СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
Дубна

Р4 - 5885

Б.С. Тошич

ЛАБОРАТОРИЯ ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ

О ВЛИЯНИИ КИНЕМАТИЧЕСКОГО И ДИНАМИЧЕСКОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЙ НА ЭКСИТОННЫЙ СПЕКТР НУЛЕВОГО ПРИБЛИЖЕНИЯ

1971

Р4 - 5885

Б.С.Тошич*

О ВЛИЯНИИ КИНЕМАТИЧЕСКОГО И ДИНАМИЧЕСКОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЙ НА ЭКСИТОННЫЙ СПЕКТР НУЛЕВОГО ПРИБЛИЖЕНИЯ

* Постоянный адрес: Институт ядерных исследований им. Б. Кидрича, Белград, Югославия.

1. Введение

Метод приближенного вторичного квантования (ПВК), развитый Боголюбовым/1/, широко используется при теоретическом анализе гармонических эффектов в кристаллах. Кратко изложим основы этого метода, который будет предметом наших дальнейших обсуждений.

Рассматривая возбуждения в электронной подсистеме кристалла с учетом лишь двухчастичных взаимодействий между его молекулами, гамильтониан кристалла можно записать в представлении вторичного квантования, причем он содержит квадратичную и четверную форму по фермиевским операторам рождения и уничтожения электронов в данном узле решетки $\vec{n}$ и в данном состоянии f. Переходя от фермиевских операторов $a^{+}_{f\vec{n}}$ и $a_{f\vec{n}}$ к операторам $\mathcal{P}^{+}_{f\vec{n}} = a^{+}_{f\vec{n}} a_{o\vec{n}}$ и $\mathcal{P}_{f\vec{n}} = a^{+}_{o\vec{n}} a_{f\vec{n}}$ (индексом "0" обозначается невозбужденное состояние) рождения и уничтожения возбуждения типа f в молекуле $\vec{n}$, гамильтониан системы можно записать в виде суммы квадратичной, кубической и четверной формы по операторам $\mathcal{P}$, причем существенным является тот факт, что в новой записи в квадратичную форму включена часть взаимодействия между молекулами. Таким образом, анализ системы сильно взаимодействующих частиц практически сводится к анализу слабо неидеального газа квазичастиц. Операторы $\mathcal{P}^{+}_{f\vec{n}}$ и $\mathcal{P}_{f\vec{n}}$ не являются ни операторами Бозе, ни операторами Ферми. Они удовлетворяют весьма сложным перестановочным соотношениям (см./2/), которые, однако, в тех случаях, когда число возбужденных молекул пренебрежимо мало по отношению к общему числу N молекул в кристалле переходят в перестановочные соотношения для операторов Бозе. В методе ПВК в гамильтониане системы кубической частью и частью четвертого порядка по операторам $\mathcal{P}$ пренебрегается, а в оставшейся квадратичной части операторы $\mathcal{P}^{+}_{f\vec{n}}$ и $\mathcal{P}_{f\vec{n}}$ заменяются бозе-операторами $B^{+}_{f\vec{n}}$ и $B_{f\vec{n}}$. Следовательно, метод ПВК можно использовать лишь при описании слабовозбужденных состояний кристалла, т.е. в тех случаях, когда взаимодействие между квазичастицами пренебрежимо мало. Для описания ангармонических эффектов нужен учет не только опущенных в гамильтониане частей третьего и четвертого порядка (динамическое взаимодействие), но также и учет дополнительных членов, которые возникают ввиду того, что перестановочные соотношения для операторов $\mathcal{P}$ отличаются от бозевских перестановочных соотношений (кинематическое взаимодействие). В[2] были найдены точные представления операторов $\mathcal{P}$ через бозевские операторы, так что учет кинематического и динамического взаимодействий можно произвести с желаемой степенью точности.

Гамильтониан ПВК в общем случае содержит члены типа $B^{+}B^{+}$ и BB и, следовательно, не сохраняет полного числа квазичастиц. Иными словами, в системе плохо определено вакуумное состояние. Эта трудность разрешается методом диагонализации Тябликова (см.[3]). Переходя в пространство обратной решетки с помощью канонического преобразования:

$$B_{\vec{n}} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{k}} [\, u_{\vec{n}}(\vec{k}) A_{\vec{k}} + \overset{*}{v}_{\vec{n}}(k) A^{+}_{\vec{k}}], \tag{1.1}$$

где $A^{+}_{\vec{k}}$ и $A_{\vec{k}}$ – новые бозе-операторы, $\vec{k}$ – волновой вектор, а функции u и v удовлетворяют условию:

$$\sum_{\vec{k}} [\, | u_{\vec{n}}(\vec{k}) |^{2} - | v_{\vec{n}}(\vec{k}) |^{2}] = 1 , \tag{1.2}$$

гамильтониан ПВК приводим к диагональному виду с хорошо определенным вакуумным состоянием для операторов A. Если в гамильтониане кристалла учесть и члены высшего порядка по операторам B (кинематическое и динамическое взаимодействия) и в них произвести замену (1.1), то вполне очевидно, что не все члены высшего порядка по операторам A будут записаны в порядке нормального произведения. Также очевидно, что при приведении к нормальному произведению членов высшего порядка по операторам A могут возникнуть члены более низкого порядка, в частности, второго, которые, в свою очередь, внесут поправки в результаты, полученные в методе ПВК.

Анализу этого вопроса посвящается настоящая работа. В качестве примера мы рассмотрим систему френкелевских экситонов, поскольку при ее описании метод ПВК широко используется в самом общем виде (см./4/).

2. Вклад от кинематического и динамического взаимодействий в экситонный спектр, полученный в приближении ПВК

В случае двухуровневой схемы (когда молекула кроме основного состояния "0" может находиться лишь в одном возбужденном состоянии "f") гамильтониан системы френкелевских экситонов записывается в виде/5/:

$$H = H_0 + \Delta_f \sum_{\vec{n}} P^+_{f\vec{n}} P_{f\vec{n}} + \sum_{\vec{n}\vec{m}}{}' V_{\vec{n}\vec{m}}(0f;f0) P^+_{f\vec{n}} P_{f\vec{m}} +$$

$$+ \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}}{}' V_{\vec{n}\vec{m}}(00;ff)(P^+_{f\vec{n}} P^+_{f\vec{m}} + P_{f\vec{n}} P_{f\vec{m}}) + \tag{2.1}$$

$$+ \sum_{\vec{n}\vec{m}}{}' U_{\vec{n}\vec{m}}(f) P^+_{f\vec{n}} P^+_{f\vec{m}} P_{f\vec{m}} P_{f\vec{n}} .$$

Здесь использованы следующие обозначения:

$$H_0 = \sum_{\vec{n}} E^0_{\vec{n}} + \frac{1}{2} \sum_{\vec{n}\vec{m}}{}' V_{\vec{n}\vec{m}}(00;00)$$

$$\Delta_f = E^f_{\vec{n}} - E^0_{\vec{n}} + \sum_{\vec{m}}{}' [V_{\vec{n}\vec{m}}(0f;0f) - V_{\vec{n}\vec{m}}(00;00)]$$

$$U_{\vec{n}\vec{m}}(f) = \frac{1}{2} V_{\vec{m}\vec{n}}(ff;ff) + \frac{1}{2} V_{\vec{n}\vec{m}}(00;00) - V_{\vec{n}\vec{m}}(0f;0f)$$

$$E^0_{\vec{n}} = \int \overset{*}{\phi}{}^0_{\vec{n}} \kappa_{\vec{n}} \phi^0_{\vec{n}} \, d\tau_{\vec{n}} \equiv E^0$$

$$E^f_{\vec{n}} = \int \overset{*}{\phi}{}^f_{\vec{n}} \kappa_{\vec{n}} \phi^f_{\vec{n}} \, d\tau_{\vec{n}} \equiv E^f$$

и $V_{\vec n \vec m}(f_1 f_2 ; f_3 f_4) = \int \overset{*}{\phi}{}^{f_1}_{\vec n} \overset{*}{\phi}{}^{f_2}_{\vec m} W_{\vec n \vec m} \phi^{f_3}_{\vec n} \phi^{f_4}_{\vec m} d\tau_{\vec n} d\tau_{\vec m}$ –

– обменные члены, где $\phi^0_{\vec n}$ и $\phi^f_{\vec n}$ – собственные функции гамильтониана $\kappa_{\vec n}$ изолированной молекулы и $W_{\vec n \vec m}$ – оператор диполь-дипольного взаимодействия между молекулами кристалла. Операторы $P^+_{f\vec n}$ и $P_{f\vec n}$ являются операторами Паули и удовлетворяют перестановочным соотношениям:

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

$$[P^+_{f\vec n}, P^+_{f\vec m}] = [P_{f\vec n}\ P_{f\vec m}] = 0. \tag{2.2}$$

Для наглядности результатов в дальнейшем ограничимся случаем простой кубической решетки и используем приближение ближайших соседей. Опуская индекс f , гамильтониан (2.1) перепишем в виде:

$$H = E_0 + \Delta \sum_{\vec n} P^+_{\vec n} P_{\vec n} + M_1 \sum_{\vec n \vec\lambda} P_{\vec n}\ P_{\vec n + \vec\lambda} + \frac{1}{2} M_2 \sum_{\vec n \vec\lambda} (P^+_{\vec n} P^+_{\vec n + \vec\lambda} + \tag{2.3}$$

$$+ P_{\vec n + \vec\lambda} P_{\vec n}) + M_3 \sum_{\vec n \vec\lambda} P^+_{\vec n} P^+_{\vec n + \vec\lambda} P_{\vec n + \vec\lambda} P_{\vec n},$$

где

$$E_0 = NE^0 + \ell N M_0 \ ; \ \Delta = E^f - E^0 + \ell(M_4 - M_0)$$

$$M_1 = V_{|\vec\lambda|}(0f; f0); \ M_2 = V_{|\vec\lambda|}(00; ff); M_4 = V_{|\vec\lambda|}(0f; 0f)$$

$$M_0 = V_{|\vec\lambda|}(00;00); \ M_3 = \frac{1}{2} V_{|\vec\lambda|}(ff; ff) + \frac{1}{2} M_0 - M_4,$$

$\vec\lambda$ – вектор, соединяющий ближайших соседей, и $\ell = 1,2,3$ – размерность кристалла.

Здесь необходимо отметить, что энергия возбуждения отдельной молекулы $E^f - E^0$ порядка нескольких электронвольт, тогда как матричные элементы M_i оператора диполь-дипольного взаимодействия W порядка $10^{-1} - 10^{-2}$ эв. Следовательно, имеет место соотношение:

$$\frac{M_i}{\Delta} \ll 1 ; \quad (i = 1,2,3,4), \tag{2.4}$$

что является существенным для наших дальнейших рассуждений.

Используя точное представление операторов Паули через операторы Бозе[6]

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

$$P_{\vec n} = \Big[\sum_{\nu=0}^{\infty} \frac{(-2)^{\nu}}{(1+\nu)!} B^{+\nu}_{\vec n} B^{\nu}_{\vec n} \Big]^{1/2} B_{\vec n} \tag{2.5}$$

$$B_{\vec n} = \Big[1 - B^{+}_{\vec n} B_{\vec n} + \frac{3+\sqrt{3}}{6} B^{+2}_{\vec n} B^{2}_{\vec n} + \dots \Big] B_{\vec n} ,$$

гамильтониан (2.3) запишем в бозонном представлении в виде:

$$H = H \quad + H_4 + \sum_{l=3}^{\infty} H_{2l} , \tag{2.6}$$

где

$$H \quad = E_0 + \Delta \sum_{\vec n} B^{+}_{\vec n} B_{\vec n} + M_1 \sum_{\vec n \vec\lambda} B^{+}_{\vec n} B_{\vec n + \vec\lambda} + \tag{2.7}$$

$$+ \frac{1}{2} M_2 \sum_{\vec n \vec\lambda} \big(B^{+}_{\vec n} B^{+}_{\vec n + \vec\lambda} + B_{\vec n + \vec\lambda} B_{\vec n} \big)$$

$$H_4 = H_4' + H_4'' \tag{2.8}$$

$$H_4' = -\Delta \sum_{\vec n} B^{+2}_{\vec n} B^{2}_{\vec n} - M_1 \sum_{\vec n \vec\lambda} \big(B^{+2}_{\vec n} B_{\vec n} B_{\vec n + \vec\lambda} + B^{+}_{\vec n} B^{+}_{\vec n + \vec\lambda} B^{2}_{\vec n + \vec\lambda} \big) -$$

$$- \frac{1}{2} M_2 \sum_{\vec n \vec\lambda} \big(B^{+2}_{\vec n} B^{+}_{\vec n + \vec\lambda} B_{\vec n} + B^{+2}_{\vec n + \vec\lambda} B^{+}_{\vec n} B_{\vec n + \vec\lambda} + B^{+}_{\vec n + \vec\lambda} B_{\vec n} B^{2}_{\vec n + \vec\lambda} + \tag{2.8a}$$

$$+ B^{+}_{\vec n} B_{\vec n + \vec\lambda} B^{2}_{\vec n} \big)$$

$$H_4'' = M_3 \sum_{\vec{n}\vec{\lambda}} B^+_{\vec{n}} B^+_{\vec{n}+\vec{\lambda}} B_{\vec{n}+\vec{\lambda}} B_{\vec{n}} \quad . \tag{2.8б}$$

Гамильтонианы H_4' и H_4'' описывают, соответственно, кинематическое и динамическое взаимодействия экситонов. Третий член в (2.6) представляет собой сумму гамильтонианов шестого, восьмого и т.д. порядков по операторам Бозе и, как мы позже увидим, его учёт в данном случае несущественен.

Прежде чем перейти к диагонализации $H_{\text{ПВК}}$ (2.7), мы рассмотрим гамильтониан экситонной системы в более грубом, чем ПВК, приближении Гайтлера-Лондона-Гейзенберга (ГЛГ). В приближении ГЛГ предполагается, что в кристалле возбуждена лишь одна молекула, тогда как в методе ПВК учтена возможность одновременного возбуждения нескольких молекул (см.[5]). За счёт этого в гамильтониане метода ПВК возникает член:

$$\frac{1}{2} M_2 \sum_{\vec{n}\vec{\lambda}} (B^+_{\vec{n}} B^+_{\vec{n}+\vec{\lambda}} + B_{\vec{n}+\vec{\lambda}} B_{\vec{n}}), \tag{2.9}$$

который в гамильтониане приближения ГЛГ отсутствует. Следовательно, экситонный гамильтониан в приближении ГЛГ имеет вид:

$$H = E_0 + \Delta \sum_{\vec{n}} B^+_{\vec{n}} B_{\vec{n}} + M_1 \sum_{\vec{n}\vec{\lambda}} B^+_{\vec{n}} B_{\vec{n}+\vec{\lambda}} \tag{2.10}$$

и после фурье-преобразования операторов Бозе

$$B_{\vec{n}} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{k}} B_{\vec{k}}\, e^{i\vec{k}\vec{n}} \tag{2.11}$$

приводится к диагональному виду:

$$H = E_0 + \sum_{\vec{k}} E_{\text{ГЛГ}}(\vec{k})\, B^+_{\vec{k}} B_{\vec{k}}, \tag{2.12}$$

где

$$E_{\text{ГЛГ}}(\vec{k}) = \Delta + \mu_1(\vec{k}); \quad \mu_1(\vec{k}) = 2M_1 \sum_{\vec{\lambda}>0} \cos \vec{k}\vec{\lambda}. \tag{2.12a}$$

Диагонализуем теперь гамильтониан (2.7) и посмотрим, какие поправки в результаты (2.12) и (2.12а) вносит отброшенный член (2.9). Подстановкой (2.11) в (2.7) мы получим:

$$H_{\text{ПВК}} = E_0 + \sum_{\vec{k}>0} H_{\vec{k}}, \tag{2.13}$$

где:

$$H_{\vec{k}} = \sum_{ss'=1}^{2} [a_{ss'} B_s^+ B_{s'} + \beta_{ss'} (B_s^+ B_{s'}^+ + B_{s'} B_s)] \tag{2.14}$$

$$1 \equiv \vec{k}\ ; 2 \equiv -\vec{k}\ ; \quad a_{11} = a_{22} = \mu_1(\vec{k}); \quad \beta_{12} = \beta_{21} = \mu_2(\vec{k});$$

$$a_{12} = a_{21} = \beta_{11} = \beta_{22} = 0 \tag{2.15}$$

$$\mu_2(\vec{k}) = 2M_2 \sum_{\vec{\lambda}>0} \cos \vec{k}\vec{\lambda}.$$

Уравнение движения для операторов B_s имеет вид:

$$i \frac{d}{dt} B_s(t) = [B_s, H_{\vec{k}}] = \sum_{s'=1}^{2} [a_{ss'} B_{s'}(t) + \beta_{ss'} B_{s'}^+(t)]. \tag{2.16}$$

Переходя от операторов B_s к новым бозе-операторам A_σ с помощью подстановки:

$$B_s(t) = \sum_{\sigma=1}^{2} (u_{s\sigma} e^{-iEt} A_\sigma + \overset{*}{v}_{s\sigma} e^{iEt} A_\sigma^+), \tag{2.17}$$

где:

$$\sum_{\sigma=1}^{2} (u_{s\sigma} \overset{*}{u}_{s'\sigma} - \overset{*}{v}_{s\sigma} v_{s'\sigma}) = \delta_{ss'}\ ; \tag{2.18}$$

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

для определения функций u и v и энергии E получим систему уравнений:

$$
\begin{aligned}
E u_{s\sigma} &= \sum_{s'=1}^{2} (\alpha_{ss'} u_{s'\sigma} + \beta_{ss'} v_{s'\sigma}) \\
-E v_{s\sigma} &= \sum_{s'=1}^{2} (\alpha_{ss'} v_{s'\sigma} + \beta_{ss'} u_{s'\sigma}).
\end{aligned}
\tag{2.19}
$$

Условие нетривиальной разрешимости системы (2.19) сводится к следующему:

$$
\frac{v_{2\sigma}}{u_{1\sigma}} - \frac{v_{1\sigma}}{u_{2\sigma}} = \frac{E-\Delta-\mu_1(\vec{k})}{\mu_2(\vec{k})} = \frac{-\mu_2(\bar{k})}{E+\Delta+\mu_1(\vec{k})}\,;\ (\sigma = 1,2), \tag{2.20}
$$

откуда следует

$$
E_{\text{ПВК}}(\vec{k}) = \sqrt{[\Delta + \mu_1(\vec{k})]^2 - \mu_2^2(\vec{k})} \tag{2.21}
$$

и

$$
\begin{aligned}
u_{11} = u_{22} &= (1-R_{\vec{k}}^2)^{-1/2} \quad ; \quad v_{12} = v_{21} = R_{\vec{k}} (1-R_{\vec{k}}^2)^{-1/2} \\
u_{12} = u_{21} &= v_{11} = v_{22} = 0 \\
R_{\vec{k}} &= \frac{E_{\text{ПВК}}(\vec{k}) - \Delta - \mu_1(\vec{k})}{\mu_2(\vec{k})}.
\end{aligned}
\tag{2.22}
$$

Следовательно, в результате подстановки:

$$
B_{\vec{n}} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\vec{k}} B_{\vec{k}}\, e^{i\vec{k}\vec{n}} \quad ; \quad B_{\vec{k}} = \frac{A_{\vec{k}} + R_{\vec{k}} A^{+}_{-\vec{k}}}{\sqrt{1-R_{\vec{k}}^2}} \tag{2.23}
$$

гамильтониан (2.7) приводится к диагональному виду

$$
H = E_0 + \frac{1}{2} \sum_{\vec{k}} [E_{\text{ПВК}}(\vec{k}) - \Delta - \mu_1(k)] + \sum_{\vec{k}} E_{\text{ПВК}}(\vec{k}) A^{+}_{\vec{k}} A_{\vec{k}}\,. \tag{2.24}
$$

Второе слагаемое в (2.24) представляет собой поправку к энергии основного состояния, возникшую в результате перенормировки вакуумного состояния.

В дальнейшем, учитывая условие (2.4), мы ограничимся приближением, линейным по малой величине $\frac{M_1}{\Delta}$, которое (см. /4,5/) в оптике наиболее часто используется. В этом приближении формулы (2.21) и (2.24) переходят в следующие:

$$E_{\text{ПВК}}(\vec{k}) = \Delta + \mu_1(\vec{k}) - \epsilon_2(\vec{k})\mu_2(\vec{k}) \tag{2.21a}$$

$$H_{\text{ПВК}} = E_0 - \frac{1}{2}\sum_{\vec{k}} \epsilon_2(\vec{k})\mu_2(\vec{k}) + \sum_{\vec{k}} [\Delta + \mu_1(\vec{k}) - \epsilon_2(\vec{k})\mu_2(\vec{k})]\, A^+_{\vec{k}} A_{\vec{k}}, \tag{2.24a}$$

где

$$\epsilon_2(\vec{k}) = \frac{M_2}{\Delta}\sum_{\vec{\lambda}>0} \cos \vec{k}\vec{\lambda}\ . \tag{2.25}$$

Оказывается, что для получения результата (2.24a) в H (2.7) надо использовать следующее преобразование для операторов Бозе:

$$B_{\vec{n}} = \frac{1}{\sqrt{N}}\sum_{\vec{k}} B_{\vec{k}} e^{i\vec{k}\vec{n}}\ ; \tag{2.26}$$

$$B_{\vec{k}} = [1 + \frac{1}{2}\epsilon_2^2(\vec{k})]A_{\vec{k}} - [\epsilon_2(\vec{k}) - 2\epsilon_2(\vec{k})\epsilon_1(\vec{k})]\, A^+_{-\vec{k}},$$

где:

$$\epsilon_1(\vec{k}) = \frac{M_1}{\Delta}\sum_{\vec{\lambda}>0} \cos \vec{k}\vec{\lambda}\ . \tag{2.27}$$

Отсюда следует, что для получения энергетического спектра в линейном приближении по ϵ функции преобразования u и v надо записать в квадратичном по ϵ приближении.

Сравнивая результаты (2.21а) и (2.12а), приходим к выводу, что поправка δE , которую дает метод ПВК по отношению к методу ГЛГ, является в случае френкелевских экситонов малой отрицательной величиной:

$$\delta E = -\epsilon_2(\vec{k})\,\mu_2(\vec{k}). \tag{2.28}$$

Рассмотрим теперь поправки, которые в квадратичную часть H (2.24а) вносят кинематическое и динамическое взаимодействия экситонов. После фурье-преобразований (2.11) формулы (2.8а) и (2.8б) переходят, соответственно, в следующие

$$H_4' = -\frac{1}{N}\sum_{\vec{k}_1\vec{k}_2\vec{k}_3}\{[\Delta+\mu_1(\vec{k}_1+\vec{k}_2-\vec{k}_3)+\mu_1(\vec{k}_1)]B^+_{\vec{k}_1}B^+_{\vec{k}_2}B_{\vec{k}_3}B_{\vec{k}_1+\vec{k}_2-\vec{k}_3}+$$
$$+\mu_2(\vec{k}_1)(B^+_{\vec{k}_1}B^+_{\vec{k}_2}B^+_{\vec{k}_3}B_{\vec{k}_1+\vec{k}_2+\vec{k}_3}+B^+_{\vec{k}_1+\vec{k}_2+\vec{k}_3}B_{\vec{k}_3}B_{\vec{k}_2}B_{\vec{k}_1})\} \tag{2.29}$$

$$H_4'' = \frac{1}{N}\sum_{\vec{k}_1\vec{k}_2\vec{k}_3}\mu_3(\vec{k}_1-\vec{k}_3)B^+_{\vec{k}_1}B^+_{\vec{k}_2}B_{\vec{k}_3}B_{\vec{k}_1+\vec{k}_2-\vec{k}_3}, \tag{2.30}$$

где

$$\mu_3(\vec{k}) = 2M_3\sum_{\vec{\lambda}>0}\cos\vec{k}\vec{\lambda}. \tag{2.31}$$

Операторы $B_{\vec{k}}$ в (2.29) и (2.30) представим через операторы $A_{\vec{k}}$ с помощью преобразования (2.26) и в полученных выражениях сохраним все члены, линейные по малой величине $\frac{M_1}{\Delta}$. Записывая четверные формы по операторам $A_{\vec{k}}$ в порядке нормального произведения и выделяя с учётом равенства:

$$\frac{1}{N}\sum_{\vec{k}\vec{\lambda}>0}\cos\vec{k}\vec{\lambda} = \frac{1}{(2\pi)^\ell}\int_{-\pi}^{\pi}dk_1\ldots dk_\ell\sum_{i=1}^{\ell}\cos k_\ell = 0 \tag{2.32}$$

все возникающие при этом квадратичные члены, получим:

$$H_2' = 2\ell\ M_2\ \gimel_0 \sum_{\vec{k}} A^+_{\vec{k}} A_{\vec{k}}\ ;$$
$$H_2'' = -\frac{1}{2}\gimel_0 \sum_{\vec{k}} \mu_3(\vec{k})(A^+_{\vec{k}}\ A^+_{-\vec{k}} + A_{-\vec{k}}\ A_{\vec{k}}), \qquad (2.33)$$

где

$$\gimel_0 = \frac{M_2}{\Delta}. \qquad (2.34)$$

Гамильтонианы H_2' и H_2'' представляют собой поправки к гамильтониану $H_{\text{ПВК}}$ (2.24а), полученные в результате кинематического и динамического взаимодействия экситонов. Применяя аналогичную процедуру к гамильтониану $\sum_{l=3}^{\infty} H_{2l}$, можно непосредственным расчётом убедиться, что он не дает никакого вклада в квадратичную часть $H_{\text{ПВК}}$.

С учётом кинематических и динамических поправок квадратичный гамильтониан системы френкелевских экситонов запишется в виде:

$$H_2 = E_0 - \frac{1}{2}\sum_{\vec{k}} \epsilon_2(\vec{k})\mu_2(\vec{k}) + \sum_{\vec{k}} [\Delta + \mu_1(\vec{k}) - \epsilon_2(\vec{k})\mu_2(\vec{k}) + 2\ell\ M_2\gimel_0] A^+_{\vec{k}} A_{\vec{k}} -$$
$$-\frac{1}{2}\gimel_0 \sum_{\vec{k}} \mu_3(\vec{k})(A^+_{\vec{k}}\ A^+_{-\vec{k}} + A_{-\vec{k}} A_{\vec{k}}). \qquad (2.35)$$

Гамильтониан H_2 недиагонален. Если перейти к новым бозе-операторам $C^+_{\vec{k}}$ и $C_{\vec{k}}$ с помощью преобразования:

$$A_s = \sum_{\sigma=1}^{2} (\Theta_{s\sigma} C_\sigma + \omega^*_{s\sigma} C^+_\sigma); \quad (1 \equiv \vec{k}\,;\ 2 \equiv -\vec{k}), \qquad (2.36)$$

нетрудно убедиться, что первые поправки к энергии от члена $-\frac{1}{2}\gimel_0 \sum_{\vec{k}} (A^+_{\vec{k}} A^+_{-\vec{k}} + A_{-\vec{k}} A_{\vec{k}})\mu_3(k)$ порядка $(\frac{M_1}{\Delta})^3$, т.е.

$$\delta E_2(\vec{k}) = \gimel_0^2 \epsilon_3(\vec{k})\mu_3(\vec{k}); \quad \epsilon_3(k) = \frac{M_3}{\Delta}\sum_{\lambda>0} \cos \vec{k}\vec{\lambda} \qquad (2.37)$$

и ими, в соответствии с использованным здесь приближением, можно пренебречь. Преобразование (2.36) в квадратичном по ϵ приближении имеет вид:

$$A_{\vec{k}} = C_{\vec{k}} + \partial_0 \epsilon_3 (\vec{k}) C^+_{-\vec{k}} \tag{2.38}$$

и, используя его, мы получим гамильтониан системы френкелевских экситонов в виде:

$$H_2 = E_0 - \frac{1}{2} \sum_{\vec{k}} \epsilon_2 (\vec{k}) \mu_2 (\vec{k}) + \sum_{\vec{k}} E_2 (\vec{k}) C^+_{\vec{k}} C_{\vec{k}} , \tag{2.39}$$

где:

$$E_2 (\vec{k}) = \Delta + \mu_1 (\vec{k}) - \epsilon_2 (\vec{k}) \mu_2 (\vec{k}) + 2 \ell M_2 \partial_0 . \tag{2.40}$$

Напомним, что в оставшихся четверных формах по операторам $A_{\vec{k}}$ из H_4' и H_4'' в линейном по ∂_0 приближении преобразование (2.38) дает только нормальные произведения четвертого порядка по операторам $C_{\vec{k}}$.

Прежде чем обсудить полученные результаты (это будет сделано в следующем параграфе), мы проанализируем вопрос о влиянии кинематического и динамического взаимодействий на экситонный спектр нулевого приближения, используя для операторов Паули представление Дайсона-Малеева (см./7,8/). Следуя работам/7,8/, операторы Паули выразим через операторы Бозе следующим образом:

$$P^+_{\vec{n}} P_{\vec{n}} = B^+_{\vec{n}} B_{\vec{n}} ; \; P^+_{\vec{n}} = B^+_{\vec{n}} ; \; P_{\vec{n}} = B^+_{\vec{n}} - B^+_{\vec{n}} B^2_{\vec{n}} , \tag{2.41}$$

после чего гамильтониан (2.3) принимает вид:

$$H = H \qquad + H_4^{(D)} , \tag{2.42}$$

где:

$$H_4^{(D)} = H_4'^{(D)} + H_4''^{(D)} \tag{2.43}$$

$$H_4'^{(D)} = -M_1 \sum_{\vec{n}\vec{\lambda}} B_{\vec{n}}^{+} B_{\vec{n}+\vec{\lambda}}^{+} B_{\vec{n}}^{2} -$$

$$-\frac{1}{2} M_2 \sum_{\vec{n}\vec{\lambda}} \left(B_{\vec{n}+\vec{\lambda}}^{+} B_{\vec{n}} B_{\vec{n}+\vec{\lambda}}^{2} + B_{\vec{n}}^{+} B_{\vec{n}+\vec{\lambda}} B_{\vec{n}}^{2} \right) \tag{2.43а}$$

$$H_4''^{(D)} = H_4''. \tag{2.43б}$$

Используя формулу (2.28) и применяя аналогичную процедуру, как и раньше, мы получим:

$$H_2'^{(D)} = 2\ell M_2 \supset_0 \sum_{\vec{k}} A_{\vec{k}}^{+} A_{\vec{k}} + \ell M_1 \supset_0 \sum_{\vec{k}} A_{-\vec{k}} A_{\vec{k}} \;;\; H_2''^{(D)} = H_2'' \tag{2.44}$$

и окончательно:

$$H_2^{(D)} = H_2 + \ell M_1 \supset_0 \sum_{\vec{k}} A_{-\vec{k}} A_{\vec{k}}. \tag{2.45}$$

Поправки в энергию от второго члена в (2.45), как мы выше убедились, несущественны, так что представление Дайсона-Малеева приводит к тем же результатам, что и точное бозонное представление (2.5) для операторов Паули.

3. Обсуждение результатов

Полученные выше результаты можно коротко сформулировать следующим образом:

а. Ангармонические эффекты влияют на экситонный спектр нулевого приближения, причём существенными оказываются только поправки от кинематического взаимодействия (см. (2.35) и (2.37)). Энергия основного состояния остается такой же, как в методе ПВК.

б. Учёт поправок от ангармонических экситонных эффектов приводит к завышению энергии, полученной в методе ПВК. Действительно, если рассмотреть щели в экситонном спектре, полученные в приближении ГЛГ, в методе ПВК, и с учётом поправок от кинематического взаимодействия, то мы увидим, что

$$E_{ГЛГ}(0) = \Delta + 2\ell M_1 \; ; \; E_{ПВК}(0) = E_{ГЛГ}(0) - 2\ell^2 M_2 \geq 0$$

$$E_2(0) = E_{ГЛГ}(0) - 2\ell(\ell-1) M_2 \geq 0 \, , \tag{3.1}$$

т.е.

$$E_{ПВК}(0) < E_2(0) < E_{ГЛГ}(0). \tag{3.2}$$

Интересно отметить, что в одномерных структурах $(\ell = 1)$, $E_2(0)$ и $E_{ГЛГ}(0)$ совпадают. В связи с этим отметим, что авторы работы /9/, анализируя ферромагнетик с одноосной анизотропией пришли к аналогичному выводу:

в. Все выводы а. и б. подтверждаются в двух представлениях операторов Паули через операторы Бозе: в точном бозонном представлении работы /6/ и в представлении Дайсона-Малеева.

В заключение отметим, что аналогичный анализ можно провести и в более сложных решетках, чем простая кубическая, а также и в случае многоуровневой экситонной схемы, когда экситонные операторы являются квазипаулиевскими (см. /2/). Возникающие при этом трудности могут иметь лишь технический характер, так как соответствующий анализ требует громоздких расчётов.

Литература

1. Н.Н. Боголюбов. "Лекции по квантовой статистике", Киев, 1949 г.
2. D.I. Lalovic, B.S. Tosic and R.B. Zakula. Phys. Rev., 178, 1472 (1969).
3. С.В. Тябликов. "Методы квантовой теории магнетизма", Наука, Москва, 1965 г.

4. В.М. Агранович. "Теория экситонов", Наука, Москва, 1969 г.
5. В.М. Агранович. ЖЭТФ, 37, 430 (1959).
6. В.М. Агранович, Б.С. Тошич. ЖЭТФ, 53, 149 (1967).
7. F.J. Dyson. Phys. Rev., 102, 1217 (1956).
8. С.В. Малеев. ЖЭТФ, 33, 1010 (1957).
9. D.R. Fredkin and H.B. Shore. J. Phys. Chem. Solids, 31, 2159 (1970).

Рукопись поступила в издательский отдел
23 июня 1971 года.