

Univerzitet u Beogradu
Fizički fakultet

Master rad

Neravnotežna optička provodnost u sistemu sa
lokalizovanim elektronskim stanjima

student **Veljko Janković**

rukovodilac rada **dr Nenad Vukmirović**

Beograd, 2014. godina

Ovaj rad je u celosti izrađen u Laboratoriji za primenu računara u nauci Instituta za fiziku u Beogradu, pod neposrednim rukovodstvom dr Nenada Vukmirovića, višeg naučnog saradnika Instituta za fiziku. Nenadu se zahvaljujem pre svega na više nego korektnoj međusobnoj saradnji, pokazanom strpljenju i spremnosti da sa mnom uvek opširno diskutuje o različitim aspektima fizičkih problema sa kojima smo se tokom izrade ovog rada susreli. Osoblju Laboratorije za primenu računara u nauci dugujem zahvalnost za podsticajno okruženje i prijatnu radnu atmosferu.

Sadržaj

1	Uvod	2
1.1	Metodi za opis neravnotežnih sistema	2
1.2	Kuboova teorija linearnog odziva	3
1.3	Neuređeni sistemi sa lokalizovanim stanjima	4
1.4	Pregled sadržaja rada	7
2	Linearni odziv. Formula za neravnotežnu optičku provodnost	9
3	Transportne osobine u prisustvu elektron–fonon interakcije	14
3.1	Modelni hamiltonijan. Izraz za optičku provodnost	15
3.2	Provodnost skakutanjem između lokalizovanih stanja	18
3.2.1	Slučaj ravnotežne elektronske raspodele	18
3.2.2	Slučaj neravnotežne elektronske raspodele u limesu niske koncentracije nosilaca	22
3.3	Direktna apsorpcija od spoljašnje pobude	25
4	Transportne osobine u prisustvu dodatnog statičkog potencijala	26
4.1	Modelni hamiltonijan. Izraz za optičku provodnost	26
4.2	Prelazak na jednočestičnu sliku	27
5	Kuboova formula za provodnost	29
5.1	Veza između kvantne difuzije i disipacije	29
5.2	Primena na model sa elektron–fonon interakcijom	32
5.3	Primena na model sa dodatnim statičkim potencijalom	34
6	Numerički rezultati	36
6.1	Model sa Gausovom neuređenošću i Miler–Abrahamsovim verovatnoćama	36
7	Zaključak	42

Glava 1

Uvod

Transportne pojave u različitim materijalima zaokupljaju pažnju fizičara već više od jednog veka. Proučavanje transporta naelektrisanja u čvrstim telima i praktična primena dobijenih rezultata imaju već dugi niz decenija i neposredan uticaj na svakodnevni život. Odziv posmatranog sistema na dovoljno slaba spoljašnja polja moguće je opisati *funkcijama odziva*. U ovom radu ćemo proučavati transport naelektrisanja: funkcija odziva koja opisuje odziv sistema na primenjeno električno polje je provodnost. Cilj je povezati funkcije odziva, koje su makroskopske osobine sistema, sa mikroskopskim karakteristikama sistema.

Stanje sistema koji se nalazi u spoljašnjem električnom polju ili je pobuđen elektromagnetnim talasom *nije* termodinamički ravnotežno. Postoje mnoge tehnike opisa neravnotežnih sistema, a neke od njih ćemo ukratko prikazati u odeljku **1.1**. Za opis neravnotežnih fenomena u stanjima koja su bliska ravnotežnom stanju naročito se pogodnom pokazala Kuboova teorija linearnog odziva, čiji su centralni rezultati prikazani u odeljku **1.2**. U odeljku **1.3** su date osnovne osobine neuređenih sistema sa lokalizovanim stanjima, dok je pregled sadržaja rada dat u odeljku **1.4**.

1.1 Metodi za opis neravnotežnih sistema

Prvi metodi računanja provodnosti zasnivali su se na semiklasičnom modelu dinamike elektrona u čvrstim telima. Centralna jednačina u ovom pristupu je *Bolcmanova jednačina*, koja je krajem XIX veka predložena u kontekstu kinetičke teorije gasova. Bolcmanova jednačina je jednačina kretanja za (jednočestičnu) *funkciju raspodele* $f(\vec{r}, \vec{p}, t)$ koja je srazmerna verovatnoći nalaženja elektrona u trenutku t u tački faznog prostora (\vec{r}, \vec{p}) . Interakcije elektrona sa drugim elektronima, kao i sa drugim stepenima slobode (fononima, statičkim nečistoćama,...) se smatraju tačkastim u prostoru i vremenu. Bolcmanova jednačina formalno iskazuje činjenicu da je ukupna promena funkcije raspodele usled determinističke jednočestične evolucije jednaka ukupnoj promeni funkcije raspodele usled interakcije elektrona sa drugim elektronima ili drugim stepenima slobode [1].

Dinamika elektrona u čvrstim telima je, naravno, kvantna, a problem njenog opisa je složeni problem fizike mnogočestičnih sistema. Od teorijskih metoda koji se koriste u opisu dinamike mnogočestičnih sistema pomenućemo *formalizam neravnotežnih Grinovih funkcija* i *formalizam matrice gustine*.

Formalizam neravnotežnih Grinovih funkcija razvili su tokom 1960–tih godina Kadanof i Bajm [2] i Keldiš [3]. Ovaj formalizam predstavlja proširenje formalizma ravnotežnih Grinovih funkcija na neravnotežne sisteme, odnosno na situacije u kojima sistem, koji je pre dejstva spoljašnje perturbacije bio u ravnotežnom stanju, ne mora da ostane u stanju koje je blisko ravnotežnom. Osnovni entitet ovog formalizma je konturno–uređena Grinova funkcija za koju je moguće, kao i u ravnotežnom slučaju, napisati Dajsonovu jednačinu. Centralna aproksimacija u ovom formalizmu je aproksimacija za sopstvenu energiju, koja se računa sumiranjem određenog podskupa dijagrama koji biramo tako da se uzmu u obzir dominantni procesi interakcije u posmatranom sistemu.

U formalizmu matrice gustine, osnovni objekti su *jednočestične matrice gustine* [4]. Naime, veliki broj eksperimentalno merljivih veličina, kao što je npr. gustina električne struje, su jednočestične prirode i mogu se izraziti pomoću jednočestičnih matrica gustine. Osnovne jednačine su jednačine kretanja za jednočestične matrice gustine. Sistem tih jednačina, zbog mnogočestične prirode problema, nije zatvoren, već je samo prvi u lancu sistema jednačina za matrice gustine višeg reda. Problem je u velikoj meri ekvivalentan (do na razliku u statistici) BBGKY hijerarhiji (*Bogoliubov, Born, Green, Kirkwood, Yvon*) jednačina u klasičnoj kinetičkoj teoriji gasova. Centralna aproksimacija formalizma je *odsecanje* dobijene hijerarhije jednačina, što je bazirano na različitim fizičkim pretpostavkama. Često se uzima da sa povećanjem broja čestica koje učestvuju u višestestičnoj matrici gustine njen doprinos ukupnoj dinamici postaje sve manji, pa se hijerarhija zatvara tako što se uzme da su sve višestestične matrice gustine, počevši od nekog broja čestica, jednake nuli.

1.2 Kuboova teorija linearnog odziva

Za dalji tok izlaganja biće značajna teorija linearnog odziva, koju je sredinom 1950–tih predložio japanski fizičar Kubo. Kuboove formule povezuju funkcije odziva sistema na koji deluju slaba spoljašnja polja, tako da je stanje sistema blisko ravnotežnom, sa ravnotežnim korelacionim funkcijama relevantnih fizičkih veličina. Izlaganje prati referencu [5].

Pretpostavimo da na sistem deluje spoljašnje polje $F(t, \vec{r})$ i da sistem na to polje odgovara kroz nenultu vrednost neke fizičke veličine $p(\vec{r})$, koja se može shvatiti kao očekivana vrednost operatora $\hat{p}(\vec{r})$. Pod pretpostavkom da se spoljašnje polje linearno spreže sa posmatranim sistemom, hamiltonijan sistema u spoljašnjem polju se može zapisati kao

$$\hat{H} = \hat{H}_0 - \int d^3\vec{r} \hat{q}(\vec{r}) F(\vec{r}, t) \equiv \hat{H}_0 + \hat{H}'(t). \quad (1.1)$$

Deo hamiltonijana \hat{H}_0 opisuje sistem u odsustvu spoljašnjeg polja, dok je $\hat{q}(\vec{r})$ opservabla sistema koja se linearno spreže sa poljem $F(t, \vec{r})$. Posmatrajmo odziv sistema na oscilatorno polje

$$F(\vec{r}, t) = F_0(\vec{r}) e^{-i(\omega+i\eta)t} \quad (1.2)$$

Infinitesimalni pozitivni imaginarni deo $i\eta$ se dodaje frekvenciji ω u jednačini (1.2) da označi da je u $t \rightarrow -\infty$ spoljašnje polje jednako nuli i da se sa protokom vremena ono postepeno uključuje. Kada $t \rightarrow -\infty$, stanje sistema je opisano ravnotežnim statističkim operatorom

$$\hat{\rho}_0 = \frac{e^{-\beta\hat{H}_0}}{\text{Tr} e^{-\beta\hat{H}_0}}, \quad (1.3)$$

gde je $\beta = (k_B T)^{-1}$, odnosno pretpostavljamo da je sistem u kontaktu sa termalnim rezervoarom koji, u odsustvu primenjenog spoljašnjeg polja, održava sistem u ravnoteži na temperaturi T . Statistički operator sistema u trenutku t se dobija rešavanjem jednačine

$$i\hbar \frac{d\hat{\rho}(t)}{dt} = [\hat{H}, \hat{\rho}(t)]. \quad (1.4)$$

Vrednost fizičke veličine p u tački \vec{r} i trenutku t je data kao

$$\langle \hat{p}(\vec{r}) \rangle_t = \text{Tr} (\hat{\rho}(t) \hat{p}(\vec{r})). \quad (1.5)$$

Pretpostavljajući da je u ravnoteži veličina p jednaka nuli, odnosno

$$\text{Tr} (\hat{\rho}_0 \hat{p}(\vec{r})) = 0, \quad (1.6)$$

za srednju vrednost veličine p u prisustvu spoljašnjeg polja se dobija, do članova linearnih po spoljašnjoj perturbaciji,

$$\langle \hat{p}(\vec{r}) \rangle_t = -\frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t dt' \text{Tr} \left(e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 (t-t')} [\hat{H}'(t'), \hat{\rho}_0] e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 (t-t')} \hat{p}(\vec{r}) \right). \quad (1.7)$$

Linearna veza između $p(\vec{r})$ i $F(t, \vec{r})$ je oblika

$$\langle \hat{p}(\vec{r}) \rangle_t = \int d^3\vec{r}' \int_{-\infty}^t dt' \chi(\vec{r}, \vec{r}', t, t') F(t', \vec{r}') \quad , \quad (1.8)$$

gde *funkcija odziva* $\chi(\vec{r}, \vec{r}', t, t')$ opisuje linearni odziv sistema na spoljašnje polje, koji je u opštem slučaju *nelokalan* i u prostoru i u vremenu, a takođe je i *kauzalan*, jer se integracija vrši po svim trenucima $t' < t$. Funkcija odziva $\chi(\vec{r}, \vec{r}', t, t')$ za slučaj prostorno homogenog sistema zavisi samo od razlike $\vec{r} - \vec{r}'$. Koristeći jednačine (1.7) i (1.8), odmah se dobija funkcija odziva koja u posmatranom slučaju zavisi samo od razlike $t - t'$

$$\chi(\vec{r}, \vec{r}', t, t') = \chi(\vec{r}, \vec{r}', t - t') = \frac{i}{\hbar} \text{Tr} (\hat{\rho}_0 [\hat{p}(\vec{r}, t - t'), \hat{q}(\vec{r}', 0)]) \theta(t - t') \quad , \quad (1.9)$$

gde je

$$\hat{p}(\vec{r}, t) = e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 t} \hat{p}(\vec{r}) e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 t} . \quad (1.10)$$

Za oscilatorno spoljašnje polje, rezultat (1.7) se može zapisati i u obliku

$$\langle \hat{p}(\vec{r}) \rangle_t = \int d^3\vec{r}' \chi(\vec{r}, \vec{r}', \omega) F_0(\vec{r}') e^{-i\omega t} \quad , \quad (1.11)$$

gde je uvedena funkcija odziva zavisna od frekvencije

$$\chi(\vec{r}, \vec{r}', \omega) = \frac{i}{\hbar} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \text{Tr} (\hat{\rho}_0 [\hat{p}(\vec{r}, t), \hat{q}(\vec{r}', 0)]) \quad . \quad (1.12)$$

Poslednja formula povezuje funkciju odziva, koja je *neravnotežna* osobina sistema, sa *ravnotežnim* korelacionim funkcijama (za dati problem) relevantnih opservabli sistema.

1.3 Neuređeni sistemi sa lokalizovanim stanjima

Transportne osobine neuređenih materijala aktivno se proučavaju već više decenija. Osnovna odlika neuređenih sistema je odsustvo dugodometnog poretka, karakterističnog za kristalne sisteme. Za opisivanje elektronske strukture neuređenih materijala koriste se iste aproksimacije kao i prilikom opisanja elektronske strukture kristala: smatra se da su atomi kruti (zanemaruje se njihovo termalno kretanje), a da elektroni ne interaguju međusobno¹. U kristalnim materijalima, talasne funkcije pojedinačnog elektrona, koje se dobijaju rešavanjem jedneelektronske Šredingerove jednačine, su Blohovog tipa

$$\psi_{\vec{k}}(\vec{r}) = u_{\vec{k}}(\vec{r}) e^{i\vec{k}\vec{r}} \quad , \quad (1.13)$$

gde je funkcija $u_{\vec{k}}(\vec{r})$ periodična sa periodom rešetke, a talasni vektor \vec{k} je dobar kvantni broj. U neuređenim materijalima, talasne funkcije pojedinačnog elektrona $\psi_{\epsilon}(\vec{r})$ (koje odgovaraju energiji elektrona ϵ) nisu Blohovog tipa, a osnovni koncept koji se prenosi iz teorije elektronske strukture kristala je koncept *gustine stanja* $g(\epsilon)$. Gustina stanja $g(\epsilon)$ se definiše tako da je $g(\epsilon) d\epsilon$ broj elektronskih stanja po jedinici zapremine čije su energije u uskom intervalu energija između ϵ i $\epsilon + d\epsilon$ i čija je projekcija spina fiksirana. Elektronska struktura kristala je *zonskog tipa*: postoje trake dozvoljenih elektronskih stanja ($g(\epsilon) \neq 0$) razdvojene oblastima u kojima je $g(\epsilon) = 0$, tzv. procepima. U neuređenim sistemima, elektronska struktura zadržava esencijalne osobine zonske strukture kristala. Postoje oblasti visoke gustine elektronskih stanja (koje odgovaraju trakama dozvoljenih elektronskih stanja), razdvojene oblastima u kojima je gustina stanja i nekoliko redova veličine manja (koje odgovaraju procepima). Međutim, ukoliko je neuređenost dovoljno jaka, pojavljuju se *lokalizovana stanja*.

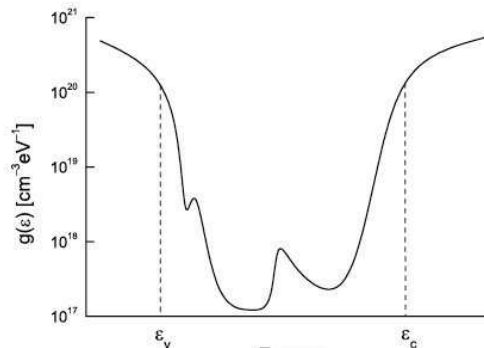
¹ Međusobna interakcija elektrona se može aproksimativno tretirati u aproksimaciji samousaglašenog polja kroz jednočestični potencijal koji opisuju efekte svih ostalih elektrona na uočeni.

Talasnne funkcije takvih stanja su bitno različite od nule samo u ograničenom delu prostora, a na velikim rastojanjima od centra lokalizacije \vec{R} opadaju eksponencijalno sa rastojanjem [7]

$$\psi(\vec{r}) \sim \exp\left(-\frac{|\vec{r}-\vec{R}|}{\alpha}\right) \quad , \quad (1.14)$$

gde je α dužina lokalizacije. Lokalizovana stanja, naravno, postoje i u kristalnim materijalima (npr. donorska i akceptorska stanja u poluprovodnicima su lokalizovana), ali se u elektronskoj strukturi tih materijala najčešće pojavljuju u obliku diskretnih energijskih nivoa (u gustini stanja njihov doprinos se izražava pomoću δ -funkcija). U neuređenim sistemima, ukoliko je neuređenost dovoljno jaka, lokalizovana stanja *kontinualno popunjavaju delove energetskog spektra*. Ovaj fenomen je 1958. godine prvi uočio Anderson u radu *On the Absence of Diffusion in Certain Random Lattices*, u kome je prvi put dat kvantitativni kriterijum dovoljno jake neuređenosti sistema [6].

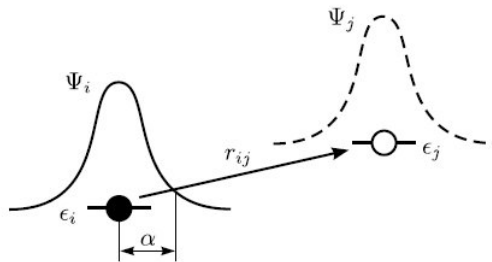
Nosioci u lokalizovanim stanjima ne doprinose električnoj provodnosti $\sigma_{dc} = \lim_{\omega \rightarrow 0} \sigma(\omega)$ na $T = 0\text{K}$, kada interakcije sa drugim stepenima slobode, npr. fononima, ili međusobne interakcije nosilaca, postaju zanemarljive. Sa druge strane, elektroni u delokalizovanim stanjima uvek doprinose električnoj provodnosti (srednja brzina u tim stanjima je različita od nule). Na upravo opisanoj razlici između lokalizovanih i delokalizovanih stanja se zasniva Motov koncept *ivice pokretljivosti (mobility edge)* kao onog energijskog nivoa koji razdvaja oblast lokalizovanih od oblasti delokalizovanih stanja. Lokalizovana stanja se tipično pojavljuju na granicama oblasti energija u kojima gustina stanja ima visoke vrednosti, dok su stanja unutar tih oblasti delokalizovana. Kolokvijalno se te oblasti i kod neuređenih sistema nazivaju zonama, pa kažemo da je moguće definisati ivice pokretljivosti ϵ_c za provodnu zonu i ϵ_v za valentnu zonu. Za $\epsilon > \epsilon_c$ elektronska stanja su delokalizovana, dok su za $\epsilon < \epsilon_c$ lokalizovana. Za $\epsilon > \epsilon_v$ šupljinska stanja su lokalizovana, dok su za $\epsilon < \epsilon_v$ delokalizovana. Elektronska i šupljinska stanja sa energijama između ϵ_v i ϵ_c su sva lokalizovana i nalaze se u tzv. *procepu pokretljivosti (mobility gap)*. Tipičan izgled gustine stanja $g(\epsilon)$ u neuređenom sistemu dat je na slici 1.1.



Slika 1.1: Tipičan izgled gustine elektronskih stanja $g(\epsilon)$ u amorfnom poluprovodniku; ϵ_c i ϵ_v su, redom, ivice pokretljivosti u provodnoj i valentnoj zoni. Preuzeto iz [7].

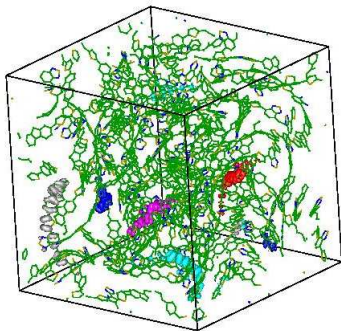
Kod gotovo svih neorganskih amorfni poluprovodnika (tipični predstavnici ove klase materijala su amorfni silicijum i germanijum), Fermijev nivo se nalazi u oblasti lokalizovanih elektronskih stanja, odnosno u procepu pokretljivosti. Pokretljivost elektrona sa energijama manjim od ϵ_c je i nekoliko redova veličine manja od pokretljivosti nosilaca sa energijama iznad ϵ_c . Stoga, na dovoljno visokim temperaturama, kada značajan deo elektrona može da se nađe u delokalizovanim stanjima, dominantan doprinos provodnosti potiče upravo od tih elektrona. Transport naelektrisanja u tom slučaju podseća na transport u uređenim kristalnim poluprovodnicima: elektroni sa energijama u opsegu širine $k_B T$ iznad ϵ_c daju dominantan doprinos provodnosti. Sa snižavanjem temperature, koncentracija elektrona u delokalizovanim stanjima eksponencijalno opada i njihov doprinos provodnosti iščezava. Dominantni deo provodnosti tada potiče od elektrona u lokalizovanim stanjima, koji tada *skakuću* iz jednog lokalizovanog stanja u drugo. Česta je pretpostavka da se skakanje između lokalizovanih stanja obavlja

pod uticajem interakcije sa fononima i takav tip transporta se naziva *transport skakutanjem* (*hopping transport*). Shematski prikaz skoka nosilaca između dva lokalizovana stanja dat je na slici 1.2.



Slika 1.2: Shematski prikaz skakutanja nosioca naelektrisanja između lokalizovanih stanja i i j sa energijama ϵ_i i ϵ_j ; puna i isprekidana linija prikazuju talasne funkcije u stanjima i , odnosno j ; veličina α je dužina lokalizacije definisana u jednačini (1.14), dok je r_{ij} rastojanje između centara lokalizacije. Preuzeto iz [7].

Transport skakutanjem nosilaca naelektrisanja između lokalizovanih stanja je dominantan mehanizam transporta naelektrisanja u neuređenim organskim materijalima, kao što su konjugovani polimeri. U tim materijalima, lokalizacija nosilaca naelektrisanja je veoma izražena; talasne funkcije su lokalizovane zbog neuređene strukture polimernih lanaca u realnim materijalima. Na slici 1.3 su prikazane talasne funkcije za nekoliko najviših stanja u valentnoj zoni za sistem od 12 polimernih lanaca (konačne dužine) APFO–3 polimera. Prilikom teorijskog modeliranja ovakvog načina transporta, pretpostavlja



Slika 1.3: Površine sa konstantnom vrednošću kvadrata modula talasne funkcije za nekoliko najviših stanja u valentnoj zoni za sistem od 12 polimernih lanaca (konačne dužine) APFO–3 polimera. Najviši energijski nivo u valentnoj zoni je prikazan plavom bojom, dok su za sukcesivne niže energetske nivoe površine sa konstantnom vrednošću kvadrata modula talasne funkcije prikazane redom crvenom, ružičastom, svetlo plavom i sivom bojom. Preuzeto iz [8].

se da su lokalizovana stanja za elektrone na slučajan način raspoređena u prostoru sa koncentracijom n_0 , a da je njihova energijska raspodela opisana gustinom stanja $g(\epsilon)$ koja je oblika

$$g(\epsilon) = \frac{n_0}{\epsilon_0} G\left(\frac{\epsilon}{\epsilon_0}\right) \quad , \quad (1.15)$$

gde je ϵ_0 tipična energijska skala gustine stanja, a $G(x)$ u principu proizvoljna funkcija.

Prilikom opisa transporta u neorganskim amorfnim materijalima, gustina elektronskih stanja se često aproksimira eksponencijalnom raspodelom

$$g(\epsilon) = \frac{n_0}{\epsilon_0} e^{-\epsilon/\epsilon_0} \quad , \quad (1.16)$$

gde se uzima da je ϵ pozitivno i raste idući od ivice pokretljivosti prema centru procepa pokretljivosti. Tipična energijska skala gustine stanja ϵ_0 kod neuređenih organskih materijala najčešće se uzima u

opsegu od ~ 0.025 eV do ~ 0.05 eV, zavisno od vrste materijala.

Prilikom opisa transporta u neuređenim organskim materijalima, gustina elektronskih stanja se često aproksimira Gausovom raspodelom

$$g(\epsilon) = \frac{n_0}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\epsilon^2/(2\sigma^2)} \quad . \quad (1.17)$$

Za većinu neuređenih organskih materijala energijska skala σ predložene Gausove raspodele je $\sigma \sim 0.1$ eV.

Treba naglasiti da su gustine stanja (1.16) i (1.17) predložene na osnovu eksperimentalnih podataka i da stvarne gustine stanja, naravno, nisu poznate, kao ni precizna struktura lokalizovanih jednočestičnih talasnih funkcija, što je glavni problem kod kvantitativnog opisa transporta u neuređenim sistemima.

1.4 Pregled sadržaja rada

U ovom radu ćemo proučavati transport naelektrisanja u neuređenim sistemima u kojima postoje lokalizovana stanja za nosioce naelektrisanja. Teorijski okvir u kojem ćemo raditi je teorija linearnog odziva koju ćemo modifikovati tako da možemo opisivati linearni odziv sistema van ravnoteže. Opšte je prihvaćeno da se transport naelektrisanja u neuređenim sistemima sa lokalizovanim stanjima pod izvesnim uslovima (koji su opisani u **1.3**) obavlja skakutanjem između lokalizovanih stanja. U modelima se najčešće pretpostavlja da interakcija elektrona sa fononima dovodi do skakutanja. Kao mehanizme koji dovode do skakutanja, u ovom radu ćemo razmatrati interakciju elektrona sa fononima (glava **3**) i sa dodatnim statičkim potencijalom (glava **4**).

U glavi **2** je detaljno izvedena formula za provodnost koja će biti korišćena u ovom radu. Dobijena formula za provodnost, koja opisuje linearni odziv sistema van ravnoteže, gotovo je potpuno analogna formulama za provodnost koje opisuju linearni odziv u stanju koje je blisko ravnotežnom, jer ćemo provodnost izraziti kao korelacionu funkciju struje u neravnotežnom stanju. Izvođenje u glavi **2** je dato za slučaj kada je stanje sistema neposredno pre uključivanja spoljašnjeg električnog polja opisano statističkim operatorom $\hat{\rho}(0)$ koji komutira sa hamiltonijanom \hat{H}_0 sistema u odsustvu interakcije sa spoljašnjim poljem, videti odeljak **1.2**. Potom je, za modelne hamiltonijane razmatrane u glavama **3** i **4**, bez pozivanja na gore navedenu pretpostavku komutiranja i smatrajući da se interakcija sa fononima, odnosno dodatnim statičkim potencijalom, može tretirati perturbativno, u najnižem redu teorije perturbacija u kojem se dobija netrivialan rezultat izvedena formula za provodnost formalno analogna formuli dobijenoj u glavi **2**.

Polazeći od pretpostavke da su elektronska stanja koja učestvuju u transportu lokalizovana, u glavama **3** i **4** pokazaćemo da se realni deo optičke provodnosti u najnižem redu teorije perturbacija izražava preko verovatnoća jednočestičnih prelaza u jedinici vremena između lokalizovanih stanja. Oblik formule je nezavisan od toga da li je interakcija koja dovodi do skakutanja interakcija sa fononima ili sa dodatnim statičkim potencijalom. Pomenuti jednočestični prelazi obavljaju se interakcijom sa fononima, odnosno statičkim potencijalom, kombinovanom sa interakcijom sa spoljašnjim poljem. Provodnost smo, dakle, uspešili da povežemo sa mikroskopskim osobinama sistema, a formula koju smo dobili ima veoma jednostavan oblik.

U glavi **5** je detaljno izveden poznat oblik Kuboove formule za provodnost u kojem se disipativni deo optičke provodnosti povezuje sa vremenski zavisnom disperzijom položaja nosilaca naelektrisanja. Potom je pokazano da se rezultati izvedeni u glavama **3** i **4** u specijalnom slučaju ravnotežnog stanja sistema neposredno pre uključivanja spoljašnjeg polja svode na rezultate koji se dobijaju primenom gore pomenutog oblika Kuboove formule za provodnost.

Formule za pokretljivost izvedene u glavi **3** su primenjene na jednostavan jednodimenzionalni model transporta naelektrisanja skakutanjem između lokalizovanih stanja, u kojem smo neuređenost sistema modelirali Gausovom neuređenošću po energijama, dok smo za verovatnoće prelaza u jedinici vremena uzimali Miler–Abrahamsove verovatnoće (umesto verovatnoća prelaza dobijenih u glavi **3**). Numerički i analitički rezultati za ovaj model, kao i komentar opravdanosti korišćenja Miler–Abrahamsovih verovatnoća, dati su u glavi **6**. Kratak osvrt na glavne rezultate ovog rada dajemo u glavi **7**.

Glava 2

Linearni odziv. Formula za neravnotežnu optičku provodnost

Pretpostavimo da je posmatrani fizički sistem u odsustvu interakcije sa spoljašnjom perturbacijom opisan hamiltonijanom \hat{H}_0 . U nekom trenutku (na primer $t = 0$) na sistem počne da deluje spoljašnja perturbacija, čija je interakcija sa sistemom opisana hamiltonijanom $\hat{H}'(t)$. Uzećemo da je stanje sistema neposredno pre uključivanja perturbacije (u trenutku $t = 0$) opisano statističkim operatorom $\hat{\rho}(0)$. Rešićemo jednačinu evolucije za statistički operator sistema do članova linearnih po spoljašnjoj perturbaciji. Na konkretnom primeru gustine električne struje, izvešćemo izraze za provodnost sistema van ravnoteže (2.21) i (2.27) koji su analogni opštih relacija (1.9) i (1.12) za funkciju odziva ravnotežnog sistema. Funkciju odziva koja opisuje linearni odziv sistema van ravnoteže ćemo povezati sa korelacionom funkcijom (za dati problem relevantnih osobina sistema) računatom u neravnotežnom stanju.

Statistički operator $\hat{\rho}(t)$ koji opisuje stanje sistema u prisustvu spoljašnje perturbacije zadovoljava jednačinu

$$i\hbar \frac{d\hat{\rho}(t)}{dt} = [\hat{H}_0 + \hat{H}'(t), \hat{\rho}(t)]. \quad (2.1)$$

U odsustvu interakcije sistema sa perturbacijom, statistički operator $\hat{\rho}_{\text{free}}(t)$ zadovoljava jednačinu

$$i\hbar \frac{d\hat{\rho}_{\text{free}}(t)}{dt} = [\hat{H}_0, \hat{\rho}_{\text{free}}(t)], \quad (2.2)$$

čije je rešenje, uz početni uslov $\hat{\rho}_{\text{free}}(0) = \hat{\rho}(0)$,

$$\hat{\rho}_{\text{free}}(t) = e^{-i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t} \hat{\rho}(0) e^{i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t}. \quad (2.3)$$

Pod pretpostavkom da je ta interakcija slaba, moguće je zadržati se na *linearnom odzivu sistema*, odnosno rešiti jednačinu (2.1) do članova linearnih po $\hat{H}'(t)$ zapisujući rešenje u obliku

$$\hat{\rho}(t) = \hat{\rho}_{\text{free}}(t) + \hat{f}(t). \quad (2.4)$$

Ovde treba odmah naglasiti da u ovom radu *nećemo* proučavati relaksaciju sistema ka ravnotežnom stanju, odnosno smatraćemo da je karakteristična vremenska skala perturbacije $\hat{H}'(t)$ znatno kraća od vremena relaksacije τ . S obzirom na to da ćemo posmatrati odziv posmatranog sistema na spoljašnje električno polje frekvencije ω , uslov formulisan u prethodnoj rečenici formalno se može iskazati kao $\omega\tau \gg 1$.

Nakon zamene (2.4) u (2.1) dobija se

$$i\hbar \frac{d\hat{\rho}_{\text{free}}(t)}{dt} + i\hbar \frac{d\hat{f}(t)}{dt} = [\hat{H}_0, \hat{\rho}_{\text{free}}(t)] + [\hat{H}_0, \hat{f}(t)] + [\hat{H}'(t), \hat{\rho}_{\text{free}}(t)] + [\hat{H}'(t), \hat{f}(t)]. \quad (2.5)$$

Koristeći jednačinu (2.2) i zanemarujući član $[\hat{H}'(t), \hat{f}(t)]$, sledi

$$i\hbar \frac{d\hat{f}(t)}{dt} - [\hat{H}_0, \hat{f}(t)] = [\hat{H}'(t), \hat{\rho}_{\text{free}}(t)], \quad (2.6)$$

odnosno

$$i\hbar \frac{d}{dt} \left(e^{i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t} \hat{f}(t) e^{-i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t} \right) = e^{i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t} [\hat{H}'(t), \hat{\rho}_{\text{free}}(t)] e^{-i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t}. \quad (2.7)$$

Rešenje poslednje jednačine, uz početni uslov $\hat{f}(0) = \hat{0}$, je

$$\hat{f}(t) = \frac{1}{i\hbar} e^{-i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t} \left(\int_0^t dt' e^{i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t'} [\hat{H}'(t'), \hat{\rho}_{\text{free}}(t')] e^{-i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t'} \right) e^{i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t}. \quad (2.8)$$

Konačno se za $\hat{\rho}(t)$, zadržavajući se na članovima linearnim po $\hat{H}'(t)$, dobija [9]

$$\begin{aligned} \hat{\rho}(t) &= e^{-i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t} \hat{\rho}(0) e^{i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t} + \frac{1}{i\hbar} \int_0^t dt' [e^{-i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}(t-t')} \hat{H}'(t') e^{i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}(t-t')}, e^{-i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t} \hat{\rho}(0) e^{i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t}] \\ &= e^{-i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t} \hat{\rho}(0) e^{i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t} + \frac{1}{i\hbar} e^{-i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t} \int_0^t dt' [\hat{H}'_I(t'), \hat{\rho}(0)] e^{i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t}. \end{aligned} \quad (2.9)$$

Ovde je uvedena oznaka

$$\hat{H}'_I(t) = e^{i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t} \hat{H}'(t) e^{-i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t}$$

koja označava spoljašnju perturbaciju u interakcionoj slici u odnosu na ukupni hamiltonijan $\hat{H}(t) = \hat{H}_0 + \hat{H}'(t)$.

Do sada izvedeni rezultati su sasvim opšti, s obzirom na to da nigde nisu korišćene specifične osobine posmatranog sistema, odnosno perturbacije. U daljem tekstu ćemo pretpostaviti da u sistemu postoje nosioci naelektrisanja i da je perturbacija spoljašnje električno polje. Fizička veličina od interesa je u tom slučaju električna struja, a funkcija odziva sistema je električna provodnost.

Kvantnomehanički operator gustine struje $\hat{j}_a(\vec{r})$ je oblika [10]

$$\hat{j}_a(\vec{r}) = \frac{1}{2m} \sum_n q \left(\hat{p}_n \delta^{(3)}(\vec{r} - \hat{r}_n) + \delta^{(3)}(\vec{r} - \hat{r}_n) \hat{p}_n \right)_a, \quad (2.10)$$

gde su q i m naelektrisanje, odnosno masa nosioca, dok su \hat{p}_n i \hat{r}_n operatori impulsa, odnosno koordinate nosioca¹. Srednja gustina struje u trenutku t je, uz korišćenje jednačine (2.9), data kao

$$\langle \hat{j}_a(\vec{r}) \rangle_t = \text{Tr} \left(\hat{\rho}(t) \hat{j}_a(\vec{r}) \right) = \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) \hat{j}_a(t, \vec{r}) \right) + \frac{1}{i\hbar} \int_0^t dt' \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) [\hat{j}_a(t, \vec{r}), \hat{H}'_I(t')] \right). \quad (2.11)$$

Ovde je $\hat{j}_a(t, \vec{r}) = e^{i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t} \hat{j}_a(\vec{r}) e^{-i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t}$, a na isti način su definisane i sve ostale zavisnosti od vremena koje se u ovoj glavi pojavljuju. Prvi sabirak ne zavisi od primenjenog spoljašnjeg polja, dok drugi sabirak zavisi i nadalje ćemo samo taj sabirak i posmatrati. Dakle, deo gustine struje koji je srazmeran primenjenom polju je

$$\mathcal{J}_a(t, \vec{r}) = \frac{1}{i\hbar} \int_0^t dt' \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) [\hat{j}_a(t, \vec{r}), \hat{H}'_I(t')] \right). \quad (2.12)$$

Pošto nas zanima zavisnost provodnosti od frekvencije, od početka ćemo smatrati da imamo makroskopski (ali ne i mikroskopski!) prostorno homogen sistem na koji deluje homogeno i vremenski zavisno električno polje. Gustinu struje ćemo usrednjiti po zapremini sistema i kao odgovor sistema na primenjeno polje ćemo posmatrati veličinu (V je zapremina sistema)

$$\mathcal{J}_a(t) = \frac{1}{V} \int d^3\vec{r} \mathcal{J}_a(t, \vec{r}). \quad (2.13)$$

Hamiltonijan interakcije sistema sa električnim poljem se može uzeti u obliku [11]

$$\hat{H}'(t) = -\hat{\Pi}_b E_b(t) = -q \sum_n \hat{r}_{nb} E_b(t), \quad (2.14)$$

¹Sa n se prebrojavaju pojedinačni nosioci, dok latinski indeksi a, b, \dots označavaju Dekartove komponente x, y, z .

gde je operator $\hat{\Pi}$ operator električnog dipolnog momenta sistema

$$\hat{\Pi} = \int d^3\vec{r} \vec{r} \hat{\rho}(\vec{r}) = q \sum_n \hat{\vec{r}}_n. \quad (2.15)$$

U poslednjoj jednačini uveden je operator gustine naelektrisanja

$$\hat{\rho}(\vec{r}) = q \sum_n \delta^{(3)}(\vec{r} - \hat{\vec{r}}_n). \quad (2.16)$$

Jednačina (2.12) se nakon usrednjavanja po zapremini sistema može transformisati na sledeći način

$$\mathcal{J}_a(t) = -\frac{1}{i\hbar V} \int_0^t dt' \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) \left[\int d^3\vec{r} \hat{j}_a(t, \vec{r}), \hat{\Pi}_b(t') \right] \right) E_b(t'). \quad (2.17)$$

Uvođenjem operatora

$$\int d^3\vec{r} \hat{j}_a(t, \vec{r}) = \hat{J}_a(t) = \frac{q}{m} \sum_n \hat{p}_{na} = q \sum_n \hat{v}_{na}, \quad (2.18)$$

jednačina (2.17) se može zapisati u obliku

$$\mathcal{J}_a(t) = -\frac{1}{i\hbar V} \int_0^t dt' \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) \left[\hat{J}_a(t), \hat{\Pi}_b(t') \right] \right) E_b(t'). \quad (2.19)$$

Iz opšte formule linearne elektrodinamike

$$\mathcal{J}_a(t) = \int_0^t dt' \sigma_{ab}(t, t') E_b(t'), \quad (2.20)$$

odmah se dobija da je linearni odziv sistema na spoljašnje električno polje opisan tenzorom

$$\sigma_{ab}(t, t') = \frac{i}{\hbar V} \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) \left[\hat{J}_a(t), \hat{\Pi}_b(t') \right] \right). \quad (2.21)$$

Ako je ispunjen uslov

$$[\hat{\rho}(0), \hat{H}_0] = \hat{0}, \quad (2.22)$$

lako je videti da tenzor $\sigma_{ab}(t, t')$ ne zavisi ponaosob od t i t' , već samo od njihove razlike $t - t'$

$$\sigma_{ab}(t, t') = \sigma_{ab}(t - t') = \frac{i}{\hbar V} \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) [\hat{J}_a(t - t'), \hat{\Pi}_b(0)] \right), \quad (2.23)$$

pa je tada moguće izvršiti Furijeovu transformaciju i definisati $\sigma_{ab}(\omega)$. Električno polje i veličina $\mathcal{J}(t)$ definisana jednačinom (2.13) se mogu razložiti na Furijeove komponente (vodeći računa o tome da su pre uključivanja polja, za $t < 0$, obe navedene veličine jednake nuli)

$$E_b(\omega) = \int_0^{+\infty} dt E_b(t) e^{i\omega t}; \quad (2.24)$$

$$\mathcal{J}_a(\omega) = \int_0^{+\infty} dt \mathcal{J}_a(t) e^{i\omega t}. \quad (2.25)$$

Zamenom ovih dveju jednačina u (2.20), dobija se

$$\begin{aligned} \mathcal{J}_a(\omega) &= \int_0^{+\infty} dt \mathcal{J}_a(t) e^{i\omega t} \\ &= \int_0^{+\infty} dt \int_0^t dt' \sigma_{ab}(t - t') E_b(t') e^{i\omega t} \\ &= \int_0^{+\infty} dt' \int_{t'}^{+\infty} dt \sigma_{ab}(t - t') E_b(t') e^{i\omega t} \\ &= \int_0^{+\infty} dt' \int_0^{+\infty} d(t - t') \sigma_{ab}(t - t') E_b(t') e^{i\omega(t-t')} e^{i\omega t'} \\ &= \int_0^{+\infty} d\tau \sigma_{ab}(\tau) e^{i\omega\tau} \int_0^{+\infty} dt' E_b(t') e^{i\omega t'} \\ &= \sigma_{ab}(\omega) E_b(\omega) \quad , \end{aligned} \quad (2.26)$$

tako da je tenzor provodnosti u kojem figuriše frekvencija dat kao

$$\begin{aligned}
\sigma_{ab}(\omega) &= \int_0^{+\infty} dt \sigma_{ab}(t) e^{i\omega t} \\
&= \frac{i}{\hbar V} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) [\hat{J}_a(t), \hat{\Pi}_b(0)] \right) \\
&= \frac{i}{\hbar V} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) [\hat{J}_a(0), \hat{\Pi}_b(-t)] \right).
\end{aligned} \tag{2.27}$$

Operatori $\hat{\Pi}_a(t)$ i $\hat{J}_b(t)$ zadovoljavaju istovremenu komutacionu relaciju

$$[\hat{\Pi}_a(t), \hat{J}_b(t)] = i\hbar \frac{Nq^2}{m} \delta_{ab}, \tag{2.28}$$

gde je N ukupan broj nosilaca. Takođe važi i

$$\hat{J}_a(t) = \frac{d}{dt} \hat{\Pi}_a(t) = \frac{i}{\hbar} [\hat{H}_0, \hat{\Pi}_a(t)]. \tag{2.29}$$

Poslednja jednakost jednostavno sledi [10] polazeći od činjenice da operatori gustine naelektrisanja i gustine struje zadovoljavaju jednačinu kontinuiteta

$$\frac{\partial}{\partial t} \hat{\rho} + \text{div} \hat{j} = \hat{0}. \tag{2.30}$$

Polazeći od jednakosti koja je posledica (2.29)

$$\hat{\Pi}_b(-t) = \hat{\Pi}_b(0) - \int_0^t dt' \hat{J}_b(-t') \tag{2.31}$$

i kombinujući sa (2.27), dobija se

$$\begin{aligned}
\sigma_{ab}(\omega) &= \frac{i}{\hbar V} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) [\hat{J}_a(0), \hat{\Pi}_b(0)] \right) \\
&\quad - \frac{i}{\hbar V} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \int_0^t dt' \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) [\hat{J}_a(t'), \hat{J}_b(0)] \right).
\end{aligned} \tag{2.32}$$

Da bi integrali po vremenu koji se pojavljuju u poslednjoj jednačini bili dobro definisani, frekvenciji ω se dodaje infinitezimalni pozitivni imaginarni deo $i\eta$, odnosno $\omega \rightarrow \omega + i\eta$. U prvom sabirku se iskoristi istovremena komutaciona relacija (2.28), nakon čega se taj sabirak transformiše u $i \frac{nq^2}{m\omega} \delta_{ab}$, gde je n koncentracija nosilaca. U drugom sabirku je moguće izmeniti redosled integracije

$$\begin{aligned}
& - \frac{i}{\hbar V} \int_0^{+\infty} dt e^{i(\omega+i\eta)t} \int_0^t dt' \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) [\hat{J}_a(t'), \hat{J}_b(0)] \right) \\
&= - \frac{i}{\hbar V} \int_0^{+\infty} dt' \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) [\hat{J}_a(t'), \hat{J}_b(0)] \right) \int_{t'}^{+\infty} dt e^{i(\omega+i\eta)t} \\
&= - \frac{i}{\hbar V} \int_0^{+\infty} dt' \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) [\hat{J}_a(t'), \hat{J}_b(0)] \right) \frac{i}{\omega} e^{i\omega t'} \\
&= \frac{1}{\hbar\omega V} \int_0^{+\infty} dt' e^{i\omega t'} \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) [\hat{J}_a(t'), \hat{J}_b(0)] \right).
\end{aligned} \tag{2.33}$$

Ukupno se za provodnost dobija

$$\sigma_{ab}(\omega) = i \frac{nq^2}{m\omega} \delta_{ab} + \frac{1}{\hbar\omega V} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) [\hat{J}_a(t), \hat{J}_b(0)] \right). \tag{2.34}$$

Poslednja formula se može shvatiti kao generalizacija rezultata koji postoje u literaturi [5], [12] na slučaj kada stanje sistema neposredno pre uključivanja električnog polja nije ravnotežno, već opisano

statističkim operatorom $\hat{\rho}(0)$ koji zadovoljava uslov (2.22). Optičku provodnost smo izrazili kao Furijeovu transformaciju retardovane korelacione funkcije računane u neravnotežnom stanju. U daljem tekstu ćemo, za konkretne modelne hamiltonijane i u određenoj aproksimaciji, izvesti formulu analognu sa (2.34) i u slučaju kada nije zadovoljen uslov (2.22).

Pošto su $E_a(t)$, $\mathcal{J}_a(t)$ i $\sigma_{ab}(t, t')$ realne veličine, iz jednačina (2.24), (2.25) i (2.27) neposredno sledi

$$\sigma_{ab}(-\omega) = \sigma_{ab}(\omega)^*, \quad (2.35)$$

i slično i za $E_a(\omega)$ i $\mathcal{J}_a(\omega)$. Realni, odnosno disipativni, deo provodnosti je parna funkcija frekvencije ω , dok je imaginarni, odnosno reaktivni, deo provodnosti neparna funkcija frekvencije ω .

U daljem tekstu će se kao funkcija odziva na primenjeno električno polje razmatrati i *pokretljivost nosilaca*, koja je definisana kao koeficijent u linearnoj vezi između srednje brzine nosilaca i jačine električnog polja. Srednja brzina nosioca $v_a(t)$ se može zapisati kao

$$v_a(t) = \frac{1}{N} \left\langle \sum_n \hat{v}_{na} \right\rangle_t = \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) \frac{1}{N} \sum_n \hat{v}_{na} \right) + \frac{1}{i\hbar} \int_0^t dt' \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) \left[\frac{1}{N} \sum_n \hat{v}_{na}, \hat{H}_I'(t') \right] \right). \quad (2.36)$$

Prvi sabirak se dalje ne posmatra, sa istim obrazloženjem kao prilikom računanja srednje gustine struje, a drugi sabirak se, korišćenjem jednačina (2.17) i (2.18) može transformisati tako da se linearna veza između srednje brzine nosilaca i električnog polja može zapisati u obliku analognom obliku jednačine (2.20)

$$v_a(t) = \int_0^t dt' \frac{1}{nq} \sigma_{ab}(t, t') E_b(t'), \quad (2.37)$$

odakle se vidi da su pokretljivost i provodnost povezani relacijama

$$\mu_{ab}(t, t') = \frac{1}{nq} \sigma_{ab}(t, t') \quad , \quad \mu_{ab}(\omega) = \frac{1}{nq} \sigma_{ab}(\omega) \quad . \quad (2.38)$$

Glava 3

Transportne osobine u prisustvu elektron–fonon interakcije

U ovoj i narednoj glavi ćemo za konkretne modelne hamiltonijane \hat{H}_0 detaljnije razmotriti šta se dešava u slučaju kada je $[\hat{\rho}(0), \hat{H}_0] \neq \hat{0}$. Tada provodnost $\sigma_{ab}(t, t')$ nije funkcija samo razlike $t - t'$. Međutim, možemo je posmatrati kao funkciju promenljivih t i $t - t'$

$$\sigma_{ab}(t, t - t') = -\frac{1}{i\hbar V} \text{Tr} \left(e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 t} \hat{\rho}(0) e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 t} \left[\hat{J}_a(0), \hat{\Pi}_b(-t - t') \right] \right). \quad (3.1)$$

Koristeći jednačinu (2.31) i istovremenu komutacionu relaciju (2.28), jednačina (3.1) se može transformisati kao

$$\begin{aligned} \sigma_{ab}(t, t - t') &= \frac{nq^2}{m} \delta_{ab} - \frac{i}{\hbar V} \int_0^{t-t'} d\tau \text{Tr} \left(e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 t} \hat{\rho}(0) e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0 t} \left[\hat{J}_a(0), \hat{J}_b(-\tau) \right] \right) \\ &= \frac{nq^2}{m} \delta_{ab} - \frac{i}{\hbar V} \int_0^{t-t'} d\tau \text{Tr} \left(e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0(t-\tau)} \hat{\rho}(0) e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0(t-\tau)} \left[\hat{J}_a(\tau), \hat{J}_b(0) \right] \right). \end{aligned} \quad (3.2)$$

Dalji račun zavisi od konkretnog modelnog hamiltonijana koji opisuje sistem čiji linearni odziv na spoljašnje električno polje posmatramo. U ovoj glavi ćemo detaljno razmatrati transportne osobine u prisustvu elektron–fonon interakcije, dok ćemo u glavi 4 razmatrati transportne osobine u prisustvu interakcije sa dodatnim statičkim potencijalom. Naglasak će biti na slučaju kada se transport naelektrisanja obavlja skakutanjem između lokalizovanih stanja, pri čemu je elektron–fonon interakcija mehanizam koji dovodi do skakutanja. Smatraćemo da je ta interakcija slaba i da se može tretirati perturbativno. U najnižem redu teorije perturbacije u kojem se dobija netrivialan rezultat ćemo izvesti analogon formule (2.34) za optičku provodnost, videti jednačinu (3.26). Imajući u vidu jednočestičnu prirodu veličina koje figurišu u toj formuli, preći ćemo na jednočestičnu sliku i izrazićemo realni deo optičke provodnosti pomoću verovatnoća jednočestičnih prelaza u jedinici vremena između lokalizovanih stanja. Do prelaza dolazi usled apsorpcije (emisije) energije od spoljašnjeg polja koja je praćena apsorpcijom (emisijom) fonona. Pomenute verovatnoće prelaza u jedinici vremena imaju oblik verovatnoća koje se dobijaju pomoću Fermijevog zlatnog pravila, koje su u našem slučaju modifikovane zbog prisustva spoljašnjeg polja. Smatrajući da je fononski podsistem u svakom trenutku u termalnoj ravnoteži, kao i da je koncentracija elektrona niska, pokretljivost ćemo izraziti preko populacija pojedinačnih jednočestičnih stanja, koordinata centara lokalizacije tih stanja i verovatnoća prelaza u jedinici vremena između tih stanja. Time ćemo, u posmatranom modelu i u opisanoj aproksimaciji, pokretljivost uspeti da u potpunosti izrazimo preko mikroskopskih parametara modela.

3.1 Modelni hamiltonijan. Izraz za optičku provodnost

Razmatraćemo hamiltonijan

$$\hat{H}_0 = \hat{H}_{00} + \hat{H}_{e-ph} = \hat{H}_e + \hat{H}_{ph} + \hat{H}_{e-ph}, \quad (3.3)$$

gde deo¹

$$\hat{H}_{00} = \hat{H}_e + \hat{H}_{ph} = \sum_{\alpha} \epsilon_{\alpha} \hat{c}_{\alpha}^{\dagger} \hat{c}_{\alpha} + \sum_k \epsilon_k \hat{b}_k^{\dagger} \hat{b}_k \quad (3.4)$$

opisuje sistem međusobno neinteragujućih elektrona i međusobno neinteragujućih fonona, dok deo

$$\hat{H}_{e-ph} = \sum_k \sum_{\alpha\alpha'} \left(g_{\alpha\alpha',k}^{-} \hat{c}_{\alpha}^{\dagger} \hat{c}_{\alpha'} \hat{b}_k + g_{\alpha\alpha',k}^{-*} \hat{c}_{\alpha'}^{\dagger} \hat{c}_{\alpha} \hat{b}_k^{\dagger} \right) = \sum_k \sum_{\alpha\alpha'} \left(g_{\alpha\alpha',k}^{-} \hat{c}_{\alpha}^{\dagger} \hat{c}_{\alpha'} \hat{b}_k + g_{\alpha\alpha',k}^{+} \hat{c}_{\alpha}^{\dagger} \hat{c}_{\alpha'} \hat{b}_k^{\dagger} \right) \quad (3.5)$$

opisuje elektron–fonon interakciju.

Pretpostavljamo da nam je poznat kompletan skup $\{\psi_{\alpha}(\vec{r}) \equiv \langle \vec{r} | \alpha \rangle\}$ ortogonalnih i normiranih tala-snih funkcija koje su rešenja jednoelektronskog problema. Operatori $\hat{c}_{\alpha}^{\dagger}$ (\hat{c}_{α}) su fermionski operatori koji označavaju kreaciju (anihilaciju) jednog nosioca u jednočestičnom stanju α sa energijom ϵ_{α} i zadovoljavaju antikomutacione relacije

$$\{\hat{c}_{\alpha}, \hat{c}_{\alpha'}^{\dagger}\} = \delta_{\alpha\alpha'}. \quad (3.6)$$

Operatori \hat{b}_k^{\dagger} (\hat{b}_k) su bozonski operatori koji označavaju kreaciju (anihilaciju) fonona sa energijom ϵ_k i zadovoljavaju komutacione relacije

$$[\hat{b}_k, \hat{b}_{k'}^{\dagger}] = \delta_{kk'}. \quad (3.7)$$

Matrični elementi elektron–fonon interakcije zadovoljavaju

$$g_{\alpha\alpha',k}^{\pm} = g_{\alpha'\alpha,k}^{\mp*}, \quad (3.8)$$

pri čemu $g_{\alpha\alpha',k}^{\pm}$ opisuje jednočestični prelaz $\alpha' \rightarrow \alpha$ koji se indukovao fononskom modom k . Znaci +, odnosno – odgovaraju emisiji, odnosno apsorpciji fonona. Konkretni oblik ovih matričnih elemenata zavisi od mehanizma elektron–fonon interakcije.

Za statistički operator koji opisuje stanje sistema neposredno pre uključivanja električnog polja smo uzimali faktorizovani oblik

$$\hat{\rho}(0) = \hat{\rho}_e \hat{\rho}_{ph,eq}, \quad (3.9)$$

gde je $\hat{\rho}_e$ statistički operator koji opisuje neinteragujuće elektrone, dok je $\hat{\rho}_{ph,eq}$ ravnotežni statistički operator za fononski podsistem na temperaturi T_{ph} , $\beta_{ph} = (k_B T_{ph})^{-1}$,

$$\hat{\rho}_{ph,eq} = \frac{e^{-\beta_{ph} \hat{H}_{ph}}}{\text{Tr}_{ph} e^{-\beta_{ph} \hat{H}_{ph}}}. \quad (3.10)$$

Motivacija za ovakav odabir početnog statističkog operatora dolazi od česte aproksimacije u kojoj se pretpostavlja da je fononski podsistem u svakom trenutku u termalnoj ravnoteži [1].

Operator $\hat{J}_a(t)$ se može najjednostavnije dobiti na osnovu jednačine (2.29)

$$\hat{J}_a(t) = \frac{d}{dt} \hat{\Pi}_a(t) = \frac{i}{\hbar} [\hat{H}_0, \hat{\Pi}_a(t)].$$

Operator $\hat{\Pi}_a$ je jednoelektronski operator, jednačina (2.15), koji se može zapisati u reprezentaciji druge kvantizacije kao

$$\hat{\Pi}_a = q \sum_{\alpha\beta} x_{a;\alpha\beta} \hat{c}_{\alpha}^{\dagger} \hat{c}_{\beta}, \quad (3.11)$$

¹U ovoj i narednim glavama, energije jednočestičnih elektronskih stanja biće indeksirane grčkim indeksima $\alpha, \beta, \gamma, \dots$, dok će energije fononskih moda biti indeksirane latinskim indeksima k, k', \dots

gde su uvedeni matricni elementi operatora koordinate pojedinačnog elektrona

$$x_{a;\alpha\beta} \equiv \langle \alpha | \hat{x}_a | \beta \rangle = \int d^3\vec{r} \psi_\alpha(\vec{r})^* x_a \psi_\beta(\vec{r}). \quad (3.12)$$

Nakon računa se dobija

$$\hat{J}_a = \hat{J}_a^{(1)} + \hat{J}_a^{(2)}, \quad (3.13)$$

gde je

$$\hat{J}_a^{(1)} = \frac{iq}{\hbar} \sum_{\alpha\beta} (\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta) x_{a;\alpha\beta} \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta, \quad (3.14)$$

dok je

$$\hat{J}_a^{(2)} = \frac{iq}{\hbar} \sum_k \sum_{\alpha\beta} \left(F_{a;\alpha\beta,k}^- \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \hat{b}_k + F_{a;\alpha\beta,k}^+ \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \hat{b}_k^\dagger \right). \quad (3.15)$$

Koeficijenti $F_{a;\alpha\beta,k}^\pm$ su dati jednačinom

$$F_{a;\alpha\beta,k}^\pm = \sum_{\alpha'} \left(g_{\alpha\alpha',k}^\pm x_{a;\alpha'\beta} - x_{a;\alpha\alpha'} g_{\alpha'\beta,k}^\pm \right) \quad (3.16)$$

i zadovoljavaju relaciju

$$F_{a;\alpha\beta,k}^\pm = -F_{a;\beta\alpha,k}^{\mp*} \quad (3.17)$$

Elektron–fonon interakciju ćemo tretirati kao slabu perturbaciju (odnosno sve veličine $g_{\alpha\beta,k}^\pm$ ćemo smatrati u izvesnom smislu malim). Provodnost i pokretljivost ćemo računati razvojem u red po malim konstantama interakcije $g_{\alpha\beta,k}^\pm$, zadržavajući se pri tome na najnižem redu u kojem se dobija netrivialni rezultat. Uočimo odmah da je deo $\hat{J}_a^{(2)}$ srazmeran prvom stepenu konstanti interakcije.

U jednačini (3.2) pojavljuje se vremenski zavisani operator

$$\hat{J}_a(\tau) = e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0\tau} \hat{J}_a e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0\tau},$$

pri čemu se vremenska zavisnost računa po ukupnom hamiltonijanu \hat{H}_0 . Evolucionni operator se može razviti u Dajsonov red

$$e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0t} = e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0t} + \frac{1}{i\hbar} \int_0^t dt' e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0(t-t')} \hat{H}_{e-ph} e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0t'} + \dots \quad (3.18)$$

što nam daje razvoj vremenski zavisnog operatora $\hat{J}_a(\tau)$ u red po stepenima konstanti interakcije

$$\begin{aligned} \hat{J}_a(\tau) &= e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0\tau} \hat{J}_a e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0\tau} + \left[e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0\tau} \hat{J}_a e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0\tau}, \int_0^\tau \frac{dt'}{i\hbar} e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0t'} \hat{H}_{e-ph} e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0t'} \right] + \dots \\ &= e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0\tau} \hat{J}_a^{(1)} e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0\tau} \\ &+ e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0\tau} \hat{J}_a^{(2)} e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0\tau} + \left[e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0\tau} \hat{J}_a^{(1)} e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0\tau}, \int_0^\tau \frac{dt'}{i\hbar} e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0t'} \hat{H}_{e-ph} e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0t'} \right] \\ &+ \dots \end{aligned} \quad (3.19)$$

Takođe, pošto je $[\hat{\rho}(0), \hat{H}_0] \neq \hat{0}$, primenom Bejker–Hausdorfove leme se dobija

$$e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0(t-\tau)} \hat{\rho}(0) e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0(t-\tau)} = \hat{\rho}(0) + \left(-\frac{i(t-\tau)}{\hbar} \right) [\hat{H}_0, \hat{\rho}(0)] + \dots \quad (3.20)$$

Ako je operator $\hat{\rho}_e$, koji se pojavljuje u faktorizaciji (3.9), analitička funkcija elektronskog dela hamiltonijana \hat{H}_e , onda je jedini deo hamiltonijana \hat{H}_0 sa kojim $\hat{\rho}(0)$ ne komutira elektron–fonon interakcija \hat{H}_{e-ph} , tako da komutator $[\hat{H}_0, \hat{\rho}(0)]$ sadrži članove linearne po konstantama interakcije. Viši članovi u razvoju (3.20) su tada barem linearni po konstantama interakcije.

Na osnovu svega rečenog, prvi netrivialni član u razvoju (3.2) po stepenima konstante interakcije će biti nultog reda po konstantama interakcije, kada se za \hat{J}_a zamene izrazi $\hat{J}_a^{(1)}$ u kojima ne figurišu konstante interakcije, a u razvoju evolucionog operatora (3.18) i u razvoju (3.20) se zadržimo na nultom članu. Rezultat toga je

$$\sigma_{ab}(t, t - t') = \sigma_{ab}(t - t') = \frac{nq^2}{m} \delta_{ab} - \frac{i}{\hbar V} \int_0^{t-t'} d\tau \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) \left[\hat{J}_a^{(1),00}(\tau), \hat{J}_b^{(1)}(0) \right] \right), \quad (3.21)$$

gde je oznakom $\hat{J}_a^{(1),00}(\tau)$ naglašeno da se zavisnost od vremena računa po neinteragujućem hamiltonijanu.

U primenama na transport u neuređenim materijalima je, međutim, mnogo interesantniji slučaj kada se transport nosilaca obavlja skakutanjem između lokalizovanih stanja. Za definiciju lokalizovanih elektronskih stanja možemo uzeti

$$x_{a;\alpha\beta} = \langle \alpha | \hat{x} | \beta \rangle \cdot \vec{e}_a = \delta_{\alpha\beta} x_{a;\alpha}. \quad (3.22)$$

Koristeći poslednju jednačinu, lako je videti da je, ukoliko su jednoelektronska stanja α lokalizovana, ukupni operator \hat{J}_a jednak drugom sabirku $\hat{J}_a^{(2)}$, pri čemu se koeficijenti $F_{a;\alpha\beta,k}^\pm$, uz korišćenje pretpostavke (3.22), mogu zapisati u obliku

$$F_{a;\alpha\beta,k}^\pm = (x_{a;\beta} - x_{a;\alpha}) g_{\alpha\beta,k}^\pm. \quad (3.23)$$

Dakle, sada je *ukupni* operator \hat{J}_a linearan po konstantama interakcije. U ovom slučaju, prvi netrivialni član u razvoju (3.2) po stepenima konstante interakcije se dobija kada se za \hat{J}_a zamene izrazi $\hat{J}_a^{(2)}$, a u razvoju evolucionog operatora (3.18) i u razvoju (3.20) se zadržimo na nultom članu. Rezultat toga je

$$\sigma_{ab}(t, t - t') = \sigma_{ab}(t - t') = \frac{nq^2}{m} \delta_{ab} - \frac{i}{\hbar V} \int_0^{t-t'} d\tau \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) \left[\hat{J}_a^{(2),00}(\tau), \hat{J}_b^{(2)}(0) \right] \right), \quad (3.24)$$

gde oznaka $\hat{J}_a^{(2),00}(\tau)$ znači isto što i u (3.21).

Konačno, uverili smo se da je najdominantniji član u razvoju (3.2) po stepenima elektron–fonon interakcije moguće napisati kao funkciju samo razlike $t - t'$, pa je, dakle, sada moguće ponoviti proceduru iz glave 2 i definisati tenzor provodnosti koji zavisi od frekvencije $\sigma_{ab}(\omega)$.

U slučaju kada se posmatra ceo izraz za \hat{J}_a , najdominantniji doprinos je nultog reda po elektron–fonon interakciji, a tenzor provodnosti je

$$\sigma_{ab}(\omega) = \frac{inq^2}{m\omega} \delta_{ab} + \frac{1}{\hbar\omega V} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) \left[\hat{J}_a^{(1),00}(t), \hat{J}_b^{(1)}(0) \right] \right). \quad (3.25)$$

U primenama na transport naelektrisanja skakutanjem, najdominantniji doprinos je kvadratičan po elektron–fonon interakciji, a tenzor provodnosti je

$$\sigma_{ab}(\omega) = \frac{inq^2}{m\omega} \delta_{ab} + \frac{1}{\hbar\omega V} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) \left[\hat{J}_a^{(2),00}(t), \hat{J}_b^{(2)}(0) \right] \right). \quad (3.26)$$

U sledeća dva dela ćemo u formulama (3.25) i (3.26) preći na jednočestičnu sliku i interpretirati dobijene rezultate preko elementarnih procesa.

3.2 Provodnost skakanjem između lokalizovanih stanja

Polazimo od jednačine (3.26). Detalji računa će biti dati samo za dijagonalne elemente tenzora provodnosti.² Članovi u $[\hat{J}_x^{(2),00}(t), \hat{J}_x^{(2)}(0)]$ koji će nakon usrednjavanja po fononskom potprostoru dati nenulti rezultat su

$$\begin{aligned}
[\hat{J}_x^{(2),00}(t), \hat{J}_x^{(2)}(0)] \left(\frac{iq}{\hbar}\right)^{-2} &= \sum_k \sum_{\alpha\beta\gamma\delta} \left(F_{\alpha\beta,k}^- F_{\gamma\delta,k}^+ e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k)t} - F_{\alpha\beta,k}^+ F_{\gamma\delta,k}^- e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k)t} \right) \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \hat{c}_\gamma^\dagger \hat{c}_\delta \\
&+ \sum_{kk'} \sum_{\alpha\beta\gamma\delta} F_{\alpha\beta,k}^- F_{\gamma\delta,k'}^+ e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k)t} \left(\delta_{\beta\gamma} \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\delta - \delta_{\alpha\delta} \hat{c}_\gamma^\dagger \hat{c}_\beta \right) \hat{b}_{k'}^\dagger \hat{b}_k \\
&+ \sum_{kk'} \sum_{\alpha\beta\gamma\delta} F_{\alpha\beta,k}^+ F_{\gamma\delta,k'}^- e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k)t} \left(\delta_{\beta\gamma} \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\delta - \delta_{\alpha\delta} \hat{c}_\gamma^\dagger \hat{c}_\beta \right) \hat{b}_{k'}^\dagger \hat{b}_k + \dots,
\end{aligned}$$

da ju 0 nakon usrednjavanja

(3.27)

gde su usvojene oznake

$$F_{\alpha\beta,k}^\pm = \sum_{\alpha'} \left(g_{\alpha\alpha',k}^\pm x_{\alpha'\beta} - x_{\alpha\alpha'} g_{\alpha'\beta,k}^\pm \right), \quad (3.28)$$

pri čemu za koeficijente $F_{\alpha\beta,k}^\pm$ važi

$$F_{\alpha\beta,k}^\pm = -F_{\beta\alpha,k}^{\mp*}, \quad (3.29)$$

videti jednačine (3.16) i (3.17). Usrednjavanje prvog sabirka po fononskom potprostoru je trivijalno, dok se kod usrednjavanja ostalih sabiraka koristi

$$\text{Tr}_{\text{ph}} \left(\hat{b}_k^\dagger \hat{b}_{k'} \hat{\rho}_{\text{ph}} \right) = \delta_{k,k'} N_k, \quad (3.30)$$

gde je $N_k = \frac{1}{e^{\beta_{\text{ph}} \epsilon_k} - 1}$. Konačno se dobija

$$\begin{aligned}
\text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) [\hat{J}_x^{(2),00}(t), \hat{J}_x^{(2)}(0)] \right) \left(\frac{iq}{\hbar}\right)^{-2} &= \\
&\sum_k \sum_{\alpha\beta\gamma\delta} \left(F_{\alpha\beta,k}^- F_{\gamma\delta,k}^+ e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k)t} - F_{\alpha\beta,k}^+ F_{\gamma\delta,k}^- e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k)t} \right) \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \hat{c}_\gamma^\dagger \hat{c}_\delta \rangle_e \\
&+ \sum_k \sum_{\alpha\beta\gamma} \left(F_{\alpha\gamma,k}^- F_{\gamma\beta,k}^+ e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\gamma - \epsilon_k)t} - F_{\alpha\gamma,k}^+ F_{\gamma\beta,k}^- e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\gamma - \epsilon_\beta - \epsilon_k)t} \right) N_k \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle_e \\
&+ \sum_k \sum_{\alpha\beta\gamma} \left(F_{\alpha\gamma,k}^+ F_{\gamma\beta,k}^- e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\gamma + \epsilon_k)t} - F_{\alpha\gamma,k}^- F_{\gamma\beta,k}^+ e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\gamma - \epsilon_\beta + \epsilon_k)t} \right) (1 + N_k) \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle_e.
\end{aligned} \quad (3.31)$$

Oznaka $\langle \dots \rangle_e$ znači usrednjavanje po $\hat{\rho}_e$. Dakle, sve smo uspjeli da svedemo na srednje vrednosti od 2 ili 4 elektronska operatora.

Za dalji račun je neophodno poznavati oblik elektronske raspodele $\hat{\rho}_e$.

3.2.1 Slučaj ravnotežne elektronske raspodele

Posmatrajmo najpre slučaj ravnotežne elektronske raspodele

$$\hat{\rho}_e = \frac{e^{-\beta_e(\hat{H}_e - \mu_e \hat{N}_e)}}{\text{Tr}_e e^{-\beta_e(\hat{H}_e - \mu_e \hat{N}_e)}}. \quad (3.32)$$

Srednja vrednost proizvoda 4 operatora tada se može zapisati kao

$$\langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \hat{c}_\gamma^\dagger \hat{c}_\delta \rangle_e = \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle_e \langle \hat{c}_\gamma^\dagger \hat{c}_\delta \rangle_e + \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\delta \rangle_e \langle \hat{c}_\beta \hat{c}_\gamma^\dagger \rangle_e \quad (3.33)$$

²Odaberemo pravac električnog polja za x -osu i posmatramo kretanje elektrona u pravcu polja; projekcija struje na pravac polja je tada $\mathcal{J}_x = \sigma_{xx} E$.

i na taj način sve svesti na srednje vrednosti oblika

$$\langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle_e = \delta_{\alpha\beta} n_\alpha, \quad (3.34)$$

gde je n_α , za hamiltonijan $\hat{H}_e = \sum_\beta \epsilon_\beta \hat{c}_\beta^\dagger \hat{c}_\beta$, dato kao

$$n_\alpha = \frac{1}{e^{\beta e(\epsilon_\alpha - \mu_e)} + 1}. \quad (3.35)$$

Ovde je μ_e hemijski potencijal za neinteragujuće elektrone koji se može odrediti iz poznatog broja elektrona

$$N = \text{Tr}_e (\hat{N}_e \hat{\rho}_e) = \text{Tr} (\hat{N}_e \hat{\rho}(0)). \quad (3.36)$$

Kada se u jednačinu (3.31) uvrste pretpostavke (3.32)– (3.35) o elektronskoj raspodeli, nakon računa se dobija

$$\begin{aligned} \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) [\hat{J}_x^{(2),00}(t), \hat{J}_x^{(2)}(0)] \right) \left(\frac{iq}{\hbar} \right)^{-2} &= \sum_k \left(e^{-\frac{i}{\hbar} \epsilon_k t} \left(\sum_\alpha n_\alpha F_{\alpha\alpha,k}^- \right) \left(\sum_\gamma n_\gamma F_{\gamma\gamma,k}^+ \right) - \text{c.c.} \right) \\ &+ \sum_k \sum_{\alpha\beta} |F_{\alpha\beta,k}^-|^2 e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k)t} ((n_\beta - n_\alpha) N_k - n_\alpha(1 - n_\beta)) \\ &+ \sum_k \sum_{\alpha\beta} |F_{\alpha\beta,k}^+|^2 e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k)t} ((n_\beta - n_\alpha)(1 + N_k) + n_\alpha(1 - n_\beta)) \end{aligned} \quad (3.37)$$

Transformišući poslednji izraz uz korišćenje osobine (3.29) koeficijenata $F_{\alpha\beta,k}^\pm$ i jednakosti

$$n_\beta - n_\alpha = n_\beta(1 - n_\alpha) - n_\alpha(1 - n_\beta) \quad (3.38)$$

dobija se

$$\begin{aligned} \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) [\hat{J}_x^{(2),00}(t), \hat{J}_x^{(2)}(0)] \right) &= \\ &- \frac{q^2}{\hbar^2} \sum_k \left(e^{\frac{i}{\hbar} \epsilon_k t} \left| \sum_\alpha n_\alpha F_{\alpha\alpha,k}^+ \right|^2 - e^{-\frac{i}{\hbar} \epsilon_k t} \left| \sum_\alpha n_\alpha F_{\alpha\alpha,k}^- \right|^2 \right) \\ &- \frac{q^2}{\hbar^2} \sum_k \sum_{\alpha\beta} \left(|F_{\alpha\beta,k}^-|^2 e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k)t} (1 - n_\alpha) n_\beta N_k + |F_{\alpha\beta,k}^+|^2 e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k)t} (1 - n_\alpha) n_\beta (1 + N_k) \right) \\ &+ \frac{q^2}{\hbar^2} \sum_k \sum_{\alpha\beta} \left(|F_{\beta\alpha,k}^+|^2 e^{-\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\beta - \epsilon_\alpha + \epsilon_k)t} (1 - n_\beta) n_\alpha (1 + N_k) + |F_{\beta\alpha,k}^-|^2 e^{-\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\beta - \epsilon_\alpha - \epsilon_k)t} (1 - n_\beta) n_\alpha N_k \right). \end{aligned} \quad (3.39)$$

Poslednja dva sabirka imaju direktnu interpretaciju preko elementarnih procesa emisije i apsorpcije fonona koji će se, nakon integracije u jednačini za provodnost (3.26), kombinovati sa spoljašnjom pobudom. Nakon sprovedene integracije, uz korišćenje identiteta

$$\lim_{\eta \rightarrow +0} \frac{1}{x \pm i\eta} = \mp i\pi \delta(x) + \mathcal{P} \frac{1}{x}, \quad (3.40)$$

za realni deo optičke provodnosti za $\omega \neq 0$ se dobija

$$\begin{aligned}
\text{Re } \sigma_{xx}(\omega) = & \\
& -\frac{q^2}{\hbar^2 \hbar \omega V} \sum_k \left(\left| \sum_\alpha n_\alpha F_{\alpha\alpha,k}^+ \right|^2 \pi \delta \left(\omega + \frac{\epsilon_k}{\hbar} \right) - \left| \sum_\alpha n_\alpha F_{\alpha\alpha,k}^- \right|^2 \pi \delta \left(\omega - \frac{\epsilon_k}{\hbar} \right) \right) \\
& -\frac{q^2}{\hbar^2 \hbar \omega V} \sum_k \sum_{\alpha\beta} (1 - n_\alpha) n_\beta \left[N_k |F_{\alpha\beta,k}^-|^2 \pi \delta \left(\omega + \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k}{\hbar} \right) + (1 + N_k) |F_{\alpha\beta,k}^+|^2 \pi \delta \left(\omega + \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k}{\hbar} \right) \right] \\
& +\frac{q^2}{\hbar^2 \hbar \omega V} \sum_k \sum_{\alpha\beta} (1 - n_\beta) n_\alpha \left[N_k |F_{\beta\alpha,k}^-|^2 \pi \delta \left(\omega - \frac{\epsilon_\beta - \epsilon_\alpha - \epsilon_k}{\hbar} \right) + (1 + N_k) |F_{\beta\alpha,k}^+|^2 \pi \delta \left(\omega - \frac{\epsilon_\beta - \epsilon_\alpha + \epsilon_k}{\hbar} \right) \right].
\end{aligned} \tag{3.41}$$

Poslednja formula se pojednostavljuje u za nas relevantnom slučaju lokalizovanih nosilaca kada je

$$x_{\alpha\alpha'} = \delta_{\alpha\alpha'} x_\alpha \quad . \tag{3.42}$$

Tada se koeficijenti F mogu zapisati u obliku

$$F_{\alpha\beta,k}^\pm = (x_\beta - x_\alpha) g_{\alpha\beta,k}^\pm,$$

pa je i $F_{\alpha\alpha,k}^\pm = 0$. Nakon računa se dobija

$$\begin{aligned}
\text{Re } \sigma_{xx}(\omega) = & -\frac{q^2}{\hbar^2 \hbar \omega V} \sum_k \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\alpha) n_\beta |g_{\alpha\beta,k}^-|^2 \pi \delta \left(\omega + \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k}{\hbar} \right) N_k \\
& -\frac{q^2}{\hbar^2 \hbar \omega V} \sum_k \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\alpha) n_\beta |g_{\alpha\beta,k}^+|^2 \pi \delta \left(\omega + \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k}{\hbar} \right) (1 + N_k) \\
& +\frac{q^2}{\hbar^2 \hbar \omega V} \sum_k \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\alpha) n_\beta |g_{\alpha\beta,k}^-|^2 \pi \delta \left(\omega - \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k}{\hbar} \right) N_k \\
& +\frac{q^2}{\hbar^2 \hbar \omega V} \sum_k \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\alpha) n_\beta |g_{\alpha\beta,k}^+|^2 \pi \delta \left(\omega - \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k}{\hbar} \right) (1 + N_k).
\end{aligned} \tag{3.43}$$

Forma poslednje jednačine ukazuje da su elementarni procesi koji u najnižem redu teorije perturbacije doprinose provodnosti jednočestični prelazi $\beta \rightarrow \alpha$ uz emisiju (ili apsorpciju) energije $\hbar\omega$ od spoljašnje pobude kombinovanu sa emisijom (ili apsorpcijom) fonona. Eksplicitno je uključen Paulijev princip kroz faktore $(1 - n_\alpha) n_\beta$.

Jednačina (3.43) može se prepisati koristeći *Fermijevo zlatno pravilo*. Naime, verovatnoća prelaza jednog elektrona iz jednočestičnog stanja β u jednočestično stanje α u jedinici vremena samo posredstvom elektron–fonon interakcije data je kao [1]

$$w_{\alpha\beta,\text{ph}} = w_{\alpha\beta,\text{ph}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta) = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_k \left(|g_{\alpha\beta,k}^-|^2 \delta(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k) N_k + |g_{\alpha\beta,k}^+|^2 \delta(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k) (1 + N_k) \right). \tag{3.44}$$

Zato je moguće prepisati jednačinu (3.43) koristeći

$$\sum_k \left(|g_{\alpha\beta,k}^-|^2 \pi \delta \left(\omega \pm \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k}{\hbar} \right) N_k + |g_{\alpha\beta,k}^+|^2 \pi \delta \left(\omega \pm \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k}{\hbar} \right) (1 + N_k) \right) = \frac{\hbar^2}{2} w_{\alpha\beta,\text{ph}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta \pm \hbar\omega), \tag{3.45}$$

tako da se eksplicitno pojave modifikovane (usled prisustva spoljašnje harmonijske perturbacije) verovatnoće prelaza u jedinici vremena

$$\begin{aligned} \text{Re } \sigma_{xx}(\omega) = & -\frac{q^2}{2\hbar\omega V} \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\alpha) n_\beta w_{\alpha\beta, \text{ph}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \hbar\omega) \\ & + \frac{q^2}{2\hbar\omega V} \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\alpha) n_\beta w_{\alpha\beta, \text{ph}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \hbar\omega). \end{aligned} \quad (3.46)$$

Vandijagonalni elementi tenzora provodnosti se lako izračunavaju kada je ispunjena pretpostavka lokalizacije nosilaca.

Račun analogan već sprovedenom daje rezultat (uporediti sa jednačinom (3.31))

$$\begin{aligned} \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) [\hat{J}_a^{(2),00}(t), \hat{J}_b^{(2)}(0)] \right) \left(\frac{iq}{\hbar} \right)^{-2} = & \sum_k \sum_{\alpha\beta\gamma\delta} \left(F_{a;\alpha\beta,k}^- F_{b;\gamma\delta,k}^+ e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k)t} - F_{a;\alpha\beta,k}^+ F_{b;\gamma\delta,k}^- e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k)t} \right) \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \hat{c}_\gamma^\dagger \hat{c}_\delta \rangle_e \\ + \sum_k \sum_{\alpha\beta\gamma} \left(F_{a;\alpha\gamma,k}^- F_{b;\gamma\beta,k}^+ e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\gamma - \epsilon_k)t} - F_{b;\alpha\gamma,k}^+ F_{a;\gamma\beta,k}^- e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\gamma - \epsilon_\beta - \epsilon_k)t} \right) N_k \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle_e \\ + \sum_k \sum_{\alpha\beta\gamma} \left(F_{a;\alpha\gamma,k}^+ F_{b;\gamma\beta,k}^- e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\gamma + \epsilon_k)t} - F_{b;\alpha\gamma,k}^- F_{a;\gamma\beta,k}^+ e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\gamma - \epsilon_\beta + \epsilon_k)t} \right) (1 + N_k) \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle_e. \end{aligned} \quad (3.47)$$

Pod pretpostavkama (3.32)–(3.35), poslednja jednačina se može dovesti u oblik koji je sličan obliku jednačine (3.43). Konačni rezultat je

$$\begin{aligned} \text{Re } \sigma_{ab}(\omega) = & -\frac{q^2}{\hbar^2 \hbar\omega V} \sum_k \sum_{\alpha\beta} (x_{a;\beta} - x_{a;\alpha})(x_{b;\beta} - x_{b;\alpha})(1 - n_\alpha) n_\beta |g_{\alpha\beta,k}^-|^2 \pi \delta \left(\omega + \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k}{\hbar} \right) N_k \\ & -\frac{q^2}{\hbar^2 \hbar\omega V} \sum_k \sum_{\alpha\beta} (x_{a;\beta} - x_{a;\alpha})(x_{b;\beta} - x_{b;\alpha})(1 - n_\alpha) n_\beta |g_{\alpha\beta,k}^+|^2 \pi \delta \left(\omega + \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k}{\hbar} \right) (1 + N_k) \\ & +\frac{q^2}{\hbar^2 \hbar\omega V} \sum_k \sum_{\alpha\beta} (x_{a;\beta} - x_{a;\alpha})(x_{b;\beta} - x_{b;\alpha})(1 - n_\alpha) n_\beta |g_{\alpha\beta,k}^-|^2 \pi \delta \left(\omega - \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k}{\hbar} \right) N_k \\ & +\frac{q^2}{\hbar^2 \hbar\omega V} \sum_k \sum_{\alpha\beta} (x_{a;\beta} - x_{a;\alpha})(x_{b;\beta} - x_{b;\alpha})(1 - n_\alpha) n_\beta |g_{\alpha\beta,k}^+|^2 \pi \delta \left(\omega - \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k}{\hbar} \right) (1 + N_k). \end{aligned} \quad (3.48)$$

Koristeći jednačinu (3.45), poslednji rezultat se može prepisati preko verovatnoća prelaza u jedinici vremena

$$\begin{aligned} \text{Re } \sigma_{ab}(\omega) = & -\frac{q^2}{2\hbar\omega V} \sum_{\alpha\beta} (x_{a;\beta} - x_{a;\alpha})(x_{b;\beta} - x_{b;\alpha})(1 - n_\alpha) n_\beta w_{\alpha\beta, \text{ph}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \hbar\omega) \\ & +\frac{q^2}{2\hbar\omega V} \sum_{\alpha\beta} (x_{a;\beta} - x_{a;\alpha})(x_{b;\beta} - x_{b;\alpha})(1 - n_\alpha) n_\beta w_{\alpha\beta, \text{ph}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \hbar\omega). \end{aligned} \quad (3.49)$$

U limesu niske koncentracije elektrona, $n_\alpha \ll 1$, kada je hemijski potencijal μ_e dovoljno manji od energija svih dostupnih stanja ϵ_α , tako da je za sva stanja ispunjeno $e^{\beta_e(\epsilon_\alpha - \mu_e)} \gg 1$, u prethodnim formulama se može uzeti

$$(1 - n_\alpha) n_\beta \approx n_\beta, \quad (3.50)$$

pri čemu srednji brojevi popunjenosti približno uzimaju vrednosti koje predviđa Maksvel–Bolcmanova raspodela

$$n_\alpha \approx e^{-\beta_e(\epsilon_\alpha - \mu_e)}. \quad (3.51)$$

Realni delovi pokretljivosti i provodnosti su povezani jednačinom (2.38)

$$\operatorname{Re} \mu_{ab}(\omega) = \frac{1}{nq} \operatorname{Re} \sigma_{ab}(\omega), \quad (3.52)$$

gde je $n = N/V$ koncentracija elektrona, koja se može zapisati kao

$$n = \frac{1}{V} \sum_{\alpha} \frac{1}{e^{\beta e(\epsilon_{\alpha} - \mu_e)} + 1} \approx \frac{1}{V} \sum_{\alpha} e^{-\beta e(\epsilon_{\alpha} - \mu_e)} \quad (3.53)$$

gde je približna jednakost zapisana u limesu niske koncentracije. Kombinujući jednačine (3.49)–(3.53), realni deo pokretljivosti se može zapisati kao

$$\operatorname{Re} \mu_{ab}(\omega) = \frac{q}{2\hbar\omega} \sum_{\alpha\beta} (x_{a;\beta} - x_{a;\alpha})(x_{b;\beta} - x_{b;\alpha}) \frac{e^{-\beta e\epsilon_{\beta}}}{\sum_{\gamma} e^{-\beta e\epsilon_{\gamma}}} (w_{\alpha\beta,\text{ph}}(\epsilon_{\alpha} - \epsilon_{\beta} - \hbar\omega) - w_{\alpha\beta,\text{ph}}(\epsilon_{\alpha} - \epsilon_{\beta} + \hbar\omega)), \quad (3.54)$$

$$\operatorname{Re} \mu_{xx}(\omega) = \frac{q}{2\hbar\omega} \sum_{\alpha\beta} (x_{\beta} - x_{\alpha})^2 \frac{e^{-\beta e\epsilon_{\beta}}}{\sum_{\gamma} e^{-\beta e\epsilon_{\gamma}}} (w_{\alpha\beta,\text{ph}}(\epsilon_{\alpha} - \epsilon_{\beta} - \hbar\omega) - w_{\alpha\beta,\text{ph}}(\epsilon_{\alpha} - \epsilon_{\beta} + \hbar\omega)). \quad (3.55)$$

3.2.2 Slučaj neravnotežne elektronske raspodele u limesu niske koncentracije nosilaca

U slučaju kada statistički operator koji opisuje elektronski podsistem nije oblika (3.32), problem se može uprostiti u limesu niske koncentracije nosilaca. Umesto da za elektronski potprostor uzimamo ceo Fokov prostor za fermione³ (što je prostor u kome deluju operatori \hat{c}_{α} i $\hat{c}_{\alpha}^{\dagger}$), moguće je ograničiti se (u limitu niske koncentracije) na potprostor jednočestičnih elektronskih stanja, odnosno potprostor u kojem je broj fermiona jednak 1. Bazis tog potprostora čine jednočestična elektronska stanja $\{|\alpha\rangle\}$, za koja pretpostavljamo da su normirana, međusobno ortogonalna i zadovoljavaju relaciju kompletnosti

$$\sum_{\alpha} |\alpha\rangle\langle\alpha| = \mathbb{I}_{1e}, \quad (3.56)$$

gde je \mathbb{I}_{1e} jedinični operator u prostoru stanja jednog elektrona. Kreacioni i anihilacioni operator za jednočestično stanje $|\alpha\rangle$ se mogu zapisati u obliku [13] (tako da se eksplicitno uočava da oni prevode vektore iz potprostora sa određenim brojem čestica u vektore iz potprostora sa jednom česticom više, odnosno manje)

$$\hat{c}_{\alpha}^{\dagger} = |\alpha\rangle\langle 0| + \sum_{\alpha_1} |\alpha, \alpha_1\rangle_A \langle\alpha_1| + \frac{1}{2!} \sum_{\alpha_1\alpha_2} |\alpha, \alpha_1, \alpha_2\rangle_A \langle\alpha_1, \alpha_2| + \dots \quad (3.57)$$

$$\hat{c}_{\alpha} = |0\rangle\langle\alpha| + \sum_{\alpha_1} |\alpha_1\rangle_A \langle\alpha, \alpha_1| + \frac{1}{2!} \sum_{\alpha_1\alpha_2} |\alpha_1, \alpha_2\rangle_A \langle\alpha, \alpha_1, \alpha_2| + \dots \quad (3.58)$$

Vektor $|\alpha_1, \alpha_2\rangle_A$ u reprezentaciji brojeva popunjenosti označava stanje dva fermiona, od kojih je jedan u stanju $|\alpha_1\rangle$, a drugi u stanju $|\alpha_2\rangle$. Oznaka A naglašava antisimetričnost u odnosu na permutacije čestica, koja je očigledna u reprezentaciji jednočestičnih stanja

$$|\alpha_1, \alpha_2\rangle_A = \frac{1}{\sqrt{2!}} (|1, \alpha_1\rangle|2, \alpha_2\rangle - |1, \alpha_2\rangle|2, \alpha_1\rangle),$$

³ Ukoliko imamo M dostupnih jednočestičnih stanja, Fokov prostor za fermione je direktna suma

$$\mathcal{F}(M) = \mathcal{F}(M, 0) \oplus \mathcal{F}(M, 1) \oplus \dots \oplus \mathcal{F}(M, M),$$

gde je $\mathcal{F}(M, K)$ potprostor dimenzije $\binom{M}{K}$ u kojem je popunjeno $K \leq M$ jednočestičnih stanja. Potprostor $\mathcal{F}(M, 0)$ je jednodimenzionalan, razapet vakuumskim stanjem $|0_1, \dots, 0_M\rangle$, dok je $\mathcal{F}(M, 1)$ jednočestični prostor stanja razapet vektorima $|1_1, 0_2, \dots, 0_M\rangle, \dots, |0_1, 0_2, \dots, 1_M\rangle$.

gde prvi sabirak označava česticu 1 u stanju α_1 i česticu 2 u stanju α_2 , i slično za drugi sabirak. Operatori $\hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta$ i $\hat{c}_\beta \hat{c}_\alpha^\dagger$ čuvaju ukupan broj čestica, odnosno redukuju se u svakom potprostoru sa fiksiranim brojem čestica, u šta je moguće uveriti se i eksplicitnim računom, koji kada se sprovede daje

$$\hat{c}_\beta \hat{c}_\alpha^\dagger = \delta_{\alpha\beta} \left(|0\rangle\langle 0| + \sum_{\alpha_1} |\alpha_1\rangle\langle \alpha_1| + \dots \right) - |\alpha\rangle\langle \beta| - \dots = \delta_{\alpha\beta} \mathbb{I}_e - |\alpha\rangle\langle \beta| - \dots \quad ; \quad (3.59)$$

$$\hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta = |\alpha\rangle\langle \beta| + \sum_{\alpha_1} |\alpha, \alpha_1\rangle_{AA} \langle \beta, \alpha_1| + \dots \quad . \quad (3.60)$$

Iskoristili smo ortogonalnost stanja sa različitim brojevima čestica. \mathbb{I}_e je jedinični operator u Fokovom prostoru. Iz poslednje dve jednačine trivijalno slede fermionske antikomutacione relacije (koje važe u celom Fokovom prostoru), a kada se ograničimo samo na prostor stanja jednog elektrona, što činimo množenjem operatora sa leva i sa desna projektorom na taj prostor $\hat{P} = \sum_\alpha |\alpha\rangle\langle \alpha|$, dobija se

$$\hat{P} \hat{c}_\beta \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{P} = \delta_{\alpha\beta} \mathbb{I}_{1e} - |\alpha\rangle\langle \beta| \quad , \quad (3.61)$$

$$\hat{P} \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \hat{P} = |\alpha\rangle\langle \beta| \quad , \quad (3.62)$$

$$\hat{P} \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \hat{c}_\gamma^\dagger \hat{c}_\delta \hat{P} = \delta_{\beta\gamma} |\alpha\rangle\langle \delta| \quad . \quad (3.63)$$

Sužavajući dejstvo modelnog hamiltonijana

$$\hat{H}_0 = \sum_\alpha \epsilon_\alpha \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\alpha + \sum_k \epsilon_k \hat{b}_k^\dagger \hat{b}_k + \sum_k \sum_{\alpha\alpha'} \left(g_{\alpha\alpha',k}^- \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_{\alpha'} \hat{b}_k + g_{\alpha\alpha',k}^+ \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_{\alpha'} \hat{b}_k^\dagger \right) \quad (3.64)$$

na upravo opisani način, dobija se

$$\hat{H}_0 = \sum_\alpha \epsilon_\alpha |\alpha\rangle\langle \alpha| + \sum_k \epsilon_k \hat{b}_k^\dagger \hat{b}_k + \sum_k \sum_{\alpha\alpha'} \left(g_{\alpha\alpha',k}^- |\alpha\rangle\langle \alpha'| \hat{b}_k + g_{\alpha\alpha',k}^+ |\alpha\rangle\langle \alpha'| \hat{b}_k^\dagger \right) \quad . \quad (3.65)$$

Sada se mogu ponoviti svi koraci koji su doveli do jednačine (3.31), samo se umesto $\hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta$ svuda uzima $|\alpha\rangle\langle \beta|$. Ipak, lakše je direktno primeniti zamene u jednačini (3.31). Konkretno,

$$\langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle_e = \text{Tr}_e \left(\hat{\rho}_e \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \right) \rightarrow \text{Tr}_{1e} \left(\hat{\rho}_e |\alpha\rangle\langle \beta| \right) = \langle \beta | \hat{\rho}_e | \alpha \rangle \quad , \quad (3.66)$$

$$\langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \hat{c}_\gamma^\dagger \hat{c}_\delta \rangle_e = \text{Tr}_e \left(\hat{\rho}_e \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \hat{c}_\gamma^\dagger \hat{c}_\delta \right) \rightarrow \delta_{\beta\gamma} \text{Tr}_{1e} \left(\hat{\rho}_e |\alpha\rangle\langle \delta| \right) = \delta_{\beta\gamma} \langle \delta | \hat{\rho}_e | \alpha \rangle \quad . \quad (3.67)$$

Pretpostavili smo da je $\hat{\rho}_e$ analitička funkcija elektronskog dela hamiltonijana \hat{H}_e . Zato važi

$$\langle \beta | \hat{\rho}_e | \alpha \rangle = \delta_{\alpha\beta} r_\alpha, \quad (3.68)$$

gde je

$$r_\alpha = \langle \alpha | \hat{\rho}_e | \alpha \rangle. \quad (3.69)$$

Nakon zamene uslova (3.68) u jednačine (3.66) i (3.67) i kombinovanja sa (3.31), dobija se rezultat

$$\begin{aligned} & \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) [\hat{J}_x^{(2,0)}(t), \hat{J}_x^{(2)}(0)] \right) = \\ & \frac{q^2}{\hbar^2} \sum_k \sum_{\alpha\beta} \left(|F_{\alpha\beta,k}^-|^2 e^{-\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k)t} r_\beta N_k + |F_{\alpha\beta,k}^+|^2 e^{-\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k)t} r_\beta (1 + N_k) \right) \\ & - \frac{q^2}{\hbar^2} \sum_k \sum_{\alpha\beta} \left(|F_{\alpha\beta,k}^-|^2 e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k)t} r_\beta N_k + |F_{\alpha\beta,k}^+|^2 e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k)t} r_\beta (1 + N_k) \right). \end{aligned} \quad (3.70)$$

Zamenjujući poslednju jednačinu u izraz za provodnost (3.26), uz uslov $x_{\alpha\alpha'} = x_\alpha \delta_{\alpha\alpha'}$, dobija se

$$\begin{aligned} \text{Re } \sigma_{xx}(\omega) = & \\ & - \frac{q^2}{\hbar^2 \hbar \omega V} \sum_k \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 r_\beta \left(|g_{\alpha\beta,k}^-|^2 \pi \delta \left(\omega + \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k}{\hbar} \right) N_k + |g_{\alpha\beta,k}^+|^2 \pi \delta \left(\omega + \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k}{\hbar} \right) (1 + N_k) \right) \\ & + \frac{q^2}{\hbar^2 \hbar \omega V} \sum_k \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 r_\beta \left(|g_{\alpha\beta,k}^-|^2 \pi \delta \left(\omega - \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k}{\hbar} \right) N_k + |g_{\alpha\beta,k}^+|^2 \pi \delta \left(\omega - \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k}{\hbar} \right) (1 + N_k) \right). \end{aligned} \quad (3.71)$$

Poslednja jednačina ima isti oblik kao i jednačina (3.43), uz zamene $n_\alpha \rightarrow r_\alpha$, $1 - n_\alpha \rightarrow 1$ i može se transformisati tako da u njoj figurišu verovatnoće prelaza u jedinici vremena (3.45)

$$\begin{aligned} \text{Re } \sigma_{xx}(\omega) = & - \frac{q^2}{2\hbar\omega V} \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 r_\beta w_{\alpha\beta,\text{ph}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \hbar\omega) \\ & + \frac{q^2}{2\hbar\omega V} \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 r_\beta w_{\alpha\beta,\text{ph}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \hbar\omega). \end{aligned} \quad (3.72)$$

Generalizacija na vandijagonalne elemente tenzora provodnosti je opet jednostavna za slučaj lokalizovanih elektrona. Rezultat je

$$\begin{aligned} \text{Re } \sigma_{ab}(\omega) = & - \frac{q^2}{2\hbar\omega V} \sum_{\alpha\beta} (x_{a;\beta} - x_{a;\alpha})(x_{b;\beta} - x_{b;\alpha}) r_\beta w_{\alpha\beta,\text{ph}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \hbar\omega) \\ & + \frac{q^2}{2\hbar\omega V} \sum_{\alpha\beta} (x_{a;\beta} - x_{a;\alpha})(x_{b;\beta} - x_{b;\alpha}) r_\beta w_{\alpha\beta,\text{ph}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \hbar\omega). \end{aligned} \quad (3.73)$$

Da bi se videlo šta je na ovaj način postignuto, najjednostavnije je pogledati specijalan slučaj elektronske raspodele (3.32). Matrični element

$$\langle \beta | \hat{\rho}_e | \alpha \rangle = \delta_{\alpha\beta} \frac{e^{-\beta_e(\epsilon_\alpha - \mu_e)}}{\prod_\gamma (1 + e^{-\beta_e(\epsilon_\gamma - \mu_e)})} = \delta_{\alpha\beta} r_\alpha \quad (3.74)$$

se u slučaju da je za sva stanja ispunjeno $e^{-\beta_e(\epsilon_\gamma - \mu_e)} \ll 1$ svodi na (zadržavajući se na članovima linearnim po malim veličinama $e^{-\beta_e(\epsilon_\gamma - \mu_e)}$)

$$\langle \beta | \hat{\rho}_e | \alpha \rangle \approx \delta_{\alpha\beta} e^{-\beta_e(\epsilon_\alpha - \mu_e)}, \quad (3.75)$$

odnosno koeficijenti r_α su približno jednaki $r_\alpha \approx \exp(-\beta_e(\epsilon_\alpha - \mu_e))$, što odgovara već razmatranim aproksimacijama u jednačinama (3.50) i (3.51).

Realni deo pokretljivosti se može izračunati na osnovu jednačine (3.52), pri čemu se koncentracija može prepisati u obliku analognom jednačini (3.53)

$$n = \frac{1}{V} \sum_\alpha \text{Tr} \left(\hat{\rho}_e \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\alpha \right) \approx \frac{1}{V} \sum_\alpha \text{Tr}_{1e} \left(\hat{\rho}_e | \alpha \rangle \langle \alpha | \right) = \frac{1}{V} \sum_\alpha r_\alpha. \quad (3.76)$$

Realni deo pokretljivosti se, dakle, konačno može zapisati u obliku

$$\text{Re } \mu_{ab}(\omega) = \frac{q}{2\hbar\omega} \sum_{\alpha\beta} (x_{a;\beta} - x_{a;\alpha})(x_{b;\beta} - x_{b;\alpha}) \frac{r_\beta}{\sum_\gamma r_\gamma} (w_{\alpha\beta,\text{ph}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \hbar\omega) - w_{\alpha\beta,\text{ph}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \hbar\omega)), \quad (3.77)$$

$$\text{Re } \mu_{xx}(\omega) = \frac{q}{2\hbar\omega} \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 \frac{r_\beta}{\sum_\gamma r_\gamma} (w_{\alpha\beta,\text{ph}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \hbar\omega) - w_{\alpha\beta,\text{ph}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \hbar\omega)). \quad (3.78)$$

Dakle, pokretljivost je, pod svim gore navedenim pretpostavkama, u potpunosti povezana sa mikroskopskim karakteristikama sistema i izražena je preko populacija jednočestičnih stanja, koordinata centara lokalizacije tih stanja i verovatnoća prelaza u jedinici vremena između tih stanja.

3.3 Direktna apsorpcija od spoljašnje pobude

Polazimo od jednačine (3.25) i računamo realne delove dijagonalnih elemenata tenzora provodnosti, $\text{Re } \sigma_{xx}(\omega)$. Doprinos disipativnom delu optičke provodnosti koji ćemo u ovom delu izračunati ne zavisi od konstanti elektron–fonon interakcije i dajemo ga samo radi kompletnosti izlaganja.

Račun za $[\hat{J}_x^{(1),00}(t), \hat{J}_x^{(1)}(0)]$ daje

$$[\hat{J}_x^{(1),00}(t), \hat{J}_x^{(1)}(0)] = q^2 \sum_{\alpha\alpha'\beta} \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_{\alpha'}}{\hbar} x_{\alpha\alpha'} \frac{\epsilon_{\alpha'} - \epsilon_\beta}{\hbar} x_{\alpha'\beta} \left(e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_{\alpha'} - \epsilon_\beta)t} - e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_{\alpha'})t} \right) \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta, \quad (3.79)$$

pa je računanje traga po fononskom potprostoru trivijalno, odnosno

$$\text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) [\hat{J}_x^{(1),00}(t), \hat{J}_x^{(1)}(0)] \right) = q^2 \sum_{\alpha\alpha'\beta} \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_{\alpha'}}{\hbar} x_{\alpha\alpha'} \frac{\epsilon_{\alpha'} - \epsilon_\beta}{\hbar} x_{\alpha'\beta} \left(e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_{\alpha'} - \epsilon_\beta)t} - e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_{\alpha'})t} \right) \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle_e, \quad (3.80)$$

Kada se poslednji rezultat uvrsti u jednačinu (3.25), izvrši integracija i iskoristi identitet (3.40) dobija se

$$\text{Re } \sigma_{xx}(\omega) = \frac{q^2}{\hbar\omega V} \sum_{\alpha\alpha'\beta} \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_{\alpha'}}{\hbar} x_{\alpha\alpha'} \frac{\epsilon_{\alpha'} - \epsilon_\beta}{\hbar} x_{\alpha'\beta} \left(\pi\delta \left(\omega + \frac{\epsilon_{\alpha'} - \epsilon_\beta}{\hbar} \right) - \pi\delta \left(\omega + \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_{\alpha'}}{\hbar} \right) \right) \langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle_e. \quad (3.81)$$

U do sada razmatranim slučajevima važi

$$\langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle_e = n_\alpha \delta_{\alpha\beta}, \quad (3.82)$$

gde je n_α u slučaju ravnotežne elektronske raspodele (3.32) dato jednačinom (3.35), a u slučaju neravnotežne elektronske raspodele i u limesu niske koncentracije nosilaca dato jednačinom (3.69). Nakon zamene tog rezultata u jednačinu (3.81), dobija se

$$\begin{aligned} \text{Re } \sigma_{xx}(\omega) &= \frac{q^2}{\hbar\omega V} \sum_{\alpha\alpha'} \left(\frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_{\alpha'}}{\hbar} \right)^2 |x_{\alpha\alpha'}|^2 \left(\pi\delta \left(\omega - \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_{\alpha'}}{\hbar} \right) - \pi\delta \left(\omega + \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_{\alpha'}}{\hbar} \right) \right) n_{\alpha'} \\ &= \frac{q^2}{\hbar V} \sum_{\alpha\alpha'} (\epsilon_\alpha - \epsilon_{\alpha'}) |x_{\alpha\alpha'}|^2 (\pi\delta(\epsilon_\alpha - \epsilon_{\alpha'} - \hbar\omega) + \pi\delta(\epsilon_\alpha - \epsilon_{\alpha'} + \hbar\omega)) n_{\alpha'}. \end{aligned} \quad (3.83)$$

Jasno se vidi doprinos članova koji potiču od direktnih (bez uticaja fonona, samo pod uticajem spoljašnje harmonijske perturbacije) prelaza iz jednočestičnog stanja α' u jednočestično stanje α uz apsorpciju (emisiju) kvanta energije $\hbar\omega$.

Pošto je izraz $\pi\delta(\epsilon_\alpha - \epsilon_{\alpha'} - \hbar\omega) + \pi\delta(\epsilon_\alpha - \epsilon_{\alpha'} + \hbar\omega)$ simetričan na zamenu indeksa α i α' (odnosno $w_{\alpha\alpha',\omega} = w_{\alpha'\alpha,\omega}$), jednačina (3.83) se može prepisati tako da se eksplicitno uključi Paulijev princip kroz faktor $n_{\alpha'}(1 - n_\alpha)$ koji odgovara prelazu iz stanja α' u stanje α . Konačan rezultat je

$$\text{Re } \sigma_{xx}(\omega) = \omega \cdot \frac{q^2}{V} \sum_{\alpha\alpha'} n_{\alpha'}(1 - n_\alpha) |x_{\alpha\alpha'}|^2 (\pi\delta(\epsilon_\alpha - \epsilon_{\alpha'} - \hbar\omega) - \pi\delta(\epsilon_\alpha - \epsilon_{\alpha'} + \hbar\omega)). \quad (3.84)$$

Glava 4

Transportne osobine u prisustvu dodatnog statičkog potencijala

U ovoj glavi ćemo razmatrati model transporta naelektrisanja u prisustvu dodatnog statičkog potencijala. Konkretni primer tog potencijala jeste potencijal koji opisuje interakciju sa (statičkim) nečistoćama, videti jednačinu (4.1). Sve rezultate u ovoj glavi ćemo izložiti upravo na tom primeru, ali odmah na početku ističemo mogućnost interpretacije dobijenih rezultata u svetlu transportnih osobina u prisustvu dodatnog statičkog potencijala. Ponovo pretpostavljamo da je $[\hat{\rho}(0), \hat{H}_0] \neq \hat{0}$ i polazimo od jednačina (3.1) i (3.2). Naročito će detaljno biti razmotren slučaj transporta naelektrisanja skakutanjem između lokalizovanih stanja, pri čemu je interakcija elektrona sa statičkim nečistoćama mehanizam koji dovodi do skakutanja. Smatrajući da se interakcija sa statičkim nečistoćama može tretirati perturbativno, u najnižem redu teorije perturbacija u kojem se dobija netrivialan rezultat izvešćemo izraz za optičku provodnost koji je analogan izrazu (2.34), videti jednačinu (4.10). Slično kao u slučaju interakcije sa fononima, izrazićemo realni deo optičke provodnosti pomoću verovatnoća jednočestičnih prelaza u jedinici vremena između lokalizovanih stanja. Pomenuti jednočestični prelazi obavljaju se interakcijom sa statičkim nečistoćama koja je kombinovana sa interakcijom sa spoljašnjim poljem. Rezultat koji ćemo dobiti je u potpunosti analogan rezultatu u slučaju kada je mehanizam koji dovodi do skakutanja interakcija sa fononima. Konačno, realni deo pokretljivosti ćemo izraziti preko mikroskopskih parametara modela.

4.1 Modelni hamiltonijan. Izraz za optičku provodnost

Pretpostavimo da u posmatranom sistemu imamo nečistoće locirane na položajima $\{\vec{R}_i\}$. Ukoliko su sve nečistoće identične, odnosno prisustvo svake nečistoće se može opisati statičkim potencijalom $u(\vec{r})$, potencijal (u realnom prostoru) koji opisuje efekte svih nečistoća je

$$U(\vec{r}) = \sum_i u(\vec{r} - \vec{R}_i). \quad (4.1)$$

U reprezentaciji druge kvantizacije, smatrajući poznatim kompletan skup talasnih funkcija $\{\psi_\alpha(\vec{r})\}$ koje opisuju stanja jednog elektrona, potencijal U može se prepisati kao

$$\hat{U} = \sum_{\alpha\beta} A_{\alpha\beta} \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta, \quad (4.2)$$

gde je

$$A_{\alpha\beta} = \sum_i \int d^3\vec{r} \psi_\alpha(\vec{r})^* u(\vec{r} - \vec{R}_i) \psi_\beta(\vec{r}). \quad (4.3)$$

Ukupni hamiltonijan je sada dat kao

$$\hat{H}_0 = \hat{H}_{00} + \hat{U} = \sum_\alpha \epsilon_\alpha \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\alpha + \sum_{\alpha\beta} A_{\alpha\beta} \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta. \quad (4.4)$$

Operator \hat{J}_a se nalazi na potpuno isti način kao i u slučaju kada je perturbacija elektron–fonon interakcija, koristeći jednačinu (2.29). Rezultat je

$$\hat{J}_a = \hat{J}_a^{(\text{dir})} + \hat{J}_a^{(\text{imp})} = \frac{iq}{\hbar} \sum_{\alpha\alpha'} x_{a;\alpha\alpha'} (\epsilon_\alpha - \epsilon_{\alpha'}) \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_{\alpha'} + \frac{iq}{\hbar} \sum_{\alpha\beta} \left(\sum_{\alpha'} A_{\alpha\alpha'} x_{a;\alpha'\beta} - x_{a;\alpha\alpha'} A_{\alpha'\beta} \right) \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta. \quad (4.5)$$

Ponovo se mogu uočiti dva doprinosa. Prvi sabirak $\hat{J}_a^{(\text{dir})}$ je analogon sabirka $\hat{J}_a^{(1)}$ u slučaju elektron–fonon interakcije i opisuje transport naelektrisanja samo usled interakcije sa spoljašnjim poljem, bez uticaja interakcije sa nečistoćama. Drugi sabirak $\hat{J}_a^{(\text{imp})}$ je analogan doprinosu $\hat{J}_a^{(2)}$ u slučaju elektron–fonon interakcije. Ukoliko se uvede oznaka

$$\mathcal{A}_{a;\alpha\beta} = \sum_{\alpha'} (A_{\alpha\alpha'} x_{a;\alpha'\beta} - x_{a;\alpha\alpha'} A_{\alpha'\beta}), \quad (4.6)$$

konačni rezultat za \hat{J}_a se može zapisati u obliku

$$\hat{J}_a = \frac{iq}{\hbar} \sum_{\alpha\beta} (x_{a;\alpha\beta} (\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta) + \mathcal{A}_{a;\alpha\beta}) \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta. \quad (4.7)$$

Koeficijenti $\mathcal{A}_{a;\alpha\beta}$ zadovoljavaju vezu (uporediti sa jednačinom (3.17))

$$\mathcal{A}_{a;\beta\alpha} = -\mathcal{A}_{a;\alpha\beta}^*. \quad (4.8)$$

Tretiraćemo potencijal koji potiče od nečistoća kao slabu perturbaciju i ponovo ćemo, kao u slučaju elektron–fonon interakcije, tražiti najdominantniji doprinos provodnosti u razvoju u red po stepenima potencijala nečistoće, zadržavajući se pri tome na najnižem redu u kojem se dobija netrivialni rezultat. Detaljnije ćemo razmotriti samo slučaj kada se transport naelektrisanja obavlja skakanjem između lokalizovanih stanja, tako da ćemo odmah pretpostaviti da je ispunjena pretpostavka lokalizacije nosilaca (3.22), kada se koeficijenti $\mathcal{A}_{a;\alpha\beta}$ mogu zapisati kao $\mathcal{A}_{a;\alpha\beta} = A_{\alpha\beta}(x_{a;\beta} - x_{a;\alpha})$. U tom slučaju se izraz (4.7) može zapisati u obliku

$$\hat{J}_a = \frac{iq}{\hbar} \sum_{\alpha\beta} A_{\alpha\beta} (x_{a;\beta} - x_{a;\alpha}) \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta. \quad (4.9)$$

Takođe ćemo pretpostaviti da je statistički operator sistema u početnom trenutku $\hat{\rho}(0)$ analitička funkcija elektronskog dela hamiltonijana \hat{H}_{00} . Posmatrajući izraz za provodnost (3.2), kao i razvoje (3.19) i (3.20), analogno slučaju elektron–fonon interakcije moguće je dobiti da je u slučaju lokalizovanih nosilaca najdominantniji doprinos provodnosti u razvoju u red po stepenima potencijala nečistoće kvadratičan po tom potencijalu. Naime, pod pretpostavkom lokalizovanih nosilaca, operator \hat{J}_a je linearan po potencijalu nečistoće, a pod pretpostavkom da je $\hat{\rho}(0)$ analitička funkcija od \hat{H}_{00} , svi komutatori u razvoju (3.20) su barem linearni po potencijalu nečistoće. Rezultat za provodnost zavisnu od frekvencije je, dakle, analogan rezultatu (3.26)

$$\sigma_{ab}(\omega) = \frac{iq^2}{m\omega} \delta_{ab} + \frac{1}{\hbar\omega V} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) \left[\hat{J}_a^{(\text{imp}),00}(t), \hat{J}_b^{(\text{imp})}(0) \right] \right). \quad (4.10)$$

4.2 Prelazak na jednočestičnu sliku

Najpre će biti razmotren slučaj kada je operator $\hat{\rho}(0)$ oblika

$$\hat{\rho}(0) = \frac{e^{-\beta_e(\hat{H}_{00} - \mu_e \hat{N}_e)}}{\text{Tr} e^{-\beta_e(\hat{H}_{00} - \mu_e \hat{N}_e)}}. \quad (4.11)$$

Za komutator struja se u najnižem redu Dajsonovog razvoja dobija

$$[\hat{J}_x^{(\text{imp}),00}(t), \hat{J}_x^{(\text{imp})}(0)] = \left(\frac{iq}{\hbar}\right)^2 \sum_{\alpha\beta\gamma} A_{\alpha\beta}(x_\beta - x_\alpha) A_{\beta\gamma}(x_\gamma - x_\beta) e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta)t} \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\gamma - \left(\frac{iq}{\hbar}\right)^2 \sum_{\alpha\beta\gamma} A_{\alpha\beta}(x_\beta - x_\alpha) A_{\gamma\alpha}(x_\alpha - x_\gamma) e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta)t} \hat{c}_\gamma^\dagger \hat{c}_\beta. \quad (4.12)$$

Ponovo uzimajući da je $\langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\gamma \rangle = \delta_{\alpha\gamma} n_\alpha$, gde je n_α dato jednačinom (3.35), nakon usrednjavanja i jednostavnih transformacija poslednji izraz postaje

$$\text{Tr} \left(\hat{\rho}(0) [\hat{J}_x^{(\text{imp}),00}(t), \hat{J}_x^{(\text{imp})}(0)] \right) = - \left(\frac{q}{\hbar}\right)^2 \sum_{\alpha\beta} |A_{\alpha\beta}|^2 (x_\beta - x_\alpha)^2 e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta)t} (1 - n_\alpha) n_\beta + \left(\frac{q}{\hbar}\right)^2 \sum_{\alpha\beta} |A_{\alpha\beta}|^2 (x_\beta - x_\alpha)^2 e^{-\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta)t} (1 - n_\alpha) n_\beta. \quad (4.13)$$

Račun za provodnost, koristeći (4.10), daje ($\omega \neq 0$)

$$\text{Re } \sigma_{xx}(\omega) = - \frac{q^2}{2\hbar\omega V} \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\alpha) n_\beta \frac{2\pi}{\hbar} |A_{\alpha\beta}|^2 \delta(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \hbar\omega) + \frac{q^2}{2\hbar\omega V} \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\alpha) n_\beta \frac{2\pi}{\hbar} |A_{\alpha\beta}|^2 \delta(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \hbar\omega). \quad (4.14)$$

U poslednjem izrazu mogu se prepoznati modifikovane (usled prisustva spoljašnje harmonijske perturbacije) verovatnoće prelaza između jednočestičnih elektronskih stanja β i α pod uticajem rasejanja na nečistoćama. Verovatnoća prelaza iz jednočestičnog stanja β u jednočestično stanje α pod uticajem rasejanja na nečistoćama data je Fermijevim zlatnim pravilom kao

$$w_{\alpha\beta, \text{imp}} = w_{\alpha\beta, \text{imp}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta) = \frac{2\pi}{\hbar} |A_{\alpha\beta}|^2 \delta(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta). \quad (4.15)$$

Izraz za provodnost u slučaju rasejanja na nečistoćama se može prepisati tako da se uočava formalna analogija sa slučajem rasejanja na fononima, vidi jednačinu (3.46)

$$\text{Re } \sigma_{xx}(\omega) = - \frac{q^2}{2\hbar\omega V} \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\alpha) n_\beta w_{\alpha\beta, \text{imp}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \hbar\omega) + \frac{q^2}{2\hbar\omega V} \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\alpha) n_\beta w_{\alpha\beta, \text{imp}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \hbar\omega). \quad (4.16)$$

Kada je za sva stanja ispunjeno $e^{-\beta e(\epsilon_\gamma - \mu_e)} \ll 1$, na način analogan već opisanom u delu 3.2.1, jednačine (3.50), (3.51) i (3.52), dobija se rezultat za realni deo pokretljivosti

$$\text{Re } \mu_{xx}(\omega) = \frac{q}{2\hbar\omega} \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 \frac{e^{-\beta e\epsilon_\beta}}{\sum_\gamma e^{-\beta e\epsilon_\gamma}} (w_{\alpha\beta, \text{imp}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \hbar\omega) - w_{\alpha\beta, \text{imp}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \hbar\omega)). \quad (4.17)$$

Kada početni statistički operator $\hat{\rho}(0)$ nije oblika (4.11) i u limesu niske koncentracije nosilaca, može se sprovesti diskusija analogna onoj sprovedenoj u delu 3.2.2. Aproksimacija podrazumeva sužavanje dejstva hamiltonijana (4.4) na potprostor jednočestičnih stanja (koristeći (3.62)), čime se dobija

$$\hat{H}_0 = \sum_\alpha \epsilon_\alpha |\alpha\rangle \langle \alpha| + \sum_{\alpha\beta} A_{\alpha\beta} |\alpha\rangle \langle \beta|, \quad (4.18)$$

a srednje vrednosti $\langle \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \rangle$ se zapisuju u obliku $\delta_{\alpha\beta} r_\alpha$, gde je $r_\alpha = \langle \alpha | \hat{\rho}(0) | \alpha \rangle$. Izostavljajući tehničke detalje, s obzirom na uočenu formalnu analogiju sa slučajem elektron–fonon interakcije, navodimo samo konačan rezultat za pokretljivost koji je analogan rezultatu (3.78) i iz koga se vidi da smo pokretljivost uspeli da izrazimo preko mikroskopskih parametara modela

$$\text{Re } \mu_{xx}(\omega) = \frac{q}{2\hbar\omega} \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 \frac{r_\beta}{\sum_\gamma r_\gamma} (w_{\alpha\beta, \text{imp}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \hbar\omega) - w_{\alpha\beta, \text{imp}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \hbar\omega)). \quad (4.19)$$

Glava 5

Kuboova formula za provodnost

U slučaju kada je stanje sistema neposredno pre uključivanja spoljašnje perturbacije ravnotežno (odnosno kada posmatramo linearni odziv ravnotežnog sistema), disipativni deo optičke provodnosti je moguće povezati sa disperzijom položaja nosilaca naelektrisanja. U prvom delu ove glave ćemo dokazati navedenu tvrdnju. Zatim ćemo u drugom i trećem delu ove glave proveriti da se formule za realni deo optičke provodnosti dobijene u glavama **3** i **4**, u kojima je provodnost izražena preko mikroskopskih parametara modela, u specijalnom slučaju ravnotežnog stanja sistema neposredno pre uključivanja spoljašnje perturbacije svode na Kuboovu formulu koju ćemo izvesti u ovoj glavi.

5.1 Veza između kvantne difuzije i disipacije

Statistički operator sistema neposredno pre uključivanja perturbacije je

$$\hat{\rho}(0) = \hat{\rho}_0 = \frac{e^{-\beta(\hat{H}_0 - \mu_e \hat{N}_e)}}{\text{Tr} e^{-\beta(\hat{H}_0 - \mu_e \hat{N}_e)}}, \quad (5.1)$$

gde je $\beta = (k_B T)^{-1}$, dok je μ_e hemijski potencijal elektrona, koji se može dobiti iz poznatog broja elektrona N

$$N = \text{Tr} \left(\hat{\rho}_0 \hat{N}_e \right). \quad (5.2)$$

Jednačina (2.9) se može zapisati u obliku

$$\hat{\rho}(t) = \hat{\rho}_0 + \frac{1}{i\hbar} e^{-i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t} \int_0^t dt' [\hat{H}'_I(t'), \hat{\rho}_0] e^{i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t'}. \quad (5.3)$$

Gustina struje u trenutku t , jednačina (2.11), je

$$\langle \hat{j}_a(\vec{r}) \rangle_t = \text{Tr} \left(\hat{\rho}(t) \hat{j}_a(\vec{r}) \right) = \text{Tr} \left(\hat{\rho}_0 \hat{j}_a(\vec{r}) \right) + \frac{1}{i\hbar} \int_0^t dt' \text{Tr} \left(\hat{\rho}_0 [\hat{j}_a(t, \vec{r}), \hat{H}'_I(t')] \right). \quad (5.4)$$

Prvi sabirak sada jeste jednak nuli, tako da preostaje samo drugi sabirak koji se dalje transformiše na način opisan u poglavlju **2**, s obzirom na to da je zadovoljen uslov (2.22). Zato odmah možemo pisati

$$\sigma_{ab}(\omega) = i \frac{nq^2}{m\omega} \delta_{ab} + \frac{1}{\hbar\omega V} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \langle [\hat{J}_a(t), \hat{J}_b(0)] \rangle, \quad (5.5)$$

gde sada zagrade $\langle \dots \rangle$ označavaju usrednjavanje po ravnotežnom statističkom operatoru $\hat{\rho}_0$. Realni deo dijagonalnih elemenata tenzora provodnosti, za $\omega \neq 0$, uz korišćenje $\hat{J}_a(t) = q\hat{V}_a(t)$, gde je $\hat{V}_a = \sum_n \hat{v}_{na}$ operator ukupne brzine elektrona, može da se napiše kao

$$\text{Re} \sigma_{xx}(\omega) = \frac{q^2}{\hbar\omega V} \text{Re} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \langle [\hat{V}_x(t), \hat{V}_x(0)] \rangle. \quad (5.6)$$

Srednju vrednost u dobijenoj jednačini ćemo najlakše transformisati u bazu egzaktnih svojstvenih stanja $\{|n\rangle\}$ hamiltonijana \hat{H}_0 i broja elektrona \hat{N}_e , $\hat{H}_0|n\rangle = E_n|n\rangle$, $\hat{N}_e|n\rangle = N_n|n\rangle$, $\hat{\rho}_0|n\rangle = f(E_n, N_n)|n\rangle$, pri čemu je $f(E_n, N_n) = \frac{e^{-\beta(E_n - \mu N_n)}}{\text{Tr} e^{-\beta(\hat{H}_0 - \mu_e \hat{N}_e)}}$. Komutator brzina se može transformisati kao (vođeci računa o tome da operator ukupne brzine čuva ukupan broj elektrona)

$$\langle [\hat{V}_x(t), \hat{V}_x(0)] \rangle = \sum_{n,m} (f(E_n, N_n) - f(E_m, N_n)) e^{-\frac{i}{\hbar}(E_m - E_n)t} \langle n | \hat{V}_x(0) | m \rangle \langle m | \hat{V}_x(0) | n \rangle, \quad (5.7)$$

pa se nakon zamene u integral i korišćenja

$$\int_0^{+\infty} dt e^{i(\omega + i\eta - (E_m - E_n)/\hbar)t} = \frac{i}{\omega - \frac{E_m - E_n}{\hbar} + i\eta} \quad (5.8)$$

dobija formula za provodnost

$$\text{Re } \sigma_{xx}(\omega) = \text{Re} \frac{iq^2}{\hbar\omega V} \sum_{n,m} (f(E_n, N_n) - f(E_m, N_n)) \langle n | \hat{V}_x(0) | m \rangle \langle m | \hat{V}_x(0) | n \rangle \frac{1}{\omega - \frac{E_m - E_n}{\hbar} + i\eta}. \quad (5.9)$$

Koristeći identitet (3.40) dobija se

$$\text{Re } \sigma_{xx}(\omega) = \frac{iq^2}{\hbar\omega V} \sum_{n,m} (f(E_n, N_n) - f(E_m, N_n)) \langle n | \hat{V}_x(0) | m \rangle \langle m | \hat{V}_x(0) | n \rangle \cdot (-i\pi) \delta\left(\omega - \frac{E_m - E_n}{\hbar}\right). \quad (5.10)$$

Dobijena delta-funkcija daje uslov $E_m = E_n + \hbar\omega$. Pošto je

$$\delta\left(\omega - \frac{E_m - E_n}{\hbar}\right) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i\omega t} e^{-i(E_m - E_n)t/\hbar},$$

to je

$$\text{Re } \sigma_{xx}(\omega) = \frac{q^2}{2\hbar\omega V} \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i\omega t} \sum_n (f(E_n, N_n) - f(E_n + \hbar\omega, N_n)) \langle n | \hat{V}_x(t) \hat{V}_x(0) | n \rangle. \quad (5.11)$$

Na osnovu definicije $f(E_n, N_n)$, neposredno se dobija

$$f(E_n, N_n) - f(E_n + \hbar\omega, N_n) = (1 - e^{-\beta\hbar\omega}) f(E_n, N_n)$$

pa se formula za provodnost transformiše

$$\text{Re } \sigma_{xx}(\omega) = \frac{q^2(1 - e^{-\beta\hbar\omega})}{2\hbar\omega V} \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i\omega t} \langle \hat{V}_x(t) \hat{V}_x(0) \rangle. \quad (5.12)$$

Poslednja varijanta formule za $\text{Re } \sigma_{xx}(\omega)$ eksplicitno povezuje disipativni deo optičke provodnosti sa ravnotežnom korelacionom funkcijom $\langle \hat{J}_a(t) \hat{J}_b(0) \rangle$ i predstavlja formalni iskaz tzv. *fluktuationo-dissipacione teoreme*.

Eksplicitno se može proveriti da je poslednji rezultat realna veličina. To sledi iz činjenice da je razlaganje

$$\langle \hat{V}_x(t) \hat{V}_x(0) \rangle = \frac{1}{2} \langle \{\hat{V}_x(t), \hat{V}_x(0)\} \rangle + \frac{1}{2} \langle [\hat{V}_x(t), \hat{V}_x(0)] \rangle$$

zapravo razlaganje na realni i imaginarni deo kompleksnog broja $\langle \hat{V}_x(t) \hat{V}_x(0) \rangle$ (očekivana vrednost hermitskog dela je realna, a kosohermitskog dela čisto imaginarna), kao i razlaganje funkcije $\langle \hat{V}_x(t) \hat{V}_x(0) \rangle$ na parnu i neparnu funkciju vremena (sledit iz stacionarnosti usrednjavanja). Zato formula za $\text{Re } \sigma_{xx}(\omega)$ ima 4 sabirka, pa se vidi da eventualni imaginarni deo otpada:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} dt \left(\cos(\omega t) \frac{1}{2} \langle [\hat{V}_x(t), \hat{V}_x(0)] \rangle + i \sin(\omega t) \frac{1}{2} \langle \{\hat{V}_x(t), \hat{V}_x(0)\} \rangle \right) = 0.$$

Konačno ostaje, uz korišćenje jednačine (5.6),

$$\begin{aligned}
\operatorname{Re} \sigma_{xx}(\omega) &= \frac{q^2(1 - e^{-\beta\hbar\omega})}{2\hbar\omega V} \int_{-\infty}^{+\infty} dt \left(\cos(\omega t) \frac{1}{2} \langle \{\hat{V}_x(t), \hat{V}_x(0)\} \rangle + i \sin(\omega t) \frac{1}{2} \langle [\hat{V}_x(t), \hat{V}_x(0)] \rangle \right) \\
&= \frac{q^2(1 - e^{-\beta\hbar\omega})}{\hbar\omega V} \operatorname{Re} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \langle \hat{V}_x(t) \hat{V}_x(0) \rangle \\
&= \frac{q^2(1 - e^{-\beta\hbar\omega})}{2\hbar\omega V} \operatorname{Re} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \left(\langle [\hat{V}_x(t), \hat{V}_x(0)] \rangle + \langle \{\hat{V}_x(t), \hat{V}_x(0)\} \rangle \right) \\
&= \frac{1 - e^{-\beta\hbar\omega}}{2} \operatorname{Re} \sigma_{xx}(\omega) + \frac{q^2(1 - e^{-\beta\hbar\omega})}{2\hbar\omega V} \operatorname{Re} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \langle \{\hat{V}_x(t), \hat{V}_x(0)\} \rangle.
\end{aligned} \tag{5.13}$$

Dakle,

$$\operatorname{Re} \sigma_{xx}(\omega) = \frac{1 - e^{-\beta\hbar\omega}}{1 + e^{-\beta\hbar\omega}} \frac{q^2}{\hbar\omega V} \operatorname{Re} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \langle \{\hat{V}_x(t), \hat{V}_x(0)\} \rangle. \tag{5.14}$$

Kako je

$$\frac{1 - e^{-\beta\hbar\omega}}{1 + e^{-\beta\hbar\omega}} = \tanh \frac{\beta\hbar\omega}{2},$$

dok za $\langle \{\hat{V}_x(t), \hat{V}_x(0)\} \rangle$ važe formule¹

$$\frac{d}{dt} \Delta X^2(t) = \int_0^t dt' \langle \{\hat{V}_x(t'), \hat{V}_x(0)\} \rangle, \tag{5.15}$$

$$\frac{d^2}{dt^2} \Delta X^2(t) = \langle \{\hat{V}_x(t), \hat{V}_x(0)\} \rangle, \tag{5.16}$$

dobija se

$$\operatorname{Re} \sigma_{xx}(\omega) = \frac{q^2}{\hbar\omega V} \tanh \left(\frac{\beta\hbar\omega}{2} \right) \operatorname{Re} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \frac{d^2}{dt^2} \Delta X^2(t). \tag{5.17}$$

Uvedena je oznaka $\Delta X^2(t) = \langle [\hat{X}(t) - \hat{X}(0)]^2 \rangle$. Nakon dve parcijalne integracije po t , uz faktor konvergencije $e^{-\eta t}$ i korišćenje početnih uslova

$$\left(\frac{d}{dt} \Delta X^2(t) \right)_{t=0} = 0 \text{ i } (\Delta X^2(t))_{t=0} = 0$$

dobija se da je disipativni deo optičke provodnosti za $\omega \neq 0$ dat kao [14]

$$\operatorname{Re} \sigma_{xx}(\omega) = -\frac{q^2\omega^2}{V} \frac{\tanh \frac{\beta\hbar\omega}{2}}{\hbar\omega} \operatorname{Re} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \Delta X^2(t). \tag{5.18}$$

Poslednja formula identifikuje vremenski zavisnu *disperziju položaja elektrona* (koja opisuje vremenski zavisnu kvantnu difuziju elektrona) kao fizičku veličinu dualnu *disipativnom delu optičke provodnosti* u frekventnom domenu.

Kada je $\beta\hbar\omega \ll 1$ (tzv. klasična oblast), onda je $\tanh \frac{\beta\hbar\omega}{2} \approx \frac{\beta\hbar\omega}{2}$, odnosno

$$\operatorname{Re} \sigma_{xx}(\omega) = -\frac{q^2\omega^2}{2k_B T V} \operatorname{Re} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \Delta X^2(t).$$

¹ Izvođenje ovih formula je isto kao u klasičnom slučaju, polazni korak je

$$\Delta X^2(t) = \int_0^t dt' \int_0^t dt'' \langle \hat{V}_x(t') \hat{V}_x(t'') \rangle = \int_0^t dt' \int_0^t dt'' \langle \hat{V}_x(t' - t'') \hat{V}_x(0) \rangle,$$

pa se dalje samo vrši smena promenljive i vodi računa o nekomutativnosti.

Tada se jednostavno, primenom Kramers–Kronig–ove relacije²

$$\text{Im } \sigma_{xx}(\omega) = -\frac{1}{\pi} \mathcal{P} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\text{Re } \sigma_{xx}(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega',$$

može dobiti imaginarni deo provodnosti na osnovu realnog dela. Najpogodnije mesto za primenu ove formule je korak

$$\text{Re } \sigma_{xx}(\omega) = \tanh\left(\frac{\beta\hbar\omega}{2}\right) \frac{q^2}{\hbar\omega V} \text{Re} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \langle \{\hat{V}_x(t), \hat{V}_x(0)\} \rangle \approx \frac{q^2}{2k_B T V} \int_0^{+\infty} dt \cos(\omega t) \langle \{\hat{V}_x(t), \hat{V}_x(0)\} \rangle,$$

jer je očekivana vrednost antikomutatora realna. Nakon što se iskoristi

$$-\frac{1}{\pi} \mathcal{P} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega'}{\omega' - \omega} \cos(\omega' t) = \sin(\omega t),$$

dobija se

$$\text{Im } \sigma_{xx}(\omega) = \frac{q^2}{2k_B T V} \int_0^{+\infty} dt \sin(\omega t) \langle \{\hat{V}_x(t), \hat{V}_x(0)\} \rangle.$$

Konačno je, za $\beta\hbar\omega \ll 1$,

$$\begin{aligned} \sigma_{xx}(\omega) &= \frac{q^2}{2k_B T V} \int_0^{+\infty} dt (\cos(\omega t) + i \sin(\omega t)) \langle \{\hat{V}_x(t), \hat{V}_x(0)\} \rangle \\ &= \frac{q^2}{2k_B T V} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \langle \{\hat{V}_x(t), \hat{V}_x(0)\} \rangle \\ &= -\frac{q^2 \omega^2}{2k_B T V} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \Delta X^2(t). \end{aligned} \quad (5.19)$$

Ako su elektroni nezavisni i nedegenerisani (odnosno nisu korelisani ni kroz statistiku, mogu se opisati klasičnom Maksvel–Bolcmanovom statistikom), onda je $\Delta X^2(t) = N \Delta x^2(t)$, gde se $\Delta x^2(t)$ odnosi na pojedinačni elektron [14]. Koristeći vezu između pokretljivosti i provodnosti (2.38)

$$\mu_{xx}(\omega) = \frac{\sigma_{xx}(\omega)}{nq},$$

gde je n koncentracija nosilaca, formula za pokretljivost pod svim gore navedenim pretpostavkama glasi [14], [8]

$$\mu_{xx}(\omega) = -\frac{q\omega^2}{2k_B T} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \Delta x^2(t). \quad (5.20)$$

5.2 Primena na model sa elektron–fonon interakcijom

Posmatrajmo sistem opisan modelnim hamiltonijanom (3.3) koji je razmatran u glavi 3. Smatraćemo da su sva jednočestična stanja lokalizovana. Pod pretpostavkom da je sistem neposredno pre uključivanja električnog polja bio u ravnotežnom stanju i smatrajući elektron–fonon interakciju slabom perturbacijom, korišćenjem formule (5.17) izračunaćemo provodnost u najnižem redu razvoja po konstantama elektron–fonon interakcije u kojem se dobija netrivialni rezultat. Naime, u za nas relevantnom slučaju lokalizovanih nosilaca, operator \hat{J}_a je linearan po konstantama elektron–fonon interakcije. Zato će se najdominantniji član, koji je kvadratičan po konstantama interakcije, dobiti dekomponovanjem $\hat{\rho}_0$ u nultom redu po konstantama interakcije

$$\hat{\rho}_0 = \frac{e^{-(\hat{H}_e - \mu_e^0 \hat{N}_e)/(k_B T)}}{\text{Tr}_e e^{-(\hat{H}_e - \mu_e^0 \hat{N}_e)/(k_B T)}} \frac{e^{-\hat{H}_{\text{ph}}/(k_B T)}}{\text{Tr}_{\text{ph}} e^{-\hat{H}_{\text{ph}}/(k_B T)}}, \quad (5.21)$$

² Kramers–Kronigove relacije su posledica kauzalnosti, odnosno u našem slučaju analitičnosti funkcije $\sigma_{ab}(\omega)$, kao funkcije kompleksne promenljive ω , u gornjoj poluravnini.

i uzimanjem svih zavisnosti od vremena po neinteragujućem hamiltonijanu. Hemijski potencijal μ_e^0 je hemijski potencijal u odsustvu elektron–fonon interakcije i određuje se iz poznatog broja elektrona (uporediti sa jednačinom (5.2))

$$N = \frac{\text{Tr}_e \left(e^{-(\hat{H}_e - \mu_e^0 \hat{N}_e)/(k_B T)} \hat{N}_e \right)}{\text{Tr}_e e^{-(\hat{H}_e - \mu_e^0 \hat{N}_e)/(k_B T)}}. \quad (5.22)$$

Takođe, iz jednačine

$$\hat{\Pi}_\alpha(t) = \hat{\Pi}_\alpha(0) + \int_0^t dt' \hat{J}_\alpha(t') \quad (5.23)$$

sledi

$$q(\hat{X}(t) - \hat{X}(0)) = \int_0^t dt' \hat{J}_x(t'),$$

odnosno

$$\hat{X}(t) - \hat{X}(0) = \sum_k \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha) \left(g_{\alpha\beta,k}^- \frac{e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k)t} - 1}{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k} \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \hat{b}_k + g_{\alpha\beta,k}^+ \frac{e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k)t} - 1}{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k} \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \hat{b}_k^\dagger \right) \quad (5.24)$$

Članovi u $[\hat{X}(t) - \hat{X}(0)]^2$ koji će nakon usrednjavanja dati nenulti rezultat su

$$\begin{aligned} [\hat{X}(t) - \hat{X}(0)]^2 &= \sum_{kk'} \sum_{\alpha\beta\gamma\delta} (x_\beta - x_\alpha)(x_\delta - x_\gamma) g_{\alpha\beta,k}^- g_{\gamma\delta,k'}^+ \frac{e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k)t} - 1}{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k} \frac{e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\gamma - \epsilon_\delta + \epsilon_{k'})t} - 1}{\epsilon_\gamma - \epsilon_\delta + \epsilon_{k'}} \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \hat{c}_\gamma^\dagger \hat{c}_\delta \hat{b}_k \hat{b}_{k'}^\dagger \\ &+ \sum_{kk'} \sum_{\alpha\beta\gamma\delta} (x_\beta - x_\alpha)(x_\delta - x_\gamma) g_{\alpha\beta,k}^+ g_{\gamma\delta,k'}^- \frac{e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k)t} - 1}{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k} \frac{e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\gamma - \epsilon_\delta - \epsilon_{k'})t} - 1}{\epsilon_\gamma - \epsilon_\delta - \epsilon_{k'}} \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \hat{c}_\gamma^\dagger \hat{c}_\delta \hat{b}_k^\dagger \hat{b}_{k'} \\ &+ \underbrace{\hspace{10em}}_{\text{daju 0 nakon usrednjavanja}} \end{aligned} \quad (5.25)$$

Nakon usrednjavanja jednačine (5.25) i zamene dobijenog rezultata u (5.17), za provodnost se konačno dobija ($\omega \neq 0$)

$$\begin{aligned} \text{Re } \sigma_{xx}(\omega) &= \\ &+ \frac{q^2}{\hbar^2 \hbar \omega V} \tanh \left(\frac{\hbar \omega}{2k_B T} \right) \sum_k \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\alpha) n_\beta |g_{\alpha\beta,k}^-|^2 \pi \delta \left(\omega + \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k}{\hbar} \right) N_k \\ &+ \frac{q^2}{\hbar^2 \hbar \omega V} \tanh \left(\frac{\hbar \omega}{2k_B T} \right) \sum_k \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\alpha) n_\beta |g_{\alpha\beta,k}^+|^2 \pi \delta \left(\omega + \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k}{\hbar} \right) (1 + N_k) \\ &+ \frac{q^2}{\hbar^2 \hbar \omega V} \tanh \left(\frac{\hbar \omega}{2k_B T} \right) \sum_k \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\alpha) n_\beta |g_{\alpha\beta,k}^-|^2 \pi \delta \left(\omega - \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \epsilon_k}{\hbar} \right) N_k \\ &+ \frac{q^2}{\hbar^2 \hbar \omega V} \tanh \left(\frac{\hbar \omega}{2k_B T} \right) \sum_k \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\alpha) n_\beta |g_{\alpha\beta,k}^+|^2 \pi \delta \left(\omega - \frac{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \epsilon_k}{\hbar} \right) (1 + N_k). \end{aligned} \quad (5.26)$$

Oznake n_α , odnosno N_k , označavaju ravnotežne brojeve popunjenosti za fermione, odnosno bozone, na temperaturi T , koji su dati kao

$$n_\alpha = \frac{1}{e^{(\epsilon_\alpha - \mu_e^0)/(k_B T)} + 1}, \quad (5.27)$$

$$N_k = \frac{1}{e^{\epsilon_k/(k_B T)} - 1}. \quad (5.28)$$

Poslednja jednačina se može prepisati pomoću verovatnoća prelaza između jednočestičnih stanja u jedinici vremena koje se dobijaju pomoću Fermijevog zlatnog pravila, vidi jednačinu (3.44),

$$\begin{aligned} \operatorname{Re} \sigma_{xx}(\omega) &= \frac{q^2}{2\hbar\omega V} \tanh\left(\frac{\hbar\omega}{2k_B T}\right) \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\alpha) n_\beta w_{\alpha\beta, \text{ph}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \hbar\omega) \\ &+ \frac{q^2}{2\hbar\omega V} \tanh\left(\frac{\hbar\omega}{2k_B T}\right) \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\alpha) n_\beta w_{\alpha\beta, \text{ph}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \hbar\omega). \end{aligned} \quad (5.29)$$

Verovatnoće prelaza u jedinici vremena $w_{\alpha\beta, \text{ph}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta)$, jednačina (3.44), zadovoljavaju *uslov detaljnog balansa* (što se neposredno proverava iz definicije)

$$\frac{w_{\alpha\beta, \text{ph}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta)}{w_{\beta\alpha, \text{ph}}(\epsilon_\beta - \epsilon_\alpha)} = \frac{(1 - n_\beta) n_\alpha}{(1 - n_\alpha) n_\beta} = e^{-(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta)/(k_B T)}. \quad (5.30)$$

Slično tome, iz definicije se pokazuje da važi i relacija

$$\frac{w_{\alpha\beta, \text{ph}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \hbar\omega)}{w_{\beta\alpha, \text{ph}}(\epsilon_\beta - \epsilon_\alpha + \hbar\omega)} = e^{-(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \hbar\omega)/(k_B T)} = \frac{(1 - n_\beta) n_\alpha}{(1 - n_\alpha) n_\beta} \frac{1 + \tanh\frac{\hbar\omega}{2k_B T}}{1 - \tanh\frac{\hbar\omega}{2k_B T}}. \quad (5.31)$$

Koristeći jednačinu (5.31) jednostavno je pokazati da je rezultat za realni deo provodnosti iz dela 3.2.1, u kome se zameni $T_e = T_{\text{ph}}$, isti kao i rezultat (5.26). To se i očekuje, s obzirom na dekompozicije statističkih operatora u početnom trenutku (3.9) i (5.21).

Naime, jednačina (3.46) se može prepisati kao

$$\begin{aligned} \operatorname{Re} \sigma_{xx}(\omega) &= -\frac{q^2}{2\hbar\omega V} \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\beta) n_\alpha w_{\beta\alpha, \text{ph}}(\epsilon_\beta - \epsilon_\alpha + \hbar\omega) \\ &+ \frac{q^2}{2\hbar\omega V} \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\alpha) n_\beta w_{\alpha\beta, \text{ph}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \hbar\omega), \end{aligned} \quad (5.32)$$

dok se jednačina (5.26) može prepisati kao

$$\begin{aligned} \operatorname{Re} \sigma_{xx}(\omega) &= \frac{q^2}{2\hbar\omega V} \tanh\left(\frac{\hbar\omega}{2k_B T}\right) \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\beta) n_\alpha w_{\beta\alpha, \text{ph}}(\epsilon_\beta - \epsilon_\alpha + \hbar\omega) \\ &+ \frac{q^2}{2\hbar\omega V} \tanh\left(\frac{\hbar\omega}{2k_B T}\right) \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\alpha) n_\beta w_{\alpha\beta, \text{ph}}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \hbar\omega). \end{aligned} \quad (5.33)$$

Sada jednakost desnih strana jednačina (5.32) i (5.33) sledi iz jednakosti pojedinačnih sabiraka pod dvostrukom sumom, što je zapravo jednačina (5.31).

5.3 Primena na model sa dodatnim statičkim potencijalom

Posmatrajmo sistem opisan modelnim hamiltonijanom (4.4) koji je razmatran u glavi 4. Ponovo ćemo uzeti da su sva jednočestična stanja lokalizovana, a kao konkretan primer statičkog potencijala uzećemo potencijal interakcije sa nečistoćama (4.1). Pod pretpostavkom da je sistem neposredno pre uključivanja električnog polja bio u ravnotežnom stanju i smatrajući interakciju sa statičkim nečistoćama slabom perturbacijom, korišćenjem formule (5.17) izračunaćemo provodnost u najnižem redu razvoja po potencijalu nečistoće u kojem se dobija netrivialni rezultat. Naime, u za nas relevantnom slučaju lokalizovanih nosilaca, operator \hat{J}_a je linearan po potencijalu nečistoće. Zato će

se najdominantniji član, koji je kvadratičan po tom potencijalu, dobiti uzimajući početni statistički operator u nultom redu po potencijalu nečistoće

$$\hat{\rho}_0 = \frac{e^{-\beta(\hat{H}_{00} - \mu_e^0 \hat{N}_e)}}{\text{Tr} e^{-\beta(\hat{H}_{00} - \mu_e^0 \hat{N}_e)}}, \quad (5.34)$$

i računajući sve zavisnosti od vremena po neinteragujućem hamiltonijanu \hat{H}_{00} . Hemijski potencijal μ_e^0 je hemijski potencijal u odsustvu interakcije sa statičkim nečistoćama i može se dobiti na osnovu poznatog broja elektrona N , videti jednačinu (5.22). Koristeći formulu (4.9) za operator \hat{J}_x , na potpuno isti način kao u prethodnom odeljku je moguće dobiti da je

$$\hat{X}(t) - \hat{X}(0) = \sum_{\alpha\beta} A_{\alpha\beta}(x_\beta - x_\alpha) \frac{e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta)t} - 1}{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta} \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta, \quad (5.35)$$

dok se operator $[\hat{X}(t) - \hat{X}(0)]^2$ može zapisati u obliku

$$[\hat{X}(t) - \hat{X}(0)]^2 = \sum_{\alpha\beta\gamma\delta} A_{\alpha\beta}(x_\beta - x_\alpha) A_{\gamma\delta}(x_\delta - x_\gamma) \frac{e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta)t} - 1}{\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta} \frac{e^{\frac{i}{\hbar}(\epsilon_\gamma - \epsilon_\delta)t} - 1}{\epsilon_\gamma - \epsilon_\delta} \hat{c}_\alpha^\dagger \hat{c}_\beta \hat{c}_\gamma^\dagger \hat{c}_\delta. \quad (5.36)$$

Nakon usrednjavanja prethodne jednačine i zamene dobijenog rezultata u (5.17), za realni deo optičke provodnosti ($\omega \neq 0$) se dobija

$$\begin{aligned} \text{Re } \sigma_{xx}(\omega) &= \frac{q^2}{2\hbar\omega V} \tanh\left(\frac{\hbar\omega}{k_B T}\right) \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\alpha) n_\beta \frac{2\pi}{\hbar} |A_{\alpha\beta}|^2 \delta(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + \hbar\omega) \\ &+ \frac{q^2}{2\hbar\omega V} \tanh\left(\frac{\hbar\omega}{k_B T}\right) \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\alpha) n_\beta \frac{2\pi}{\hbar} |A_{\alpha\beta}|^2 \delta(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \hbar\omega). \end{aligned} \quad (5.37)$$

Poslednji rezultat je isti kao i rezultat koji je dobijen u glavi 4 za početni statistički operator oblika (4.11). Jednačina (4.14) se može prepisati kao

$$\begin{aligned} \text{Re } \sigma_{xx}(\omega) &= -\frac{q^2}{2\hbar\omega V} \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\beta) n_\alpha \frac{2\pi}{\hbar} |A_{\beta\alpha}|^2 \delta(\epsilon_\beta - \epsilon_\alpha + \hbar\omega) \\ &+ \frac{q^2}{2\hbar\omega V} \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\alpha) n_\beta \frac{2\pi}{\hbar} |A_{\alpha\beta}|^2 \delta(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \hbar\omega), \end{aligned} \quad (5.38)$$

dok se jednačina (5.37) može zapisati u obliku

$$\begin{aligned} \text{Re } \sigma_{xx}(\omega) &= \frac{q^2}{2\hbar\omega V} \tanh\left(\frac{\hbar\omega}{k_B T}\right) \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\beta) n_\alpha \frac{2\pi}{\hbar} |A_{\beta\alpha}|^2 \delta(\epsilon_\beta - \epsilon_\alpha + \hbar\omega) \\ &+ \frac{q^2}{2\hbar\omega V} \tanh\left(\frac{\hbar\omega}{k_B T}\right) \sum_{\alpha\beta} (x_\beta - x_\alpha)^2 (1 - n_\alpha) n_\beta \frac{2\pi}{\hbar} |A_{\alpha\beta}|^2 \delta(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \hbar\omega). \end{aligned} \quad (5.39)$$

Koristeći uslov dat u drugoj jednakosti u formuli (5.31)

$$\frac{(1 - n_\beta) n_\alpha}{(1 - n_\alpha) n_\beta} \frac{1 + \tanh \frac{\hbar\omega}{2k_B T}}{1 - \tanh \frac{\hbar\omega}{2k_B T}} = e^{-(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \hbar\omega)/(k_B T)} \quad (5.40)$$

koji se u prisustvu δ -funkcije može napisati u obliku

$$(1 - n_\beta) n_\alpha \left(1 + \tanh \frac{\hbar\omega}{2k_B T}\right) \delta(\epsilon_\beta - \epsilon_\alpha + \hbar\omega) = (1 - n_\alpha) n_\beta \left(1 - \tanh \frac{\hbar\omega}{2k_B T}\right) \delta(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta - \hbar\omega), \quad (5.41)$$

lako je videti da su desne strane jednačina (5.38) i (5.39) jednake jer su međusobno jednaki pojedinačni sabirci pod dvostrukom sumom.

Glava 6

Numerički rezultati

U ovoj glavi ćemo za jednostavan jednodimenzionalni model transporta naelektrisanja skakutanjem između lokalizovanih stanja ispitati zavisnost realnog dela pokretljivosti od frekvencije spoljašnjeg električnog polja. Smatraćemo da interakcija elektrona sa fononima dovodi do skakutanja i primenićemo rezultate za pokretljivost izvedene u glavi 3. Pokretljivost je izražena preko verovatnoća prelaza u jedinici vremena između lokalizovanih stanja; u našem modelu, za te verovatnoće ćemo uzimati Miler–Abrahamsove verovatnoće prelaza. Komentarišaćemo dobijene rezultate.

6.1 Model sa Gausovom neuređenošću i Miler–Abrahamsovim verovatnoćama

Često korišćen model za verovatnoće prelaza u jedinici vremena iz jednočestičnog stanja γ , sa energijom ϵ_γ i položajem \vec{R}_γ , u jednočestično stanje β , sa energijom ϵ_β i položajem \vec{R}_β , jesu Miler–Abrahamsove verovatnoće prelaza, koje su date kao

$$w_{\beta\gamma}(\epsilon_\beta - \epsilon_\gamma, |\vec{R}_\beta - \vec{R}_\gamma|) = \begin{cases} w_0 e^{-|\vec{R}_\beta - \vec{R}_\gamma|/\alpha} & , & \epsilon_\beta - \epsilon_\gamma \leq 0 \\ w_0 e^{-|\vec{R}_\beta - \vec{R}_\gamma|/\alpha} e^{-(\epsilon_\beta - \epsilon_\gamma)/(k_B T)} & , & \epsilon_\beta - \epsilon_\gamma > 0. \end{cases} \quad (6.1)$$

U poslednjoj jednačini T je temperatura, dok α ima smisao dužine lokalizacije, odnosno linearne dimenzije oblasti prostora u kojoj je elektron lokalizovan, vidi jednačinu (1.14) i sliku 1.2. Konstanta w_0 zavisi od konkretnih detalja interakcije koja dovodi do skakutanja, kao i od strukture elektronskih talasnih funkcija. Pri proučavanju transporta naelektrisanja u neuređenim sistemima, najčešće se pretpostavlja da elektron–fonon interakcija dovodi do skakutanja, pa se za w_0 uzima da je reda veličine frekvencije fonona $w_0 \sim 10^{13} \text{ s}^{-1}$, a energijska razlika između uočenih stanja $\epsilon_\beta - \epsilon_\gamma$ biva kompenzovana apsorpcijom (emisijom) fonona odgovarajuće energije.

Verovatnoće prelaza eksponencijalno zavise od rastojanja među lokalizovanim stanjima $|\vec{R}_\beta - \vec{R}_\gamma|$, kao i od razlike energija $\epsilon_\beta - \epsilon_\gamma$. Ukoliko je prelazak iz višeg energijskog stanja u niže, verovatnoća prelaza u jedinici vremena zavisi samo od prostornog rastojanja $|\vec{R}_\beta - \vec{R}_\gamma|$ između lokalizovanih elektronskih stanja, dok se u slučaju prelaska iz nižeg u više energijsko stanje pojavljuje i zavisnost od razlike energija datih stanja kroz faktor $\exp(-(\epsilon_\beta - \epsilon_\gamma)/(k_B T))$, kojem bi se mogla dati interpretacija verovatnoće da bude apsorbovan fonon odgovarajuće energije.

Najpre ćemo navesti neke osobine Miler–Abrahamsovih verovatnoća. Verovatnoće prelaza u jedinici vremena definisane jednačinom (6.1) se neposredno mogu primeniti na slučaj kada posmatramo linearni odziv ravnotežnog sistema na temperaturi T . U tom smislu, one zadovoljavaju uslov detaljnog balansa (5.30), kao i uslov (5.31), u kojem figurišu modifikovane (usled prisustva spoljašnje harmonijske perturbacije) verovatnoće prelaza. Pošto smo u glavi 3 uzimali da je fononski podsistem u svakom trenutku u ravnoteži na temperaturi T_{ph} i pošto smo eksponencijalni faktor $e^{-(\epsilon_\beta - \epsilon_\gamma)/(k_B T)}$ interpretirali kao verovatnoću da se apsorbuje fonon odgovarajuće energije, u primeni Miler–Abrahamsovih verovatnoća u formulama za pokretljivost izvedenim u glavi 3 smatramo da temperaturu T u definiciji (6.1) treba shvatiti kao temperaturu T_{ph} fononskog podsistema.

Ispitali smo zavisnost realnog dela pokretljivosti od frekvencije u jednodimenzionalnom modelu

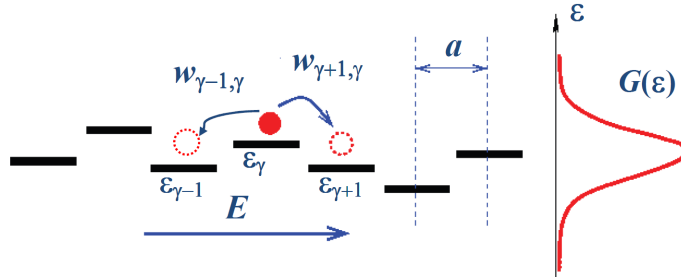
transporta naelektrisanja skakutanjem između lokalizovanih stanja, koji je shematski prikazan na slici 6.1. Lokalizovana stanja ϵ_β su raspoređena na jednodimenzionalnoj rešetki konstante a , tako da je $\beta = 0, 1, 2, \dots$ indeks koji prebrojava čvorove rešetke; stanje sa energijom ϵ_β je lokalizovano oko čvora sa koordinatom βa . Neuređenost sistema je modelirana kroz neuređenost u energijama lokalizovanih stanja, za koju smo pretpostavili da je Gausovog tipa. Verovatnoća da je energija ϵ_β u uskom intervalu energija između ϵ i $\epsilon + d\epsilon$ je data Gausovom raspodelom

$$G(\epsilon) d\epsilon = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\epsilon^2/(2\sigma^2)} d\epsilon \quad , \quad (6.2)$$

odnosno gustina stanja $g(\epsilon)$ (koja predstavlja broj stanja po jedinici energije i jedinici zapremine) je zadata jednačinom (1.17) u kojoj je, za konkretan problem, $n_0 = 1/a$. Verovatnoće prelaza u jedinici vremena su Miler–Abrahamsove verovatnoće definisane jednačinom (6.1), a takođe smo smatrali da su najdominantniji skokovi između najbližih suseda. U limesu niske koncentracije nosilaca, zavisnost pokretljivosti od frekvencije smo računali primenom relacije (3.55) (u slučaju kada je raspodela elektrona po energijama u početnom trenutku ravnotežna sa temperaturom T_e), odnosno relacije (3.78) (u slučaju neravnotežne elektronske raspodele). Pomenute formule se uprošćavaju u slučaju kada su relevantni samo skokovi do prvih suseda i dobijaju oblik

$$\begin{aligned} \text{Re } \mu_{xx}(\omega) = & \frac{qa^2}{2\hbar\omega} \sum_{\gamma} \frac{r_{\gamma}}{\sum_{\delta} r_{\delta}} (w_{\gamma+1,\gamma}(\epsilon_{\gamma+1} - \epsilon_{\gamma} - \hbar\omega) - w_{\gamma+1,\gamma}(\epsilon_{\gamma+1} - \epsilon_{\gamma} + \hbar\omega)) \\ & + \frac{qa^2}{2\hbar\omega} \sum_{\gamma} \frac{r_{\gamma}}{\sum_{\delta} r_{\delta}} (w_{\gamma-1,\gamma}(\epsilon_{\gamma-1} - \epsilon_{\gamma} - \hbar\omega) - w_{\gamma-1,\gamma}(\epsilon_{\gamma-1} - \epsilon_{\gamma} + \hbar\omega)) \quad , \end{aligned} \quad (6.3)$$

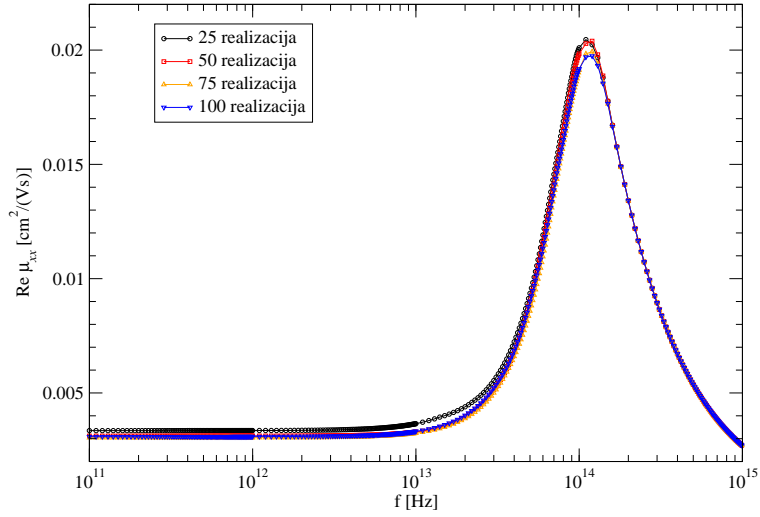
gde je r_{γ} (u limesu niske koncentracije) za slučaj ravnotežne elektronske raspodele dato kao $r_{\gamma} = e^{-\beta\epsilon_{\gamma}}$, dok je u slučaju neravnotežne raspodele definisano jednačinom (3.69).



Slika 6.1: Shematski prikaz jednodimenzionalnog modela transporta naelektrisanja skakutanjem između lokalizovanih stanja raspoređenih na rešetki konstante a . Neuređenost po energijama je Gausovog tipa, a skakutanje se obavlja između najbližih suseda, sa verovatnoćama prelaza definisanim u jednačini (6.1).

Prilikom svih izračunavanja korišćeni su sledeći parametri:

- temperatura fononskog pod sistema $T_{\text{ph}} = 300 \text{ K}$, odnosno $k_B T_{\text{ph}} \approx 25 \text{ meV}$,
- standardna devijacija Gausove raspodele u jednačini (6.2) $\sigma = 100 \text{ meV}$,
- konstanta rešetke $a = 1 \text{ nm}$,
- dužina lokalizacije $\alpha = 2a/9$,
- konstanta $w_0 = 1.0 \times 10^{14} \text{ s}^{-1}$.



Slika 6.2: Za slučaj elektronske raspodele opisane sa $T_e = 300$ K, prikazane su zavisnosti realnog dela pokretljivosti od frekvencije za različit broj realizacija sistema (25, 50, 75, 100) po kojima je usrednjavanje vršeno.

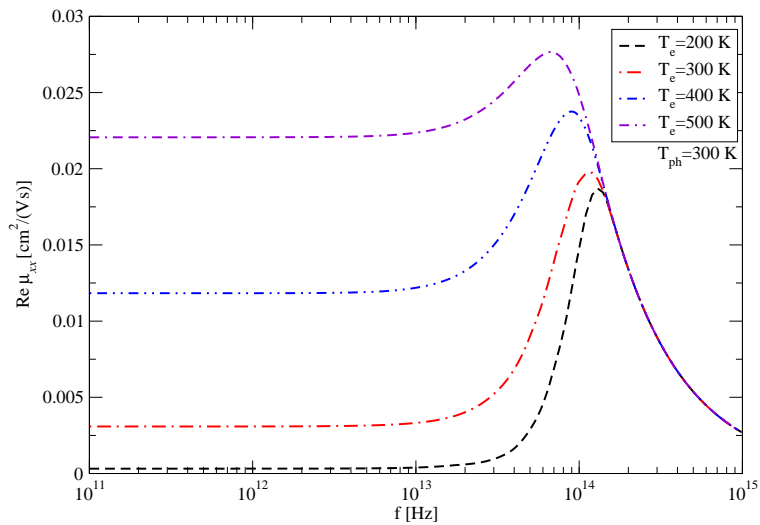
Izračunavanja su vršena na rešetki sa 100000 čvorova. Krive koje su prikazane na slikama 6.3 i 6.4 su rezultat usrednjavanja po različitim realizacijama sistema, pri čemu je broj realizacija 100. Grafik prikazan na slici 6.2 ilustruje da je dovoljno usrednjiti po 100 različitih realizacija sistema. Zavisnost realnog dela pokretljivosti od frekvencije spoljašnjeg električnog polja najpre je ispitivana za slučaj ravnotežne elektronske raspodele sa temperaturom T_e , kada je

$$r_\gamma = e^{-\beta_e \epsilon_\gamma}. \quad (6.4)$$

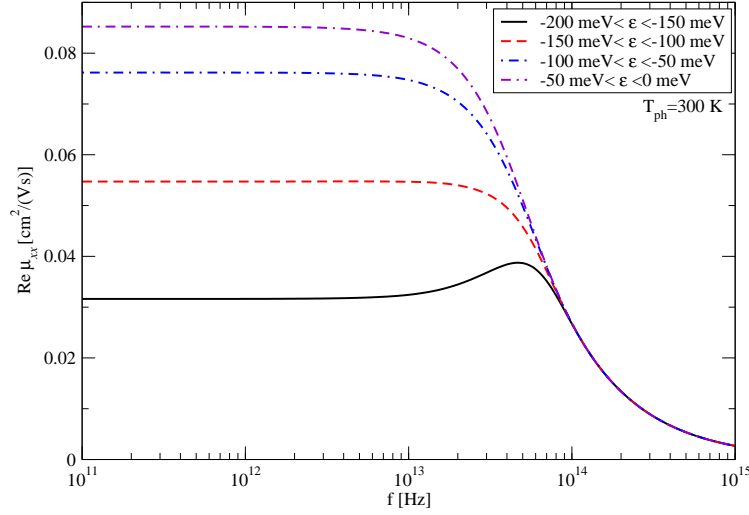
Rezultati su prikazani na slici 6.3. Kao primer neravnotežne elektronske raspodele, uzeli smo uniformnu raspodelu nosilaca u intervalu energija ($\epsilon_{\min}, \epsilon_{\max}$), odnosno

$$r_\gamma = \begin{cases} 1, & \epsilon_{\min} < \epsilon_\gamma < \epsilon_{\max} \\ 0, & \text{inače,} \end{cases} \quad (6.5)$$

a rezultati su prikazani na slici 6.4.



Slika 6.3: Zavisnost realnog dela pokretljivosti od frekvencije za različite vrednosti temperature T_e , dok je $T_{ph} = 300$ K.



Slika 6.4: Zavisnost realnog dela pokretljivosti od frekvencije za slučaj kada je elektronska raspodela uniformna u intervalu energija ($\epsilon_{\min}, \epsilon_{\max}$). Na grafikonu su prikazane zavisnosti realnog dela pokretljivosti od frekvencije za različite intervale energija, dok je $T_{\text{ph}} = 300 \text{ K}$.

Sa grafika se uočava rast pokretljivosti nosilaca sa povećanjem elektronske temperature T_e , odnosno sa pomeranjem intervala energija ($\epsilon_{\min}, \epsilon_{\max}$) ka centru raspodele. Na niskim temperaturama T_e gotovo svi elektroni su u osnovnom stanju, a skakutanje se iz uočenog čvora obavlja najdalje do prvih suseda jer je broj stanja čije su energije bliske energiji uočenog stanja relativno mali. Sa povećanjem temperature T_e elektroni se mogu naći i u višim energijskim stanjima (koja su brojnija u odnosu na stanja bliska osnovnom stanju), broj stanja čije su energije bliske energiji uočenog stanja raste, tako da raste i verovatnoća za sukcesivne skokove između najbližih suseda. Analogno se može rezonovati i u slučaju uniformne raspodele nosilaca na intervalu energija ($\epsilon_{\min}, \epsilon_{\max}$), jer sa pomeranjem tog intervala ka centru raspodele, raste broj dostupnih stanja.

Treba naglasiti da su formule u glavi **3** izvedene za konkretan modelni hamiltonijan (3.3) sistema u kojem elektron–fonon interakcija dovodi do skakutanja, pa su samim tim verovatnoće prelaza između jednočestičnih stanja date u obliku (3.44) (u najnižem redu teorije perturbacija). Miler–Abrahamsove verovatnoće prelaza nisu oblika (3.44), a iskoristili smo ih jer se one prilikom modeliranja transporta naelektrisanja skakutanjem u neuređenim materijalima najčešće koriste. Takođe, sa grafika se uočava da na niskim frekvencijama f , takvim da je $hf \ll k_B T_{\text{ph}}$, realni deo pokretljivosti ne zavisi od frekvencije i ima konstantnu i nenultu vrednost. To međutim nije u skladu sa rezultatom (5.20) koji je izveden pod pretpostavkom da je stanje sistema blisko ravnotežnom stanju na temperaturi T , da je frekvencija spoljašnjeg polja mala ($\hbar\omega \ll k_B T$) i da su elektroni nezavisni i nedegenerisani

$$\mu_{xx}(\omega) = -\frac{q\omega^2}{2k_B T} \int_0^{+\infty} dt e^{i\omega t} \Delta x^2(t) \quad , \quad (6.6)$$

pri čemu je $\Delta x^2(t)$ disperzija položaja pojedinačnog nosioca. U konačnom sistemu, linearne dimenzije L , u svakom trenutku t važi $\Delta x^2(t) \lesssim L^2$, odakle se može proceniti da je na niskim frekvencijama $\mu_{xx}(\omega) \lesssim \omega$, a zbog nejednakosti $|\text{Re} \mu_{xx}(\omega)| \leq |\mu_{xx}(\omega)|$ sledi da je na niskim frekvencijama $|\text{Re} \mu_{xx}(\omega)| \lesssim \omega$. U daljem tekstu ćemo sa formalne tačke gledišta interpretirati dobijene numeričke rezultate.

Jednačina (6.3) se može prepisati tako da se eksplicitno uočava da je realni deo pokretljivosti izražen kao suma doprinosa od parova susednih čvorova $(\gamma, \gamma + 1)$, $\gamma = 0, 1, 2, \dots$

$$\text{Re} \mu_{xx}(\omega) = \sum_{\gamma} \mu_{\gamma, \gamma+1}(\omega) \quad , \quad (6.7)$$

gde je

$$\begin{aligned} \mu_{\gamma,\gamma+1}(\omega) &= \frac{qa^2}{2\hbar\omega} \frac{r_\gamma}{\sum_\delta r_\delta} (w_{\gamma+1,\gamma}(\epsilon_{\gamma+1} - \epsilon_\gamma - \hbar\omega) - w_{\gamma+1,\gamma}(\epsilon_{\gamma+1} - \epsilon_\gamma + \hbar\omega)) \\ &+ \frac{qa^2}{2\hbar\omega} \frac{r_{\gamma+1}}{\sum_\delta r_\delta} (w_{\gamma,\gamma+1}(\epsilon_\gamma - \epsilon_{\gamma+1} - \hbar\omega) - w_{\gamma,\gamma+1}(\epsilon_\gamma - \epsilon_{\gamma+1} + \hbar\omega)) \quad . \end{aligned} \quad (6.8)$$

Označimo sa r_{\max} , odnosno r_{\min} , vrednost veličine r_γ za veću (odnosno manju) od energija ϵ_γ i $\epsilon_{\gamma+1}$. Koristeći definiciju Miler–Abrahamsovih verovatnoća (6.1), doprinos realnom delu pokretljivosti od para čvorova $(\gamma, \gamma + 1)$ se može zapisati kao

$$\mu_{\gamma,\gamma+1}(\omega) = \frac{qa^2}{2k_B T_{\text{ph}}} w_0 e^{-a/\alpha} \cdot M(x) \quad (6.9)$$

gde je $x = \beta_{\text{ph}} \hbar \omega$, dok je funkcija $M(x)$ definisana kao

$$M(x) = \begin{cases} \frac{r_{\min}}{\sum_\delta r_\delta} e^{-x_{\gamma,\gamma+1}} \cdot 2 \frac{\sinh x}{x} \quad , & x < x_{\gamma,\gamma+1} \\ \frac{r_{\max}}{\sum_\delta r_\delta} \frac{1}{x} (1 - e^{x_{\gamma,\gamma+1}} e^{-x}) + \frac{r_{\min}}{\sum_\delta r_\delta} \frac{1}{x} (1 - e^{-x_{\gamma,\gamma+1}} e^{-x}) \quad , & x > x_{\gamma,\gamma+1} \end{cases} \quad (6.10)$$

Uvedena je oznaka $x_{\gamma,\gamma+1} = \beta_{\text{ph}} |\epsilon_\gamma - \epsilon_{\gamma+1}|$. Funkcija $M(x)$ je neprekidna, ali nije diferencijabilna u tački $x = x_{\gamma,\gamma+1}$. Pokazuje se da je skok izvoda funkcije M u tački $x = x_{\gamma,\gamma+1}$ jednak

$$\left(\frac{dM}{dx} \right)_{x=x_{\gamma,\gamma+1}+0} - \left(\frac{dM}{dx} \right)_{x=x_{\gamma,\gamma+1}-0} = \frac{r_{\max} - r_{\min}}{\sum_\delta r_\delta} \frac{1}{x_{\gamma,\gamma+1}}. \quad (6.11)$$

Razmotrimo najpre slučaj ravnotežne elektronske raspodele sa temperaturom T_e , odnosno $r_\gamma = e^{-\beta_e \epsilon_\gamma}$. Za posmatranu elektronsku raspodelu, $r_{\max} < r_{\min}$, pa je skok prvog izvoda uvek negativan. Funkcija $M(x)$ raste za $x < x_{\gamma,\gamma+1}$, dok za $x > x_{\gamma,\gamma+1}$ opada (ako je desni izvod u tački $x = x_{\gamma,\gamma+1}$ negativan) ili najpre raste, pa onda opada (ako je desni izvod u tački $x = x_{\gamma,\gamma+1}$ pozitivan). Na osnovu toga možemo zaključiti da funkcija M dostiže maksimalnu vrednost za $x_* \geq x_{\gamma,\gamma+1}$, odnosno doprinos realnom delu pokretljivosti od para čvorova $(\gamma, \gamma + 1)$ dostiže maksimum na frekvenciji f_* takvoj da je $hf_* \geq |\epsilon_\gamma - \epsilon_{\gamma+1}|$. Napomenimo samo da se detaljnijim ispitivanjem funkcije $M(x)$, u šta ovde nećemo ulaziti, može pokazati da je za sve elektronske temperature T_e za koje su dobijeni numerički rezultati prikazani na slici 6.3 maksimum doprinosa pokretljivosti od para čvorova $(\gamma, \gamma + 1)$ (koji daje nezanemarljiv doprinos pokretljivosti) na frekvenciji f_* takvoj da je $hf_* = |\epsilon_\gamma - \epsilon_{\gamma+1}|$. Na osnovu osobina funkcije M može se shvatiti oblik zavisnosti $\text{Re } \mu_{xx}$ od frekvencije:

- na dovoljno niskim frekvencijama f takvim da je

$$hf < \min_\gamma |\epsilon_\gamma - \epsilon_{\gamma+1}|,$$

u doprinosu svakog para čvorova $(\gamma, \gamma + 1)$ funkcija M će uzimati vrednosti za $x < x_{\gamma,\gamma+1}$; kada je $x \ll 1$, funkcija M se približno svodi na konstantu, jer je tada

$$\frac{\sinh x}{x} \approx 1,$$

pa je i $\text{Re } \mu_{xx}(f)$ konstantno na dovoljno niskim frekvencijama f ;

- na dovoljno visokim frekvencijama f takvim da je

$$hf > \max_\gamma |\epsilon_\gamma - \epsilon_{\gamma+1}|,$$

u doprinosu svakog para čvorova $(\gamma, \gamma + 1)$ funkcija M će uzimati vrednosti za $x > x_{\gamma,\gamma+1}$; za $x \gg 1$, funkcija M se ponaša kao $M(x) \sim 1/x$, odnosno zavisnost realnog dela pokretljivosti od frekvencije na dovoljno visokim frekvencijama je

$$\text{Re } \mu_{xx}(f) \sim 1/f \quad .$$

Na niskim temperaturama T_e , najveću vrednost faktora $r_\gamma / \sum_\delta r_\delta$ imaju stanja sa najnižim energijama, dok je za stanja sa višim energijama vrednost tog faktora znatno manja (i za nekoliko redova veličine). Zato dominantan doprinos pokretljivosti nosilaca dolazi od parova čvorova $(\gamma, \gamma + 1)$ u kojima je barem jedno stanje dovoljno niske energije, tako da je njegov faktor $r_\gamma / \sum_\delta r_\delta$ dovoljno veliki. Međutim, verovatnoća da je prvi sused stanja sa niskom energijom stanje koje mu nije energijski blisko (odnosno, za koje je $|\epsilon_\gamma - \epsilon_{\gamma+1}|$ veliko) je znatno veća od verovatnoće da mu je prvi sused energijski blisko stanje, što sledi iz samog oblika gustine stanja. Zato je vrednost energijske razlike $|\epsilon_\gamma - \epsilon_{\gamma+1}|$ za parove koji značajno doprinose pokretljivosti velika (reda veličine standardne devijacije σ), maksimum funkcije M je u tački $x_* \geq \beta_{\text{ph}} |\epsilon_\gamma - \epsilon_{\gamma+1}|$, pa je i maksimum doprinosa realnom delu pokretljivosti od para čvorova $(\gamma, \gamma + 1)$ na frekvencijama f_* takvim da je $hf_* \geq |\epsilon_\gamma - \epsilon_{\gamma+1}|$, odnosno maksimum realnog dela pokretljivosti na visokim frekvencijama.

Sa povećanjem temperature T_e , najveću vrednost faktora $r_\gamma / \sum_\delta r_\delta$ i dalje imaju stanja sa najnižim energijama, ali i stanja sa višim energijama (koja su brojnija) imaju nezanemarljivu vrednost tog faktora. Sada pokretljivosti najviše doprinose parovi čvorova $(\gamma, \gamma + 1)$ sa relativno visokim energijama (takvi parovi su najbrojniji, a njihovi faktori $r_\gamma / \sum_\delta r_\delta$ nemaju više zanemarljivu vrednost kao u slučaju nižih temperatura T_e), vrednost razlike energija $|\epsilon_\gamma - \epsilon_{\gamma+1}|$ za parove koji značajno doprinose pokretljivosti se smanjuje, pa se maksimum na grafiku zavisnosti $\text{Re } \mu_{xx}(f)$ pomera ka oblasti nižih frekvencija. Smanjivanje vrednosti razlike energija $|\epsilon_\gamma - \epsilon_{\gamma+1}|$ sa povećanjem temperature T_e (za parove čvorova koji daju značajan doprinos pokretljivosti) se jednostavno objašnjava imajući u vidu definiciju funkcije M , jednačina (6.10): parovi čvorova sa manjom razlikom energija daju veći doprinos pokretljivosti jer za takve parove funkcija M uzima veće vrednosti nego za parove sa manjom razlikom energija. Takođe se uočava i smanjenje visine pika (merene u odnosu na vrednost realnog dela pokretljivosti na niskim frekvencijama) sa porastom temperature T_e . Naime, za dovoljno male $x_{\gamma, \gamma+1}$ funkcija M u oblasti $x < x_{\gamma, \gamma+1}$ se svodi na konstantu, a za $x > x_{\gamma, \gamma+1}$ opada, što znači da pik iščezava.

Slično rezonovanje se može iskoristiti prilikom objašnjavanja oblika zavisnosti realnog dela pokretljivosti od frekvencije za slučaj neravnotežne elektronske raspodele (6.5). Bez ulaženja u detaljno ispitivanje funkcije $M(x)$ u ovom slučaju, recimo samo sledeće. Kada se interval $(\epsilon_{\min}, \epsilon_{\max})$ nalazi u repu raspodele po energijama (na primer, interval od -200 do -150 meV), prvi susedi stanja sa $r_\gamma \neq 0$ su sa mnogo većom verovatnoćom stanja sa energijom izvan tog intervala nego stanja sa energijom unutar tog intervala, razlika energija susednih čvorova koji značajno doprinose pokretljivosti je relativno velika, a maksimum realnog dela pokretljivosti se nalazi na relativno visokim frekvencijama. Sa pomeranjem intervala $(\epsilon_{\min}, \epsilon_{\max})$ ka centru raspodele, raste broj stanja sa $r_\gamma \neq 0$, pa samim tim raste broj parova stanja $(\gamma, \gamma + 1)$ koji značajno doprinose pokretljivosti, a bliska su energijski. Najveći doprinos pokretljivosti dolazi od susednih parova $(\gamma, \gamma + 1)$ za koje je $r_\gamma \neq 0$ i $r_{\gamma+1} \neq 0$, pri čemu je iz oblika funkcije M jasno da veći doprinos daju stanja sa manjom razlikom energija $|\epsilon_\gamma - \epsilon_{\gamma+1}|$. Dakle, vrednost za $x_{\gamma, \gamma+1}$ (za parove koji značajno doprinose pokretljivosti) opada sa pomeranjem intervala $(\epsilon_{\min}, \epsilon_{\max})$ ka centru raspodele, a maksimum iščezava slično kao u slučaju povećavanja elektronske temperature T_e .

Glava 7

Zaključak

Proučavali smo neravnotežni transport naelektrisanja u sistemima sa lokalizovanim stanjima, sa naročitim naglaskom na slučaj kada se transport obavlja skakutanjem između tih stanja. Koristili smo teoriju linearnog odziva i relaksirali smo pretpostavku da je sistem pre uključivanja spoljašnjeg polja bio u ravnotežnom stanju. Nismo ni na koji način uzimali u obzir relaksaciju sistema ka ravnotežnom stanju, odnosno smatrali smo da su karakteristična vremena spoljašnje perturbacije znatno kraća od vremena relaksacije sistema, videti komentar nakon jednačine (2.4). Kao mehanizme koji dovode do skakutanja, razmatrali smo elektron–fonon interakciju i interakciju sa dodatnim statičkim potencijalom (konkretan primer je interakcija sa nečistoćama). Smatrajući ove interakcije slabim (tako da se mogu tretirati perturbativno), u najnižem redu teorije perturbacija izveli smo izraze u kojima se optička provodnost izražava pomoću retardovane korelacione funkcije 'struje' računate u neravnotežnom stanju i koji su analogoni poznatih izraza iz Kuboove teorije linearnog odziva, videti relacije (3.26) i (4.10). Imajući u vidu jednočestičnu prirodu veličina koje u tim formulama figurišu, prešli smo na jednočestičnu sliku i optičku provodnost u potpunosti izrazili preko mikroskopskih parametara modela: koordinata centara lokalizacije nosilaca, populacija pojedinačnih stanja i verovatnoća prelaza u jedinici vremena između tih stanja, videti jednačine (3.46), (3.72), (4.16) i (4.19). Dobijene formule su veoma jednostavnog oblika, a takođe se uočava formalna sličnost formula u slučajevima kada do skakutanja dovodi elektron–fonon interakcija, odnosno interakcija sa statičkim potencijalom. Dobijeni rezultati se, u slučaju linearnog odziva ravnotežnog sistema, svode na dobro poznate rezultate teorije linearnog odziva, što smo pokazali sa posebnim osvrtom na relaciju koja disipativni deo optičke provodnosti povezuje sa vremenski zavisnom disperzijom položaja nosilaca naelektrisanja. Za jednostavan jednodimenzionalni model transporta naelektrisanja skakutanjem između lokalizovanih stanja, ispitivali smo zavisnost pokretljivosti nosilaca od frekvencije. Razmatrali smo model sa Gausovom neuređenošću po energijama i Miler–Abrahamsovim verovatnoćama prelaza. Rezultate dobijene numerički smo diskutovali i formalno objasnili.

Literatura

- [1] F. Rossi, *Theory of Semiconductor Quantum Devices, Microscopic Modeling and Simulation Strategies*, (Springer, Berlin Heidelberg, 2011).
- [2] L.P. Kadanoff, G. Baym, *Quantum Statistical Mechanics* (Benjamin, New York, NY, 1962).
- [3] L.V. Keldysh, Sov. Phys. JETP **20** , 1018 (1965).
- [4] F. Rossi, T. Kuhn, Rev. Mod. Phys. **74** , 895 (2002).
- [5] P. B. Allen, *Linear Response Theory and Kubo Formulas*,
<http://felix.physics.sunysb.edu/~allen/Pdffiles/kubo.pdf> .
- [6] P. W. Anderson, Phys. Rev. **109**, 1492 (1958).
- [7] S.D. Baranovski (ed.), *Charge Transport in Disordered Solids with Applications in Electronics* (John Wiley & Sons, Ltd, Chichester, 2006).
- [8] N. Vukmirović, C. S. Ponseca, Jr., H. Němec, A. Yartsev and V. Sundström, J. Phys. Chem. C **116**, 19665 (2012).
- [9] J. Rammer, *Quantum Field Theory of Non–Equilibrium States*,(Cambridge University Press, Cambridge, 2007).
- [10] G. D. Mahan, *Many–Particle Physics*, 3rd edn. (Kluwer Academic/Plenum Publishers, New York, 2000).
- [11] C. Jacoboni, *Theory of Electron Transport in Semiconductors* (Springer, Berlin Heidelberg, 2010).
- [12] S. G. Louie and M. L. Cohen, *Contemporary Concepts of Condensed Matter Science, Volume 2: A Standard Model for Ground– and Excited–State Properties*,(Elsevier Science, Amsterdam, 2006).
- [13] H. Haug, A.–P. Jauho, *Quantum Kinetics in Transport and Optics of Semiconductors*, 1st edn. (Springer, Berlin Heidelberg, 1996).
- [14] S. Ciuchi, S. Fratini and D. Mayou, Phys. Rev. B **83**, 081202(R) (2011).