

Приј. дат:	13. 9. 1988.
Орг. јед.	Број
03	98/10

UNIVERZITET U NOVOM SADU  
PRIRODNO-MATEMATIČKI FAKULTET

mr URANIJA F.KOZMIDIS-LUBURIC

MIKROTEORIJA KRISTALOOPTIČKIH POJAVA

- ДОКТОРСКА ДИСЕРТАЦИЈА -

Докторска дисертација на професору  
доктору наука, др Урану Ф. Козмидис-Лубурићу  
из области хемије и технологије  
додељује Универзитет у Новом Саду

НОВИ САД, 1988.

*Zahvaljujem se svima onima  
koje volim, a pre svih svome  
profesoru i mentoru  
dr Bratislavu S. Tošiću*

## S A D R Ž A J

### U V O D

### I GLAVA

#### OPTIČKA I MEHANIČKA POBUDJENJA U MOLEKULARnim KRISTALIMA I VEZA IZMEDJU MIKROSKOPSKIH I MAKROSKOPSKIH KARAKTERISTIKA KRISTALA

I.1. EKSITONI I POLARITONI -----	4
I.2. FONONI I INTERAKCIJA SA EKSITONIMA -----	14
I.3. MIKROTEORIJA DIELEKTRIČNE KONSTANTE U HARMONIJSKOJ APROKSIMACIJI -----	24
I.4. MIKROTEORIJA DIELEKTRIČNE KONSTANTE SA URAČUNAVANJEM EKSITON-FONON INTERAKCIJE -----	30
I.5. Tenzor nelinearne polarizacije -----	33

### II GLAVA

#### APSORPCIONI I REFRAKCIIONI PROCESI U MOLEKULARnim KRISTALIMA

II.1. UTICAJ NELINEARNIH OPTIČKIH EFEKATA NA APSORPCIONE I REFRAKCIONE KARAKTERISTIKE -----	35
II.2. PROCENA ULOGE EKSITON-EKSITON I EKSITON-FONON INTERAKCIJE -----	55

### III GLAVA

#### ULOGA KINEMATIČKIH POBUDJENJA U OPTIČKIM POJAVAMA

III.1. KINEMATIČKA I NORMALNA OPTIČKA POBUDJENJA -----	70
III.2. REFRAKCIJA, APSORPCIJA I ŠIRENJE NIVOA -----	79
III.3. TEMPERATURSKA ZAVISNOST KOEFICIJENTA APSORPCIJE - URBACH-ovo PRAVILo -----	87

III.4. KINEMATIČKA POBUDJENJA U JEDNODIMENZIONOJ (1-D) STRUKTURI -----	95
---	----

## IV GLAVA

### OPTIČKA POBUDJENJA U STRUKTURAMA SA NARUŠENOM SIMETRIJOM

IV.1. UVODJENJE PARAMETARA UREDJENOSTI U ANALIZU STRUKTURA SA NARUŠENOM SIMETRIJOM -----	104
IV.2. EKSITONI U POLUBESKONAČNIM STRUKTURAMA -----	110
IV.3. EKSITONI U TANKIM FILMOVIMA -----	124
IV.4. KONTINUALNA DEFORMACIJA U FILMU -----	133
<b>Z A K L J U Č A K -----</b>	<b>156</b>

## 1. MATEMATIČKI DODATAK

PRIMENA WICK-ove TEOREME PRI DEKUPLOVANJU GREEN-ovih FUNKCIJA -----	160
1.1. KOMUTATORSKE I PSEUDOKAUZALNE BOZONSKE GREEN-ove FUNKCIJE -----	160
1.2. VEZE IZMEDJU KOMUTATORSKIH I PSEUDOKAUZALNIH PAULIONSKIH GREEN-ovih FUNKCIJA -----	171
1.3. KOMUTATORSKA PAULIONSKA GREEN-ova FUNKCIJA IZRAŽENA PREKO BOZONSKIH GREEN-ovih FUNKCIJA ---	179
<b>L I T E R A T U R A -----</b>	<b>184</b>

## U V O D

U mikroteoriji optičkih pojava, i pored njenog burnog razvoja u poslednje tri decenije, niz pitanja je ostalo nerazjašnjeno ili nedovoljno razjašnjeno. Pomenuta nerazjašnjena pitanja su uglavnom vezana za pojavu apsorpcije svetlosti i mogla bi se formulisati na sledeći način:

a. Ne postoji zadovoljavajuće teorijsko objašnjenje za pojavu oštrog apsorpcionog pika u oblasti nižih učestalosti.

b. Anomalno veliko širenje eksitonskih linija koje je konstatovano u eksperimentima do danas nije teorijski objašnjeno.

c. Urbach-ovo pravilo se i u najnovijim monografijama navodi kao "jedan od osnovnih nerešenih problema teorijske optike". Eksperimenti pokazuju da koeficijent apsorpcije svetlosti u funkciji temperature i frekvencije predstavlja zvonastu krivu pri čemu je brzina opadanja ove krive slabo zavisna od temperature i od tipa kristala. Brzina je, zapravo, regulisana tzv. Urbach-ovim koeficijentom koji je blizak jedinici.

d. U teorijskim analizama se pretpostavlja da je eksiton-fonon interakcija onaj osnovni mehanizam kojim se mogu objasniti apsorpcioni fenomeni. Uloga čistih nelinearnih efekata (eksiton-eksiton interakcija) neopravdano se забилази.

Osim navedenih pitanja vezanih za apsorpciju, u optici postoji još jedna (za nas značajna) nedovoljno ispitana oblast, a to je veza izmedju deformacije strukture i raspodele optičkih pobudjenja. Dosadašnje analize u ovoj oblasti vršene su sa harmonijskim eksitonskim hamiltonijanom, tako da se može reći kako nelinearna optika struktura sa narušenom simetrijom praktično ne postoji.

Cilj ovoga rada je da se navedena nerazjašnjena pitanja razjasne u meri u kojoj je to moguće. Pokušaj razjašnjenja apsorpcionih fenomena biće zasnovan na činjenici koja je već pomenuta, a to je da eksiton-eksiton interakcija do danas nije razmatrana kao mehanizam koji ima ozbiljan uticaj na apsorpciju svetlosti. Jedan od razloga za ovaku situaciju, na današnjem stadijumu razvoja teorije, je nedovoljno korektna analiza viših eksitonskih Green-ovih funkcija (GF).

Zbog toga će u prvoj fazi ovoga rada biti usavršena tehnika dekuplovanja viših Green-ovih funkcija i to u tom smislu što će se u proceduri dekuplovanja striktno primenjivati Wick-ova teorema, tj. sparivaće se i operatori koji deluju u istom trenutku vremena i operatori koji deluju u različitim trenutcima vremena.

Na bazi ovako usavršene tehnike dekuplovanja biće izračunate eksitonske GF-e koje na bitan način odredjuju ponašanje dielektrične konstante i ostalih veličina relevantnih za prelamanje i apsorpciju svetlosti. Na ovaj način nelinearni optički efekti biće ravnopravno sa eksiton-fonon interakcijom uključeni u mikroteoriju apsorpcije. Očekuje se

da, ono što nije moglo da se objasni samo eksiton-fonon interakcijom, bude objašnjeno kombinovanim dejstvom dva ravno-pravna mehanizma.

U analizu struktura sa narušenom simetrijom biće uključeni nelinearni optički efekti i to u aproksimaciji self consistent polja. Ova aproksimacija dozvoljava da se u teorijsku analizu uključe eksitonske koncentracije, što sa druge strane omogućava da se nadje zavisnost raspodele elektromagnetne energije od deformacije strukture. Očekuje se da dobijeni teorijski rezultati budu osnova za sintezu takvih struktura u kojima bi energija optičkih pobudjenja bila koncentrisana (po želji ili potrebi) u određenom delu strukture. Takodje se očekuje, a u skladu sa rečenim, da ovako sintetizovane strukture budu pogodne za neposrednu primenu.

## I GLAVA

# OPTIČKA I MEHANIČKA POBUDJENJA U MOLEKULARnim KRISTALIMA I VEZA IZMEDJU MIKROSKOPSKIH I MAKROSKOPSKIH KARAKTERISTIKA KRISTALA

### I.1. EKSITONI I POLARITONI

Pri apsorpciji fotona u kristalu, čija je energija veća od energijskog procepa, dolazi do pobudjenja elektrona iz valentne zone u provodnu sa ostatkom šupljina u valentnoj zoni. Obrazovanje stabilnih vezanih stanja ovih dveju čestica moguće je usled postojanja privlačne kulanovske interakcije. Ovako vezan par elektron-šupljina naziva se **eksiton**. Kao što je poznato, to je zapravo optičko pobudjenje koje se može kretati kroz kristal prenoseći ekscitacionu energiju, ali zbog svoje električne neutralnosti ne učestvuje, neposredno, u provodjenju elektriciteta.

Prve osnove teorije eksitona postavio je Frenkel [1,2] 1931. godine, gde je eksiton razmatran kao jако vezan i gde su elektron i šupljina lokalizovani na jednom istom molekulu (eksiton malog radijusa). U tom slučaju, očito, uloga njihove interakcije sa drugim molekulima je srazmerno slaba, tako da pri formiraju talasne funkcije eksitona mogu uspešno da se koriste talasne funkcije stanja izolovanog molekula.

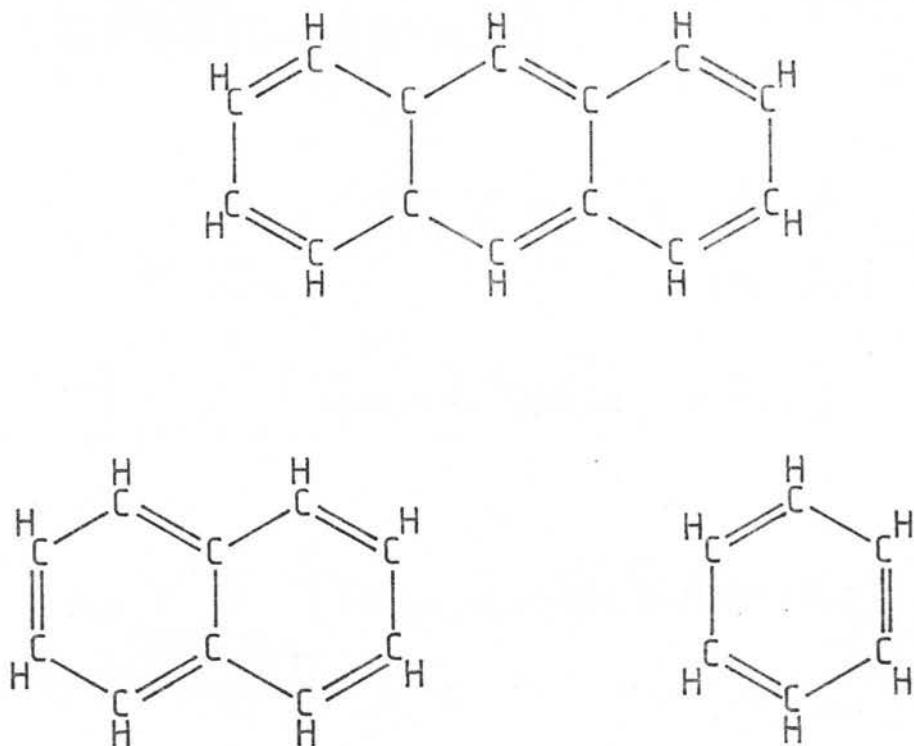
Razlika izmedju energije, koja se gubi pri formiranju eksitona i one koja ide na formiranje slobodnih elektrona i šupljine, zapravo je njihova energija veze i promenljiva je od kristala do kristala. U molekularnim kristalima ta energija može biti nekoliko eV, a uloga eksitona u njima potpuno različita od one u slučaju poluprovodnika gde je ta energija veličine reda stotog dela eV. Za velike energije veze, slobodni nosioci nanelektrisanja mogu se javiti samo kao posledica interakcije eksitona sa primesama ili pak pri sudaru eksitona jednih sa drugima, što je zapravo rezultat neophodnosti velike aktivacione energije za ostvarenje procesa disocijacije eksitona na slobodan elektron i šupljinu.

U ovom radu razmotrićemo Frenkelove eksitone koji se najčešće javljaju u molekularnim kristalima [93].

Tipični molekularni kristali [5] široko su rasprostranjeni medju organskim supstancama i formirani su od aromatičnih molekula antracena, naftacena, pentacena, naftalina i benzola. Kod takvih kristala kovalentna veza unutar molekula je jaka u poređenju sa Van der Walsovim vezama izmedju molekula a jedinjenja koja obrazuju ovi kristali imaju relativno nisku temperaturu ključanja i malu toplotu sublimacije.

Hemiska struktura najtipičnijih predstavnika molekularnih kristala: antracena, benzola i naftalina data je na sl. 1.1.

Za antracen je karakteristično da se u njemu eksitonska stanja javljaju u okolini dva niža singletna pobudjenja molekularna stanja  $f_1$  i  $f_2$  ( $\xi_{f_1} \approx 26500 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\xi_{f_2} \approx 40000 \text{ cm}^{-1}$ ). Benzol je tipičan predstavnik kristala sa



Slika 1.1.

slabim elektronским prelazima premda se oni ipak dešavaju u polju kristala, a u formiranju eksitonske zone svoj udeo daju dipolne interakcije. Kao i u kristalu benzola, u kristalu naftalina za elektronsko pobudjenje presudne su interakcije bliskih suseda.

Eksitonski hamiltonijan se u opštem slučaju, bez nekog detaljnijeg izvodjenja, može napisati na sledeći način [4,5,6]:

$$H = H_0 + H_2 + H_3 + H_4$$

(I.1.1)

gde su:

7.

$$H_0 = N [E_0 + \frac{1}{2} W(00,00)]$$

(I.1.2)

$$H_2 = \sum_{\vec{s}} \sum_{\mu, \nu=1}^M \Delta(\mu, \nu) \mathcal{P}_{\mu\vec{s}}^+ \mathcal{P}_{\nu\vec{s}}^- + \frac{1}{2} \sum_{\vec{s}\vec{s}'} \sum_{\mu, \nu=1}^M X_{\vec{s}\vec{s}'}(\mu, \nu) \mathcal{P}_{\mu\vec{s}}^+ \mathcal{P}_{\nu\vec{s}'}^- + \\ + \frac{1}{2} \sum_{\vec{s}\vec{s}'} \sum_{\mu, \nu=1}^M [Y_{\vec{s}\vec{s}'}(\mu, \nu) \mathcal{P}_{\nu\vec{s}'}^+ \mathcal{P}_{\mu\vec{s}}^- + h.c.]$$

(I.1.3)

$$H_3 = \sum_{\vec{s}\vec{s}'} \sum_{\mu, \nu=1}^M [T_{\vec{s}\vec{s}'}(\mu, \nu) \mathcal{P}_{\mu\vec{s}}^+ \mathcal{P}_{\nu\vec{s}'}^- + h.c.]$$

(I.1.4)

$$H_4 = \sum_{\vec{s}\vec{s}'} \sum_{\mu, \nu=1}^M \sum_{\mu', \nu'=1}^M Z_{\vec{s}\vec{s}'}(\mu, \mu', \nu, \nu') \mathcal{P}_{\mu\vec{s}}^+ \mathcal{P}_{\mu'\vec{s}}^- \mathcal{P}_{\nu\vec{s}'}^+ \mathcal{P}_{\nu'\vec{s}'}^-$$

(I.1.5)

$N$  - predstavlja broj elementarnih celija u kristalu,  $\mathcal{N}$  - broj molekula u elementarnoj celiji, a  $\mathcal{P}^+$  i  $\mathcal{P}$  - operatore kreacije i anhilacije eksitona, zapravo, kvazi-Pauli operatore za koje su definisane relacije:

$$\mathcal{P}_{\mu\vec{s}}^+ = d_{\mu\vec{s}}^+ d_{\mu\vec{s}}^- ; \quad \mathcal{P}_{\mu\vec{s}}^- = d_{\mu\vec{s}}^- d_{\mu\vec{s}}^+$$

i produkti su Fermi operatora koji kreiraju i anihiliraju elektrone u pobudjenom stanju  $\mu$  i osnovnom stanju 0 u molekulu na mestu  $\vec{s} = \vec{u} + \vec{S}_j$  ( $j = 1, 2, 3, \dots, M$ ). U delu fermionskog Hilbertovog prostora, definisanog uslovom  $\sum_{\mu=0}^M d_{\mu\vec{s}}^+ d_{\mu\vec{s}}^- = 1$ , gde je  $M$  broj pobudjenih stanja elektrona, kvazi-Pauli operatori zadovoljavaju kumutacione relacije:

$$[\mathcal{P}_{\mu\bar{s}}, \mathcal{P}_{\mu'\bar{s}}^+] = \delta_{\bar{s}\bar{s}'} [\delta_{\mu\mu'} (1 - \sum_{v=1}^M \mathcal{P}_{v\bar{s}}^+ \mathcal{P}_{v\bar{s}}) - \mathcal{P}_{\mu\bar{s}}^+ \mathcal{P}_{\mu'\bar{s}}]$$

$$[\mathcal{P}_{\mu\bar{s}}, \mathcal{P}_{\mu'\bar{s}'}] = 0 ; \quad \mathcal{P}_{\mu\bar{s}} \mathcal{P}_{\mu'\bar{s}'} = 0 ; \quad \mathcal{P}_{\mu\bar{s}}^+ \mathcal{P}_{\mu'\bar{s}'}^+ = 0 \quad \text{za } \mu \neq \mu'$$

(I.1.6)

Uobičajeni model za razmatranje eksitonских stanja je kristal izdeljen na elemenarne celije unutar kojih je smešten jedan ili više molekula koji pri pobudjivanju kristala mogu preći iz osnovnog stanja ( $f = 0$ ) u jedno od pobudjenih, kada govorimo o dyonivoskoj šemi, ili pak u F ( $f = 1, 2, \dots, F$ ) pobudjenih stanja, kada se zapravo radi o tzv. multinivoskoj energetskoj šemi (sa "f" smo označili skup kvantnih brojeva koji karakteriše dato stanje molekula). Za prostu rešetku i dyonivosku šemu eksitonski hamiltonijan ima sledeći oblik:

$$H_e = H_o^e + H_2^e + H_3^e + H_4^e$$

gde je:

$$H_o^e = N [E_o + \frac{1}{2} \mathcal{W}(00,00)] \quad (I.1.7)$$

$$H_2^e = \Delta \sum_{\vec{u}} P_{\vec{u}}^+ P_{\vec{u}} + \sum_{\vec{u} \vec{m}} X_{\vec{u} \vec{m}} P_{\vec{u}}^+ P_{\vec{m}} + \sum_{\vec{u} \vec{m}} Y_{\vec{u} \vec{m}} (P_{\vec{u}}^+ P_{\vec{m}}^+ + P_{\vec{u}} P_{\vec{m}}) \quad (I.1.9)$$

$$H_3^e = \sum_{\vec{u} \vec{m}} T_{\vec{u} \vec{m}} (P_{\vec{u}}^+ P_{\vec{m}}^+ P_{\vec{u}} + P_{\vec{u}}^+ P_{\vec{u}} P_{\vec{m}}) \quad (I.1.10)$$

$$H_4^e = \sum_{\vec{u} \vec{m}} Z_{\vec{u} \vec{m}} P_{\vec{u}}^+ P_{\vec{u}} P_{\vec{m}}^+ P_{\vec{m}} \quad (I.1.11)$$

Energija pobudjenja izolovanog molekula je:

$$\Delta = E_f - E_0 - W(00,00) + \frac{1}{2} [W(ff,00) + W(00,ff)] \quad (I.1.12)$$

a matrični elementi operatora dipol-dipolne interakcije dati su kao:

$$X_{\vec{n}\vec{m}} = V_{\vec{n}\vec{m}}(f0,0f) = V_{\vec{n}\vec{m}}(0f,f0)$$

$$Y_{\vec{n}\vec{m}} = \frac{1}{2} V_{\vec{n}\vec{m}}(f0,f0) = \frac{1}{2} V_{\vec{n}\vec{m}}(0f,0f)$$

$$T_{\vec{n}\vec{m}} = \frac{1}{2} [V_{\vec{n}\vec{m}}(ff,f0) + V_{\vec{n}\vec{m}}(f0,ff)] = \frac{1}{2} [V_{\vec{n}\vec{m}}(ff,0f) + V_{\vec{n}\vec{m}}(0f,ff)]$$

$$Z_{\vec{n}\vec{m}} = \frac{1}{2} [V_{\vec{n}\vec{m}}(ff,ff) + V_{\vec{n}\vec{m}}(00,00) - V_{\vec{n}\vec{m}}(ff,00) - V_{\vec{n}\vec{m}}(00,ff)]$$

(I.1.13)

$N$  - je sada broj molekula u kristalu, dok su  $P^+$  i  $P$  Pauli operatori koji zadovoljavaju komutacione relacije:

$$[P_{\vec{n}}, P_{\vec{m}}^+] = (1 - 2P_{\vec{n}}^+P_{\vec{m}}) S_{\vec{n}\vec{m}}$$

$$[P_{\vec{n}}, P_{\vec{m}}] = 0 \quad ; \quad P_{\vec{n}}^2 = 0 \quad (I.1.14)$$

Za molekularni kristal tipa antracena vrednosti parametara posmatranog sistema su:

$$\Delta \approx 5 \cdot 10^{-12} \text{ J} \quad ; \quad m_e \approx 10^{-30} \text{ kg}$$

$$|X| \approx |Y| \approx 10^{-20} \text{ J} \quad ; \quad a \approx 10^{-10} \text{ m} \quad (I.1.15)$$

Kao što je poznato, osim što za Pauli operatori nije razvijena odgovarajuća statistika, ni komutacione relacije za njih nisu invarijantne u odnosu na uobičajenu transformaciju prostorne rešetke - recipročna rešetka, što onemogućava uzimanje u obzir translacione simetrije kristala. Zbog mogućnosti ispitivanja kolektivnih osobina, odnosno da bi se mogli opisati neelinearni i anharmonijski efekti optičkih pobudjenja, kao posledica interakcije elementarnih pobudjenja, nadjena je adekvatna metoda [7] sa egzaktnom Boze reprezentacijom Pauli operatora preko beskonačnih bozon-skih redova.

Ukoliko je interakcija medju molekulima slaba može se koristiti tzv. Heitler-Londonova aproksimativna metoda i ima smisla za najniža pobudjena stanja čitavog niza molekularnih kristala kod kojih se spektar najnižih pobudjenih stanja gotovo ne razlikuje od odgovarajućih spektara molekula u gasovitom i tečnom stanju.

Eksitonski hamiltonijan u Heitler-Londonovoj aproksimaciji (posle prelaska na Boze-operatore) može da se napiše u obliku:

$$H_e = H_\Delta + H_x + H_y$$

(I.1.16)

gde su:

$$H_\Delta = \Delta \sum_{\vec{m}} B_{\vec{m}}^+ B_{\vec{m}} \equiv \Delta \sum_{\vec{n} \vec{m}} \delta_{\vec{n} \vec{m}} B_{\vec{n}}^+ B_{\vec{m}}$$

$$H_x = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n} \vec{m}} X_{\vec{n} \vec{m}} B_{\vec{n}}^+ B_{\vec{m}} + \frac{1}{2} \sum_{\vec{n} \vec{m}} X_{\vec{m} \vec{n}} B_{\vec{n}}^+ B_{\vec{m}}$$

$$H_y = \sum_{\vec{n} \vec{m}} Y_{\vec{n} \vec{m}} B_{\vec{n}}^+ B_{\vec{m}}$$

(I.1.17)

Treba ipak reći da su eksitonii samo idealizovana slika optičkih pobudjenja u molekularnim kristalima, a da realnoj slici zapravo odgovaraju polaritonii. Razlog je što pri definisanju eksitona nije uzeta u obzir retardovana interakcija nanelektrisanja kristala i elektromagnetskog polja koje stvara eksitone [8] ili tačnije, nije uzeta u obzir interakcija već stvorenih eksitona sa vakuumskim fotonima kojima se kristal osvetljava.

Uvodjenje polaritona u naša razmatranja povlačilo bi za sobom najpre formiranje hamiltonijana gore pomenuće interakcije i to na sledeći mogući način:

a. U prvom koraku trebalo bi umesto uobičajenog operatora elektronskog impulsa  $\vec{P}$  i odgovarajuće mu kinetičke energije, uključene u eksitonsku karakteristiku  $\Delta$ , uzeti izraz za impuls elektrona u elektromagnetnom polju  $\vec{\Pi} = \vec{P} - \frac{e}{c} \vec{A}$  ( $\vec{A}$  je vektorski potencijal elektromagnetskog polja u kom se kristal nalazi). Kinetička energija sada iznosi  $\frac{\vec{P}^2}{2m_e} - \frac{e}{m_e c} \vec{P} \vec{A} + \frac{e}{2m_e c^2} \vec{A}^2$ , gde je prvi član uključen u eksitonski hamiltonijan, a preostala dva člana predstavljaju retardovanu interakciju elektrona sa elektromagnetskim poljem.

b. Operator vektorskog potencijala  $\vec{A}$  razlaže se po fotonskim operatorima  $a_{kj}^\rightarrow + a_{kj}^+$  po formuli:

$$\vec{A}_{\vec{n}} = \sum_{\vec{k}j} \sqrt{\frac{2\pi\hbar c}{a^3 n_k}} \vec{l}_{kj} e^{i\vec{k}\vec{n}} (a_{kj}^\rightarrow + a_{kj}^+) \quad (\text{I.1.18})$$

gde je  $\vec{l}_{kj}$  - polarizacioni vektor fotona. Istovremeno operator elektronskog impulsa  $\vec{P}$ , kao jednočestični operator, pred-

stavlja linearu kombinaciju operatora  $P^+$  i  $P$ , odnosno

$$\tilde{P}_{\vec{n}} = \langle 0 | \tilde{P} | \vec{n} \rangle P_{\vec{n}} + \langle \vec{n} | \tilde{P} | 0 \rangle P_{\vec{n}}^+.$$

c. Očigledno je da navedene izraze za  $\vec{P}_{\vec{n}}$  i  $\vec{A}_{\vec{n}}$  treba uvrstiti u interakciju -  $\frac{e}{mc} \tilde{P}_{\vec{n}} \vec{A}_{\vec{n}} + \frac{e^2}{2mc} \vec{A}_{\vec{n}}^2$ , pri čemu se posle zamena Pauli operatora iz  $\vec{P}_{\vec{n}}$  Boze operatorima ( $P_{\vec{n}} \rightarrow B_{\vec{n}} = \frac{1}{\sqrt{n}} \sum_{\vec{k}} B_{\vec{k}} e^{i\vec{k}\vec{n}}$ ) i sumiranja po svim  $\vec{n}$  dobija sledeći rezultat za hamiltonijan interakcije izmedju eksitona i vakuumskih fotona:

$$\begin{aligned} H_{int} = & \sum_{\vec{k}\vec{j}} T_{\vec{k}\vec{j}} (B_{\vec{k}}^+ a_{\vec{k}\vec{j}} + a_{\vec{k}\vec{j}}^+ B_{\vec{k}} + B_{\vec{k}} a_{-\vec{k}\vec{j}}^+ + a_{-\vec{k}\vec{j}} B_{\vec{k}}) + \\ & + \sum_{\vec{k}\vec{j}} M_{\vec{k}\vec{j}} (2a_{\vec{k}\vec{j}}^+ a_{\vec{k}\vec{j}} + a_{\vec{k}\vec{j}}^+ a_{-\vec{k}\vec{j}} + a_{-\vec{k}\vec{j}} a_{\vec{k}\vec{j}}) \end{aligned} \quad (I.1.19)$$

Totalni hamiltonijan sistema:

$$H = H_e + H_f + H_{int} \quad (I.1.20)$$

dobija se kada se izrazu (I.1.19) dodaju harmonijski eksitonski hamiltonijan uzet u harmonijskoj aproksimaciji:

$$H_e = \sum_{\vec{k}} E_{e(\vec{k})} B_{\vec{k}}^+ B_{\vec{k}} \quad (I.1.21)$$

i hamiltonijan polja vakuumskih fotona:

$$H_f = \sum_{\vec{k}\vec{j}} \hbar c \omega_{\vec{k}} a_{\vec{k}\vec{j}}^+ a_{\vec{k}\vec{j}} \quad (I.1.22)$$

Hamiltonijan (I.1.20) predstavlja bilinearnu formu po eksitonskim operatorima  $B$  i fotonskim operatorima  $a$ , koja se U-V transformacijama Bogoliubova-Tiablikova:

$$\begin{aligned} B &= U_B \xi + V_B \xi^+ \quad ; \quad a = U_a \xi + V_a \xi^+ \\ U_B^2 - V_B^2 + U_a^2 - V_a^2 &= 1 \end{aligned} \quad (I.1.23)$$

može svesti na dijagonalnu formu po novim Boze operatorima i sledećeg oblika:

$$H_\psi = E_0 + \sum_{\vec{k} \in g} \mathcal{E}_g(\vec{k}) \xi_g^*(\vec{k}) \xi_g(\vec{k}) \quad (I.1.24)$$

Energije  $\mathcal{E}_g(\vec{k})$  mogu se odrediti iz sekularne jednačine sistema [9]:

$$[E_e(\vec{k}) - \mathcal{E}] U_{B\vec{k}} + \sum_{j=1}^2 T_{kj} (U_{a\vec{k}}^{(j)} + V_{a,-\vec{k}}^{(j)}) = 0$$

$$[E_e(\vec{k}) + \mathcal{E}] V_{B,-\vec{k}} - \sum_{j=1}^2 T_{kj} (U_{a,\vec{k}}^{(j)} + V_{-\vec{k}a}^{(j)}) = 0$$

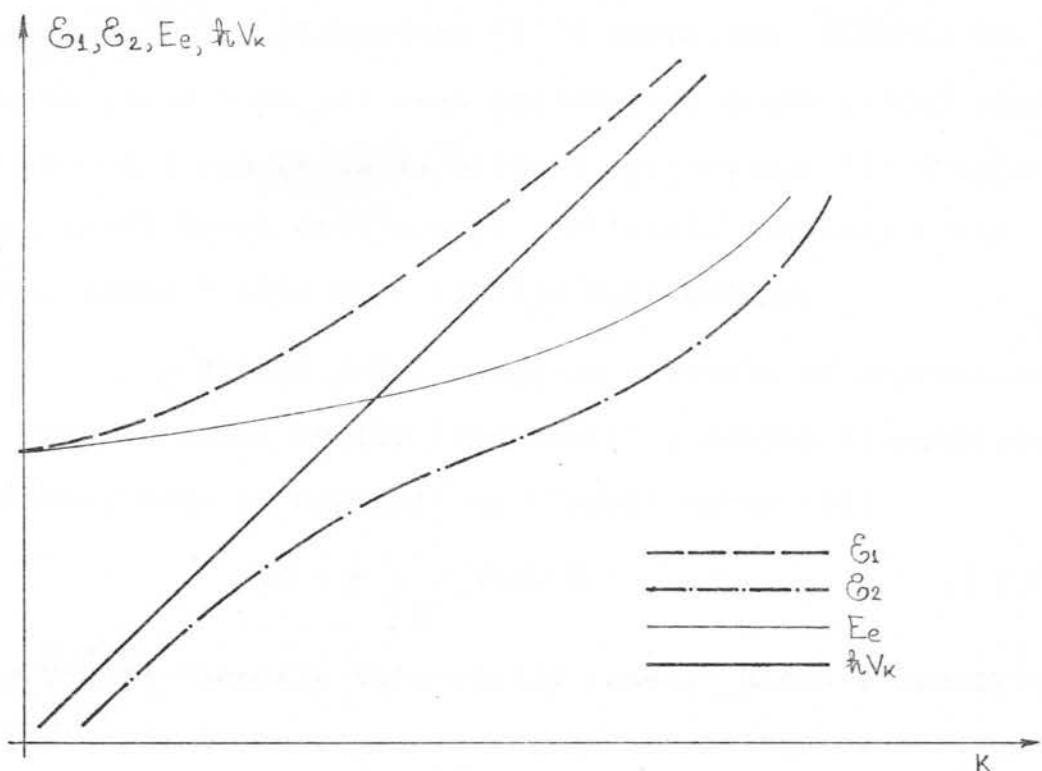
(I.1.25)

$$(\hbar \omega_K - \mathcal{E}) U_{a\vec{k}}^{(j)} - T_{kj} (U_{B\vec{k}} - V_{a,-\vec{k}}) + M_{kj} (U_{a\vec{k}}^{(j)} + V_{a,-\vec{k}}^{(j)}) = 0$$

$$(\hbar \omega_K - \mathcal{E}) V_{a,-\vec{k}} - T_{kj} (U_{B\vec{k}} - V_{a,-\vec{k}}) + M_{kj} (U_{a\vec{k}}^{(j)} + V_{a,-\vec{k}}^{(j)}) = 0$$

Upravo ove elementarne eksitacije kreirane operatorima  $\xi_g^*(\vec{k})$  sa energijama  $\mathcal{E}_g(\vec{k})$  (dobijene kao rešenja sistema (I.1.25)) su polariton, odnosno realno postojeće optičke eksitacije sistema. U zakon disperzije polaritona  $\mathcal{E}$  uključeni su svi realno postojeći efekti i kulanovska interakcija elektrona i retardovana interakcija elektrona sa prisutnim elektromagnetskim poljem.

Na sl. 1.2 grafički su predstavljeni zakoni disperzije polaritona, eksitona i vakuumskih fotona u slučaju kada eksitoni interaguju samo sa jednom od dve postojeće grane vakuumskih fotona.



Slika 1.2.

Očigledno, eksitonska i fotonska energija imaju jednu tačku presecanja i kada se sistem optičkih pobudjenja tretira metodama teorije perturbacija, gde se za hamiltonijan nulte aproksimacije uzima samo  $H_e + H_f$ , dolazi do fizički neobjašnjivih singulariteta. Ukoliko se pak predje na polaritone sa hamiltonijanom nulte aproksimacije  $H_\psi$ , ovi singulariteti se ne javljaju u računu budući da se dve polarske grane ne presecaju ni u jednoj tački.

## I.2. FONONI I INTERAKCIJA SA EKSITONIMA

Kada govorimo o **fononima**, nije reč o pobudjenjima individualnih atoma, nego o kvantima oscilovanja celog kristala, odnosno o stacionarnim pobudjenim stanjima kristala, raspodeljenim po čitavom kristalu, okarakterisanim talas-

nim vektorom  $\vec{k}$ , kvaziimpulsom  $\vec{k}$  i energijom  $E(\vec{k})$ . Na taj način jedan atom pri svom oscilovanju oseća uticaj okolnih atoma, a i sam utiče na njihovo oscilovanje ili drugim rečima, svaki kvant oscilovanja u kristalu odražava čitav kolektiv atoma i sila koje izmedju njih deluju.

Potencijalna energija kristala na absolutnoj nuli, kada su atomi prosto "zamrznuti" u svojim ravnotežnim položajima, može se napisati na sledeći način [10]:

$$\nabla U = \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}-\vec{m}} V(\vec{n}-\vec{m}) \quad (I.2.1)$$

gde je  $V(\vec{n}-\vec{m})$  energija interakcije izmedju atoma u čvorovima  $\vec{n}$  i  $\vec{m}$ . Kada temperatura raste, atomi počinju da osciluju što menja izraz za interakciju u smislu:

$$V\{(\vec{n}-\vec{m}) + [\vec{U}(\vec{n},t) - \vec{U}(\vec{m},t)]\} \quad (I.2.2)$$

$\vec{U}(n,t)$  predstavlja veličinu pomeraja atoma iz ravnotežnog položaja. Pri dovoljno niskim temperaturama, kada su ti pomeraji mali, funkcija (I.2.2) se može razviti u red na sledeći način:

$$\begin{aligned} & V\{(\vec{n}-\vec{m}) + [\vec{U}(\vec{n}) - \vec{U}(\vec{m})]\} \approx V(\vec{n}-\vec{m}) + \\ & + \sum_{\vec{n}-\vec{m}\alpha} \left[ \frac{\partial V(\vec{n}-\vec{m})}{\partial(\vec{n}-\vec{m})_\alpha} \right]_{\vec{U}(\vec{n})=0} [\vec{U}_\alpha(\vec{n}) - \vec{U}_\alpha(\vec{m})] + \\ & + \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}-\vec{m}\alpha\beta} \left[ \frac{\partial^2 V(\vec{n}-\vec{m})}{\partial(\vec{n}-\vec{m})_\alpha \partial(\vec{n}-\vec{m})_\beta} \right]_{\vec{U}(\vec{n}), \vec{U}(\vec{m})=0} [\vec{U}_\alpha(\vec{n}) - \vec{U}_\alpha(\vec{m})][\vec{U}_\beta(\vec{n}) - \vec{U}_\beta(\vec{m})] \end{aligned} \quad (I.2.3)$$

$\alpha, \beta \in (x, y, z)$

Zbog kratkoće pisanja izostavljamo vremensku zavisnost vektora  $\vec{U}$ .

Oscilatorni hamiltonijan sistema dobija se, nakon sumiranja po svim čvorovima trećeg člana u izrazu (I.2.3), dodavanja kinetičke energije zbog oscilovanja atoma, uz uslov stabilnosti kristala, u obliku:

$$\begin{aligned} H = \sum_{\vec{n}\alpha} \frac{M}{2} \dot{U}_\alpha^2(\vec{n}) + \frac{1}{4} \sum_{\vec{n}\vec{m}\alpha\beta} C_{\alpha\beta}(\vec{n}-\vec{m}) [U_\alpha(\vec{n}) - U_\alpha(\vec{m})] [U_\beta(\vec{n}) - U_\beta(\vec{m})] \\ C_{\alpha\beta}(\vec{n}-\vec{m}) = \left[ \frac{\partial^2 V(\vec{n}-\vec{m})}{\partial(\vec{n}-\vec{m})_\alpha \partial(\vec{n}-\vec{m})_\beta} \right] \vec{U}_{(\vec{n})}, \vec{U}_{(\vec{m})} = 0 \end{aligned} \quad (I.2.4)$$

Izraz za potencijalnu energiju u relaciji (I.2.4) može se napisati u aproksimaciji najblžih suseda, s obzirom na činjenicu da sile koje deluju izmedju atoma, za većinu slučajeva brzo opadaju sa porastom rastojanja izmedju atoma. Uz ovu aproksimaciju, hamiltonijan sistema je:

$$H = \sum_{\vec{n}\alpha} \frac{M}{2} \dot{U}_\alpha^2(\vec{n}) + \frac{1}{4} \sum_{\vec{n}\vec{\lambda}\alpha\beta} C_{\alpha\beta} [U_\alpha(\vec{n}) - U_\alpha(\vec{n}-\vec{\lambda})] [U_\beta(\vec{n}) - U_\beta(\vec{n}-\vec{\lambda})] \quad (I.2.5)$$

$\vec{\lambda}$  - povezuje atome na mestu  $\vec{n}$  sa njegovim najblžim susedima.

Dinamičko ponašanje posmatranog sistema vezanih oscilatora regulisano je drugim Newton-ovim zakonom:

$$M \ddot{U}_\alpha(\vec{n}) = F_\alpha(\vec{n}) \quad (I.2.6)$$

Imajući u vidu simetričnost koeficijenata  $C_{\alpha\beta}$ , nakon diferenciranja potencijalne energije po komponentama pomeraja, dobijamo izraz za komponentu sile koja deluje na atom u čvoru  $\vec{n}$ :

$$M\ddot{U}_\alpha(\vec{n}) = E_\alpha(\vec{n}) = \frac{1}{2} \sum_{\beta\lambda} C_{\alpha\beta} [U_\beta(\vec{n}+\vec{\lambda}) + U_\beta(\vec{n}-\vec{\lambda}) - 2U_\beta(\vec{n})]$$

Rešenja ovog sistema jednačina traže se u obliku ravnih talasa:

$$U_\alpha(\vec{n}) = A_\alpha(\vec{k}) e^{i\vec{k}\vec{n} - it\omega(\vec{k})} \quad (I.2.7)$$

te za komponente amplituda  $A_\alpha(\vec{k})$  imamo sistem algebarskih jednačina:

$$\sum_\beta [\omega^2(\vec{k}) \delta_{\alpha\beta} - f(\vec{k}) C_{\alpha\beta}] A_\beta(\vec{k}) = 0 \quad (I.2.8)$$

$$\alpha, \beta \in (x, y, z) \quad ; \quad f(\vec{k}) = \frac{2}{M} \sum_\lambda \sin^2 \frac{\vec{k}\vec{\lambda}}{2}$$

koji daje tri pozitivna rešenja za dozvoljene frekvencije  $\omega(\vec{k})$  (determinanta sistema mora biti ravna nuli).

U slučaju proste kubne strukture i malih talasnih vektora, funkcija  $f(\vec{k})$  dobija oblik:

$$f(\vec{k}) = \frac{\alpha^2 k^2}{M} \quad ; \quad k = |\vec{k}|$$

$M$  - je masa atoma.

Ukoliko su koeficijenti torzije  $C_{\alpha\beta}$  ( $\alpha \neq \beta$ ) zanemarljivo mali u odnosu na koeficijente istezanja  $C_{\alpha\alpha}$ , za frekvencije  $\omega(\vec{k})$  imamo tri rešenja:

$$\omega_\alpha(k) = v_\alpha k \quad ; \quad v_\alpha = \alpha \sqrt{\frac{C_{\alpha\alpha}}{M}}$$

gde su, kao što je poznato  $v_\alpha$  - brzine različitih komponenti zvučnih talasa u kristalu. Za male vrednosti talasnog vektora ovi talasi imaju linearan zakon disperzije:

$$\tilde{E}_\alpha(k) = \hbar \omega_\alpha(k) = \hbar k v_\alpha = p v_\alpha$$

a odgovarajući mu kvantni mehaničkih pobudjenja nazivaju se **akustičkim fononima**.

Kada je u pitanju kristal složene strukture, odnosno, u slučaju da elementarna ćelija kristala sadrži  $\sigma$  molekula, za dozvoljene frekvencije imamo  $3\sigma$  rešenja, od kojih tri uvek teže nuli pri  $k \rightarrow 0$  (akustički fononi), a za  $3\sigma-3$  važi da je  $\lim_{\vec{k} \rightarrow 0} \omega(\vec{k}) \neq 0$  i govorimo o **optičkim fononima**. Za pobudjivanje ovih poslednjih potreban je neki prag energije.

Da bi se hamiltonijan sistema vezanih oscilatora sveo na hamiltonijan nezavisnih oscilatora, potrebno je razviti pomeranja  $\vec{U}(\vec{n}, t)$  po ravnim talasima tipa (I.2.7) [11]:

$$\vec{U}(\vec{n}, t) = \sum_{\vec{k} j} \sqrt{\frac{\hbar}{2MN \omega_j(\vec{k})}} \vec{b}_j(\vec{k}) [b_j(\vec{k}) e^{i\vec{k}\vec{n} - it\omega_j(\vec{k})} + b_j^+(\vec{k}) e^{-i\vec{k}\vec{n} - it\omega_j(\vec{k})}] \quad (I.2.9)$$

$b_j^+(\vec{k})$  i  $b_j(\vec{k})$  - su Boze operatori koji kreiraju, odnosno anihiliraju fonone sa energijama  $\hbar\omega_j(\vec{k})$ , a  $\vec{b}_j(\vec{k})$  polarizacioni fononski vektori  $j$ -te fononske grane.

Hamiltonijan (I.2.5) sada postaje:

$$H = \sum_{\vec{k} j} \left[ \omega_j(\vec{k}) + \frac{1}{2} \right] \hbar \omega_j(\vec{k})$$

$$\omega_j(\vec{k}) = b_j^+(\vec{k}) b_j(\vec{k}) \quad (I.2.10)$$

a za hamiltonijan celoga sistema suma hamiltonijana nezavisnih oscilatora je:

$$H_{\vec{R}} = \left[ u_g(\vec{R}) + \frac{1}{2} \right] \hbar \omega_g(\vec{R}) \quad (I.2.11)$$

Diferenciranjem ukupne energije po broju fonona dobijaju se energije fonona:

$$E_g(\vec{R}) = \frac{\partial H}{\partial u_g(\vec{R})} = \hbar \omega_g(\vec{R}) \quad (I.2.12)$$

Analize čistog eksitonskog sistema mogu se uopštiti uvodjenjem fononskog podsistema i interakcije izmedju eksitona i fonona [12].

Ukoliko je rezonansna interakcija bitnija od promene Van-der-Walsove interakcije, odnosno, ako je u pitanju tzv. "tvrdi" rešetka kristala, onda se u kristalu obrazuju eksitonska stanja bez lokalne deformacije kristala. U tom slučaju interakcija eksitona sa oscilovanjima molekula u kristalu svodi se na kreaciju i anihilaciju fonona. Ovu pojavu nazivamo slabom vezom eksitona sa fononima i u interakciji eksitona i fonona glavnu ulogu imaju jednofononski procesi.

Ako su pak u pitanju tzv. "meke rešetke" moguća su elektronska pobudjenja kristala (pojava eksitonskih stanja) koja prati deformacija celokupne rešetke, uz očuvanje njene translacione invarijantnosti i tada govorimo o jakoj vezi eksitona sa fononima. Uporedo sa jednofononskim procesima sada bitnu ulogu imaju i višefononski.

Pri slaboj rezonansnoj interakciji i lakoj deformaciji kristala, uporedo sa pobudjenjem molekula dešava

se lokalna deformacija kristalne rešetke i to odgovara slučaju jake veze elektronskog pobudjenja sa oscilovanjima rešetke.

U realnim uslovima dešavaju se, zapravo, neke medjusituacije, a karakter same eksiton-fonon veze zavisi dosta i od temperature kristala. Po pravilu, povećanje temperature povlači za sobom povećanje jačine veze.

Do hamiltonijana eksiton-fonon interakcije, prema postojećoj literaturi, dolazi se tako što se predpostavlja da čvorovi rešetke  $\vec{n}$ , pri povišenoj temperaturi, dobiju malu oscilatornu popravku  $\vec{U}_n$ , da bi se u narednom koraku razvili u red, po ovim malim popravkama, matrični elementi interakcije izmedju čvorova.

Za slučaj "zamrznutog" harmonijskog eksiton-skog hamiltonijana, u kome su zanemareni efekti neodržanja eksitona, imamo:

$$H_{oe} = \Delta \sum_n B_n^+ B_n^- + \sum_{\vec{n} \vec{m}} X_{\vec{n}\vec{m}} B_{\vec{n}}^+ B_{\vec{m}}^- \quad (I.2.13)$$

Kada je, zbog nekog razloga, prisutno oscilovanje molekula, tj. kada postoji odgovarajući molekulski pomjeraji  $\vec{U}_{\vec{n}}$  i  $\vec{U}_{\vec{m}}$ :

$$\vec{n} \longrightarrow \vec{n} + \vec{U}_{\vec{n}} ; \quad \vec{m} \longrightarrow \vec{m} + \vec{U}_{\vec{m}} \quad (I.2.14)$$

i

$$X_{\vec{n}\vec{m}} \equiv X_{\vec{n}-\vec{m}} \longrightarrow X_{\vec{n}-\vec{m} + \vec{U}_{\vec{n}} - \vec{U}_{\vec{m}}} \quad (I.2.15)$$

nakon Fourie transformacije tipa:

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

$$B_{\vec{R}}^+ = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{k}} e^{-i\vec{k}\vec{R}} B_{\vec{k}}^+ \quad (I.2.16)$$

hamiltonijan (I.2.13) će dobiti popravku koja zavisi od pomeraja molekula i predstavlja traženi hamiltonijan eksiton-fonon interakcije.

U slučaju linearne aproksimacije po pomerajima i prelaskom u impulsni prostor u kome se pomeraj transformiše na poznati način:

$$\tilde{U}_{\vec{R}} = \sum_{\vec{k}, j} \left( -\frac{\hbar}{2M\omega_{kj}} \right)^{1/2} \tilde{b}_{kj} (b_{kj} + b_{-kj}^+) e^{i\vec{k}\vec{R}} \quad (I.2.17)$$

(M - je masa molekula,  $\omega_{kj}$  - fononska frekvencija za j-tu granu), dolazi se do sledećeg rezultata:

$$\tilde{H}_o = H_{oe} + H_{oep} \quad (I.2.18)$$

gde je:

$$H_{oe} = \sum_{\vec{k}} (\Delta + X_{\vec{k}}) B_{\vec{k}}^+ B_{\vec{k}} \quad (I.2.19)$$

hamiltonijan "zamrznutog" sistema i:

$$H_{oep} = \frac{i}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{k}, \vec{j}} \left( -\frac{\hbar}{2M\omega_{kj}} \right)^{1/2} \tilde{b}_{kj} [\vec{k}X_{\vec{k}} + (\vec{k}-\vec{j})X_{\vec{k}-\vec{j}}] B_{\vec{k}-\vec{j}}^+ B_{\vec{k}} (b_{-kj} + b_{-kj}^+) \quad (I.2.20)$$

hamiltonijan eksiton-fonon interakcije.

Pokazalo se da je konstanta eksiton-fonon interakcije u ovom hamiltonijanu nedovoljno velika - da bi se objasnile eksperimentalne činjenice: anomalno veliko širenje eksitonskih linija, Urbahovo pravilo itd. Ovi problemi mogu se rešiti ako se predpostavi da, usled fononskih pomeraja, nastupa lokalna deformacija elektromagnetsnog polja [13-16]. To znači sledeće:

$$\tilde{H}_{oe} = \sum_{\vec{n} \vec{m}} (\Delta \delta_{\vec{n}-\vec{m}+\vec{U}_n-\vec{U}_m} + X_{\vec{n}-\vec{m}+\vec{U}_n-\vec{U}_m}) B_{\vec{n}}^+ B_{\vec{m}}$$

$$\delta_{\vec{n}-\vec{m}+\vec{U}_n-\vec{U}_m} = \frac{1}{\sqrt{P}} \sum_{\vec{k}} e^{i\vec{k}(\vec{n}-\vec{m}) + i\vec{k}(\vec{U}_n-\vec{U}_m)} \quad (I.2.21)$$

Nakon ekvivalentnog postupka kao i ranije i uz istu aproksimaciju, da je  $e^{i\vec{k}(\vec{U}_n-\vec{U}_m)} \approx 1 + i\vec{k}(\vec{U}_n-\vec{U}_m)$ , dolazi se do hamiltonijana eksiton-fonon interakcije u aproksimaciji lokalne deformacije polja, odnosno:

$$H_{oe}^{(1)} = \frac{i}{\sqrt{P}} \sum_{\vec{k} \vec{q}} \left( -\frac{\hbar}{2M\omega_{\vec{q}}} \right)^{1/2} \tilde{b}_{\vec{q}} [\tilde{\epsilon} \Delta + \vec{k} \cdot \vec{X}_{\vec{q}} +$$

$$+ (\vec{k} - \vec{q}) X_{\vec{k}-\vec{q}}] B_{\vec{k}-\vec{q}}^+ B_{\vec{q}} (b_{\vec{q}} + b_{\vec{q}}^+) \quad (I.2.22)$$

Korišćenjem ovog hamiltonijana uspešno se može objasniti Urbahovo pravilo i donekle, anomalno veliko širenje eksitonskih linija.

Ako sada u razmatranje uključimo dinamičke interakcije eksitonskog sistema, da bi došli do hamiltonijana eksiton-fonon interakcije, paći ćemo od eksitonskog hamiltonijana:

$$H_{\text{ef}} = \sum_{\vec{n}, \vec{m}} (\Delta \delta_{\vec{n}\vec{m}} + X_{\vec{n}\vec{m}}) P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{m}} +$$

$$+ \sum_{\vec{n}, \vec{m}} Z_{\vec{n}\vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}} P_{\vec{m}}^+ P_{\vec{m}}$$
(I.2.23)

gde su  $P^+$  i  $P$  - Pauli operatori kreakcije i anihilacije eksitona. Nakon prelaza  $\vec{n} \rightarrow \vec{n} + \vec{U}_{\vec{n}}$ ;  $\vec{m} \rightarrow \vec{m} + \vec{U}_{\vec{m}}$ , izvršićemo Fourier-transformacije [17] za  $\delta_{\vec{n}-\vec{m}+\vec{U}_{\vec{n}}-\vec{U}_{\vec{m}}}$ ,  $X_{\vec{n}-\vec{m}+\vec{U}_{\vec{n}}-\vec{U}_{\vec{m}}}$  i  $Z_{\vec{n}-\vec{m}+\vec{U}_{\vec{n}}-\vec{U}_{\vec{m}}}$ . Ubacivanjem ovih izraza, kao i relacije (I.2.17) u (I.2.23), hamiltonijan eksiton-fonon interakcije možemo zapisati na sledeći način:

$$H_{\text{ef}} = \sum_{\vec{n}, \vec{m}} \hat{\Lambda}_{\vec{n}\vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{m}} + \sum_{\vec{n}, \vec{m}} \hat{F}_{\vec{n}\vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}} P_{\vec{m}}^+ P_{\vec{m}}$$

gde su: (I.2.24)

$$\begin{aligned} \hat{\Lambda}_{\vec{n}\vec{m}} &= i \beta P^{-\frac{1}{2}} \sum_{\vec{k}, \vec{z}} \left( -\frac{\hbar}{2M\omega_{\vec{z}}} \right)^{1/2} \vec{k} \vec{b}_{\vec{z}} E_{\vec{k}} (b_{\vec{z}} + b_{-\vec{z}}^+) \times \\ &\times e^{i\vec{k}(\vec{n}-\vec{m})} (e^{i\vec{z}\vec{n}} - e^{i\vec{z}\vec{m}}) \end{aligned}$$

$$E_{\vec{k}} = \Delta + X_{\vec{k}} ; \quad \hat{\Lambda}_{\vec{n}\vec{n}} = \hat{\Lambda}_{\vec{m}\vec{m}} = \hat{\Lambda}_{\vec{n}\vec{n}}^+ ; \quad \hat{\Lambda}_{\vec{m}\vec{n}} = 0$$

i:

(I.2.25)

$$\begin{aligned} \hat{F}_{\vec{n}\vec{m}} &= \sum_{\vec{k}, \vec{z}} \left( -\frac{\hbar}{2M\omega_{\vec{z}}} \right)^{1/2} \vec{k} \vec{b}_{\vec{z}} Z_{\vec{k}} (b_{\vec{z}} + b_{-\vec{z}}^+) e^{i\vec{k}(\vec{n}-\vec{m})} \times \\ &\times (e^{i\vec{z}\vec{n}} - e^{i\vec{z}\vec{m}}) \end{aligned}$$

$$\hat{F}_{\text{ex}} = \hat{F}_{\text{ax}} = \hat{F}_{\text{tx}} \quad ; \quad \hat{F}_{\text{ar}} = 0 \quad (\text{I.2.26})$$

U postojećoj literaturi [9,12] interakcija izmedju eksitona i fonona se smatra presudnom kada su u pitanju procesi refrakcije i apsorpcije u molekularnim kristalima. Ove pojave se ipak ne smeju tretirati kao isključiv rezultat parametarskih nelinearnih efekata (eksiton-fonon interakcije), o čemu će više reći biti kasnije.

Treba još napomenuti da je, prilikom formiranja hamiltonijana (I.2.24) uzeta u obzir samo interakcija eksitona sa longitudinalnom fononskom granom.

### II.3. MIKROTEORIJA DIELEKTRIČNE KONSTANTE U HARMONIJSKOJ APROKSIMACIJI

Jedan od osnovnih zadataka mikroteorije je svakako pitanje izračunavanja tensora dielektrične konstante ili, tačnije, tensora dielektrične permeabilnosti koji povezuje električnu indukciju sa poljem na poznati način [10]:

$$D_{\alpha}(\vec{k}, \omega) = \tilde{\epsilon}_{\alpha\beta}(\vec{k}, \omega) E_{\beta}(\vec{k}, \omega) \quad \alpha, \beta \in (x, y, z) \quad (\text{I.3.1})$$

Tenzor  $\tilde{\epsilon}_{\alpha\beta}(\vec{k}, \omega)$  predstavlja osnovnu karakteristiku sredine kroz koju se prostire elektromagnetsko zračenje i suštinski zavisi od njene unutrašnje dinamike i mikroprocesa koji se u njoj dešavaju. Od velikog je značaja, na koji način povezati tenzor dielektrične permeabilnosti sa mikrokarakteristikama sredine kroz koju se prostire elektro-

magnetno zračenje. Rešavanje ovog problema podrazumeva uključivanje srednje vrednosti operatora elektromagnetskog polja i odgovarajuće kombinovanje Maxwell-ovih jednačina sa materijalnom jednačinom, čime bi se omogućilo da se u izraz za tenzor dielektrične permeabilnosti ugrade mikrodinamika i strukturne karakteristike sredine. Budući da su operatori elektromagnetskog polja u sredini linearne funkcionalne operatorkreacije i anihilacije optičkih pobudjenja date sredine, njihove ravnotežne srednje vrednosti su jednake nuli. Zbog toga u obzir dolaze samo neravnotežne srednje vrednosti, a samim tim bitan je izbor spoljašnje perturbacije, momenata njenog uključivanja i još neka pitanja o tačnosti aproksimacije u kojoj treba računati. Kada je materijalna sredina molekularni kristal moguće je (na prilagođen način), koristiti prilaz Dialoshinskog i Pitaievskog [18].

Kao spoljašnja perturbacija uzima se interakcija elektromagnetskog polja sa spoljašnjim strujama koja za slučaj diskretnog kristalne strukture ima oblik:

$$\mathcal{W}(t') = -\frac{1}{C} \sum_{\vec{n}'} A_\beta(\vec{n}', t') j_\beta^{\text{ext}}(\vec{n}', t') \quad (\text{I.3.2})$$

gde su  $j^{\text{ext}}$  - gustine spoljašnjih struja,  $A$  - komponente neperturbovanog operatora vektorskog potencijala u kristalu (u reprezentaciji interakcije).

Neravnotežna srednja vrednost  $A_\alpha(\vec{n}, t)$  vektorskog potencijala može se naći u aproksimaciji linearne odziva i u aproksimaciji linearne po interakciji  $\mathcal{W}$ , za nju imamo sledeći izraz:

$$\langle A_\alpha(\vec{r}, t) \rangle_t = \frac{i}{\hbar c} \sum_{\vec{R}} \int_{-\infty}^{\infty} dt' F_{\alpha\beta}(\vec{r} - \vec{R}; t - t') j_\beta^{\text{ext}}(\vec{R}, t') \quad (I.3.3)$$

$F_{\alpha\beta}(\vec{r} - \vec{R}; t - t')$  - je Green-ova funkcija elektromagnetskog polja u kristalu oblika:

$$F_{\alpha\beta}(\vec{r} - \vec{R}; t - t') = \theta(t - t') \langle A_\alpha(\vec{r}, t) A_\beta(\vec{R}, t') - A_\beta(\vec{R}, t') A_\alpha(\vec{r}, t) \rangle_0 \quad (I.3.4)$$

Izraz (I.3.4) predstavlja gradijentno neinvrijantnu veličinu (zbog komponenti vektorskog potencijala) i na osnovu:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = -\frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \vec{A}(\vec{r}, t) \quad (I.3.5)$$

funkcija  $F$  može se izraziti preko komponenata električnog polja, tačnije preko GF-e oblika:

$$\Lambda_{\alpha\beta}(\vec{r} - \vec{R}; t - t') = \theta(t - t') \langle E_\alpha(\vec{r}, t) E_\beta(\vec{R}, t') - E_\beta(\vec{R}, t') E_\alpha(\vec{r}, t) \rangle_0 = \\ = \langle\langle E_\alpha(\vec{r}, t) | E_\beta(\vec{R}, t') \rangle\rangle \quad (I.3.6)$$

koja predstavlja gradijentno invarijantnu karakteristiku sistema. Nakon uzastopne primene, najpre operatora  $C^{-1} \frac{\partial}{\partial t}$  na funkciju  $F_{\alpha\beta}$ , a zatim na dobijeni izraz operatora  $C^{-1} \frac{\partial}{\partial t}$ , nakon Fourier transformacija tipa:

$$\langle \Psi_\alpha(\vec{r}, t) \rangle = \frac{1}{V^2} \sum_{\vec{k}} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \Psi(\vec{k}, \omega) e^{i\vec{k}\vec{r} - i\omega t} \quad (I.3.7)$$

relacija za  $F_{\alpha\beta}$  se svodi na:

$$F_{\alpha\beta}(\vec{R}, \omega) = 4i\hbar \frac{C^2}{\omega^2} \tilde{S}_{\alpha\beta} + \frac{C^2}{\omega^2} \Lambda_{\alpha\beta}(\vec{R}, \omega) \quad (I.3.8)$$

S obzirom na (I.3.9) koja nakon Fourier-transformacija tipa (I.3.7) prelazi u

$$\langle A_\alpha(\vec{R}, \omega) \rangle_t = \frac{i\pi}{\hbar C} F_{\alpha\beta}(\vec{R}, \omega) \hat{J}_\beta^{ext}(\vec{R}, \omega) \quad (I.3.9)$$

kombinovanjem poslednjeg izraza sa (I.3.8) dobija se srednja vrednost  $\langle A_\alpha(\vec{R}, \omega) \rangle_t$ , izražena preko gradijentno invarijantne funkcije  $\Lambda_{\alpha\beta}(\vec{R}, \omega)$ :

$$\langle A_\alpha(\vec{R}, \omega) \rangle_t = \left[ -\frac{4\pi i C}{\omega^2} \tilde{S}_{\alpha\beta} + \frac{8\pi i C}{\hbar\omega^2} \Lambda_{\alpha\beta}(\vec{R}, \omega) \right] \hat{J}_\beta^{ext}(\vec{R}, \omega) \quad (I.3.10)$$

Ovde još uvek ne figurišu eksplicitno mikrokarakteristike molekularnog kristala budući da su one izražene kroz eksitonske ili tačnije, poloritonske zakone disperzije. To znači da bi naredni korak bio izražavanje funkcije  $\Lambda_{\alpha\beta}(\vec{R}, \omega)$  preko polaritonskih GF-a. Kao što je poznato, operator električnog polja u kristalu, kao jednočestični operator, predstavlja linearu kombinaciju operatora koji kreiraju i anihiliraju eksitone  $P^+$  i  $P$  tipa:

$$E_\alpha(\vec{r}, t) = \tau_0^{1/2} S_\alpha [P(\vec{r}, t) + P^*(\vec{r}, t)]$$

$$S_\alpha = \langle 0 | E_\alpha | f \rangle = \langle f | E_\alpha | 0 \rangle \quad (I.3.11)$$

$E_{0\alpha}$  - je lokalno polje u kristalnoj sferi, a  $\tau_0$  - zapremina elementarne celije.

U harmonijskoj aproksimaciji u formuli (I.3.11) Pauli operatori  $P$  zamenjuju se Boze operatorima  $B$ , a ovi se na napred opisani način izraze preko poloritonskih operatora  $\xi$ . Poloritonske GF-e, koje ulaze u  $A$ , računaju se sa dijagonalnim poloritonskim hamiltonijanom.

Smenom (I.3.11) u (I.3.6), nakon Fourie transformacija tipa (I.3.7) dobijamo:

$$A_{\alpha\beta}(\vec{r}, \omega) = S_\alpha S_\beta [\mu(\vec{r}, \omega) + \tilde{\mu}(\vec{r}, \omega) + \nu(\vec{r}, \omega) + \tilde{\nu}(\vec{r}, \omega)]$$

$$\mu(\vec{r}, \omega) = \langle\langle \xi_g(\vec{r}) | \xi_g^+(\vec{r}) \rangle\rangle \omega$$

$$\tilde{\mu}(\vec{r}, \omega) = \langle\langle \xi_g^+(\vec{r}) | \xi_g(\vec{r}) \rangle\rangle \omega$$

$$\nu(\vec{r}, \omega) = \langle\langle \xi_g^+(\vec{r}) | \xi_g^+(\vec{r}) \rangle\rangle \omega$$

$$\tilde{\nu}(\vec{r}, \omega) = \langle\langle \xi_g(\vec{r}) | \xi_g(\vec{r}) \rangle\rangle \omega \quad (I.3.12)$$

$\mu$  i  $\nu$  su Fourie-likovi retardovanih, a  $\tilde{\mu}$  i  $\tilde{\nu}$  avansovanih komutatorskih poloritonskih GF-a. Koristeći se relacijom (I.3.12) dobijamo izraz za neravnotežnu srednju vrednost operatora vektorskog potencijala:

$$\langle A_\alpha(\vec{r}, \omega) \rangle_t = \left\{ -\frac{4\pi c}{\omega^2} \delta_{\alpha\beta} + \frac{i\pi c S_\alpha S_\beta \zeta_\beta}{\pi \omega^2} [ \mu(\vec{r}, \omega) + \tilde{\mu}(\vec{r}, \omega) + \nu(\vec{r}, \omega) + \tilde{\nu}(\vec{r}, \omega) ] \right\}_{\beta}^{ext}(\vec{r}, \omega) \quad (I.3.13)$$

Neravnotežna srednja vrednost je zapravo rezultat merenja i može se identifikovati sa vrednošću vektorskog potencijala iz fenomenoloških Maxwell-ovih jednačina, odnosno:

$$\langle \mathbf{A}_\alpha(\vec{k}, \omega) \rangle_t = A_\alpha^{\text{fen}}(\vec{k}, \omega) \quad (\text{I.3.14})$$

$A_\alpha^{\text{fen}}(\vec{k}, \omega)$  određuje se iz Maxwell-ovih jednačina uz pretpostavku da su spoljašnje struje prisutne, a gustina spoljašnjih nanelektrisanja jednaka nuli. Nakon poznate procedure [10], dolazimo do rezultata:

$$A_\alpha^{\text{fen}}(\vec{k}, \omega) = \frac{4\pi}{c} \mathcal{C}_{\alpha\beta}^{-1}(\vec{k}, \omega) j_\beta^{\text{ext}}(\vec{k}, \omega) \quad (\text{I.3.15})$$

gde je

$$\mathcal{C}_{\alpha\beta}(\vec{k}, \omega) = K^2 S_{\alpha\beta} K_\alpha K_\beta - \frac{\omega^2}{c^2} \mathcal{E}_{\alpha\beta}(\vec{k}, \omega) \quad (\text{I.3.16})$$

U poslednjoj fazi povezuje se tenzor dielektrične permeabilnosti sa Green-ovim funkcijama poloritonskog sistema (longitudinalni polariton - II) i imamo:

$$\begin{aligned} \mathcal{C}_{\alpha\beta}^{-1}(\vec{k}, \omega) = & -\frac{c^2}{\omega^2} \left\{ \tilde{S}_{\alpha\beta} - i \frac{S_\alpha^{||} S_\beta^{||} \mathcal{C}_0}{4\pi} \left[ \mathcal{U}(\vec{k}, \omega) + \tilde{\mathcal{U}}(\vec{k}, \omega) + \right. \right. \\ & \left. \left. + \mathcal{V}(\vec{k}, \omega) + \tilde{\mathcal{V}}(\vec{k}, \omega) \right] \right\} \end{aligned} \quad (\text{I.3.17})$$

Pri zanemarivanju prostorne disperzije ( $\vec{k}=0$ ) u izotropnoj aproksimaciji:

$$\mathcal{E}_{\alpha\beta}(0, \omega) = \mathcal{E}(0, \omega) \tilde{S}_{\alpha\beta}$$

$$S_\alpha^{||} S_\beta^{||} = |S_\beta(0)|^2 \tilde{S}_{\alpha\beta} \quad (\text{I.3.18})$$

iz formule (I.3.17) dobijamo da je

$$\frac{1}{\epsilon(\omega)} = 1 - i \frac{|S_g^{\parallel}(0)|^2 \tilde{\epsilon}_0}{4\pi} [\mu_0(\omega) + \tilde{\mu}_0(\omega) + \nu_0(\omega) + \tilde{\nu}_0(\omega)]$$

$$\mu_0(\omega) \equiv \mu(0, \omega) \quad (I.3.19)$$

Nakon naloženja GF-a uz pomoć harmonijskog polaritonskog hamiltonijana

$$H = \sum_{\vec{k}g} \tilde{\epsilon}_g(\vec{k}) \tilde{\xi}_g^+(\vec{k}) \tilde{\xi}_g(\vec{k})$$

zanemarivanja prostorne disperzije i korišćenja izotropne aproksimacije (I.3.18), za dielektričnu konstantu se dobija izraz:

$$\frac{1}{\epsilon(\omega)} = 1 + \frac{1}{4\pi} \left( \frac{\tilde{\epsilon}_0}{\pi} \right) \sum_{g=g_{\parallel}} \frac{2|S_g^{\parallel}(0)|^2 \omega_g(0)}{\omega^2 - \omega_g^2(0)}$$

$$\omega_g = \frac{\tilde{\epsilon}_0}{\pi} \quad (I.3.20)$$

#### I.4. MIKROTEORIJA DIELEKTRIČNE KONSTANTE SA URAČUNAVANJEM EKSITON-FONON INTERAKCIJE

Ovde će ukratko biti izložena teorija dielektrične konstante na bazi mehanizma eksiton-fonom interakcije [14]. Eksitonski hamiltonijan biće korišćen u harmonijskoj formi:

$$H_e = \Delta \sum_{\vec{n}} B_{\vec{n}}^+ B_{\vec{n}} + \sum_{\vec{n} \vec{m}} X_{\vec{n}, \vec{m}} B_{\vec{n}}^+ B_{\vec{m}} \quad (I.4.1)$$

Fononski hamiltonijan ima oblik:

$$H_p = \sum_{\vec{K}j} \hbar \omega_j(\vec{K}) b_j^{\dagger}(\vec{K}) b_j(\vec{K})$$

$$\omega_{\vec{K}} = V |\vec{K}| = VK \quad (I.4.2)$$

pri čemu je  $v$  - brzina longitudinalnih zvučnih talasa u kristalu, dok su u hamiltonijan eksiton-fonon interakcije uključeni efekti lokalne deformacije elektromagnetskog polja putem prelaza:

$$\sum_{\vec{n}} \Delta B_{\vec{n}}^{\dagger} B_{\vec{n}} = \sum_{\vec{n} \vec{m}} \Delta \delta_{\vec{n} \vec{m}} B_{\vec{n}}^{\dagger} B_{\vec{n}} \rightarrow$$

$$\rightarrow \sum_{\vec{n} \vec{m}} \Delta \delta_{\vec{n} + \vec{U}_{\vec{n}}, \vec{n} + \vec{U}_{\vec{m}}} B_{\vec{n}}^{\dagger} B_{\vec{m}} \quad (I.4.3)$$

tako da je njegova aproksimativna forma:

$$H_{ep} = \frac{i}{N^{1/2}} \sum_{\vec{K}j} \left[ \frac{1}{2M \hbar \omega_j(\vec{K})} \right]^{1/2} \tilde{g}_j(\vec{K}) \Delta \quad (I.4.4)$$

Retardovana eksitonska GF-a može se naći korišćenjem totalnog hamiltonijana sistema  $H = H_e + H_p + H_{ep}$  i ona se, pri zanemarivanju prostorne disperzije može napisati u obliku:

$$\langle\langle B_{\vec{k}} | B_{\vec{k}}^{\dagger} \rangle\rangle_{\omega} = \frac{i}{2\pi} \frac{1}{\hbar \omega - \Delta + \lambda + i\delta}$$

$$\lambda \approx \frac{\theta \Delta}{MV^2} \quad ; \quad \theta = k_B T \quad (I.4.5)$$

Nadjen izraz za Green-ovu funkciju korišćen je sa ciljem da se objasni Urbach-ovo pravilo [14]. Kao što

je poznato ovo empirijsko pravilo tvrdi da koeficijent apsorpcije ima gausijansku formu:

$$\mathcal{A}(\delta) = \mathcal{A}_0 e^{-\frac{\Delta - \frac{1}{2}\omega_0}{\sigma^2}} \quad (I.4.6)$$

gde je parametar  $\sigma$  blizak jedinici i relativno slabo zavisi od temperature.

Sa ciljem da se dobije koeficijent apsorpcije, a povezano s tim i imaginarni deo dielektrične konstante, formula (I.4.5) u oblasti daleko od rezonancije ( $\Delta \gg \omega$ ) može se napisati u obliku:

$$\begin{aligned} \langle\langle B_{\vec{k}} | B_{\vec{k}}^+ \rangle\rangle_{\omega} &= \frac{1}{2\pi i\lambda} \left[ \frac{\lambda}{\Delta - \frac{1}{2}\omega_0 + i\delta} + \frac{\lambda^2}{(\Delta - \frac{1}{2}\omega_0 + i\delta)^2} + O(\lambda^3) \right] = \\ &= - \frac{1}{16\pi^2 \lambda (\Delta - \frac{1}{2}\omega_0)^2} \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left(-\frac{\Delta - \frac{1}{2}\omega_0}{2\lambda} - t^2\right) dt \\ &\quad - i \sqrt{\frac{\Delta - \frac{1}{2}\omega_0}{2\lambda}} \end{aligned}$$

odakle je nadjeno:

$$\text{Re} \langle\langle B_{\vec{k}} | B_{\vec{k}}^+ \rangle\rangle_{\omega} = - \frac{1}{4\pi\lambda} \left( \frac{2\pi\lambda}{\Delta - \frac{1}{2}\omega_0} \right)^{1/2} e^{-\frac{\Delta - \frac{1}{2}\omega_0}{2\lambda}} \quad (I.4.7)$$

Može se uzeti, aproksimativno, da je avansovana Green-ova funkcija približno ravna nuli, pa je imaginarni deo dielektrične konstante dat sa:

$$\text{Im} \epsilon = 2\pi^3 |\mathcal{S}(0)|^2 \text{Re} \langle\langle B_{\vec{k}} | B_{\vec{k}}^+ \rangle\rangle_{\omega} \quad (I.4.8)$$

Uzimajući da je  $\text{Re } \mathcal{E} \approx 1$ , za koeficijent apsorpcije je dobijen izraz:

$$\mathcal{A}(\omega) \approx I_{\text{av}} \mathcal{E}(\omega) = \frac{\pi^2 |\mathcal{E}(\omega)|^2}{2\lambda} \left( \frac{2\pi}{\Delta - \frac{\hbar\omega}{m}} \right)^{1/2} e^{-2 \frac{\Delta - \frac{\hbar\omega}{m}}{\theta}} \quad (\text{I.4.9})$$

gde je

$$\sigma = \frac{M V^2}{2\Delta} \quad (\text{I.4.10})$$

Za vrednosti  $M = 10^{-22} \text{ g}$ ,  $v = 3 \times 10^5 \text{ cm s}^{-1}$  i  $\Delta = 5 \times 10^{-12} \text{ erg}$ , dobijeni izraz (I.4.9) stvarno i odgovara Urbach-ovom pravilu budući da je prema formuli (I.4.10) dobijeno za  $\sigma \approx 0,9$ .

## I.5. TENZOR NELINEARNE POLARIZACIJE

Osnovne karakteristike u optici kristala su komponente tenzora dielektrične permeabilnosti:

$$\mathcal{E}_{\alpha\beta} = \mathcal{E}_{\alpha\beta}^{\prime} + i \mathcal{E}_{\alpha\beta}^{\prime\prime} \quad ; \quad \alpha, \beta = x, y, z \quad (\text{I.5.1})$$

koji po definiciji povezuje vektore  $\vec{E}$  i  $\vec{D}$  u linearnoj elektrodinamici na sledeći način:

$$D_\alpha = \mathcal{E}_{\alpha\beta} E_\beta \quad (\text{I.5.2})$$

gde ponovljeni indeks označava sumiranje.

Za jaka električna polja je jasno da se materijalna jednačina sredine (I.5.2) ne može koristiti u ovoj, linearnoj aproksimaciji. U jakim laserskim poljima se, u izvesnim situacijama iz računa ne smeju ispustiti članovi

proporcionalni kvadratima i kubovima polja pa je neophodno koristiti nelinearnu materijalnu jednačinu oblika:

$$D_\alpha = \mathcal{E}_{\alpha\beta\gamma} E_\beta + \mathcal{E}_{\alpha\beta\gamma\delta} E_\beta E_\gamma + \mathcal{E}_{\alpha\beta\gamma\delta\epsilon} E_\beta E_\gamma E_\delta + \dots$$

Osim tenzora dielektrične permeabilnosti  $\mathcal{E}_{\alpha\beta}$ , u ovom razvoju figurišu, respektivno, tenzor nelinearne polarizacije trećeg ranga  $\mathcal{E}_{\alpha\beta\gamma}$  [19] i tenzor nelinearne polarizacije četvrtog ranga  $\mathcal{E}_{\alpha\beta\gamma\delta}$  [20]. Kao i tenzor dielektrične permeabilnosti (drugog ranga) i tenzori nelinearne polarizacije mogu da se računaju sa ili bez uračunavanja prostorne disperzije s tim što su ovi proračuni i procene daleko složeniji.

## II GLAVA

### APSORPCIONI I REFRAKCIONI PROCESI U MOLEKULARnim KRISTALIMA

#### II.1. UTICAJ NELINEARNIH OPTIČKIH EFEKATA NA APSORPCIONE I REFRAKCIONE KARAKTERISTIKE

Da bi ispitali uticaj nelinearnih optičkih efekata na apsorpcione i refrakcione karakteristike u molekularnim kristalima, koristićemo izraz za dielektričnu konstantu sistema koji glasi:

$$\frac{1}{\mathcal{E}(\omega)} = 1 - \frac{i}{4\pi} \frac{E_0^2 \zeta_0}{\tau_0} [\Gamma_0(\omega) + \tilde{\Gamma}_0(\omega) + \Phi_0(\omega) + \tilde{\Phi}_0(\omega)] \quad (\text{II.1.1})$$

Funkcije  $\Gamma$ ,  $\tilde{\Gamma}$ ,  $\phi$  i  $\tilde{\phi}$  su komutatorske paulion-ske GF-e za eksitonski sistem u kome su prisutni efekti neodržanja eksitona,  $E_0$ -je jačina lokalnog električnog polja u elementarnoj ćeliji kristala zapremine  $\tau_0$ . Detaljna analiza same procedure izračunavanja GF-a  $\Gamma$ ,  $\tilde{\Gamma}$ ,  $\phi$  i  $\tilde{\phi}$  data je u matematičkom dodatku, a njihovo izračunavanje je neophodno da bismo dobili veličinu  $\mathcal{E}$ .

Kao što smo rekli, u eksitonskom sistemu prisutni su efekti neodržanja [8] i njegov hamiltonijan možeмо pisati u sledećem obliku:

$$\begin{aligned}
 H = & \Delta \sum_{\vec{n}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}} + \sum_{\vec{n}, \vec{m}} X_{\vec{n} \vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{m}} + \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}, \vec{m}} Y_{\vec{n} \vec{m}} (P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{m}} + P_{\vec{m}} P_{\vec{n}}) + \\
 & + \sum_{\vec{n}, \vec{m}} Z_{\vec{n} \vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}} P_{\vec{m}}^+ P_{\vec{m}}
 \end{aligned} \tag{II.1.2}$$

Treba napomenuti da se radi o najjednostavnijem slučaju (prosta rešetka i dvonivoska eksitonska šema) u kome su operatori kreacije i anihilacije eksitona Pauli operatori, sa željom da se dobiju koliko-toliko traktabilni rezultati.

U računu se startuje od pseudokauzalnih paulionskih GF-a  $\gamma$ ,  $\tilde{\gamma}$ ,  $\varphi$  i  $\tilde{\varphi}$ , budući da one dopuštaju primenu Wick-ove teoreme, pa tek pošto se dobiju jednačine za ove funkcije, treba izvršiti prelaz na odgovarajuće komutatorske GF-e.

Za pseudokauzalne GF-e  $\gamma$ ,  $\tilde{\gamma}$ ,  $\varphi$  i  $\tilde{\varphi}$  [17] dobijamo sledeći sistem jednačina (vidi matematički prilog):

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{d\gamma_{fg}(t)}{dt} = & i\hbar \delta(t) \langle P_f^+ P_g \rangle + \Delta \gamma_{fg}(t) + \sum_{\vec{n}} X_{\vec{n} \vec{m}} \gamma_{\vec{m} \vec{g}}(t) + \sum_{\vec{n}} Y_{\vec{n} \vec{m}} P_{\vec{n} \vec{g}}(t) - \\
 & - 2 \sum_{\vec{n}} X_{\vec{f} \vec{n}} \left\langle \left\langle P_{\vec{f}}^+(t) P_{\vec{f}}(t) P_{\vec{n}}(t) | P_{\vec{g}}^+(0) \right\rangle \right\rangle^{(\infty)} - \\
 & - 2 \sum_{\vec{n}} Y_{\vec{f} \vec{n}} \left\langle \left\langle P_{\vec{n}}^+(t) P_{\vec{f}}^+(t) P_{\vec{f}}(t) | P_{\vec{g}}^+(0) \right\rangle \right\rangle^{(\infty)} + \\
 & + 2 \sum_{\vec{n}} Z_{\vec{f} \vec{n}} \left\langle \left\langle P_{\vec{n}}^+(t) P_{\vec{n}}(t) P_{\vec{f}}(t) | P_{\vec{g}}^+(0) \right\rangle \right\rangle^{(\infty)}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
i\hbar \frac{d\Phi_{fg}(t)}{dt} = & i\hbar \delta(t) \langle P_f^+ P_g^- \rangle - \Delta \Phi_{fg}(t) - \sum_{\vec{n}\vec{m}} X_{\vec{f}\vec{m}} \Phi_{\vec{m}\vec{g}}(t) - \sum_{\vec{n}\vec{m}} Y_{\vec{f}\vec{m}} \tilde{\Phi}_{\vec{m}\vec{g}}(t) + \\
& + 2 \sum_{\vec{n}\vec{m}} X_{\vec{f}\vec{m}} \langle \langle P_{\vec{m}}^+(t) P_{\vec{f}}^+(t) P_{\vec{g}}^-(t) | P_g^-(0) \rangle \rangle^{(\omega)} + \\
& + 2 \sum_{\vec{n}\vec{m}} Y_{\vec{f}\vec{m}} \langle \langle P_{\vec{f}}^+(t) P_{\vec{g}}^-(t) P_{\vec{m}}^-(t) | P_g^-(0) \rangle \rangle^{(\omega)} - \\
& - 2 \sum_{\vec{n}\vec{m}} Z_{\vec{f}\vec{m}} \langle \langle P_{\vec{f}}^+(t) P_{\vec{m}}^+(t) P_{\vec{m}}^-(t) | P_g^-(0) \rangle \rangle^{(\omega)}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
i\hbar \frac{d\tilde{\Phi}_{fg}(t)}{dt} = & i\hbar \delta(t) \langle P_f^+ P_g^- \rangle - \Delta \tilde{\Phi}_{fg}(t) - \sum_{\vec{n}\vec{m}} X_{\vec{f}\vec{m}} \tilde{\Phi}_{\vec{m}\vec{g}}(t) - \sum_{\vec{n}\vec{m}} Y_{\vec{f}\vec{m}} \tilde{\Phi}_{\vec{m}\vec{g}}(t) + \\
& + 2 \sum_{\vec{n}\vec{m}} X_{\vec{f}\vec{m}} \langle \langle P_{\vec{m}}^+(t) P_{\vec{f}}^+(t) P_{\vec{f}}^-(t) | P_g^-(0) \rangle \rangle^{(\omega)} + \\
& + 2 \sum_{\vec{n}\vec{m}} Y_{\vec{f}\vec{m}} \langle \langle P_{\vec{f}}^+(t) P_{\vec{g}}^-(t) P_{\vec{m}}^-(t) | P_g^-(0) \rangle \rangle^{(\omega)} - \\
& - 2 \sum_{\vec{n}\vec{m}} Z_{\vec{f}\vec{m}} \langle \langle P_{\vec{f}}^+(t) P_{\vec{m}}^+(t) P_{\vec{m}}^-(t) | P_g^-(0) \rangle \rangle^{(\omega)}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
i\hbar \frac{d\tilde{\Phi}_{fg}(t)}{dt} = & i\hbar \delta(t) \langle P_f^+ P_g^- \rangle + \Delta \tilde{\Phi}_{fg}(t) + \sum_{\vec{n}\vec{m}} X_{\vec{f}\vec{m}} \tilde{\Phi}_{\vec{m}\vec{g}}(t) + \sum_{\vec{n}\vec{m}} Y_{\vec{f}\vec{m}} \tilde{\Phi}_{\vec{m}\vec{g}}(t) - \\
& - 2 \sum_{\vec{n}\vec{m}} X_{\vec{f}\vec{m}} \langle \langle P_{\vec{f}}^+(t) P_{\vec{f}}^-(t) P_{\vec{m}}^-(t) | P_g^-(0) \rangle \rangle^{(\omega)} - \\
& - 2 \sum_{\vec{n}\vec{m}} Y_{\vec{f}\vec{m}} \langle \langle P_{\vec{m}}^+(t) P_{\vec{f}}^+(t) P_{\vec{f}}^-(t) | P_g^-(0) \rangle \rangle^{(\omega)} + \\
& + 2 \sum_{\vec{n}\vec{m}} Z_{\vec{f}\vec{m}} \langle \langle P_{\vec{m}}^+(t) P_{\vec{m}}^-(t) P_{\vec{f}}^-(t) | P_g^-(0) \rangle \rangle^{(\omega)}
\end{aligned}$$

(II.1.3)

Više paulinske GF-e, koje figurišu u ovom sistemu jednačina, dekuplovaćemo prelaskom na više bozonske GF-e koristeći aproksimacije  $P \approx B - B^+ BB$  i  $P^+ \approx B^+ - B^+ B^+ B$ , pri čemu će ovako dobijene bozonske funkcije biti izračunate primenom Wick-ove teoreme.

Ukoliko zanemarimo kvadrate koncentracija izrazi za više paulinske GF-e se mogu napisati u obliku:

$$\begin{aligned} \langle\langle P_{\beta}^+(t) P_{\beta}^-(t) P_{\alpha}^-(t) | P_{\beta}^+(0) \rangle\rangle^{(w)} = & \langle B^+ B \rangle g_{\alpha\beta}(t) + \langle B_{\beta}^+ B_{\alpha}^- \rangle g_{\beta\beta}(t) + \\ & + \langle B_{\beta}^+ B_{\alpha}^- \rangle b_{\beta\beta}(t) - 2 \tilde{g}_{\beta\beta}(t) g_{\beta\beta}(t) g_{\alpha\beta}(t) - \\ & - 2 \tilde{b}_{\beta\beta}(t) b_{\beta\beta}(t) g_{\alpha\beta}(t) - 2 \tilde{b}_{\alpha\beta}(t) b_{\beta\beta}(t) g_{\beta\beta}(t) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \langle\langle P_{\alpha}^+(t) P_{\alpha}^-(t) P_{\beta}^-(t) | P_{\beta}^+(0) \rangle\rangle^{(w)} = & \langle B^+ B \rangle g_{\beta\beta}(t) + \langle B_{\alpha}^+ B_{\beta}^- \rangle g_{\alpha\beta}(t) + \\ & + \langle B_{\alpha}^+ B_{\beta}^- \rangle b_{\alpha\beta}(t) - 2 \tilde{g}_{\alpha\beta}(t) g_{\alpha\beta}(t) g_{\beta\beta}(t) - \\ & - 2 \tilde{b}_{\alpha\beta}(t) b_{\alpha\beta}(t) g_{\beta\beta}(t) - 2 \tilde{b}_{\beta\beta}(t) b_{\alpha\beta}(t) g_{\alpha\beta}(t) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \langle\langle P_{\alpha}^+(t) P_{\beta}^+(t) P_{\beta}^-(t) | P_{\beta}^+(0) \rangle\rangle^{(w)} = & \langle B^+ B \rangle b_{\alpha\beta}(t) + \langle B_{\alpha}^+ B_{\beta}^- \rangle b_{\beta\beta}(t) + \\ & + \langle B_{\alpha}^+ B_{\beta}^- \rangle g_{\beta\beta}(t) - 2 \tilde{b}_{\beta\beta}(t) b_{\beta\beta}(t) b_{\alpha\beta}(t) - \\ & - 2 \tilde{g}_{\beta\beta}(t) g_{\beta\beta}(t) b_{\alpha\beta}(t) - 2 \tilde{g}_{\alpha\beta}(t) g_{\beta\beta}(t) b_{\beta\beta}(t) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \langle\langle P_f^+(t) P_{\bar{u}}^+(t) P_{\bar{u}}(t) | P_g^+(0) \rangle\rangle^{(w)} = & \langle B^+ B \rangle \tilde{l}_{\bar{q}\bar{g}}(t) + \langle B_f^+ B_{\bar{u}} \rangle \tilde{l}_{\bar{u}\bar{g}}(t) + \\ & + \langle B_f^+ B_{\bar{u}} \rangle g_{\bar{u}\bar{g}}(t) - 2 \tilde{l}_{\bar{u}\bar{g}}(t) \tilde{l}_{\bar{u}\bar{g}}(t) \tilde{l}_{\bar{q}\bar{g}}(t) - \\ & - 2 \tilde{g}_{\bar{u}\bar{g}}(t) g_{\bar{u}\bar{g}}(t) \tilde{l}_{\bar{q}\bar{g}}(t) - 2 \tilde{g}_{\bar{q}\bar{g}}(t) g_{\bar{u}\bar{g}}(t) \tilde{l}_{\bar{u}\bar{g}}(t) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \langle\langle P_f^+(t) P_f(t) P_{\bar{u}}(t) | P_g^+(0) \rangle\rangle^{(w)} = & \langle B^+ B \rangle \tilde{l}_{\bar{u}\bar{g}}(t) + \langle B_f^+ B_{\bar{u}} \rangle \tilde{l}_{\bar{q}\bar{g}}(t) + \\ & + \langle B_f^+ B_{\bar{u}} \rangle \tilde{g}_{\bar{q}\bar{g}}(t) - 2 \tilde{l}_{\bar{q}\bar{g}}(t) \tilde{l}_{\bar{q}\bar{g}}(t) \tilde{l}_{\bar{u}\bar{g}}(t) - \\ & - 2 g_{\bar{q}\bar{g}}(t) \tilde{g}_{\bar{q}\bar{g}}(t) \tilde{l}_{\bar{u}\bar{g}}(t) - 2 g_{\bar{u}\bar{g}}(t) \tilde{g}_{\bar{q}\bar{g}}(t) \tilde{l}_{\bar{q}\bar{g}}(t) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \langle\langle P_{\bar{u}}^+(t) P_{\bar{u}}(t) P_f(t) | P_g^+(0) \rangle\rangle^{(w)} = & \langle B^+ B \rangle \tilde{l}_{\bar{q}\bar{g}}(t) + \langle B_{\bar{u}}^+ B_f \rangle \tilde{l}_{\bar{u}\bar{g}}(t) + \\ & + \langle B_{\bar{u}}^+ B_f \rangle \tilde{g}_{\bar{u}\bar{g}}(t) - 2 \tilde{l}_{\bar{u}\bar{g}}(t) \tilde{l}_{\bar{u}\bar{g}}(t) \tilde{l}_{\bar{q}\bar{g}}(t) - \\ & - 2 g_{\bar{u}\bar{g}}(t) \tilde{g}_{\bar{u}\bar{g}}(t) \tilde{l}_{\bar{q}\bar{g}}(t) - 2 g_{\bar{q}\bar{g}}(t) \tilde{g}_{\bar{u}\bar{g}}(t) \tilde{l}_{\bar{u}\bar{g}}(t) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \langle\langle P_{\bar{u}}^+(t) P_f^+(t) P_f(t) | P_g^+(0) \rangle\rangle^{(w)} = & \langle B^+ B \rangle \tilde{g}_{\bar{u}\bar{g}}(t) + \langle B_{\bar{u}}^+ B_f \rangle \tilde{g}_{\bar{q}\bar{g}}(t) + \\ & + \langle B_{\bar{u}}^+ B_f \rangle \tilde{l}_{\bar{q}\bar{g}}(t) - 2 g_{\bar{q}\bar{g}}(t) \tilde{g}_{\bar{q}\bar{g}}(t) \tilde{g}_{\bar{u}\bar{g}}(t) - \\ & - 2 \tilde{l}_{\bar{q}\bar{g}}(t) \tilde{l}_{\bar{q}\bar{g}}(t) \tilde{g}_{\bar{u}\bar{g}}(t) - 2 \tilde{l}_{\bar{u}\bar{g}}(t) \tilde{l}_{\bar{q}\bar{g}}(t) \tilde{g}_{\bar{q}\bar{g}}(t) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \langle\langle P_f^+(t) P_{\bar{m}}^+(t) P_m(t) | P_g(0) \rangle\rangle^{(\infty)} = & \langle B^+ B \rangle \tilde{g}_{fg}(t) + \langle B_f^+ B_{\bar{m}} \rangle \tilde{g}_{\bar{m}g}(t) - \\ & - \langle B_f^+ B_m^+ \rangle \tilde{g}_{mg}(t) - 2 \tilde{g}_{fg}(t) \tilde{g}_{\bar{m}g}(t) \tilde{g}_{fg}(t) - \\ & - 2 \tilde{g}_{mg}(t) \tilde{g}_{\bar{m}g}(t) \tilde{g}_{fg}(t) - 2 \tilde{g}_{fg}(t) \tilde{g}_{mg}(t) \tilde{g}_{\bar{m}g}(t) \end{aligned}$$

gde su  $g$ ,  $\tilde{g}$ ,  $\zeta$  i  $\tilde{\zeta}$  odgovarajuće pseudokauzalne bozonske GF-e (retardovane i avansovane).

Ako ove izraze uvrstimo u sistem jednačina (II.1.3) i u tako dobijenom sistemu izvršimo transformaciju tipa:

$$\Psi_{\tilde{f}g}(t) = \frac{1}{i\hbar} \sum_{\vec{k}} e^{i\vec{k}(\vec{r}-\vec{r})} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega e^{-i\omega t} \Psi_{\vec{k}}(\omega)$$

onda se na osnovu veza izmedju pseudokauzalnih i komutatorskih paulionskih GF-a (iz matematičkog priloga) dobija sledeći sistem jednačina za komutatorske paulionske GF-e:

$$d_{11}(\vec{k}, \omega) \Gamma_{\vec{k}}(\omega) + d_{12}(\vec{k}, \omega) \Phi_{\vec{k}}(\omega) + d_{14}(\vec{k}, \omega) \tilde{\Gamma}_{\vec{k}}(\omega) = \frac{i}{2\pi} \langle P_{\vec{k}} P_{\vec{k}}^+ \rangle + \beta_1(\vec{k}, \omega)$$

$$d_{21}(\vec{k}, \omega) \Gamma_{\vec{k}}(\omega) + d_{22}(\vec{k}, \omega) \Phi_{\vec{k}}(\omega) + d_{24}(\vec{k}, \omega) \tilde{\Gamma}_{\vec{k}}(\omega) = \frac{i}{2\pi} \langle P_{\vec{k}}^+ P_{-\vec{k}}^+ \rangle + \beta_2(\vec{k}, \omega)$$

$$d_{31}(\vec{R}, \omega) \tilde{\Gamma}_{\vec{R}}(\omega) + d_{33}(\vec{R}, \omega) \tilde{\Phi}_{\vec{R}}(\omega) + d_{34}(\vec{R}, \omega) \tilde{\Gamma}_{\vec{R}}(\omega) = \frac{i}{2\pi} \langle P_{\vec{R}} P_{\vec{R}} \rangle + \beta_3(\vec{R}, \omega)$$

$$d_{41}(\vec{R}, \omega) \tilde{\Gamma}_{\vec{R}}(\omega) + d_{43}(\vec{R}, \omega) \tilde{\Phi}_{\vec{R}}(\omega) + d_{44}(\vec{R}, \omega) \tilde{\Gamma}_{\vec{R}}(\omega) = \frac{i}{2\pi} \langle P_{\vec{R}}^+ P_{\vec{R}} \rangle \beta_4(\vec{R}, \omega) \quad (\text{II.1.4})$$

gde je:

$$d_{11}(\vec{R}, \omega) = \frac{(\omega - \Omega_{\Delta} - \Omega_{x\vec{R}}) \langle P_{\vec{R}} P_{\vec{R}}^+ \rangle}{\delta}$$

$$d_{12}(\vec{R}, \omega) = - \frac{(\omega - \Omega_{\Delta} - \Omega_{x\vec{R}}) \langle P_{\vec{R}}^+ P_{\vec{R}}^+ \rangle + \Omega_{y\vec{R}} \langle P_{\vec{R}} P_{\vec{R}}^+ \rangle}{\delta}$$

$$d_{14}(\vec{R}, \omega) = - \frac{\Omega_{y\vec{R}} \langle P_{\vec{R}}^+ P_{\vec{R}}^+ \rangle}{\delta}$$

$$d_{21}(\vec{R}, \omega) = - \frac{\Omega_{x\vec{R}} \langle P_{\vec{R}} P_{\vec{R}}^+ \rangle}{\delta}$$

$$d_{22}(\vec{R}, \omega) = \frac{(\omega + \Omega_{\Delta} + \Omega_{x\vec{R}}) \langle P_{\vec{R}} P_{\vec{R}}^+ \rangle - \Omega_{y\vec{R}} \langle P_{\vec{R}}^+ P_{\vec{R}}^+ \rangle}{\delta}$$

$$d_{24}(\vec{R}, \omega) = - \frac{(\omega + \Omega_{\Delta} + \Omega_{x\vec{R}}) \langle P_{\vec{R}}^+ E_{\vec{R}} \rangle}{\delta}$$

$$d_{31}(\vec{R}, \omega) = - \frac{(\omega - \Omega_{\Delta} - \Omega_{x\vec{R}}) \langle P_{\vec{R}} P_{\vec{R}} \rangle}{\delta}$$

$$d_{33}(\vec{R}, \omega) = - \frac{(\omega - \Omega_{\Delta} - \Omega_{x\vec{R}}) \langle P_{\vec{R}}^+ P_{\vec{R}} \rangle + \Omega_{y\vec{R}} \langle P_{\vec{R}} P_{\vec{R}} \rangle}{\delta}$$

$$d_{34}(\vec{R}, \omega) = - \frac{\Omega_{y\vec{R}} \langle P_{\vec{R}}^+ P_{\vec{R}} \rangle}{\delta}$$

$$d_{41}(\vec{R}, \omega) = - \frac{\Omega_{y\vec{R}} \langle P_{\vec{R}} P_{\vec{R}} \rangle}{\delta}$$

$$\alpha_{43}(k, \omega) = \frac{(\omega + \Omega_{\text{A}} + \Omega_{\text{X}k}) \langle P_{\text{A}}^+ P_{\text{X}} \rangle - \Omega_{Yk} \langle P_{\text{X}}^+ P_{\text{Y}} \rangle}{\delta}$$

$$\alpha_{44}(k, \omega) = - \frac{(\omega + \Omega_{\text{A}} + \Omega_{\text{Y}k}) \langle P_{\text{X}}^+ P_{\text{Y}} \rangle}{\delta}$$

$$\delta = 1 - 2 \langle P^+ P \rangle ; \quad \Omega_{\text{A}} = \frac{\Delta}{\hbar} ; \quad \Omega_{\text{X}k} = \frac{X_k}{\hbar} ; \quad \Omega_{Yk} = \frac{Y_k}{\hbar} ;$$

(II.1.5)

i:

$$\begin{aligned} \beta_1(k, \omega) = & -V_k g_{\text{R}}(\omega) - V_k b_{\text{R}}(\omega) + \frac{4}{\pi^2} \sum_{\vec{q}_1 \vec{q}_2} \left\{ (\Omega_{\text{X};\vec{q}_3} - \Omega_{\text{Y};\vec{q}_1 - \vec{q}_2}) \times \right. \\ & \times \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 [\tilde{g}_{\vec{q}_1}(-\omega_1) g_{\vec{q}_2}(\omega_2) g_{\vec{q}_3}(\omega_3) + \tilde{b}_{\vec{q}_1}(-\omega_1) b_{\vec{q}_2}(\omega_2) g_{\vec{q}_3}(\omega_3) + \\ & + \tilde{b}_{\vec{q}_2}(\omega_2) b_{\vec{q}_1}(-\omega_1) g_{\vec{q}_3}(\omega_3)] + \Omega_{Y;\vec{q}_3} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 [\tilde{b}_{\vec{q}_1}(-\omega_1) b_{\vec{q}_2}(\omega_2) b_{\vec{q}_3}(\omega_3) + \\ & \left. + \tilde{g}_{\vec{q}_3}(-\omega_1) g_{\vec{q}_2}(\omega_2) b_{\vec{q}_1}(\omega_3) + \tilde{g}_{\vec{q}_2}(\omega_2) g_{\vec{q}_3}(-\omega_1) b_{\vec{q}_1}(\omega_3)] \right\} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \beta_2(k, \omega) = & V_k g_{\text{R}}(\omega) + V_k b_{\text{R}}(\omega) - \frac{4}{\pi^2} \sum_{\vec{q}_1 \vec{q}_2} \left\{ (\Omega_{\text{X};\vec{q}_3} - \Omega_{\text{Y};\vec{q}_1 - \vec{q}_2}) \times \right. \\ & \times \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 [\tilde{b}_{\vec{q}_1}(-\omega_1) b_{\vec{q}_2}(\omega_2) b_{\vec{q}_3}(\omega_3) + \tilde{g}_{\vec{q}_1}(-\omega_1) g_{\vec{q}_2}(\omega_2) b_{\vec{q}_3}(\omega_3) + \\ & + \tilde{g}_{\vec{q}_3}(\omega_3) g_{\vec{q}_1}(-\omega_1) b_{\vec{q}_2}(\omega_2)] + \Omega_{Y;\vec{q}_3} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 [\tilde{g}_{\vec{q}_1}(-\omega_1) g_{\vec{q}_2}(\omega_2) g_{\vec{q}_3}(\omega_3) + \\ & \left. + \tilde{b}_{\vec{q}_1}(-\omega_1) b_{\vec{q}_2}(\omega_2) g_{\vec{q}_3}(\omega_3) + \tilde{b}_{\vec{q}_3}(\omega_3) b_{\vec{q}_1}(-\omega_1) g_{\vec{q}_2}(\omega_2)] \right\} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\beta_3(\vec{k}, \omega) = & -V_R \tilde{l}_R(\omega) - V_R \tilde{g}_R(\omega) + \frac{4}{N^2} \sum_{\vec{z}_1 \vec{z}_2} \left\{ (\Omega_{x; \vec{z}_3} - \Omega_{z; \vec{z}_1 - \vec{z}_2}) \times \right. \\
& \times \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 [l_{\vec{z}_1}(-\omega_1) \tilde{l}_{\vec{z}_2}(\omega_2) \tilde{l}_{\vec{z}_3}(\omega_3) + g_{\vec{z}_1}(-\omega_1) \tilde{g}_{\vec{z}_2}(\omega_2) \tilde{l}_{\vec{z}_3}(\omega_3) + \\
& + g_{\vec{z}_2}(\omega_2) \tilde{g}_{\vec{z}_1}(-\omega_1) \tilde{l}_{\vec{z}_2}(\omega_2)] + \Omega_{y; \vec{z}_3} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 [g_{\vec{z}_1}(-\omega_1) \tilde{g}_{\vec{z}_2}(\omega_2) \tilde{g}_{\vec{z}_3}(\omega_3) + \\
& \left. + l_{\vec{z}_1}(-\omega_1) \tilde{l}_{\vec{z}_2}(\omega_2) \tilde{g}_{\vec{z}_3}(\omega_3) + l_{\vec{z}_3}(\omega_3) \tilde{l}_{\vec{z}_1}(-\omega_1) \tilde{g}_{\vec{z}_2}(\omega_2)] \right\} \\
\\
\beta_4(\vec{k}, \omega) = & V_R \tilde{g}_R(\omega) + V_R \tilde{l}_R(\omega) - \frac{4}{N^2} \sum_{\vec{z}_1 \vec{z}_2} \left\{ (\Omega_{x; \vec{z}_3} - \Omega_{z; \vec{z}_1 - \vec{z}_2}) \times \right. \\
& \times \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 [g_{\vec{z}_1}(-\omega_1) \tilde{g}_{\vec{z}_2}(\omega_2) \tilde{g}_{\vec{z}_3}(\omega_3) + l_{\vec{z}_1}(-\omega_1) \tilde{l}_{\vec{z}_2}(\omega_2) \tilde{g}_{\vec{z}_3}(\omega_3) + \\
& + l_{\vec{z}_3}(\omega_3) \tilde{l}_{\vec{z}_1}(-\omega_1) \tilde{g}_{\vec{z}_2}(\omega_2)] + \Omega_{y; \vec{z}_3} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 [l_{\vec{z}_1}(-\omega_1) \tilde{l}_{\vec{z}_2}(\omega_2) \tilde{l}_{\vec{z}_3}(\omega_3) + \\
& + g_{\vec{z}_1}(-\omega_1) \tilde{g}_{\vec{z}_2}(\omega_2) \tilde{l}_{\vec{z}_3}(\omega_3) + g_{\vec{z}_3}(\omega_3) \tilde{g}_{\vec{z}_1}(-\omega_1) \tilde{l}_{\vec{z}_2}(\omega_2)] \left. \right\}
\end{aligned}$$

$$\vec{z}_3 = \vec{k} + \vec{z}_1 - \vec{z}_2 \quad ; \quad \omega_3 = \omega + \omega_1 - \omega_2$$

(II.1.6)

U formuli (II.1.6) je:

$$U_{\vec{k}} = \frac{2}{N} \sum_{\vec{q}} [ (X_{\vec{k}} + X_{\vec{q}} - Z_0 + Z_{\vec{k}-\vec{q}}) \bar{N}_{\vec{q}} + Y_{\vec{q}} \bar{M}_{\vec{q}} ] \quad (\text{II.1.7})$$

$$V_{\vec{k}} = \frac{2}{N} \sum_{\vec{q}} [ (Y_{\vec{k}} + Y_{\vec{q}}) \bar{N}_{\vec{q}} + (X_{\vec{q}} - Z_{\vec{k}-\vec{q}}) \bar{M}_{\vec{q}} ] \quad (\text{II.1.8})$$

gde su:

$$\bar{N}_{\vec{q}} \equiv \langle B_{\vec{q}}^+ B_{\vec{q}} \rangle ; \quad \bar{M}_{\vec{q}} \equiv \langle B_{\vec{q}}^+ B_{-\vec{q}}^+ \rangle = \langle B_{-\vec{q}} B_{\vec{q}} \rangle$$

dok se podintegralni izrazi, kao i funkcije  $g$ ,  $\tilde{g}$ ,  $\gamma$  i  $\tilde{\gamma}$  (koje se množe sa  $U$  i  $V$  veličinama) moraju izraziti preko komutatorskih bozonskih funkcija Green-a. Zbog glomaznosti, ove izraze nećemo navoditi eksplicitno premda je način njihovog dobijanja zapravo trivijalan.

Očigledno, izrazi za  $\Gamma$ ,  $\tilde{\Gamma}$ ,  $\phi$  i  $\tilde{\phi}$  (čije nalaženje sledi iz sistema jednačina (II.1.4)), predstavljaju veoma složene matematičke konstrukcije. Da bi se našlo kvalitativno ponašanje dielektrične konstante i procena njenog ponašanja, moguće je uprostiti sistem jednačina (II.1.4) uvođenjem niza aproksimacija. Zbog uključenja kinematičkih nivoa funkcije  $\Gamma$ ,  $\tilde{\Gamma}$ ,  $\phi$  i  $\tilde{\phi}$  imaju pored imaginarnih i realne delove, izražene preko koeficijenta  $\beta_s(\vec{k}, \omega)$ , ( $s = 1, 2, 3, 4$ ). Budući da realni delovi GF-a uslovjavaju pojavu kompleksnog indeksa prelamanja (zbog njihovog prisustva indeks apsorpcije  $\mathcal{L}(\vec{k}, \omega)$  je različit od nule) [9,12], njih ćemo računati u višoj aproksimaciji nego imaginarnе delove. To znači da ćemo u realnim delovima uzeti samo vodeće članove, zanemarujući popravke koje su po redu veličine veće od imaginarnih delova.

U imaginarnim pak delovima takođe ćemo uzeti samo vodeće članove. Očigledno, aproksimacije neće biti sasvim konzistentne (ponašanje imaginarnih delova GF-a biće procenjeno grublje nego ponašanje realnih im delova), ali će nam omogućiti dobijanje dovoljno realne slike ponašanja indeksa prelamanja i indeksa apsorpcije.

U skladu sa ovim, koeficijente  $\alpha_{ss'}(\vec{k}, \omega)$  ( $s, s' = 1, 2, 3, 4$ ) izračunaćemo koristeći aproksimacije:

$$\mathcal{Z}^{-1} \langle P_k P_k^+ \rangle \approx 1 ; \quad \langle P_k^+ P_{-k}^+ \rangle = \langle P_{-k} P_k \rangle \approx 0$$

$$\Omega_\Delta - \Omega_{\vec{k}} \approx \Omega_\Delta \quad (\text{II.1.9})$$

U isto vreme u koeficijentima  $\beta_s(\vec{k}, \omega)$ , ( $s = 1, 2, 3, 4$ ) zanemarićemo članove proporcionalne  $U_k^+$  i  $V_k^+$ , kao i prostornu disperziju tj. uzećemo da je  $\vec{k} = 0$ .

Nakon ukazanih aproksimacija, sistem jednačina (II.1.4) raspada se na dva para jednačina, gde u prvom paru figurišu funkcije  $\Gamma_0(\omega)$  i  $\phi_0(\omega)$ , a u drugom  $\tilde{\Gamma}_0(\omega)$  i  $\tilde{\phi}_0(\omega)$ . Imajući u vidu činjenicu da je  $\tilde{\Gamma}_0(\omega) = \Gamma_0(-\omega)$  i  $\tilde{\phi}_0(\omega) = \phi_0(\omega) = \phi_0(-\omega)$ , dovoljno je rešiti prvi par jednačina pa da se nadju i rešenja drugog para. Izrazi za prvi par jednačina, uz  $\langle P_k^- P_k^+ \rangle \approx 1$  i  $\langle P_k^+ P_{-k}^+ \rangle \approx \bar{M}_k$  su:

$$(\omega - \Omega_\Delta) \Gamma_0(\omega) - \Omega_{y0} \phi_0(\omega) = -\frac{i}{2\pi} + \beta_1(0, \omega)$$

$$\Omega_{y0} \Gamma_0(\omega) + (\omega + \Omega_\Delta) \phi_0(\omega) = -\frac{i}{2\pi} \bar{M}_{\vec{k}} + \beta_2(0, \omega)$$

(II.1.10)

gde je:

$$\begin{aligned}\beta_1(\omega, \delta) = & \frac{4}{\delta^2} \sum_{\vec{\mathbf{q}}_1 \vec{\mathbf{q}}_2} \left\{ (\Omega_{x; \vec{\mathbf{q}}_1 - \vec{\mathbf{q}}_2} - \Omega_{z; \vec{\mathbf{q}}_1 - \vec{\mathbf{q}}_2}) \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 \times \right. \\ & \times \left[ \tilde{g}_{\vec{\mathbf{q}}_1}(-\omega_1) g_{\vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_2) g_{\vec{\mathbf{q}}_1 - \vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_3) + \tilde{l}_{\vec{\mathbf{q}}_1}(-\omega_1) l_{\vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_2) g_{\vec{\mathbf{q}}_1 - \vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_3) + \right. \\ & + \tilde{l}_{\vec{\mathbf{q}}_1 - \vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_3) l_{\vec{\mathbf{q}}_1}(-\omega_1) g_{\vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_2) \left. \right] + \Omega_{y; \vec{\mathbf{q}}_1 - \vec{\mathbf{q}}_2} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 \times \\ & \times \left[ \tilde{l}_{\vec{\mathbf{q}}_1}(-\omega_1) l_{\vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_2) l_{\vec{\mathbf{q}}_1 - \vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_3) + \tilde{g}_{\vec{\mathbf{q}}_1}(-\omega_1) g_{\vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_2) l_{\vec{\mathbf{q}}_1 - \vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_3) + \right. \\ & \left. \left. + \tilde{g}_{\vec{\mathbf{q}}_1 - \vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_3) g_{\vec{\mathbf{q}}_1}(-\omega_1) l_{\vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_2) \right] \right\}\end{aligned}$$

(II.1.11)

i:

$$\begin{aligned}\beta_2(\omega, \delta) = & -\frac{4}{\delta^2} \sum_{\vec{\mathbf{q}}_1 \vec{\mathbf{q}}_2} \left\{ (\Omega_{x; \vec{\mathbf{q}}_1 - \vec{\mathbf{q}}_2} - \Omega_{z; \vec{\mathbf{q}}_1 - \vec{\mathbf{q}}_2}) \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 \times \right. \\ & \times \left[ \tilde{l}_{\vec{\mathbf{q}}_1}(-\omega_1) l_{\vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_2) l_{\vec{\mathbf{q}}_1 - \vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_3) + \tilde{g}_{\vec{\mathbf{q}}_1}(-\omega_1) g_{\vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_2) l_{\vec{\mathbf{q}}_1 - \vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_3) + \right. \\ & + \tilde{g}_{\vec{\mathbf{q}}_1 - \vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_3) g_{\vec{\mathbf{q}}_1}(-\omega_1) l_{\vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_2) \left. \right] + \Omega_{y; \vec{\mathbf{q}}_1 - \vec{\mathbf{q}}_2} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 \times \\ & \times \left[ \tilde{g}_{\vec{\mathbf{q}}_1}(-\omega_1) g_{\vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_2) g_{\vec{\mathbf{q}}_1 - \vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_3) + \tilde{l}_{\vec{\mathbf{q}}_1}(-\omega_1) l_{\vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_2) g_{\vec{\mathbf{q}}_1 - \vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_3) + \right. \\ & \left. \left. + \tilde{l}_{\vec{\mathbf{q}}_1 - \vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_3) l_{\vec{\mathbf{q}}_1}(-\omega_1) g_{\vec{\mathbf{q}}_2}(\omega_2) \right] \right\}\end{aligned}$$

(II.1.12)

Da bi dalje pojednostavili sistem jednačina uzećemo da je  $\frac{\hbar \Omega_k}{2\theta} \approx 1$ , ( $\hbar \Omega_k \gg \theta$ ) za sve temperature na kojima kristal, kao takav, može da postoji. Tada za veličine  $\tilde{N}_k$  i  $\tilde{M}_k$  (vidi u matematičkom dodatku) dobijamo aproksimativne izraze:

$$\tilde{N}_k \approx \frac{\zeta_0^2}{4} + \frac{3\zeta_k^2}{16} ; \quad \tilde{M}_k \approx -\frac{\zeta_k}{2} - \frac{\zeta_0^2}{2}$$

$$\zeta_k = \frac{\Omega_k \gamma_k}{\Omega_0} \ll 1 \quad (\text{II.1.13})$$

Uključujući poslednji izraz, možemo naći aproksimativne relacije za proizvode pseudokauzalnih GF-a, koje figurišu u veličinama  $\beta_1(\omega, \omega)$  i  $\beta_2(\omega, \omega)$ . Ako iskoristimo veze izmedju komutatorskih i pseudokauzalnih bozonskih GF-a (matematički prilog) i aproksimacije (II.1.13) možemo pisati:

$$\tilde{g}_{\vec{k}_1}(-\omega_1) g_{\vec{k}_2}(\omega_2) g_{\vec{k}_1 - \vec{k}_2}(\omega_3) \approx -\frac{5}{16} \zeta_0^4 G_{\vec{k}_1}(\omega_1) G_{\vec{k}_2}(\omega_2) G_{\vec{k}_1 - \vec{k}_2}(\omega_3)$$

$$\tilde{g}_{\vec{k}_1}(-\omega_1) \tilde{g}_{\vec{k}_2}(\omega_2) g_{\vec{k}_1 - \vec{k}_2}(\omega_3) \approx -\frac{1}{16} \zeta_0^4 G_{\vec{k}_1}(\omega_1) G_{\vec{k}_2}(\omega_2) G_{\vec{k}_1 - \vec{k}_2}(\omega_3) \quad (\text{II.1.14})$$

Proizvodi tipa  $\tilde{z}(-\omega) z(\omega) z(\omega)$  i  $\tilde{g}(-\omega) g(\omega) z(\omega)$  proporcionalni su  $\zeta_0^5$  i uzećemo da su približno jednaki nuli.

Imajući u vidu navedene pretpostavke i aproksimacije, očigledno je, da je  $C_k^\pm \approx 1$  i  $C_k^0 \approx 0$  (vidi matematički prilog), pa se funkcije G iz (II.1.14) mogu izraziti na približan način kao:

$$G_{\vec{z}}(\omega) = \frac{i}{2\pi} \frac{1}{\omega - \omega_{\vec{z}}} \approx \frac{i}{2\pi} \frac{1}{\omega - \eta_{\vec{z}}}$$

(II.1.15)

Za prostu kubnu strukturu se, na osnovu iznetog, može pisati:

$$\begin{aligned} \beta_1(0, \omega) &= 4 \cdot 3^5 \lambda_{Y\Delta}^4 \frac{1}{\pi^2} \sum_{\vec{z}_1, \vec{z}_2} (\Omega_{Y; \vec{z}_1 - \vec{z}_2} - \Omega_{Z; \vec{z}_1 - \vec{z}_2}) \times \\ &\quad \times \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 G_{\vec{z}_1}(\omega_1) G_{\vec{z}_2}(\omega_2) G_{\vec{z}_1 - \vec{z}_2}(\omega_3) \end{aligned} \quad (II.1.16)$$

i:

$$\begin{aligned} \beta_2(0, \omega) &= 4 \cdot 3^5 \lambda_{Y\Delta}^4 \frac{1}{\pi^2} \sum_{\vec{z}_1, \vec{z}_2} \Omega_{Y; \vec{z}_1 - \vec{z}_2} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 \times \\ &\quad \times G_{\vec{z}_1}(\omega_1) G_{\vec{z}_2}(\omega_2) G_{\vec{z}_1 - \vec{z}_2}(\omega_3) \end{aligned} \quad (II.1.17)$$

pri čemu je:

$$\lambda_{Y\Delta} = \frac{Y}{\Delta} \quad (II.1.18)$$

a veličina  $Y$  predstavlja interakciju  $Y_{nm}$  izmedju dva najbliža suseda.

Rešavanje integrala u formulama (II.1.16) i (II.1.17) dato je u matematičkom prilogu i njegovo rešenje je:

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 G_{\vec{z}_1}(\omega_1) G_{\vec{z}_2}(\omega_2) G_{\vec{z}_1 - \vec{z}_2}(\omega_3) &= \\ = \frac{i}{8\pi} \left[ \frac{1}{\omega + \eta_{\vec{z}_1} - \eta_{\vec{z}_2} - \eta_{\vec{z}_1 - \vec{z}_2}} + \frac{1}{8} \tilde{\eta}_{\vec{z}_1 - \vec{z}_2} \delta(\omega + \eta_{\vec{z}_1} - \eta_{\vec{z}_2} - \eta_{\vec{z}_1 - \vec{z}_2}) \right] & \end{aligned} \quad (II.1.19)$$

Prvi član u ovom izrazu korigovao bi imaginarne delove funkcija  $\Gamma$  i  $\phi$ , pa ga u skladu sa gore navedenim, odbacujemo. Ukoliko ovo učinimo, i funkcije  $\beta_1(0, \omega)$  i  $\beta_2(0, \omega)$  izračunamo prelazeći sa sumu po  $\vec{q}_1$  i  $\vec{q}_2$  na integrale, dobijamo:

$$\beta_1(0, \Omega) = -\frac{243 Q^4}{128 \pi^4 |\Omega_{x\Delta}|} \lambda_{y\Delta}^4 (1 - \lambda_{xx}) \Omega_\Delta (\Omega - 1) \left( 1 - \frac{19 - 11}{21 \lambda_{x\Delta} |Q|^2} \right)^2 \quad (II.1.20)$$

$$\beta_2(0, \Omega) = -\frac{243 Q^4}{128 \pi^4 |\Omega_{x\Delta}|} \lambda_{y\Delta}^4 \lambda_{yx} \Omega_\Delta (\Omega - 1) \left( 1 - \frac{19 - 11}{21 \lambda_{x\Delta} |Q|^2} \right)^2 \quad (II.1.21)$$

U ovim izrazima označke su sledeće:

$$\Omega = \frac{\omega}{\Omega_\Delta} \quad ; \quad \lambda_{xx} = \frac{Z}{X} \quad ; \quad \lambda_{x\Delta} = \frac{X}{\Delta} \quad ; \quad \lambda_{yx} = \frac{Y}{X}$$

$$Q = \sqrt[3]{6 \pi^2} \quad ; \quad |\Omega_{x\Delta}| = \frac{|X|}{\rho} \quad (2.1.22)$$

gde su  $X$ ,  $Y$  i  $Z$  interakcije izmedju najbližih suseda, a veličina  $\rho$  se kreće u intervalu:

$$1 - \beta_0 \leq \Omega \leq 1 + \beta_0 \\ \beta_0 = 2 Q^2 |\lambda_{x\Delta}| \quad (II.1.23)$$

Van ovog intervala funkcije  $\beta_1$  i  $\beta_2$  su jednake nuli.

Rešenja sistema jednačina (II.1.10) su:

$$\Gamma_0(\omega) = \frac{i}{2\pi} \frac{(\omega + \Omega_\Delta)[1 - 2\tilde{\eta}\beta_1(0, \omega)] + \Omega_{y0}[\bar{M}_R - 2\tilde{\eta}\beta_2(0, \omega)]}{(\omega + \Omega_\Delta)(\omega - \Omega_\Delta)} \quad (\text{II.1.24})$$

$$\Phi_0(\omega) = \frac{i}{2\pi} \frac{(\omega - \Omega_\Delta)[\bar{M}_R - 2\tilde{\eta}\beta_2(0, \omega)] - \Omega_{y0}2\tilde{\eta}\beta_1(0, \omega)}{(\omega + \Omega_\Delta)(\omega - \Omega_\Delta)} \quad (\text{II.1.25})$$

Ako se, sada, ograničimo na oblast koja je bliska rezonanciji  $\omega = \Omega_\Delta$  ili, što je isto,  $\rho \approx 1$  (na to nam ukazuje interval promene veličine  $\rho$ ), onda se može uzeti da je  $\omega + \Omega_\Delta \approx 2\Omega_\Delta$ . Korišćenjem ove aproksimacije u formulama (II.1.24) i (II.1.25), vidimo da je funkcija  $\phi$  proporcionalna malom parametru  $\lambda_{y\Delta}$  i da je drugi član u izrazu za  $\Gamma$  proporcionalan tom istom malom parametru.

Odbacujući ove članove, kao male, dobijamo :

$$\Gamma_0(\xi) = \frac{i}{2\pi\Omega_\Delta} \left[ \frac{1}{\xi-1} - i \frac{2\tilde{\eta}}{\xi-1} \beta_1(0, \xi) \right] ; \quad \Phi_0(\xi) = 0$$

i nakon zamene  $\beta_1(0, \rho)$  iz formule (II.1.20)

$$\Gamma_0(\xi) = \frac{i}{2\pi\Omega_\Delta} \left[ \frac{1}{\xi-1} - i S_0 f(\xi) \right] ; \quad \Phi_0(\xi) = 0 \quad (\text{II.1.26})$$

pri čemu je:

$$S_0 = \frac{243Q^4}{64\pi^3} \frac{\lambda_{y\Delta}^4 (1 - \lambda_{x\Delta})}{|\lambda_{x\Delta}|} \quad (\text{II.1.27})$$

i:

$$f(\xi) = \left( 1 - \frac{|\xi-1|}{2Q^2|\lambda_{x\Delta}|} \right)^2 \quad (\text{II.1.28})$$

Rezultat (II.1.6) iskoristićemo da po obrascu (II.1.1) izračunamo dielektričnu konstantu sistema na sledeći način:

$$\frac{1}{\epsilon(\rho)} = \alpha(\rho) + \beta(\rho) \quad (\text{II.1.29})$$

gde je:

$$\alpha(\rho) = 1 + \frac{2\rho}{\rho^2 - 1} \quad ; \quad \mu = \frac{E_0^2 C_0}{8\pi f R \Omega_A} \quad (\text{II.1.30})$$

i

$$\beta(\rho) = S_0 \mu F(\rho) \quad (\text{II.1.31})$$

Funkcija  $F(\rho)$  data je izrazom:

$$F(\rho) = \begin{cases} \left(1 + \frac{\rho-1}{2Q^2|\lambda_{x\Delta}|}\right)^2 + \left(1 - \frac{\rho+1}{2Q^2|\lambda_{x\Delta}|}\right)^2 & ; \rho < 1 \\ \left(1 - \frac{\rho-1}{2Q^2|\lambda_{x\Delta}|}\right)^2 + \left(1 - \frac{\rho+1}{2Q^2|\lambda_{x\Delta}|}\right)^2 & ; \rho > 1 \end{cases} \quad (\text{II.1.32})$$

pri čemu se, kao što je već rečeno,  $\rho$  kreće u intervalu  $1-\rho_0 \leq \rho \leq 1+\rho_0$ , a  $\rho_0 = 2Q^2|\lambda_{x\Delta}|$ .

Van naznačenog intervala funkcija  $F(\rho)$  je ravna nuli i tada je:

$$\epsilon(\rho) = \frac{1}{\alpha(\rho)} \quad (\text{II.1.33})$$

Iz veličine navedenog intervala za  $\rho$  vidi se da je širina apsorpcione zone jednaka  $2\rho_0$ , ili izraženo preko frekvencije:

$$\Delta S_A = 4Q^2 |\Omega_x| \quad (\text{II.1.34})$$

Kao što se vidi širina apsorpcione zone proporcionalna je širini eksitonske zone  $|\omega_x|$ .

Izvan oblasti  $\omega_A$  indeks apsorpcije je ravan nuli, dok je indeks prelamanja dat izrazom:

$$M(g) = \sqrt{\epsilon(g)} = \frac{1}{\sqrt{|a(g)|}}$$

$$0 \leq g \leq 1 - g_0 \quad ; \quad 1 + g_0 \leq g < +\infty \quad (\text{II.1.35})$$

Daleko važnije je, međutim, razmotriti oblast u kojoj su i  $M$  i  $\chi$  različiti od nule.

Koristeći poznatu formulu

$$M(g) + i\chi(g) = \sqrt{R_e \epsilon(g) + i T_m \epsilon(g)} \quad (\text{II.1.36})$$

i rezultat (II.2.1) dobijamo:

$$M(g) = \left\{ \frac{[\alpha^2(g) + \beta^2(g)]^{1/2} + \alpha(g)}{2[\alpha^2(g) + \beta^2(g)]} \right\}^{1/2} \quad (\text{II.1.37})$$

$$\chi(g) = \left\{ \frac{[\alpha^2(g) + \beta^2(g)]^{1/2} - \alpha(g)}{2[\alpha^2(g) + \beta^2(g)]} \right\}^{1/2} \quad (\text{II.1.38})$$

Ukao se može pokazati da, ako je parametar  $\mu$ , koji predstavlja odnos energije elektromagnetskog polja u elementarnoj ćeliji i eksitonske energije, takav da funkcija  $a(\rho)$  ima nulu unutar apsorpcione zone, onda indeks apsorpcije u ovoj tački ima maksimum. Ovo je jedina tačka u kojoj su indeks prelamanja i indeks apsorpcije jednaki. Levo i desno od te tačke indeks prelamanja je veći od indeksa apsorpcije. Iz jednačine  $a(\rho_M) = 0$  nalazimo:

$$\beta_M = \sqrt{1 - 2\mu} \quad (\text{II.1.39})$$

U ovoj tački je:

$$\mathcal{D}(\beta_M) = M(\beta_M) = \frac{1}{\sqrt{2|\beta_M|}} \quad (\text{II.1.40})$$

Dielektrična konstanta u ovoj tački, koja se u slučaju kompleksnog indeksa prelamanja definiše kao  $|\mathcal{E}(\rho)|$ , data je izrazom:

$$|\mathcal{E}(\beta)| = 2\mathcal{D}^2(\beta_M) = \frac{1}{|\beta_M|} \quad (\text{II.1.41})$$

Na kraju ovog odeljka navešćemo rezultate numeričke analize izvršene za sledeće vrednosti parametara:

$$\mu = \frac{1}{10} ; \lambda_{x\Delta} = -\frac{1}{100} ; \lambda_{y\Delta} = \frac{1}{40} ; \lambda_{z\Delta} = -2 \quad (\text{II.1.42})$$

Za dati izbor parametara je  $\rho_M = 0,89$  i  $\rho_0 = 0,3$ . Širina apsorpcione zone iznosi:

$$\Delta\omega_A = 0,6 \Omega_A \quad (\text{II.1.43})$$

dok je maksimalna vrednost indeksa apsorpcije:

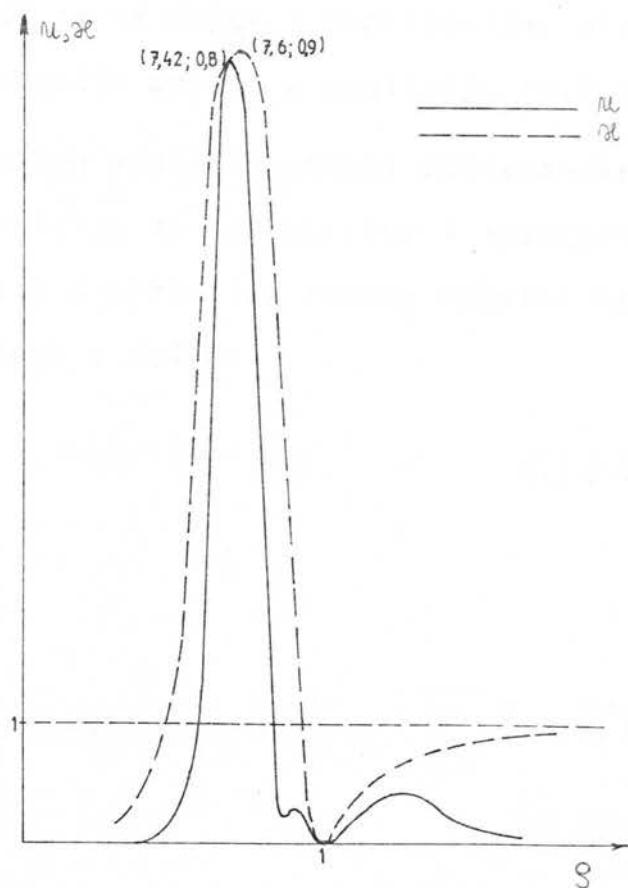
$$\mathcal{D}(g_M) = \mathcal{D}(0,89) = 7,42 \quad (\text{II.1.44})$$

Vrednost dielektrične konstante u ovoj tački iznosi:

$$|\mathcal{E}(g_M)| = |\mathcal{E}(0,89)| = 110 \quad (\text{II.1.45})$$

Pored dominantnog pika za  $\rho = \rho_M$ , indeks apsorpcije ima još dva maksimuma i to, jedan u intervalu  $(\rho_{M,1})$  i drugi u intervalu  $(1, 1+\rho_0)$ . Ovi pikovi su daleko manji od jedinice. Što se tiče indeksa prelamanja, on dostiže maksimum za  $\rho \approx 0,9$  i taj maksimum iznosi približno 7,6. Drugih maksimuma ovde nema.

Rezultati numeričke analize dati su na sli. II.1.1.



Slika II.1.1.

## II.2. PROCENA ULOGE EKSITON-EKSITON I EKSITON-FONON INTERAKCIJE

U postojećoj literaturi uglavnom se smatra da je za efekte apsorpcije svetlosti, u prvom redu, odgovorna eksiton-fonon interakcija [12]. U prethodnom odeljku videli smo da do apsorpcije dovodi i eksiton-eksiton interakcija i to ona koja je kinematičkog tipa. Za apsorpcione efekte odgovorne su GF-e tipa  $\langle B_t^+ B_t | B^+ B^+ B \rangle$  koje odgovaraju procesima fuzije dva eksitona u jedan i sukcesivnog raspada eksitonskog para na dva obična eksitona. U ovom delu ćemo razmotriti uticaj oba mehanizma na apsorpciju svetlosti, tj. ispitaćemo efekte i eksiton-fonon i eksiton-eksiton interakcije. U ovim analizama koristićemo hamiltonijan sistema u koji je uključen i hamiltonijan eksiton-fonon interakcije, na način opisan u poglavlju (I.2.).

Da bismo ispitali uticaj eksiton-eksiton i eksiton-fonon interakcije na refrakcione i apsorpcione karakteristike kristala u prisustvu fonona totalni hamiltonijan sistema napisaćemo u obliku:

$$H = H_e + H_p + H_{ep} \quad (\text{II.2.1})$$

gde je

$$H_e = \sum_{\vec{n}, \vec{m}} (\Delta \delta_{\vec{n}, \vec{m}} + X_{\vec{n}, \vec{m}}) P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{m}} + \sum_{\vec{n}, \vec{m}} Z_{\vec{n}, \vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{m}} \quad (\text{II.2.2})$$

eksitonski deo totalnog hamiltonijana,

$$H_p = \sum_{\vec{k}} \hbar v_k C_{\vec{k}}^+ C_{\vec{k}} \quad (\text{II.2.3})$$

hamiltonijan fononskog podsistema i:

$$H_{fp} = \sum_{\vec{a}\vec{a}} \hat{A}_{\vec{a}\vec{a}} P_{\vec{a}}^+ P_{\vec{a}} + \sum_{\vec{a}\vec{a}} \hat{F}_{\vec{a}\vec{a}} P_{\vec{a}}^+ P_{\vec{a}} P_{\vec{a}}^+ P_{\vec{a}} \quad (\text{II.2.4})$$

hamiltonijan eksiton-fonon interakcije.

Kao što je poznato, tenzor dielektirčne permeabilnosti izražava se preko Fourie-likova retardovane i avansovane komutatorske GF-e:

$$\Gamma_{fg}(t) = \theta(t) \langle [P_f(t), P_g^+(0)] \rangle \quad (\text{II.2.5})$$

i

$$\tilde{\Gamma}_{fg}(t) = \theta(t) \langle [P_f^+(t), P_g(0)] \rangle \quad (\text{II.2.6})$$

koje se određuju iz sledećih jednačina:

$$i\hbar \frac{d\Gamma_{fg}(t)}{dt} = i\hbar \delta(t) \tilde{\Gamma}_{fg} \delta + \ll [P_f, H]_t | P_g^+(0) \gg \quad (\text{II.2.7})$$

i

$$i\hbar \frac{d\tilde{\Gamma}_{fg}(t)}{dt} = i\hbar \delta(t) \tilde{\Gamma}_{fg} \delta + \ll [P_f^+, H]_t | P_g(0) \gg \quad (\text{II.2.8})$$

gde je

$$\delta = 1 - 2 \langle P^+ P \rangle \quad (\text{II.2.9})$$

Pošto su Fourie-likovi funkcija  $\Gamma$  i  $\tilde{\Gamma}$ :

$$\Gamma_{\vec{k}}(\omega) = \frac{1}{2\pi} \sum_{f-g} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\vec{k}(f-g) + i\omega t} \Gamma_{fg}(t)$$

$$\tilde{F}_k(\omega) = \frac{1}{2\pi} \sum_{\vec{k}-\vec{q}} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\vec{k}(\vec{r}-\vec{q}) + i\omega t} \tilde{f}_{\vec{q}}(t)$$

povezani relacijom

$$\tilde{F}_k(\omega) = F_k(-\omega) \quad (\text{II.2.10})$$

dovoljno je da se kompletno reši samo jednačina (II.2.7).

S obzirom na formu hamiltonijana (II.2.1) rešavanje ove jednačine predstavlja veoma složenu matematičku proceduru sa mnoštvom komplikovanih izraza. Zbog toga se nećemo zadržavati na svim detaljima računa, nego ćemo ukazati samo na osnovne korake i navesti završni rezultat.

Kao što se može videti u matematičkom dodatu, dekuplovanje viših paulionskih GF-a zahteva upotrebu pseudokauzalnih funkcija da bi se prilikom dekuplovanja mogla primeniti Wickova-teorema. Ovde ćemo, ipak, koristiti jednačinu (II.2.7) za komutatorsku GF-u u kojoj se pojavljuju više komutatorske GF-e tipa:

$$\langle\langle P_a^+(t) P_b(t) P_c(t) | P_d^+(0) \rangle\rangle ; \langle\langle P_a(t) C_g(t) | P_d^+(0) \rangle\rangle$$

$$\langle\langle P_a(t) C_g^+(t) | P_d^+(0) \rangle\rangle ; \langle\langle P_a^+(t) P_a(t) P_b(t) C_g(t) | P_d^+(0) \rangle\rangle$$

$$\langle\langle P_a^+(t) P_a(t) P_b(t) C_g^+(t) | P_d^+(0) \rangle\rangle \quad (\text{II.2.11})$$

gde su  $\vec{a}$ ,  $\vec{b}$  i  $\vec{c}$  čvorovi rešetke, a  $\vec{q}$  talasni vektor. Sve više komutatorske GF-e u (II.2.11), koje u sebi sadrže fononske operatore  $C$  i  $C^+$ , izračunaćemo koristeći tjablikovsko dekuplovanje, tako da ovde nema potrebe da se prelazi na pseudokauzalne GF-e. Korektnije ćemo računati više eksitonske komutatorske GF-e koje se u jednačini (II.2.7) pojavljuju u kombinaciji tipa:

$$A_{\vec{f}\vec{g}}(t) = \sum_{\vec{n}\vec{m}} D_{\vec{f}\vec{g}} \ll P_{\vec{f}}^+(t) P_{\vec{f}}^+(t) P_{\vec{n}}(t) | P_{\vec{g}}^+(0) \gg \quad (\text{II.2.12})$$

ili u kombinaciji u kojoj indeksi  $\vec{f}$  i  $\vec{m}$  u GF-i menjaju mesto. Da bismo izračunali  $A_{\vec{f}\vec{g}}^{>>}(t)$  formiraćemo odgovarajuću veličinu:

$$if_{\vec{f}\vec{g}}(t) = \sum_{\vec{n}\vec{m}} D_{\vec{f}\vec{g}} \ll P_{\vec{f}}^+(t) P_{\vec{f}}^+(t) P_{\vec{n}}(t) | P_{\vec{g}}^+(0) \gg^{(w)} \quad (\text{II.2.13})$$

u kojoj figuriše viša pseudokauzalna paulinska GF-a (oznaka sa  $(w)$ ), za koju, posle prelaska na Boze operatore, po formulama  $P \approx B - B^+ BB$  i  $P^+ \approx B^+ - B^+ B^+ B$  možemo pisati:

$$\begin{aligned} \ll P_{\vec{f}}^+(t) P_{\vec{f}}^+(t) P_{\vec{n}}(t) | P_{\vec{g}}^+(0) \gg^{(w)} &= \theta(t) \langle B_{\vec{f}}^+(t) B_{\vec{f}}^+(t) B_{\vec{n}}(t) B_{\vec{g}}^+(0) \rangle - \\ &- \theta(t) \langle B_{\vec{f}}^+(t) B_{\vec{f}}^+(t) B_{\vec{n}}(t) B_{\vec{g}}^+(0) B_{\vec{g}}^+(0) \rangle = \\ &= \bar{N} g_{\vec{a}\vec{g}(t)} + \langle B_{\vec{f}}^+ B_{\vec{n}} \rangle g_{\vec{f}\vec{g}(t)} - 2 \bar{N}^2 g_{\vec{a}\vec{g}(t)} - \\ &- 2 \bar{N} \langle B_{\vec{f}}^+ B_{\vec{n}} \rangle g_{\vec{f}\vec{g}(t)} - 2 \tilde{g}_{\vec{f}\vec{g}(t)} g_{\vec{f}\vec{g}(t)} g_{\vec{n}\vec{g}(t)} \end{aligned}$$

$$g_{\vec{p}\vec{q}}(t) = \langle\langle B_{\vec{p}}(t) | B_{\vec{q}}^+(0) \rangle\rangle^{(\infty)} ; \quad \tilde{g}_{\vec{p}\vec{q}}(t) = \langle\langle B_{\vec{p}}^+(t) | B_{\vec{q}}(0) \rangle\rangle^{(\infty)}$$

$$\langle B_{\vec{p}}^+ B_{\vec{q}} \rangle = \frac{1}{J^p} \sum_{\vec{k}} e^{i\vec{k}(\vec{p}-\vec{q})} ; \quad \bar{N} = \langle B^+ B \rangle$$

(II.2.14)

Ako u izrazu (II.2.14) zanemarimo kvadrate eksitonskih koncentracija, dobijeni približni izraz uvrstimo u (II.2.13) i izvršimo Fourier-transformacije tipa:

$$\Psi_{\vec{p}\vec{q}}(t) = \frac{1}{J^p} \sum_{\vec{k}} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega e^{i\vec{k}(\vec{p}-\vec{q}) - i\omega t} \Psi_{\vec{k}}(\omega)$$

(II.2.15)

dolazimo do sledećeg rezultata:

$$\begin{aligned} \mathcal{F}_{\vec{p}\vec{q}}(\omega) = & \left[ \frac{1}{J^p} \sum_{\vec{k}} (D_{\vec{k}} + D_{\vec{q}}) \langle B_{\vec{q}}^+ B_{\vec{q}} \rangle \right] g_{\vec{k}}(\omega) - \\ & - \frac{2}{J^p} \sum_{\vec{q}_1 \vec{q}_2} D_{\vec{k}+\vec{q}_1-\vec{q}_2} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 \tilde{g}_{\vec{q}_1}(-\omega_1) g_{\vec{q}_2}(\omega_2) g_{\vec{k}+\vec{q}_1-\vec{q}_2}(\omega_1, \omega_2) \end{aligned}$$

(II.2.16)

Za veličinu  $\mathcal{F}_{\vec{f}\vec{g}}^{\vec{m}}$  u kojoj indeksi GF-e  $\vec{f}$  i  $\vec{m}$  menjaju mesta odgovarajući rezultat bi bio:

$$\begin{aligned} \mathcal{F}'_{\vec{p}\vec{q}}(\omega) = & \left[ \frac{1}{J^p} \sum_{\vec{k}} (D_0 + D_{\vec{k}-\vec{q}}) \langle B_{\vec{q}}^+ B_{\vec{q}} \rangle \right] g_{\vec{k}}(\omega) - \\ & - \frac{2}{J^p} \sum_{\vec{q}_1 \vec{q}_2} D_{\vec{k}-\vec{q}_1-\vec{q}_2} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 \tilde{g}_{\vec{q}_1}(-\omega_1) g_{\vec{q}_2}(\omega_2) g_{\vec{k}-\vec{q}_1-\vec{q}_2}(\omega_1, \omega_2) \end{aligned}$$

(II.2.17)

Kako je u aproksimaciji tjablikovskog dekuplovanja [21]

$A = \langle P^+ P \rangle \Gamma$  i  $\tilde{A} = \langle P^+ P \rangle \gamma$ , na osnovu formula iz matematičkog priloga, možemo pisati  $\tilde{A}_K(\omega) = \sigma^{-1} \langle P_K^+ P_K^+ \rangle A_K(\omega)$ , dok je na osnovu M.P.(1.1.56)  $g_K(\omega) = (1+N_K) G_K(\omega)$  i  $\tilde{g}_K(-\omega) = -N_K \tilde{G}_K(\omega)$ . Ukoliko ovo uvrstimo u izraze (II.2.16) i (II.2.17) i zanemarimo članove proporcionalne kvadratima koncentracija, imamo:

$$A_K(\omega) = \left[ \frac{1}{J^2} \sum_{\vec{q}} (D_{\vec{K}} + D_{\vec{q}}) \langle B_{\vec{q}}^+ B_{\vec{q}} \rangle \right] G_K(\omega) + \\ + \frac{2}{J^2} \sum_{\vec{q}_1 \vec{q}_2} \bar{N}_{\vec{q}_1} D_{\vec{K} + \vec{q}_1 - \vec{q}_2} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 G_{\vec{q}_1}(\omega_1) G_{\vec{q}_2}(\omega_2) G_{\vec{K} + \vec{q}_1 - \vec{q}_2}(\omega + \omega_1 - \omega_2)$$

$$A'_K(\omega) = \left[ \frac{1}{J^2} \sum_{\vec{q}} (D_0 + D_{\vec{K}-\vec{q}}) \langle B_{\vec{q}}^+ B_{\vec{q}} \rangle \right] G_K(\omega) + \\ + \frac{2}{J^2} \sum_{\vec{q}_1 \vec{q}_2} \bar{N}_{\vec{q}_1} D_{\vec{q}_1 - \vec{q}_2} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 G_{\vec{q}_1}(\omega_1) G_{\vec{q}_2}(\omega_2) G_{\vec{K} + \vec{q}_1 - \vec{q}_2}(\omega + \omega_1 - \omega_2) \quad (II.2.18)$$

gde je:

$$G_K(\omega) = \frac{i}{2\pi} \frac{1}{\omega - \Omega_K} \quad ; \quad \Omega_K = \hbar^{-1} E_K \quad (II.2.19)$$

Izrazi tipa (II.2.18) stavljaju se u jednačinu (II.2.7), u kojoj su prethodno izvršene transformacije oblika (II.2.15). Integral u (II.2.18) dobija se iz obrasca M.P.(1.3.15), gde je svako  $n_{\vec{q}_i}$  zamjenjeno sa  $\omega_{\vec{q}_i}$ . Osim toga, u jednačinu (II.2.7), transformisanu pomoću (II.2.15), uvrste se i Fourie-likovi preostalih GF-a, koje figurišu u (II.2.11) i koji su, kao

što je napomenuto, dobijeni primenom tjablikovskog dekuplovanja.

Završni rezultat ukazane procedure je sledeći:

$$\Gamma_{\vec{K}}(\omega) = \frac{i}{2\pi} \frac{1 + Q_1(\vec{K}, \omega) + Q_2(\vec{K}, \omega)}{\omega - Q(\vec{K}, \omega)} \quad (\text{II.2.20})$$

gde je:

$$Q(\vec{K}, \omega) = \Omega_{\vec{K}} + \frac{1}{\pi} \sum_{\vec{Q}} \alpha_1^2(\vec{K}, \vec{Q}) \left[ \frac{1 + \eta_{\vec{Q}}}{\omega - \Omega_{\vec{K}-\vec{Q}} - i\omega_{\vec{Q}}} + \frac{\eta_{\vec{Q}}}{\omega - \Omega_{\vec{K}-\vec{Q}} + i\omega_{\vec{Q}}} \right]$$

$$\eta_{\vec{Q}} = \left( e^{\frac{\hbar v_{\vec{Q}}}{\theta}} - 1 \right)^{-1} ; \quad \theta = k_B T$$

$$\alpha_1(\vec{K}, \omega) = \left( \frac{\hbar}{2M\omega_{\vec{Q}}} \right)^{1/2} [\vec{K} \vec{b}_{\vec{Q}} \Omega_{\vec{K}} - (\vec{K} \cdot \vec{Q}) \vec{b}_{\vec{Q}} \Omega_{\vec{K}-\vec{Q}}] \quad (\text{II.2.21})$$

$$Q_1(\vec{K}, \omega) = \frac{8\pi N_0}{i\sqrt{2}} \sum_{\vec{Q}_1 \vec{Q}_2} \left\{ [A_2(\vec{K}, \vec{Q}_1, \vec{Q}_2) + A_3(\vec{K}, \vec{K} - \vec{Q}_2, \vec{K} + \vec{Q}_1 - \vec{Q}_2, \omega)] \times \right. \\ \left. \times I(\vec{K}, \vec{Q}_1, \vec{Q}_2, \omega) \right\}$$

$$I(\vec{K}, \vec{Q}_1, \vec{Q}_2, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 G_{\vec{Q}_1}(\omega_1) G_{\vec{Q}_2}(\omega_2) G_{\vec{K} + \vec{Q}_1 - \vec{Q}_2}(\omega + \omega_1 - \omega_2)$$

$$A_2(\vec{K}, \vec{Q}_1, \vec{Q}_2) = \Omega_X(\vec{K} + \vec{Q}_1 - \vec{Q}_2) - \Omega_Z(\vec{Q}_1 - \vec{Q}_2)$$

$$(\text{II.2.22})$$

$$A_3(\vec{K}, \vec{K} - \vec{Q}_2, \vec{K} + \vec{Q}_1 - \vec{Q}_2, \omega) = \frac{1}{2} A_1(\vec{K}, \vec{K} - \vec{Q}_2) A_1(\vec{K} + \vec{Q}_1 - \vec{Q}_2, \vec{K} - \vec{Q}_2) \frac{i\omega_{\vec{Q}_2}}{(\omega - \Omega_{\vec{Q}_2})^2 - \omega^2_{\vec{K} - \vec{Q}_2}}$$

$$Q_2(\vec{R}, \omega) = -\frac{\beta \tilde{N}_0}{\pi M^3} \sum_{\vec{g}_1 \vec{g}_2 \vec{g}_3} [A_4(\vec{R}, \vec{g}_1, \vec{g}_2, \vec{g}_3, \omega) + A_5(\vec{R}, \vec{g}_1, \vec{g}_2, \vec{g}_3, \omega)] \times \\ \times I(\vec{R}, \vec{g}_1, \vec{g}_2, \omega)$$

$$A_4(\vec{R}, \vec{g}_1, \vec{g}_2, \vec{g}_3, \omega) = b_1(\vec{R}, \vec{g}_1, \vec{g}_2, \vec{g}_3) \left[ \frac{b_3(\vec{R}, \vec{g}_1, \vec{g}_2, \vec{g}_3)}{\omega - b_2(\vec{R}, \vec{g}_1, \vec{g}_2, \vec{g}_3) - \omega_{\vec{g}_1}} + \frac{b_4(\vec{R}, \vec{g}_1, \vec{g}_2, \vec{g}_3)}{\omega - b_2(\vec{R}, \vec{g}_1, \vec{g}_2, \vec{g}_3) + \omega_{\vec{g}_1}} \right]$$

$$b_1(\vec{R}, \vec{g}_1, \vec{g}_2, \vec{g}_3) = -\left(\frac{\hbar}{2M\omega_{\vec{g}_1}}\right)^{1/2} \left[ (\vec{R} - \vec{g}_1 + \vec{g}_2 - \vec{g}_3) \hat{l}_{\vec{g}_1} \Omega_{\vec{R} - \vec{g}_1 + \vec{g}_2 - \vec{g}_3} - \right. \\ \left. - (\vec{R} + \vec{g}_2 - \vec{g}_3) \hat{l}_{\vec{g}_1} \Omega_{\vec{R} + \vec{g}_2 - \vec{g}_3} - (\vec{g}_3 - \vec{g}_2) \hat{l}_{\vec{g}_1} \Omega_{\vec{R} - (\vec{g}_3 - \vec{g}_2)} + \right. \\ \left. + (\vec{g}_3 - \vec{g}_2 + \vec{g}_1) \hat{l}_{\vec{g}_1} \Omega_{\vec{R} - (\vec{g}_3 - \vec{g}_2 + \vec{g}_1)} \right]$$

$$\Delta \Omega_Z = \frac{1}{\hbar} \mathcal{L}_{\vec{R}} ; \quad b_2(\vec{R}, \vec{g}_1, \vec{g}_2, \vec{g}_3) = \Omega_{\vec{g}_2} - \Omega_{\vec{R} - (\vec{R} - \vec{g}_1 + \vec{g}_2 - \vec{g}_3)} - \Omega_{\vec{R} - (\vec{g}_3)}$$

$$b_3(\vec{R}, \vec{g}_1, \vec{g}_2, \vec{g}_3) = \left(\frac{\hbar}{2M\omega_{\vec{g}_1}}\right)^{1/2} \left\{ \left[ (\vec{R} + \vec{g}_2 - \vec{g}_3) \hat{l}_{\vec{g}_1} \Omega_{\vec{R} + \vec{g}_2 - \vec{g}_3} - \right. \right. \\ \left. - (\vec{R} - \vec{g}_1 + \vec{g}_2 - \vec{g}_3) \hat{l}_{\vec{g}_1} \Omega_{\vec{R} - \vec{g}_1 + \vec{g}_2 - \vec{g}_3} + (\vec{R} + \vec{g}_2 - \vec{g}_3) \hat{l}_{\vec{g}_1} \Omega_{\vec{R} + \vec{g}_2 - \vec{g}_3} - \right. \\ \left. - (\vec{R} - \vec{g}_1 + \vec{g}_2 - \vec{g}_3) \hat{l}_{\vec{g}_1} \Omega_{\vec{R} - (\vec{R} - \vec{g}_1 + \vec{g}_2 - \vec{g}_3)} \right] (1 + \mu_{\vec{g}_1}) + \\ \left. + \frac{1}{2} [\vec{g}_2 \hat{l}_{\vec{g}_1} \Omega_{\vec{g}_2} - (\vec{g}_2 + \vec{g}_1) \hat{l}_{\vec{g}_1} \Omega_{\vec{g}_2 + \vec{g}_1}] \mu_{\vec{g}_1} \right\}$$

$$\begin{aligned}
 b_4(\vec{R}, \vec{\vartheta}_1, \vec{\vartheta}_2, \vec{\vartheta}_3) = & \left( \frac{\hbar}{2M\omega_{\vec{\vartheta}_1}} \right)^{1/2} \left\{ \left[ (\vec{R} + \vec{\vartheta}_2 - \vec{\vartheta}_3) \vec{l}_{\vec{\vartheta}_1} \Omega_{\vec{R} + \vec{\vartheta}_2 - \vec{\vartheta}_3} - \right. \right. \\
 & - (\vec{R} - \vec{\vartheta}_1 + \vec{\vartheta}_2 - \vec{\vartheta}_3) \vec{l}_{\vec{\vartheta}_1} \Omega_{\vec{R} - \vec{\vartheta}_1 + \vec{\vartheta}_2 - \vec{\vartheta}_3} + (\vec{R} + \vec{\vartheta}_2 - \vec{\vartheta}_3) \vec{l}_{\vec{\vartheta}_1} \Omega_{\vec{R}} (\vec{R} + \vec{\vartheta}_2 - \vec{\vartheta}_3) - \\
 & \left. \left. - (\vec{R} - \vec{\vartheta}_1 + \vec{\vartheta}_2 - \vec{\vartheta}_3) \vec{l}_{\vec{\vartheta}_1} \Omega_{\vec{R}} (\vec{R} - \vec{\vartheta}_1 + \vec{\vartheta}_2 - \vec{\vartheta}_3) \right] M_{\vec{\vartheta}_1} + \right. \\
 & \left. \left. + \frac{1}{2} [\vec{\vartheta}_2 \vec{l}_{\vec{\vartheta}_1} \Omega_{\vec{\vartheta}_2} - (\vec{\vartheta}_2 + \vec{\vartheta}_1) \vec{l}_{\vec{\vartheta}_1} \Omega_{\vec{\vartheta}_2 + \vec{\vartheta}_1}] (1 + M_{\vec{\vartheta}_1}) \right\}
 \end{aligned}$$

$$A_5(\vec{R}, \vec{\vartheta}_1, \vec{\vartheta}_2, \vec{\vartheta}_3, \omega) = -\frac{1}{2} \left[ \frac{b_5(\vec{R}, \vec{\vartheta}_1, \vec{\vartheta}_2, \vec{\vartheta}_3, \omega)}{\omega - \Omega_{\vec{R} - \vec{\vartheta}_1} - \omega_{\vec{\vartheta}_1}} + \frac{b_6(\vec{R}, \vec{\vartheta}_1, \vec{\vartheta}_2, \vec{\vartheta}_3, \omega)}{\omega - \Omega_{\vec{R} - \vec{\vartheta}_1} + \omega_{\vec{\vartheta}_1}} \right] A_1(\vec{R}, \vec{\vartheta}_1)$$

$$\begin{aligned}
 b_5(\vec{R}, \vec{\vartheta}_1, \vec{\vartheta}_2, \vec{\vartheta}_3, \omega) = & b_1(\vec{R}, \vec{\vartheta}_1, \vec{\vartheta}_2, \vec{\vartheta}_3) (1 + M_{\vec{\vartheta}_1}) - 2 b_3(\vec{R}, \vec{\vartheta}_1, \vec{\vartheta}_2, \vec{\vartheta}_3) \times \\
 & \times \frac{A_2(\vec{R}, \vec{\vartheta}_1, \vec{\vartheta}_2, \vec{\vartheta}_3)}{\omega - b_2(\vec{R}, \vec{\vartheta}_1, \vec{\vartheta}_2, \vec{\vartheta}_3) - \omega_{\vec{\vartheta}_1}}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 b_6(\vec{R}, \vec{\vartheta}_1, \vec{\vartheta}_2, \vec{\vartheta}_3, \omega) = & b_7(\vec{R}, \vec{\vartheta}_1, \vec{\vartheta}_2, \vec{\vartheta}_3, \omega) M_{\vec{\vartheta}_1} - 2 b_4(\vec{R}, \vec{\vartheta}_1, \vec{\vartheta}_2, \vec{\vartheta}_3) \times \\
 & \times \frac{A_2(\vec{R}, \vec{\vartheta}_1, \vec{\vartheta}_2, \vec{\vartheta}_3)}{\omega - b_2(\vec{R}, \vec{\vartheta}_1, \vec{\vartheta}_2, \vec{\vartheta}_3) + \omega_{\vec{\vartheta}_1}}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 b_7(\vec{R}, \vec{\vartheta}_1, \vec{\vartheta}_2, \vec{\vartheta}_3) = & \left( \frac{\hbar}{2M\omega_{\vec{\vartheta}_1}} \right)^{1/2} \left[ (\vec{R} - \vec{\vartheta}_1 + \vec{\vartheta}_2 - \vec{\vartheta}_3) \vec{l}_{\vec{\vartheta}_1} \Omega_{\vec{R} - \vec{\vartheta}_1 + \vec{\vartheta}_2 - \vec{\vartheta}_3} - \right. \\
 & - (\vec{R} + \vec{\vartheta}_2 - \vec{\vartheta}_3) \vec{l}_{\vec{\vartheta}_1} \Omega_{\vec{R} + \vec{\vartheta}_2 - \vec{\vartheta}_3} + (\vec{\vartheta}_3 - \vec{\vartheta}_2) \vec{l}_{\vec{\vartheta}_1} \Omega_{\vec{R}} (\vec{\vartheta}_3 - \vec{\vartheta}_2) - \\
 & \left. - (\vec{\vartheta}_3 - \vec{\vartheta}_2 - \vec{\vartheta}_1) \vec{l}_{\vec{\vartheta}_1} \Omega_{\vec{R}} (\vec{\vartheta}_3 - \vec{\vartheta}_2 - \vec{\vartheta}_1) \right]
 \end{aligned}$$

(II.2.23)

i

$$\bar{N}_0 = \langle B_0^\dagger B_0 \rangle = \frac{1}{e^{\frac{\hbar\omega_0}{kT} - 1}} \quad (\text{II.2.24})$$

predstavlja koncentraciju eksitona. Treba napomenuti da su u svim imaginarnim delovima funkcije  $\Gamma_{\vec{k}}(\omega)$  zanemarene eksitonske koncentracije. Veličina  $\bar{N}_0$  zadržana je u realnim delovima funkcije  $\Gamma_{\vec{k}}(\omega)$  budući da oni, kao što znamo iz ranije iznetog, dovode do apsorpcionih fenomena.

Za izračunavanje dielektrične konstante koristićemo formulu:

$$\frac{1}{\epsilon(\omega)} = 1 - i \frac{E_0^2 \tau_0}{4\hbar} [ \Gamma_0(\omega) + \Gamma_0(-\omega) ] \quad (\text{II.2.25})$$

koja važi za slučaj izotropne aproksimacije uz zanemarivanje prostorne disperzije. U relaciji (II.2.25), kao što znamo od ranije,  $E_0$  predstavlja jačinu lokalnog električnog polja u elementarnoj celiji kristala, dok je  $\tau_0$  zapremina elementarne celije.

Kao što je učinjeno u prethodnom odeljku, imaginarni deo GF-e  $\Gamma_{\vec{k}}(\omega)$  izračunaćemo u najnižoj aproksimaciji [to, s obzirom na (II.2.25), znači da se realni deo dielektrične konstante dobija u najnižoj aproksimaciji], dok će se realni deo GF-e  $\Gamma_{\vec{k}}(\omega)$ , odnosno imaginarni deo dielektrične konstante, računati sa više detalja. U delovima funkcije  $\Gamma_{\vec{k}}(\omega)$  koji dolaze usled prisustva fonona bitne aproksimacije koje ćemo učiniti su: zamena fononske frekvencije  $\omega_{\vec{k}}$  debajevskom frekvencijom  $\omega_D$  i uzimanje izraza  $\vec{\zeta}_{\vec{q}}(\vec{q} \pm \vec{k}) \approx q_D = \frac{\omega_D}{v}$ .

Ako  $\Gamma_0(\omega)$  sračunamo na opisani način i rezultat uvrstimo u formulu (II.2.25), dobijamo:

$$\tilde{E}(g) = \operatorname{Re} E(g) + i \operatorname{Im} E(g) \quad ; \quad g = \frac{w}{\Omega_A}$$

$$\operatorname{Re} E(g) = \frac{1 + \frac{S}{\Omega_A} (\beta_g + \beta_{-g})}{\left[ 1 + \frac{S}{\Omega_A} (\beta_g + \beta_{-g}) \right]^2 + \left[ \frac{S}{\Omega_A} (\gamma_g + \gamma_{-g}) \right]^2}$$

$$\operatorname{Im} E(g) = \frac{\frac{S}{\Omega_A} (\gamma_g + \gamma_{-g})}{\left[ 1 + \frac{S}{\Omega_A} (\beta_g + \beta_{-g}) \right]^2 + \left[ \frac{S}{\Omega_A} (\gamma_g + \gamma_{-g}) \right]^2}$$

$$S = \frac{E_0^2 C_0}{8\pi k} \quad (\text{II.2.26})$$

Funkcije  $\beta$  i  $\gamma$ , koje figurišu u (II.2.26) date su izrazima:

$$\beta_g = \frac{\psi_1(g) \psi_2(g) + d_6 \psi_3(g) (g-1)^4}{\psi_2^2(g) + d_4^2 \psi_3^2(g) (g-1)^6}$$

$$\gamma_g = \frac{d_4 \psi_1(g) \psi_3(g) (g-1)^3 - d_5 \psi_2(g) (g-1)}{\psi_2^2(g) + d_4^2 \psi_3^2(g) (g-1)^6}$$

gde su:

$$\psi_1(g) = 1 + \frac{d_2}{g-1} - d_3 \frac{d_1 + (g-1) f_1(g)}{(g-1)[(g-1)^2 - d_1^2]} - \frac{d_4 f_2(g)}{(g-1)(g-1-d_1)^2} - \frac{d_7 f_3(g)}{(g-1)(g-1+d_1)^2}$$

$$\Psi_2(\varrho) = \varrho - 1 - d_5 - \frac{d_1 + (\varrho - 1) f_1(\theta)}{(\varrho - 1)^2 - d_1^2}$$

$$\Psi_3(\varrho) = [e^{-\frac{f_4(\theta)}{1-\varrho}} - 1]^{-\frac{1}{2}}$$

$$d_1 = \frac{\omega_0}{\Omega_\Delta} ; \quad d_2 = \frac{\Omega_x(0) - \Omega_z(0)}{\Omega_\Delta} ; \quad d_3 = \frac{\hbar \omega_0}{2 M V^2} ; \quad d_4 = \frac{\hbar \Omega_\Delta}{4 \pi d V^5}$$

$$d_5 = \frac{3 \pi \Omega_\Delta \bar{N}_0 [\Omega_x(0) - \Omega_z(0)]}{32 \Omega_x^2(0)} ; \quad d_6 = \frac{3 \hbar \Omega_\Delta^5 \bar{N}_0 [\Omega_x(0) - \Omega_z(0)]}{128 d V^5 \Omega_x^2(0)}$$

$$d_7 = \frac{\hbar \omega_0 [\Omega_x(0) - \Omega_z(0)]}{4 M V^2 \Omega_\Delta}$$

$$f_1(\theta) = ct_2 \hbar \frac{\hbar \omega_0}{2 \theta} ; \quad f_2(\theta) = 2 + (e^{-\frac{\hbar \omega_0}{\theta}} - 1)^{-1}$$

$$f_3(\theta) = -1 + (e^{-\frac{\hbar \omega_0}{\theta}} - 1)^{-1} ; \quad f_4(\theta) = \frac{\hbar \Omega_\Delta}{\theta}$$

(II.2.28)

a d je gustina kristala.

U formuli (II.2.26) veličina  $\rho$  se menja u intervalu:

$$1 - Q_0 \leq g \leq 1 + Q_0$$

$$Q_0 = 2Q_0^2 \frac{|\Omega_x|}{\Omega_\Delta} \quad ; \quad Q_0 = \sqrt[3]{6\pi^2} \quad (\text{II.2.29})$$

što znači da je širina apsorpcione zone:

$$\Delta\omega_A = 4Q_0^2 |\Omega_x| \quad (\text{II.2.30})$$

Kao što se vidi širina apsorpcione zone diktirana je isključivo kinematičkim eksitonskim efektima i proporcionalna je širini eksitonske zone.

Koristeći formulu:

$$\sqrt{\epsilon(g)} = n(g) + i\alpha(g) \quad (\text{II.2.31})$$

nalazimo indeks prelamanja dat sa:

$$n(g) = \left\{ \frac{\sqrt{[\operatorname{Re}\epsilon(g)]^2 + [\operatorname{Im}\epsilon(g)]^2} + \operatorname{Re}\epsilon(g)}{2} \right\}^{1/2} \quad (\text{II.2.32})$$

a indeks apsorpcije sa:

$$\alpha(g) = \left\{ \frac{\sqrt{[\operatorname{Re}\epsilon(g)]^2 + [\operatorname{Im}\epsilon(g)]^2} - \operatorname{Re}\epsilon(g)}{2} \right\}^{1/2} \quad (\text{II.2.33})$$

Analiza indeksa apsorpcije pokazuje sledeće:

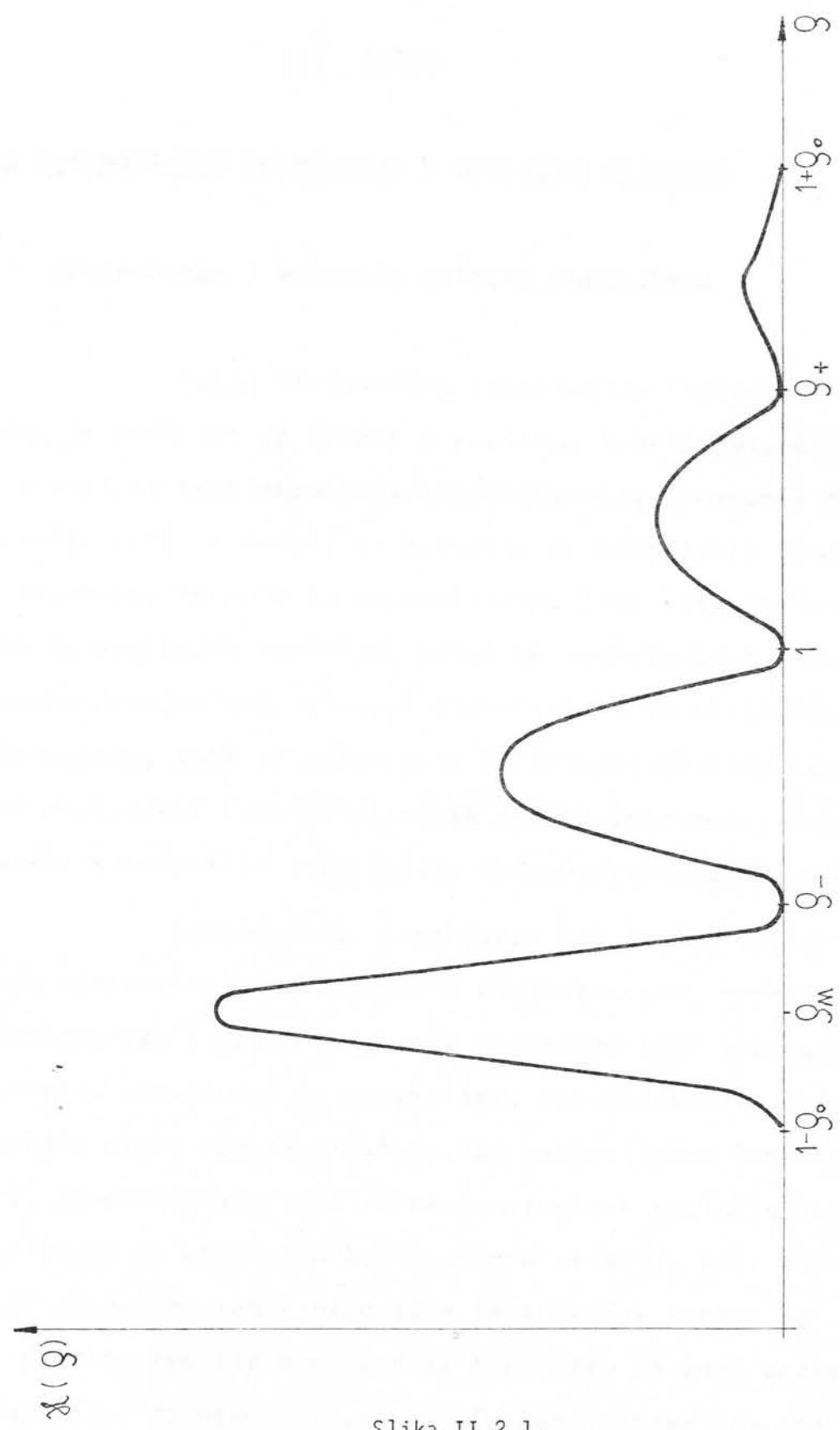
- a) za  $\rho = \rho_M$ , gde su  $n_i$  jednaki, indeks apsorpcije ima oštar pik koji dolazi kao rezultat eksiton-eksiton interakcija (vidi analogne analize iz prethodne glave);

b) eksiton-fonon interakcija dovodi do dopunskih nula indeksa apsorpcije i to u tačkama  $\rho_{\pm} = 1 \pm \frac{\omega_D}{\Omega_{\Delta}}$ , pri čemu je  $\rho_- > \rho_M$ . Usled ovoga se pojavljuju dva pika u intervalima  $(\rho_-, 1)$  i  $(1, \rho_+)$  koji su niži od pika u tački  $\rho_M$ . Ova dva pika u indeksu apsorpcije su posledica upravo pomenute eksiton-fonon interakcije;

c) U intervalu  $(\rho_+, 1+\rho_0)$  pojavljuje se najniži pik koji se, analogno rezultatima prethodnog odeljka može ponovo pripisati eksiton-eksiton interakciji.

Šematski, ponašanje indeksa apsorpcije može se prikazati na sledeći način (Sl. II.2.1).

Rezimirajući rezultate ovih analiza dolazimo do zaključka da u efektima apsorpcije eksiton-eksiton interakcija ima ravnopravnu ulogu sa eksiton-fonon interakcijom i da se njenim ispuštanjem iz računa gube veoma značajni efekti (pojava dva pika u indeksu apsorpcije, od kojih je pik u tački  $\rho_M$  dominantan). Pojava ovih pikova je, kao što se iz izvedenih analiza vidi, rezultat kinematičke eksitonske interakcije koja se u fizičkom smislu demonstrira kao fuzija dva eksitona u par i kao raspad para.



Slika II.2.1.

### III GLAVA

## ULOGA KINEMATIČKIH POBUDJENJA U OPTIČKIM POJAVAMA

### III.1. KINEMATIČKA I NORMALNA OPTIČKA POBUDJENJA

Pojam kinematičke interakcije elementarnih ekscitacija prvi put je uveden u kvantnoj teoriji magnetizma i to u vezi sa problemom niskotemperaturskog ponašanja magnetizacije [21]. U nameri da pronadju anharmonijske korekcije Bloch-ove formule za magnetizaciju [42] izvestan broj autora je predložio različite bozonske reprezentacije za spinske operatore [43-46]. članovi u ekvivalentnom bozonskom hamiltonijanu, koji se pojavljuju usled razlike u komutacionim relacijama između spinskih i Boze-operatora, dobili su naziv: kinematička interakcija elementarnih pobudjenja.

Godine 1949. Bogoliubov [6] je dao opštu teoriju elementarnih pobudjenja u dielektricima. Hamiltonian dielektrika izražen je pomoću operatora koji kreiraju i anihiliraju pobudjenja na molekulima. Ovi operatori, kasnije nazvani kvazi Pauli-operatori ili generalisani Pauli-operatori, zadovoljavaju specifične komutacione realcije koje se razlikuju od bozonskih komutacionih relacija [4]. Zahvaljujući ovome problem kinematičke interakcije postao je opšti problem teorije dielektrika i prestao da bude vezan isključivo za spinske sisteme. Ideje Bogoliubova uspešno je

primenio Agranović [8] u teoriji eksitona u molekularnim kristalima. Analiza nelinearnih optičkih efekata u molekularnim kristalima zahtevala je da se pronadju egzaktne bozonske reprezentacije za Pauli, i kvazi Pauli-operatore. Ovo je učinjeno u radovima [4, 7, 47]. Nekako u isto vreme data je i egzaktna bozonska reprezentacija spinskih operatora. Pomenute egzaktne reprezentacije iskorišćene su u analizi problema Boze kondenzacije eksitona [7]. U kvantnoj teoriji magnetizma, pomoću ovih egzaktnih reprezentacija reproducovan je poznati Dyson-ov izraz za niskotemperatursko ponašanje magnetizacije [48].

Najinteresantnija posledica kinematicke interakcije je svakako pojava dopunskih energetskih nivoa koji nastaju u procesima fuzije inicijalnih pobudjenja. Ove eksitacije imaju kratko vreme života u odnosu na eksitone i odgovorne su za procese apsorpcije svetlosti. Kinematicki nivoi ili kinematicke eksitacije analizirane su u radovima [23, 25, 26, 27, 49], ali ni do danas njihove karakteristike, kao ni njihova uloga u različitim optičkim procesima, nisu definitivno razjašnjeni. Glavni razlog za ovo su različiti prilazi postupku dekuplovanja tročestičnih bozonskih GF-a čiji polovi daju energije kinematickih nivoa. Naša namera je da detaljnije razjasnimo ulogu kinematickih eksitacija u različitim optičkim procesima. Pri tome ćemo svekako startovati od osnovnog problema, a to je korektan način dekuplovanja viših bozonskih GF-a.

Hamiltonian eksitonskog sistema uzećemo u obliku:

$$H = \Delta \sum_{\vec{n}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}} + \sum_{\vec{n} \neq \vec{m}} X_{\vec{n} \vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{m}} + \sum_{\vec{n} \neq \vec{m}} Y_{\vec{n} \vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{m}} P_{\vec{m}}^+ P_{\vec{n}}$$
(III.1.1)

Ovde je  $\Delta$  - energija pobudjenja izolovanog molekula,  $X$  i  $Y$  su matrični elementi dipol-dipolnih (ili, generalno, multipol-multipolnih interakcija) izmedju molekula, dok su  $P^+$  i  $P$  Pauli-operatori koji kreiraju, odnosno anihiliraju, eksicacije na čvoru rešetke  $\vec{n}$ . Navedeni hamiltonijan uzet je za prostu kubnu rešetku i odgovara dvonivoskoj šemi molekularnih pobudjenja. Detalji o navedenom hamiltonijanu dati su u prvoj glavi. Treba ponovo naglasiti da smo odabrali ovako uprošćenu situaciju u prvom redu zbog toga što želimo da dobijemo koliko-toliko matematički traktabilne rezultate. S druge strane, a zbog navedenih uprošćenja, dobijeni rezultati imaće uglavnom kvalitativan karakter.

Da bismo izbegli pozivanje na tekstualno udaljene delove rada ovde ćemo navesti komutacione relacije za Pauli-operatore, kao i njihovu egzaktnu bozonsku reprezentaciju. Dakle, Pauli-operatori zadovoljavaju sledeće komutacione relacije:

$$[P_{\vec{n}}, P_{\vec{n}}^+] = (1 - 2 P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}}) \delta_{\vec{n}\vec{n}} \quad ; \quad [P_{\vec{n}}, P_{\vec{m}}] = [P_{\vec{n}}^+, P_{\vec{m}}^+] = 0$$

$$P_{\vec{n}}^2 = P_{\vec{n}}^{+2} = 0 \quad ; \quad (P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}})_{e.v.} = 0 \text{ ili } 1$$
(III.1.2)

Egzaktna bozonska reprezentacija Pauli-operatora je:

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

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

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

(III.1.3)

Formule (III.1.3) egzaktno reprezentuju Pauli-operatore u tom smislu, što beskonačni bozonski redovi u prostoru bozon-skih stanja zadovoljavaju komutacione relacije (III.1.2).

S ciljem da nadjemo GF-u sistema interagujućih bozona (analizu ćemo izvršiti u bozonskoj slici, jer se eksitoni u harmonijskoj aproksimaciji tretiraju kao Boze-pobudjenja) startovaćemo od retardovane, komutatorske paulion-ske GF-e:

$$\Gamma_{\vec{q}_1 \vec{q}_2}(t) \equiv \langle\langle P_{\vec{q}_1}(t) | P_{\vec{q}_2}^+(0) \rangle\rangle = \theta(t) \langle [P_{\vec{q}_1}(t), P_{\vec{q}_2}^+(0)] \rangle$$

$$\theta(t) = \begin{cases} 1 & ; \quad t > 0 \\ 0 & ; \quad t < 0 \end{cases}$$

(III.1.4)

S obzirom na formu hamiltonijana (III.1.1) jednačina za odredjivanje funkcije  $\Gamma$  ima sledeći oblik:

$$i\hbar \frac{d}{dt} \langle\langle P_f(t) | P_g^+(0) \rangle\rangle - \Delta \langle\langle P_f(t) | P_g^+(0) \rangle\rangle -$$

$$- \sum_{\vec{n}\vec{m}} X_{\vec{f}\vec{m}} \langle\langle P_{\vec{n}}(t) | P_g^+(0) \rangle\rangle = i\hbar \delta(t) \delta_{\vec{f}\vec{g}} (1 - 2\langle P^+ P \rangle) -$$

$$- 2 \sum_{\vec{m}} X_{\vec{f}\vec{m}} \langle\langle P_f^+(t) P_f(t) P_{\vec{m}}(t) | P_g^+(0) \rangle\rangle + 2 \sum_{\vec{m}} Y_{\vec{f}\vec{m}} \langle\langle P_{\vec{m}}^+(t) P_{\vec{m}}(t) P_f(t) | P_g^+(0) \rangle\rangle$$

(III.1.5)

Funkciju  $\Gamma$ , kao i paulionske funkcije višeg reda koje figurišu na desnoj strani jednačine (III.1.5), izrazićemo preko Boze-operatora koristeći formule (III.1.3). Pošto će svi dalji računi biti izvedeni sa tačnošću do prvog stepena eksitonske koncentracije zaključno, nećemo koristiti kompletne beskonačne bozonske redove nego aproksimativne izraze, koji slede iz (III.1.3), i to:

$$P_{\vec{n}} \approx B_{\vec{n}} - B_{\vec{n}}^\dagger B_{\vec{n}} B_{\vec{n}} ; \quad P_{\vec{n}}^+ \approx B_{\vec{n}}^\dagger - B_{\vec{n}}^\dagger B_{\vec{n}}^\dagger B_{\vec{n}}$$

(III.1.6)

Posle zamene (III.1.6) u paulionskim funkcijama iz (III.1.5), u ovoj jednačini se pojavljuju bozonske GF-e višeg reda koje sadrže proizvode četiri Boze-operatora i proizvode šest Boze-operatora. Ove više bozonske GF-e su dekuplovane korišćenjem Wick-ove teoreme za Boze-operatore, pri čemu su sparivani Boze-operatori koji deluju u istom trenutku vremena, a takodje i Boze-operatori koji deluju u različitim trenutcima vremena. Navedena procedura

dekuplovanja detaljno je izložena u matematičkom dodatku, pa se ovde neće navoditi.

Opisanim postupkom dekuplovanja u računu se, pored retardovanih komutatorskih bozonskih GF-a pojavljuju i pseudokauzalne bozonske GF-e:

$$\begin{aligned} g_{\vec{k}\vec{g}}^{(pr)}(t) &= \theta(t) \langle B_{\vec{g}}^+(t) B_{\vec{g}}^+(0) \rangle ; & \tilde{g}_{\vec{k}\vec{g}}^{(pa)}(t) &= \theta(t) \langle B_{\vec{g}}^+(t) B_{\vec{g}}^+(0) \rangle \\ \tilde{g}_{\vec{g}\vec{g}}^{(pr)}(t) &= \theta(t) \langle B_{\vec{g}}^+(0) B_{\vec{g}}^+(t) \rangle ; & \tilde{g}_{\vec{g}\vec{g}}^{(pa)}(t) &= \theta(t) \langle B_{\vec{g}}^+(0) B_{\vec{g}}^+(t) \rangle \end{aligned} \quad (\text{III.1.7})$$

Ove funkcije izračunate su u harmonijskoj aproksimaciji, tj. sa hamiltonijanom (III.1.1) uzetim u aproksimaciji približne druge kvantizacije Bogoliubova [6]:

$$H \rightarrow H_R = \Delta \sum_{\vec{n}} B_{\vec{n}}^+ B_{\vec{n}} + \sum_{\vec{n} \neq \vec{m}} X_{\vec{n}\vec{m}} B_{\vec{n}}^+ B_{\vec{m}} \quad (\text{III.1.8})$$

Fourie komponente funkcija (III.1.7) definisane su relacijom:

$$\Psi_{\vec{k}\vec{g}}(t) = \frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} e^{i\vec{k}(\vec{g}-\vec{g})} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega e^{-i\omega t} \psi_{\vec{k}, \vec{g}} \quad (\text{III.1.9})$$

gde je N - broj molekula u kristalu, i imaju oblik:

$$g_{\vec{k}}^{(pr)}(\omega + i\delta) = \tilde{g}_{\vec{k}}^{(pa)}(\omega + i\delta) = \frac{i}{2\pi} \frac{1 + \bar{N}_{\vec{k}, \vec{k}}}{\omega + \Omega_{\vec{k}} + i\delta} \quad \delta \rightarrow 0$$

$$g_{\vec{k}}^{(pa)}(\omega + i\delta) = \tilde{g}_{\vec{k}}^{(pr)}(\omega + i\delta) = \frac{i}{2\pi} \frac{\bar{N}_{\vec{k}, \vec{k}}}{\omega - \Omega_{\vec{k}} + i\delta} \quad \delta \rightarrow 0$$

$$\Omega_{\vec{k}} = \Omega_{\Delta} + \Omega_{X; \vec{k}} ; \quad \Omega_{\Delta} = \hbar^{-1} \Delta ; \quad \Omega_{X; \vec{k}} = \hbar^{-1} X_{\vec{k}}$$

$$X_{\vec{k}} = \sum_{\vec{n}} X_{\vec{n}; \vec{k}} e^{i \vec{k} \cdot \vec{n}} ; \quad \bar{N}_{B; \vec{k}} = \langle B_{\vec{k}}^{\dagger} B_{\vec{k}} \rangle$$

(III.1.10)

Procedura daljeg računa je manje-više prosta.

Paulionske GF-e, koje su na opisani način izražene preko bozonskih GF-a, zamene se u (III.1.5). Dobijena jednačina, koja sada sadrži samo bozonske GF-e, prevede se u Fourie komponente transformacijom tipa (III.1.9) i reši se eksplicitno po retardovanoj komutatorskoj bozonskoj GF-i. Ovom prilikom svi doprinosi proporcionalni kvadratu bozonske koncentracije se zanemaruju. Na taj način se dobija sledeći rezultat:

$$G_{\vec{k}}(\omega) = -\frac{i}{2\pi} \frac{1 + 2\bar{N}_B}{(\omega - \Omega_{\vec{k}} + M_{\vec{k}}) Q_{\vec{k}}(\omega)}$$

$$\bar{N}_B = \frac{1}{N} \sum_{\vec{k}} N_{B; \vec{k}} \quad (\text{III.1.11})$$

Funkcija  $M_{\vec{k}}$ , koja figuriše u (III.1.11) data je sa:

$$M_{\vec{k}} = \frac{2}{N} \sum_{\vec{z}} (\Omega_{X; \vec{k}} + \Omega_{X; \vec{z}} - \Omega_{Y; \vec{k}} - \Omega_{Y; \vec{z}}) N_{B; \vec{z}}$$

$$\Omega_{Y; \vec{k}} = \hbar^{-1} Y_{\vec{k}} ; \quad Y_{\vec{k}} = \sum_{\vec{n}} Y_{\vec{n}; \vec{k}} e^{i \vec{k} \cdot \vec{n}} \quad (\text{III.1.12})$$

i predstavlja korekciju harmonijske eksitonske frekvencije  $\Omega_{\vec{k}}$  koja dolazi usled nelinearnih efekata.

Na osnovu ovoga, frekvencije normalnih eksitonskih nivoa su date izrazom:

$$\omega_n(\vec{k}) = \Omega_{\vec{k}} - M_{\vec{k}} \quad (\text{III.1.13})$$

Funkcija  $Q_{\vec{k}}(\omega)$  data je, kako sledi, sa:

$$Q_{\vec{k}}(\omega) = 1 + \frac{3}{2N^2} \sum_{\vec{q}_1 \vec{q}_2} [\omega - \Omega_{\vec{k}} - \Phi_{(\vec{k}, \vec{q}_1, \vec{q}_2)}] \lambda_{(\vec{k}, \vec{q}_1, \vec{q}_2; \omega)} \bar{N}_{B; \vec{q}_1}$$

$$\Phi_{(\vec{k}, \vec{q}_1, \vec{q}_2)} = \Omega_x; \vec{k} - \vec{q}_1 + \vec{q}_2 + \Omega_x; \vec{q}_2 - \Omega_y; \vec{q}_1 - \vec{q}_2 - \Omega_y; \vec{k} - \vec{q}_2$$

$$\begin{aligned} \lambda_{(\vec{k}, \vec{q}_1, \vec{q}_2; \omega)} &= \frac{1}{\omega + \Omega_{\vec{q}_1} - \Omega_{\vec{q}_2} - \Omega_{\vec{k}-\vec{q}_1+\vec{q}_2} + \frac{1}{3} i \delta} = \\ &= \frac{1}{\omega + \Omega_{\vec{q}_1} - \Omega_{\vec{q}_2} - \Omega_{\vec{k}-\vec{q}_1+\vec{q}_2}} - \frac{1}{3} i \delta (\omega + \Omega_{\vec{q}_1} - \Omega_{\vec{q}_2} - \Omega_{\vec{k}-\vec{q}_1+\vec{q}_2}) \end{aligned} \quad (\text{III.1.14})$$

Jednačina:

$$Q_{\vec{k}}(\omega) = 0 \quad (\text{III.1.15})$$

daje dopunske polove GF-e  $G_{\vec{k}}(\omega)$  u odnosu na pol  $\omega_n(\vec{k})$ . Rešenja jednačine (III.1.15) predstavljaju frekvencije tzv. kinematickih ekscitacija koje nastaju u tročestičnim bozon-skim procesima.

U opštem slučaju, frekvencije koje zadovoljavaju jednačinu (III.1.15) su kompleksne veličine. To znači da su kinematicke ekscitacije prigušene i da imaju konačno vreme života. Jasno je, nažalost, da se frekvencije, koje zadovoljavaju jednačinu (III.1.15) ne mogu naći analitički i njihov proračun zahteva upotrebu računara. Ovde ćemo, u želji da dobijemo barem kvalitativnu sliku o kinematickim nivoima, jednačinu (III.1.15) rešiti aproksimativno. Ako se

zanemari prostorna dispercija, tj.:  $\Omega_{x;\vec{k}} \rightarrow \Omega_{x;0}$ ,  $\Omega_{y;\vec{k}} \rightarrow \Omega_{y;0}$  i  $\bar{N}_{B;\vec{k}} \rightarrow \bar{N}_B$  i prepostavi da je  $\omega \neq \Omega_0$ , jednačina (III.1.15) se svodi na oblik:

$$1 + \frac{3}{2} \bar{N}_B - \frac{3\Omega_{x;0}(1-\eta)\bar{N}_B}{\omega - \Omega_0} = 0$$

odakle, nakon zanemarivanja kvadrata eksitonskih koncentracija, dobijamo:

$$\omega_c = \Omega_0 + 3\Omega_{x;0}(1-\eta)\bar{N}_B$$

$$\Omega_0 = \Omega_\Delta + \Omega_{x;0} \quad ; \quad \eta = \frac{\Omega_{y;0}}{\Omega_{x;0}}$$

(III.1.16)

Ako iskoristimo istu aproksimaciju u (III.1.12) i uzmememo u obzir da posle  $\bar{N}_{B;\vec{q}} \rightarrow \bar{N}_B$  sledi da je  $\sum_q \Omega_{x;\vec{q}} = \sum_q \Omega_{y;\vec{k}-\vec{q}} = 0$ , onda, na osnovu (III.1.13), dobijamo energije normalnih eksitonskih nivoa

$$\omega_n = \Omega_0 - 2\Omega_{x;0}(1-\eta)\bar{N}_B \quad (III.1.17)$$

Bozonska GF-a (III.1.11) svodi se u ukazanoj aproksimaciji na sledeći oblik:

$$G_o(\omega) = \frac{i}{2\pi} \frac{(1 + \frac{1}{2}\bar{N}_B)(\omega - \Omega_0)}{(\omega - \omega_n)(\omega - \omega_c)} \quad (III.1.18)$$

Poredeći (III.1.16) sa (III.1.17) možemo zaključiti da su kinematicki i normalni nivoi energetski veoma bliski jedno drugom i to zbog činjenice što su maksimalne eksitonske koncentracije reda  $10^{-3}$ - $10^{-2}$ . Ostaje otvoreno pi-

tanje da li se prag izmedju kinematičkih i normalnih nivoa, koji prema izvedenoj proceni iznosi  $|\omega_n - \omega_c| = |5\bar{N}_B \Omega_{x;0}(1-\eta)|$ , može eksperimentalno registrovati.

Treba naglasiti da je, u okviru upotrebljene aproksimacije, zanemareno priuštenje kinematičkih nivoa. Ono će biti uzeto u obzir u daljim analizama.

### III.2. REFRAKCIJA, APSORPCIJA I ŠIRENJE NIVOA

Da bismo ispitali procese prelamanja i apsorpcije svetlosti u molekularnim kristalima moramo naći tenzor dielektrične permeabilnosti kristala.

Kao što je poznato i opisano, tenzor dielektrične permeabilnosti izražava se preko retardovanih i avansovanih komutatorskih GF-a. Ove GF-e konstituisane su od operatora koji kreiraju i anihiliraju elementarna pobudjenja u kristalu. Uopšte procedura koja povezuje tenzor dielektrične permeabilnosti sa Green-ovim funkcijama izložena je u [18]. U slučaju eksitona bitan momenat u opštoj proceduri je razvijanje komponenata električnog polja po Pauli-operatorima. Ova procedura daje formulu u kojoj je tenzor dielektrične permeabilnosti izražen preko paulinskih GF-a.

Ovde ćemo, za razliku od opšteg prilaza, uzeti da električno polje predstavlja linearnu kombinaciju Boze-operatora koji kreiraju i anihiliraju pobudjenja, a čije su energije procenjene u prethodnom paragrafu. Na ovaj način dobija se veza izmedju tenzora dielektrične permeabilnosti i bozonskih GF-a datih formulom (III.1.11).

Pomenuta aproksimacija (razvoj električnog polja po Boze-operatorima) korišćena je iz više razloga. Prvi razlog je taj što su bozonske GF-e (III.1.11) izračunate potpuno tačno do prvog stepena koncentracije zaključno, dok proračun paulionskih GF-a zahteva niz aproksimacija koje se ne mogu potpuno kontrolisati. Osim toga, pokušaji koji su učinjeni u [50,60-62] (izloženi su i u drugoj glavi ovoga rada) i koji su se sastojali u tome da se više paulionske GF-e izraze preko Boze-operatora, te na taj način dobiju izrazi za polazne paulionske GF-e, ne bi se mogli oceniti kao potpuno zadovoljavajući. Ovakav postupak nije dozvolio da se u proračunu dielektrične konstante uključi maseni operator  $M_{\vec{k}}$ . Takodje su bili izgubljeni doprinosi kinematičkih nivoa, budući da u paulionskoj GF-i nije figursao pol  $\omega_c$ . Očigledno je da bi pri izračunavanju paulionskih GF-a sistema trebalo koristiti veći broj jednačina u lancu koji određuje ove GF-e, a to bi opet vodilo do veoma glomaznih formula iz kojih bi bilo teško izvršiti bilo kakvu procenu ponašanja tenzora dielektrične permeabilnosti.

Pošto je postupak izračunavanja tenzora dielektrične permeabilnosti već izložen u ovom radu na daljim detaljima računa, osim ukazanog, nećemo se zadržavati. Ako se zanemari prostorna disperzija i iskoristi izotropna aproksimacija, koja svodi tenzor dielektrične permeabilnosti na skalar, za dielektričnu konstantu se dobija izraz (vidi [50]):

$$\tilde{E}^{-1}(\omega) = 1 - i \frac{E_0^2 \tau_0}{4\hbar} [G_0(\omega) + \tilde{G}_0(\omega)] \quad (\text{III.2.1})$$

U navedenoj formuli  $E_0$  predstavlja električno polje u elementarnoj ćeliji kristala dok je  $\tau_0 = a^3$ , zapremina elementarne ćelije. GF-a  $G_0(\omega)$  data je formulom (III.1.11) dok se avansovana funkcija  $\tilde{G}_0(\omega)$  može izračunati na osnovu opšteg pravila:

$$\tilde{G}_k(\omega + i\delta) = G_k(-\omega - i\delta) \quad (\text{III.2.2})$$

$\delta \rightarrow 0$

Treba naglasiti da se električno polje  $E_0$  može izraziti preko dipolnog momenta prelaza  $\vec{\mathcal{D}}_{of}$  i to na sledeći način:

$$E_0 = \frac{6}{\tau_0} |\vec{\mathcal{D}}_{of}| \quad (\text{III.2.3})$$

U poslednjem izrazu sa 0 i f označeni su osnovno i pobudjeno stanje molekula, respektivno, a sama funkcija važi za prostu kubnu strukturu i uzeta je u aproksimaciji najbližih suseda (vidi ref. [36] str. 30).

U nameri da u analizu uključimo efekte prigušenja izračunaćemo imaginarni deo funkcije  $Q_0(\omega)$ . U računu će biti korišćena apsoksimacija najbližih suseda i aproksimacija malih talasnih vektora, a to znači da će šematski biti uzeto:

$$\Omega_{x; \vec{R}_1, \vec{R}_2} = \Omega_{x; 0} - \frac{1}{6} \Omega_{x; 0} \Omega^2 (K_1^2 + K_2^2 - 2 K_1 K_2 \cos \angle(\vec{R}_1, \vec{R}_2))$$

$$Z = X, Y \quad (\text{III.2.4})$$

Takodje će biti korišćena aproksimacija  $\tilde{N}_{B; \vec{q}_1} \approx \tilde{N}_B$ . Realni deo funkcije  $Q_0(\omega)$  biće korišćen u obliku u kome je izračunat u prethodnom paragrafu. Kao što znamo, realni deo je izračunat uz pomoć potpunog zanemarivanja disperzije.

Uz navedene aproksimacije nadjeno je:

$$Q_0(g) = \operatorname{Re} Q_0(g) + i \operatorname{Im} Q_0(g)$$

$$\operatorname{Re} Q_0(g) = \left(1 + \frac{3\tilde{N}_B}{2}\right) \left(1 - 3\tilde{N}_B - \frac{\Omega_{x; 0}(1-\eta)}{\Omega_0} - \frac{1}{g-1}\right)$$

$$\operatorname{Im} Q_0(g) = \begin{cases} -\frac{2\tilde{N}_B\eta}{4\pi^3} \left(1 - \frac{1-g-1}{g_0}\right)^2 \left[ \frac{\Omega_0(g-1)}{\Omega_{x; 0}} + (1-\eta^{-1}) \times \right. \\ \left. \times \left(1 - \frac{1-g-1}{g_0}\right) \right] \operatorname{sign} \Omega_{x; 0} &; \quad 1-g_0 \leq g \leq 1+g_0, \\ 0 &; \quad g < 1-g_0; \quad g > 1+g_0. \end{cases}$$

$$\operatorname{sign} \Omega_{x; 0} = \frac{\Omega_{x; 0}}{|\Omega_{x; 0}|} = \begin{cases} 1 &; \quad \Omega_{x; 0} > 0 \\ -1 &; \quad \Omega_{x; 0} < 0 \end{cases} \quad ; \quad g = \frac{\omega}{\Omega_0}; \quad g_0 = \frac{4|\Omega_{x; 0}|}{\Omega_0}$$
(III.2.5)

Treba naglasiti da veličina  $g_0$  definiše širinu apsorpcione zone:

$$S_{\text{ap.}} = 2g_0 = \frac{8|\Omega_{x; 0}|}{\Omega_0} \quad (\text{III.2.6})$$

Takodje treba istaći da je prilikom proračuna uzeto da maksimalna vrednost talasnog vektora iznosi  $K_{\max} = \frac{2\sqrt{3}}{a}$ . Na ovaj način obezbedjeno je da širina eksitonske zone ( $2|\Omega_{x;0}|$ ) u aproksimaciji malih talasnih vektora bude ista kao i u slučaju kada se ova aproksimacija ne koristi. Funkcije  $\tilde{Q}_0(\omega + i\delta) = Q_0(-\omega - i\delta)$ ;  $\delta \rightarrow +0$ , izračunate u istoj aproksimaciji date su sa:

$$\tilde{Q}_0(g) = \operatorname{Re} \tilde{Q}_0(g) + i \operatorname{Im} \tilde{Q}_0(g)$$

$$\operatorname{Re} \tilde{Q}_0(g) = \left(1 + \frac{3\bar{N}_B}{2}\right) \left(1 + 3\bar{N}_B \frac{\Omega_{x;0}(1-\eta)}{\Omega_0} \frac{1}{g+1}\right)$$

$$\operatorname{Im} \tilde{Q}_0(g) = \begin{cases} -\frac{27\bar{N}_B\eta}{4g^3} \left(1 - \frac{1g+11}{g_0}\right)^2 \left[ -\frac{\Omega_0(g+1)}{\Omega_{x;0}} - (1-\eta^{-1}) \times \right. \\ \left. \times \left(1 - \frac{1g+11}{g_0}\right) \right] \operatorname{sign} \Omega_{x;0} &; -1-g_0 \leq g \leq -1+g_0 \\ 0 &; g < -1-g_0 \cup g > -1+g_0 \end{cases}$$
(III.2.7)

Veoma je važno naglasiti da su intervali  $(1-\rho_0; 1+\rho_0)$  i  $(-1-\rho_0; -1+\rho_0)$  disjunktni (tj. nemaju zajedničkih tačaka). To znači da apsorpcioni efekti za  $\omega > 0$  nastaju samo usled retardovanih procesa.

Uzimajući ovo u obzir kao i formule (III.1.11), (III.2.1), (III.2.5) i (III.2.7), za  $\omega > 0$ , možemo pisati:

$$\tilde{E}(\xi) = \alpha(\xi) + i\beta(\xi) \quad (\text{III.2.8})$$

$$\alpha(\xi) = 1 + S \left\{ \frac{\xi-1}{[\xi-1+2\bar{N}_B - \frac{\Omega_{x;0}}{\Omega_0}(1-\eta)][\xi-1-3\bar{N}_B - \frac{\Omega_{x;0}}{\Omega_0}(1-\eta)]} - \right. \\ \left. - \frac{\xi+1}{[\xi+1-2\bar{N}_B - \frac{\Omega_{x;0}}{\Omega_0}(1-\eta)][\xi+1+3\bar{N}_B - \frac{\Omega_{x;0}}{\Omega_0}(1-\eta)]} \right\}$$

$$S = \frac{g |\vec{D}_{0f}|^2 (1 + \frac{1}{2} \bar{N}_B)}{2\pi c \hbar \Omega_0} \quad (\text{III.2.9})$$

i:

$$\beta(\xi) = -S \frac{(\xi-1)^2 \operatorname{Im} Q_0(\xi)}{[\xi-1+2\bar{N}_B - \frac{\Omega_{x;0}}{\Omega_0}(1-\eta)][\xi-1-3\bar{N}_B - \frac{\Omega_{x;0}}{\Omega_0}(1-\eta)]^2} \quad (\text{III.2.10})$$

U skladu sa opštom formulom:

$$\sqrt{E(\xi)} = \mathcal{U}(\xi) + i\mathcal{Z}(\xi) \quad (\text{III.2.11})$$

gde je  $\mathcal{U}(\rho)$  - indeks prelamanja, a  $\mathcal{Z}(\rho)$  - indeks apsorpcije, posle kraćih računa dolazimo do sledećih poznatih izraza:

$$\mu(g) = \sqrt{\frac{\sqrt{a^2(g) + b^2(g)} - a(g)}{2[a^2(g) + b^2(g)]}}$$

$$\beta(g) = \sqrt{\frac{\sqrt{a^2(g) + b^2(g)} - a(g)}{2[a^2(g) + b^2(g)]}}$$

(III.2.12)

Indeks prelamanja i indeks apsorpcije izračunati su numerički za sledeći skup parametara:

$$\hbar\Omega_0 = 5 \cdot 10^{-12} \text{ eV} ; |\tilde{D}_{op}| = 6,1 \cdot 10^{-9} \text{ e cm} ; \epsilon = 4,8 \cdot 10^{10} \text{ esj}$$

$$\zeta_0 = 1,25 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3} ; \bar{N}_B = 10^2 ; \eta = 3 ; \omega_{x,0} = -0,01 \Omega_0$$

(III.2.13)

Vrednosti za  $|\tilde{D}_{op}|$  i  $\hbar\Omega_0$  uzete su iz ref. [9] str. 94 i odgovaraju kristalu autracena.

Rezultati numeričke analize mogli bi se kratko rezimirati na sledeći način. Indeks prelamanja ima samo jedan pik koji leži u oblasti nižih frekvencija. Što se tiče indeksa apsorpcije kod njega je konstatovano šest piko-va čije su koordinate  $\beta$ ;  $\beta [(0,98532; 11,78769); (0,99980; 0,00012); (1,00010; 0,44546); (1,00060; 0,00363); (1,01570; 0,00052); (1,03090; 0,00016)]$ . Vidi se da domi-

nantni apsorpcioni pik leži u domenu nižih frekvencija.

Ovde je važno naglasiti da je prisustvo dominantnog apsorpcionog pika u oblasti nižih frekvencija eksperimentalno konstatovano i da se nije moglo objasniti mehanizmom eksiton-fonon interakcije (vidi ref. [9] str. 166). Analiza koja je ovde izvršena pokazuje da pomenuti apsorpcioni pik duguje svoj nastanak procesima eksiton-eksiton interakcije.

Na kraju ovog paragrafa osvrnućemo se na širenje kinematičkih nivoa. U sladu sa formulama (III.2.5) i (III.2.13) ovo širenje je maksimalno reda:

$$\gamma_{\max} = \hbar \Omega_0 \max [I_{\text{nu}} Q_0(g)] = 2,3 \cdot 10^{-14} \text{ erg} = 115 \text{ cm}^{-1} \quad (\text{III.2.14})$$

Na osnovu dobijene procene ne bi se mogao izvesti zaključak da, eksperimentalno konstatovano, anomalno veliko širenje eksitonskih linija (vidi [12] na str. 99, 111 i 112) predstavlja ustvari širenje kinematičkih nivoa. Eksperimentalne vrednosti za ( $\gamma > 500 \text{ cm}^{-1}$ ), koje su navedene u [12] praktično su nezavisne od eksitonske koncentracije, dok je  $\gamma$  iz (III.2.14) proporcionalno koncentraciji  $\bar{N}_B$  i postaje iščezavajuće malo ako se koncentracija eksitona smanjuje. Treba naglasiti da je rezultat (III.2.14) za širenje od  $115 \text{ cm}^{-1}$  dođen u slučaju ekstremno visoke eksitonske koncentracije  $\bar{N}_B = 10^{-2}$ .

### III.3. TEMPERATURSKA ZAVISNOST KOEFICIJENTA APSORPCIJE - URBACH-ovo PRAVILO

U dosadašnjim analizama, prilikom određivanja srednjeg eksitonskog broja nije uzimana u obzir disperzija eksitona. U svim dosadašnjim računima korišćena je aproksimacija  $\bar{N}_{B;\vec{k}} = \bar{N}_B$ , čime je izgubljena mogućnost da se u analizu eksitonskog sistema uključe temperaturski efekti.

Pre nego što predjemo na ispitivanje temperaturske zavisnosti koeficijenta apsorpcije posvetićemo nešto prostora pitanju proračuna eksitonskih koncentracija.

U nizu radova [51-55] (vidi takođe [12] str. 355) u kojima je ispitivana mogućnost Boze kondenzacije eksitona uglavnom se manipulisalo sa zahtevom da broj eksitona mora biti održan tokom osvetljavanja kristala. Dokaz da se broj eksitona zaista održava zasnivao se na činjenici da je vreme života eksitona daleko duže od vremena relaksacije u eksiton-fononskim sudarima.

Prihvatajući ovu činjenicu (broj eksitona se održava) i uzimajući u obzir da je broj eksitona blizak broju pobudjenih molekula ovde ćemo izvesti elementarnu statističku teoriju za srednji broj pobudjenih molekula.

Statistička verovatnoća fazne zapremine koja sadrži  $N_i$  molekula, od kojih je  $N_i^* < N_i$  pobudjeno, data je izrazom:

$$P_i = \frac{u_i!}{(u_i - \bar{u}_i)! \bar{u}_i!} \approx \frac{\bar{u}_i^{u_i}}{(u_i - \bar{u}_i)^{u_i - \bar{u}_i} \bar{u}_i^{\bar{u}_i}}$$

$$P = \prod_i P_i \quad (\text{III.3.1})$$

Takodje ćemo, u skladu sa gornjom diskusijom, prepostaviti da je ukupan broj ekscitiranih molekula u sistemu konstantan i da je ukupna energija sistema konstanatna, tj.:

$$\sum_i \bar{u}_i^* E_i = E = \text{const.}; \quad \sum_i \bar{u}_i^* = \bar{N} = \text{const.} \quad (\text{III.3.2})$$

gde je  $E_i$  - energija ekscitacija molekula.

Ako se izjednači sa nulom varijacija funkcionala  $K_B(\ln P - \alpha \bar{N} - \beta E)$  dobija se najverovatnija raspodela ekscitiranih molekula:

$$\bar{u}_i^* = u_i (e^{\alpha + \beta E_i} + 1)^{-1} \quad (\text{III.3.3})$$

Ukoliko se uzme da je  $E_i = \hbar \omega_\Delta$ ,  $\beta^{-1} = k_B T$  i  $\alpha = -\nu \beta$ , gde je  $k_B$  - Boltzman-ova konstanta, a  $T$  - apsolutna temperatura i iskoristi aproksimacija:

$$\bar{u}_i^* = u_i (e^{-\frac{\hbar \omega_\Delta - \nu}{k_B T}} + 1)^{-1} \approx u_i e^{-\frac{\nu - \hbar \omega_\Delta}{k_B T}} \quad (\text{III.3.4})$$

onda iz uslova  $\sum_i \bar{u}_i^* = \bar{N}$  sledi da je:

$$e^{-\frac{\nu - \hbar \omega_\Delta}{k_B T}} = \frac{\bar{N}}{N} \quad (\text{III.3.5})$$

gde je  $N = \sum_i n_i$  - broj molekula u kristalu, a  $\bar{N}$  broj ekscitiranih molekula.

Najzad, ako je efektivna masa eksitona pozitivna, tj.  $\omega_{x;0} \rightarrow -|\omega_{x;0}|$ , onda harmonijski zakon disperzije za eksitone u aproksimaciji najblizih suseda glasi:

$$E_{\vec{k}} = \hbar (\Omega_{\Delta} - |\Omega_{x;0}| + \frac{i}{6} |\Omega_{x;0}| \alpha^2 k^2) \quad (\text{III.3.6})$$

U skladu sa napred iznetom tvrdnjom da je broj eksitona približno jednak broju ekscitiranih molekula u daljem ćemo, za srednji broj eksitona sa talasnim vektorom  $\vec{k}$ , koristiti sledeći aproksimativni izraz:

$$\begin{aligned} \bar{N}_{B;\vec{k}} &\approx e^{-\frac{\nu - \hbar(\Omega_{\Delta} - |\Omega_{x;0}|)}{k_B T}} e^{-\frac{\hbar |\Omega_{x;0}| \alpha^2 k^2}{6 k_B T}} \approx \\ &\approx \frac{\frac{*}{N}}{N} e^{-\frac{\hbar |\Omega_{x;0}| \alpha^2 k^2}{6 k_B T}} \end{aligned} \quad (\text{III.3.7})$$

Dobijeni izraz (III.3.7) koristićemo u daljem za ispitivanje temperaturske zavisnosti koeficijenta apsorpcije. Ako (III.3.7) zamenimo u izrazu za imaginarni deo funkcije  $Q_{\vec{k}}(\omega)$  (vidi formulu (III.1.12)), predjemo od sume na integrale i uzmemo u obzir da se zbog prisustva  $\delta$ -funkcije, vrednost talasnog vektora kreće u intervalu

$(\frac{1}{\alpha} \sqrt{-\frac{3}{|\Omega_{x;0}|} [\nu - \Omega_{\Delta} + |\Omega_{x;0}|]} ; \frac{2\sqrt{3}}{\alpha})$ ,

dolazimo do zaključka da je:

$$\begin{aligned}
 I_m Q_0(E) = & -\frac{27\theta}{8\pi^3 |X_0|^2} \left\{ \frac{\tilde{N}}{N} \left[ [\tilde{m}(E-\Delta+|X_0|) + (1-\tilde{m})(2|X_0|-\theta)] \times \right. \right. \\
 & \times \left( e^{-\frac{|E-\Delta+|X_0||}{2\theta}} - e^{-\frac{2|X_0|}{\theta}} \right) - (1-\tilde{m}) \times \\
 & \times \left( \frac{|E-\Delta+|X_0||}{2} e^{-\frac{|E-\Delta+|X_0||}{2\theta}} - 2|X_0| e^{-\frac{2|X_0|}{\theta}} \right) \left. \right\} \times \\
 & \times \left( 1 - \frac{|E-\Delta+|X_0||}{4|X_0|} \right) \\
 \tilde{m} = & -\frac{Y_0}{|X_0|} ; \quad \theta = k_B T ; \quad E = \hbar\omega
 \end{aligned} \tag{III.3.8}$$

Dobijeni izraz za  $I_m Q_0(E)$  je veoma komplikovan pa ćemo, u nameri da ga uprostimo, uvesti izvesne aproksimacije. Osim uobičajene aproksimacije  $\Delta - |X_0| \approx \Delta$  koristićemo pretpostavke da je  $\Delta - E \ll \theta$ ,  $|X_0|$  ( $\Delta > E$ ) i  $\theta \approx |X_0|$ . Ovo znači da se ograničavamo oblašću energija koje su bliske rezonanciji i oblašću temperatura (u energetskim jedinicama) koje su bliske širini eksitonske zone. Na osnovu navedenih pretpostavki slede aproksimacije:

$$\begin{aligned}
 e^{-\frac{\Delta-E}{2\theta}} - e^{-\frac{2|X_0|}{\theta}} & \approx e^{-\frac{\Delta-E}{2\theta}} \\
 1 - \frac{\Delta-E}{4|X_0|} & = 1 - \frac{\theta}{2|X_0|} \frac{\Delta-E}{2\theta} \approx e^{-\frac{\theta}{2|X_0|} - \frac{\Delta-E}{2\theta}}
 \end{aligned} \tag{III.3.9}$$

Na ukazani način formula (III.3.8) se redukuje na oblik:

$$\text{Im } Q_0(E) = \frac{27\theta [(\Delta - E)(\tilde{N} + 1) + 2(2|X_0| - \theta)(\tilde{N} - 1)]}{16\pi^3 |X_0|^2} \cdot \frac{\frac{*}{N}}{N} e^{-\zeta(\theta) \frac{\Delta - E}{\theta}} \quad (\text{III.3.10})$$

gde je:

$$\zeta(\theta) = \frac{\theta + 2|X_0|}{4|X_0|} \quad (\text{III.3.11})$$

Prilikom proračuna realnog dela funkcije  $Q_k^*(\omega)$  (vidi formulu (III.1.14)) iskorišćene su aproksimacije  $|\Delta - X_0| \approx \Delta$  i  $\bar{N}_{B;k} \approx \bar{N}_B \approx \frac{*}{N}$  i dobijen je sledeći rezultat:

$$\text{Re } Q_0(E) = \text{Re } \tilde{Q}_0(E) = 1 + \frac{3}{2} \cdot \frac{\frac{*}{N}}{N} \quad (\text{III.3.12})$$

Ako u izrazu (III.1.11) za GF-e uzmemо da je  $\omega - \Omega_k^* + M_k^* \approx \omega - \Omega_\Delta$ , dobijamo:

$$G_0(E) = \frac{i\hbar}{2\pi} \left( 1 + \frac{1}{2} \cdot \frac{\frac{*}{N}}{N} \right) \frac{1 - i\text{Im } Q_0(E)}{E - \Delta} \quad (\text{III.3.13})$$

Realni deo avansovane funkcije ravan je nuli u oblasti  $E > 0$  (s tim u vezi vidi diskusiju koja sledi posle formule (III.2.7)), pa stoga možemo pisati:

$$\tilde{G}_0(E) = - \frac{i\hbar}{2\pi} \left( 1 + \frac{1}{2} \cdot \frac{\frac{*}{N}}{N} \right) \frac{1}{E + \Delta} \quad (\text{III.3.14})$$

Ako (III.3.13) i (III.3.14) zamenimo u izrazu (III.2.1) za dielektričnu konstantu i uzmemu u obzir da je  $E \ll \Delta$  tako nalazimo da je:

$$\epsilon^{-1}(E) = \alpha(E) + i\beta(E)$$

$$\alpha(E) = \frac{1 - \frac{g|\vec{D}_{op}|^2(1 + \frac{1}{2}\frac{N}{N})}{2\pi C_0(\Delta-E)}}{2\pi C_0(\Delta-E)} \approx -\frac{g|\vec{D}_{op}|^2(1 + \frac{1}{2}\frac{N}{N})}{2\pi C_0(\Delta-E)}$$

$$\beta(E) = \frac{g|\vec{D}_{op}|^2}{2\pi C_0(\Delta-E)} \operatorname{Im} Q_o(E)$$

(III.3.15)

Budući da je  $a(E) \gg b(E)$  izraz (III.2.12) za indeks apsorpcije svodi se približno na:

$$\beta(E) \approx \frac{1}{2} \left| \frac{\beta(E)}{\alpha^{3/2}(E)} \right| \quad (\text{III.3.16})$$

odakle za koeficijent apsorpcije ( $C$  je brzina svetlosti u vakuumu) sledi formula:

$$\mu(E) = 2 \frac{c}{C} |\beta(E)| = \mu_o(E, \theta) e^{-\beta(E) \frac{\Delta-E}{\theta}}$$

$$\mu_o(E, \theta) = \frac{3}{2(2\pi)^{5/2}} \frac{\frac{N}{N}}{N} \frac{E C_0^{1/2} (\Delta-E)^{1/2} \theta}{\pi c |\vec{D}_{op}| |X_o|^2} [(\Delta-E)(\tilde{\eta}+1) + 2(2|X_o|-1-\theta)(\tilde{\eta}-1)]$$

(III.3.17)

Izraz (III.3.17) za apsorpcioni koeficijent ima identičnu analitičku formulu sa Urbach-ovom empirijskom formulom za koeficijent apsorpcije [56], poznatom kao Urbach-ovo pravilo. Vrednosti Urbach-ovog koeficijenta  $\sigma$  bliske su jedinici u veoma širokom opsegu frekvencija i ova eksperimentalna činjenica ni do danas nije dobila zadovoljavajuće teorijsko objašnjenje. Pokušaji da se ponašanje koeficijenta  $\sigma$  objasni mehanizmom eksiton-fonon interakcije davale su vrednosti za  $\sigma$  koje se kreću izmedju vrednosti 50 i 100 (vidi na primer [57], a takodje i [9] str. 170). U radu [14] korišćen je hamiltonijan eksiton-fonon interakcije u koji su uključeni efekti lokalne deformacije elektromagnetskog polja. Ovakav prilaz dao je za Urbach-ov koeficijent vrednost  $\sigma \approx 0,9$  i to za oblast frekvencija koje su daleko od rezonancije. Pokušaj da se vrednost Urbach-ovog koeficijenta objasni na bazi kvadratnog Stark-ovog efekta [58] takodje je doveo do vrednosti  $\sigma$  koja je bliska jedinici. Treba ipak naglasiti da su izrazi za  $\sigma$  nadjeni u [14] i [58] nezavisni od temperature, tako da teorija nije mogla u potpunosti da se uklopi u eksperimente koji pokazuju da se Urbach-ov koeficijent menja sa promenom temperature.

Ako se analizira formula (III.3.11) lako se može zaključiti da pri  $\theta \rightarrow 2|X_0|$  vrednost koeficijenta  $\sigma$  teži jedinici. To znači da u okolini rezonance (napominjemo da je funkcija (III.3.11) dobijena uz pretpostavku da je  $E \approx \Delta$ ) Urbach-ovo pravilo može da se objasni mehanizmom kinematičke interakcije optičkih pobudjenja. U nameri da ovaj zaključak verifikujemo uporedili smo eksperimentalne vred-

nosti za  $\sigma$  date u [59] (vidi takodje [12] str. 279) sa odgovarajućim teorijskim vrednostima koje su izračunate na osnovu funkcije (III.3.11). Merenja apsorpcionog koeficijenta antracena [59] pokazala su da na temperaturama (datim u jedinicama  $k_B$ ): 79; 200; 253; 293; 346, Urbach-ov koeficijent ima, respektivno, vrednosti: 0,630; 1,238; 1,400; 1,472; 1,533.

Teorijske vrednosti za  $\sigma$  računate su po formuli (III.3.11). Pri tome je uzeto da je  $|X_0| = 116 k_B \approx 80 \text{ cm}^{-1}$  u skladu sa podacima i procenama iz [9], str. 94, 99, 356 i iz [9] str. 86, tabela 5, koji se odnose na najnižu eksitonsku zonu antracena. Za datu vrednost  $|X_0|$  i temperature koje su gore navedene iz formule (III.3.11) dobijene su sledeće vrednosti za  $\sigma$ : 0,670; 0,931; 1,045; 1,132; 1,246.

Na osnovu ovoga poredjenja može se izvesti zaključak da se teorija koja je izložena kvalitativno dobro slaže sa eksperimentom i da objašnjenje Urbach-ovog pravila za oblast blisku rezonanci treba tražiti u efektima kinematičke interakcije eksitona. Što se tiče oblasti energije koje su daleko od rezonance, objašnjenje Urbach-ovog pravila verovatno mogu da daju kvadratni Stark-ov efekat ili eksiton-fonon interakciju u koju su uračunati efekti lokalne deformacije elektromagnetsnog polja.

### III.4. KINEMATIČKA POBUDJENJA U JEDNODIMENZIONOJ (1-D) STRUKTURI

U prvom paragrafu ove glave (vidi jednačinu (III.1.14) i (III.1.15)) konstatovano je da se energije kinematičkih nivoa određuju iz jednačine:

$$1 + \frac{3}{2} - \frac{\bar{N}_0}{N^2} \sum_{\vec{g}_1, \vec{g}_2} [\mathcal{W} - \mathcal{L}_{\vec{R}} - \Psi(\vec{R}, \vec{g}_1, \vec{g}_2)] \lambda(\vec{R}, \vec{g}_1, \vec{g}_2; \mathcal{W}) = 0 \quad (\text{III.4.1})$$

gde je:

$$\Psi(\vec{R}, \vec{g}_1, \vec{g}_2) = \Omega_x; \vec{R} - \vec{g}_1 + \vec{g}_2 + \Omega_x; \vec{g}_2 - \Omega_y; \vec{g}_1 - \vec{g}_2 - \Omega_y; \vec{R} + \vec{g}_1$$

$$\lambda(\vec{R}, \vec{g}_1, \vec{g}_2; \mathcal{W}) = -\frac{1}{\mathcal{W} + \mathcal{L}_{\vec{g}_1} - \mathcal{L}_{\vec{g}_2} - \mathcal{L}_{\vec{R} - \vec{g}_1 + \vec{g}_2}} -$$

$$-\frac{1}{2} \partial \mathcal{W} (\mathcal{W} + \Omega_{\vec{g}_1} - \Omega_{\vec{g}_2} - \mathcal{L}_{\vec{R} - \vec{g}_1 + \vec{g}_2})$$

$$\Omega_{\vec{R}} = \mathcal{L}_{\vec{R}} + \Omega_x; \vec{R}$$

(III.4.2)

Naglašeno je da su u opštem slučaju tražene frekvencije  $\omega$ , odnosno energije  $\mathcal{E}_\omega$ , kompleksne veličine, tj. da kinematičke eksitacije imaju konačno vreme života. U paragrafu III.1 jednačina (III.4.1) rešena je u aproksimaciji koja se sastojala u potpunom zanemarivanju disperzije eksitona i za frekvenciju kinematičkih nivoa dobijen je izraz (III.1.16).

Strogo rešavanje jednačine (III.4.1) zahteva-  
lo bi prelazak od sume po  $\vec{q}_1$  i  $\vec{q}_2$  na integrale, uz istovremenu  
pretpostavku da su i frekcencije i talasni vektori kom-  
pleksne veličine tj.:

$$\begin{aligned}\omega &= \omega' + i\omega'' \quad ; \quad \vec{k} = \vec{k}' + i\vec{k}'' \\ \vec{\omega}_i &= \vec{\omega}_i' + i\vec{\omega}_i'' \quad ; \quad i=1,2 \quad (\text{III.4.3})\end{aligned}$$

Jednačina koja bi se na ovaj način dobila ne može da se reši analitički, a teško da bi mogla da se reši i numerički uz primenu najbržih kompjutera i najsavremenijih tehnika programiranja. Ovo prvenstveno zbog činjenice što bi se u jednačini (III.4.1) pojavili višestruko singularni integrali. Poznato je da se kod dvostruko singularnih integrala rezultat integracije menja pri zameni reda integracije (funkcija Poenkare-Bertrana). Za višestruko singularne integrale u teoriji ne postoji pravilo o zameni reda integracije, pa to stvara dopunske teškoće. Otuda, numeričko rešavanje jednačine (III.4.1) predstavlja u prvom redu problem programiranja računa, a ukoliko bi se odgovarajući program i napravio, rešavanje po programu zahtevalo bi veoma dugo mašinsko vreme.

Ovde ćemo pokušati da jednačinu (III.4.1) rešimo numerički i to za slučaj jednodimenzionog lanca molekula. U računu će biti korišćena aproksimacija najbližih suseda, tj.:

$$\Omega_{x;\vec{k}} = 2\Omega_x \cos \alpha_K$$

$$\Omega_x = \frac{Z_{0a}}{\hbar} = \frac{Z_{0,-a}}{\hbar} = \frac{Z}{\hbar} \quad ; \quad Z = X; Y$$

(III.4.4)

Od suma nećemo prelaziti na integralne, nego ćemo ih posle smena:

$$Ka = X \quad ; \quad X \in (-\tilde{\pi}; \tilde{\pi})$$

$$q_i a = X_i \quad ; \quad X_i \in (-\tilde{\pi}; \tilde{\pi}) \quad ; \quad i = 1, 2$$

(III.4.5)

šematski pisati kao:

$$\frac{1}{N^2} \sum_{j_1, j_2} \longrightarrow \frac{1}{M^2} \sum_{X_1=-\tilde{\pi}}^{X_1=\tilde{\pi}} \sum_{X_2=-\tilde{\pi}}^{X_2=\tilde{\pi}} \quad (III.4.6)$$

gde n predstavlja broj odsečaka na koji se deli interval od  $-\pi$  do  $\pi$  pri numeričkom računu. Uzećemo za  $n = 21$ , što znači da računski korak iznosi  $\pi/10$ .

U navedenim aproksimacijama jednačina

(III.4.1) se svodi na oblik:

$$1 + \frac{3}{2} \bar{N}_8 \frac{1}{M^2} \sum_{X_1=-\tilde{\pi}}^{X_1=\tilde{\pi}} \sum_{X_2=-\tilde{\pi}}^{X_2=\tilde{\pi}} \left\{ S_X(\omega) - 2 \cos\left(\frac{X-X_1}{2} + X_2\right) \left[ \cos\frac{X-X_1}{2} - \eta \cos\frac{X+X_1}{2} \right] - \cos X_1 \right.$$

$$- i \frac{\tilde{\pi}}{4} \operatorname{sgn} \Omega_x \frac{1}{M^2} \sum_{X_1=-\tilde{\pi}}^{X_1=\tilde{\pi}} \sum_{X_2=-\tilde{\pi}}^{X_2=\tilde{\pi}} \left\{ S_X(\omega) - 2 \cos\left(\frac{X-X_1}{2} + X_2\right) \left[ \cos\frac{X-X_1}{2} - \eta \cos\frac{X+X_1}{2} \right] - \cos X_1 \right\}$$

$$\begin{aligned} & \left[ \cos \frac{x-x_1}{2} - \eta \cos \frac{x+x_1}{2} \right] - \cos x \int \delta[\mathcal{G}_x(\omega)] - \\ & - 2 \cos \left( -\frac{x-x_1}{2} + x_2 \right) \cos \frac{x-x_1}{2} + \cos x_1 = 0 \end{aligned} \quad (\text{III.4.7})$$

gde je:

$$\mathcal{G}_x(\omega) = \frac{\omega - \Omega_\Delta}{2\Omega_x} = \frac{\omega - \Delta}{2x} \quad (\text{III.4.8})$$

Numerički smo tražili rešenja samo za realne vrednosti  $\omega$ . To znači da je pretpostavljeno:

$$\begin{aligned} \Phi(x, \omega) &= \mathcal{G}_x(\omega) - 2 \cos \left( -\frac{x-x_1}{2} + x_2 \right) \cos \frac{x-x_1}{2} + \cos x_1 \neq 0 \\ \omega^* &= \omega \end{aligned} \quad (\text{III.4.9})$$

na osnovu čega sledi:

$$\int [\Phi(x, \omega)] = 0 \quad (\text{III.4.10})$$

pa se (III.4.7) svodi na:

$$\begin{aligned} 1 + \frac{3}{2} \bar{N}_B \frac{1}{n^2} \sum_{x_1=-\tilde{n}}^{x_1=\tilde{n}} \sum_{x_2=-\tilde{n}}^{x_2=\tilde{n}} & \frac{\mathcal{G}_x(\omega) - 2 \cos \left( -\frac{x-x_1}{2} + x_2 \right) \left[ \cos \frac{x-x_1}{2} - \right]}{\Phi(x, \omega)} \\ & - \eta \cos \frac{x+x_1}{2} \left[ - \cos x \right] = 0 \end{aligned} \quad (\text{III.4.11})$$

Prilikom numeričkog rešavanja odabrane su iste brojne vrednosti parametara koje su korištene u paragrafu III.2., tj.:

$$\bar{N}_0 = 10^{-2} ; \quad \bar{n}_f = 3 ; \quad \Omega_{x;0} = -0,01 \text{ rad/s} \quad (\text{III.4.12})$$

pa se, s obzirom da smo uzeli  $n = 21$ , jednačina svela na:

$$1 + \frac{0,015}{21^2} \sum_{x_1=-\bar{n}}^{x_1=\bar{n}} \sum_{x_2=-\bar{n}}^{x_2=\bar{n}} \frac{g_x(\bar{\omega}) - 2\cos\left(\frac{x-x_1}{2} + x_2\right)[\omega \sin \frac{x-x_1}{2} - \dot{\omega} \cos \frac{x+x_2}{2}]}{\Phi(x, \bar{\omega})} - \underline{\cos x} = 0$$

$$g_x(E) = \frac{\Delta - E}{2|x|} \quad (\text{III.4.13})$$

Numerička analiza pokazala je da je jednačina (III.4.13) zadovoljena za:

$$\text{za } X=0 ; \quad g_x(E) = 1,31699 \quad ; \quad 2,90037$$

$$\text{za } X=\pm 0,31416 ; \quad g_x(E) = -0,72000 \quad ; \quad 2,75833$$

$$\text{za } X=\pm 0,94248 ; \quad g_x(E) = 2,48899$$

$$\text{za } X=\pm 1,25664 ; \quad g_x(E) = -2,34800 ; \quad -0,82700 ; \quad 2,53733$$

(III.4.14)

Izgledalo je prividno da postoji više tipova kinematičkih ekscitacija jer se za jedno isto  $X$  dobijalo više vrednosti za  $\rho_X(E)$ . Treba, međutim, naglasiti da su energije kinematičkih nivoa tražene uz dopunski uslov  $\Phi(X, E) \neq 0$ , koji prilikom nalaženja rešenja (III.4.14) nije bio uključen u račun. Kontrola, da li je uslov  $\Phi(X, E) \neq 0$  zadovoljen, vršena je na sledeći način. Za dato  $X_0$ , za koje postoji rešenje jednačine (III.4.13), određivana je 441 vrednost  $\rho(X_0, E)$  koja zadovoljava uslov:

$$\Phi(X_0, E) = 0 \quad (\text{III.4.15})$$

i ove vrednosti  $\rho(X_0, E)$  su se kretale između neke minimalne vrednosti  $\rho_{\min}$  i  $\rho_{\max}$ . Kada su za svako  $X$  iz (III.4.14) na opisani način nadjeni intervali  $(\rho_{\min}, \rho_{\max})$ , iz (III.4.14) su odbačene sve one vrednosti  $\rho$  koje su pripadale datim intervalima, budući da za njih nije ispunjen uslov  $\Phi \neq 0$ .

Ovaj dopunski numerički račun dao je sledeće rezultate:

$$\text{ZA } X=0 ; \quad \rho_X(E) \in (-3,1, 48487)$$

$$\text{ZA } X=\pm 0,31416 ; \quad \rho_X(E) \in (-2,95106 ; 1,46336)$$

$$\text{ZA } X=\pm 0,94248 ; \quad \rho_X(E) \in (-2,85317 ; 2,27582)$$

$$\text{ZA } X=\pm 1,25664 ; \quad \rho_X(E) \in (-2,71130 ; 2,42705)$$

(III.4.16)

Poredjenjem šema (III.4.14) i (III.4.16) tako se moglo zaključiti da su jednačine (III.4.14) i uslov (III.4.9) istovremeno zadovoljeni za sledeće skupove vrednosti  $X$  i  $\rho$ :

$X$	0,00000	$\pm 0,34416$	$\pm 0,94248$	$\pm 1,25664$
$\rho$	2,90037	2,75839	2,48893	2,53732

(III.4.17)

Osnovni zaključci koji se mogu izvesti na osnovu dobijenog rezultata su:

- a) U jednodimenzionom molekulskom lancu postoje kinematička pobudjenja koja su neprigušena (dopunski pol GF-e leži na realnoj osi kompleksne E - ravni).
- b) Ovakva neprigušena pobudjenja postoji samo u oblasti talasnih vektora  $K \approx \left( -\frac{2}{5} \frac{\pi}{a}; \frac{2}{5} \frac{\pi}{a} \right)$ , što znači samo u delu prve Brillouen-ove zone.

Treba naglasiti da zbog veoma dugog računskog vremena kod rešavanja jednačine (III.4.13) nije mogla biti napravljena finija mreža za frekvencije  $X$  i  $\rho$ .

- Da bi se moglo napraviti poređenje između energija kinematičkih pobudjenja i energija normalnih eksitonskih pobudjenja formirane su funkcije:

$$S_K^{(h)}(E) = \frac{\Delta - E_h}{2|X|} = \cos \alpha K \quad (\text{III.4.18})$$

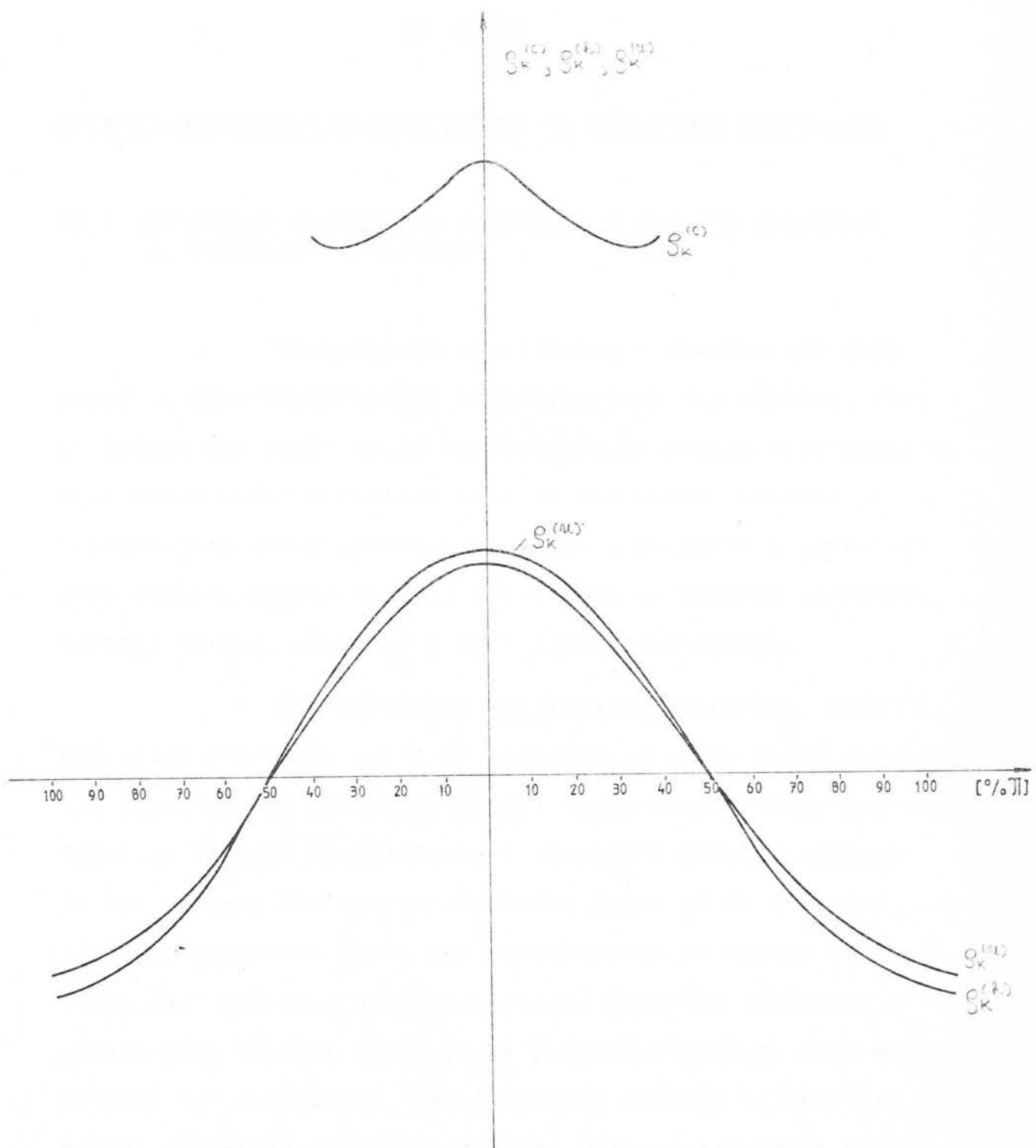
i

$$\begin{aligned} \rho_k^{(n)}(E) &= \frac{\Delta - E_n}{2|X|} = (1 - 2\bar{N}_B) \cos X + 2\bar{N}_B n_0 = \\ &= 0,98 \cos X + 0,06 \end{aligned} \quad (\text{III.4.19})$$

od kojih  $\rho_k^{(h)}(E)$  odgovara harmonijskoj aproksimaciji za eksitone, dok  $\rho_k^{(n)}(E)$  odgovara popravljenim eksitonskim energijama usled nelinearnih efekata (ove poslednje energije date su formulom (III.1.13)). Treba istaći da je završni stav funkcije (III.4.18) dobijen za vrednosti parametara iz (III.4.12).

Funkcije  $\rho_k^{(h)}(E)$ ,  $\rho_k^{(n)}(E)$  i  $\rho_k(E) \equiv \rho_k^{(c)}(E)$  prikazana su grafički na sl. III.4.1.

Sa grafika se može zaključiti da se energije kinematičkih nivoa u 1-D strukturi znatno razlikuju od energija normalnih eksitonskih pobudjenja i da, za dati izbor parametara, na energetskoj skali leže primetno niže. To bi, statistički gledano, značilo da su kinematički nivoi znatno bolje populisani nego normalni eksitonski nivoi.



Slika III.4.1.

## IV GLAVA

### OPTIČKA POBUDJENJA U STRUKTURAMA SA NARUŠENOM SIMETRIJOM

#### IV.1. UVODJENJE PARAMETARA UREĐNOSTI U ANALIZU STRUKTURA SA NARUŠENOM SIMETRIJOM

Elementarne ekscitacije u strukturama koje poseduju punu translacionu invarijantnost su, zapravo, ravni talasi što znači da je verovatnoća nalaženja pobudjenja u bilo kojoj tački strukture ista za sve tačke. Ukoliko je translaciona invarijantnost narušena, pobudjenja u strukturi gube osobine ravnih talasa, a u odnosu na idealnu strukturu, takođe se mogu pojaviti i novi tipovi pobudjenja.

Ako struktura ima konačne dimenzije, onda prisustvo graničnih površina predstavlja jedan oblik narušenja translacione invarijantnosti. Translaciona invarijantnost se takođe narušava ako u strukturi postoje vakansije ili primese. Na osnovu izloženog jasno je da u praksi idealnih struktura nema, jer su strukture sa kojima se praktično radi konačnih dimenzija (imaju granične površine) i nikada nisu idealno čiste (uvek postoji određeni procenat primesa ili vakansija). Ova činjenica ukazuje na neobično veliki praktični značaj izučavanja efekata narušenja simetrije.

Eksiton i strukturama sa narušenom simetrijom izučavani su u nizu radova [28-38]. U svim navedenim radovima uglavnom su ispitivana stanja, lokalizovana oko granične površine polubeskonačnih struktura, koja se nazivaju površinski eksiton. U radovima [28-35] data je mikroteorija površinskih eksitona, dok su radovi [36, 38] uglavnom posvećeni makroskopskoj teoriji površinskih stanja. U radovima [31-33], pored površinskih, ispitivani su i zapreminski eksiton u polubeskonačnim strukturama. Pokazano je da je verovatnoća nalaženja ovih pobudjenja podjednaka za sve tačke zapremine (otuda naziv zapreminske eksiton), ali i da ova pobudjenja nisu rayni nego stojeći talasi.

U osnovi svih pomenutih analiza leži pretpostavka da energija interakcije pobudjenog molekula sa ne-pobudjenom okolinom nije ista za molekule na površini i u njenoj blizini i za molekule koji su duboko u zapremini strukture. Ne postoji, nažalost, dostupni eksperimentalni podaci o veličini ove interakcije, kao ni o veličini dipolnih momenata slobodnih i vezanih molekula. Po analogiji sa onim što se zna o magnetnim momentima atoma, a to je da se momenat slobodnog atoma može drastično razlikovati od momenta vezanog atoma [30], realno je pretpostaviti da slično ponašanje imaju i električni dipoli. Usled ovoga za poluslobodne atome, na površini i blizu nje, dolazi do promene veličine napred pomenute interakcije u odnosu na njenu vrednost u dubini kristala [94, 95].

U ovoj glavi biće analiziran sistem eksitona u strukturama sa narušenom simetrijom za dvonivosku eksiton-

sku šemu, kada su eksitonski operatori, zapravo, Pauli operatori. U tom smislu biće razmatrani slučajevi deformacija idealne, proste, kubne strukture. Uticaj deformacije biće uračunat na taj način, što će energija interakcije pobudjenog molekula sa nepobudjenom okolinom biti razmatrana kao funkcija čvora rešetke. Kao što je poznato, u idealnim strukturama ova veličina je ista za sve tačke kristala. U skladu sa rečenim hamiltonijan navedenog sistema se može napisati u obliku:

$$\begin{aligned} H = & \sum_{\vec{n}} \Delta P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}} + \sum_{\vec{n} \vec{m}} D_{\vec{n} \vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{m}} + \sum_{\vec{n} \vec{m}} X_{\vec{n} \vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{m}} + \\ & + \sum_{\vec{n} \vec{m} \vec{u}} Y_{\vec{n} \vec{m} \vec{u}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{m}}^+ P_{\vec{u}}^+ P_{\vec{u}} \end{aligned} \quad (\text{IV.1.1})$$

gde su upotrebljene sledeće oznake:

$$\Delta = \hat{\sigma}_x - \hat{\sigma}_y$$

$$D_{\vec{n} \vec{m}} = \frac{1}{2} \sqrt{\lambda_{\vec{n} \vec{m}}(f00f)} + \frac{1}{2} \sqrt{\lambda_{\vec{n} \vec{m}}(0ff0)} - \sqrt{\lambda_{\vec{n} \vec{m}}(0000)}$$

$$X_{\vec{n} \vec{m}} = \frac{1}{2} \sqrt{\lambda_{\vec{n} \vec{m}}(f0f0)} + \frac{1}{2} \sqrt{\lambda_{\vec{n} \vec{m}}(0f0f)}$$

$$Y_{\vec{n} \vec{m} \vec{u}} = \frac{1}{2} \sqrt{\lambda_{\vec{n} \vec{m} \vec{u}}(f0ff)} + \frac{1}{2} \sqrt{\lambda_{\vec{n} \vec{m} \vec{u}}(0000)} - \frac{1}{2} \sqrt{\lambda_{\vec{n} \vec{m} \vec{u}}(f00f)} -$$

$$-\frac{1}{2} \sqrt{\lambda_{\vec{n} \vec{m} \vec{u}}(0ff0)} \quad (\text{IV.1.2})$$

Veličina  $\Delta$  predstavlja razliku energije  $E_f$  pobudjenog izolovanog molekula od energije  $E_0$  izolovanog molekula u osnovnom stanju. Pošto je pretpostavljeno da se svi molekuli pobudjuju na isti način (ne postoji beteovsko razdvajanje zona) očigledno je da ova veličina ne zavisi od čvora rešetke.

Veličine  $W_{nm}^{(f_1, f_2, f_3, f_4)}$  predstavljaju matrične elemente multipol-multipolnih interakcija  $V_{nm}$  u molekularnom kristalu uzete po stanjima  $\varphi$  izolovanog molekula i date su izrazom:

$$W_{nm}(f_1, f_2, f_3, f_4) = \int d^3\vec{\xi}_n d^3\vec{\xi}_m \Psi_n^{f_1} \Psi_m^{f_2} V_{nm} \Psi_n^{f_3} \Psi_m^{f_4} \quad (\text{IV.1.3})$$

gde su  $\vec{\xi}_n$  i  $\vec{\xi}_m$  skupovi unutrašnjih koordinata molekula na čvorovima  $n$  i  $m$ .

Na osnovu (IV.1.3) očigledno je da veličina  $D_{nm}^{(f)}$  predstavlja energiju interakcije pobudjenog molekula sa nepobudjenom okolinom i da je to veličina koja, prema gore navedenom, zavisi od čvora rešetke u deformisanoj strukturi. Veličine  $X_{nm}^{(f)}$  predstavljaju matrične elemente rezonantne interakcije, analogno integralima izmene u teoriji elektro- na. Oni su, kao i matrični elementi  $Y_{nm}^{(f)}$ , koji karakterišu interakciju pobudjenja, najmanje za rad veličine manji (vidi [36] i [41]) od  $D_{nm}^{(f)}$  i njihove promene usled deformacije biće zanemarene.

U navedenim radovima nije se uzimala u obzir činjenica da zbog promene energije eksitona od tačke do tačke mora da se menja i koncentracija pobudjenja. Sve analize koje će ovde biti izvršene obuhvataće i promenu koncentracije eksitona usled deformacije. Po analogiji sa onim što je ura-

djeno u teoriji feroelektrika tipa order-disorder [39], promena koncentracije biće uzeta u obzir u jednačinama kretanja:

$$\begin{aligned}
 i\hbar \dot{\vec{P}_f} = [E\vec{P}_f, H] = L\vec{P}_f + \sum_{\vec{m}} D_{\vec{q}\vec{m}} \vec{P}_f + \sum_{\vec{m}} X_{\vec{q}\vec{m}} P_m - \\
 - 2 \sum_{\vec{m}} X_{\vec{q}\vec{m}} \vec{P}_f^+ \vec{P}_f P_m + 2 \sum_{\vec{m}} Y_{\vec{q}\vec{m}} P_m^+ P_m \vec{P}_f^+ \approx \\
 \approx \Delta \vec{P}_f + \sum_{\vec{m}} D_{\vec{q}\vec{m}} \vec{P}_f + \sum_{\vec{m}} X_{\vec{q}\vec{m}} (1 - 2 \langle \vec{P}_f^+ \vec{P}_f \rangle) P_m + \\
 + 2 \sum_{\vec{m}} Y_{\vec{q}\vec{m}} \langle P_m^+ P_m \rangle \vec{P}_f
 \end{aligned} \tag{IV.1.4}$$

Završni stav u (IV.1.4) dobijen je, kao što se vidi, korišćenjem tjablikovske aproksimacije [40], koja se uspešno primenjuje u kvantnoj teoriji magnetizma i fizički predstavlja zamenu procesa rasejanja pobudjenja na realnom potencijalu njihovim prenosom kroz "umekšane" potencijale. Zbog narušenja simetrije srednji brojevi  $\langle P_f^+ P_f \rangle$  su funkcije čvora rešetke. U idealnoj strukturi srednji brojevi ne zavise od položaja.

Ako uvedemo parametar uredjenosti

$$\beta_f = 1 - 2 \langle P_f^+ P_f \rangle \tag{IV.1.5}$$

i uzmemo u obzir da je:

$$i\hbar \dot{\vec{P}_f} = E \vec{P}_f \tag{IV.1.6}$$

gde  $E$  predstavlja energiju pobudjenja, onda se jednačina kretanja (IV.1.4) može napisati u obliku:

$$\hat{O} = [E - \Delta - \sum_{\vec{m}} D_{\vec{m}} - \sum_{\vec{n}} (1 - \delta_{\vec{m}}) Y_{\vec{m}}] R_{\vec{g}} - \delta_{\vec{g}} \sum_{\vec{m}} X_{\vec{m}} P_{\vec{m}} = 0 \quad (\text{IV.1.7})$$

Nadalje će se ispitivati jednočestična talasna funkcija kristala

$$|\Psi\rangle = \sum_{\vec{g}} A_{\vec{g}} R_{\vec{g}}^+ |0\rangle \quad (\text{IV.1.8})$$

gde koeficijenti  $A_{\vec{g}}$  predstavljaju amplitude verovatnoće naletaženja pobudjenja na čvoru  $\vec{g}$ . S obzirom da se radi o jednočestičnoj funkciji po stanjima  $R_{\vec{g}}^+ |0\rangle$  kinematika operatora je u daljim računima nebitna (ona je iskorišćena prilikom formiranja jednačina kretanja). To znači da je potpuno svejedno da li u (IV.1.8) figurišu Pauli ili Boze operatori. Budući da je funkcija  $|\Psi\rangle$  normirana ( $\langle \Psi | \Psi \rangle = 1$ ), na osnovu (IV.1.8) dobijamo uslov za normiranje koeficijenta  $A$ :

$$\sum_{\vec{g}} |A_{\vec{g}}|^2 = 1 \quad (\text{IV.1.9})$$

Jednačinu za određivanje koeficijenta  $A$  i energije pobudjenja  $E$  dobijamo iz jednačine:

$$\hat{O} |\Psi\rangle = 0 \quad (\text{IV.1.10})$$

koja se s obzirom na (IV.1.7) i (IV.1.8) svodi na:

$$[E - \Delta - \sum_{\vec{g}} D_{\vec{g}} - \sum_{\vec{g}} (1 - \delta_{\vec{g}}) Y_{\vec{g}}] A_{\vec{g}} - \delta_{\vec{g}} \sum_{\vec{g}} X_{\vec{g}} A_{\vec{g}} = 0$$

$$\vec{f} = (f_x, f_y, f_z) ; \quad R_{\vec{g}\vec{g}} = R_{\vec{g}_x, \vec{g}_y, \vec{g}_z; \vec{g}_x, \vec{g}_y, \vec{g}_z}$$

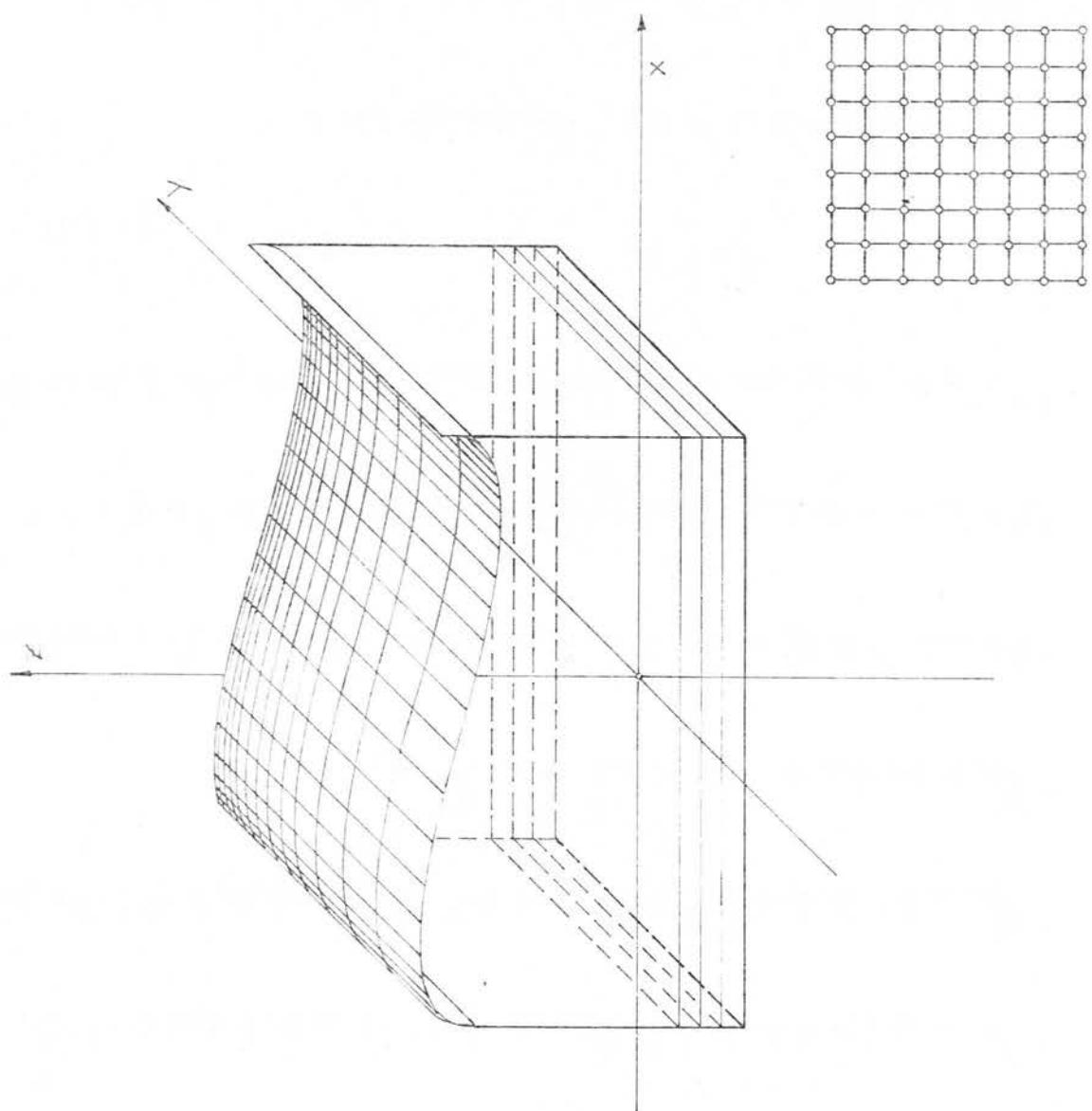
$$R \equiv X, Y, D \quad (\text{IV.1.11})$$

Dobijena opšta jednačina (IV.1.11) biće u daljem primenjena na analizu eksitonih stanja u polubeskonačnoj strukturi i na analizu eksitonih stanja u tankom filmu kod koga su uslovi na graničnim površinama simetrični. Takodje će biti analiziran model kontinualne deformacije u filmu.

#### IV.2. EKSITONI U POLUBESKONAČNIM STRUKTURAMA

Pretpostavimo da do narušenja simetrije proste kubne rešetke dolazi duž ose z. Granična ravan kristala poklapa se sa XOY ravni i pri tome nema slojeva u negativnom smeru z-ose. Ovo, zapravo, znači da do narušenja simetrije dolazi zbog prisustva granične ravni koja se poklapa sa XOY ravni. Ostali slojevi kristala rasporedjeni su duž pozitivnog pravca ose z, a njihov kraj se nalazi dovoljno daleko da uslovi na drugoj graničnoj površini slabo utiču na stanje kristala (sl. IV.2.1). Istovremeno se pretpostavlja da nema planaranog narušenja simetrije, tj. svi slojevi kristala normalni na osu z se ponašaju kao idealna beskonačna dvodimenzionalna struktura. Opisana struktura se u literaturi naziva pulubeskonačan kristal.

Za opisanu strukturu, opšta jednačina (IV.1.11), uzeta u aproksimaciji najbližih suseda, razbija se na sledeće sisteme jednačina:



Slika IV.2.1.

$$\begin{aligned}
 & [E - \Delta - D_{fx, fy, fz; fx+1, fy+1, fz} - D_{fx, fy, fz; fx-1, fy, fz} - \\
 & - D_{fx, fy, fz; fx, fy+1, fz} - D_{fx, fy, fz; fx, fy-1, fz} - D_{fx, fy, fz; fx, fy, fz+1} - \\
 & - D_{fx, fy, fz; fx, fy, fz-1} - Y_{fx, fy, fz; fx+1, fy, fz} (1 - \beta_{fx+1, fy, fz}) - \\
 & - Y_{fx, fy, fz; fx-1, fy, fz} (1 - \beta_{fx-1, fy, fz}) - Y_{fx, fy, fz; fx, fy+1, fz} (1 - \beta_{fx, fy+1, fz}) - \\
 & - Y_{fx, fy, fz; fx, fy-1, fz} (1 - \beta_{fx, fy-1, fz}) - Y_{fx, fy, fz; fx, fy, fz+1} (1 - \beta_{fx, fy, fz+1}) - \\
 & - Y_{fx, fy, fz; fx, fy, fz-1} (1 - \beta_{fx, fy, fz-1})] A_{fx, fy, fz} - \\
 & - \beta_{fx, fy, fz} (X_{fx, fy, fz; fx+1, fy, fz} A_{fx+1, fy, fz} + X_{fx, fy, fz; fx-1, fy, fz} A_{fx-1, fy, fz} + \\
 & + X_{fx, fy, fz; fx, fy+1, fz} A_{fx, fy+1, fz} + X_{fx, fy, fz; fx, fy-1, fz} A_{fx, fy-1, fz} + \\
 & + X_{fx, fy, fz; fx, fy, fz+1} A_{fx, fy, fz+1} + X_{fx, fy, fz; fx, fy, fz-1} A_{fx, fy, fz-1}) = 0
 \end{aligned}$$

$$f_z \geq 2$$

(IV.2.1)

$$\begin{aligned}
 & [E - \Delta - D_{fx, fy, 1; fx+1, fy+1, 1} - D_{fx, fy, 1; fx-1, fy, 1} - \\
 & - D_{fx, fy, 1; fx, fy+1, 1} - D_{fx, fy, 1; fx, fy-1, 1} - D_{fx, fy, 1; fx, fy, 2} - \\
 & - D_{fx, fy, 1; fx, fy, 0} - Y_{fx, fy, 1; fx+1, fy, 1} (1 - \beta_{fx+1, fy, 1}) -
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & - Y_{fx, fy, 1; fx-1, fy, 1} (1 - \delta_{fx-1, fy, 1}) - Y_{fx, fy, 1; fx, fy-1, 1} (1 - \delta_{fx, fy-1, 1}) - \\
 & - Y_{fx, fy, 1; fx, fy, 2} (1 - \delta_{fx, fy, 2}) - Y_{fx, fy, 1; fx, fy, 0} (1 - \delta_{fx, fy, 0})] A_{fx, fy, 1} - \\
 & - \delta_{fx, fy, 1} (X_{fx, fy, 1; fx+1, fy, 1} A_{fx+1, fy, 1} + X_{fx, fy, 1; fx-1, fy, 1} A_{fx-1, fy, 1} + \\
 & + X_{fx, fy, 1; fx, fy+1, 1} A_{fx, fy+1, 1} + X_{fx, fy, 1; fx, fy-1, 1} A_{fx, fy-1, 1} + \\
 & + X_{fx, fy, 1; fx, fy, 2} A_{fx, fy, 2} + X_{fx, fy, 1; fx, fy, 0} A_{fx, fy, 0}) = 0
 \end{aligned}$$

$$fx = 1$$

(IV.2.2)

i:

$$\begin{aligned}
 & [E - \Delta - D_{fx, fy, 0; fx+1, fy, 0} - D_{fx, fy, 0; fx-1, fy, 0} - \\
 & - D_{fx, fy, 0; fx, fy+1, 0} - D_{fx, fy, 0; fx, fy-1, 0} - D_{fx, fy, 0; fx, fy, 1} - \\
 & - Y_{fx, fy, 0; fx+1, fy, 0} (1 - \delta_{fx+1, fy, 0}) - Y_{fx, fy, 0; fx-1, fy, 0} (1 - \delta_{fx-1, fy, 0}) - \\
 & - Y_{fx, fy, 0; fx, fy+1, 0} (1 - \delta_{fx, fy+1, 0}) - Y_{fx, fy, 0; fx, fy-1, 0} (1 - \delta_{fx, fy-1, 0}) - \\
 & - Y_{fx, fy, 0; fx, fy, 1} (1 - \delta_{fx, fy, 1})] A_{fx, fy, 0} -
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & -\partial_{fx, fy, 0} (X_{fx, fy, 0}; fx+1, fy, 0) A_{fx+1, fy, 0} + X_{fx, fy, 0}; fx-1, fy, 0) A_{fx-1, fy, 0} + \\
 & + X_{fx, fy, 0}; fx, fy+1, 0) A_{fx, fy+1, 0} + X_{fx, fy, 0}; fx, fy-1, 0) A_{fx, fy-1, 0} + \\
 & + X_{fx, fy, 0}; fx, fy, 1) A_{fx, fy, 1}) = 0
 \end{aligned}$$

$$f_z = 0$$

(IV.2.3)

U skladu sa diskusijom iz prethodnog paragrafa, pretpostavljemo da se u površinskom sloju menja parametar uredjenosti u odnosu na vrednost koju ima u ostalim slojevima. Takođe se menjaju interakcije pobudjenog molekula sa nepobudjenom okolinom i to u graničnoj ravni kao i između granične i prve susedne ravni. Promene veličina X i Y sa položajem se zanemaruju jer su one manje, kao što je već rečeno, od veličina D. To znači da u (IV.2.1-IV.2.3) možemo uzeti:

$$\partial_{fx, fy, 0} = \partial_{fx+1, fy, 0} = \partial_{fx, fy-1, 0} = \partial_0$$

$$f_z = 0$$

(IV.2.4)

$$\mathcal{D}_{fx, fy, fz} = \mathcal{D}_{fx \pm 1, fy, fz} = \mathcal{D}_{fx, fy \pm 1, fz} = \mathcal{D}$$

$$; \quad fz > 0 \quad (\text{IV.2.5})$$

$$\mathcal{D}_{fx, fy, fz, fx \pm 1, fy, fz} = \mathcal{D}_{fx, fy, fz; fx, fy \pm 1, fz} =$$

$$= \mathcal{D}_{fx, fy, fz; fx, fy, fz \pm 1} = D \quad ; \quad fz \geq 2$$

$$X_{fx, fy, fz; fx \pm 1, fy, fz} = X_{fx, fy, fz; fx, fy \pm 1, fz} =$$

$$= X_{fx, fy, fz; fx, fy, fz \pm 1} = X \quad ; \quad fz \geq 0$$

$$Y_{fx, fy, fz; fx \pm 1, fy, fz} = Y_{fx, fy, fz; fx, fz \pm 1, fz} =$$

$$= Y_{fx, fy, fz; fx, fy, fz \pm 1} = Y \quad ; \quad fz \geq 0$$

$$(\text{IV.2.6})$$

$$\mathcal{D}_{fx, fy, 0; fx, fy \pm 1, 0} = \mathcal{D}_{fx, fy, 0; fx \pm 1, fy, 0} = D_0 \quad (\text{IV.2.7})$$

$$\mathcal{D}_{fx, fy, 0; fx, fy, 1} = \mathcal{D}_{fx, fy, 1; fx, fy, 0} = D_0 \approx D_0 \quad (\text{IV.2.8})$$

U skladu sa učinjenim pretpostavkama sistemi jednačina (IV.2.1-IV.2.3) postaju, respektivno:

$$[E - \Delta - 6D - 6Y(1-\beta)] A_{fx,fy,fz} - \beta X (A_{fx+1,fy,fz} +$$

$$+ A_{fx-1,fy,fz} + A_{fx,fy+1,fz} + A_{fx,fy-1,fz} + A_{fx,fy,fz+1} +$$

$$+ A_{fx,fy,fz+1} + A_{fx,fy,fz-1}) = 0 \quad ; \quad f_z \geq 2$$

(IV.2.9)

$$[E - \Delta - 5D_0 - 5Y(1-\beta_0) - Y(1-\beta_0)] A_{fx,fy,1} -$$

$$- \beta X (A_{fx+1,fy,1} + A_{fx-1,fy,1} + A_{fx,fy+1,1} + A_{fx,fy-1,1} +$$

$$+ A_{fx,fy,2} + A_{fx,fy,0}) = 0 \quad ; \quad f_z = 1$$

(IV.2.10)

$$[E - \Delta - 5D_0 - 4Y(1-\beta_0) - Y(1-\beta)] A_{fx,fy,0} - \beta_0 X (A_{fx+1,fy,0} +$$

$$+ A_{fx-1,fy,0} + A_{fx,fy+1,0} + A_{fx,fy-1,0} + A_{fx,fy,1}) = 0$$

$$f_z = 0$$

(IV.2.11)

Rešenja ovih sistema tražićemo u obliku:

$$A_{k_x, k_y, k_z} = \psi(k_z) e^{i a k_x k_x + i a k_y k_y} \quad (\text{IV.2.12})$$

gde je  $a$  - konstanta rešetke i talasni vektori  $k_x, k_y$  su dati izrazima:

$$k_x = \frac{2\pi}{aN_x} \nu_x \quad ; \quad \nu_x \in \left(-\frac{N_x}{2}; \frac{N_x}{2}\right)$$

$$k_y = \frac{2\pi}{aN_y} \nu_y \quad ; \quad \nu_y \in \left(-\frac{N_y}{2}; \frac{N_y}{2}\right) \quad (\text{IV.2.13})$$

Brojevi  $N_x$  i  $N_y$  su brojevi molekula duž X, odnosno duž Y pravca.

Posle zamene (IV.2.12) u (IV.2.9-IV.2.11) dobijamo respektivno:

$$\psi(k_x+1) + \psi(k_x-1) + \frac{F_2 - F(k_x, E)}{\partial X} \psi(k_x) = 0 \quad ; \quad k_x \geq 2 \quad (\text{IV.2.14})$$

$$\psi(k_2) + \psi(0) + \frac{F_1 - F(k_1, E)}{\partial X} \psi(k_1) = 0 \quad ; \quad k_x = 1 \quad (\text{IV.2.15})$$

$$\frac{6}{b_0} \psi(k_1) - \frac{F_0 - F(k_0, E)}{\partial X} \psi(k_0) = 0 \quad ; \quad k_x = 0 \quad (\text{IV.2.16})$$

Uvedene oznake su sledeće:

$$\bar{F}(k, E) = E - \Delta - 2\partial X (\cos k_x a + \cos k_y a) \quad (\text{IV.2.17})$$

$$F_2 = 6D + 6Y(1-\beta) \quad (\text{IV.2.18})$$

$$F_1 = 5D + D_0 + 5Y(1-\beta_0) + Y(1-\beta_0) \quad (\text{IV.2.19})$$

$$F_0 = 5D_0 + 4Y(1-\beta_0) + Y(1-\beta) + 2(\beta_0 - \beta)X(\cos\alpha K_x + \cos\alpha K_y) \quad (\text{IV.2.20})$$

Rešenje diferencne jednačine (IV.2.14) tražićemo u obliku:

$$W(f_k) = W_k(f_k) = \alpha_{K_k} \sin \alpha f_k K_k + \beta_{K_k} \sin \alpha (f_k - 1) K_k \quad (\text{IV.2.21})$$

Zamenom (IV.2.21) u (IV.2.14) dolazimo do sledeće veze izmedju parametara:

$$\frac{F_2 - F(K, E)}{\beta X} = -2 \cos \alpha K_k \quad (\text{IV.2.22})$$

odakle sledi da je energija eksitonata data izrazom:

$$E_k = \Delta + 6D + 6Y(1-\beta) + 2\beta X(\cos\alpha K_x + \cos\alpha K_y + \cos\alpha K_z) \quad (\text{IV.2.23})$$

gde je:

$$K_z = \frac{\pi}{\alpha N_z} V_z \quad ; \quad V_z \in (0; N_z) \quad (\text{IV.2.24})$$

Kao što se vidi iz dobijenog izraza za energiju, ona je ista kao i u idealnoj strukturi, ali je dobijena za amplitude A koje su ravni talasi u X i Y pravcu, dok su u z pravcu stojeći talasi.

Bitno je reći da rešenje (IV.2.21) mora zadovoljiti i diferencne jednačine (IV.2.15) i (IV.2.16).

Jednačina (IV.2.15) je zadovoljena ako postoji sledeća veza izmedju parametara:

$$\beta_0 - \beta = \frac{1}{Y} (D_0 - D) \quad (\text{IV.2.25})$$

Dobijena relacija je fundamentalna za izloženi prilaz i predstavlja uslov egzistencije analiziranih stanja. Njen fizički smisao je jasan: promena interakcije  $D$  na površini povlači obavezno za sobom i promenu eksitonske koncentracije. Drugim rečima, u polubeskonačnom kristalu koncentracija eksitona na površini ne može biti jednaka njihovoj koncentraciji u dubini kristala ukoliko se kroz kristal prostiru stopeći talasi.

Zamenom (IV.2.21) u (IV.2.16) dobijamo sledeću vezu izmedju proizvoljnih konstanti  $\alpha$  i  $\beta$ :

$$\frac{\beta_{K_x}}{D_{K_x}} = \frac{\beta_0 X}{F_0 - F(K_x E_K)} \equiv \lambda_K \quad (\text{IV.2.26})$$

Kombinujući izraze (IV.2.12), (IV.2.21) i (IV.2.26) sa uslovom normiranja (IV.1.9) nalazimo normirane amplitude stopećih eksitonskih talasa u polubeskonačnoj strukturi:

$$A_{fx, fy, fz} = \sqrt{\frac{2}{N(1 + \frac{2\pi n_0 K_z}{\lambda_x} + \frac{1}{\lambda_x^2})}} e^{i f_x k_x + i f_y k_y} \\ \times [\sin f_z K_z + \frac{1}{\lambda_z} \sin (f_z - 1) K_z]$$

(IV.2.27)

gde je  $N = N_x N_y N_z$ .

Nadjena eksitonska stanja sa energijama (IV.2.23) i amplitudama (IV.2.27) nazivaju se zapreminskim eksitonima. Ovakav naziv potiče od činjenice da su kvadратi modula amplituda  $A$  praktično jednaki za sve tačke kristala, što drugim rečima znači da je eksitonsko pobudjenje ravnomerno rasporedjeno po celoj zapremini polubeskonačne strukture.

Sistem jednačina (IV.2.14-IV.2.16), osim navedenog, dopušta još jedan tip rešenja, koje možemo tražiti u obliku:

$$W(f_z) = C_{K_z} e^{-a_{f_z} \delta} ; \quad \delta > 0 \quad (\text{IV.2.28})$$

Zbog zahteva  $\delta > 0$  fizički smisao ovakvog tipa rešenja je očigledan: stanja kojima odgovara navedeno rešenje su lokalizovana uz graničnu površinu jer im kvadrat modula amplitude eksponencijalno opada sa udaljavanjem od granične površine. Otuda se ovakva stanja nazivaju površinskim eksitonima.

Ako (IV.2.28) uvrstimo u (IV.2.14), za energiju površinskih eksitona dobijamo izraz:

$$E_{\mathcal{X}} = \Delta + 6D + 6Y(1-\beta) + 2\beta X(\cos \alpha K_x + \sin \alpha K_y + \tan \alpha \mathcal{X}) \quad (IV.2.29)$$

Na osnovu jednačine (IV.2.15) lako se može zaključiti da je uslov egzistencije površinskih stanja isti kao i u slučaju zapreminske eksitona  $[\sigma_0 - \sigma = \frac{1}{Y} (D_0 - D)]$ , što znači da se koncentracije eksitona u površinskom sloju i unutrašnjim slojevima moraju razlikovati.

Ukoliko izraz (IV.2.28) zamenimo u (IV.2.16) dolazimo do sledećeg izraza za parametar  $\mathcal{X}$ :

$$\mathcal{X}_{1,2} = \frac{1}{a} \ln \left[ -\frac{\phi_{(K_x, K_y)}}{2} \pm \sqrt{\frac{\phi_{(K_x, K_y)}^2}{4} + \frac{Z_0}{2\beta} - 1} \right]$$

gde je: (IV.2.30)

$$\phi_{(K_x, K_y)} = \frac{6D - 5D_0 + 5Y(1-\beta) - 4Y(1-Z_0) - 2(Z_0 - \beta)X(\cos \alpha K_x + \sin \alpha K_y)}{2\beta X} \quad (IV.2.31)$$

Budući da  $\mathcal{X}$  mora biti realno i pozitivno, posred opšteg uslova egzistencije (IV.2.25), potrebno je da budu zadovoljeni i dopunski uslovi, koji se mogu izvesti iz izraza (IV.2.30). Ako se pretpostavi da je  $\frac{\sigma_0}{2\sigma} < 1$ , što je s obzirom na eksitonske koncentracije realna pretpostavka, onda su uslovi egzistencije površinskih stanja ( $\mathcal{X}$  realno i pozitivno):

$$\Phi(k_x, k_y) < 0 \quad ; \quad |\Phi| > 2\sqrt{1 - \frac{\beta_0}{2\delta}} \quad (\text{IV.2.32})$$

$$-\frac{\Phi(k_x, k_y)}{2} + \sqrt{-\frac{\Phi^2(k_x, k_y)}{4} + \frac{\beta_0}{2\delta} - 1} > 1 \quad (\text{IV.2.33})$$

i:

$$-\frac{\Phi(k_x, k_y)}{2} - \sqrt{-\frac{\Phi^2(k_x, k_y)}{4} + \frac{\beta_0}{2\delta} - 1} > 1 \quad (\text{IV.2.34})$$

Odavde je očigledno, a tako se može i pokazati, korišćenjem razvoja u red, da jedino realno može egzistirati samo prvi tip površinskih stanja sa parametrom  $\lambda_1$ . Ukoliko uslov (IV.2.33) nije ispunjen onda površinskih stanja nema. Pošto navedeni uslov egzistencije zavisi od talasnih vektora  $k_x$  i  $k_y$ , mogućnosti nastanka površinskih stanja su dovoljno široke jer se gotovo uvek može pronaći bar neki domen u  $k_x$ ,  $k_y$  ravni za koji će  $\lambda$  biti realno i pozitivno.

Normirane amplitude površinskih stanja date su izrazom:

$$A_{fx, fy, fz}^{(1,2)} = \sqrt{\frac{1}{N_x N_y (1 - e^{-2\alpha \beta \epsilon_{1,2}})}} e^{if_x k_x + if_y k_y - f_z \lambda \epsilon_{1,2}} \quad (\text{IV.2.35})$$

Poredeći dobijene rezultate sa analognim rezultatima iz radova [32] i [33] možemo konstatovati da su neki zaključci bitno različiti. U navedenim radovima član hamiltonijana (IV.1.1)  $\sum_{\vec{n}\vec{m}} D_{\vec{n}\vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{m}}$  uziman je u formi koja odgovara idealnoj strukturi:  $\sum_{\vec{n}\vec{m}} D_{\vec{n}\vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{m}} \rightarrow \tilde{D}_{\vec{n}} \sum_{\vec{n}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}}$ , gde je

$\tilde{D}_n = \sum_{\overrightarrow{n-m}} D_{n-m}$ . Ovakva aproksimacija, koja nije opravdana, dovela je do toga da zapreminske i površinske eksitonu mogu da egzistiraju nezavisno od toga kakve su im koncentracije na površini i u dubini kristala. Da ova aproksimacija nije uvedena površinska i zapreminska stanja ne bi mogla da egzistiraju [vidi uslov (IV.2.25)!]. Osim toga u pomenutim radovima parametar  $\lambda$  kod površinskih stanja ne zavisi od talasnih vektora  $k_x$  i  $k_y$ , pa su i dobijeni uslovi za realnost i pozitivnost parametra  $\lambda$  uži nego što je ovde dobijeno.

Što se tiče praktične primene dobijenih rezultata, osnovne ideje se mogu dobiti iz formule (IV.2.25). Ako ovaj izraz napišemo u obliku:

$$\sigma_0 = \sigma - \frac{D - D_0}{\gamma}$$

očigledno da je  $\sigma_0 \rightarrow 0$  ako  $\frac{D - D_0}{\gamma} \rightarrow \sigma \approx 1$ . To bi značilo da se koncentracija eksitona na površini može učiniti izvanredno visokom,  $C_0 = \langle P_0^+ P_0 \rangle \approx 1/2$ , ukoliko se posebnim prepariranjem strukture postigne da  $\frac{D - D_0}{\gamma}$  bude blisko jedinici. Očigledno je da se ovakvo "prepariranje" može postići nanošenjem na površinski sloj substrata neke druge supstance različite od samog substrata, ali čije će interakcije  $D_0$  biti takve da se odnos  $\frac{D - D_0}{\gamma}$  učini bliskim jedinici.

### IV.3. EKSTITONI U TANKIM FILMOVIMA

Ovo poglavlje posvetićemo analizi eksiton-skih stanja u tankom filmu. To znači da ćemo posmatrati strukturu čija je dimenzija u pravcu z-ose konačna, tj. broj  $N_z$  nije reda  $10^8$ , kao u polubeskonačnoj strukturi, nego je mnogo manji (reda 10-100). Pretpostavićemo da je narušenje simetrije istoga tipa kao i kod polubeskonačne strukture, tj. na graničnim površinama  $f_z = 0$  i  $f_z = N_z$  menjaju se energije interakcije pobudjenog molekula sa nepobudjenom okolinom, dok se promena ostalih relevantnih karakteristika zanemaruje. Istovremeno ćemo pretpostaviti da na graničnim površinama ( $f_z = 0$  i  $f_z = N_z$ ) vladaju identični uslovi pa su i deformacije identične. Posledično, u opštotoj jednačini (IV.1.11), napisanoj u aproksimaciji najbližih suseda, važi sledeće:

$$\begin{aligned} \delta_{fx, fy, 0} &= \delta_{fx \pm 1, fy, 0} = \delta_{fx, fy \pm 1, 0} = \delta_{fx, fy, N_z} = \delta_{fx \pm 1, fy, N_z} = \\ &= \delta_{fx, fy \pm 1, N_z} = \delta_0 \end{aligned} \quad (\text{IV.3.1})$$

$$\delta_{fx, fy, fz} = \delta_{fx \pm 1, fy, fz} = \delta_{fx, fy \pm 1, fz} = \delta_0$$

$$0 < fz < N_z \quad (\text{IV.3.2})$$

$$D_{fx, fy, fz; fx \pm 1, fy, fz} = D_{fx, fy, fz; fx, fy \pm 1, fz} =$$

$$= D_{fx, fy, fz; fx, fy, fz \pm 1} = D$$

$$2 \leq f_z \leq N_z - 2$$

(IV.3.3)

$$X_{fx, fy, fz; fx \pm 1, fy, fz} = X_{fx, fy, fz; fx, fy \pm 1, fz} =$$

$$= X_{fx, fy, fz; fx, fy, fz \pm 1} = X$$

$$0 \leq f_z \leq N_z$$

$$Y_{fx, fy, fz; fx \pm 1, fy, fz} = Y_{fx, fy, fz; fx, fy \pm 1, fz} =$$

$$= Y_{fx, fy, fz; fx, fy, fz \pm 1} = Y$$

$$0 \leq f_z \leq N_z$$

(IV.3.4)

$$D_{fx, fy, 0; fx, fy \pm 1, 0} = D_{fx, fy, 0; fx \pm 1, fy, 0} = D_{fx, fy, N_z; fx, fy \pm 1, N_z} =$$

$$= D_{fx, fy, N_z; fx \pm 1, fy, N_z} = D_0 \quad (\text{IV.3.5})$$

$$D_{fx, fy, 0; fx, fy, 1} = D_{fx, fy, 1; fx, fy, 0} = D_{fx, fy, N_z; fx, fy, N_z - 1} = D_{fx, fy, N_z - 1; fx, fy, N_z} =$$

$$= D'_0 \approx D_0 \quad (\text{IV.3.6})$$

S obzirom na činjenicu da se sada u analizi uključuju obe granične površine, sistem relevantnih veličina za analizu stanja u filmu čini jednačina (IV.2.1), koja ovde važi za  $2 \leq f_z \leq N_z - 2$ , zatim jednačine (IV.2.2) i (IV.2.3), kao i granične jednačine za slojeve  $f_z = N_z - 1$  i  $f_z = 1$ , koje glase:

$$\begin{aligned}
 & [ E - \Delta - D_{fx, fy, N_z-1; fx+1, fy, N_z-1} - D_{fx, fy, N_z-1; fx-1, fy, N_z-1} - \\
 & - D_{fx, fy, N_z-1; fx, fy+1, N_z-1} - D_{fx, fy, N_z-1; fx, fy-1, N_z-1} - \\
 & - D_{fx, fy, N_z-1; fx, fy, N_z} - D_{fx, fy, N_z-1; fx, fy, N_z-2} - \\
 & - Y_{fx, fy, N_z-1; fx+1, fy, N_z-1} (1 - \delta_{fx+1, fy, N_z-1}) - \\
 & - Y_{fx, fy, N_z-1; fx-1, fy, N_z-1} (1 - \delta_{fx-1, fy, N_z-1}) - \\
 & - Y_{fx, fy, N_z-1; fx, fy+1, N_z-1} (1 - \delta_{fx, fy+1, N_z-1}) - \\
 & - Y_{fx, fy, N_z-1; fx, fy-1, N_z-1} (1 - \delta_{fx, fy-1, N_z-1}) - \\
 & - Y_{fx, fy, N_z-1; fx, fy, N_z} (1 - \delta_{fx, fy, N_z}) - \\
 & - Y_{fx, fy, N_z-1; fx, fy, N_z-2} (1 - \delta_{fx, fy, N_z-2}) ] A_{fx, fy, N_z-1} - \\
 & - \delta_{fx, fy, N_z-1} (X_{fx, fy, N_z-1; fx+1, fy, N_z-1} A_{fx+1, fy, N_z-1} + 
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & + X_{fx, fy, Nz-1; fx-1, fy, Nz-1} A_{fx-1, fy, Nz-1} + \\
 & + X_{fx, fy, Nz-1; fx, fy+1, Nz-2} A_{fx, fy+1, Nz-2} + \\
 & + X_{fx, fy, Nz-1; fx, fy-1, Nz-1} A_{fx, fy-1, Nz-2} + \\
 & + X_{fx, fy, Nz-1; fx, fy, Nz} A_{fx, fy, Nz} + X_{fx, fy, Nz-1; fx, fy, Nz-2} A_{fx, fy, Nz-2} = \\
 & = 0 \quad ; \quad f_z = N_z - 1 \quad (\text{IV.3.7})
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & [E - \Delta - D_{fx, fy, Nz; fx+1, fy, Nz} - D_{fx, fy, Nz; fx-1, fy, Nz} - \\
 & - D_{fx, fy, Nz; fx, fy+1, Nz} - D_{fx, fy, Nz; fx, fy-1, Nz} - D_{fx, fy, Nz; fx, fy, Nz-1} - \\
 & - Y_{fx, fy, Nz; fx+1, fy, Nz} (1 - \delta_{fx+1, fy, Nz}) - \\
 & - Y_{fx, fy, Nz; fx-1, fy, Nz} (1 - \delta_{fx-1, fy, Nz}) - Y_{fx, fy, Nz; fx, fy+1, Nz} (1 - \delta_{fx, fy+1, Nz}) - \\
 & - Y_{fx, fy, Nz; fx, fy-1, Nz} (1 - \delta_{fx, fy-1, Nz})] A_{fx, fy, Nz} - \\
 & - \delta_{fx, fy, Nz} (X_{fx, fy, Nz; fx+1, fy, Nz} A_{fx+1, fy, Nz} + \\
 & + X_{fx, fy, Nz; fx-1, fy, Nz} A_{fx-1, fy, Nz} +
 \end{aligned}$$

$$+ X_{fx, fy, Nz; fx, fy+1, Nz} A_{fx, fy+1, Nz} +$$

$$+ X_{fx, fy, Nz; fx, fy-1, Nz} A_{fx, fy-1, Nz} +$$

$$+ X_{fx, fy, Nz; fx, fy, Nz-1} A_{fx, fy, Nz-1} = 0$$

$$f_z = N_z \quad (\text{IV.3.8})$$

Ako se iskoriste uslovi (IV.3.1-IV.3.6) i rešenje jednačina (IV.2.1-IV.2.3), (IV.3.7) i (IV.3.8) potraži u obliku:

$$A_{fx, fy, fz} = W(f_z) e^{i \alpha k_x f_x + i \alpha k_y f_y} \quad (\text{IV.3.9})$$

pomenute jednačine se svode na sledeći sistem:

$$W(f_{z+1}) + W(f_{z-1}) + \frac{F_2 - F(k, E)}{\partial X} W(f_z) = 0 ; \quad 2 \leq f_z \leq N_z - 2 \quad (\text{IV.3.10})$$

$$W(2) + W(0) + \frac{F_1 - F(k, E)}{\partial X} W(1) = 0 \quad ; \quad f_z = 1 \quad (\text{IV.3.11})$$

$$\frac{\partial}{\partial X} W(1) + \frac{F_0 - F(k, E)}{\partial X} W(0) = 0 \quad ; \quad f_z = 0 \quad (\text{IV.3.12})$$

$$W(N_z) + W(N_z - 2) + \frac{F_1 - F(k, E)}{\partial X} W(N_z - 1) = 0 ; \quad f_z = N_z - 1 \quad (\text{IV.3.13})$$

$$\frac{\partial \phi}{\partial x} W(n_z) + \frac{F_0 - F(k_z, E)}{\partial x} W(n_z) = 0 ; \quad k_z = k_z$$

(IV.3.14)

Oznake  $F$ ,  $F_2$ ,  $F_1$  i  $F_0$  date su formulama (IV.2.17-IV.2.20).

Kao i u prethodnom paragrafu, pretpostavimo da funkcija  $W$  ima oblik:

$$W_k(z) = \alpha_{k_z} \sin \alpha_k z + \beta_{k_z} \sin \alpha_k (z-1) k_z \quad (IV.3.15)$$

gde je:

$$k_z = \frac{\pi}{\alpha n_z} \quad ; \quad z \in (0; n_z) \quad (IV.3.16)$$

Funkcija (IV.3.15) zadovoljava (IV.3.10) ako je  $\frac{F_2 - F(k, E)}{\sigma x} = -2 \cos \alpha_k z$  što znači da je energija eksitona u filmu data izrazom:

$$E_k = \Delta + 6D + 6Y(1-\delta) + 2\delta x (\cos \alpha_k z + \cos \alpha_k y + \cos \alpha_k z) \quad (IV.3.17)$$

Ukoliko, sada, (IV.3.15) uvrstimo u (IV.3.11) i u (IV.3.13), pri čemu kod zamene u (IV.3.13) treba imati u vidu da je  $k_z$  dato formulom (IV.3.16), obe jednačine postaju identične i svode se na:

$$\delta_0 - \delta = \frac{1}{Y} (D_0 - D) \quad (IV.3.18)$$

Očigledno, ovaj uslov ukazuje na činjenicu da na granicama mora da dodje do promene eksitonskih koncentracija, jer bez toga ovakva stanja ne bi mogla da egzistiraju.

Ako (IV.3.15) uvrstimo u jednačine (IV.3.12) i (IV.3.14) i iskoristimo činjenice da je  $\frac{F_2 - F(k, E)}{\sigma X} = -2 \cos \alpha k_z$  i  $\sin N_z \alpha k_z = 0$ , onda se za  $\alpha k_z \neq s\pi$  ( $s = 0, \pm 1, \pm 2$ ) ove dve jednačine svode na:

$$\omega_{kz} - \frac{F_0 - F(k, E)}{2\sigma X} \beta_{kz} = 0 \quad (\text{IV.3.19})$$

$$\mathcal{L}_{kz} + \left( \frac{F(k, E) - F_2}{2\sigma X} + \frac{F_0 - F(k, E)}{2\sigma X} \right) \beta_{kz} = 0 \quad (\text{IV.3.20})$$

Da bi dobijeni sistem imao netrivialna rešenja njegova determinanta mora biti ravna nuli. Izjednačavajući determinantu sistema sa nulom nalazimo da talasni vektor  $k_z$  nije nezavisan, nego da zavisi od  $K_x$  i  $K_y$ , i to na sledeći način:

$$\omega_{kz} = \frac{6D + 5Y(1-\beta) - 5D_0 - 4Y(1-\beta_0) - 2(\beta_0 - \beta)X(\cos \alpha k_z + \cos \alpha k_y)}{(\beta_0 - \beta)} \\ \beta \neq \beta_0 \quad (\text{IV.3.21})$$

S obzirom na (IV.3.21) izraz za energiju posmatranih stanja glasi:

$$E_k = \Delta + 6D + 6Y(1-\beta) - \frac{6D + 5Y(1-\beta) - 5D_0 - 4Y(1-\beta_0)}{1 - \frac{\beta_0}{\beta}} + \\ = 2 \frac{\beta_0}{2\beta - \beta_0} X (\cos \alpha k_z + \cos \alpha k_y) \quad (\text{IV.3.22})$$

Kao što se vidi, energija zapreminskih stanja u filmu ima dvodimenzionu zonu u prostoru talasnih vektora. Drugim rečima, zapreminski eksiton u filmu se ponašaju kao eksiton u

idealnoj dvodimenzionoj strukturi, kada je energija eksitacija data sa:

$$E_k^{(2d)} = \Delta + 4D + 4/(1-\beta) + 2\beta X(\cos \alpha K_x + \cos \alpha K_y) \quad (\text{IV.3.23})$$

Ukoliko je  $\sigma_0 = 2\sigma$  dobijeni rezultati nemaju smisla, ali se u tom slučaju determinanta sistema (IV.3.19), (IV.3.20) svodi na:

$$2\beta X(\cos \alpha K_x + \cos \alpha K_y) = 6D - 5D_0 + Y(1-3\beta) \quad (\text{IV.3.24})$$

što daje izraz za energiju:

$$E_k(\beta_0=2\beta) = \Delta + 6D + 6Y(1-\beta) + 6D - 5D_0 + Y(1+3\beta) + 2\beta X \cos \alpha K_z \quad (\text{IV.3.25})$$

Vidimo da se u ovom specifičnom slučaju eksitoni u filmu ponašaju kao eksitoni u nekoj ekvivalentnoj jednodimenzionoj strukturi, budući da imaju jednodimenzionu zonu talasnih vektora. Radi poredjenja navešćemo izraz za energiju eksitona u idealnoj jednodimenzionoj strukturi:

$$E_k^{(1d)} = \Delta + 2D + 2Y(1-\beta) + 2\beta X \cos \alpha K_z \quad (\text{IV.3.26})$$

Iz jednačine (IV.3.19) sledi:

$$\frac{\beta \nu_z}{J \omega_z} = - \frac{1}{2\beta X \cos \alpha K_z} \quad (\text{IV.3.27})$$

tako da normirane amplitude zapreminske eksitona u filmu imaju oblik:

$$A_{f_x, f_y, f_z} = \sqrt{\frac{2}{(N_x+1)(N_y+1)N_z \left( \frac{1}{\cos^2 \alpha_k} - 1 + \frac{2}{N_z} \tan^2 \alpha_k \right)}} \times \\ \times e^{i f_x a_k x + i f_y a_k y} \left[ \sin f_z a_k z - \frac{\sin(f_z - 1)a_k z}{\cos a_k z} \right]. \quad (\text{IV.3.28})$$

Eventualna primena dobijenih rezultata svodi se na odgovarajuću preparaciju filma i to u skladu sa formulom:

$$\delta_o - \delta = \frac{1}{Y} (D_o - D)$$

Da bi se postigla veoma visoka koncentracija eksitona na graničnim površinama na njih se mogu nanositi slojevi novog tipa molekula čije su karakteristike takve da je  $\frac{D_o - D}{Y} \approx \frac{1}{2}$ .

Nije bez praktičnog interesa ni činjenica da se film ponaša kao idealna dvodimenziona struktura, a u izvesnim slučajevima kao idealna jednodimenziona struktura. Pošto je pomenute idealne strukture praktično nemoguće realizovati, mnoga saznanja o energetskom bilansu u ovakvim strukturama mogu se postići analizom pojava u filmu. Da bi se film ponašao kao ekvivalentna jednodimenziona struktura mora da bude ispunjen uslov  $\frac{D_o - D}{Y} = \sigma \approx 1$ , što se takođe

može realizovati nanošenjem na granične površine molekularnih slojeva sastavljenih od molekula drugog tipa.

Što se tiče površinskih stanja u filmu situacija je analogna slučaju polubeskonačne strukture. U filmu mogu da se pojave stanja lokalizovana uz graničnu površinu  $f_z = 0$ , za koja je:

$$W^{(0)}(f_z) = C_0 e^{-\alpha f_z \delta} \quad (\text{IV.3.29})$$

i stanja lokalizovana uz graničnu površinu  $f_z = N_z$ , za koja je:

$$W^{(N_z)}(f_z) = C_{N_z} e^{\alpha(f_z - N_z)\delta} \quad (\text{IV.3.30})$$

Potrebno je, medjutim, naglasiti da ni jedno od ovih rešenja ne zadovoljava striktno pet jednačina (IV.3.10-IV.3.14), nego samo u aproksimaciji  $e^{-(N_z-1)\alpha\delta} \approx 0$ , koja je dobra za relativno debele filmove.

Energije oba pomenuta površinska stanja date su izrazom (IV.2.29), a normirane amplitude imaju oblik (IV.2.35). Parametar  $\chi$  određuje se iz jednačine (IV.2.30) i diskusija o egzistenciji ovih stanja ostaje ista kao za slučaj polubeskonačne strukture.

#### IV.4. KONTINUALNA DEFORMACIJA U FILMU

Do sada su analizirana stanja u polubeskonačnoj strukturi i filmu uz pretpostavku da se interakcija D pobudjenog molekula sa nepobudjenom okolinom menja samo u

graničnim slojevima, a da je za sve ostale slojeve ista i ima vrednost koju bi imala u idealnoj strukturi. Očigledno je da učinjene pretpostavke predstavljaju idealizaciju realne situacije, pošto se u praksi dešava da su deformacijom zahvaćeni i unutrašnji slojevi čija dubina daleko premaša konstantu rešetke [36]. Zbog toga ćemo ovde pretpostaviti da interakcije  $D$  imaju jednake vrednosti  $D_S$  na granicama tankog filma, da im je vrednost na sredini filma  $D_V$  i da im se vrednost kontinualno menja izmedju vrednosti  $D_S$  i  $D_V$ . Za energije  $X$  i  $Y$  pretpostavlja se, kao i ranije, da se njihova promena sa dubinom može zanemariti.

U skladu sa rečenim, uzećemo da je:

$$\begin{aligned}
 & D_{fx, fy, 0; fx \pm 1, fy, 0} = D_{fx, fy, 0; fx, fy \pm 1, 0} \approx D_{fx, fy, 0; fx, fy, 1} = \\
 & = D_{fx, fy, 1; fx, fy, 0} = D_{fx, fy, Nz; fx \pm 1, fy, Nz} = D_{fx, fy, Nz; fx, fy \pm 1, Nz} \approx \\
 & \approx D_{fx, fy, Nz; fx, fy, Nz-1} = D_{fx, fy, Nz-1; fx, fy, Nz} = D_S
 \end{aligned} \tag{IV.4.1}$$

i

$$\begin{aligned}
 & D_{fx, fy, \frac{Nz}{2}; fx \pm 1, fy, \frac{Nz}{2}} = D_{fx, fy, \frac{Nz}{2}; fx, fy \pm 1, \frac{Nz}{2}} \approx \\
 & \approx D_{fx, fy, \frac{Nz}{2}; fx, fy, \frac{Nz}{2} + 1} = D_V
 \end{aligned} \tag{IV.4.2}$$

Za ostale vrednosti ćemo uzeti:

$$\begin{aligned}
 D_{fx, fy, fz; fx \pm 1, fy, fz} &= D_{fx, fy, fz; fx, fy \pm 1, fz} \approx \\
 \approx D_{fx, fy, fz; fx, fy, fz+1} &= D_{fx, fy, fz+1; fx, fy, fz} = D(z) \\
 f_z = 2, 3, \dots, \frac{N_z}{2}-2 &\quad ; \quad f_z = \frac{N_z}{2}, 2, \dots, N_z-2 \\
 \end{aligned}
 \tag{IV.4.3}$$

a funkciju  $D(f_z)$  predstaviti u kontinualnoj aproksimaciji:

$$D(f_z) \rightarrow D(z) = D_0 + \beta_D (z - L/2)^2 \tag{IV.4.4}$$

gde je  $L = N_z - a$  - debljina filma.

Kao što je već istaknuto u paragrafu IV.1, promena veličina  $D$  povlači za sobom odgovarajuću promenu eksitonskih koncentracija, odnosno parametra uredjenosti sistema. Analogno prethodnim formulama uzećemo:

$$\begin{aligned}
 \sigma_{fx, fy, 0} &= \sigma_{fx \pm 1, fy, 0} = \sigma_{fx, fy \pm 1, 0} = \sigma_{fx, fy, N_z} = \\
 &= \sigma_{fx \pm 1, fy, \frac{N_z}{2}} = \sigma_{fx, fy \pm 1, \frac{N_z}{2}} = \sigma_s
 \end{aligned}
 \tag{IV.4.5}$$

i:

$$\sigma_{fx, fy, \frac{N_z}{2}} = \sigma_{fx \pm 1, fy, \frac{N_z}{2}} = \sigma_{fx, fy \pm 1, \frac{N_z}{2}} = \sigma_v \tag{IV.4.6}$$

Ostale vrednosti parametra uredjenosti predstavićemo kao funkciju indeksa  $f_z$ , tj.:

$$\delta_{fx, fy, fz} = \delta_{fx \pm 1, fy, fz} = \delta_{fx, fy \pm 1, fz} = \delta_{fz}$$

$$f_z = 1, \dots, \frac{N_z}{2}-1 \quad ; \quad f_z = \frac{N_z}{2}+1, \dots, N_z-1 \quad (IV.4.7)$$

Funkciju  $\sigma(f_z)$  predstavićemo u kontinualnoj aproksimaciji:

$$\delta_{fz} \rightarrow \delta(z) = \alpha_0 + \beta_0 (z - L/2)^2 \quad (IV.4.8)$$

Parametre  $\alpha$  i  $\beta$  možemo odrediti na osnovu uslova (IV.4.1), (IV.4.2), (IV.4.5) i (IV.4.6), tj.:

$D(0) = D(L) = D_S$ ;  $D(\frac{L}{2}) = D_V$  i  $\sigma(0) = \sigma(L) = \sigma_S$ ;  $\sigma(\frac{L}{2}) = \sigma_V$ . Tada formule (IV.4.4) i (IV.4.8) postaju, respektivno:

$$D(z) = D_V \left[ 1 + \frac{4}{L^2} \left( \frac{D_S}{D_V} - 1 \right) \left( z - \frac{L}{2} \right)^2 \right] \quad (IV.4.9)$$

i

$$\delta(z) = \delta_V \left[ 1 + \frac{4}{L^2} \left( \frac{\delta_0}{\delta_V} - 1 \right) \left( z - \frac{L}{2} \right)^2 \right] \quad (IV.4.10)$$

Ako rešenje jednačine (IV.2.1) za interval  $2 \leq f_z \leq N_z - 2$  potražimo u obliku:

$$A_{fx, fy, fz} = W(f_z) e^{i \alpha x f_x + i \alpha y f_y} \quad \xrightarrow{i \alpha k_x f_x + i \alpha k_y f_y} W(z) e^{i \alpha k_x f_x + i \alpha k_y f_y} \quad (IV.4.11)$$

pri čemu je

$$W(f_z \pm 1) \approx W(z) \pm \alpha \frac{dW}{dz} + \frac{1}{2} \alpha^2 \frac{d^2 W}{dz^2} \quad (IV.4.12)$$

a za  $D_i \sigma$  iskoristimo kontinualne aproksimacije (IV.4.9) i (IV.4.10), ova jednačina prelazi u diferencijalnu jednačinu Ermit-Veberovog tipa:

$$\frac{d^2W}{dz^2} + \left[ -\frac{\mu_E + 2}{a^2} - \frac{\mathcal{V}_E}{a^2} \left( z - \frac{L}{2} \right)^2 \right] W(z) = 0 \quad (\text{IV.4.13})$$

gde je:

$$\mu_E = \lambda_E + Q_K \quad (\text{IV.4.14})$$

$$\mathcal{V}_E = \frac{4}{L^2} \left( \frac{\beta_s}{\beta_v} - 1 \right) (\lambda_E - D) \quad (\text{IV.4.15})$$

$$\lambda_E = \frac{\Delta_v + 6D_v - 8 \frac{a^2}{L^2} Y(\beta_s - \beta_v) - E}{X \beta_v} \quad (\text{IV.4.16})$$

$$Q_K = 2(\cos \alpha K_x + \cos \alpha K_y) \quad (\text{IV.4.17})$$

$$D = \frac{6}{X} - \frac{D_s - D_v}{\beta_s - \beta_v} \quad (\text{IV.4.18})$$

Zbog prelaska na kontinuum jednačine (IV.2.2) i (IV.3.7) postaju identične sa jednačinom (IV.4.13).

Granične jednačine (IV.2.3) i (IV.3.8), gase, respektivno:

$$W(a) + \frac{\Delta + 5D_s + 4Y(L - \beta_s) + Y[1 - \beta(a)] + 2X\beta_s(\cos \alpha K_x + \cos \alpha K_y) - E}{X\beta_s} W(b) = 0 \quad (\text{IV.4.19})$$

i

$$\frac{W(L-a)}{\lambda} + \frac{\Delta + 5D_s + 4Y(1-\beta_s) + Y[1-\beta(L-a)] + 2X\beta_s(\cos \alpha k_x + \cos \alpha k_y) - E}{X\beta_s} W(L) = 0 \quad (IV.4.20)$$

gde je prema (IV.4.10):

$$\beta(a) = \beta(L-a) = \beta_v [1 + \frac{4}{L^2} (\frac{\beta_s}{\beta_v} - 1) (\frac{L}{2} - a)^2] \quad (IV.4.21)$$

U daljem ćemo pretpostaviti da je:

$$\beta_v > 0 \quad (IV.4.22)$$

Tada se smenom

$$\xi = -\frac{\beta_v^{1/4}}{a^{1/2}} (x - L/2)$$

$$\xi \in \left( -\frac{L\beta_v^{1/4}}{2a^{1/2}} ; \frac{L\beta_v^{1/4}}{2a^{1/2}} \right) \quad (IV.4.23)$$

jednačina (IV.4.13) svodi na oblik:

$$\frac{d^2W}{d\xi^2} + \left( -\frac{2 + \mu_v}{a\sqrt{\beta_v}} - \xi^2 \right) W = 0 \quad (IV.4.24)$$

Da bismo obezbedili konačnost amplituda za proizvoljnu debljinu L filma moramo uzeti da je:

$$\frac{2 + \mu_v}{a\sqrt{\beta_v}} = 2n + 1 \quad ; \quad n = 0, 1, 2, \dots \quad (IV.4.25)$$

Tada su rešenja Ermit-Veberove jednačine (IV.4.24) data sa:

$$W_n(\xi) = \frac{1}{\sqrt{2^n n! \sqrt{\pi}}} e^{-\frac{1}{2}\xi^2} H_n(\xi) \quad (IV.4.26)$$

gde su  $H_n(\xi)$  Ermitovi polinomi:

$$H_n(\xi) = (-1)^n e^{\xi^2} \frac{d^n}{d\xi^n} (e^{-\xi^2}) \quad (IV.4.27)$$

Treba napomenuti da je normirajući faktor u izrazu za funkciju  $W_n(\xi)$  aproksimativan, s obzirom da je dobijen u limetu  $L \rightarrow \infty$ .

Ako (IV.4.26) sa  $\xi = \frac{\sqrt{v_E}}{a^{1/2}} (z - L/2)$  zamenimo u graničnim jednačinama (IV.4.19) i (IV.4.20), i iskoristimo uslov (IV.4.25) one postaju identične i svode se na oblik:

$$\begin{aligned}
 & e^{(L-a)\frac{\sqrt{v_E}}{2}} H_n \left[ -\frac{\sqrt{v_E}}{a^{1/2}} \left( \frac{L}{2} - a \right) \right] + (2n+1)a \frac{\beta_v}{\beta_s} \sqrt{v_E} \times \\
 & \times H_n \left( -\frac{\sqrt{v_E}}{a^{1/2}} \frac{L}{2} \right) = \left\{ \frac{\beta_v}{\beta_s} (2+Q_k) - \right. \\
 & \left. - \frac{5D_s - 6D_v + 5Y + \beta_s X Q_k + 8 \frac{a^2}{L^2} Y (\beta_s - \beta_v) - Y \{ 4\beta_s + \beta_v [1 + \frac{4}{L^2} (\frac{\beta_s}{\beta_v} - 1)(\frac{L}{2} - a)^2] \}}{X \beta_s} \right\} \times \\
 & \times H_n \left( -\frac{\sqrt{v_E}}{a^{1/2}} \frac{L}{2} \right) \tag{IV.4.28}
 \end{aligned}$$

Za dovoljno debele filmove ( $N_z \leq 20$ ) može se uzeti da je:

$$\frac{L}{2} - a \approx \frac{L}{2} ; L - a \approx L \tag{IV.4.29}$$

i tada se u (IV.4.28) Ermitovi polinomi skraćuju. Takodje se može zanemariti član na desnoj strani jednačine proporcionalan odnosu  $\frac{a^2}{L^2}$ .

Uz navedene aproksimacije jednačina (IV.4.28) se svodi na oblik:

$$e^{\frac{p_1}{2} \theta_E} + (2\mu+1) \frac{\partial_v}{\partial_s} \theta_E = \\ = 2 \frac{\partial_v}{\partial_s} - (1 - \frac{\partial_v}{\partial_s}) Q_K - 5(\frac{1}{\partial_s} - 1) R_{yx} + \frac{1}{\partial_s} (6R_{vs} - 5) R_{dx} \quad (\text{IV.4.30})$$

gde su navedene oznake:

$$\theta_E = a \sqrt{\nu_E} \quad ; \quad \theta_E \geq 0 \quad (\text{IV.4.31})$$

i

$$R_{yx} = \frac{Y}{X} \quad ; \quad R_{dx} = \frac{D_s}{X} \quad ; \quad R_{vs} = \frac{D_v}{D_s} \quad ; \quad R_L = \frac{L}{\alpha} \in (20-10^8) \quad (\text{IV.4.32})$$

Energija pobudjenja data je formulom:

$$E_u(Q_K) = \Delta_v + 6D_v + X\partial_v(1+Q_K) - X\partial_v(2\mu+1)\theta_E \quad (\text{IV.4.33})$$

Na osnovu izloženog jasno je da se energija može izračunati samo numerički, budući da parametar  $\theta_E$ , koji u njoj figuriše, predstavlja rešenje transcendentne jednačine (IV.4.30). Postupak proračuna energije bio bi sledeći. Za zadati skup vrednosti  $Q_K$ ,  $D_s$ ,  $D_v$ ,  $\sigma_s$ ,  $\sigma_v$ ,  $X$ ,  $Y$ , ali i  $L$  odredi se interval energija za koji je ispunjen uslov  $v_E > 0$  a zatim se numerički traži rešenje jednačine (IV.4.30). Ukoliko takvo rešenje postoji, ono se zamenjuje u (IV.4.33) što posledično daje vrednost energije eksitacija.

Numerički račun je izvršen za eksitone sa pozitivnom efektivnom masom,  $X = -|X|$ , pri čemu su uzete sledeće vrednosti parametara:

$$R_L = 20 \quad ; \quad \partial_v = 0,9998 \quad ; \quad \partial_s = 0,998 \quad ; \quad R_{vs} = 0,8 \quad ; \quad R_{dx} = -10 \quad ; \quad R_{yx} = 2 \quad (\text{IV.4.34})$$

Za centar Brillouen-ove zone  $Q_K = 4$  i  $n = 0$ , iz (IV.4.30) dobijena je vrednost  $\theta_E = 0,135$ , dok je za  $n = 1$  nadjena vrednost  $\theta_E = 0,128$ .

Relativne promene energije

$$\delta E_n(Q) = \frac{E_n - \Delta_v - 6D_v}{|X|} = -\delta_v [Q_K + 1 - (2n+1)\theta_E] \quad (\text{IV.4.35})$$

iznosile su  $\delta E_0(4) = -4,864$  i  $\delta E_1(4) = -4,614$ , što znači da energija raste sa porastom  $n$ . Tako se može pokazati da je u posmatranom slučaju zadovoljen uslov  $v_E > 0$ .

Normirana talasna funkcija (IV.1.8), za slučaj prelaska na kontinuum, ima oblik:

$$|\Psi_{(k_x, k_y; n)}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2^n n! \sqrt{\pi} (N_x+1)(N_y+1)}} \times \\ \times \sum_{\substack{k_x=\frac{N_x}{2} \\ k_x=-\frac{N_x}{2}}} \sum_{\substack{k_y=\frac{N_y}{2} \\ k_y=-\frac{N_y}{2}}} [e^{iaf_x k_x + iaf_y k_y} \int_{-\infty}^{\infty} d\xi e^{-\frac{1}{2}\xi^2} H_n(\xi)] \times \\ \times P_{k_x, k_y; \xi}^+ |0\rangle \quad (\text{IV.4.36})$$

Izraz za talasnu funkciju (IV.4.36) iskorišćen je da se nadje srednja vrednost energije interakcije  $D$  i srednja vrednost parametra uredjenosti. U tom cilju u formulama (IV.4.9) i (IV.4.10) prešlo se na promenljive  $\xi$  i s obzirom na (IV.4.36) za tražene srednje vrednosti dobijeni su sledeći izrazi:

$$\langle \Psi | D | \Psi \rangle = D_v + 4 \cdot \frac{D_s - D_v}{\theta_E} \cdot \frac{a^2}{L^2} (M + 1/2) \quad (\text{IV.4.37})$$

i

$$\langle \Psi | \mathcal{Z} | \Psi \rangle = Z_v + 4 \cdot \frac{\theta_s - \theta_v}{\theta_E} \cdot \frac{a^2}{L^2} (M + 1/2) \quad (\text{IV.4.38})$$

Kao što se vidi srednje vrednosti ne zavise od talasnih vektora  $K_x$  i  $K_y$ , što je i prirodno budući da se po pretpostavci translaciona invarijantnost ne narušava duž X i Y pravca. S druge strane, vidi se da su srednje vrednosti proporcionalne broju  $n = 0, 1, 2, \dots$ . S tim u vezi može se postaviti pitanje do koje vrednosti "n" je kristal stabilan, ako se u njemu pojavljuju ekscitacije opisanog tipa, s obzirom da srednja vrednost parametra uredjenosti mora varirati izmedju nule i jedinice.

Ovde se može postaviti još jedno i verovatno najinteresantnije pitanje, a odnosi se na položaj zone kristala koja je zahvaćena pobudjenjem. Na osnovu (IV.4.36) verovatnoča nalaženja pobudjenja u tački  $\xi$ , odnosno u tački  $z = \frac{L}{2} + a \theta_E^{-1/2} \xi$  data je sa:

$$\mathcal{P}_n(\xi) = \frac{e^{-\xi^2} H_n(\xi)}{(N_x+1)(N_y+1) 2^n n! \sqrt{\pi}} \quad (\text{IV.4.39})$$

U osnovnom stanju  $n = 0$  verovatnoča  $\mathcal{P}_0(\xi)$  ima maksimum za  $\xi = 0$ , odnosno

$$\xi = \frac{L}{2} \quad (\text{IV.4.40})$$

U prvom pobudjenom stanju,  $n = 1$ , verovatnoća  $\mathcal{P}_1(\xi)$  ima minimalnu vrednost i to ravnu nuli za  $\xi = 0$ , dok maksimalne vrednosti dostiže za  $\xi = \pm 1$ , odnosno

$$\mathcal{E} = L/2 \pm \alpha \theta_E^{-1/2} \quad (\text{IV.4.41})$$

Za viša pobudjenja stanja,  $n > 1$ , broj minimuma i maksimuma veličine  $\mathcal{P}_n(\xi)$  raste proporcionalno broju "n" i položaji ovih ekstremuma idu redom minimum -maksimum ili obrnuto, tako da je pri visokom "n" pobudjenje praktično ravnomerno rasporedjeno po filmu, kao da nema deformacija, odnosno kao da je struktura idealna.

Sada ćemo se vratiti na najinteresantniji slučaj osnovnog stanja  $n = 0$  i prvog pobudjenog stanja  $n = 1$ .

U osnovnom stanju zona zahvaćena pobudjenjem nalazi se u centru filma i veoma brzo opada prema granicama filma, tako da se na površini praktično i ne oseća da je film pobudjen.

U prvom pobudjenom stanju pojavljuju se dve zone pobudjenja čiji su maksimumi pomereni ka granicama (površinama) filma, dok se centralni deo filma ponaša kao nepobudjen. Ovde je svakako najinteresantnije posmatrati slučaj kada su zone pobudjenja koncentrisane na granicama, što očigledno, prema formuli (IV.4.41), zavisi od veličine  $\theta_E$ .

Razmatran je slučaj kada u prvom pobudjenom stanju posmatrane eksitacije predstavljaju površinske eksitone, tj. kada su ove eksitacije locirane oko graničnih

površina. Zadržavajući skup parametara (IV.4.34) istim, s tim što se uzima  $R_{YS} = 0,847$ , dobijamo, pri  $n = 1$ ,  $\theta = 0,01$  za kraj Briluen-ove zone ( $Q_k = -4$ ) i  $\theta = 0,011$  za centar Briluen-ove zone ( $Q_k = 4$ ). Na osnovu ovoga i formule (IV.4.41) dobijamo da su položaji maksimalne verovatnoće za  $z_+ \approx 20a$  i  $z_- \approx 0$ , što znači da su u ovom slučaju eksitoni koncentrisani na površinama budući da je debljina pločice  $20a$ .

U posmatranom slučaju eksitonske energije iznose:

$$E_0(4) = \Delta_v + 6D_v - 4,986|X| ; \quad E_1(4) = \Delta_v + 6D_v - 4,966|X|$$

$$E_1(4) - E_0(4) = 0,02|X|$$

$$E_0(-4) = \Delta_v + 6D_v + 3,011|X| ; \quad E_1(-4) = \Delta_v + 6D_v + 3,023|X|$$

$$E_1(-4) - E_0(-4) = 0,018|X|$$

(IV.4.42)

Ovde se prirodno postavlja pitanje kojim se mehanizmom može izazvati ovaj veoma interesantan efekat prebacivanja zone pobudjenja iz centra filma na njegove graniče. Do ovog efekta ne može doći spontano s obzirom da su funkcije  $|\psi(k_x, k_y, n)\rangle$  ortogonalne:

$$\langle \Psi(k'_x, k'_y, n') | \Psi(k_x, k_y, n) \rangle = \delta_{k_x, k'_x} \delta_{k_y, k'_y} \delta_{n, n'} \quad (IV.4.43)$$

Takodje je jasno da prelaz iz stanja  $n = 0$  u stanje  $n = 1$ , i uopšte izmedju dva stanja sa različitim  $n$ , ne može da izazove nikakva interakcija, koja je linearna po Pauli-operatorima  $P^+$  i  $P$ . Takva je na primer interakcija tipa spoljašnje električno polje  $X$  dipolni moment kristala.

Poznato je da je operator eksiton-fonon interakcije kvadratan po eksitonskim operatorima  $P^+$  i  $P$ , tj. proporcionalan  $P^+P$ , a to znači da eksiton-fonon interakcija može da dovede do prelaza izmedju eksitonskih stanja sa različitim  $n$ . Da bismo ispitali na koji način i pod kojim uslovima eksiton-fonon interakcija izaziva prelaz izmedju eksitonskih stanja sa različitim  $n$  moramo definisati hamiltonijan eksiton-fonon interakcije u posmatranom tankom filmu.

Pošto je, kako je napred rečeno  $D \gg X, Y$ , efektivni hamiltonijan "zamrznutog" sistema uzećemo aproksimativno kao:

$$H_{eff} = \sum_{fg} D_{fg} P_f^+ P_g \quad (IV.4.44)$$

Usled oscilovanja molekula  $\vec{f} \rightarrow \vec{f} + \vec{U}_{\vec{f}}$ ;  $\vec{g} \rightarrow \vec{g} + \vec{U}_{\vec{g}}$ , tako da se u aproksimaciji linearnoj po pomacima  $\vec{U}$  može pisati:

$$D_{fg} \rightarrow D_{f-g} + \vec{U}_f - \vec{U}_g \approx D_{fg} + (\vec{U}_f - \vec{U}_g) \nabla_{fg} D_{fg} \quad (IV.4.45)$$

Na osnovu ovoga hamiltonijan eksiton-fonon interakcije ima oblik:

$$H_{int}^{eff} = \sum_{\vec{r}_g} (\vec{U}_{\vec{r}} - \vec{U}_{\vec{g}}) \nabla_{\vec{r}_g} D_{\vec{r}_g} P_i^+ P_g^- \quad (IV.4.46)$$

Ako se ograničimo aproksimacijom najblžih suseda i, u skladu sa analizama na početku ovoga paragrafa, uzmememo da se  $D$  ponaša po zakonu

$$\begin{aligned} D_{fx, fy, fz; fx \pm a, fy, fz} &= D_{fx, fy, fz; fx, fy \pm a, fz} \approx \\ &\approx D_{fx, fy, fz; fx, fy, fz \pm a} = \frac{\chi_{(d)}}{a^p} \end{aligned} \quad (IV.4.47)$$

gde je za dipol-dipolnu interakciju  $p = 3$ , dok je za više multipolne interakcije  $P > 3$ , onda se hamiltonijan interakcije (IV.4.46) svodi na oblik:

$$\begin{aligned} H_{int}^{eff} = \frac{P}{a} \sum_{fx, fy, fz; d} &D(f_z) (U_{fx+a, fy, fz}^d - U_{fx-a, fy, fz}^d + \\ &+ U_{fx, fy+a, fz}^d - U_{fx, fy-a, fz}^d + U_{fx, fy, fz+a}^d - \\ &- U_{fx, fy, fz-a}^d) P_{fx, fy, fz}^+ P_{fx, fy, fz}^- \end{aligned} \quad (IV.4.48)$$

$$d = X, Y, Z$$

S obzirom da se radi o strukturi sa narušenom simetrijom, za fononske pomeraje  $U^\alpha$  se ne mogu koristiti izrazi koji važe za idealnu strukturu. Zbog toga je neophodno da se nadju izrazi za pomeraje  $U^\alpha$  u posmatranom filmu. Da bismo ovo postigli startovaćemo od oscilatornog hamiltonijana za strukturu sa narušenom simetrijom, koji ima oblik:

$$H_P = \sum_{\alpha \in \beta} -\frac{(p_\alpha^\beta)^2}{2M_\alpha} + \sum_{\alpha \neq \beta} -\frac{C_{\alpha\beta}^{\beta\beta}}{4} (U_{\alpha}^{\beta} - U_{\alpha-\beta}^{\beta})^2$$

$$\beta \equiv X, Y, Z \quad (\text{IV.4.49})$$

U gornjoj formuli je  $p_n^\beta = M_n \dot{U}_n^\beta$ ,  $M_n$  je masa molekula,  $C_{\alpha\beta}^{\beta\beta}$  su Hukove konstante istezanja (torsione konstante  $C_n^{\alpha\beta}$ ;  $\alpha \neq \beta$ , su zanemarene) i vektor  $\vec{\lambda}$  spaja najbliže susede u prostoj kubnoj rešetci.

Za dati hamiltonijan potražićemo jednačine kretanja:

$$\dot{P}_{fx, fy, fz}^\alpha = -\frac{1}{i\hbar} [P_{fx, fy, fz}^\alpha, H_P]$$

$$\dot{U}_{fx, fy, fz}^\alpha = -\frac{1}{i\hbar} [U_{fx, fy, fz}^\alpha, H_P] \quad (\text{IV.4.50})$$

i u njima pretpostaviti da su mase i Hukove konstante zavisne od indeksa  $f_z$  koji određuje dubinu filma. Znači:

$$M_{fx, fy, fz} = M_{fz} \quad ; \quad C_{fx, fy, fz}^{\alpha\alpha} = C_{fz}^{\alpha\alpha} \quad (\text{IV.4.51})$$

Kombinovanjem jednačina kretanja (IV.4.50) uz korišćenje formula (IV.4.51) i standardne veze  $\ddot{U}_{fx, fy, fz}^\alpha = -\omega^2 U_{fx, fy, fz}^\alpha$  dolazimo do sistema jednačina:

$$\begin{aligned}
 -\omega^2 U_{fx,fy,fz}^d = & \frac{C_{fx}^{dd}}{M_{fx}} [U_{fx+a,fy,fz}^d + U_{fx-a,fy,fz}^d - 2U_{fx,fy,fz}^d + \\
 & + U_{fx,fy+a,fz}^d + U_{fx,fy-a,fz}^d - 2U_{fx,fy,fz}^d] + \\
 & + \frac{C_{fx}^{dd}}{2M_{fx}} (U_{fx,fy,fz+a}^d + U_{fx,fy,fz-a}^d - 2U_{fx,fy,fz}^d) + \\
 & + \frac{C_{fx+a}^{dd}}{2M_{fx}} (U_{fx,fy,fz+a}^d - U_{fx,fy,fz-a}^d) + \frac{C_{fx-a}^{dd}}{2M_{fx}} (U_{fx,fy,fz-a}^d - U_{fx,fy,fz}^d), \\
 \text{Sistemi jednačina za } f_z = 0 \text{ i } f_z = N_z \text{ mogu} \\
 \text{se dobiti iz (IV.4.52) ako se uzme } C_{-a}^{\alpha\alpha} = C_{N_z+a}^{\alpha\alpha} = 0 \text{ i} \\
 U_{fx,fy,-a} = U_{fx,fy,N_z+a} = 0.
 \end{aligned} \tag{IV.4.52}$$

Pošto u X i Y pravcu nema narušenja simetrije i pomeraji moraju biti realni, rešenje sistema (IV.4.52) potražićemo u obliku:

$$\begin{aligned}
 U_{fx,fy,fz}^d = & b \Phi_{fx}^d e^{ia(k_x f_x + k_y f_y) - i\omega t} + \\
 & + b^+ \Phi_{fx}^d e^{-ia(k_x f_x + k_y f_y) + i\omega t}
 \end{aligned} \tag{IV.4.53}$$

gde su  $b^+$  i  $b$  operatori kreacije i anihilacije fonona.

Nakon zamene (IV.4.53) u (IV.4.52) i aproksimacije,  $\sin^2 \frac{ak_x}{2} + \sin^2 \frac{ak_y}{2} \approx \frac{1}{4} a^2 k^2$  ( $k^2 = k_x^2 + k_y^2$ ), sistem jednačina se svodi na:

$$\begin{aligned}
 \left( -\frac{C_{fx}^{dd}}{M_{fx}} a^2 k^2 - \omega^2 \right) \Phi_{fx}^d = & -\frac{C_{fx}^{dd}}{2M_{fx}} (\Phi_{fx+a}^d + \Phi_{fx-a}^d - 2\Phi_{fx}^d) + \\
 & + \frac{C_{fx+a}^{dd}}{2M_{fx}} (\Phi_{fx+a}^d - \Phi_{fx}^d) + \frac{C_{fx-a}^{dd}}{2M_{fx}} (\Phi_{fx-a}^d - \Phi_{fx}^d)
 \end{aligned} \tag{IV.4.54}$$

U jednačini (IV.4.54) preći ćemo na kontinuum, tj.:

$$\Phi_{\pm z}^{\alpha} \rightarrow \Phi(z); \quad \Phi_{\pm a}^{\alpha} \approx \Phi(z) \pm a \frac{d\Phi}{dz} + \frac{1}{2} a^2 \frac{d^2\Phi}{dz^2} \quad (\text{IV.4.55})$$

Da bi se realizovao prelaz (IV.4.55) neophodno je da se zadaju zakoni promene Hukove konstante i mase. Očigledno je da se Hukove konstante mogu menjati usled promene pritiska na granicama, a promena mase može nastati ako spaterovanjem na granice nanosimo molekule koji su drugog tipa u odnosu na molekule matrice (filma). U izrazu (IV.4.51) se izvrše prelazi  $M_{fz} \rightarrow M(z)$  i  $C_{fz}^{\alpha\alpha} \rightarrow C(z)^{\alpha\alpha}$ .

Funkcije  $M(z)$  i  $C(z)^{\alpha\alpha}$  možemo razviti u red u okolini tačke  $z = \frac{L}{2}$  i zadržati se na članovima kvadratnim po rastojanju  $z - \frac{L}{2}$ . Zbog pretpostavljenih simetričnih uslova na granicama prirodno je pretpostaviti da ove funkcije imaju ekstremum na sredini filma tj. da je:

$$\frac{dM}{dz} \Big|_{z=\frac{L}{2}} = \frac{dC^{\alpha\alpha}}{dz} \Big|_{z=\frac{L}{2}} = 0 \quad (\text{IV.4.56})$$

pa se u skladu sa ovim može pisati:

$$M(z) = M + \frac{1}{2} Q_M (z - \frac{L}{2})^2$$

$$C(z)^{\alpha\alpha} = C^{\alpha\alpha} + \frac{1}{2} Q_C^{\alpha\alpha} (z - \frac{L}{2})$$

$$M = M(\frac{L}{2}) \quad ; \quad C^{\alpha\alpha} = C^{\alpha\alpha}(\frac{L}{2})$$

$$Q_M = \frac{d^2M}{dz^2} \Big|_{z=L/2} \quad ; \quad Q_C^{\alpha\alpha} = \frac{d^2C^{\alpha\alpha}}{dz^2} \Big|_{z=L/2} \quad (\text{IV.4.57})$$

Velčine  $M$  i  $C^{\alpha\alpha}$  odgovaraju idealnoj strukturi.

Ukoliko se u (IV.4.54) izvrši ukazani prelaz na kontinuum i iskoriste sledeće aproksimacije:

$$\frac{M(z)}{C^{dd}(z)} = \frac{M}{C^{dd}} - \frac{M}{2C^{dd}} \left( \frac{Q_c^{dd}}{C^{dd}} - \frac{Q_M}{M} \right) \left( z - \frac{L}{2} \right)^2 + O\left[\left(z - \frac{L}{2}\right)^3\right]$$

$$\frac{1}{C^{dd}(z)} \cdot \frac{dC^{dd}}{dz} = - \frac{Q_c^{dd}}{C^{dd}} \left( z - \frac{L}{2} \right) + O\left[\left(z - \frac{L}{2}\right)^3\right] \quad (\text{IV.4.58})$$

dolazi se do sledeće diferencijalne jednačine:

$$\begin{aligned} \frac{d^2\Psi^\alpha}{dz^2} + \left\{ \frac{M\omega^2}{\alpha^2 C^{dd}} - \frac{Q_c^{dd}}{2C^{dd}} - K^2 - \left[ \frac{M\omega^2}{2\alpha^2 C^{\alpha\alpha}} \left( \frac{Q_c^{dd}}{C^{dd}} - \frac{Q_M}{M} \right) + \right. \right. \\ \left. \left. + \left( \frac{Q_c^{dd}}{2C^{dd}} \right)^2 \right] \left( z - \frac{L}{2} \right)^2 \right\} \Psi^\alpha = 0 \end{aligned}$$

$$\Phi(z-L/2) = e^{-\frac{Q_c^{dd}}{4C^{dd}}(z-L/2)^2} \Psi^\alpha(z-L/2) \quad (\text{IV.4.59})$$

Posle smene argumenta:

$$\eta = Q\omega(z-L/2) ; z \in (0, L) ; z \in \left(\frac{L}{2}Q\omega ; \frac{L}{2}Q\omega\right)$$

$$Q\omega = \left[ \frac{M\omega^2}{2\alpha^2 C^{dd}} \left( \frac{Q_c^{dd}}{C^{dd}} - \frac{Q_M}{M} \right) + \left( \frac{Q_c^{dd}}{2C^{dd}} \right)^2 \right]^{1/4}$$

$$\frac{M\omega^2}{2\alpha^2 C^{dd}} \left( \frac{Q_c^{dd}}{C^{dd}} - \frac{Q_M}{M} \right) + \left( \frac{Q_c^{dd}}{2C^{dd}} \right)^2 > 0 \quad (\text{IV.4.60})$$

jednačina (IV.4.59) svodi se na Ermit-Veberovu jednačinu:

$$\frac{d^2\psi^\alpha}{d\eta^2} + \left[ -\frac{M\omega^2}{a^2 C^{\alpha\alpha}} - \frac{Q_c^{\alpha\alpha}}{2C^{\alpha\alpha}\omega^2} - K^2 - \eta^2 \right] \psi^\alpha = 0 \quad (\text{IV.4.61})$$

Da bi pomeraji  $U^\alpha$  bili konačni za proizvoljnu debljinu filma L (uslov hemijske stabilnosti sistema) mora biti ispunjen uslov:

$$\omega \equiv \omega_{\nu(\kappa)}^\alpha = a \sqrt{-\frac{Q_c^{\alpha\alpha}}{M}} \left[ (2\nu+1) \frac{\Omega_{(\kappa,\nu)}^2}{a^2} + \frac{Q_c^{\alpha\alpha}}{2C^{\alpha\alpha}} + K^2 \right]^{1/2}$$

$$\Omega_{(\kappa,\nu)} = a \omega \quad ; \quad \nu = 0, 1, 2, \dots; \quad \alpha = X, Y, Z \quad (\text{IV.4.62})$$

Ako je uslov (IV.4.62) ispunjen onda je rešenje jednačine (IV.4.61) dato sa  $\psi_\nu^\alpha(\eta) = e^{-1/2\eta^2} H_\nu(\eta)$ , a to znači da se za tražene funkcije  $\phi$ , na osnovu (IV.4.59) dobija:

$$\Phi_\nu^\alpha(\eta) = e^{-\left(\frac{1}{2} + \frac{Q_c^{\alpha\alpha}}{4C^{\alpha\alpha}\omega^2}\right)\eta^2} H_\nu(\eta)$$

$$H_\nu(\eta) = (-1)^\nu e^{\eta^2} \frac{d^\nu}{d\eta^\nu} (e^{-\eta^2}) \quad ; \quad \eta = \omega_L(z - L/2) \quad (\text{IV.4.63})$$

Fononske frekvencije se dobijaju kombinovanjem uslova (IV.4.62) i graničnih jednačina koje slede iz (IV.4.52). U graničnim jednačinama pak, treba koristiti formula (IV.4.63). Zbog simetričnih graničnih uslova, granične jednačine za  $f_z = 0$  i  $f_z = N_z$  su identične. Ukoliko se iskoristi aproksimacija  $\frac{L}{2} - a \approx \frac{L}{2}$ , koja se može smatrati dobrom za filmove od dvadeset slojeva i više, pomenuta jedinstvena granična jednačina ima oblik:

$$\begin{aligned}
 e^{\frac{R_L}{2} \Omega^2(k, v)} &= e^{-\frac{Q_c^{dd} \alpha^2 R_L}{4 C^{dd}}} \left\{ \frac{3}{2} - \left[ 1 - \frac{L^2}{8} \left( \frac{Q_c^{dd}}{C^{dd}} - \frac{Q_M}{M} \right) \right] \times \right. \\
 &\quad \times \frac{Q_c^{dd} \alpha^2}{2 C^{dd}} + \frac{L^2}{8} \left( \frac{Q_c^{dd}}{C^{dd}} - \frac{Q_M}{M} \right) \Omega^2 k^2 - (2v+1) \left[ 1 - \right. \\
 &\quad \left. \left. - \frac{L^2}{8} \left( \frac{Q_c^{dd}}{C^{dd}} - \frac{Q_M}{M} \right) \right] \Omega^2(k, v) \right\} \\
 R_L &= \frac{L}{a} ; \quad \Omega(k, v) = \alpha \omega
 \end{aligned} \tag{IV.4.64}$$

Za dati skup parametara koji figurišu u gornjoj jednačini, ona se numerički rešava po nepoznatoj  $\Omega(k, v)$ . Nadjena vrednost za  $\Omega$  se zatim uvrsti u izraz (IV.4.62). Na taj način dobijaju se tražene frekvencije fonona  $\omega_v^\alpha(k)$ .

Na osnovu izraza (IV.4.62) za fononske frekvencije se može izvesti veoma važan zaključak: ukoliko je  $Q_c^{\alpha\alpha} > 0$ , sve tri fononske frekvencije u filmu su optičkog tipa, tj. ne teže nuli kada k teži nuli. Kao što je poznato, u idealnoj strukturi uvek moraju da postoje tri akustičke fononske grane sa osobinom  $\lim_{k \rightarrow 0} \omega^2(k) = 0$ . Ovo znači da deformacija strukture ima za posledicu eliminaciju akustičkih fononskih grana. Ovakav efekat u filmovima od provodnog materijala (metala) mogao bi imati značajnu primenu u sintezi visokotemperaturnih superprovodnika. Generalno, primenu pomenutog efekta treba tražiti u problemima akustičke izolacije sistema.

Na osnovu (IV.4.53) i izvršenih analiza,  $\alpha$ -komponentu pomeraja možemo predstaviti kao linearu

kombinaciju veličina (IV.4.53) po svim vrednostima parametara  $K_x$ ,  $K_y$  i  $v$ , tj.:

$$U_{fx, fy, \eta}^d = \sum_{K_x K_y v} G_{K_x, K_y, v}^d (b_{K_x, K_y, v} + b_{-K_x, -K_y, v}) + \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega t} (f_x K_x + f_y K_y) - i t \omega \delta(\omega) \quad (\text{IV.4.65})$$

gde su  $G_{K_x, K_y, v}^d$  koeficijenti razvoja čiji se konkretni oblik određuje iz zahteva da hamiltonijan fononskog sistema ima standardnu formulu tipa  $(b^\dagger b + \frac{1}{2}) \hbar \omega$

Pošto su izrazi za fononske pomeraje u filmu nadjeni, može se izvesti konačna forma hamiltonijana eksiton-fonon interakcije (IV.4.48).

U formuli (IV.4.48), s obzirom da se radi o kontinualnoj aproksimaciji, treba izvršiti sledeće prelaze:

$$P_{fx, fy, fz} \rightarrow P_{fx, fy, \xi} ; \quad P_{fx, fy, fz}^+ \rightarrow P_{fx, fy, \xi}^+$$

$$\xi = \frac{Q_E^{1/2}}{a} (\varepsilon - \varepsilon_0)$$

$$D(\varepsilon_z) \rightarrow D(\xi) = D_\varepsilon + 4(D_s - D_\varepsilon) P_L^{-2} Q_E^{-1} \xi^2$$

$$\sum_{fz=0}^{N_z} \rightarrow \frac{1}{a} \int_0^L dz \approx \frac{1}{a} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dz}{d\xi} d\xi = Q_E^{-1/2} \int_{-\infty}^{\infty} d\xi$$

$$U_{fx, fy, fz+a}^d - U_{fx, fy, fz-a}^d \rightarrow 2a \frac{\partial}{\partial z} U_{fx, fy, \xi}^d - 2a \left[ U_{fx, fy, \frac{a \xi}{Q_E^{1/2}}} \right] \quad (\text{IV.4.66})$$

gde znak - prim u poslednjem stavu označava diferenciranje po argumentu  $\frac{a \xi}{Q_E^{1/2}}$ .

Na osnovu (IV.4.66) i (IV.4.65), hamiltonijan interakcije (IV.4.48) svodi se na oblik:

$$\begin{aligned}
 H_{int}^{eff} = & -\frac{2P}{aQ_E^{1/2}} \sum_{f_x, f_y, \alpha} \int_{-\infty}^{\infty} d\xi g_{k_x, k_y, \alpha} D(\xi) \left\{ \Phi_{\nu}^d \left( \frac{aq_w}{Q_E^{1/2}} \xi \right) \times \right. \\
 & \times (\cos \alpha k_x + \cos \alpha k_y) + \alpha q_w \left[ \Phi_{\nu}^d \left( \frac{aq_w}{Q_E^{1/2}} \xi \right) \right]' \right\} \times \\
 & \times P_{f_x, f_y, \xi}^+ P_{f_x, f_y, \xi}^- (b_{k_x, k_y, \alpha} + b_{-k_x, -k_y, \alpha}^+) e^{i\alpha(f_x k_x + f_y k_y) - it\omega_{\nu}^d(k)} \\
 & \left. (IV.4.67) \right.
 \end{aligned}$$

Očigledno je da interakcioni hamiltonijan (IV.4.67) može da izazove prelaz eksitonskog sistema između dva stanja  $|\psi(k_x, k_y, n)\rangle$  sa različitim  $n$ .

Napred je istaknuto da prelaz iz eksitonskog stanja  $n = 0$  u stanje  $n = 1$  znači "prebacivanje" zone pobudjenja iz centra filma na njegove granice. Iz izraza za hamiltonijan interakcije se lako zaključuje da do ovakvog eksitonskog prelaza može da dodje usled spontane emisije fono-a i to sa najnižom energijom  $\omega_0^a(k)$ . Do, prelaza dolazi usled dejstva člana  $[\phi_0^a \left( \frac{aq_w}{Q_E^{1/2}} \xi \right)]'$  koji je linearan po  $\xi$ . Verovatnoća prelaza proporcionalna je integralu po  $\xi$  proizvoda eksitonskih stanja za  $n = 0$  i  $n = 1$ , koji je, sa svoje strane, neparna funkcija argumenta  $\xi$  i funkcije  $[\phi_0^a \left( \frac{aq_w}{Q_E^{1/2}} \xi \right)]'$  linearne po  $\xi$ , tako da je integral različit od nule pa je samim tim prelaz moguć. Razume se, pri prelazu moraju da važe zakoni održanja kvaziimpulsa (u ovom slučaju dvodimenzio-

nalnog) i zakoni održanja energije  $\hbar\omega_0^\alpha(k) = E_1(k) - E_0(k) \approx 0,02|X|$ .

Neposrednu primenu dobijeni rezultati bi mogli imati u problemima akustičke izolacije sistema, a takođe i u konstrukciji takvih filmova u kojima bi energija optičkih pobudjenja bila koncentrisana na graničnim površinama. Naravno da bi prilikom sinteze ovakvih filmova trebalo voditi računa o tome da parametri sistema, u skladu sa teorijom, budu takvi da su u stanju da dovedu do željenog efekta.

Na kraju treba istaći da su opisana eksiton-ska i fononska stanja u filmu moguća samo onda ako su ispunjeni uslovi (IV.4.22) i (IV.4.60). Ukoliko ovi uslovi nisu ispunjeni verovatnoće nalaženja eksitona i forma fononskih pomeraja gube gausijanski karakter i prelaze u kvaziperiodične funkcije koordinate z.

## ZAKLJUČAK

Analize izvršene u ovom radu tematski se mogu podeliti na dve grupe.

Prva grupa problema koja je obradjena u glavama II i III vezana je za nelinearne optičke efekte u idealnim strukturama. Cilj ovih istraživanja bio je da se proceni uloga kinematičke interakcije eksitona u različitim optičkim pojavama. Osnovni rezultati do kojih se došlo mogli bi se rezimirati na sledeći način:

a) Usled procesa fuzije i raspada eksitona u molekularnim kristalima se pojavljuju dopunska, kinematička pobudjenja, nazvana ovako zato što nastaju kao rezultat kinematičke interakcije. Kinematička pobudjenja imaju konačno vreme života i zbog toga imaju značajnu ulogu u procesima apsorpcije svetlosti.

b) Analiza apsorpcionih procesa pokazala je da se prisustvom kinematičkih ekscitacija može objasniti oštar apsorpcioni pik u oblasti frekvenci nižih od rezonante. Kao što je već naglašeno, prisustvo ovoga pika nije se moglo objasniti mehanizmom eksiton-fonon interakcije premda su u tom smislu vršeni mnogi pokušaji. Takođe je pokazano da se u oblasti frekvencija koje su bliske rezonantnoj teorijski može veoma dobro reproduktovati Urbach-ova empirijska formula za koeficijent apsorpcije svetlosti. Ponašanje Urbach-ovog

koeficijenta u pomenutoj oblasti frekvencija diktirano je isključivo kinematičkom interakcijom optičkih pobudjenja. Pokušaj da se anomalno veliko širenje eksitonskih linija pripiše kinematičkim ekscitacijama dao je negativan rezultat, što ukazuje na činjenicu da objašnjenje ovoga efekta treba očigledno tražiti u nekom drugom mehanizmu prisutnom u molekularnim kristalima.

c) U radu su ispitani uticaji neodržanja eksitona na dielektične osobine molekularnih kristala. Pokazano je da u odredjivanju ovih karakteristika značajniju ulogu igraju anomalna sparivanja (srednje vrednosti  $\langle P^+P^+ \rangle$  i  $\langle PP \rangle$ ) nego normalna sparivanja (srednje vrednosti tipa  $\langle P^+P \rangle$ ). Pored ovoga procenjena je uloga osnovnih mehanizama koji mogu da utiču na apsorpcione procese, a to su eksiton-fonon i eksiton-exciton interakcija. Dobijeni rezultati ukazuju da obe pomenute interakcije ravnopravno određuju apsorpcione karakteristike sistema, pri čemu je eksiton-fonon interakcija dominantna u oblasti frekvencija koje su bliske rezonantnoj, dok objašnjenje efekata daleko od rezonancije treba tražiti u procesima eksiton-exciton interakcije.

Niz eksperimentalno otkrivenih pojava [63-71] vezanih za interakciju optičkih pobudjenja, kao što su stvaranje viših harmonika, multifotonska apsorpcija, kombinaciono rasejanje, nelinearna polarizacija, itd. dobio je do danas svoja teorijaka objašnjenja. Što se tiče refrakcionih i apsorpcionih fenomena teorija se razvijala samo u okviru jedne ideje, a to je da je za pomenute fenomene odgovorna interakcija optičkih pobudjenja sa mehaničkim oscilacijama

kondenzovane sredine. Doprinosi čistih nelinearnih optičkih efekata se uglavnom zanemaruju mada je intuitivno jasno da oni moraju biti osetni.

U uvodnom delu ovoga rada napomenuto je da je jedan od glavnih ciljeva - rehabilitacija čistih nelinearnih efekata u procesima apsorpcije svetlosti. Zahvaljujući usavršenoj tehnici dekuplovanja GF-a (vidi matematički dodatak) ovaj cilj je postignut, o čemu svedoče teorijska objašnjenja nekih eksperimenata koja su do danas nedostajala.

Druga grupa problema analizirana u ovom radu odnosila se na uzajamnu povezanost koncentracije pobudjenja i deformacije strukture. Ove analize obuhvatile su polubeskonačnu strukturu i tanak film sa simetričnim graničnim uslovima. Pokazano je da izmedju deformacije struktura i koncentracije pobudjenja postoji tesna veza koja reguliše, kako nastanak određenog tipa pobudjenja, tako i raspored nastalih pobudjenja u kristalu. Na osnovu dobijenih rezultata analizirane su mogućnosti njihove praktične aplikacije. Model kontinualne deformacije u filmu, koji je u okviru ovih analiza predložen, pruža široke mogućnosti za konstrukciju struktura koje bi mogle imati korisnu primenu u praksi. Pogodnim izborom parametara deformacije, ili opštije, graničnih uslova, mogle bi se konstruisati strukture pobudjene samo u površinskim zonama i to sa vrlo visokim koncentracijama optičkih pobudjenja.

Na kraju treba napomenuti da su, tokom celog rada, kao predstavnik optičkih pobudjenja korišćeni eksitonii.

Poznato je (vidi paragraf I.1., gl. I) da eksiton predstavlja idealizovanu sliku optičkih pobudjenja i da je realističniji oblik ovih pobudjenja polariton ili eksiton sa uračunavanjem efekata retardacije elektromagnetskog polja. Šeme analize koje su ovde izložene za eksitone mogu se direktno preneti na polaritone i u tom smislu matematičkih poteškoća nema. Matematičke teškoće (umesto GF-a morale bi da se koriste kolone čiji su elementi GF-e, a umesto skolarnih interakcija kvadratne matrice formirane od relevantnih interakcija) nastale bi pri pokušaju da se na osnovu dobijenih opštih formula proceni ponašanje relevantnih optičkih karakteristika sistema. Osim toga, pri razlaganju polja po fononskim operatorima faktor proporcionalnosti sadrži u imenocu fononsku energiju  $\hbar\omega$ , pa nije jasno kako bi se u ovom slučaju koristila aproksimacija u kojoj se zanemaruje prostorna disperzija ( $k \rightarrow 0$ ) [73-75]. Zbog navedenih razloga ovde nisu analizirane optičke osobine kristala u polaritonskoj slici. To, međutim, ne znači da ovakve analize ne bi mogle da se izvedu i upotrebom računara njihovi rezultati dovedu na oblik u kome se mogu sravniti sa eksperimentom. Ovako, veoma zametan i skup, račun bio bi opravdan u slučaju kada se želi kvantitativno poređenje eksperimenta i teorije za neku konkretnu molekularnu strukturu i možemo reći da će ovi konkretni problemi biti jedan od ciljeva budućih istraživanja.

## 1. MATEMATIČKI DODATAK

### PRIMENA WICK-OVE TEOREME PRI DEKUPOVANJU GREEN-OVIH FUNKCIJA

Iz teorije dvovremenskih temperaturnih GF-a poznato je da se za traženu Green-ovu funkciju dobija beskonačan lanac povezanih jednačina u kome figurišu više GF-e. Ove poslednje uvek sadrže produkte većeg broja operatora ne-ga polazna GF-a i zbog toga se u primeni metoda GF-a pribegava proceduri dekupovanja viših GF-a. Kao što je poznato, dekuplovati višu GF-u znači izraziti je preko tražene GF-e u nekoj dovoljno opravданoj aproksimaciji. Opisanim postupkom omogućeno nam je da beskonačan lanac jednačina prekinemo i tako dobijemo konačan sistem jednačina iz koga se može naći tražena GF-a.

Ovde će biti izložena metoda dekupovanja GF-a (matematički strožija od tjablikovskog dekupovanja i metoda haotičnih faza) [40] koja se bazira na primeni Wick-ove teoreme za Boze operatore. Ova metoda je osobito pogodna u slučajevima kada je koncentracija elementarnih pobudjenja u sistemu mala ( $\sim 10^{-3}$ ), što znači da je primenjiva upravo u teoriji eksitona.

#### 1.1. KOMUTATORSKE I PSEUDOKAUZALNE BOZONSKE GREEN-OVE FUNKCIJE

Eksitonski hamiltonijan u harmonijskoj aproksimaciji za dvonivosku šemu molekularnih pobudjenja ima oblik:

$$H_B = \Delta \sum_{\vec{u}} B_{\vec{u}}^+ B_{\vec{u}} + \sum_{\vec{u} \neq \vec{v}} X_{\vec{u}\vec{v}} B_{\vec{u}}^+ B_{\vec{v}} +$$

$$+ \frac{1}{2} \sum_{\vec{u} \neq \vec{v}} Y_{\vec{u}\vec{v}} (B_{\vec{u}}^+ B_{\vec{v}} + B_{\vec{v}} B_{\vec{u}})$$

$$X_{\vec{u}\vec{v}} = X_{\vec{v}\vec{u}} = X_{\vec{u}\vec{u}}^* ; \quad X_{\vec{u}\vec{u}} = 0$$

$$Y_{\vec{u}\vec{v}} = Y_{\vec{v}\vec{u}} = Y_{\vec{u}\vec{u}}^* ; \quad Y_{\vec{u}\vec{u}} = 0$$

(1.1.1)

U ovoj formuli  $B^+$  i  $B$  su Boze operatori za koje važi:

$$[B_{\vec{u}}, B_{\vec{v}}^+] = S_{\vec{u}\vec{v}} ; \quad [B_{\vec{u}}^+, B_{\vec{v}}^+] = [B_{\vec{u}}, B_{\vec{v}}] = 0 \quad (1.1.2)$$

Kao što je poznato, u izrazu (1.1.1)  $\Delta$ - je energija pobudjenja izolovanog molekula i reda je 5 eV, a  $X$  i  $Y$  su matrični elementi operatora dipol-dipolne interakcije pedeset do sto puta manji od veličine  $\Delta$ . Prisustvo člana proporcionalnog sa  $Y$  u hamiltonijanu  $H_B$  ukazuje da se broj eksitona u sistemu ne održava [76-78].

Komutatorske bozonske GF-e sistema definišu se relacijom:

$$G_{fg}(t) \equiv \langle B_f(t) | B_g^+(0) \rangle = \theta(t) \langle [B_f(t), B_g^+(0)] \rangle$$

$$\theta(t) = \begin{cases} 1 & ; t > 0 \\ 0 & ; t < 0 \end{cases} \quad (1.1.3)$$

Diferenciranjem relacije (1.1.3) po vremenu i korišćenjem jednačine kretanja  $\frac{dB_f^-(t)}{dt} = \frac{1}{i\hbar} [B_f^-(t), H_B]$  dobijamo jednacinu za određivanje funkcije  $G_{f,g}(t)$ :

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{dG_{f,g}(t)}{dt} &= i\hbar \delta(t) \delta_{fg} + \theta(t) \langle [B_f^-, H_B]_t | B_g^+(0) \rangle = \\ &= i\hbar \delta(t) \delta_{fg} + \langle [B_f^-, H_B]_t | B_g^+(0) \rangle \end{aligned} \quad (1.1.4)$$

Osim komutatorske GF-e  $G_{g,f}(t)$ , uvećemo pseudokauzalnu GF-u  $\tilde{g}_{fg}(t)$  koju ćemo definisati relacijom:

$$g_{fg}(t) \equiv \langle B_f^-(t) | B_g^+(0) \rangle^{(w)} = \theta(t) \langle B_f^-(t) B_g^+(0) \rangle \quad (1.1.5)$$

Jednačina koja definiše pseudokauzalnu GF-u  $g$  dobija se na isti način kao i ranije navedena i glasi:

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{dg_{fg}(t)}{dt} &= i\hbar \delta(t) \langle B_f^- B_g^+ \rangle + \theta(t) \langle [B_f^-, H_B]_t | B_g^+(0) \rangle = \\ &= i\hbar \delta(t) \langle B_f^- B_g^+ \rangle + \theta(t) \langle [B_f^-, H_B]_t | B_g^+(0) \rangle^{(w)} \end{aligned} \quad (1.1.6)$$

Naziv pseudokauzalna smo odabrali zbog toga što se kauzalne GF-e definišu relacijom:

$$\begin{aligned} \langle [B_f^-(t) | B_g^+(0)] \rangle^{(c)} &= \hat{T} \langle B_f^-(t) B_g^+(0) \rangle = \\ &= \begin{cases} \langle B_f^-(t) B_g^+(0) \rangle; t > 0 \\ \langle B_g^+(0) B_f^-(t) \rangle; t < 0 \end{cases} \end{aligned} \quad (1.1.7)$$

pa su im pseudokauzalne GF-e po definiciji (1.1.5) samo slične.

Važnije je, međutim, razjasniti zbog čega smo uveli pseudokauzalne GF-e, jer je poznato da se u svim fizičkim problemima (teorija linearog odziva, proračun susceptibilnosti, izračunavanje statističkih srednjih vrednosti itd.) pojavljuju isključivo komutatorske GF-e. Razlog za uvođenje pseudokauzalnih GF-a je isključivo formalno matematičke prirode, jer se iz same definicije vidi da se kod pseudokauzalnih funkcija direktno može primenjivati Wick-ova teorema. To se, naravno, ne odnosi na slučaj kada pseudokauzalna funkcija sadrži srednju vrednost para operatora, ali kao što je već rečeno, u jednačini za polaznu GF-u pojavljuju se više GF-e koje sadrže srednje vrednosti proizvoda više od dva operatora i tada je primena Wick-ove teoreme neophodna da bi se lanac jednačina prekinuo. Sama primena Wick-ove teoreme na komutatorske GF-e otežana je činjenicom da se srednja vrednost komutatora, razbijena po Wick-ovoј teoremi, često ne može složiti u proizvode polaznih funkcija. Cilj je da se nadju veze izmedju komutatorskih i pseudokauzalnih GF-a budući da su one neophodne za proračune izvršene u ovom radu. Šema proračuna bila bi sledeća: nadje se izraz za pseudokauzalnu GF-u, budući da se on može dobiti striktnom primenom Wick-ove teoreme, a zatim se pomoću nadjenih veza izračuna odgovarajuća komutatorska GF-a koja se pojavljuje u izrazima za tražene fizičke veličine.

Na osnovu (1.1.1) i (1.1.2) dobijamo:

$$[B_f^+, H_B] = \Delta B_f^+ + \sum_{\vec{m}} X_{f\vec{m}} B_{\vec{m}}^- + \sum_{\vec{m}} Y_{f\vec{m}} B_{\vec{m}}^+ \quad (1.1.8)$$

$$[B_f^+, H_B] = -\Delta B_f^+ - \sum_{\vec{m}} X_{f\vec{m}} B_{\vec{m}}^+ - \sum_{\vec{m}} Y_{f\vec{m}} B_{\vec{m}}^- \quad (1.1.9)$$

Ako, sada, (1.1.8) uvrstimo u (1.1.4) dobijamo sledeću jednačinu:

$$i\hbar \frac{dG_{fg}(t)}{dt} = i\hbar \delta_{fg} \delta(t) + \Delta G_{fg}(t) + \sum_{\vec{m}} X_{f\vec{m}} G_{\vec{m}g}(t) + \sum_{\vec{m}} Y_{f\vec{m}} L_{\vec{m}g}(t) \quad (1.1.10)$$

gde je komutatorska GF-a  $L_{fg}^{(0)}(t)$  data izrazom:

$$L_{fg}^{(0)}(t) \equiv \langle\langle B_f^+(t) | B_g^+(0) \rangle\rangle = \theta(t) \langle [B_f^+(t), B_g^+(0)] \rangle \quad (1.1.11)$$

i određuje se iz jednačine:

$$i\hbar \frac{dL_{fg}(t)}{dt} = \langle\langle [B_f^+, H_B]_t | B_g^+(0) \rangle\rangle \quad (1.1.12)$$

Zamenom (1.1.9) u (1.1.12) dobijamo jednačinu:

$$i\hbar \frac{dL_{fg}(t)}{dt} = -\Delta L_{fg}(t) - \sum_{\vec{m}} X_{f\vec{m}} L_{\vec{m}g}(t) - \sum_{\vec{m}} Y_{f\vec{m}} G_{\vec{m}g}(t) \quad (1.1.13)$$

U izrazima (1.1.10) i (1.1.13) izvršićemo Fourier transformacije tipa:

$$\Psi_{\vec{k}\vec{g}}(t) = \frac{1}{N} \sum_{\vec{i}-\vec{g}} e^{i\vec{k}(\vec{i}-\vec{g})} \Psi_{\vec{i}\vec{g}}(t)$$

$$\Psi_{\vec{i}\vec{g}}(t) = \sum_{\vec{i}-\vec{g}} e^{-i\vec{k}(\vec{i}-\vec{g})} \Psi_{\vec{k}\vec{g}}(t) \quad (1.1.14)$$

gde je  $\vec{k}$  talasni vektor, a  $N$  broj molekula u kristalu, posle čega one postaju:

$$\frac{dG_{\vec{k}}(t)}{dt} + i(\Omega_{\Delta} + \Omega_{x\vec{k}})G_{\vec{k}}(t) + i\Omega_{y\vec{k}}L_{\vec{k}}(t) = S(t)$$

$$\frac{dL_{\vec{k}}(t)}{dt} - i(\Omega_{\Delta} + \Omega_{x\vec{k}})L_{\vec{k}}(t) - i\Omega_{y\vec{k}}G_{\vec{k}}(t) = 0 \quad (1.1.15)$$

$$\Omega_{\Delta} = \frac{\Delta}{\hbar} \quad ; \quad \Omega_{x\vec{k}} = \frac{X_{\vec{k}}}{\hbar} \quad ; \quad \Omega_{y\vec{k}} = \frac{Y_{\vec{k}}}{\hbar}$$

(1.1.16)

Sistem parcijalnih diferencijalnih jednačina prvog reda (1.1.15) lako se rešava i rešenja su mu:

$$G_{\vec{k}}(t) = \langle\langle B_{\vec{v}}(t)|B_{\vec{v}}^+(0)\rangle\rangle = \Theta(t)(C_{\vec{k}}^+ e^{-it\omega_{\vec{k}}} + C_{\vec{k}}^- e^{it\omega_{\vec{k}}})$$

i:

$$L_{\vec{k}}(t) = \langle\langle B_{\vec{v}}^+(t)|B_{\vec{v}}(0)\rangle\rangle = -\Theta(t)D_{\vec{k}}(e^{-it\omega_{\vec{k}}} - e^{it\omega_{\vec{k}}}) \quad (1.1.18)$$

gde su uvedene oznake:

$$C_{\vec{k}}^{\pm} = \frac{1}{2} \left( 1 \pm \frac{\Omega_{\Delta} + \Omega_{x\vec{k}}}{\Omega_{y\vec{k}}} \right) \quad (1.1.19)$$

$$D_{\vec{k}} = -\frac{\Omega_{y\vec{k}}}{2\Omega_{\Delta}} \quad (1.1.20)$$

i

$$\Omega_{\vec{K}} = \sqrt{(\Omega_{\Delta} + \Omega_{x\vec{K}})^2 - \Omega_{y\vec{K}}^2} \quad (1.1.21)$$

Potražimo sada odgovarajuće pseudokauzalne GF-e. Ako (1.1.8) uvrstimo u (1.1.6) dobijamo:

$$i\hbar \frac{dg_{\vec{f}\vec{g}(t)}}{dt} = i\hbar \delta(t) \langle B_{\vec{f}}^+ B_{\vec{g}}^+ \rangle + \Delta g_{\vec{f}\vec{g}(t)} + \sum_{\vec{m}} X_{\vec{f}\vec{m}} g_{\vec{m}\vec{g}(t)} + \\ + \sum_{\vec{m}} Y_{\vec{f}\vec{m}} l_{\vec{m}\vec{g}(t)} \quad (1.1.22)$$

gde je pseudokauzalna GF-a  $\vec{z}_{\vec{f}\vec{g}}(t)$  data izrazom:

$$l_{\vec{f}\vec{g}}(t) \equiv \langle\langle B_{\vec{f}}^+(t) | B_{\vec{g}}^+(0) \rangle\rangle^{(\omega)} = \theta(t) \langle B_{\vec{f}}^+(t) | B_{\vec{g}}^+(0) \rangle \quad (1.1.23)$$

i određuje se iz jednačine:

$$i\hbar \frac{dl_{\vec{f}\vec{g}(t)}}{dt} = i\hbar \delta(t) \langle B_{\vec{f}}^+ B_{\vec{g}}^+ \rangle + \langle\langle [B_{\vec{f}}^+, H_B]_t | B_{\vec{g}}^+(0) \rangle\rangle^{(\omega)} \quad (1.1.24)$$

Treba naglasiti da anomalna srednja vrednost  $\langle B_{\vec{f}}^+ B_{\vec{g}}^+ \rangle$  nije ravna nuli zbog toga što se u sistemu ne održava broj elementarnih pobudjenja. Ovakve srednje vrednosti su jednake nuli samo tada kada u hamiltonijanu (1.1.1) nema člana proporcionalnog  $Y$ .

Zamenom izraza (1.1.9) i (1.1.24) dolazimo do jednačine:

$$i\hbar \frac{dl_{\vec{f}\vec{g}(t)}}{dt} = i\hbar \delta(t) \langle B_{\vec{f}}^+ B_{\vec{g}}^+ \rangle - \Delta l_{\vec{f}\vec{g}(t)} - \sum_{\vec{m}} X_{\vec{f}\vec{m}} l_{\vec{m}\vec{g}(t)} - \\ - \sum_{\vec{m}} Y_{\vec{f}\vec{m}} g_{\vec{m}\vec{g}(t)} \quad (1.1.25)$$

Posle Fourier-transformacija tipa (1.1.14) jednačine (1.1.22) i (1.1.25) se svode na:

$$\begin{aligned} \frac{dg_R(t)}{dt} + i(\Omega_L + \Omega_{xR})g_R(t) + i\Omega_{yR}l_R(t) &= \langle B_R B_R^+ \rangle S(t) \\ \frac{dl_R(t)}{dt} - i(\Omega_L + \Omega_{xR})l_R(t) - i\Omega_{yR}g_R(t) &= \langle B_R^+ B_{-R}^+ \rangle S(t) \end{aligned} \quad (1.1.26)$$

Rešenja ovog sistema jednačina su:

$$g_R(t) = \theta(t)(I_R^+ e^{-it\Omega_R^-} + I_R^- e^{it\Omega_R^+}) \quad (1.1.27)$$

$$l_R(t) = -\theta(t)(J_R^+ e^{-it\Omega_R^-} + J_R^- e^{it\Omega_R^+}) \quad (1.1.28)$$

gde je

$$I_R^\pm = \langle B_R B_R^\pm \rangle C_R^\pm \pm \langle B_R^+ B_{-R}^+ \rangle D_R \quad (1.1.29)$$

$$J_R^\pm = \pm \langle B_R B_R^\pm \rangle D_R \mp \langle B_R^+ B_{-R}^+ \rangle C_R^\mp \quad (1.1.30)$$

Da bismo našli veze izmedju komutatorskih i pseudokauzalnih GF-a neophodno je naći avansovane komutatorske GF-e:

$$\tilde{G}_{\vec{p}\vec{q}}(t) \equiv \langle\langle B_{\vec{p}}^+(t) | B_{\vec{q}}^-(0) \rangle\rangle = \theta(t) \langle [B_{\vec{p}}^+(t), B_{\vec{q}}^-(0)] \rangle \quad (1.1.31)$$

$$\tilde{L}_{\vec{p}\vec{q}}(t) \equiv \langle\langle B_{\vec{p}}^-(t) | B_{\vec{q}}^-(0) \rangle\rangle = \theta(t) \langle [B_{\vec{p}}^-(t), B_{\vec{q}}^-(0)] \rangle \quad (1.1.32)$$

a takodje i odgovarajuće avansovane pseudokauzalne GF-e:

$$\tilde{g}_{\vec{p}\vec{q}}(t) \equiv \langle\langle B_{\vec{p}}^+(t) | B_{\vec{q}}^-(0) \rangle\rangle^{(x)} = \theta(t) \langle B_{\vec{p}}^+(t) B_{\vec{q}}^-(0) \rangle \quad (1.1.33)$$

i

$$\tilde{l}_{fg}(t) = \langle\langle B_f(t) | B_g(0) \rangle\rangle^{(w)} = \theta(t) \langle B_f(t) B_g(0) \rangle \quad (1.1.34)$$

Ponavljajući istu proceduru kao i u slučaju retardovanih GF-a, G, L, g i ž dobijamo sledeće rezultate:

$$\tilde{G}_R(t) = -\theta(t) (C_R^- e^{-it\Omega_R} + C_R^+ e^{it\Omega_R}) \quad (1.1.35)$$

$$\tilde{L}_R(t) = -\theta(t) D_R (e^{-it\Omega_R} + e^{it\Omega_R}) \quad (1.1.36)$$

$$\tilde{g}_R(t) = \theta(t) (\tilde{I}_R^- e^{-it\Omega_R} + \tilde{I}_R^+ e^{it\Omega_R}) \quad (1.1.37)$$

$$\tilde{l}_R(t) = \theta(t) (\tilde{J}_R^- e^{-it\Omega_R} - \tilde{J}_R^+ e^{it\Omega_R}) \quad (1.1.38)$$

gde je:

$$\tilde{I}_R^\pm = C_R^\pm \langle B_R^+ B_R \rangle \pm D_R \langle B_{-R}^- B_R \rangle \quad (1.1.39)$$

i

$$\tilde{J}_R^\pm = D_R \langle B_R^+ B_R \rangle \mp C_R^\mp \langle B_{-R}^- B_R \rangle \quad (1.1.40)$$

Da bismo mogli da izračunamo srednje vrednosti  $\langle B_k^\pm B_{-k}^\pm \rangle$ ,  $\langle B_k^\rightarrow B_{-k}^\rightarrow \rangle$ ,  $\langle B_k^\rightarrow B_{-k}^\pm \rangle$  i  $\langle B_{-k}^\rightarrow B_k^\pm \rangle$ , potrebno je u formulama (1.1.17), (1.1.18), (1.1.27), (1.1.28) i (1.1.35-1.1.38) izvršiti Fourier-transformacije vreme - frekvencija tipa:

$$\Psi_{\vec{R}}(t) = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega e^{-i\omega t} \Psi_{\vec{R}}(\omega)$$

$$\Psi_{\vec{R}}(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\omega t} \Psi_{\vec{R}}(t) \quad (1.1.41)$$

posle čega, respektivno, dobijamo:

$$G_{\vec{R}}(\omega) = \frac{i}{2\pi} \left( \frac{C_{\vec{R}}^+}{\omega - \Omega_{\vec{R}}} + \frac{C_{\vec{R}}^-}{\omega + \Omega_{\vec{R}}} \right) \quad (1.1.42)$$

$$\tilde{G}_{\vec{R}}(\omega) = -\frac{i}{2\pi} \left( \frac{C_{\vec{R}}^-}{\omega - \Omega_{\vec{R}}} + \frac{C_{\vec{R}}^+}{\omega + \Omega_{\vec{R}}} \right) \quad (1.1.43)$$

$$L_{\vec{R}}(\omega) = \tilde{L}_{\vec{R}}(\omega) = -\frac{i}{2\pi} D_{\vec{R}} \left( \frac{1}{\omega - \Omega_{\vec{R}}} - \frac{1}{\omega + \Omega_{\vec{R}}} \right) = L_{\vec{R}}(-\omega) \quad (1.1.44)$$

$$g_{\vec{R}}(\omega) = \frac{i}{2\pi} \left( \frac{I_{\vec{R}}^+}{\omega - \Omega_{\vec{R}}} + \frac{I_{\vec{R}}^-}{\omega + \Omega_{\vec{R}}} \right) \quad (1.1.45)$$

$$\tilde{g}_{\vec{R}}(\omega) = \frac{i}{2\pi} \left( \frac{\tilde{I}_{\vec{R}}^-}{\omega - \Omega_{\vec{R}}} + \frac{\tilde{I}_{\vec{R}}^+}{\omega + \Omega_{\vec{R}}} \right) \quad (1.1.46)$$

$$f_{\vec{R}}(\omega) = -\frac{i}{2\pi} \left( \frac{Y_{\vec{R}}^+}{\omega - \Omega_{\vec{R}}} - \frac{Y_{\vec{R}}^-}{\omega + \Omega_{\vec{R}}} \right) \quad (1.1.47)$$

$$\tilde{f}_{\vec{R}}(\omega) = \frac{i}{2\pi} \left( \frac{\tilde{Y}_{\vec{R}}^-}{\omega - \Omega_{\vec{R}}} - \frac{\tilde{Y}_{\vec{R}}^+}{\omega + \Omega_{\vec{R}}} \right) \quad (1.1.48)$$

Koristeći teoremu o spektralnoj intenzivnosti za funkcije  $G_k^+(\omega)$ ,  $\tilde{G}_k^+(\omega)$ ,  $L_k^-(\omega)$  i  $\tilde{L}_k^-(\omega)$  nalazimo srednje vrednosti:

$$\langle B_k^+ B_k^- \rangle \equiv \bar{N}_k = -\frac{\Omega_\Delta + \Omega_{xk}}{2\Omega_k} \operatorname{ctgh} \frac{\hbar\Omega_k}{2\theta} - \frac{1}{2} \quad (1.1.49)$$

$$\langle B_k^- B_k^+ \rangle = 1 + \bar{N}_k = -\frac{\Omega_\Delta + \Omega_{xk}}{2\Omega_k} \operatorname{ctgh} \frac{\hbar\Omega_k}{2\theta} - \frac{1}{2} \quad (1.1.50)$$

$$\langle B_k^+ B_{-k}^+ \rangle = \langle B_{-k}^- B_k^- \rangle \equiv \bar{M}_k = -D_k \operatorname{ctgh} \frac{\hbar\Omega_k}{2\theta} \quad (1.1.51)$$

gde je  $\theta = K_B T$  - temperatura u energetskim jedinicama.

Iz formula (1.1.42-1.1.51) dobijaju se tražene veze izmedju komutatorskih i pseudokauzalnih Green-ovih funkcija i one glase:

$$g_k(\omega) = (1 + \bar{N}_k) G_k(\omega) - \bar{M}_k L_k(\omega)$$

$$\tilde{g}_k(\omega) = -\bar{N}_k \tilde{G}_k(\omega) + \bar{M}_k \tilde{L}_k(\omega)$$

$$f_k(\omega) = (1 + \bar{N}_k) \tilde{L}_k(\omega) - \bar{M}_k \tilde{G}_k(\omega)$$

$$\tilde{f}_k(\omega) = -\bar{N}_k L_k(\omega) + \bar{M}_k G_k(\omega)$$

(1.1.52)

Ukoliko se pak, u sistemu održava broj elementarnih pobudjenja, tj. hamiltonijan glasi:

$$H_{OB} = \Delta \sum_{\vec{n}} B_{\vec{n}}^+ B_{\vec{n}} + \sum_{\vec{n} \neq \vec{0}} X_{\vec{n} \neq \vec{0}} B_{\vec{n}}^+ B_{\vec{n}} \quad (1.1.53)$$

u računu se pojavljuju samo komutatorske GF-e  $G$  i  $\tilde{G}$  i pseudokauzalne GF-e  $\mathcal{Q}$  i  $\tilde{\mathcal{Q}}$ . Veze izmedju njih dobijaju se iz (1.1.52) ako uzmemo da je  $\tilde{M}_{\vec{k}} = L_{\vec{k}}(\omega) = \tilde{L}_{\vec{k}}(\omega) = 0$  i

$$\bar{N}_{\vec{k}} \longrightarrow \bar{M}_{\vec{k}} = -\frac{1}{e^{\frac{\hbar \omega_{\vec{k}}}{\theta}} - 1} \quad (1.1.54)$$

$$M_{\vec{k}} = \mathcal{Q}_D + \mathcal{Q}_{X\vec{k}} \quad (1.1.55)$$

U ovom slučaju je  $C_{\vec{k}}^+ = 1$  i  $C_{\vec{k}}^- = 0$  pa možemo pisati:

$$g_{\vec{k}}^{(0)}(\omega) = (1 + \bar{M}_{\vec{k}}) G_{\vec{k}}^{(0)}(\omega)$$

$$\tilde{g}_{\vec{k}}^{(0)}(\omega) = -\bar{M}_{\vec{k}} G_{\vec{k}}^{(0)}(\omega) = -\bar{M}_{\vec{k}} G_{\vec{k}}^{(0)}(-\omega) \quad (1.1.56)$$

gde je:

$$G_{\vec{k}}^{(0)}(\omega) = \frac{i}{2\pi} \frac{1}{\omega - \eta_{\vec{k}}} \quad (1.1.57)$$

## 1.2. VEZE IZMEDJU KOMUTATORSKIH I PSEUDOKAUZALNIH PAULIONSKIH GREEN-OVIH FUNKCIJA

U problemima vezanim za analizu eksitonskog sistema pojavljuju se komutatorske paulinske GF-e:

$$[\hat{f}_{\vec{g}}(t), \theta(t)] < [P_{\vec{f}}(t), P_{\vec{g}}^+(0)] >$$

$$\tilde{\Gamma}_{\vec{f}\vec{g}}(t) = \theta(t) \langle [P_{\vec{f}}^+(t), P_{\vec{g}}(0)] \rangle$$

$$\tilde{\Phi}_{\vec{f}\vec{g}}(t) = \theta(t) \langle [P_{\vec{f}}^+(t), P_{\vec{g}}^+(0)] \rangle$$

$$\tilde{\Phi}_{\vec{f}\vec{g}}(t) = \theta(t) \langle [P_{\vec{f}}(t), P_{\vec{g}}(0)] \rangle$$

(1.2.1.)

U jednačinama za ove funkcije, kao što se vidi, pojavljuju se više paulinske GF-e. Ove poslednje se dekupluju tako što se Pauli operatori izraze preko Boze operatora i na taj način dobijene više bozonske GF-e dekupluju se primenom Wick-ove teoreme za Boze operatore. Već je rečeno da se Wick-ova teorema direktno može primenjivati samo na pseudokauzalne GF-e, pa stoga šemu proračuna treba izvesti na sledeći način: formiraju se jednačine za pseudokauzalne paulionske GF-e u kojima se više paulionske GF-e izraze preko bozonskih pseudokauzalnih GF-a na koje se opet, sa svoje strane, primeni Wick-ova teorema pri dekuplovanju. Tek nakon svega ovoga se pseudokauzalne GF-e (i bozonske i paulionske) izraze preko odgovarajućih komutatorskih GF-a, čime je problem konačno rešen.

Kao što se jasno vidi iz izložene šeme, da bi se ona mogla primenjivati u računima, neophodno je najpre naći veze izmedju komutatorskih paulionskih funkcija Greena (1.2.1) i odgovarajućih pseudokauzalnih GF-a:

$$\mathcal{Y}_{\vec{p}\vec{g}}(t) = \theta(t) \langle P_{\vec{g}}^+(t) P_{\vec{g}}^+(0) \rangle$$

$$\tilde{\mathcal{Y}}_{\vec{p}\vec{g}}(t) = \theta(t) \langle P_{\vec{g}}^+(t) P_{\vec{g}}^+(0) \rangle$$

$$\Psi_{\vec{p}\vec{g}}(t) = \theta(t) \langle P_{\vec{g}}^+(t) P_{\vec{g}}^+(0) \rangle$$

$$\tilde{\Psi}_{\vec{p}\vec{g}}(t) = \theta(t) \langle P_{\vec{g}}^+(t) P_{\vec{g}}^+(0) \rangle \quad (1.2.2)$$

Za razliku od slučaja bozonskih GF-a, obrađenog u odeljku (1.1), veze između funkcija (1.2.1) i (1.2.2) mogu se naći samo aproksimativno, budući da paulionski hamiltonijan ima oblik:

$$H_p = \Delta \sum_{\vec{n}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}} + \sum_{\vec{n} \vec{m}} X_{\vec{n} \vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{m}} + \frac{1}{2} \sum_{\vec{n} \vec{m}} Y_{\vec{n} \vec{m}} (P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{m}} + P_{\vec{m}} P_{\vec{n}}) + \sum_{\vec{n} \vec{m}} Z_{\vec{n} \vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}} P_{\vec{m}}^+ P_{\vec{m}} \quad (1.2.3)$$

i Pauli operatori zadovoljavaju sledeće komutacione relacije:

$$[P_{\vec{n}}, P_{\vec{m}}^+] = (1 - 2P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}}) \delta_{\vec{n} \vec{m}}$$

$$[P_{\vec{n}}, P_{\vec{n}}] = [P_{\vec{n}}^+, P_{\vec{n}}^+] = 0 \quad ; \quad P_{\vec{n}}^2 = P_{\vec{n}}^{+2} = 0 \quad (1.2.4)$$

Da bismo našli traženu vezu koristićemo tjablikovsko dekuplovanje viših paulionskih GF-a koje se pojavljuju u jednačinama za funkcije (1.2.1) i (1.2.2). Potrebni komutatori za proračun pomenutih funkcija su:

$$[P_f^+, H_p] = \Delta P_f^+ + \sum_{\mu} X_{f\mu}^+ P_{\mu} + \sum_{\mu} Y_{f\mu}^+ P_{\mu}^+ - 2 \sum_{\mu} X_{f\mu}^+ P_f^+ P_f^+ P_{\mu} - \\ - 2 \sum_{\mu} Y_{f\mu}^+ P_{\mu}^+ P_f^+ P_f^+ + 2 \sum_{\mu} Z_{f\mu}^+ P_{\mu}^+ P_{\mu} P_f^+ \quad (1.2.5)$$

i

$$[P_f^+, H_p] = -\Delta P_f^+ - \sum_{\mu} X_{f\mu}^+ P_{\mu}^+ - \sum_{\mu} Y_{f\mu}^+ P_{\mu} + 2 \sum_{\mu} X_{f\mu}^+ P_{\mu}^+ P_f^+ P_f^+ + \\ + 2 \sum_{\mu} Y_{f\mu}^+ P_f^+ P_f^+ P_{\mu} - 2 \sum_{\mu} Z_{f\mu}^+ P_f^+ P_{\mu}^+ P_{\mu} \quad (1.2.6)$$

Iz strukture komutatora se jasno vidi kakvi se sve tipovi viših paulionskih GF-a pojavljuju u računu. To su:

$$\langle\langle P_f^+(t) P_f^+(t) P_{\mu}(t) | P_g^+(0) \rangle\rangle \approx \frac{1-\delta}{2} \Gamma_{\mu g}(t)$$

$$\langle\langle P_f^+(t) P_f^+(t) P_{\mu}(t) | P_g^+(0) \rangle\rangle^{(w)} \approx \frac{1-\delta}{2} \delta_{\mu g}(t)$$

$$\langle\langle P_{\mu}(t) P_{\mu}(t) P_f^+(t) | P_g^+(0) \rangle\rangle \approx \frac{1-\delta}{2} \Gamma_{fg}(t)$$

$$\langle\langle P_{\mu}(t) P_{\mu}(t) P_g^+(t) | P_f^+(0) \rangle\rangle^{(w)} \approx \frac{1-\delta}{2} \delta_{fg}(t)$$

$$\langle\langle P_{\mu}(t) P_f^+(t) P_f^+(t) | P_g^+(0) \rangle\rangle \approx \frac{1-\delta}{2} \Phi_{\mu g}(t)$$

$$\langle\langle P_{\mu}(t) P_f^+(t) P_f^+(t) | P_g^+(0) \rangle\rangle^{(w)} \approx \frac{1-\delta}{2} \Psi_{\mu g}(t)$$

$$\langle\langle P_f^+(t) P_f^-(t) P_{\mu}(t) | P_g(0) \rangle\rangle \approx \frac{1-\zeta}{2} \tilde{\Gamma}_{\mu g}(t)$$

$$\langle\langle P_f^+(t) P_f^-(t) P_{\mu}(t) | P_g(0) \rangle\rangle^{(w)} \approx \frac{1-\zeta}{2} \tilde{\delta}_{\mu g}(t)$$

$$\langle\langle P_{\mu}^+(t) P_{\mu}(t) P_f^-(t) | P_g(0) \rangle\rangle \approx \frac{1-\zeta}{2} \tilde{\Gamma}_{fg}(t)$$

$$\langle\langle P_{\mu}^+(t) P_{\mu}(t) P_f^-(t) | P_g(0) \rangle\rangle^{(w)} \approx \frac{1-\zeta}{2} \tilde{\delta}_{fg}(t)$$

$$\langle\langle P_{\mu}^+(t) P_f^+(t) P_f^-(t) | P_g(0) \rangle\rangle \approx \frac{1-\zeta}{2} \tilde{\Phi}_{\mu g}(t)$$

$$\langle\langle P_{\mu}^+(t) P_f^+(t) P_f^-(t) | P_g(0) \rangle\rangle^{(w)} \approx \frac{1-\zeta}{2} \tilde{\Phi}_{fg}(t)$$

(1.2.7)

gde je  $\sigma$  - parametar uredjenosti sistema koji je dat sa:

$$\zeta = 1 - 2 \langle P^+ P^- \rangle \quad (1.2.8)$$

Treba reći da je u formulama (1.2.7) izvršeno tjablikovsko dekuplovanje.

Iz strukture formula (1.2.7) očigledno je da jednačine za funkcije (1.2.1) i (1.2.2) postaju strukturalno potpuno iste kao jednačine sa bezonskim Green-ovim funkcijama. Jedina razlika se, zapravo, sastoji u tome što su, u odnosu na bzonske jednačine, koeficijenti u paulionskim jednačinama promenjeni. Zbog ovoga nećemo ponavljati račun koji je izведен u odeljku (1.1), nego ćemo samo navesti konačni rezultat.

Veze izmedju pseudokauzalnih i komutatorskih paulionskih GF-a su sledeće:

$$\tilde{Y}_R(\omega) = \tilde{\epsilon}^{-1} \langle P_R P_R^+ \rangle \tilde{\Gamma}_R(\omega) - \tilde{\epsilon}^{-1} \tilde{M}_{R\mu} \tilde{\Phi}_R(\omega)$$

$$\tilde{Y}_R^*(\omega) = -\tilde{\epsilon}^{-1} \langle P_R^+ P_R \rangle \tilde{\Gamma}_R(\omega) + \tilde{\epsilon}^{-1} \tilde{M}_{R\mu} \tilde{\Phi}_R^*(\omega)$$

$$\Psi_R(\omega) = \tilde{\epsilon}^{-1} \langle P_R P_R^+ \rangle \tilde{\Phi}_R(\omega) - \tilde{\epsilon}^{-1} \tilde{M}_{R\mu} \tilde{\Gamma}_R(\omega)$$

$$\tilde{\Psi}_R(\omega) = -\tilde{\epsilon}^{-1} \langle P_R^+ P_R \rangle \tilde{\Phi}_R(\omega) + \tilde{\epsilon}^{-1} \tilde{M}_{R\mu} \tilde{\Gamma}_R(\omega) \quad (1.2.9)$$

Komutatorske GF-e u ovoj formuli date su izrazima:

$$\tilde{\Gamma}_R(\omega) = \frac{i}{2\pi} \left( -\frac{C_{R\mu}^+}{\omega - \Omega_{R\mu}} + \frac{C_{R\mu}^-}{\omega + \Omega_{R\mu}} \right) \quad (1.2.10)$$

$$\tilde{\Gamma}_R^*(\omega) = -\frac{i}{2\pi} \left( -\frac{C_{R\mu}^-}{\omega - \Omega_{R\mu}} + \frac{C_{R\mu}^+}{\omega + \Omega_{R\mu}} \right) \quad (1.2.11)$$

$$\tilde{\Phi}_R(\omega) = \tilde{\Phi}_R^*(\omega) = -\frac{i}{2\pi} D_{R\mu} \left( -\frac{1}{\omega - \Omega_{R\mu}} - \frac{1}{\omega + \Omega_{R\mu}} \right) = \tilde{\Phi}_R(-\omega)$$

gde je:  $(1.2.12)$

$$\Omega_{R\mu} = \sqrt{(\Omega_{\Delta\mu} + \Omega_{xR\mu})^2 - \Omega_{yR\mu}^2} \quad (1.2.13)$$

$$\Omega_{\Delta\mu} = \Omega_\Delta + (1-\tilde{\epsilon}) Z_0 \quad ; \quad Z_0 = \sum_m Z_{0m} \quad (1.2.14)$$

$$\Omega_{xR\mu} = \tilde{\epsilon} \Omega_{xR} \quad ; \quad \Omega_{yR\mu} = \tilde{\epsilon} \Omega_{yR} \quad (1.2.15)$$

$$C_{R\mu}^\pm = \frac{\tilde{\epsilon}}{2} \left( 1 \pm \frac{\Omega_{\Delta\mu} + \Omega_{xR\mu}}{\Omega_{yR\mu}} \right) \quad (1.2.16)$$

$$D_{R\mu} = \tilde{\epsilon} \frac{\Omega_{yR\mu}}{2\Omega_{yR\mu}} \quad (1.2.17)$$

Srednje vrednosti koje se pojavljuju u formulama (1.2.9) date su izrazima:

$$\langle P_{\vec{k}}^+ P_{\vec{k}} \rangle = 2 \nu_{\vec{k}p} \quad (1.2.18)$$

$$\langle P_{\vec{k}} P_{\vec{k}}^+ \rangle = 2(\nu_{\vec{k}p} + 1) \quad (1.2.19)$$

$$\bar{M}_{\vec{k}p} = \langle P_{\vec{k}}^+ P_{\vec{k}}^+ \rangle = \langle P_{\vec{k}} P_{\vec{k}} \rangle = -D_{\vec{k}p} \operatorname{ctgh} \frac{\hbar \Omega_{\vec{k}p}}{2\theta} \quad (1.2.20)$$

gde je:

$$\nu_{\vec{k}p} = \frac{m_{\vec{k}p}}{2\Omega_{\vec{k}p}} \operatorname{ctgh} \frac{\hbar \Omega_{\vec{k}p}}{2\theta} - \frac{1}{2} \quad (1.2.21)$$

Kao što se vidi, u slučaju niskih koncentracija kada  $\sigma \rightarrow 1$  sve formule (1.2.13-2.21) prelaze u odgovarajuće izraze koji figurišu u bozonskim GF-ama.

Na kraju ovog dela razmotrićemo slučaj kada se broj Pauli ekscitacija u sistemu održava. Takvom slučaju odgovara hamiltonijan:

$$H_{op} = \Delta \sum_{\vec{n}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{n}} + \sum_{\vec{n} \neq \vec{m}} X_{\vec{n} \vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{m}} + \sum_{\vec{n} \neq \vec{m}} Z_{\vec{n} \vec{m}} P_{\vec{n}}^+ P_{\vec{m}} P_{\vec{m}}^+ P_{\vec{n}} \quad (1.2.22)$$

Očigledno je da se veže izmedju komutatorskih i pseudokauzalnih paulionskih GF-a, u ovom slučaju dobijaju iz formula (1.2.9) ako u njima zbog  $\Omega_{y\vec{k}p} = 0$ , uzmememo da je  $M_{\vec{k}p} = \Phi_{\vec{k}}(\omega) = \tilde{\Phi}_{\vec{k}}(\omega) = \varphi_{\vec{k}}(\omega) = \tilde{\varphi}_{\vec{k}}(\omega) = 0$ . Tada dobijamo:

$$\gamma_{\vec{k}}^{(0)}(\omega) = \tilde{\sigma}^{-1} \langle P_{\vec{k}} P_{\vec{k}}^+ \rangle \Gamma_{\vec{k}}^{(0)}(\omega)$$

$$\tilde{\gamma}_{\vec{k}}^{(0)}(\omega) = -\tilde{\sigma}^{-1} \langle P_{\vec{k}}^+ P_{\vec{k}} \rangle \tilde{\Gamma}_{\vec{k}}^{(0)}(\omega) = -\tilde{\sigma}^{-1} \langle P_{\vec{k}}^+ P_{\vec{k}} \rangle \Gamma_{\vec{k}}^{(0)}(-\omega) \quad (1.2.23)$$

U ovom slučaju je  $C_{\vec{k}p}^+ = \sigma$ ;  $C_{\vec{k}p}^- = 0$  i  $D_{\vec{k}p} = 0$  pa je:

$$\Gamma_{\vec{k}p}^{(0)}(\omega) = \frac{i\tilde{\sigma}}{2\pi} \frac{1}{\omega - \eta_{\vec{k}p}}$$

$$\tilde{\Gamma}_{\vec{k}p}^{(0)}(\omega) = -\frac{i\tilde{\sigma}}{2\pi} \frac{1}{\omega + \eta_{\vec{k}p}} = \Gamma_{\vec{k}p}^{(0)}(-\omega) \quad (1.2.24)$$

gde je:

$$\eta_{\vec{k}p} = \Omega_{\Delta p} + \Omega_{x\vec{k}p} \quad (1.2.25)$$

i

$$\langle P_{\vec{k}}^+ P_{\vec{k}} \rangle = \tilde{\sigma} \mathcal{V}_{\vec{k}p}^{(0)} ; \quad \langle P_{\vec{k}} P_{\vec{k}}^+ \rangle = \tilde{\sigma} (1 + \mathcal{V}_{\vec{k}p}^{(0)})$$

$$\mathcal{V}_{\vec{k}p}^{(0)} = \frac{1}{e^{\frac{\hbar\eta_{\vec{k}p}}{\theta}} - 1} \quad (1.2.26)$$

Očigledno je da, kada  $\sigma \rightarrow 1$  (niske koncentracije) možemo pisati

$$\eta_{\vec{k}p} \rightarrow \eta_{\vec{k}} = \Omega_{\Delta} + \Omega_{x\vec{k}} \quad (1.2.27)$$

$$\langle P_{\vec{k}}^+ P_{\vec{k}} \rangle \rightarrow \bar{n}_{\vec{k}} = \frac{1}{e^{\frac{\hbar\eta_{\vec{k}}}{\theta}} - 1} ; \quad \langle P_{\vec{k}} P_{\vec{k}}^+ \rangle \rightarrow (1 + \bar{n}_{\vec{k}}) \quad (1.2.28)$$

što znači da veličine  $\langle P_{\vec{k}}^+ P_{\vec{k}} \rangle$  i  $\langle P_{\vec{k}} P_{\vec{k}}^+ \rangle$  prelaze, respektivno, u  $\bar{n}_{\vec{k}}$  i  $1 + \bar{n}_{\vec{k}}$ , tačnije, u veličine koje figurišu u izražima za bozonske GF-e.

1.3. KOMUTATORSKA PAULIONSKA GREEN-OVA FUNKCIJA IZRAŽENA  
PREKO BOZONSKIH GREEN-OVIH FUNKCIJA

Da bismo demonstrirali metod dekuplovanja, u kome se koristi Wick-ova teorema za Boze operatore, izražićemo komutatorsku paulionsku GF-u  $\Gamma$  preko komutatorskih bozonskih GF-a  $G$ . Pri tome ćemo koristiti egzaktnu bozonsku reprezentaciju za Pauli operatore [7] i to u aproksimaciji:

$$\begin{aligned} P &= \left[ \sum_{\nu=0}^{\infty} \frac{(-2)^{\nu}}{(1+\nu)!} B^{+\nu} B^{\nu} \right]^{\frac{1}{2}} B \approx B - B^+ B B \\ P^+ &= B^+ \left[ \sum_{\nu=0}^{\infty} \frac{(-2)^{\nu}}{(1+\nu)!} B^{+\nu} B^{\nu} \right]^{\frac{1}{2}} \approx B^+ - B^+ B^+ B \end{aligned} \quad (1.3.1)$$

koja je dobra kada su koncentracije elementarnih pobudjenja niske. Kao što je gore već rečeno, u slučaju eksitonskog sistema koncentracije se kreću do reda  $10^{-3}$ , pa se aproksimacija (1.3.1), u svim praktičnim slučajevima, može smatrati zadovoljavajućom.

Osim toga, ograničićemo se na slučaj sistema u kome je broj kvazičestica održan kada se mogu koristiti formule (1.1.53-1.57), (1.2.23), (1.2.25) i (1.2.26).

Prvo ćemo, kako je ranije navedeno, pronaći izraz za pseudokauzalnu paulionsku GF-u  $\gamma^{(0)}$ , a zatim u dobijenom rezultatu, koristeći veze (1.1.56) i (1.2.23), naći izraz za traženu komutatorsku GF-u  $\Gamma^{(0)}$ .

S obzirom na (1.3.1) možemo pisati:

$$\begin{aligned}
 J_{\text{fg}}^{(0)}(t) &= \Theta(t) \left\{ [B_f^+(t) - B_f^+(0)B_g^+(t)B_g^+(0)] [B_g^+(0) - B_g^+(0)B_f^+(0)B_f^+(0)] \right\} = \\
 &= \Theta(t) \langle B_f^+(t) B_g^+(0) \rangle - \Theta(t) \langle B_g^+(t) B_f^+(0) B_g^+(0) B_f^+(0) \rangle - \\
 &\quad - \Theta(t) \langle B_f^+(t) B_g^+(t) B_f^+(t) B_g^+(0) \rangle + \\
 &\quad + \Theta(t) \langle B_f^+(t) B_g^+(t) B_f^+(t) B_g^+(0) B_f^+(0) B_g^+(0) \rangle \quad (1.3.2)
 \end{aligned}$$

Na srednje produkte bozonskih operatora primenimo Wick-ovu teoremu (anomalne srednje vrednosti  $\langle B^+ B^+ \rangle$  i  $\langle BB \rangle$  su u ovom slučaju jednake nuli) i tada možemo dati sledeću relaciju:

$$\Theta(t) \langle B_f^+(t) B_g^+(0) B_g^+(0) B_f^+(0) \rangle = \Theta(t) \langle B_f^+(t) B_g^+(t) B_f^+(t) B_g^+(0) \rangle = 2 \bar{n} \tilde{g}_{fg}^{(0)}(t) \quad (1.3.3)$$

i

$$\begin{aligned}
 \Theta(t) \langle B_f^+(t) B_g^+(t) B_f^+(t) B_g^+(0) B_g^+(0) B_f^+(0) \rangle &= \\
 &= 4 \bar{n}^2 \tilde{g}_{fg}^{(0)}(t) + 2 \tilde{g}_{fg}^{(0)}(t) \tilde{g}_{fg}^{(0)}(t) \tilde{g}_{fg}^{(0)}(t) \quad (1.3.4)
 \end{aligned}$$

gde je:

$$g_{fg}^{(0)} = \Theta(t) \langle B_f^+(t) B_g^+(0) \rangle$$

$$\tilde{g}_{fg}^{(0)} = \Theta(t) \langle B_f^+(t) B_g^+(0) \rangle$$

$$\bar{n} = \langle B^+ B \rangle = \frac{1}{N} \sum_k \bar{n}_k \quad (1.3.5)$$

Na osnovu (1.3.3-3.5) izraz (1.3.2) postaje:

$$\mathcal{G}_{\vec{q}\vec{g}}^{(0)}(t) = (1 - 2\bar{\mu})^2 \tilde{g}_{\vec{q}\vec{g}}^{(0)}(t) + 2\tilde{g}_{\vec{q}\vec{g}}^{(0)}(t) \tilde{g}_{\vec{q}\vec{g}}^{(0)}(t) \tilde{g}_{\vec{q}\vec{g}}^{(0)}(t) \quad (1.3.6)$$

i posle transformacija tipa:

$$\Psi_{\vec{q}\vec{g}(t)} = \frac{1}{M} \sum_{\vec{k}} e^{i\vec{k}(\vec{q}-\vec{g})} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega e^{-i\omega t} \Psi_{\vec{k}}(\omega) \quad (1.3.7)$$

se svodi na:

$$\begin{aligned} \mathcal{G}_{\vec{K}}^{(0)}(\omega) &= (1 - 2\bar{\mu})^2 g_{\vec{K}}^{(0)}(\omega) + \\ &+ \frac{2}{M^2} \sum_{\vec{q}_1 \vec{q}_2} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 \tilde{g}_{\vec{q}_1}^{(0)}(-\omega_1) \tilde{g}_{\vec{q}_2}^{(0)}(\omega_2) \tilde{g}_{\vec{q}_3}^{(0)}(\omega_3) \end{aligned}$$

$$\vec{Q}_3 = \vec{K} + \vec{q}_1 - \vec{q}_2 \quad ; \quad \omega_3 = \omega + \omega_1 - \omega_2 \quad (1.3.8)$$

U poslednjoj relaciji pseudokauzalna paulion-ska GF-a  $\gamma^{(0)}$  izražena je preko pseudokazualnih bizonskih GF-a  $g^{(0)}$ . Pošto tražimo vezu izmedju komutatorskih GF-a koristićemo relacije (1.1.56) i (1.2.23), posle čega (1.3.8). prelazi u:

$$\begin{aligned} \Gamma_{\vec{K}}^{(0)}(\omega) &= \frac{2(1 - 2\bar{\mu})^2 (1 + \bar{\mu}_{\vec{K}})}{\langle P_{\vec{K}} P_{\vec{K}}^+ \rangle} G_{\vec{K}}^{(0)}(\omega) - \\ &- \frac{2\bar{\mu}}{M \langle P_{\vec{K}} P_{\vec{K}}^+ \rangle} \sum_{\vec{q}_1 \vec{q}_2} \bar{\mu}_{\vec{q}_1} (1 + \bar{\mu}_{\vec{q}_2})(1 + \bar{\mu}_{\vec{q}_3}) \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 G_{\vec{q}_1}^{(0)}(\omega_1) G_{\vec{q}_2}^{(0)}(\omega_2) G_{\vec{q}_3}^{(0)}(\omega_3) \end{aligned} \quad (1.3.9)$$

Pošto su koncentracije niske uzećemo da u poslednjem izrazu:

$$\frac{\delta}{\langle P_k P_k^+ \rangle} = \frac{1}{1 + \bar{N}_k^{(0)}} \rightarrow \frac{1}{1 + \bar{n}_k} \quad (1.3.10)$$

i zanemarićemo kvadrate koncentracija. Tada dobijamo:

$$\bar{N}_k^{(0)}(\omega) = (1 - 4\bar{n}_k) G_k^{(0)}(\omega) - \frac{2}{\pi^2} \sum_{\vec{q}_1, \vec{q}_2} \bar{n}_{\vec{q}_1} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 G_{\vec{q}_1}^{(0)}(\omega_1) G_{\vec{q}_2}^{(0)}(\omega_2) G_{\vec{q}_3}^{(0)}(\omega_3)$$

$$\vec{q}_3 = \vec{q}_1 + \vec{q}_2 ; \quad \omega_3 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_2 \quad (1.3.11)$$

gde je, prema (1.1.57):

$$G_k^{(0)}(\omega) = \frac{i}{2\pi} \frac{1}{\omega - \eta_k} \quad (1.3.12)$$

Relacija (1.3.11), očito, predstavlja traženi izraz za komutatorsku paulionsku GF-u  $\Gamma^{(0)}$  u reprezentaciji komutatorskih bozonskih GF-a  $G^{(0)}$ .

S obzirom na (1.3.12) i činjenicu da se pod znakom integrala mora uzeti:

$$\frac{1}{x - x_0} \rightarrow \frac{1}{x - x_0 + i\delta} = \frac{1}{x - x_0} - i\pi\delta(x - x_0) \quad (1.3.13)$$

podintegralni izraz i (1.3.11) možemo napisati u obliku:

$$\begin{aligned} G_{\vec{q}_1}^{(0)}(\omega_1) G_{\vec{q}_2}^{(0)}(\omega_2) G_{\vec{q}_3}^{(0)}(\omega_3) &= \left( \frac{i}{2\pi} \right)^3 \left[ \frac{1}{\omega_1 - \eta_{\vec{q}_1}} - i\pi\delta(\omega_1 - \eta_{\vec{q}_1}) \right] \left[ \frac{1}{\omega_2 - \eta_{\vec{q}_2}} - \right. \\ &\quad \left. - i\pi\delta(\omega_2 - \eta_{\vec{q}_2}) \right] \left[ \frac{1}{\omega_3 - \eta_{\vec{q}_3}} - i\pi\delta(\omega_3 - \eta_{\vec{q}_3}) \right] \end{aligned} \quad (1.3.14)$$

Posle zamene (1.3.14) lako dolazimo do rezultata:

$$\begin{aligned}
 & \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 d\omega_2 G_{\vec{g}_1}^{(0)}(\omega_1) G_{\vec{g}_2}^{(0)}(\omega_2) G_{\vec{g}_3}^{(0)}(\omega_3) = \\
 & = \frac{i}{8\pi} \left[ -\frac{1}{\omega + \eta_{\vec{g}_1} - \eta_{\vec{g}_2} - \eta_{\vec{g}_3}} - i\tilde{\beta}(\omega + \eta_{\vec{g}_1} - \eta_{\vec{g}_2} - \eta_{\vec{g}_3}) \right] \\
 & \eta_{\vec{g}} = \Omega_{\Delta} + \Omega_{x\vec{g}} ; \quad \vec{g}_3 = \vec{g}_1 + \vec{g}_2 ; \quad \omega_3 = \omega + \omega_1 - \omega_2
 \end{aligned} \tag{1.3.15}$$

Na osnovu (1.3.15) možemo konačno pisati:

$$\Gamma_{\vec{R}}^{(0)}(\omega) = \frac{i}{2\pi} \left[ -\frac{1 - 4\bar{n} - f_0(\vec{R}, \omega)}{\omega - \eta_{\vec{R}}} + i\tilde{\beta}_{(\vec{R}, \omega)} \right]
 \tag{1.3.16}$$

gde je:

$$f_0(\vec{R}, \omega) = \frac{1}{2N^2} \sum_{\vec{g}_1, \vec{g}_2} \bar{n}_{\vec{g}_1} \frac{\omega - \eta_{\vec{g}}}{\omega + \eta_{\vec{g}_1} - \eta_{\vec{g}_2} - \eta_{\vec{R} + \vec{g}_1 - \vec{g}_2}}
 \tag{1.3.17}$$

i:

$$\tilde{\beta}_{(\vec{R}, \omega)} = \frac{\pi}{2N^2} \sum_{\vec{g}_1, \vec{g}_2} \bar{n}_{\vec{g}_1} (\omega - \eta_{\vec{g}}) \delta(\omega + \eta_{\vec{g}_1} - \eta_{\vec{g}_2} - \eta_{\vec{g}} + \vec{g}_1 - \vec{g}_2)
 \tag{1.3.18}$$

Kao što se vidi, komutatorska paulionska GF-a pored imaginarnog dela  $\frac{i}{2\pi} \cdot \frac{1 - 4\bar{n} - f_0(\vec{R}, \omega)}{\omega - \eta_{\vec{R}}}$

sadrži i realni deo  $- \frac{\tilde{\beta}_{(\vec{R}, \omega)}}{2\pi}$

čijom se analizom mogu objasniti procesi relaksacije, prigušenja, apsorpcije i slično [86-92].

## LITERATURA

- [1] Frenkel, I., Phys.Rev., 37, 17 (1931)
- [2] Frenkel,I., Phys.Rev., 37, 1276 (1931)
- [3] Броуде, В.Л., Рашба, Э.И., Шека, Е.Ф., Спектроскопия молекулярных экситонов, Энергоиздат, Москва, 1981.
- [4] Lalović,D., Tošić,B.S., Žakula,R., Phys.Rev., 178, 1472 (1969)
- [5] Боголюбов,Н.Н., Избранные труды, Том. 2, "Наукова Думка", Київ, 1970.
- [6] Боголюбов,Н.Н., Лекции по квантовой статистике, "Наукова Думна", Київ, 1949.
- [7] Агранович,В.М., Тошић,Б.С., ЖЭТФ, 53, 149 (1967)
- [8] Агранович,В.М., ЖЭТФ, 37, 430 (1959)
- [9] Агранович,В.М., Теория экситонов, "Наука", Москва, 1968.
- [10] Tošić,B.S., Statistička fizika, Novi Sad, 1978.
- [11] Давидов,А .С., Квантовая механика, "Наука", Москва, 1973.
- [12] Давидов,А.С., Теория молекулярных экситонов, Москва, 1968.
- [13] Stojanović,S.D., Škrinjar,M.J., Tošić,B.S., Phys.Letters, 59A, 396 (1976)
- [14] Kapor,D.V., Stojanović,S.D., Škrinjar,M.J., Tošić,B.S., Phys.Stat.Sol., 74, 103 (1976)
- [15] Stojanović,S.D., Šetrajić,J.P., Škrinjar,M.J., Tošić,B.S., Phys.Stat.Sol., 79, 433 (1977)

- [16] Hadžiahmetović,D., Marinković,M., Djordjević,R., Tošić,B.S., Il nuovo cimento, 50B, 161 (1979)
- [17] U.F.Kozmidis-Luburić, "Kinematicka interakcija eksitona i dielektrične osobine kristala", Magistarski rad, Beograd (1986)
- [18] Dzyaloshinski,I.E., Pitaevski,L.P., ŽETF, 36, 1797 (1959)
- [19] Агранович,В.М., Тошић,Б.С., ЖЭТФ, 50, 1332 (1966)
- [20] Тошић,Б.С., ФТТ, 9, 1773 (1967)
- [21] Тябликов,С.В., "Методы квантовой теории магнетизма", Наука, Москва, 1955
- [22] I.Goldhirsch,E., Levich, V. Yakhot, Phys. Rev. B19, 4780 (1979)
- [23] Tošić,B.S., Marinković,M.M., Phys.Stat.Sol., 76, 1286 (1976)
- [24] Tošić,B.S., Marinković,M.M., Berar,S., Phys.Stat. Sol., 81, 245 (1977)
- [25] Hadžiahmetović,D., Pirić,M., Tošić,B.S., Phys. Stat .Sol., 83, 479 (1977)
- [26] Pirić,M., Marinković,M.M., Tošić,B.S., Physica, NHPC, 90A, 597 (1978)
- [27] Maksimović,R., Škrinjar,M.J., Tošić,B.S., Physica, NHPC, 97A, 163 (1979)
- [28] P.H.Ritchie, Phys.Rev., 106, 874 (1957)
- [29] R.A.Ferrell, Phys.Rev., 111, 1214 (1958)
- [30] В.М.Агранович, Ю.В.Конобеев, ФТТ, 7, 111 (1965)
- [31] С.И.Пенкар, ЖЭТФ, 33, 1022 (1957)
- [32] Г.Ф. Нвенцель, ФТТ, 6, 2865 (1964)
- [33] В.И.Сугаков, ФТТ, 5, 2205 (1963)

- [34] Ю.В.Конобеев, ФТТ, 9, 349 (1967)
- [35] Mills,D.L., Burstein,E., - Rept.Progr.Phys., (1974), v.37, p. 817
- [36] Агранович,В.М., Теория экситонов, "Наука", Москва, 1978
- [37] Л.Д.Ландау, Е.М.Лифшиц, "Электродинамика сплошных сред", Гостехиздат, (1957)
- [38] В.М.Агранович, В.Л.Гинзбург, "Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов", "Наука", Москва, 1965
- [39] Tošić,B.S., Šetrajčić,J., Mirjanić,D., Djajić,R., Inter.Journ. Phys.-Chem.Sol. Vol. 148 (000),(1988)
- [40] Тябликов,С.В., "Методы квантовой теории магнетизма", "Наука", Москва, 1975
- [41] Давидов,А.С., "Теория молекулярных экситонов", Москва, 1968.
- [42] F.Bloch,Z.Phys., 61, 206 (1030); 74, 295 (1932)
- [43] T.Holstein,H. Primakoff, Phys.Rev., 58, 1098 (1940)
- [44] F.Dyson, Phys. Rev. 102, 1217 (1956)
- [45] F.Dyson, Phys.Rev. 102, 1230 (1956)
- [46] S.V.Maleev, Zh.eksper.teor.fiz., 33, 1010, (1957)
- [47] D.I.Lalović, B.S.Tošić, R.B.Žakula, Phys.Stat.Sol. 28, 635, (1968)
- [48] M.L.Kulić, B.S.Tošić, Phys.Stat.Sol. 56, K 79 (1973)
- [49] G.S.Davidović-Ristovski, Lj.M.Ristovski, B.S.Tošić, D.Mirjanić, Phys.Letts., 95A, 173 (1983)
- [50] U.F.Kozmidis-Luburić, B.S.Tošić, Physica NHPC, 112B, 331, (1982)
- [51] J.M.Blatt, K.W.Boer, W.Brandt, Phys. Rev. 126, 1691, (1962)

- [52] S.A.Moscalenko, FTT, 4, 276 (1962)
- [53] P.Bocchieri, F.Seneci, Nuovo Cim. 18B, 392 (1965)
- [54] L.V.Keldiš, A.N.Kozlov, Zh.eksper. Teor.fiz. (Pysma) 5, 538, (1967)
- [55] V.A.Gergel, R.F.Kazarinov,R.A. Suris, Zh.eksper. teor.fiz., 54, 978 (1968)
- [56] F.Urbach, Phys.Rev., 92, 1324, (1953)
- [57] Y.Toyozawa, Progr.Theor.Phys. (Kyoto), 22, 455 (1959)
- [58] D.L.Dexter, Phys.Rev.Letts., 19, 1383 (1967)
- [59] A.Matsvi, J.Phys.Soc. (Japan), 21, 2212 (1966)
- [60] D.Mirjanić, U.F.Kozmidis-Luburić, M.M.Marinković, B.S.Tošić, Can.J.Phys. 60, 1838 (1982)
- [61] R.P.Djajić-Jovanović, D.M.Ćirić, M.M.Marinković, B.S.Tošić, Can.J.Phys. 65, 149 (1987)
- [62] R.P.Djajić-Jovanović, D.Lj.Mirjanić, B.Nikin, J.P. Šetrajčić, B.S.Tošić, J.Phys. C20, 5585 (1987)
- [63] Hall,J.L., Phys.Rev.Lett., 11, 365 (1963)
- [64] Kepler,R.G., Caris,J.C., Avakian,P., Abramson,E., Phys.Rev.Lett., 10, 400 (1963)
- [65] Singh,S., Bradly,L.T., Phys.Rev.Lett., 12, 612 (1964)
- [66] Savage,C.M., Miller,R.C., Appl.Opt., 1, 661 (1962)
- [67] Terhune,R.W., Marker,P.D., Savage,C.M., Phys. Rev.Lett., 8, 404, (1962)
- [68] Braunstein,R., Phys.Rev., 125, 475 (1962)
- [69] Itoh,T., Suzuki,T., J.Phys.Soc., Jpn., 40, 1939, (1978)
- [70] Itoh,T., Suzuki,T., Urta,M., J.Phys.Soc.,Jpn., 44, 345 (1978)

- [71] May,V., Henneberger,K., Henneberger,F., Phys.Stat.Sol., b94, 611 (1979)
- [72] Peierls,R., Ann.Phys., 13 (5), 905 (1932)
- [73] Гинзбург,В.Л., ЖЭТФ, (1958), т.34, с. 1593
- [74] Szievessy,S., Kristallooptik, Handbuch D.Physik, 1928, Bd.20, s. 635
- [75] Ramachandron,G.N., Ramaseshon,S., Crystal Optics, Handbuch D. Physik, 1961, Bd. 25/I, s. 1
- [76] Marinković,M.M., Phys.Stat.Sol, b69, 291, (1975)
- [77] Marinković,M.M., Maksimov,J., Škrbić,Ž., Physica, 80C, 585, (1975)
- [78] Marinković,M.M., Tošić,B.S., Phys.Stat.Sol., b67, 435, 1975
- [79] K.Huang, "Statistical Mechanics", Inc., New York, (1968)
- [80] Давидов,А.С., ЖЭТФ, 48, 210, 1948
- [81] Isihara,A., "Statistička fizika", Mir , Moskva (1973)
- [82] Knox,R., Theory of Excitons, Mir, Moscow, (1966)
- [83] Давидов,А.С., "Теория твердого тела", "Наука", Москва, (1976)
- [84] Messia,A., "Квантовая механика", "Наука", Москва (1979)
- [85] Bogolybov,N.N., Selected Papers, Naukova Dumka, Kiev, 1971 (на руском)
- [86] Гросс, Е.Ф., Наплянский,А.А. - ДАН СССР, (1960), Т. 132; (1961), Т. 139
- [87] Борн,М., Гепперт-Майер,М., "Теория твердого тела", М.ОНТИ, (1938)
- [88] Горбань,И.С., Тимофеев,В.Б., ДАН СССР, (1961), Т.141
- [89] Hopfield,J.J., Tomas,D.G., Phys.Rev., 132, 561 (1963)
- [90] Агранович,В.М., Рухадзе,А.А., ЖЭТФ, (1958), Т.35, с. 982.

- [91] Агранович, В.М., ДАН СССР, (1954), Т.97, с.797;  
Оптика и спектроскопия, (1956), Т.1, с. 338
- [92] Цвирко, Ю.А., ЖЭТФ, (1960), Т.38, с. 1615
- [93] C.Kittel, "Uvod u fiziku čvrstog stanja",  
Beograd, 1970
- [94] J.G.Dash, "Films on Solid Surfaces", Ac.Press,  
New York, (1975);  
A.Thomy, X.Duval and J.Regnier, Surf.Sci., Repts.,  
1, 1, (1981)
- [95] N.Švrakić, Doktorska disertacija, Urbana  
Illinois, (1979)