

快报

双极化子的能带, 稳定性与热力学特性

厉彦民

赵光安

(东北工学院物理系)

(瑞典 Linköping 大学物理系)

1983年9月4日收到

提 要

应用微扰理论计算了双极化子和自由极化子的能带, 以能带结构讨论了单重态和三重态双极化子的稳定性. 通过对比热和磁化率的分析, 显示出必须考虑三重态才能正确地解释有关的实验现象.

Lakkis 等人^[1]提出了单重态两中心极化子作为 Ti_4O_7 的基态. 目前有关双极化子的理论研究或者限于很小的系统^[2], 或者完全忽略了双极化子的三重态^[3], 而三重态对热力学性质有着重大的影响. 另外无限系统的双极化子的能带和稳定性至今尚未得到. 我们对图 1(a) 和 (b) 所示的一维和二维结构应用微扰理论对这些问题作了探讨. 从这两种结构基本上可以推出三维结构的情况.

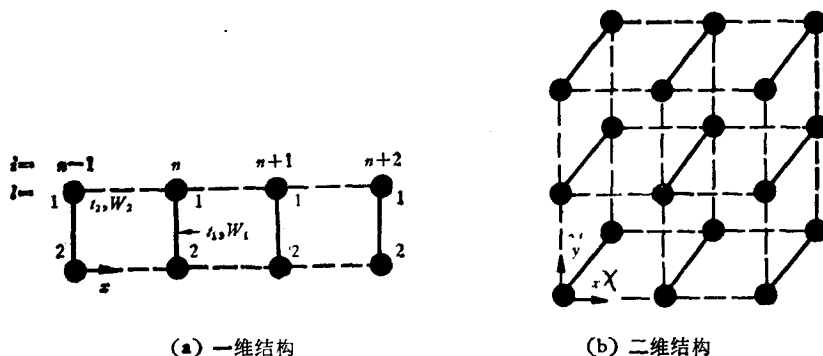


图 1

双极化子形成的本质是电子和声子相互作用, 其结果形成了原子成对的晶体. 因为相邻原子对间的跳跃能量 t_2 和库仑能 W_2 比同一原子对内的相应能量 t_1 和 W_1 要小得多. t_1 可看成微扰, 用正则变换解除电声子间的耦合以后, 一维结构的未微扰和微扰哈密顿量分别为

$$\begin{aligned} \hat{H}_0 = & t_1 \sum_{i\sigma} (a_{i1\sigma}^\dagger a_{i2\sigma} + a_{i2\sigma}^\dagger a_{i1\sigma}) + U \sum_{i1} n_{i1\uparrow} n_{i1\downarrow} \\ & + W_1 \sum_{i\sigma\sigma'} n_{i1\sigma} n_{i2\sigma'} + W_2 \sum_{i1\sigma\sigma'} n_{i1\sigma} n_{i+1,1\sigma'}, \end{aligned} \quad (1)$$

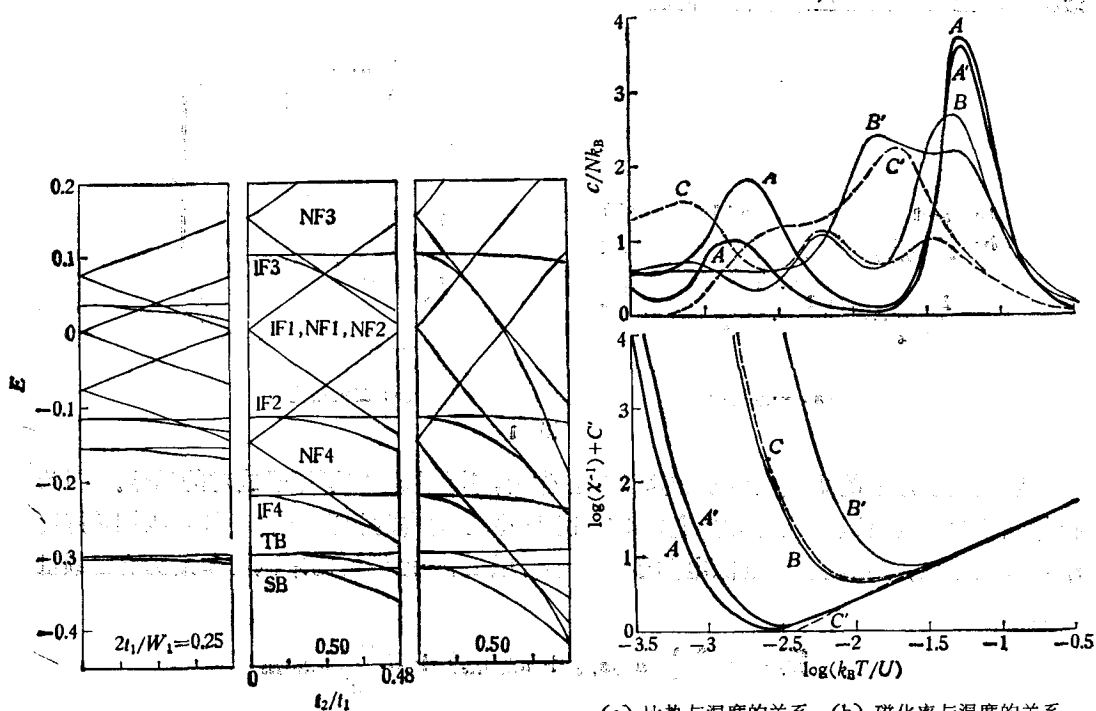
$$\hat{H}_1 = t_2 \sum_{i\sigma} a_{i\sigma}^\dagger a_{i\pm 1, \sigma} \quad (2)$$

(1) 式中的 U 为同一原子内的两电子间的库仑能。其它结构的哈密顿量只是增加相邻原子对的相互作用项。总哈密顿量为 $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_1$ 。

因一般在形成双极化子的材料中, 双极化子的密度比较小, 我们将采用两电子近似。容易证明, 两电子所形成的单重态和三重态不混合, 其能带结构可分别计算。 $\hat{H}_0$ 的本征能量和本征函数很容易求出。根据两电子所处的相对位置不同, 一共有三种可能的情况: (1) 在同一原子对内形成三重态双极化子 (TB) 或单重态双极化子 (SB), (2) 在相邻的两原子对内形成有相互作用的自由极化子 (IFP), 和 (3) 在非相邻的两原子对内形成完全自由极化子 (NFP)。

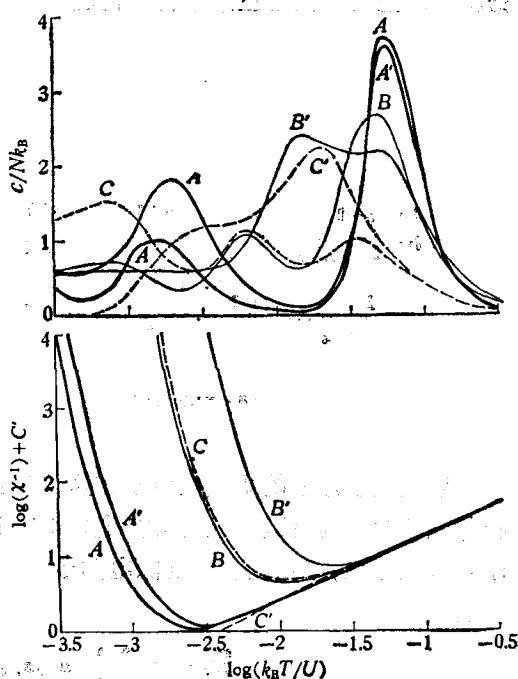
在每一种情况下, $\hat{H}_0$ 的本征解都是高度简并的。容易证明, 形成双极化子时, $\hat{H}_1$ 的一级能量修正为零。在本文中我们用一级简并微扰探讨 IFP 和 NFP, 用二级简并微扰处理 TB 和 SB。限于篇幅, 详细计算部分省略。

取 U 为能量单位。容易证明, 只有当 $W_1 < 0$ 时双极化子才稳定。因此我们取参数值 $W_1 = -0.3$ 和 $W_2/W_1 = 0.4$ 。在一维系统中, 图 2(a) 和 (b) 给出相应于 $2t_1/W_1 = 0.25$ 和 0.5 的能带结构。属于自由极化子的能带用 IF 或 NF 表示。单重态双极化子 (TB) 的稳定性是由 SB 能带和 TB 能带间的能隙所决定, 而三重态极化子 (TB) 的稳定性是由 TB 能带和 IF4 能带间的能隙决定。图 2 明显地表明, 当 t_2/t_1 增加时, SB 能带和 TB 能带先重叠, 然后 TB 能带和 IF4 能带才重叠。显然, 忽略了 TB 能带的 Alexandrov 和



(a) 一维系统 (b) 一维系统 (c) 二维系统

图 2



(a) 比热与温度的关系 (b) 磁化率与温度的关系
纵坐标中的 C' 为常数

图 3

Renninger 的理论, 便难以较好地描述双极化子的运动规律和性质.

图 3(a) 和 (b) 分别表示我们计算的比热 c 和磁化率 χ 随温度的变化. 实线对应于一维结构: 粗实线取 $2t_1/W_1 = 0.25$, 细实线取 $2t_1/W_1 = 0.5$. 曲线 A 和 B 取 $t_2/t_1 = 0.12$, 曲线 A' 和 B' 取 $t_2/t_1 = 0.48$. 当温度升高时, χ^{-1} 呈现一个极小值 (相应的温度称为 T_{ST}). 在 T_{ST} 以上的温度区域, χ 满足 Curie-Weiss 定律. 如果忽略了三重态双极化子, T_{ST} 就被解释成由单重态双极化子到自由极化子的转变温度. 我们注意到在 T_{ST} 附近比热曲线出现一个峰. 在高温 (χ 满足 Curie-Weiss 定律) 区域比热曲线又出现一个峰. 低温峰对应于单重态到三重态双极化子的转变, 而高温峰对应于三重态双极化子到自由极化子的转变. 因此, T_{ST} 完全是双极化子的性质, 和自由极化子无关. 比热曲线中的其它细微结构, 是由态密度所造成, 不在本文讨论范围.

我们取同样的参数值 $W_1 = -0.3$, $W_2/W_1 = 0.4$ 和 $2t_1/W_1 = 0.5$, 计算二维结构的能带 (图 2(c)), 比热和磁化率 (图 3 的虚线, 曲线 C 取 $t_2/t_1 = 0.12$, 曲线 C' 取 $t_2/t_1 = 0.48$). 比较图 2(b) 和 (c), 可以看出二维结构中双极化子的稳定范围比一维结构的要小得多. 一维和二维结构的热力学性质显示出类似的特性, 但磁化率曲线 C' 只呈现 Curie-Weiss 性质. 这是由于 NF_4 能带的扩展导致在非常低的温度下仍然有自由极化子的存在.

双极化子的稳定性应该随着原子对配位数的增加而减少. 这个结论和以上两种不同结构计算的结果相吻合. 三维晶体的原子对配位数更大, 因而稳定性将降低. 为了证明在双极化子的稳定域内, 微扰理论都能适用, 我们对有限系统作了精确的数值计算, 其结果和以上所讨论的特性一致.

本文作者之一 (厉彦民) 的一些工作是在张开义副教授的指导下完成的. 中国科学院物理研究所李荫远研究员阅读了原稿并提出了宝贵意见. 杨德新教授, 何宗强和王燕生副教授给予了热情的支持和鼓励, 谨此致谢.

参 考 文 献

- [1] S. Lakkis, C. Schlenkar, B. K. Chakraverty, R. Buder and M. Marezio, *Phys. Rev. B*, **14**(1976), 1429.
- [2] K. A. Chao, R. Micnas, S. Robaszkiewicz, A. M. Oleś and B. Oleś, *Phys. Lett.*, **95**(1983), 391.
- [3] B. K. Chakraverty, M. J. Sienko and J. Bonnerot, *Phys. Rev. B*, **17**(1978), 3781; A. Alexandrov and J. Ranninger, *Phys. Rev. B*, **23**(1981), 1796; **24**(1981), 1164.

ENERGY BANDS, STABILITY AND THERMODYNAMIC PROPERTIES OF BIPOLARONS

LI YAN-MIN

(Department of Physics, Northeast Institute of Technology, Shenyang)

K. A. CHAO

(Department of Physics and Measurement Technology University of Linköping, Linköping Sweden)

ABSTRACT

We have used the perturbation theory to calculate the energy bands of the bipolaron and the free-polaron, in order to investigate the stabilities of the singlet and the triplet bipolaron states. By analyzing the specific heat and the magnetic susceptibility, we illustrate the importance of the triplet bipolaron state in understanding the experimental data.