pm}_{\vec{n}} P_{\vec{m}}$$

$$V = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(0ff0)\ a^{+}_{o\vec{n}}\ a^{+}_{f\vec{m}}\ a_{o\vec{m}}\ a_{f\vec{m}} = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(0ff0) \cdot$$

$$\cdot\ a^{+}_{f\vec{m}}\ a_{o\vec{m}}\ a^{+}_{o\vec{n}}\ a_{f\vec{n}} = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(0ff0)\, P^{\pm}_{\vec{n}} P_{\vec{m}}$$

$$VIII = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(ffff)\ a^{+}_{f\vec{n}}\ a^{+}_{f\vec{m}}\ a_{f\vec{m}}\ a_{f\vec{n}} = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(ffff) \cdot$$

$$\cdot\, a^{+}_{f\vec{n}} a_{f\vec{n}} a^{+}_{f\vec{m}} a_{f\vec{m}} = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} V_{\vec{n}\vec{m}}(ffff)\, P^{+}_{\vec{n}} P_{\vec{n}} P^{+}_{\vec{m}} P_{\vec{m}}$$

Prvi član u formuli (I.1.3.) može se izraziti pomoću Pauli-operatora na sledeći način:

$$\sum_{\vec{n}\mu} E_{\mu}\, a^{+}_{\mu\vec{n}} a_{\mu\vec{n}} = \sum_{\vec{n}} (E_{o} a^{+}_{o\vec{n}} a_{o\vec{n}} + E_{f} a^{+}_{f\vec{n}} a_{f\vec{n}}) =$$

$$= \sum_{\vec{n}} E_{o}(1 - a^{+}_{f\vec{n}} a_{f\vec{n}}) + E_{f}\, a^{+}_{f\vec{n}} a_{f\vec{n}} = \sum_{\vec{n}} E_{o} + \sum_{\vec{n}} (E_{f} - E_{o}) \cdot$$

$$\cdot\, a^{+}_{f\vec{n}} a_{f\vec{n}} = NE_{o} + \sum_{\vec{n}} (E_{f} - E_{o}) P^{+}_{\vec{n}} P_{\vec{n}}$$

pa je konačni oblik hamiltonijana (I.1.3.) sledeći:

$$H = H_{0} + H_{2} + H_{4} \tag{I.1.14.}$$

gde je

$$H_{0} = N\left[E_{o} + \frac{1}{2}\phi(0000)\right] \tag{I.1.15.}$$

$$H_{2} = \Delta \sum_{\vec{n}} P^{+}_{\vec{n}} P_{\vec{n}} + \sum_{\vec{n}\vec{m}} W_{\vec{n}\vec{m}} P^{+}_{\vec{n}} P_{\vec{m}} + \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} R_{\vec{n}\vec{m}} (P^{+}_{\vec{n}} P^{+}_{\vec{m}} + P_{\vec{m}} P_{\vec{n}}) \tag{I.1.16.}$$

$$H_{4} = \sum_{\vec{n}\vec{m}} T_{\vec{n}\vec{m}}\, P^{+}_{\vec{n}} P_{\vec{n}} P^{+}_{\vec{m}} P_{\vec{m}} \tag{I.1.17.}$$

i

$$\Delta = E_{f} - E_{o} + \frac{1}{2}\left[\phi(ff00) + \phi(00ff)\right]$$

$$W_{\vec{n}\vec{m}} = \frac{1}{2}\left[V_{\vec{n}\vec{m}}(f00f) + V_{\vec{n}\vec{m}}(0ff0)\right]$$

$$R_{\vec{n}\vec{m}} = V_{\vec{n}\vec{m}}(f0f0) = V_{\vec{n}\vec{m}}(0f0f) \qquad (I.1.18.)$$

$$T_{\vec{n}\vec{m}} = \frac{1}{2}\left[V_{\vec{n}\vec{m}}(ffff) + V_{\vec{n}\vec{m}}(0000) + V_{\vec{n}\vec{m}}(ff00) + V_{\vec{n}\vec{m}}(00ff)\right]$$

Ako se zanemare interakcije izmedju eksitona i Pauli operatori zamene Boze-operatorima, onda nam hamiltonijan (I.1.14.) opisuje harmonska eksitonska stanja. Zanemarivanje interakcije izmedju eksitona znači odbacivanje člana H_4 iz formule (I.1.14.). Osim toga, mi ćemo iz H_2 odbaciti delove proporcionalne $R_{\vec{n}\vec{m}}$, jer oni daju male popravke energije eksitona, što je pokazano u referenci [1].

Znači, eksitonski spektar ćemo analizirati sa hamiltonijanom,

$$H_e = H_0 + \Delta\sum_{\vec{n}} B^+_{\vec{n}}B_{\vec{n}} + \sum_{\vec{n}\vec{m}} W_{\vec{n}\vec{m}}B^+_{\vec{n}}B_{\vec{m}} \qquad (I.1.19.)$$

gde su izvršene aproksimacije $P^+_{\vec{n}} \simeq B^+_{\vec{n}}$ i $P_{\vec{n}} \simeq B_{\vec{n}}$ i Boze-operatori B^+ i B zadovoljavaju komutacione relacije:

$$\left[B_{\vec{n}}, B^+_{\vec{m}}\right] = \delta_{\vec{n}\vec{m}} \ ; \quad \left[B_{\vec{n}}, B_{\vec{m}}\right] = \left[B^+_{\vec{n}}, B^+_{\vec{m}}\right] = 0 \qquad (I.1.20.)$$

Ako u formuli (I.1.19.) izvršimo Furije-transformacije

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

$$W_{\vec{n}\vec{m}} \equiv W_{\vec{n}-\vec{m}} = \frac{1}{N}\sum_{\vec{k}} W_{\vec{k}}\, e^{i\vec{k}(\vec{n}-\vec{m})} \; ; \qquad W_{\vec{k}} = \sum_{\vec{\ell}} W_{\vec{\ell}}\, e^{-i\vec{k}\vec{\ell}} \; ; \vec{\ell} = \vec{n}-\vec{m} \qquad (I.1.21.)$$

Lako nalazimo da H_e postaje

$$H_e = H_o + \sum_{\vec{k}} X_{\vec{k}} B^+_{\vec{k}} B_{\vec{k}} \qquad (I.1.22.)$$

gde je

$$X_{\vec{k}} = \Delta + W_{\vec{k}} \qquad (I.1.23.)$$

Za prostu kubnu rešetku, u aproksimaciji najbližih suseda veličina $W_{\vec{k}}$ ima oblik:

$$W_{\vec{k}} = 2W\,(\cos k_x a + \cos k_y a + \cos k_z a)$$

gde je W interakcija za najbliže susede;i ako se ograničimo na oblast malih talasnih vektora

$$\cos k_i a \simeq 1 - \frac{1}{2} k_i^2 a^2 ; \quad i = x,y,z$$

onda možemo pisati:

$$W_{\vec{k}} = GW - W a^2 k^2 = GW + \frac{\hbar^2 k^2}{2m} \qquad (I.1.24.)$$

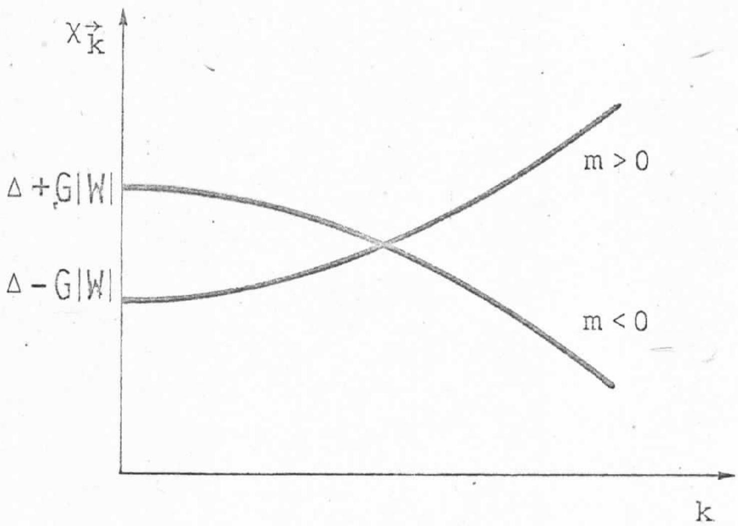
gde je

$$\boxed{m = -\frac{1}{2}\frac{\hbar^2}{Wa^2}} \qquad (I.1.25.)$$

efektivna masa eksitona. U zavisnosti od znaka W efektivna masa eksitona može biti pozitivna ili negativna. Ako je $W < 0$,onda eksiton ima pozitivnu efektivnu masu, a ako je $W > 0$,onda eksiton ima negativnu efektivnu masu. Zakon disperzije za eksitone u aproksimaciji koja je ukazana ima oblik:

$$X_{\vec{k}} = \Delta + GW + \frac{\hbar^2 k^2}{2m} \qquad \text{(I.1.26.)}$$

i grafički se on može predstaviti na sledeći način:



Na kraju ovog paragrafa potražićemo izraz za ukupni dipolni momenat kristala:

Dipol na čvoru $\vec{n}$ dat je sa

$$\vec{D}(\vec{\xi}_{\vec{n}}) = e\vec{\xi}_{\vec{n}} \qquad \text{(I.1.27.)}$$

Ukupni dipol dobija se sumiranjem po svim čvorovima, tj.

$$\vec{D} = \sum_{\vec{n}} \vec{D}(\vec{\xi}_{\vec{n}}) \qquad \text{(I.1.28.)}$$

Operator $\vec{D}$ je jednočestični operator i ako ga predstavimo u reprezentaciji druge kvantizacije pomoću elektronskih operatora a^+a on ima oblik:

$$\hat{\vec{D}} = \sum_{\vec{n}\mu_1\mu_2} \vec{D}_{\mu_1\mu_2}\, a^{+}_{\mu_1\vec{n}}\, a_{\mu_2\vec{n}} \qquad (I.1.29.)$$

gde je

$$\vec{D}_{\mu_1\mu_2} = \int d^3\vec{\xi}_{\vec{n}}\, \phi^{*}_{\mu_1}(\vec{\xi}_{\vec{n}})\, \vec{D}(\vec{\xi}_{\vec{n}})\, \phi_{\mu_2}(\vec{\xi}_{\vec{n}}) \qquad (I.1.30.)$$

Matrični elementi $\vec{D}_{\mu_1\mu_2}$ ne zavise od indeksa čvora $\vec{n}$, jer su svi molekuli kristala identični. Oni se nazivaju dipolnim momentima prelaza iz elektronskog stanja μ_1 u elektronsko stanje μ_2. U formuli (I.1.29.), pošto smo se ograničili na šemu 0 - f; indeksi μ_1 i μ_2 uzimaju vrednosti samo 0 i f. Operator $\hat{\vec{D}}$ može se predstaviti preko Pauli-operatora na sledeći način:

$$\hat{\vec{D}} = \sum_{\vec{n}\mu_1\mu_2} \vec{D}_{\mu_1\mu_2}\, a^{+}_{\mu_1\vec{n}}\, a_{\mu_2\vec{n}} = \sum_{\vec{n}} \{\vec{D}_{oo} a^{+}_{o\vec{n}}\, a_{o\vec{n}} + \vec{D}_{fo} a^{+}_{f\vec{n}} a_{o\vec{n}} +$$

$$+ \vec{D}_{of}\, a^{+}_{o\vec{n}}\, a_{f\vec{n}} + \vec{D}_{ff}\, a^{+}_{f\vec{n}}\, a_{f\vec{n}}\} =$$

$$= \sum_{\vec{n}} (\vec{D}_{oo} + \vec{D}_{fo} P^{+}_{\vec{n}} + \vec{D}_{of}\, P_{\vec{n}} + \vec{D}_{ff}\, P^{+}_{\vec{n}}\, P_{\vec{n}})$$

Dipolni momenti prelaza $\vec{D}_{oo}$ i $\vec{D}_{ff}$ ravni su nuli, tako da konačno dobijamo:

$$\hat{\vec{D}} = \sum_{\vec{n}} (\vec{D}_{fo} P^{+}_{\vec{n}} + \vec{D}_{of}\, P_{\vec{n}}) \qquad (I.1.31.)$$

Pošto $\vec{D}$ mora biti ermitski operator ($\hat{\vec{D}} = \hat{\vec{D}}^{+}$), sledi:

$$\vec{D}^{*}_{fo} = \vec{D}_{of} \qquad (I.1.32.)$$

pa možemo pisati:

$$\hat{\vec{D}} = \sum_{\vec{n}} (\vec{D}_{of} P_{\vec{n}} + \vec{D}^*_{of} P^+_{\vec{n}}) \qquad (I.1.33.)$$

Ako se ograničimo na harmonijsku aproksimaciju za eksitone, onda Pauli-operatore možemo zameniti Boze-operatorima, B i B^+, pa dipolni operator u harmonijskoj aproksimaciji ima:

$$\hat{\vec{D}} = \sum_{\vec{n}} (\vec{D}_{of} B_{\vec{n}} + \vec{D}^*_{of} B^+_{\vec{n}}) \qquad (I.1.34.)$$

i može se predstaviti pomoću eksitonskih operatora $B^+_{\vec{k}}$ i $B_{\vec{k}}$, u čijoj je reprezentaciji H_e dijagonalno.

2. POLARITONI

Eksitoni čije smo osobine analizirali u prethodnom paragrafu predstavljaju isuviše idealizovan model optičkih pobudjenja u kristalu. Deo svetlosne energije koja pobudjuje eksitone zadržava se u kristalu i interaguje sa već stvorenim eksitonima. Rezultat ove interakcije je hibridizacija eksitonskih i svetlosnih kvanata, tj. stvaranje novih eksitacija koje imaju "smešane" osobine i eksitona i fo~~n~~tona. Ove eksitacije nazivaju se polaritoni.

Hamiltonijan fotonskog polja u kristalu ima oblik

$$H_F = \frac{a^3}{8\pi} \sum_{\vec{n}} (\vec{E}_{\vec{n}}^2 + \vec{\chi}_{\vec{n}}^2) \qquad (I.2.1.)$$

gde je $\vec{E}_{\vec{n}}$ vektor jačine električnog polja u čvoru $\vec{n}$, a $\vec{\chi}_{\vec{n}}$ je vektor jačine magnetnog polja u čvoru $\vec{n}$. Vektori $\vec{E}_{\vec{n}}$ i $\vec{\chi}_{\vec{n}}$ povezani su sa vektorskim potencijalom $\vec{A}_{\vec{n}}$ sledećim relacijama:

$$\vec{E}_{\vec{n}} = -\frac{1}{c}\frac{\partial \vec{A}_{\vec{n}}}{\partial t} \; ; \qquad \vec{\chi}_{\vec{n}} = \text{rot}\, \vec{A}_{\vec{n}} \qquad (I.2.2.)$$

Ako vektroski potencijal $\vec{A}_{\vec{n}}$ razložimo preko ravnih talasa gde su koeficijenti razvoja Boze-operatori $\alpha_{\vec{k}\sigma}$ i $\alpha^{+}_{\vec{k}\sigma}$, tj.

$$\hat{A}_{\vec{n}} = \sum_{\vec{k};\sigma=1}^{2} \sqrt{\frac{2\pi\hbar c}{Vk}}\, \vec{e}_{\vec{k}\sigma} (\alpha_{\vec{k}\sigma} e^{-i\omega_{\vec{k}\sigma} t} + \alpha^{+}_{-\vec{k},\sigma} e^{i\omega_{\vec{k}\sigma} t}) e^{i\vec{k}\vec{n}}$$

(I.2.3.)

gde je $\omega_{\vec{k}\sigma} = ck$ i σ označava dve polarizacije fotona koji su uzajamno normalne i normalne na pravac vektora $\vec{k}$ ($\vec{e}_{\vec{k}\sigma}\vec{e}_{\vec{k}\sigma'} = \delta_{\sigma\sigma'}$, $\vec{e}_{\vec{k}\sigma} \cdot \vec{k} = 0$), onda se hamiltonijan (I.2.1.) dijagonalizuje i dobija oblik

$$H_F = \sum_{\vec{k}\sigma} (\hbar\omega_{\vec{k}\sigma} + \frac{1}{2})\, \alpha^{+}_{\vec{k}\sigma} \alpha_{\vec{k}\sigma} \qquad \text{(I.2.4.)}$$

Veličina c je brzina svetlosti, a operatori $\alpha^{+}_{\vec{k}\sigma}$ i $\alpha_{\vec{k}\sigma}$ kreiraju i anhiliraju kvante elektromagnetnog polja koji se nazivaju fotoni.

Mehanizam koji dovodi do interakcije izmedju eksitona i fotona je mehanizam retardovane interakcije elektrona u elektromagnetnom polju. Usled retardovane interakcije impuls elektrona u elektromagnetnom polju ima oblik

$$\vec{\pi}_{\vec{n}} = \vec{p}_{\vec{n}} - \frac{e}{c} \hat{A}_{\vec{n}} \qquad \text{(I.2.5.)}$$

gde je $\vec{p}_{\vec{n}}$ običan mehanički impuls koji je ravan proizvodu iz mase elektrona i njegove brzine. Kinetička energija koja odgovara elektronu sa impulsom (I.2.5.) je

$$T_{\vec{n}} = \frac{\vec{p}_{\vec{n}}^{\,2}}{2m} - \frac{e}{mc} \vec{p}_{\vec{n}} \hat{A}_{\vec{n}} + \frac{e^2}{2mc^2} \hat{A}^2_{\vec{n}} \qquad \text{(I.2.6.)}$$

Prvi član u izrazu za $T_{\vec{n}}$ uključen je u hamiltonijan $H_{\vec{n}}$ izolovanog molekula, pa prema tome ulazi u eksitonsku energiju. Drugi i treći član u izrazu (I.2.6.) definišu interakciju izmedju fotona i eksitona. Ako ove izraze prosumiramo po svim čvorovima rešetke, dobijeni izraz napišemo u reprezentaciji druge kvantizacije po elektronskim operatorima a^+ i a, onda imamo

$$\hat{T} = H_{int}^{(I)} + H_{int}^{(II)} \qquad (I.2.7.)$$

gde je

$$H_{int}^{(I)} = - \frac{e}{mc} \sum_{n\mu_1\mu_2} \hat{\vec{A}}_{\vec{n}} \left[\int d^3\vec{\xi}_{\vec{n}}\, \phi^*_{\mu_1}(\vec{\xi}_{\vec{n}}) \vec{p}(\vec{\xi}_{\vec{n}})\, \phi_{\mu_2}(\vec{\xi}_{\vec{n}}) \right] \cdot$$

$$\cdot\, a^+_{\mu_1\vec{n}}\, a_{\mu_2\vec{n}}$$

i

$$H_{int}^{(II)} = \frac{e^2}{2mc^2} \sum_{\vec{n}} \hat{\vec{A}}^2_{\vec{n}} \qquad (I.2.8.)$$

Takodje je $\vec{p}_{\vec{n}} = \vec{p}(\vec{\xi}_{\vec{n}})$.

Pošto su svi molekuli kristala identični, matrični elementi operatora $\vec{p}(\vec{\xi}_{\vec{n}})$ ne zavise od indeksa čvora, tj.

$$\int d^3\vec{\xi}_{\vec{n}} \phi^*_{\mu_1}(\vec{\xi}_{\vec{n}})\, \vec{p}(\vec{\xi}_{\vec{n}})\, \vec{p}_{\mu_2}(\vec{\xi}_{\vec{n}}) = \vec{p}_{\mu_1\mu_2}; \quad \frac{\partial \vec{p}_{\mu_1\mu_2}}{\partial \vec{n}} = 0 \qquad (I.2.9.)$$

Hamiltonijan $H_{int}^{(I)}$ može se izraziti pomoću eksitonskih operatora na sledeći način:

$$H_{int}^{(I)} = - \frac{e}{mc} \sum_{\vec{n}} \hat{\vec{A}}_{\vec{n}} (\vec{p}_{oo}\, a^+_{o\vec{n}}\, a_{o\vec{n}} + \vec{p}_{ff}\, a^+_{f\vec{n}}\, a_{f\vec{n}} +$$

$$+ \vec{p}_{fo}\, a^+_{f\vec{n}}\, a_{o\vec{n}} + \vec{p}_{of} a^+_{o\vec{n}}\, a_{f\vec{n}}) =$$

$$= - \frac{e}{mc} \sum_{\vec{n}} \hat{A}_{\vec{n}} \vec{p}_{oo} - \frac{e}{mc} \sum_{\vec{n}} \hat{A}_{\vec{n}} (\vec{p}_{ff} - \vec{p}_{oo}) P^{+}_{\vec{n}} P_{\vec{n}} -$$

$$- \frac{e}{mc} \sum_{\vec{n}} \hat{A}_{\vec{n}} (\vec{p}_{fo} P^{+}_{\vec{n}} + \vec{p}_{of} P_{\vec{n}})$$

Matrični elementi p_{++} u p_{oo} ravni su nuli. Ako Pauli-operatore približno zamenimo Bože-operatorima B_n' u B_n onda $H^{(I)}_{int}$ postaje

$$H^{(I)}_{int} = - \frac{e}{mc} \sum_{\vec{n}} \hat{A}_{\vec{n}} (\vec{p}_{fo} B^{+}_{n} + \vec{p}^{*}_{fo} B_{n})$$

i pošto je $\vec{p}^{*}_{fo} = - \vec{p}_{fo}$, što sledi iz činjenice da je

$$\vec{p}(\vec{\xi}_{\vec{n}}) = - i\hbar \nabla_{\vec{\xi}_{\vec{n}}},$$

$$H^{(I)}_{int} = - \frac{e}{mc} \sum_{\vec{n}} \hat{A}_{\vec{n}} \vec{p}_{fo} (B^{+}_{\vec{n}} - B_{\vec{n}}) \qquad (I.2.10.)$$

Ako izvršimo Furije-transformacije:

$$B_{\vec{n}} = \frac{1}{\sqrt{H}} \sum_{\vec{k}} B_{\vec{k}} e^{i\vec{k}\vec{n}} ; \qquad B^{+}_{\vec{n}} = \frac{1}{\sqrt{H}} \sum_{\vec{k}} B^{+}_{\vec{k}} e^{-i\vec{k}\vec{n}}$$

i zamenimo u (I.2.10.) i (I.2.8.) vrednost za $\hat{A}_{\vec{n}}$ koja je data formulom (I.2.3.),(za t = 0), dobijamo hamiltonijan interakcije eksitona i fotona u sledećem obliku:

$$H_{int} = H^{(I)}_{int} + H^{(II)}_{int} = \sum_{\vec{k}\sigma} \Big[Z_{\vec{k}\sigma} (B^{+}_{\vec{k}} \alpha_{\vec{k}\sigma} - \alpha^{+}_{\vec{k}\sigma} B_{\vec{k}} + B^{+}_{\vec{k}} \alpha^{+}_{-\vec{k}\sigma} - B_{\vec{k}} \alpha_{-\vec{k}\sigma}) + \Omega_{\vec{k}} (\alpha^{+}_{\vec{k}\sigma} \alpha_{\vec{k}\sigma} + \frac{1}{2} \alpha^{+}_{\vec{k}\sigma} \alpha^{+}_{-\vec{k}\sigma} + \frac{1}{2} \alpha_{-\vec{k}\sigma} \alpha_{\vec{k}\sigma}) \Big] \qquad (I.2.11.)$$

1

gde je

$$
\left.
\begin{aligned}
z_{\vec{k}\sigma} &= \frac{e}{mc}\sqrt{\frac{2\pi\hbar Nc}{Vk}}\,(\vec{e}_{\vec{k}\sigma}\,\vec{p}_{fo})\;; \qquad z^{*}_{\vec{k}\sigma} = -\,z_{\vec{k}\sigma} \\
\Omega_{\vec{k}} &= \frac{2\pi\,\hbar\, e^2 N}{VkMc}
\end{aligned}
\right\} \qquad (I.2.12.)
$$

i V - zapremina kristala.

Kompletan hamiltonijan sistema koji sadrži eksitone, fotone i njihovu interakciju ima oblik:

$$
\begin{aligned}
H &= H_e + H_F + H_{int} = \sum_{\vec{k}} \chi_{\vec{k}} B^{+}_{\vec{k}} B_{\vec{k}} + \sum_{\vec{k}\sigma} \hbar\,\omega_{\vec{k}\sigma}\,\alpha^{+}_{\vec{k}\sigma}\,\alpha_{\vec{k}\sigma} + \\
&+ \sum_{\vec{k}\sigma}\Big[\, z_{\vec{k}\sigma}\,(B^{+}_{\vec{k}}\,\alpha_{\vec{k}\sigma}\,\alpha^{+}_{\vec{k}\sigma}\,B_{\vec{k}} + B^{+}_{\vec{k}}\,\alpha^{+}_{-\vec{k}\sigma}\,\alpha_{-\vec{k}\sigma}\,B_{\vec{k}}) + \Omega_{\vec{k}}\,(\alpha^{+}_{\vec{k}\sigma}\alpha_{\vec{k}\sigma} + \\
&+ \frac{1}{2}\,\alpha^{+}_{\vec{k}\sigma}\alpha^{+}_{-\vec{k}\sigma} + \frac{1}{2}\,\alpha_{-\vec{k}\sigma}\alpha_{\vec{k}\sigma})\Big]
\end{aligned}
\qquad (I.2.13.)
$$

1

Hamiltonijan (I.2.13.) može se dijagonalizovati u - v transformacijom Bogoljubova i Tjablkova [2], koja se sastoji u prelasku od operatora β i α na nove operatore $\xi^{+}_{\rho\vec{k}}$ u $\xi_{\rho\vec{k}}$.

$$
B_{\vec{k}} = \sum_{\rho}\Big[u_{e\rho}(\vec{k})\;\xi_{\rho\vec{k}} + v^{*}_{e\rho}(-\vec{k})\;\xi^{+}_{\rho,-\vec{k}}\Big] \qquad (I.2.14.)
$$

$$
\alpha_{\sigma\vec{k}} = \sum_{\rho}\Big[u_{\sigma\rho}(\vec{k})\;\xi_{\rho\vec{k}} + v^{*}_{\sigma\rho}(-\vec{k})\,\xi^{+}_{\rho,-\vec{k}}\Big] \qquad (I.2.15.)
$$

gde funkcije u i v zadovoljavaju uslov kanoničnosti [3]:

$$
|u_{e\rho}(\vec{k})|^2 - |v_{e\rho}(-\vec{k})|^2 + \sum_{\sigma=1}^{2}(|u_{\sigma\rho}(\vec{k})|^2 - |v_{\sigma\rho}(-\vec{k})|^2) = 1 \qquad (I.2.16.)
$$

Da bismo dijagonalizovali hamiltonijan (I.2.13.) napisaćemo ga u obliku:

$$H = \sum_{\vec{k}} \sum_{ss'=1}^{2} (M_{ss'} C_s^+ C_{s'} + \frac{1}{2} N_{ss'} C_s^+ C_{s'}^+ + \frac{1}{2} N_{ss'}^* C_s C_{s'}) \tag{I.2.17.}$$

gde je

$$C_1 \equiv B_{\vec{k}} \; ; \quad C_2 = \alpha_{\sigma\vec{k}} \; ; \quad M_{11} = \chi_{\vec{k}} \; ; \quad M_{22} = \hbar\, \omega_{\vec{k}\sigma} + \Omega_{\vec{k}} \; ;$$

$$M_{12} = Z_{\vec{k}\sigma} \; ; \quad M_{21} = Z_{\vec{k}\sigma}^* \; ; \quad N_{11} = 0 \; ; \quad N_{22} = \Omega_{\vec{k}}$$

$$N_{12} = Z_{\vec{k}\sigma} \; ; \quad N_{21} = Z_{\vec{k}\sigma} \tag{I.2.18.}$$

Prilikom dobijanja poslednja dva izraza, predpostavili smo, da eksitoni interaguju samo sa jednom fotonskom granom pa su zbog toga otpale sume po σ.

Koristeći Hajzenbergove jednačine kretanja

$$i\dot{C}_s = \left[C_s, \tilde{H}\right] \; ; \quad \tilde{H} = \sum_{s,s'=1}^{2} (M_{ss'} C_s^+ C_{s'} + \frac{1}{2} N_{ss'} C_s^+ C_{s'}^+ + \frac{1}{2} N_{ss'}^* C_s C_{s'})$$

dolazimo do relacije:

$$i\dot{C}_s = \sum_{s'=1}^{2} \left[M_{ss'} C_{s'} + N_{ss'} C_{s'}^+\right] \tag{I.2.19.}$$

Ako relacije (I.2.14.) i (I.2.15.) prepišemo u obliku

$$C_s(t) = \sum_{\rho=1}^{2} (u_{s\rho} \xi_\rho e^{-iEt} + v_{s\rho}^* \xi_\rho^+ e^{iEt}) \tag{I.2.20.}$$

Posle zamene (I.2.20.) u (I.2.19.) dobijamo sledeći sistem jednačina:

$$\left.\begin{aligned} E\, u_{s\rho} &= \sum_{s'=1}^{2} (M_{ss'}\, u_{s'\rho} + N_{ss'}\, v_{s'\rho}) \\ -E\, v_{s\rho} &= \sum_{s'=1}^{2} (M^{+}_{ss'}\, v_{s'\rho} + N^{+}_{ss'}\, u_{s'\rho}) \end{aligned}\right\} \qquad (I.2.21.)$$

Sistem jednačina (I.2.21.) je homogen po u i v pa ima netrivijalna rešenja samo ako mu je determinanta ravna nuli. Ovaj uslov ima oblik:

$$\begin{vmatrix} E - \chi_{\vec{k}} & -Z_{\vec{k}\sigma} & 0 & -Z_{\vec{k}\sigma} \\ Z_{\vec{k}\sigma} & E - \hbar\cdot\omega_{\vec{k}\sigma} - \Omega_{\vec{k}} & -Z_{\vec{k}\sigma} & -\Omega_{\vec{k}} \\ 0 & -Z_{\vec{k}\sigma} & E + \chi_{\vec{k}} & -Z_{\vec{k}\sigma} \\ -Z_{\vec{k}\sigma} & -\Omega_{\vec{k}} & Z_{\vec{k}\sigma} & E + \hbar\cdot\omega_{\vec{k}} + \Omega_{\vec{k}} \end{vmatrix} = 0$$

(I.2.22.)

Rešenja jednačine (I.2.22.) su:

$$E_{1,2} = \left\{ \frac{\chi^2_{\vec{k}} + \hbar^2\omega^2_{\vec{k}\sigma}}{2} + \hbar\cdot\omega_{\vec{k}\sigma}\,\Omega_{\vec{k}} \pm \frac{1}{2}\left[(\chi^2_{\vec{k}} - \hbar^2\omega^2_{\vec{k}\sigma}) + \right.\right.$$

$$\left.\left. + 16t\,\chi_{\vec{k}}\,\omega_{\vec{k}\sigma}|Z_{\vec{k}\sigma}|^2 + 4t\,\omega_{\vec{k}}\cdot\Omega_{\vec{k}}(\hbar^2\cdot\omega^2_{\vec{k}\sigma} - \chi^2_{\vec{k}} + \hbar\omega_{\vec{k}\sigma}\Omega_{\vec{k}}) \right]^{1/2} \right\}^{1/2}$$

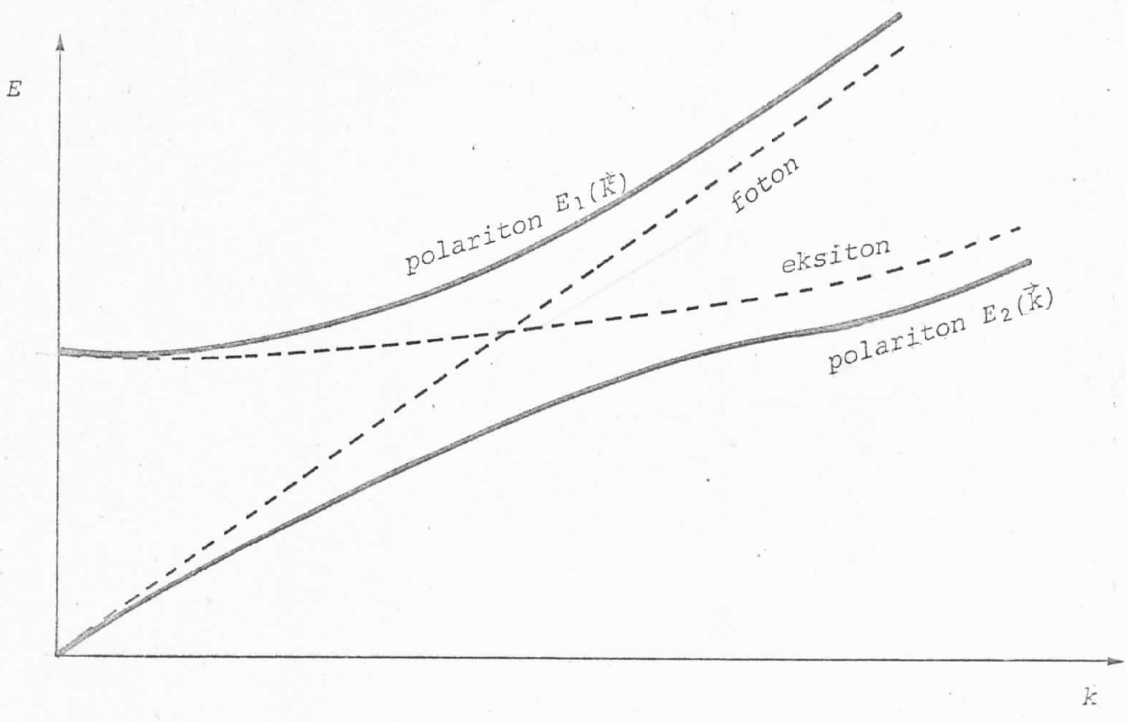
(I.2.23.)

Hamiltonijan (I.2.17.) u operatorima $\xi_{\rho\vec{k}}$ ima dijagonalan oblik

$$H = \sum_{k,\rho=1}^{2} E_{\rho}(\vec{k})\, \xi^{+}_{\rho\vec{k}}\, \xi_{\rho\vec{k}} \qquad (I.2.24.)$$

gde su vrednosti $E_1(\vec{k})$ i $E_2(\vec{k})$ date formulom (I.2.23.) i predstavljaju polaritonske energije.

Grafički se polaritonske energije mogu izraziti na sledeći način:



Kao što vidimo dobijaju se dve polaritonske grane, od kojih je grana $E_1(\vec{k})$ bliska eksitonima za male k, a fotonima za velike k, dok je druga grana $E_2(\vec{k})$ u oblasti malih talasnih vektora slična fononima, a u oblasti velikih talasnih vektora slična eksitonima.

3. FONONI I OPERATOR POMERAJA

Mehaničke oscilacije molekula kristala nastaju najčešće usled povišenja temperature, a mogu da nastupe usled mehaničkog impulsa koji izvede jedan od molekula iz ravnotežnog položaja. Pošto molekuli medju sobom interaguju promena stanja kretanja jednog molekula prenese se i na sve ostale molekule i kroz kristal se prostire oscilatorni talas čiji se kvanti energije nazivaju fononima. Teorija fonona bazira na jednačinama klasične mehanike, a kvantno-mehanički prilaz sastoji se u tome što pomak (pomeraj molekula) razlažemo po Boze-operatorima koji kreiraju, odnosno anihiliraju fonone.

Ako su interakcije izmedju molekula u čvorovima $\vec{n}$ i $\vec{m}$ opisane nekom funkcijom $\Phi(\vec{n} - \vec{m})$, onda je hamiltonijan kristala dat sa

$$H = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}} \Phi(\vec{n} - \vec{m}) \qquad (I.3.1.)$$

Hamiltonijan (I.3.1.) opisuje kristal kada se svi molekuli nalaze ravnotežnim položajima. Ako molekul u čvoru $\vec{n}$ izvedemo iz ravnotežnog položaja, njegov pomeraj opisuje se nekim vektorom $\vec{u}_{\vec{n}}$, tako da se činjenica da molekuli osciluju može izraziti na sledeći način :

$$\vec{n} \to \vec{n} + \vec{u}_{\vec{n}} \qquad \vec{m} \to \vec{m} + \vec{u}_{\vec{m}} \tag{I.3.2.}$$

Tada

$$\Phi(\vec{n} - \vec{m}) \to \Phi[(\vec{n}-\vec{m}) + (\vec{u}_{\vec{n}} - \vec{u}_{\vec{m}})] \tag{I.3.3.}$$

smatarajući da su pomaci mali u odnosu na molekularna rastojanja funkcije Φ možemo razviti u red oko tačke karakterisane vektorom (n-m), tj. oko ravnotežnog položaja. Ako se u razvoju zadržimo do članova drugog reda po pomerajima zaključno, onda možemo pisati:

$$\Phi(\vec{r}) = \Phi(\vec{r}) + \sum_{\alpha} \frac{\partial\Phi(\vec{r})}{\partial x^{\alpha}} \rho^{\alpha}_{\vec{n}\vec{m}} + \frac{1}{2} \sum_{\alpha\beta} \frac{\partial^2\Phi(\vec{r})}{\partial x^{\alpha}\partial x^{\beta}} \rho^{\alpha}_{\vec{n}\vec{m}} \rho^{\beta}_{\vec{n}\vec{m}}$$

gde je $\qquad \alpha,\beta = x,y,z$ (I.3.4.)

$$\vec{n} - \vec{m} = \vec{r} = x^1\vec{i} + x^2\vec{j} + x^3\vec{k} \tag{I.3.5.}$$

$$\rho^{\alpha}_{\vec{n}\vec{m}} = (\vec{u}^{\alpha}_{\vec{n}} - \vec{u}^{\alpha}_{\vec{m}}) = (\vec{u}_{\vec{n}} - \vec{u}_{\vec{m}})^{\alpha} \tag{I.3.6.}$$

Zbog stabilnosti sistema funkcije $\Phi(\vec{r})$ moraju imati minimum u ravnotežnom položaju, pa su zato

$$\frac{\partial\Phi(\vec{r})}{\partial x^{\alpha}} = 0 \; ; \qquad \alpha = x,y,z \tag{I.3.7.}$$

Za analizu fononskih stanja bitan je deo hamiltonijana (I.3.1.) koji se dobija sumiranjem po $\vec{n}$ i $\vec{m}$ trećeg člana u formuli (I.3.4.), tj.:

$$H_{pot} = \frac{1}{4} \sum_{\vec{n}\vec{m}\alpha\beta} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial x^\alpha \, \partial x^\beta} \rho^\alpha_{\vec{n}\vec{m}} \, \rho^\beta_{\vec{n}\vec{m}} =$$

$$= \frac{1}{4} \sum_{\vec{n}\vec{m}\alpha\beta} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial x^\alpha \, \partial x^\beta} (\vec{u}_{\vec{n}} - \vec{u}_{\vec{m}})^\alpha (\vec{u}_{\vec{n}} - \vec{u}_{\vec{m}})^\beta \qquad \text{(I.3.8.)}$$

Veličine $\partial\Phi/(\partial x^\alpha \, \partial x^\beta)$ predstavljaju Hukove konstante elastičnosti.

Sila koja deluje na $\vec{n}$ molekul dobija se kao

$$F^\alpha_{\vec{n}} = - \frac{\partial H_{pot}}{\partial \rho^\alpha_{\vec{n}\vec{m}}} = - \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}\beta} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial x^\alpha \partial x^\beta} \rho^\beta_{\vec{n}\vec{m}} =$$

$$= - \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}\beta} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial x^\alpha \, \partial x^\beta} (\vec{u}_{\vec{n}} - \vec{u}_{\vec{m}})^\beta \qquad \text{(I.3.9.)}$$

Pomeraj molekula razložimo po ravnim talasima:

$$u^\alpha_{\vec{n}} = \sum_{\vec{k}j} e^\alpha_{\vec{k}j} \sqrt{\frac{\hbar}{2NM\omega_{\vec{k}j}}} \left(b_{\vec{k}j} \, e^{-it\omega_{\vec{k}j}} + b^+_{-\vec{k}j} \, e^{it\omega_{\vec{k}j}}\right) e^{i\vec{k}\vec{n}} \; ; \qquad \text{(I.3.10.}$$

U formuli (I.3.10.) indeks j označava tri polarizacije fonona (jednu longitudinalnu i dve transverzalne), M je masa molekula, $b_{\vec{k}j}$ i $b^+_{\vec{k}j}$ anhiliraju i kreiraju fonone sa talasnim vektorom $\vec{k}$ i polarizacijom j, $\omega_{\vec{k}j} = v_j k$, gde su v_j brzine zvučnih talasa.

Zamenom (I.3.10.) u jednačinu

$$M \ddot{u}^\alpha_{\vec{n}} = - \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}\beta} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial x^\alpha \, \partial x^\beta} (\vec{u}_{\vec{n}} - \vec{u}_{\vec{m}})^\beta \qquad \text{(I.3.11.)}$$

koja predstavlja II Njutnov zakon, dobijamo sistem od tri homogene jednačine po $e^{\alpha}_{\vec{k}j}$ $(\alpha = x,y,z)$ i da bi ovakav sistem imao rešenja $e^{\alpha}_{\vec{k}j} \neq 0$ njegova determinanta mora biti ravna nuli. Izjednačavanje determinante sa nulom daje nam tri rešenja, za fononske frekvence $\omega_{\vec{k}j}$. Za ovako odredjene frekvencije $\omega_{\vec{k}j}$ komponenta pomeraja (I.3.10.) dijagonalizuje fononski hamiltonijan sistema koji se sastoji od kinetičke energije nastale usled pomeraja atoma i veličine H_{tot}, tj.

$$H_{tot} = \sum_{\vec{n}\alpha} \frac{M}{2}(\dot{u}^{\alpha}_{\vec{n}})^2 + \frac{1}{4} \sum_{\vec{n}\vec{m}\alpha\beta} \frac{\partial^2\Phi}{\partial x^{\alpha}\ \partial x^{\beta}} (\vec{u}_{\vec{n}} - \vec{u}_{\vec{m}})^{\alpha}(\vec{u}_{\vec{n}} - \vec{u}_{\vec{m}})^{\beta} \tag{I.3.12.}$$

postaje

$$H_{tot} = \frac{1}{2} \sum_{\vec{k}j} \hbar\,\omega_{\vec{k}j} + \sum_{\vec{k}j} \hbar\omega_{\vec{k}j}\, b^{+}_{\vec{k}j}\, b_{\vec{k}j} \tag{I.3.13.}$$

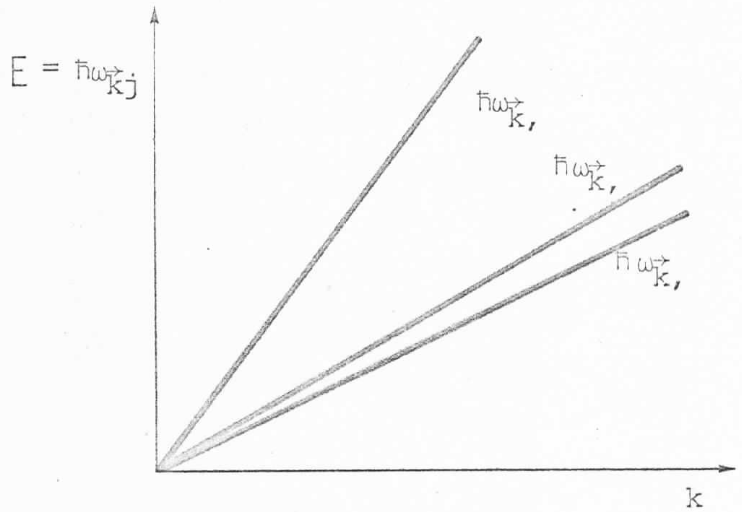
Operator pomeraja čija je komponenta data formulom (I.3.10.) ima oblik (za t = 0)

$$\hat{\vec{u}}_{\vec{n}} = \sum_{\vec{k}j} \vec{e}_{\vec{k}j} \sqrt{\frac{\hbar}{2MN\omega_{\vec{k}j}}}\,(b_{\vec{k}j} + b^{+}_{-\vec{k}j})\, e^{i\vec{k}\vec{n}} \tag{I.3.14.}$$

vektori polarizacije $\vec{e}_{\vec{k}j}$ su parne funkcije talasnog vektora $\vec{k}$ i zadovoljavaju uslov:

$$\vec{e}_{\vec{k}j}\, \vec{e}_{\vec{k}j'} = \delta_{jj'} \tag{I.3.15.}$$

Za slučaj kristala sa prostom rešetkom koju smo ovde posmatrali, tri fononske frekvence $\omega_{\vec{k}j}$ u oblasti malih $\vec{k}$ imaju linearan zakon disperzije i teže nuli kada $\vec{k} \to 0$. Ovakvi fononi nazivaju se akustični fononi. Fononski zakoni disperzije mogu se grafički predstaviti na sledeći način:



Koeficijenti pravaca pravih su brzine zvuka u kristalu i najveću brzinu ima longitudinalna komponenta sa frekvencijom $\omega_{\vec{k}_l}$.

4. OPERATOR EKSITON - FONON INTERAKCIJE

Eksitonski hamiltonijan (I.1.19.) za slučaj da su svi molekuli u ravnotežnom položaju možemo napisati u obliku:

$$H_e = \sum_{\vec{n}\vec{m}} X_{\vec{n}\vec{m}} B^{+}_{\vec{n}} B_{\vec{m}} \quad ; \quad X_{\vec{n}\vec{m}} = \Delta\delta_{\vec{n}\vec{m}} + W_{\vec{n}\vec{m}} \qquad (I.4.1.)$$

U ovoj formuli nije uzeta u obzir energija osnovnog stanja H_o.

Ako molekuli osciluju, onda

$$\vec{n} \to \vec{n} + \vec{u}_{\vec{n}} \quad ; \quad \vec{m} \to \vec{m} + \vec{u}_{\vec{m}} \qquad (I.4.2.)$$

i možemo pisati

$$X_{\vec{n}\vec{m}} = X_{\vec{n}-\vec{m}} = \frac{1}{N}\sum_{\vec{k}} X_{\vec{k}}\, e^{i\vec{k}(\vec{n}-\vec{m})} \to \frac{1}{N}\sum_{\vec{k}} X_{\vec{k}}\, e^{i\vec{k}(\vec{n}-\vec{m})+i\vec{k}(\vec{u}_{\vec{n}}-\vec{u}_{\vec{m}})} \simeq$$

$$\simeq \frac{1}{N}\sum_{\vec{k}} X_{\vec{k}}\, e^{i\vec{k}(\vec{n}-\vec{m})} + \frac{i}{N}\sum_{\vec{k}} \vec{k}(\vec{u}_{\vec{n}} - \vec{u}_{\vec{m}})\, X_{\vec{k}}\, e^{i\vec{k}(\vec{n}-\vec{m})}$$

(I.4.3.)

Poslednji stav u (I.4.3.) dobijen je na osnovu predpostavke da su pomeraji molekula mali i po ovim malim pomerajima eksponent je razložen u red.

Interakciju izmedju eksitona i fonona karakteriše poslednji član u formuli (I.4.3.), tj. možemo pisati

$$H_{ef} = \frac{i}{N} \sum_{\vec{n}\vec{m}\vec{k}} \vec{k}(\vec{u}_{\vec{n}} - \vec{u}_{\vec{m}}) \chi_{\vec{k}} B^{+}_{\vec{n}} B_{\vec{m}} \qquad (I.4.4.)$$

Ako izvršimo Furije-transformacije

$$B^{+}_{\vec{n}} = \frac{1}{\sqrt{H}} \sum_{\vec{k}} B^{+}_{\vec{k}} e^{-i\vec{k}\vec{n}} \; ; \quad B_{\vec{m}} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{k}} B_{\vec{k}} e^{i\vec{k}\vec{m}}$$

$$\hat{\vec{u}}_{\vec{n}} - \vec{u}_{\vec{m}} = \sum_{\vec{k}j} \sqrt{\frac{t}{2MN\omega_{\vec{k}j}}} \vec{e}_{\vec{k}j} (b_{\vec{k}j} + b^{+}_{-\vec{k}j})(e^{i\vec{k}\vec{n}} - e^{i\vec{k}\vec{m}}) \qquad (I.4.5.)$$

i zamenimo $\chi_{\vec{k}} = \Delta + W_{\vec{k}}$ [vidi (I.1.23.)], formula (I.4.4.) svodi se na

$$H_{ef} = - i \sum_{\vec{k}\vec{q}j} \sqrt{\frac{t}{2MN\omega_{\vec{q}j}}} \{\Delta(\vec{q} \cdot \vec{e}_{\vec{q}j}) + W_{\vec{k}-\vec{q}}(\vec{q}\, \vec{e}_{\vec{q}j}) - (W_{\vec{k}-\vec{q}} - W_{\vec{k}})$$

$$(\vec{k}\, \vec{e}_{\vec{q}j})\} \times B^{+}_{\vec{k}} B_{\vec{k}-\vec{q}} (b_{\vec{q}j} + b^{+}_{-\vec{q}j}) \qquad (I.4.6.)$$

Dobijeni izraz predstavlja hamiltonijan eksiton-fonon interakcije.

Pošto veličina Δ ima vrednost od oko 5 eV, a širina eksitonske zone $W_{\vec{k}}$ je 50-1000 puta manja od Δ. U izrazu za H_{ef} možemo zanemariti članove proporcionalne $W_{\vec{k}}$ i pisati približan hamiltonijan za eksiton-fonon interakcije

$$H_{ef} = - i \sum_{\vec{k}\vec{q}} \sqrt{\frac{t}{2MN\omega_{\vec{q}j}}} \Delta(\vec{q}\; \vec{e}_{\vec{q}j}) B^{+}_{\vec{k}} B_{\vec{k}-\vec{q}} (b_{\vec{q}j} + b^{+}_{-\vec{q}j}) \qquad (I.4.7.)$$

Pošto je $\vec{q}\,\vec{e}_{\vec{q}j} = |\vec{q}| = q$ samo za longitudinalnu fononsku granu, a za transverzalne fonone je ovaj proizvod ravan nuli, u formuli (I.4.7.) nema sumiranja po svim fononskim granama, a indeks j odnosi se na longitudinalnu fononsku granu. Uz ovu napomenu dalje ćemo formulu (I.4.7.) pisati kao

$$\boxed{H_{ef} = \sum_{\vec{k}\vec{q}} \tilde{Z}_{\vec{q}}\, B^{+}_{\vec{k}}\, B_{\vec{k}-\vec{q}}\,(b_{\vec{q}} + b^{+}_{-\vec{q}})}$$

$$\tilde{Z}_{\vec{q}} = -\, i\,\Delta\,(\vec{q}\,\vec{e}_{\vec{q}})\sqrt{\frac{t}{2MNv_{\vec{q}}}} \qquad (I.4.8.)$$

5. METASTABILNA HIBRIDIZACIJA EKSITONA I FONONA

Na osnovu rezultata prvog, trećeg i četvrtog para-grafa hamiltonijan sistema eksitona i fonona možemo napisati u obliku:

$$H = \sum_{\vec{k}} \left[E_o + \frac{1}{2}\,\Phi(0000) + \frac{1}{2}\,Y_{\vec{k}} \right] + \sum_{\vec{k}} X_{\vec{k}}\, B^{+}_{\vec{k}}\, B_{\vec{k}} + \sum_{\vec{k}} Y_{\vec{k}}\, b^{+}_{\vec{k}}\, b_{\vec{k}} +$$

$$+ \sum_{\vec{k}\vec{q}} \tilde{Z}_{\vec{q}}\, B^{+}_{\vec{k}}\, B_{\vec{k}-\vec{q}}\, (b_{\vec{q}} + b^{+}_{-\vec{q}}) \qquad (I.5.1.)$$

gde je

$$X_{\vec{k}} = \Delta + W_{\vec{k}}; \quad Y_{\vec{k}} = \hbar\,\omega_{\vec{k}} = \hbar v k\,;$$

$$\tilde{Z}_{\vec{q}} = -\,i\,\Delta\,(\vec{q}\cdot\vec{\ell}_{\vec{q}j})\sqrt{\frac{\hbar}{2MN\cdot vq}} \qquad (I.5.2.)$$

kao što se vidi iz datih formula, uzeta je samo longitudinalna komponenta fonona jer eksitoni sa ovom fononskom komponentom najjače interaguju. Veličina v predstavlja brzinu longitudinal-nih zvučnih talasa.

Interakcija izmedju eksitona i fonona u formuli (I.5.1.) ne može da dovede do hibridizacije eksitona i fonona (slično onome kako se hibridiziraju eksitoni i fotoni u polaritone), jer sadrži proizvode tri operatora od kojih su dva eksitonski operatori, a jedan fononski.

Moguće je medjutim, da se do uspostavljanja stanja termodinamičke ravnoteže izmedju ostalih procesa desi i proces hibridizacije eksitona i fonona i mi ćemo ovde pokušati da ovakvu pojavu analiziramo. Koristeći Vejlov identitet

$$H_{eq} = e^{-S} H e^{S} = H + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{n!} \underbrace{\left[S,\left[S,\left[S,\ldots\left[S,H\right]\right]\right]\right]}_{n\ -\ puta} \tag{I.5.3.}$$

mi od hamiltonijana (I.5.1.) možemo preći, pogodnim izborom antihermitskog operatora S, na ekvivalentni hamiltonijan koji u sebi sadrži delove koji su drugog reda.

Po eksitonskim i fononskim operatorima, tj. forme tipa: $B^+b + b^+B + B^+b^+ + Bb$, a kao što je pozanato ovakve forme prouzrokuju hibridizaciju pobudjenja u sistemu.

Identitet (I.5.3.) koristićemo u aproksimaciji

$$H_{eq} = H - \left[S,H\right] + \frac{1}{2}\left[S,\left[S,H\right]\right] \tag{I.5.4.}$$

a operator S odabrati u sledećem obliku:

$$S = S_1 - S_1^+ \; ; \quad S_1 = \sum_{\vec{\mu}} \alpha_{\vec{\mu}} B_{\vec{\mu}}^+ + \sum_{\vec{\mu}} \beta_{\vec{\mu}} B_{\vec{\mu}}^+ b_{-\vec{\mu}} ; \alpha_{\vec{\mu}} = \alpha_0 \delta_{\vec{\mu},0} \tag{I.5.5.}$$

gde ćemo funkcije α i β odabrati tako da dobijemo hamiltonijan u kome će se pojaviti kvadratne forme po mešanim eksitonskim i fononskim operatorima.

Zamenom (I.5.5.) u (I.5.4.) dobijamo ekvivalentni hamiltonijan u obliku:

$$
\begin{aligned}
H_{eq} = & \sum_{\vec{k}} \Big[E_o + \frac{1}{2}\,\Phi(0000) + \frac{1}{2}\, Y_{\vec{k}} + \beta_{\vec{k}} \alpha_o^* \tilde{Z}^*_{-\vec{k}} + \\
& + \beta^*_{\vec{k}}\, \alpha_o \tilde{Z}_{-\vec{k}} + 2|\beta_{\vec{k}}|^2 (X_{\vec{k}} + Y_{\vec{k}}) \Big] + (\alpha_o X_o + \sum_{\vec{k}} \beta_{\vec{k}} \tilde{Z}_{\vec{k}}) B_o \cdot \\
& \cdot (\alpha_o^* X_o + \sum_{\vec{k}} \beta^*_{\vec{k}} \tilde{Z}_{\vec{k}}) B_o^+ + \sum_{\vec{k}} \Big\{ X_{\vec{k}} + \frac{1}{2} \Big[\alpha_o^* \tilde{Z}^*_{-\vec{k}} + \\
& + \alpha_o \tilde{Z}_{-\vec{k}} + (\beta^*_{\vec{k}} + \beta_{\vec{k}})(X_{\vec{k}} + Y_{\vec{k}}) \Big] \Big\} \cdot B^+_{\vec{k}} B_{\vec{k}} + \sum_{\vec{k}} \Big\{ Y_k + \\
& + \frac{1}{2} \Big[\alpha_o^* \tilde{Z}^*_{\vec{k}} + \alpha_o \tilde{Z}_{\vec{k}} + (\beta^*_{-\vec{k}} + \beta_{\vec{k}})(X_{\vec{k}} + Y_{\vec{k}}) \Big] \Big\}\, b^+_{\vec{k}} b_{\vec{k}} - \\
& - \sum_{\vec{k}} (\alpha_o \tilde{Z}_{-\vec{k}} B^+_{\vec{k}} b_{\vec{k}} + \alpha_o \tilde{Z}_{-\vec{k}} b^+_k B_k) - \sum_{\vec{k}} \Big\{ \Big[\alpha_o \tilde{Z}_{-\vec{k}} + \beta_{\vec{k}} \cdot \\
& \cdot (X_{\vec{k}} + Y_{\vec{k}}) \Big] B_{\vec{k}} b_{-\vec{k}} + \Big[\alpha_o^* \tilde{Z}^*_{-\vec{k}} + \beta_{\vec{k}} (X_{\vec{k}} + Y_{\vec{k}}) \Big] B^+_{\vec{k}} b^+_{-\vec{k}} \Big\}
\end{aligned}
\qquad (I.5.6.)
$$

Funkcije α i β odredićemo tako da iz poslednjeg izraza otpadne član linearan po operatorima B_o i B_o^+

$$
\alpha_o = - \frac{1}{X_o} \sum_{\vec{k}} \beta_{\vec{k}} Z_{\vec{k}} \qquad (I.5.7.)
$$

i

$$
|\beta_{\vec{k}}|^2 = - \frac{1}{4} \frac{\Phi(0000)}{X_{\vec{k}} + Y_{\vec{k}}} \qquad (I.5.8.)
$$

Drugi uslov ima smisla samo ako je $\Phi(0000) = -|\Phi(0000)| \equiv -\Phi$ $(\Phi > 0)$, tj. ako eksitoni imaju pozitivnu efektivnu masu. Pošto je E_0 uvek manje od nule imao bi smisla i uslov

$$|\beta_{\vec{k}}|^2 = \frac{1}{2}\,\frac{|E_0|}{X_{\vec{k}} + Y_{\vec{k}}}$$

ali se za ovaj uslov nemožemo odlučiti , jer je tada $\beta_{\vec{k}} \simeq 1$ i formula (I.5.4.) ne bi bila ispravna, tj. Vejlov identitet bi sporo konvergirao. Pri tome, do hibridizacije može doći samo ako eksitoni imaju pozitivnu efektivnu masu.

Posle izvesnih uprošćavanja možemo uzeti:

$$\beta_{\vec{k}} = \frac{1}{2}\sqrt{\frac{\Phi}{\Delta}} \;;\; \alpha_0 = \frac{i}{2}\sqrt{\frac{N\hbar\omega_D\Phi}{2M\,v^2\Delta}} \qquad \text{(I.5.9.)}$$

i ekvivalentni hamiltonijan postaje:

$$H_{eq} = H_0^{(eq)} + \sum_{\vec{k}} \sum_{s,s'=1}^{2} \Big[M_{ss'}\, \beta_s^+ \beta_{s'} + N_{ss'} \cdot$$

$$\cdot\, (\beta_s^+ \beta_{s'}^+ + \beta_{s'} \beta_s)\Big] \qquad \text{(I.5.10.)}$$

gde je

$$H_0^{(eq)} = \sum_{\vec{k}} \Big(E_0 + \frac{1}{2} Y_k - \frac{\hbar\omega_D \Phi}{4 M v^2} \Big) \qquad \text{(I.5.11.)}$$

$$\left.\begin{aligned}
&M_{11} = X_{\vec{k}} + \tfrac{1}{2}\sqrt{\Phi\Delta}; \qquad M_{22} = Y_{\vec{k}} + \tfrac{1}{2}\sqrt{\Phi\Delta}\\
&M_{12} = M_{21} = \frac{\hbar\omega_D}{4 M v^2}\sqrt{\Phi\Delta}\\
&N_{11} = N_{22} = 0 \;; \qquad N_{12} = N_{21} = -\tfrac{1}{2}\sqrt{\Phi\Delta}\\
&\beta_1 \equiv B_{\vec{k}} \;; \qquad \beta_2 \equiv b_{\vec{k}}
\end{aligned}\right| \qquad \text{(I.5.12.)}$$

i $\omega_D = \hbar k_D$ predstavlja Debajevu frekvencu.

Pošto je $(\hbar\omega_0 / 4Mv^2) \ll 1$, iz formule (I.5.11.) sledi da je

$$\left|H_0^{(eq)}\right| < \left|\sum_{\vec{k}}\left[E_0 + \frac{1}{2}\,\Phi(0000) + \frac{1}{2}\,Y_{\vec{k}}\right]\right|$$

pa je ukazana procedura dovela do povišenja energije osnovnog stanja sistema.. Ovo znači da eksitacije koje opisuje hamiltonijan (I.5.10.) nisu termodinamički stabilne jer sistem teži da dospe u stanje niže energije koje odgovara hamiltonijanu (I.5.1.). Otuda proces koji analiziramo nazivamo metastabilnom hibridizacijom eksitona i fonona.

Dijagonalizaciju drugog člana u formuli (I.5.10.) izvršićemo kanoničkom transformacijom na nove boze-operatore γ_λ i γ_λ^+, tj.

$$\beta_s = \sum_{\lambda=1}^{2}(\tilde{u}_{s\lambda}\gamma_\lambda + \tilde{v}_{s\lambda}\gamma_\lambda^+)\;;$$
$$\beta_s^+ = \sum_{\lambda=1}^{2}(\tilde{u}_{s\lambda}\gamma_\lambda^+ + \tilde{v}_{s\lambda}\gamma_\lambda) \qquad (I.5.13.)$$

gde realne funkcije $\tilde{u}_{s\lambda}$ i $\tilde{v}_{s\lambda}$ zadovoljavaju uslov:

$$\sum_{\lambda=1}^{2}(\tilde{u}_{s\lambda}\,\tilde{u}_{s'\lambda} - \tilde{v}_{s\lambda}\,\tilde{v}_{s'\lambda}) = \delta_{ss'} \qquad (I.5.14.)$$

Koristeći Hajzenbergove jednačine kretanja

$$i\,\dot{\beta}_s = \left[\beta_s,\bar{H}\right];\quad \bar{H} = \sum_{ss'=1}^{2}\left[M_{ss'}\beta_s^+\beta_{s'} + \frac{1}{2}N_{ss'}(\beta_s^+\beta_{s'}^+ + \beta_{s'}\beta_s)\right]$$

i činjenicu da je:

$$\beta_s(t) = \sum_{\lambda=1}^{2} (\tilde{u}_{s\lambda}\gamma_\lambda e^{-iEt} + \tilde{v}_{s\lambda}\gamma_\lambda^{+} e^{iEt})$$

za odredjivanje funkcija $\tilde{u}_{s\lambda}$ i $\tilde{v}_{s\lambda}$ dobijamo sistem jednačina

$$\left.\begin{aligned} E\,\tilde{u}_{s\lambda} &= \sum_{s'=1}^{2} (M_{ss'}\,\tilde{u}_{s'\lambda} + N_{ss'}\,\tilde{v}_{s'\lambda}) \\ -E\,\tilde{v}_{s\lambda} &= \sum_{s'=1}^{2} (M_{ss'}\,\tilde{v}_{s'\lambda} + N_{ss'}\,\tilde{u}_{s'\lambda}) \end{aligned}\right\} \qquad (I.5.15.)$$

Sistem (I.5.15.) je homogen $\tilde{u}$ u $\tilde{v}$, pa da bi imao netrivijalna rešenja njegova determinanta mora biti ravna nuli, tj.

$$\begin{vmatrix} E - M_{11} & -M_{12} & 0 & -N_{12} \\ -M_{12} & E - M_{22} & -N_{12} & 0 \\ 0 & N_{12} & E + M_{11} & M_{12} \\ N_{12} & 0 & M_{12} & E + M_{22} \end{vmatrix} = 0 \qquad (I.5.16.)$$

Uslov (I.5.16.) daje nam energije elementarnih eksitacija koje nastaju kao rezultat metastabilne hibridizacije eksitona i fonona.

$$\tilde{E}^2_{1\,2} = \frac{M_{11}^2 + M_{22}^2}{2} + (M_{12}^2 - N_{12}^2) \pm$$

$$\pm \frac{1}{2}\sqrt{(M_{11}^2 - M_{22}^2) + 4(M_{11} + M_{22})^2 (M_{12}^2 - N_{12}^2)} \qquad (I.5.17.)$$

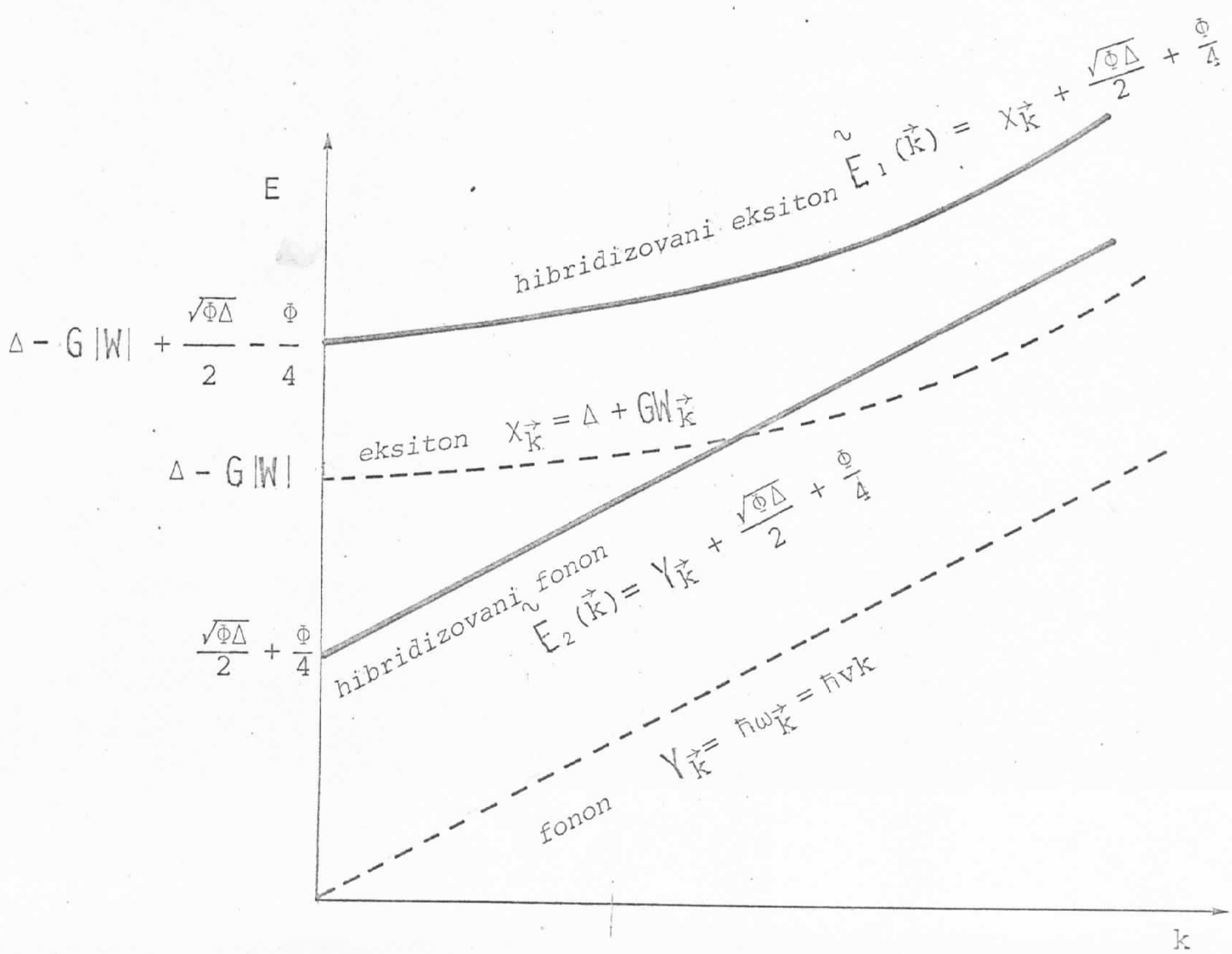
Ako u formuli (I.5.17.) izvršimo zamene veličina M i N iz formule (I.5.12.) i razvijemo korene u red, dobijamo sledeće aproksimativne izraze za energije hibridnih pobudjenja:

$$\tilde{E}_1(\vec{k}) = \Delta + W_{\vec{k}} + \frac{1}{2}\sqrt{\Phi\Delta} - \frac{1}{4}\Phi \qquad \text{(I.5.18.)}$$

$$\tilde{E}_2(\vec{k}) = \hbar\omega_{\vec{k}} + \frac{1}{2}\sqrt{\Phi\Delta} + \frac{1}{4}\Phi \qquad \text{(I.5.19.)}$$

Kao što vidimo, bitni efekti hibridizacije sastoje se u tome, da akustični fononi sa zakonom disperzije $Y_{\vec{k}} = \omega_{\vec{k}} = \hbar v \vec{k}$ dobijaju gep čija je veličina $\frac{1}{2}\sqrt{\Phi\Delta} + \frac{1}{4}\Phi$, pa počinju da se ponašaju kao optički fononi.

Grafički se zakoni disperzije (I.5.18.) i (I.5.19.) mogu predstaviti na sledeći način:



Hibridizacija eksitona i fonona, kao i hibridizacija eksitona i fotona daje nam mogućnost da povežemo optičke i oscilatorne fenomenološke karakteristike kristala i da ispitamo neke posledice njihovog uzajamnog dejstva. Ovo će biti učinjeno u sledećoj glavi.

GLAVA II

1. OPŠTA TEORIJA LINEARNE REAKCIJE

Razmotrićemo statistički ansambl čiji je hamiltonijan dat na sledeći način:

$$H(t) = \begin{cases} H_o & \text{za } t \leq t_o; \ \frac{\partial H_o}{\partial t} = 0 \\ H_o + H_{int}(t) & \text{za } t > t_o \end{cases} \qquad \text{(II.1.1.)}$$

Šleringerova jednačina koja reguliše evoluciju vektora stanja $|stkx>$ u vremenu može se napisati za dati slučaj na dva načina:

$$t \leq t_o : \quad i\hbar \frac{\partial}{\partial t}|stkx> = H_o|stkx> \qquad \text{(II.1.2.)}$$

$$t > t_o : \quad i\hbar \frac{\partial}{\partial t}|stkx> = \left[H_o + H_{int}(t)\right]|stkx> \qquad \text{(II.1.3.)}$$

Pošto u jednačini (II.1.2.) H_o ne zavisi eksplicitno od vremena promenljive x i t se mogu razdvojiti, tako da rešenje ove jednačine možemo pisati u obliku

$$|stkx> = e^{\frac{H_o t}{i\hbar}}|Hkx> \qquad \text{(II.1.4.)}$$

gde je $|Hkx>$ Hajzenbergov vektor stanja za skup kvantnih brojeva k.

Rešenje (II.1.4.) inspiriše nas da rešenje jednačine (II.1.3.) potražimo u obliku

$$|stkx> \; = \; e^{\frac{H_o t}{it}} \; |Jtkx> \qquad (II.1.5.)$$

gde je $|Jtkx>$ vektor stanja u reprezentaciji interakcije. Zamenom (II.1.5.) u (II.1.3.) dobijamo sledeću jednačinu za odredjivanje vektora stanja $|Jtkx>$:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t}|Jtkx> \; = \; \hat{W}(t)\,|Jtkx> \qquad (II.1.6.)$$

gde je

$$\hat{W}(t) \; = \; e^{-\frac{H_o t}{it}} \; H_{int}(t) \; e^{\frac{\hat{H}_o t}{it}} \qquad (II.1.6.)$$

Jednačinu (II.1.6.) je lakše rešavati kao integralnu jednačinu i posle integracije po vremenu u granicama od t_o do nekog trenutka t koje je veće od t_o, iz (II.1.6.) dobijamo:

$$|Jtkx> \; = |Jt_o kx> + \frac{1}{i\hbar}\int_{t_o}^{t} dt' \; \hat{W}(t') \; |Jt'kx> \qquad (II.1.7.)$$

Potražićemo,pre svega, vrednosti vektora $|Jt_o kx>$. U trenutku $t = t_o$ je $H(t) = H_o$ i na osnovu (II.1.4.) možemo pisati

$$|st_o kx> = e^{\frac{H_o t_o}{it}} \; |Hkx> \qquad (II.1.8.)$$

i na osnovu (II.1.5.)

$$|st_o kx\rangle = e^{\frac{H_o t_o}{it}} |Jt_o kx\rangle \qquad (II.1.9.)$$

tako da zamenom (II.1.9.) u (II.1.8.) nalazimo

$$|Jt_o kx\rangle = |Hkx\rangle \qquad (II.1.10.)$$

što znači da je vektor stanja u reprezentaciji interakcije u momentu uključenja interakcije jednak Hajzenbergovom vektoru stanja.

Jednačinu (II.1.7.) rešavaćemo metodom iteracije uzimajući za rešenje nulte aproksimacije $|Jtkx\rangle_{(0)} = |Jt_o kx\rangle \equiv |Hkx\rangle$.

Rezultat iteriranja je sledeći:

$$|Jtkx\rangle = \{1 + \frac{1}{it}\int_{t_o}^{t} dt_1 \hat{W}(t_1) + \frac{1}{(it)^2}\int_{t_o}^{t} dt_1 \int_{t_o}^{t_1} dt_2 \hat{W}(t_1)\,\hat{W}(t_2) + \ldots + \frac{1}{(it)^n}\int_{t_o}^{t} dt_1 \int_{t_o}^{t} dt_2 \cdots \int_{t_o}^{t_{n-1}} dt_n\, \hat{W}(t_1)\,\hat{W}(t_2)\ldots\hat{W}(t_n) + \ldots \ldots\}\, |Hkx\rangle \qquad (II.1.11.)$$

$$t > t_1 > t_2 \ldots > t_n > t_o$$

Ako uvedemo Dajsonov hronološki operator $\hat{T}$ sa osobinom

$$\hat{T}\, A(t_1)B(t_2) = \begin{cases} A(t_1)B(t_2) & \text{za } t_1 > t_2 \\ \\ B(t_2)A(t_1) & \text{za } t_1 < t_2 \end{cases} \qquad (II.1.12.)$$

$$\hat{T}^n = \hat{T}$$

onda se izraz u velikoj zagradi formule (II.1.11.) može napisati u kompaktnijoj formi, tj.

$$\{1 + \frac{1}{it}\int_{t_o}^{t} dt_1 \hat{W}(t_1) + \frac{1}{(it)^2}\int_{t_o}^{t} dt_1 \int_{t_o}^{t_1} dt_2 \hat{W}(t_1)\,\hat{W}(t_2) + \dots +$$

$$+ \frac{1}{(it)^n}\int_{t_o}^{t} dt_1 \int_{t_o}^{t_1} dt_2 \dots \int_{t_o}^{t_{n-1}} dt_n\, \hat{W}(t_1)\,\hat{W}(t_2)\,\dots\,\hat{W}(t_n) + \dots\} =$$

$$= \hat{T}\{1 + \frac{1}{it}\int_{t_o}^{t} dt\, \hat{W}(t_1) + \frac{1}{(it)^2}\int_{t_o}^{t} dt_1 \int_{t_o}^{t_1} dt_2 \hat{W}(t_1)\,\hat{W}(t_2) + \dots$$

$$+ \dots \frac{1}{(it)^n}\int_{t_o}^{t} dt_1 \int_{t_o}^{t} dt_2 \dots \int^{t_{n-1}} dt_n\, \hat{W}(t_1)\,\hat{W}(t_2)\,\dots \hat{W}(t_n) +$$

$$+ \dots\} = \hat{T}\, e^{\frac{1}{it}\int_{t_o}^{t} dt_1 \hat{W}(t_1)}$$

Veličina:

$$\hat{S}(t,t_0) = \hat{T}\, e^{\frac{1}{it}\int_{t_o}^{t} dt_1 \hat{W}(t_1)} ;$$

$$\hat{S}^{-1}(t,t_0) = \hat{S}^{+}(t,t_0) \qquad \text{(II.1.13.)}$$

predstavlja unitarni operator koji se naziva S matrica. Na osnovu (II.1.13.) i (II.1.11.) možemo pisati

$$|Jtkx\rangle = \hat{S}(t,t_0)\,|Hkx\rangle \; ; \qquad |Hkx\rangle = \hat{S}^{-1}(t,t_0)\,|Jtkx\rangle \qquad \text{(II.1.13.)}$$

Pošto je, na osnovu (II.1.5.),

$$|Jtkx\rangle = e^{-\frac{H_0 t}{it}}\,|stkx\rangle \,,$$

konačno dobijamo

$$|stkx> = e^{\frac{H_o t}{it}} \hat{S}(t,t_o) \cdot |Hkx> ;$$

$$<xkts| = <xkH|\hat{S}^{-1}(t,t_o)\, e^{-\frac{H_o t}{it}} \qquad \text{(II.1.14.)}$$

Relacija (II.1.14.) daje nam vezu izmedju Šredingerovog i Hajzenbergovog vektora stanja za slučaj kada hamiltonijan sistema ima oblik (II.1.1.).

Vremenski zavisni statistički operator ansambla izražava se pomoću Šredingerovog vektora stanja na sledeći način:

$$\hat{\rho}(t) = \sum_k W_k \int dx\, |stkx><xkts| \qquad \text{(II.1.15.)}$$

Ravnotežni statistički operator, koji ne zavisi od vremena, izražava se preko Hajzenbergovih vektora stanja

$$\hat{\rho}(0) = \sum_k W_k \int dx\, |Hkx> <xkH| \qquad \text{(II.1.16.)}$$

Brojevi W_k predstavljaju verovatnoće da se ansambl nadje u kvantnom stanju k. Za $\hat{\rho}(0)$ uzima se vrednost velikog kanoničkog ansambla

$$\hat{\rho}(0) = e^{\frac{\Phi + \mu\hat{N} - \hat{H}}{\theta}} \qquad \text{(II.1.17.)}$$

gde je Φ - termodinamički potencijal sistema, μ - hemijski potencijal i θ temperatura.

Zamenom (II.1.14.) u (II.1.15.) nalazimo vezu izmedju neravnotežnog statističkog operatora $\hat{\rho}(t)$ i ravnotežnog statističkog operatora $\hat{\rho}(0)$

$$\hat{\rho}(t) = \sum_k W_k \int dx\,|stkx\rangle\,\langle xkts| = \sum_k W_k \int dx\, e^{\frac{H_o t}{it}} \cdot$$

$$\cdot\, \hat{S}(t,t_o)\,|Hkx\rangle\,\langle xkH|\,\hat{S}^{-1}(t,t_o)\, e^{-\frac{H_o t}{it}} =$$

$$= e^{\frac{\hat{H}_o t}{it}}\,\hat{S}(t,t_o)\{\sum_k W_k \int dx\,|Hkx\rangle\,\langle xkH|\}\,\hat{S}^{-1}(t,t_o)\,\cdot$$

$$\cdot\, e^{-\frac{\hat{H}_o t}{it}}$$

tj. konačno:

$$\hat{\rho}(t) = e^{\frac{\hat{H}_o t}{i\hbar}}\,\hat{S}(t,t_o)\,\hat{\rho}(0)\,\hat{S}^{-1}(t,t_o)\,e^{-\frac{\hat{H}_o t}{it}} \qquad \text{(II.1.18.)}$$

Pomoću operatora $\hat{\rho}(t)$ može se izračunati vrednost dinamičke varijable $\hat{A}(t)$ po neravnotežnom ansamblu:

$$\langle\hat{A}(t)\rangle = S_p\,\hat{A}(t)\hat{\rho}(t) = S_p\,\hat{A}(t)\,e^{\frac{H_o t}{it}}\,\hat{S}(t,t_o)\hat{\rho}(0)\,\hat{S}^{-1}(t,t_o)\,\cdot$$

$$\cdot\, e^{-\frac{H_o t}{it}} = S_p\, e^{-\frac{H_o t}{it}}\,\hat{A}(t)e^{\frac{H_o t}{it}}\,\hat{S}(t,t_o)\hat{\rho}(0)\hat{S}^{-1}(t,t_o) =$$

$$= S_p\,\hat{S}^{-1}(t,t_o)\,e^{-\frac{H_o t}{it}}\,\hat{A}(t)\,e^{\frac{H_o t}{it}}\,\hat{S}(t,t_o)\,\hat{\rho}(0)$$

tj.:

$$\left.\begin{aligned} &\langle\hat{A}(t)\rangle = S_p\,\hat{S}^{-1}(t,t_o)\,\hat{\mathcal{A}}(t)\,\hat{S}(t,t_o)\,\hat{\rho}(0) \\ &\hat{\mathcal{A}}(t) = e^{-\frac{H_o t}{it}}\,\hat{A}(t)\,e^{\frac{H_o t}{i\hbar}} \end{aligned}\right\} \text{(II.1.19.)}$$

Kao što se vidi, da bi se pronašla srednja vrednost dinamičke varijable po neravnotežnom ansamblu treba znati S matricu sistema i ravnotežni statistički operator $\hat{\rho}(0)$ koji je dat formulom (II.1.17.)

U praksi dinamička varijabla $\hat{F}(t)$ najčešće ima oblik

$$\hat{F}(t) = \int dx\, \hat{A}(x,t) \qquad \text{(II.1.20.)}$$

odakle sledi:

$$e^{-\frac{H_o t}{it}} \hat{F}(t)\, e^{\frac{\hat{H}_o t}{it}} = \int dx\, e^{-\frac{H_o t}{it}} \hat{A}(x,t)\, e^{\frac{H_o t}{it}} = \int dx\, \hat{\mathcal{A}}(x,t),$$

tj.

$$\hat{\mathcal{F}}(t) = \int dx \hat{\mathcal{A}}(x,t)\,; \quad \hat{\mathcal{F}}(t) = e^{-\frac{H_o t}{it}} \hat{F}(t)\, e^{\frac{H_o t}{it}}\,;$$

$$\hat{\mathcal{A}}(x,t) = e^{-\frac{H_o t}{it}} \hat{A}(x,t)\, e^{\frac{H_o t}{it}} \qquad \text{(II.1.21.)}$$

Vremenski zavisna interakcija ima oblik:

$$H_{int}(t') = \int dx' \hat{B}(x',t')\, \hat{\varepsilon}(x',t') \qquad \text{(II.1.22.)}$$

gde funkcije (x',t') nemaju operatorsku strukturu. Na osnovu (II.1.22.) i (II.1.16.) možemo pisati:

$$\hat{W}(t') = \int dx'\, \hat{\mathcal{B}}(x',t')\, \varepsilon(x',t')\,;$$

$$\hat{\mathcal{B}}(x',t') = e^{-\frac{H_o t'}{it}} \hat{B}(x',t')\, e^{\frac{H_o t'}{it}} \qquad \text{(II.1.23.)}$$

Obično se srednja vrednost dinamičke varijable F računa u aproksimaciji linearnoj po funkcijama ε i tada njena ravnotežna srednja vrednost dobija popravku koja se naziva linearnom reakcijom sistema na perturbaciju (II.1.22.).

Da bismo izračunali popravlejnu srednju vrednost dinamičke varijable F moramo razviti S matricu u red

$$\hat{S}^{\pm 1}(t,t_o) \simeq 1 \pm \frac{\hat{T}}{it}\int_{t_o}^{t} dt' \hat{W}(t') = 1 \pm \frac{\hat{T}}{it}\int_{t_o}^{t} dt' \int dx' \hat{B}(x't')\varepsilon(x't') \tag{II.1.24.}$$

Zamenom (II.1.21.) u (II.1.24.) u opštoj formuli (II.1.19.) dobijamo:

$$<\hat{F}(t)> = \int dx\, S_p\, \hat{A}(xt)\hat{\rho}(0) +$$

$$+ \frac{1}{i\hbar}\int dx\, dx' \int_{t_o}^{t} dt' \varepsilon(x't') S_p \hat{T}\left|\hat{A}(xt)\hat{B}(x't') - \hat{B}(x't')\hat{A}(xt)\right|\hat{\rho}(0) \tag{II.1.25.}$$

Pošto ceo dobijeni rezultat ima smisla samo ako je $t > t'$, možemo pisati:

$$\hat{T}\left[\hat{A}(xt)\hat{B}(x't') - \hat{B}(x't')\hat{A}(xt)\right] = \theta(t-t')\left[\hat{A}(xt)\hat{B}(x't') - \right.$$

$$\left. - \hat{B}(x't')\ \hat{A}(xt)\right]$$

$$\theta(t - t') = \begin{cases} 1 & t > t' \\ \\ 0 & t < t' \end{cases} \tag{II.1.23.}$$

Konačno, možemo pisati:

$$<\hat{F}(t)> = \int dx <\hat{A}(xt)>_0 + \frac{1}{i\hbar}\int dx\, dx' \int_{t_0}^{t} dt'\, G(xx';tt')\,\varepsilon(x't') \qquad (II.1.27.)$$

gde je $\quad <\hat{A}(x,t)>_0 = S_p\, \hat{A}(xt)\;\hat{\rho}(0) \qquad (II.1.28.)$

i

$$G(xx';tt') = \theta(t-t')S_p[\hat{A}(xt)\hat{B}(x't')-\hat{B}(x't')\hat{A}(xt)]\hat{\rho}(0) =$$

$$= \theta(t-t')< [\hat{A}(xt),\ \hat{B}(x't')]> \equiv <<\hat{A}(x,t) \mid \hat{B}(x',t')>> \qquad (II.1.29.)$$

Veličina G(x,x′,t,t′) koja karakteriše linearnu reakciju naziva se retardovana, dvovremenska, temperaturska Grinova funkcija. Prema tome, da bi smo izračunali linearnu reakciju sistema, tj. popravku na srednju vrednost dinamičke varijable koja dolazi usled neravnotežnih procesa potrebno je pronaći Grinovu funkciju sistema.

Na kraju ovog paragrafa razmotrićemo slučaj koji se u praksi najčešće javlja, a to je da operatori $\hat{A}(x,t)$ i $\hat{B}(x,t)$ ne zavise eksplicitno od vremena. Takodje ćemo pretpostaviti da je sredina homogena. Zbog homogenosti sredine Grinova funkcija kao fizička karakteristika sredine ne zavisi od koordinata x i x′ ponaosob, već od njihove razlike (x-x′). Ako $\hat{A}$ i $\hat{B}$ ne zavise eksplicitno od vremena, onda Grinova funkcija ne zavisi od vremena t i t′ponaosob, već od njihove razlike (t-t′).

Ovo poslednje ćemo dokazati.

Pošto u Grinovu funkciju ulaze srednje vrednosti tipa $<\hat{A}(x,t)\,\hat{B}(x',t')>$ pokazaćemo da ovakva srednja vrednost ne zavisi od t i t' ponaosob, već od razlike $t - t'$.

$$\hat{A}(x,t) = e^{-\frac{H_o t}{it}}\,\hat{A}(x)\,e^{\frac{H_o t}{it}}\ ; \quad \hat{B}(x',t') = e^{-\frac{H_o t'}{it}}\,\hat{B}(x')\,e^{\frac{H_o t'}{it}}$$

$$\hat{\rho}(0) = e^{\frac{\Phi + \mu N - H_o'}{\theta}}$$

Tada:

$$<\hat{A}(xt)\,\hat{B}(x't')> = S_p\,\hat{A}(x,t)\,\hat{B}(x't')\,\hat{\rho}(0) =$$

$$= S_p\,\hat{\rho}(0)\,\hat{A}(xt)\,\hat{B}(x't') = S_p\,e^{\frac{\Phi + \mu N - H_o}{\theta}}\,e^{-\frac{\hat{H}_o t}{it}}\,\hat{A}(x)\cdot$$

$$\cdot\,e^{\frac{H_o(t-t')}{it}}\,\hat{B}(x)\,e^{\frac{H_o t'}{it}} = e^{\frac{\Phi}{\theta}}\,S_p e^{\frac{\mu N - H_o}{\theta}}\,e^{-\frac{H_o t}{it}}\,\hat{A}(x)\cdot$$

$$\cdot\,e^{\frac{H_o(t-t')}{it}}\,\hat{B}(x)\,e^{\frac{\hat{H}_o t'}{it}} = e^{\frac{\Phi}{\theta}}\,S_p\,e^{\frac{H_o t'}{it}}\,e^{\frac{\mu N - H_o}{\theta}}\,e^{-\frac{H_o t}{it}}\cdot$$

$$\cdot\,\hat{A}(x)\,e^{\frac{H_o(t-t')}{it}}\,\hat{B}(x)$$

Pošto $e^{\frac{H_o t'}{it}}$ i $e^{\frac{\mu N - H_o}{\theta}}$ komutiraju, dalje možemo pisati:

$$<\hat{A}(xt)\,\hat{B}(x't')> = S_p\,e^{\frac{\Phi + \mu N - H_o}{\theta}}\,e^{-\frac{H_o(t-t')}{it}}\,\hat{A}(x)\cdot$$

$$\cdot\,e^{\frac{H_o(t-t')}{it}}\,\hat{B}(x) = f(t-t')$$

(II.1.30.)

Prema tome, ako operatori ne zavise eksplicitno od vremena i sredina je homogena, pa za Grinovu funkciju važi prelaz

$$G(x,x';t,t') \to G(x-x';t-t') \qquad \text{(II.1.31.)}$$

2. FOTON - FONON - EKSITONSKI SISTEM

Ovde ćemo razmotriti sistem koji obuhvata Frenkelove eksitone, fonone i fotone koji interaguju sa eksitonima mehanizmom retardovane interakcije. Za eksiton-fononski sistem uzećemo hamiltonijan (I.5.10.) koji odgovara metastabilnoj hibridizaciji eksitona i fonona. Za eksiton-fotonski sistem uzećemo hamiltonijan (I.2.13.). Tada se totalni hamiltonijan sistema može napisati u obliku

$$H_{tot} = \sum_{\vec{k}} \sum_{s,s'=1}^{4} \{M_{ss'}(\vec{k})\,\eta_s^+(\vec{k})\,\eta_{s'}(\vec{k}) + \frac{1}{2}[N_{ss'}(\vec{k})\,\eta_s^+(k)\,\eta_{s'}^+(-\vec{k}) +$$

$$+ N_{ss'}^*(\vec{k})\,\eta_{s'}(-\vec{k})\,\eta_s(\vec{k})]\} \tag{II.2.1.}$$

gde je

$$\eta_1(\vec{k}) = B_{\vec{k}}\ ;\ \eta_2(\vec{k}) = b_{\vec{k}}\ ;\ \eta_3(\vec{k}) = \alpha_{\vec{k}_1}\ ;\ \eta_4(\vec{k}) = \alpha_{\vec{k}_2} \tag{II.2.2.}$$

i (II.2.3.) članovi hamiltonijana dati na sledećoj strani.

$$M_{11}(\vec{k}) = \Delta + W_{\vec{k}} + \frac{1}{2}\sqrt{\Phi\Delta}; \quad M_{12}(\vec{k}) = \frac{\hbar\omega_o}{4Mv^2}\sqrt{\Phi\Delta}; \quad M_{13}(\vec{k}) = \frac{e}{mc}\sqrt{\frac{2\pi\hbar cN}{vk}}(\vec{e}_{\vec{k}_1}\vec{P}_{o+}); \quad M_{14}(\vec{k}) = \frac{e}{mc}\sqrt{\frac{2\pi\hbar cN}{vk}}(\vec{e}_{\vec{k}_2}\vec{P}_{o+})$$

$$M_{21}(\vec{k}) = \frac{\hbar\omega_o}{4Mv^2}\sqrt{\Phi\Delta}; \quad M_{22}(\vec{k}) = \hbar v_k + \frac{1}{2}\sqrt{\Phi\Delta}; \quad M_{23}(\vec{k}) = 0; \quad M_{24}(\vec{k}) = 0$$

$$M_{31}(\vec{k}) = -\frac{e}{mc}\sqrt{\frac{2\pi\hbar cN}{vk}}(\vec{e}_{\vec{k}_1}\vec{P}_{o+}); \quad M_{32}(\vec{k}) = 0; \quad M_{33}(\vec{k}) = \hbar ck + \frac{2\pi e^2\hbar N}{vkmc}; \quad M_{34}(\vec{k}) = 0$$

$$M_{41}(\vec{k}) = -\frac{e}{mc}\sqrt{\frac{2\pi\hbar cN}{vk}}(\vec{e}_{\vec{k}_2}\vec{P}_{o+}); \quad M_{42}(\vec{k}) = 0; \quad M_{43}(\vec{k}) = 0; \quad M_{44}(\vec{k}) = \hbar ck + \frac{2\pi e^2 N\hbar}{vkmc}$$

$$N_{11}(\vec{k}) = 0; \quad N_{12}(\vec{k}) = -\frac{1}{2}\sqrt{\Phi\Delta}; \quad N_{13}(\vec{k}) = \frac{e}{mc}\sqrt{\frac{2\pi\hbar cN}{vk}}(\vec{e}_{\vec{k}_1}\vec{P}_{o+}); \quad N_{14}(\vec{k}) = \frac{e}{mc}\sqrt{\frac{2\pi\hbar cN}{vk}}(\vec{e}_{\vec{k}_2}\vec{P}_{o+})$$

$$N_{21}(\vec{k}) = -\frac{1}{2}\sqrt{\Phi\Delta}; \quad N_{22}(\vec{k}) = 0; \quad N_{23}(\vec{k}) = 0; \quad N_{24}(\vec{k}) = 0$$

$$N_{31}(\vec{k}) = \frac{e}{mc}\sqrt{\frac{2\pi\hbar cN}{vk}}(\vec{e}_{\vec{k}_2}\vec{P}_{o+}); \quad N_{32}(\vec{k}) = 0; \quad N_{33}(\vec{k}) = \frac{2\pi e^2\hbar N}{vkmc}; \quad N_{34}(\vec{k}) = 0$$

$$N_{41}(\vec{k}) = \frac{e}{mc}\sqrt{\frac{2\pi\hbar cN}{vk}}(\vec{e}_{\vec{k}_2}\vec{P}_{o+}); \quad N_{42}(\vec{k}) = 0; \quad N_{43}(\vec{k}) = 0; \quad N_{44}(\vec{k}) = \frac{2\pi e^2\hbar N}{vkmc}$$

(II.2.3.)

Hamiltonijan (II.2.1.) dijagonalizovaćemo na uobičajeni način, tj. koristićemo Hajzenbergove jednačine kretanja za operatore η koji u ovom slučaju glase:

$$i\dot{\eta}_s = \sum_{s'=1}^{4} (M_{ss'}\eta_{s'} + N_{ss'}\eta^+_{s'}); \quad s = 1,2,3,4 \tag{II.2.4.}$$

i kanoničkom transformacijom ćemo preći na novi Boze-operator τ, tj.:

$$\eta_s = \sum_{\nu=1}^{4} (u_{s\nu}\tau_\nu + v^*_{s\nu}\tau^+_\nu);$$

$$\sum_{\nu=1}^{4} (u_{s\nu}u^*_{s'\nu} - v^*_{s\nu}v_{s'\nu}) = \delta_{ss'} \tag{II.2.5.}$$

Pošto je

$$i\dot{\eta}_s = \varepsilon \sum_{\nu=1}^{4} (u_{s\nu}\tau_\nu e^{-iEt} - v^*_{s\nu}\tau^+_\nu e^{iEt}) \tag{II.2.6.}$$

pa zamenom (II.2.6.) u (II.2.4.) dobijamo sistem jednačina koji definiše funkcije u i v, a takodje i energije pobudjenja ε.

$$\left.\begin{aligned} \varepsilon u_{s\nu} &= \sum_{s'=1}^{4} (M_{ss'}u_{s'\nu} + N_{ss'}v_{s'\nu}) \\ -\varepsilon v_{s\nu} &= \sum_{s'=1}^{4} (M^*_{ss'}V_{s'\nu} + N^*_{ss'}u_{s'\nu}) \end{aligned}\right\} \tag{II.2.7.}$$

Sekularna jednačina sistema ima oblik:

$$
\begin{vmatrix}
\varepsilon_\nu - A_1 & -B_1 & -C_1 & -C_2 & 0 & -F_1 & -C_1 & -C_2 \\
-B_1 & \varepsilon_\nu - A_2 & 0 & 0 & -F_1 & 0 & 0 & 0 \\
C_1 & 0 & \varepsilon_\nu - A_3 & 0 & -C_1 & 0 & -D_1 & 0 \\
C_2 & 0 & 0 & \varepsilon_\nu - A_3 & -C_2 & 0 & 0 & -D_1 \\
0 & F_1 & -C_1 & -C_2 & \varepsilon_\nu + A_1 & B_1 & -C_1 & -C_2 \\
-F_1 & 0 & 0 & 0 & B_1 & \varepsilon_\nu + A_2 & 0 & 0 \\
-C_1 & 0 & D_1 & 0 & C_1 & 0 & \varepsilon_\nu + A_3 & 0 \\
-C_2 & 0 & 0 & D_1 & C_2 & 0 & 0 & \varepsilon_\nu + A_3
\end{vmatrix} = 0
\qquad (II.2.8.)
$$

gde je:

$$A_1 = \Delta + W_k + \frac{1}{2}\sqrt{\Phi\Delta} \; ; \qquad A_2 = \hbar vk + \frac{1}{2}\sqrt{\Phi\Delta} \; ;$$

$$A_3 = \hbar ck + \frac{2\pi e^2 \hbar N}{vkmc} \; ; \qquad B_1 = \frac{\hbar\omega_o}{4mv^2}\sqrt{\Phi\Delta} \; ;$$

$$C_1 = \frac{e}{mc}\sqrt{\frac{2\pi\hbar cN}{vk}}(\vec{e}_{\vec{k}_1}\vec{P}_{o+}) \; ; \quad C_2 = \frac{e}{mc}\sqrt{\frac{2\pi\hbar cN}{vk}}(\vec{e}_{\vec{k}_2}\vec{P}_{o+}) \; ;$$

$$D_1 = \frac{2\pi e^2 \hbar N}{vkmc} \; ; \qquad F_1 = -\frac{1}{2}\sqrt{\Phi\Delta}$$

i hamiltonijan (II.2.1.) dobija dijagonalni oblik:

$$H_{tot} = H_{o}^{tot} + \sum_{\vec{k};\,\nu=1}^{4} \varepsilon_{\nu\vec{k}}\, \tau^{+}_{\nu k}\, \tau_{\nu k} \tag{II.2.9.}$$

gde su $\varepsilon_{\nu\vec{k}}$ rešenja jednačine (II.28.).

Ako uvedemo oznake:

$$u_1(\vec{k}) \equiv u_e(\vec{k}) \; ; \qquad v_1(\vec{k}) \equiv v_e(\vec{k})$$

$$u_2(\vec{k}) \equiv u_p(\vec{k}) \; ; \qquad v_2(\vec{k}) \equiv v_p(\vec{k})$$

$$u_3(\vec{k}), u_4(\vec{k}) \equiv u_\sigma(\vec{k}) \; ; \qquad v_3(\vec{k}), v_4(\vec{k}) \equiv v_\sigma(\vec{k}) \; ; \sigma = 1,2$$

onda su veze izmedju operatora $B_{\vec{k}}$, $b_{\vec{k}}$ i $\alpha_{\vec{k}\sigma}$ i operatora $\tau_{\vec{k}}$ sledeće:

$$\left.\begin{aligned}
B_{\vec{k}} &= \sum_{\nu=1}^{4} \left| u_e(\vec{k})\, \tau_{\nu\vec{k}} + v_e^{*}(-\vec{k})\, \tau^{+}_{\nu,-\vec{k}} \right| \\
b_{\vec{k}} &= \sum_{\nu=1}^{4} \left| u_p(\vec{k})\, \tau_{\nu\vec{k}} + v_p^{*}(-\vec{k})\, \tau^{+}_{\nu,-\vec{k}} \right| \\
\alpha_{\vec{k}\sigma} &= \sum_{\nu=1}^{4} \left| u_\sigma(\vec{k})\, \tau_{\nu\vec{k}} + v_\sigma^{*}(-\vec{k})\, \tau^{+}_{\nu,-k} \right|
\end{aligned}\right| \tag{II.2.10.}$$

$$\sigma = 1,2$$

Dobijene veze izmedju eksitonskih operatora i operatora $\tau_{\nu\vec{k}}$, zatim izmedju fononskih operatora i operatora $\tau_{\nu\vec{k}}$ i fotonskih operatora i operatora $\tau_{\nu\vec{k}}$, koje su date formulom (II.2.10.), omogući će nam da srednji dipol sistema i srednji pomeraj sistema izrazimo kao funkcije spoljašnjih struja u elektromagnetnom polju.

3. DIPOL I POMERAJ PERTURBOVANIM SPOLJAŠNJIM STRUJAMA

Poznata je činjenica da su spoljašnje struje $\vec{j}$ uvek prisutne u svakom sistemu. U krajnjem slučaju, spoljašnje struje predstavljaju slobodni elektroni koji uvek postoje u prostoru. Interakcija elektromagnetnog polja sa spoljašnjim strujama [4] data je izrazom:

$$\left.\begin{array}{l} H_{int}(t) = -\frac{1}{c}\sum\limits_{\vec{n}\alpha} A^{\alpha}_{\vec{n}}(t)\, j^{\alpha}_{\vec{n}}(t) \quad \ldots\ldots\ldots \\ \alpha = x,y,z \qquad A^{\alpha}_{\vec{n}}(t) = e^{-\frac{H_o t}{it}}\, A^{\alpha}_{\vec{n}}\, e^{\frac{H_o t}{it}} \end{array}\right\} \quad (II.3.1.)$$

gde su $A^{\alpha}_{\vec{n}}(t)$ komponente vektorskog potencijala sistema i na osnovu formule (I.2.3.) mogu se napisati kao:

$$A^{\alpha}_{\vec{n}}(t) = \sum_{\vec{k},\sigma=1}^{2} \sqrt{\frac{2\pi\hbar c}{vk}}\; e^{\alpha}_{\vec{k}\sigma}\left[\alpha_{\vec{k}\sigma}(t) + \alpha_{-\vec{k}\sigma}(t)\right]\cdot e^{i\vec{k}\vec{n}}$$

(II.3.2.)

gde je

$$\alpha_{\vec{k}\sigma}(t) = e^{-\frac{H_o t}{i\hbar}}\, \alpha_{\vec{k}\sigma}\, e^{\frac{H_o t}{i\hbar}} \; ;$$

$$\alpha_{-\vec{k}\sigma}(t) = e^{-\frac{H_o t}{it}} \alpha^{+}_{-\vec{k}\sigma} e^{\frac{H_o t}{it}} \qquad (II.3.2.)$$

i H_o je dato formulom (II.2.9.), tj. $H_o \equiv H_{tot}$.

Na osnovu ovoga možemo pisati da je $\hat{W}(t')$ koje ulazi u eksponent S matrice dato sa:

$$\hat{W}(t') \equiv \hat{H}_{int}(t') = -\frac{1}{c} \sum_{m\beta p\sigma} \sqrt{\frac{2\pi\hbar c}{Vp}}\; e^{\beta}_{\vec{p}\sigma}\, j^{\beta}_{\vec{m}}(t') \cdot$$

$$\cdot \left[\alpha_{\vec{p}\sigma}(t') + \alpha^{+}_{-\vec{p}\sigma}(t')\right] e^{i\vec{p}\vec{m}} \qquad (II.3.4.)$$

Koristeći formulu (I.1.34.) za komponentu električnog dipola sistema $\vec{D}$ možemo pisati:

$$D^{\alpha}_{\vec{n}}(t) = D^{\alpha}_{of}\, B_{\vec{n}}(t) + \overset{*}{D}{}^{\alpha}_{of}\, B^{+}_{\vec{n}}(t) \qquad (II.3.5.)$$

$$\left.\begin{aligned} B_{\vec{n}}(t) &= e^{-\frac{H_o t}{it}}\, B_{\vec{n}}\, e^{\frac{H_o t}{it}} \\ B^{+}_{\vec{n}}(t) &= e^{-\frac{\hat{H}_o t}{it}}\, B^{+}_{\vec{n}}\, e^{\frac{\hat{H}_o t}{it}} \end{aligned}\right\} \qquad (II.3.6.)$$

Koristeći opštu teoriju linearne reakcije, koja je izložena u prvom paragrafu druge glave, i činjenicu da je

$$< B_n >_o = < B^{+}_n >_o = 0 \qquad (II.3.7.)$$

za Furije linearnu veličinu $<D^{\alpha}_{\vec{n}}(t)>_{ext}$ koja predstavlja električni dipol perturbovan hamiltonijanom (II.3.4.), dobijajamo sledeći izraz:

$$< \mathcal{D}^{\alpha}_{(\vec{k},\omega)} >_{ext} = \frac{1}{\hbar c} \sum_{\sigma\beta} \sqrt{\frac{2\pi}{V\hbar c k}}\, j^{\beta}_{(\vec{k},\omega)} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\Omega}{\Omega - \omega + i\delta} \times \qquad \delta \to +0$$

$$\times \{ \mathcal{D}^{\alpha}_{of}\, e^{\beta}_{\vec{k}\sigma} [<< B_{\vec{k}} | \alpha_{-\vec{k}\sigma} >>_{\Omega} + << B_{\vec{k}} | \alpha^{+}_{\vec{k}\sigma} >>_{\Omega}] +$$

$$+ \overset{*}{\mathcal{D}}{}^{\alpha}_{of}\, e^{\beta}_{\vec{k}\sigma} [<< B^{+}_{-\vec{k}} | \alpha_{-\vec{k}\sigma} >>_{\Omega} + << B^{+}_{-\vec{k}} | \alpha^{+}_{\vec{k}\sigma} >>_{\Omega}] \}$$

gde je: (II.3.8.)

$$<\mathcal{D}^{\alpha}_{\vec{n}}(t)>_{ext} = \sum_{\vec{k}} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega <\mathcal{D}^{\alpha}(\vec{k},\omega)>_{ext}\, e^{i\vec{k}\vec{n} - i\omega t}$$

(II.3.9.)

$$j^{\beta}_{\vec{n}}(t) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{k}} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega\, j^{\beta}(\vec{k},\omega)\, e^{i\vec{k}\vec{n} - i\omega t}$$

(II.3.10.)

Koristeći formule (II.2.10.) i (II.2.9.) Grinove funkcije koje figurišu u (II.3.8.), možemo izraziti preko Grinovih funkcija koje su izražene preko operatora τ, tako da dobijamo konačnu vezu izmedju srednjeg dipola i spoljašnjih struja koja ima sledeći oblik:

$$\begin{bmatrix} <\mathcal{D}^{x}(\vec{k},\omega)>_{ext} \\ <\mathcal{D}^{y}(\vec{k},\omega)>_{ext} \\ <\mathcal{D}^{z}(\vec{k},\omega)>_{ext} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} T^{xx}_{\mathcal{D}}(\vec{k},\omega) & T^{xy}_{\mathcal{D}}(\vec{k},\omega) & T^{xz}_{\mathcal{D}}(\vec{k},\omega) \\ T^{yx}_{\mathcal{D}}(\vec{k},\omega) & T^{yy}_{\mathcal{D}}(\vec{k},\omega) & T^{yz}_{\mathcal{D}}(\vec{k},\omega) \\ T^{zx}_{\mathcal{D}}(\vec{k},\omega) & \hat{T}^{zy}_{\mathcal{D}}(\vec{k},\omega) & T^{zz}_{\mathcal{D}}(\vec{k},\omega) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} j^{x}(\vec{k},\omega) \\ j^{y}(\vec{k},\omega) \\ j^{z}(\vec{k},\omega) \end{bmatrix}$$

(II.3.11.)

Komponente tenzora $\hat{T}_D(\vec{k},\omega)$ date su sa:

$$\hat{T}_D^{\alpha\beta}(\vec{k},\omega) = \frac{\pi}{\sqrt{2\pi v\hbar ck}} \sum_{\sigma\nu} \cdot$$

$$\cdot\left\{ \frac{|D^{\alpha}_{o+} e^{\beta}_{\vec{k}\sigma} u_{e\nu}(\vec{k}) + \overset{*}{D}{}^{\alpha}_{o+} e^{\beta}_{\vec{k}\sigma} v_{e\nu}(\vec{k})| \, |\overset{*}{u}_{\sigma\nu}(\vec{k}) + \overset{*}{v}_{\sigma\nu}(\vec{k})|}{\omega - \Omega_{\nu\vec{k}}} - \right.$$

$$\left. - \frac{|\overset{*}{D}{}^{\alpha}_{o+} e^{\beta}_{\vec{k}\sigma} \overset{*}{u}_{e\nu}(-\vec{k}) + D^{\alpha}_{o+} e^{\beta}_{\vec{k}\sigma} \overset{*}{v}_{e\nu}(-\vec{k})| \, |u_{\sigma\nu}(-\vec{k}) + v_{\sigma\nu}(-\vec{k})|}{\omega + \Omega_{\nu\vec{k}}} \right\}$$

(II.3.12.)

gde je $\Omega_{\nu\vec{k}} = \hbar^{-1} \cdot \varepsilon_{\nu\vec{k}}$.

Na sličan način možemo izračunati srednje komponente vektora pomeraja $\vec{u}_{\vec{m}}(t)$. Na osnovu formule (I.3.10.) možemo pisati

$$\vec{u}^{\alpha}_{\vec{n}}(t) = \sum_{\vec{k}j} \sqrt{\frac{t}{2MN\omega_{\vec{k}j}}} \, \ell^{\alpha}_{\vec{k}j} \left[b_{\vec{k}j}(t) + b^{+}_{-\vec{k}j}(t) \right] e^{i\vec{k}\vec{n}}$$

(II.3.13.)

gde je

$$b_{\vec{k}j}(t) = e^{-\frac{H_o t}{it}} \, b_{\vec{k}j} \, e^{\frac{H_o t}{it}}$$

$$b^{+}_{-\vec{k}j}(t) = e^{-\frac{H_o t}{it}} \, b^{+}_{-\vec{k}j} \, e^{\frac{H_o t}{it}}$$

(II.3.14.)

Uzimajući da je i pomeraj perturbovan spoljašnim strujama, tj. koristeći hamiltonijan (II.3.4.) kao interakciju i ponavljajući potpuno istu proceduru računa koji smo izveli prilikom izračunavanja električnog dipola polazimo od sledeće veze izmedju vektora pomeraja i spoljašnih struja

$$\begin{bmatrix} \langle u^x(\vec{k},\omega)\rangle_{ext} \\ \langle u^y(\vec{k},\omega)\rangle_{ext} \\ \langle u^z(\vec{k},\omega)\rangle_{ext} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} T_u^{xx}(\vec{k},\omega) & T_u^{xy}(\vec{k},\omega) & T_u^{xz}(\vec{k},\omega) \\ T_u^{yx}(\vec{k},\omega) & T_u^{yy}(\vec{k},\omega) & T_u^{yz}(\vec{k},\omega) \\ T_u^{zx}(\vec{k},\omega) & T_u^{zy}(\vec{k},\omega) & T_u^{zz}(\vec{k},\omega) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} j^x(\vec{k},\omega) \\ j^y(\vec{k},\omega) \\ j^z(\vec{k},\omega) \end{bmatrix} \tag{II.3.15.}$$

gde je

$$\langle u^{\alpha}_{\vec{n}}(t)\rangle_{ext} = \sum_{\vec{k}} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \, \langle u^{\alpha}(\vec{k},\omega)\rangle_{ext} \, e^{i\vec{k}\vec{n} - i\omega t} \tag{II.3.16.}$$

i komponente tenzora $T_u^{\alpha\beta}(\vec{k},\omega)$ date su sa:

$$\hat{T}_u^{\alpha\beta}(\vec{k},\omega) = \frac{\pi}{\sqrt{2\pi v c\sigma k^2}} \sum_{\sigma\nu} \ell^{\alpha}_{\vec{k}} \, e_{\vec{k}\sigma} \cdot$$

$$\cdot \left\{ \frac{[u_{+\nu}(\vec{k}) + v_{+\nu}(\vec{k})]\,[\overset{*}{u}_{\sigma\nu}(\vec{k}) + \overset{*}{v}_{\sigma\nu}(\vec{k})]}{\omega - \Omega_{\nu\vec{k}}} - \right.$$

$$\left. - \frac{[\overset{*}{u}_{+\nu}(-\vec{k}) + \overset{*}{v}_{+\nu}(\vec{k})]\,[u_{\sigma\nu}(-\vec{k}) + v_{\sigma\nu}(-\vec{k})]}{\omega + \Omega_{\nu\vec{k}}} \right\} \tag{II.3.17.}$$

Na ovaj način došli smo do veza izmedju električnog dipola i spoljašnjih struja i vektora pomeraja i spoljašnjih struja. Važno je istaći,da je veza i pomeraja i spoljašnjih struja (II.3.14.),dobijena isključivo zahvaljujući pretpostavci da u sistemu može da dodje do metastabilne hibridizacije eksitona i fonona.

4. OPTIČKO - MEHANIČKI TENZOR

Činjenica da su i srednji dipol i srednji pomeraj, izraženi preko spoljašnjih struja, daje nam mogućnost da povežemo srednji dipol sa srednjim pomerajem. Pošto srednji dipol predstavlja fenomenološku optičku karakteristiku sistema, a srenji pomeraj fenomenološku mehaničko-vibracionu karakteristiku sistema, povezivanje ove dve veličine, znači, pronalaženje uzajamnog uticaja optičkih i mehaničkih fenomena u kristalu.

Iz formule (II.3.11.) lako dobijamo:

$$\begin{bmatrix} j^{x}(\vec{k},\omega) \\ j^{y}(\vec{k},\omega) \\ j^{z}(\vec{k},\omega) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} T_{D}^{xx}(\vec{k},\omega) & T_{D}^{xy}(\vec{k},\omega) & T_{D}^{xz}(\vec{k},\omega) \\ T_{D}^{yx}(\vec{k},\omega) & T_{D}^{yy}(\vec{k},\omega) & T_{D}^{yz}(\vec{k},\omega) \\ T_{D}^{zx}(\vec{k},\omega) & T_{D}^{zy}(\vec{k},\omega) & T_{D}^{zz}(\vec{k},\omega) \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} \langle D^{x}(\vec{k},\omega)\rangle_{ext} \\ \langle D^{y}(\vec{k},\omega)\rangle_{ext} \\ \langle D^{z}(\vec{k},\omega)\rangle_{ext} \end{bmatrix}$$

(II.4.1.)

i ako ovo uvrstimo u formulu (II.3.14.) dobijamo sledeću vezu:

$$\begin{bmatrix} \langle u^x(\vec{k},\omega)\rangle_{ext} \\ \langle u^y(\vec{k},\omega)\rangle_{ext} \\ \langle u^z(\vec{k},\omega)\rangle_{ext} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} T_{uD}^{xx}(\vec{k},\omega) & T_{uD}^{xy}(\vec{k},\omega) & T_{uD}^{xz}(\vec{k},\omega) \\ T_{uD}^{yx}(\vec{k},\omega) & T_{uD}^{yy}(\vec{k},\omega) & T_{uD}^{yz}(\vec{k},\omega) \\ T_{uD}^{zx}(\vec{k},\omega) & T_{uD}^{zy}(\vec{k},\omega) & T_{uD}^{zz}(\vec{k},\omega) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \langle D^x(\vec{k},\omega)\rangle_{ext} \\ \langle D^y(\vec{k},\omega)\rangle_{ext} \\ \langle D^z(\vec{k},\omega)\rangle_{ext} \end{bmatrix}$$

gde je (II.4.2.)

$$\begin{bmatrix} T_{uD}^{xx}(\vec{k},\omega) & T_{uD}^{xy}(\vec{k},\omega) & T_{uD}^{xz}(\vec{k},\omega) \\ T_{uD}^{yx}(\vec{k},\omega) & T_{uD}^{yy}(\vec{k},\omega) & T_{uD}^{yz}(\vec{k},\omega) \\ T_{uD}^{zx}(\vec{k},\omega) & T_{uD}^{zy}(\vec{k},\omega) & T_{uD}^{zz}(\vec{k},\omega) \end{bmatrix} =$$

$$= \begin{bmatrix} T_{u}^{xx}(\vec{k},\omega) & T_{u}^{xy}(\vec{k},\omega) & T_{u}^{xz}(\vec{k},\omega) \\ T_{u}^{yx}(\vec{k},\omega) & T_{u}^{yy}(\vec{k},\omega) & T_{u}^{yz}(\vec{k},\omega) \\ T_{u}^{zx}(\vec{k},\omega) & T_{u}^{zy}(\vec{k},\omega) & T_{u}^{zz}(\vec{k},\omega) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} T_{D}^{xx}(\vec{k},\omega) & T_{D}^{xy}(\vec{k},\omega) & T_{D}^{xz}(\vec{k},\omega) \\ T_{D}^{yx}(\vec{k},\omega) & T_{D}^{yy}(\vec{k},\omega) & T_{D}^{yz}(\vec{k},\omega) \\ T_{D}^{zx}(\vec{k},\omega) & T_{D}^{zy}(\vec{k},\omega) & T_{D}^{zz}(\vec{k},\omega) \end{bmatrix}^{-1}$$

(II.4.3.)

Tenzor sa komponentama $T_{uD}^{\alpha\beta}(\vec{k},\omega)$ koji je dat relacijom (II.4.3.) nazvaćemo optičko-mehaničkim tenzorom.

Ako su tenzori $\hat{T}_u$ i $\hat{T}_D$ dijagonalni, onda na osnovu formula (II.4.2.), (II.3.16.) i (II.3.12.) možemo proceniti ponašanje srednjeg pomeraja i srednjeg dipola na sledeći način:

$$\langle u^{\alpha}(\vec{k},\omega)\rangle_{ext} = \frac{c_u(\nu_1)}{c_{\mathcal{D}}(\nu_2)} \frac{\omega - \Omega_{\nu_2}(\vec{k})}{\omega - \Omega_{\nu_1}(\vec{k})} \langle \mathcal{D}^{\alpha}(\vec{k},\omega)\rangle_{ext}$$

(II.4.4.)

odakle očigledno sledi da kada dipol ima rezonancu sa frekvencojom ω spoljašnje pertubacije $|\Omega_{\nu_2}(\vec{k}) \simeq \omega|$, pomak se gasi (postaje blizak nuli). Ako pak,pomeraj ima rezonancu sa ω $|\Omega_{\nu_1}(\vec{k}) \simeq \omega|$, onda se gasi dipol,a pomeraj naglo raste.

Prema tome, konačan zaključak je da se u sistemu vrši oscilatorno pojačavanje i slabljenje mehaničkog oscilovanja i elektromagnetnih talasa, tj. imamo oscilatoran proces pretvaranja mehaničke energije u elektromagnetnu i obrnuto. U izvesnom smislu,ovaj fenomen predstavlja analogan Mesbauerovom efektu za vidljivu oblast spektra.

ZAKLJUČAK

Rezultati diplomskog rada mogu se rezimirati na sledeći način:

a. Hibridizacija eksitona i fonona je moguća, ali samo kao statistička fluktacija, jer u stanju hibridizacije energija osnovnog stanja je nešto viša od energije osnovnog stanja sistema u kome su eksitoni i fononi striktno razdvojeni.

b. Metastabilna hibridizirana pobudjenja su takva da se hibridizirana eksitonska grana malo menja u odnosu na čisto eksitonsku, dok hibridizirani fonon ima ponašanje optičkog fonona, tj. dobija energetski gep u spektru.

c. U slučaju hibridizacije srednji dipolni moment kristala i srednji oscilatorni pomeraj bivaju perturbovani spoljašnjim strujama i mogu se preko njih eksplicitno izraziti.

d. Eliminacijom vektora spoljašnjih struja iz relacija dipol - struja i pomeraj - struja, može se naći tenzorska veza izmedju srednjeg dipola i srednjeg vibracionog pomeraja. Tenzor koji povezuje ove dve fenomenološke karakteristike kristala nazvan je *optičko-mehanički tenzor* i njegov oblik je takav da dovodi do gašenja svetlosti na račun povećanja vibracija i obrnuto, pa zbog toga ovakvi procesi podsećaju na Mesbauerov efekat.

Na kraju treba napomenuti da ovi interesantni rezultati svakako treba da dobiju svoju eksperimentalnu potvrdu, jer bi samo tada bilo celishodno nastaviti dalja teorijska ispitivanja u ovom smeru.

R E F E R E N C E

[1] В.М.Агранович: ЖЭТФ 37, 430,(1959).

[2] С.В.Т бликов: "МЕТОДЫ КВАНТОВОЙ ТЕОРИИ МАГНЕТИЗМА", "Наука", Москва,(1965).

[3] В.М.Агранович: "ТЕОРИЯ ЭКСИТОНОВ","Наука", Москва, (1968).

[4] И.Е.Дзялошинский, Л.П.Питаевский: ЖЭТФ 36, 1797, (1959).

L I T E R A T U R A

1. В.М.Агранович: ЖЭТФ 37, 430 (1959).

2. С.В.Тябликов: "Методы квантовой теории магнетизма", "НАУКА", Москва, 1959.

3. В.М.Агранович: "Теория экситонов", "НАУКА", Москва, 1968.

4. И.Е.Дзялошинский, Л.П.Питаевский: ЖЭТФ 36, 1797, (1959).

5. А.С.Давыдов: "Квантовая механика", Изд. Ф.М., Москва, (1968).