из [3] для состояния $1s^1/_2$ при $Z > 50$. Это связано с отмеченной выше компенсацией при больших Z отдельных членов (αZ)-разложения, использованного в [3].

Литература

[1] E. A. Uehling. Phys. Rev., *48*, 55, 1935.
[2] P. J. Mohr. Phys. Rev. Lett., *34*, 16, 1050, 1975.
[3] У. И. Сафронова, А. Ф. Шестаков. Препринт ИСАН СССР, № 7, 1976.
[4] G. Hose, U. Kalbder. J. Phys. B, *12*, № 23, 1979.
[5] Е. М. Лифшиц, Л. П. Питаевский. Релятивистская квантовая теория, ч. 2. ГИФМЛ, М., 1971.

Поступило в Редакцию 5 июня 1980 г.

УДК 535.56 : 548.0

ОПТИЧЕСКАЯ АКТИВНОСТЬ, ОБУСЛОВЛЕННАЯ ДИСПЕРСИЕЙ ЭКСИТОНОВ

Ю. Г. Пашкевич и *А. Д. Петренко*

Известная теория естественной оптической активности кристаллов [1, 2] основана на выделении линейных по волновому вектору k членов непосредственно из тензора диэлектрической проницаемости, вычисленного в рамках микроскопического подхода. При этом выражение для соответствующего тензора гирации оказывается весьма громоздким и определяется он производными по k от волновых функций и частот экситонов. Тем самым экситонные состояния кристалла предполагаются известными, в то время как их вычисление представляет собой самостоятельную трудоемкую задачу. Поэтому формулы, полученные в [1] являются весьма сложными для применения к расчету конкретных кристаллических структур.

Цель настоящего сообщения состоит в вычислении экситонной части тензора гирации молекулярного кристалла в рамках метода действующего поля, где наиболее эффективно выделяются особенности оптических явлений, связанные с конденсированным состоянием среды [3].

Следуя [3], тензор диэлектрической проницаемости кристалла запишем в виде

$$\varepsilon_{ij}(\omega, \mathbf{k}) = \delta_{ij} + \frac{4\pi}{v} \sum_{\alpha j_1} a^{\alpha}_{ij_1}(\omega) A^{\alpha}_{j_1 j}(\omega, \mathbf{k}). \tag{1}$$

Здесь $a^{\alpha}_{ij}(\omega)$ — тензор поляризуемости α-й молекулы, v — объем элементарной ячейки, $A^{\alpha}_{ij}(\omega, \mathbf{k})$ — тензор действующего поля, определяемый из системы уравнений

$$A^{\alpha}_{ij}(\omega, \mathbf{k}) = \delta_{ij} - \frac{4\pi}{v} \sum_{j_1 j_2 \beta} Q^{\alpha\beta}_{ij_1}(\mathbf{k})\, a^{\beta}_{j_1 j_2}(\omega)\, A^{\beta}_{j_2 j}(\omega, \mathbf{k}), \tag{2}$$

где $Q^{\alpha\beta}_{ij}(\mathbf{k})$ — коэффициенты внутреннего поля [3].

Тензор гирации $g_{mn}(\omega)$ введем с помощью известных соотношений

$$\varepsilon_{ij}(\omega, \mathbf{k}) = \varepsilon_{ij}(\omega) + i \sum_n k_n \gamma_{ijn}(\omega), \quad g_{mn}(\omega) = \frac{1}{2} \sum_{ij} e_{ijm} \gamma_{ijn}(\omega), \tag{3}$$

где e_{ijn} — тензор Леви—Чивита. Тогда из формулы (1) имеем

$$\gamma_{ijn}(\omega) = \frac{4\pi}{v} \sum_{\alpha j_1} a^{\alpha}_{i j_1}(\omega) \frac{\partial A^{\alpha}_{j_1 j}(\omega, \mathbf{k})}{\partial k_n}\Big|_{\mathbf{k}=0}. \tag{4}$$

Производные, фигурирующие в этом выражении, определяются из уравнения, полученного путем дифференцирования (2) по k_n

$$\frac{\partial A_{ij}(\omega, \mathbf{k})}{\partial k_n} = -\frac{4\pi}{v} \sum_{\beta\gamma\{j_i\}} \left(I + \frac{4\pi}{v} \hat{Q}(\mathbf{k})\, \hat{a}(\omega)\right)^{-1\alpha\beta}_{i j_1} Q^{\beta\gamma}_{j_1 j_2 n}(\mathbf{k})\, a^{\gamma}_{j_2 j_3}(\omega)\, A^{\gamma}_{j_3 j}(\omega, \mathbf{k}), \tag{5}$$

где I — единичная матрица, $\hat{a}(\omega)$ и $\hat{Q}(\mathbf{k})$ — матрицы размерности $3\sigma \times 3\sigma$ (σ — число молекул в элементарной ячейке), $Q^{\beta\gamma}_{ijn}(\mathbf{k}) \equiv \partial Q^{\beta\gamma}_{ijn}(\mathbf{k})/\partial k_n$.

Используя равенство

$$A^{\alpha}_{ij}(\omega, \mathbf{k}) = \sum_{\beta} \left(I + \frac{4\pi}{v} \hat{Q}(\mathbf{k})\, \hat{a}(\omega)\right)^{-1\alpha\beta}_{ij}, \tag{6}$$

следующее из системы (2) и соотношения (3)—(5), находим искомое выражение для экситонной части тензора гирации

$$g_{mn}(\omega) = -\frac{8\pi^2}{v^2} \sum_{\alpha\beta i j\{j_i\}} e_{ijm} A^{\alpha}_{j_1 i}(\omega, \mathbf{k})\, a^{\alpha}_{j_1 j_2}(\omega)\, Q^{\alpha\beta}_{j_2 j_3 n}(\mathbf{k})\, a^{\beta}_{j_3 j_4}(\omega)\, A^{\beta}_{j_4 j}(\omega, \mathbf{k})\Big|_{\mathbf{k}=0}. \tag{7}$$

Установим дисперсию угла вращения плоскости поляризации света, распространяющегося вдоль оси $z: \rho = (\omega^2/2c^2)\, g_{zz}(\omega)$. С этой целью воспользуемся равенством, которое доказывается с помощью формул (1), (6) и волновым вектором, равным нулю

$$\sum_{j_1} a^{\alpha}_{i j_1}(\omega)\, A^{\alpha}_{j_1 j}(\omega) = \frac{2}{\hbar} \sum_{m} \frac{\omega_m d^{(\alpha)i}_{0;\, m} d^{j}_{m;\, 0}}{\omega^2 - \omega_m^2}, \tag{8}$$

где ω_m — частота механического экситона ветви m, $\mathbf{d}^{(\alpha)}_{0;\, m}$ — матричный элемент оператора дипольного момента α-й молекулы для перехода между основным и экситонным состояниями кристалла, $\mathbf{d} = \sum_{\alpha} \mathbf{d}^{(\alpha)}$ — дипольный момент ячейки. В результате с помощью (7), (8) в окрестности резонанса с частотой ω_m получаем формулу, аналогичную известному соотношению Чандрасекара

$$\rho = \frac{16\pi^2\omega^2\omega_m^2 d^{x}_{0;\, m} d^{y}_{m;\, 0}}{\hbar^2 c^2 v^2 (\omega^2 - \omega_m^2)^2} \sum_{ij} d^{(\alpha)i}_{0;\, m} Q^{\alpha\beta}_{ijz} d^{(\beta)j}_{m;\, 0}. \tag{9}$$

Таким образом, резонансный характер угла оптического вращения в кристаллах обнаруживается не на частотах изолированных молекул, а на частотах механических экситонов [2].

По сравнению с аналогичным соотношением работы [1] формула (9) является более простой для рсавнения с экспериментом. Действительно, значения матричных элементов $d_{0;\, m}$ определяются из величин сил осцилляторов соответствующих переходов, а коэффициенты $Q^{\alpha\beta}_{ijz}(\mathbf{k})$ представляют собой известные решеточные суммы, которые после преобразования по Эвальду [4] могут быть вычислены для различных типов кристаллов и в приближении любой мультипольности межмолекулярного взаимодействия [5].

Литература

[1] В. М. Агранович. Теория экситонов, 228. «Наука», М., 1968.
[2] T. Kato, I. Tsujkawa, T. Murao. J. Phys. Soc. Japan, *34*, 763, 1973.
[3] В. М. Агранович, М. Д. Галанин. Перенос энергии электронного возбуждения в конденсированных средах, 67. «Наука», М., 1978.
[4] М. Борн, Хуан Кунь. Динамическая теория кристаллических решеток, 284. ИЛ, М., 1958.
[5] Ю. К. Хохлов. Тр. ФИАН СССР, *59*, 221, 1972.

Поступило в Редакцию 4 июля 1980 г.