

**Pokročilé disperzní modely v optice tenkých vrstev**  
Lekce 8: Disperzní modely krystalických látek – schéma  
rozšiřovacích procedur zachovávajících sumační pravidla

Daniel Franta

Ústav fyzikální elektroniky, Přírodovědecká fakulta, Masarykova univerzita

jaro 2014

# Obsah

- 1 Úvod
- 2 Rozšíření dielektrické odezvy
- 3 Mezipásové přechody
- 4 Vnitropásové přechody
- 5 Numerický výpočet
- 6 Shrnutí

# Úvod

To, že struktury ve funkcích dielektrické odezvy vykazují konečnou šířku, je způsobeno několika příčinami:

- 1 Je nutné rozlišit konečnou šířku spektrální čáry monochromátoru a skutečné rozšíření dielektrické odezvy. Proto pro měření ostrých struktur ve viditelném oboru světla se používá synchrotronové záření.
- 2 Teplotní rozšíření (vícečásticové procesy zahrnující TA fonony v blízkosti  $\Gamma$  bodu) není jediný faktor způsobující rozšíření.
- 3 Obecně každé rozuspořádání krystalové mříže způsobuje rozšíření spekter.
- 4 Vliv isotopů na fononová spektra.

Většinou nelze všechny tyto efekty v rámci modelu postihnout a proto se volí empirický přístup založený na tzv. rozšířením ostrých spekter vyplývajících ze základních představ QM. Postup jak v těchto případech postupovat je založen na naší nedávné práci.<sup>1</sup>

---

<sup>1</sup>D. Franta, D. Nečas, L. Zajíčková, I. Ohlídal, Broadening of dielectric response and sum rule conservation, Thin Solid Films (in print)

# Obsah

- 1 Úvod
- 2 Rozšíření dielektrické odezvy**
- 3 Mezipásové přechody
- 4 Vnitropásové přechody
- 5 Numerický výpočet
- 6 Shrnutí

## Dielektrická odezva

## Fermiho zlaté pravidlo

$$\varepsilon_i(E) \approx \frac{\pi}{\epsilon_0 V} \sum_f^{f \neq i} |\langle f | \hat{d}_{xe} | i \rangle|^2 \left[ \delta(E_f - E_i - E) - \delta(E_i - E_f - E) \right]$$

## Sdružená hustota stavů

$$|\langle f | \hat{d}_{xe} | i \rangle|^2 = \left( \frac{e\hbar}{m_e} \right)^2 \frac{|\langle f | \hat{p}_{xe} | i \rangle|^2}{(E_f - E_i)^2}$$

$$\varepsilon_i(E) \approx \frac{1}{E^2} \frac{(eh)^2}{4\pi\epsilon_0 m_e^2 V} \sum_f^{f \neq i} |\langle f | \hat{p}_{xe} | i \rangle|^2 \left[ \delta(E_f - E_i - E) - \delta(E_i - E_f - E) \right] \quad \varepsilon_i(E) = \frac{J(E)}{E^2}$$

## Kubova formule

$$\varepsilon_i(E) \approx \frac{1}{E} \frac{h^2}{4\pi\epsilon_0 V} \sum_f^{f \neq i} \frac{|\langle f | \hat{v}_{xe} | i \rangle|^2}{E_f - E_i} \left[ \delta(E_f - E_i - E) + \delta(E_i - E_f - E) \right] = \frac{\hbar}{\epsilon_0} \frac{\sigma_r(E)}{E} = \frac{F(E)}{E}$$

$$\sigma_r(E) \sim F(E) = \frac{J(E)}{E}$$

# Rozšíření

**Rozšíření** se zavede tak, že v předcházejících vztazích nahradíme  $\delta$ -funkci nějakou symetrickou normalizovanou funkcí, například gaussovskou:

$$\delta(x) \rightarrow \beta(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}B} \exp\left(-\frac{x^2}{2B^2}\right)$$

Problém je ten, že nemůžeme použít stejné hodnoty rozšiřovacího parametru  $B$  pro všechny typy excitací, protože  $B$  závisí na typu excitace a též na energii  $E$ . Přičemž na energii nezávislé  $B$  je výhodné, protože pak předchozí substituce je možná napsat jako konvoluce nerozšířené funkce s normalizovanou rozšiřovací funkcí:

$$\tilde{\varepsilon}_i(E) = \frac{1}{E^2} \int_{-\infty}^{\infty} J(X)\beta(E-X) = \frac{1}{E^2} (J * \beta)(E)$$

$$\tilde{\varepsilon}_i(E) = \frac{1}{E} \int_{-\infty}^{\infty} F(X)\beta(E-X) = \frac{1}{E} (F * \beta)(E) = \frac{1}{E} \left(\frac{J}{E} * \beta\right)(E)$$

$$\tilde{\varepsilon}_i(E) = \int_{-\infty}^{\infty} \varepsilon_i(X)\beta(E-X) = \left(\frac{J}{E^2} * \beta\right)(E)$$

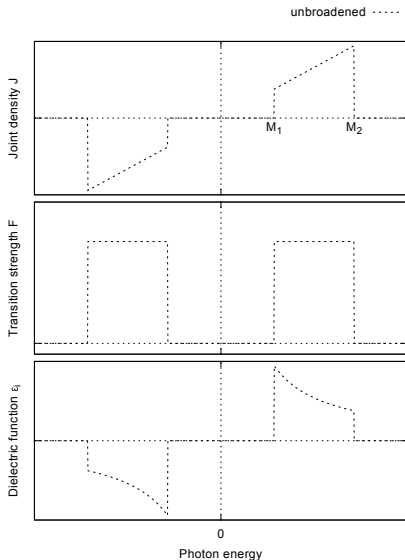
Problém řešíme tak, že dielektrickou odezvu rozdělíme na příspěvky podle typů excitací (někdy ještě hlouběji) a na těchto příspěvcích předpokládáme konstantní parametr  $B$ . Výsledná rozšířená funkce závisí na tom, který ze tří vztahů použijeme.

# Obsah

- 1 Úvod
- 2 Rozšíření dielektrické odezvy
- 3 Mezipásové přechody**
- 4 Vnitropásové přechody
- 5 Numerický výpočet
- 6 Shrnutí

# Mezipásové přechody

Rozšíření budeme demonstrovat na hranatém absorpčním pásu (ve veličině  $F$ ). Tento jednoduchý model může reprezentovat příspěvek mezipásových elektronových přechodů mezi kritickými body  $M_1$  a  $M_2$ .



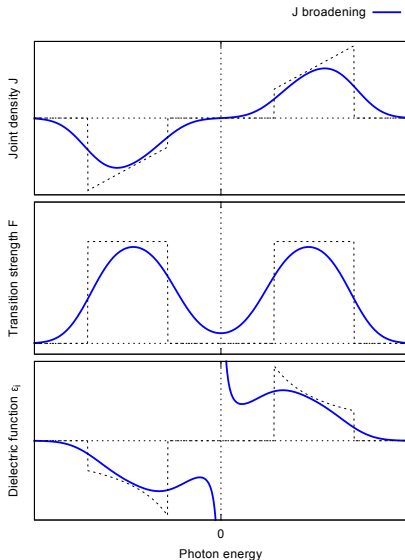


# Mezipásové přechody

## $J$ rozšíření:

$$\varepsilon_i(E) = \frac{1}{E^2} (J * \beta)(E),$$

vyrobí silnou singularitu typu volných nositelů náboje  $E \rightarrow 0$ .



## Mezipásové přechody

 **$J$  rozšíření:**

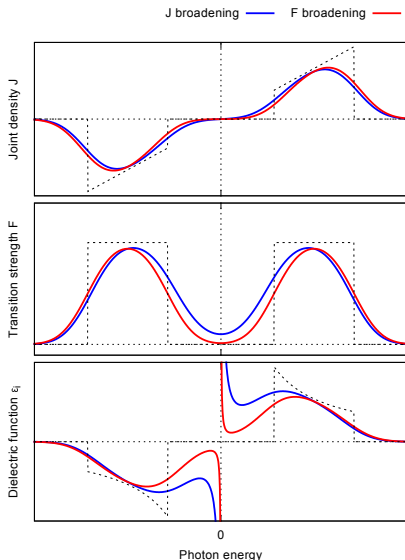
$$\varepsilon_i(E) = \frac{1}{E^2} (J * \beta)(E),$$

vyrobí silnou singularitu typu volných nositelů náboje  $E \rightarrow 0$ .

 **$F$  rozšíření:**

$$\varepsilon_i(E) = \frac{1}{E} \left( \frac{J}{E} * \beta \right)(E),$$

vyrobí též singularitu typu volných nositelů náboje, ale slabší než  $J$  rozšíření. Navíc gaussovské rozšíření dává mnohem slabší singularitu, než lorentzovské rozšíření.



# Mezipásové přechody

## $J$ rozšíření:

$$\varepsilon_i(E) = \frac{1}{E^2} (J * \beta)(E),$$

vyrobí silnou singularitu typu volných nositelů náboje  $E \rightarrow 0$ .

## $F$ rozšíření:

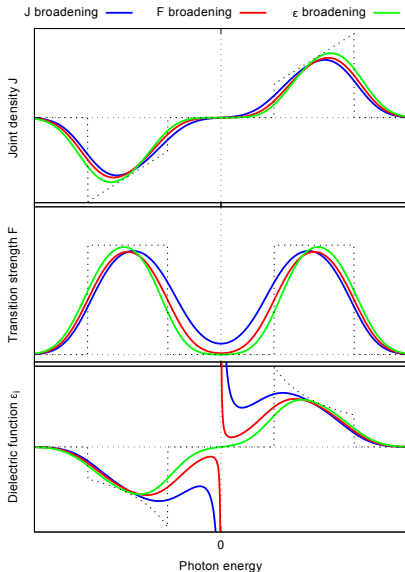
$$\varepsilon_i(E) = \frac{1}{E} \left( \frac{J}{E} * \beta \right)(E),$$

vyrobí též singularitu typu volných nositelů náboje, ale slabší než  $J$  rozšíření. Navíc gaussovské rozšíření dává mnohem slabší singularitu, než lorentzovské rozšíření.

## $\varepsilon$ rozšíření:

$$\varepsilon_i(E) = \left( \frac{J}{E^2} * \beta \right)(E),$$

funkci rozšíří, ale singularitu nevyrobí.



## Zachování sumačního pravidla

- Z předchozího je vidět, že vhodné rozšíření pro elektronové mezipásové přechody je  $\varepsilon$  rozšíření, protože rozšiřovací procedura by neměla z nevodivého materiálu udělat materiál vodivý, tj.  $F(0) \neq 0$ . Samotná singularita není problém, protože je to přirozený jev ve vodivých materiálech.
- $F$  rozšíření evidentně zachovává sumační pravidla, ale jak je to s  $\varepsilon$  rozšířením. Bude nutně dielektrickou funkci renormalizovat?
- Vliv  $J$  a  $\varepsilon$  lorentzovského rozšíření na velikost absorpce v zakázaném pásu a existence singularity studoval již Kim<sup>2</sup>, čímž nás inspiroval pro vznik naší práce, kde studujeme vliv rozšíření na sumační pravidlo a k  $J$  a  $\varepsilon$  rozšíření přidáváme vliv  $F$  rozšíření. Navíc v naší práci se neomezujeme pouze na lorentzovskou rozšiřovací funkci.
- Již Kim ukázal, že navíc gaussovské rozšíření je mnohem vhodnější než lorentzovské a zavedl jistou aproximaci, která ale porušuje Kramers–Kronigovy relace i sumační pravidlo.

---

<sup>2</sup>C. C. Kim, J. W. Garland, H. Abad, P. M. Raccah, Modeling the Optical Dielectric Function of Semiconductors: Extension of the Critical-point Parabolic-band Approximation, Phys. Rev. B 45 (1992) 11749–11767

## Zachování sumačního pravidla

Obecně pro rozšíření a sumační pravidlo lze napsat:

$$\int_{-\infty}^{\infty} E^m \int_{-\infty}^{\infty} \frac{F(X)}{X^m} \beta(E - X) dX dE \stackrel{?}{=} \int_{-\infty}^{\infty} F(E) dE = 2N$$

- $m = -1$  :  $J$  rozšíření
- $m = 0$  :  $F$  rozšíření
- $m = 1$  :  $\varepsilon$  rozšíření

Zavedeme substituci  $U = E - X$ , která nám vymění pořadí integrací:

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{F(X)}{X^m} \int_{-\infty}^{\infty} (U + X)^m \beta(U) dU dX = \int_{-\infty}^{\infty} F(X) dX \quad \text{pouze pro } m = 0 \text{ nebo } 1$$

$\Rightarrow$ , že pouze  $F$  a  $\varepsilon$  rozšíření zachovává sumační pravidlo, přičemž pro  $\varepsilon$  rozšíření je důležité, aby funkce  $\beta(U)$  byla sudou funkcí.

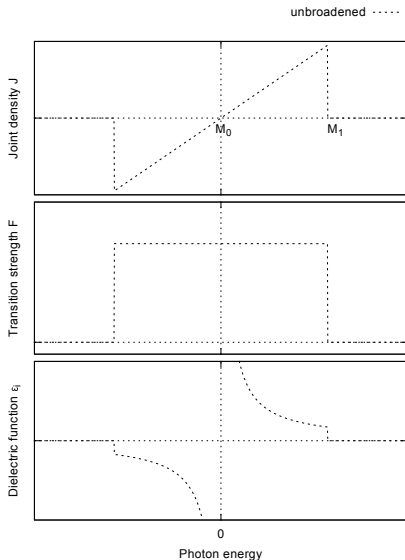
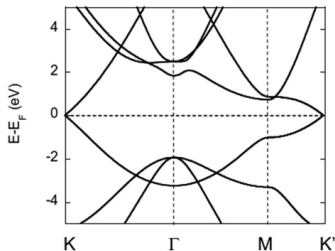
# Obsah

- 1 Úvod
- 2 Rozšíření dielektrické odezvy
- 3 Mezipásové přechody
- 4 Vnitropásové přechody**
- 5 Numerický výpočet
- 6 Shrnutí

# Vnitropásové přechody

- Pro pokojovou teplotu a malé energie dominují nepřímé vnitropásové elektronové přechody.
- Pro nízké teploty ( $T \rightarrow 0$ ) existují přímé vnitropásové přechody pouze jestliže dvě větve začínají v jednom bodě s Fermiho energií.

## Pásová struktura grafenu



# Vnitropásové přechody

## F rozšíření:

$$\varepsilon_i(E) = \frac{1}{E} \left( \frac{J}{E} * \beta \right) (E),$$

## $\varepsilon$ rozšíření:

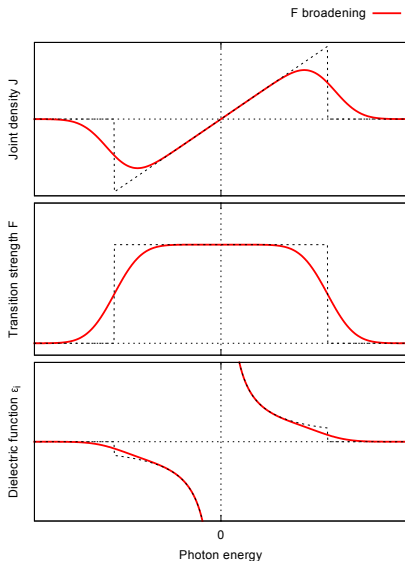
$$\varepsilon_i(E) = \left( \frac{J}{E^2} * \beta \right) (E),$$

Jestliže jsou finální a počáteční stavy blízko Fermiho energie ( $E \lesssim k_B T$ ) je nutné vztah pro rozšířenou dielektrickou funkci vynásobit teplotním faktorem  $f_T$ :

$$f_T = f_c^{\text{FD}}(E_i) - f_c^{\text{FD}}(E_f)$$

## FT rozšíření:

$$\varepsilon_i(E) = \frac{1}{E} [f_c^{\text{FD}}(-E/2) - f_c^{\text{FD}}(E/2)] \left( \frac{J}{E} * \beta \right) (E)$$





## Vnitropásové přechody

**F rozšíření:**

$$\varepsilon_i(E) = \frac{1}{E} \left( \frac{J}{E} * \beta \right) (E),$$

 **$\varepsilon$  rozšíření:**

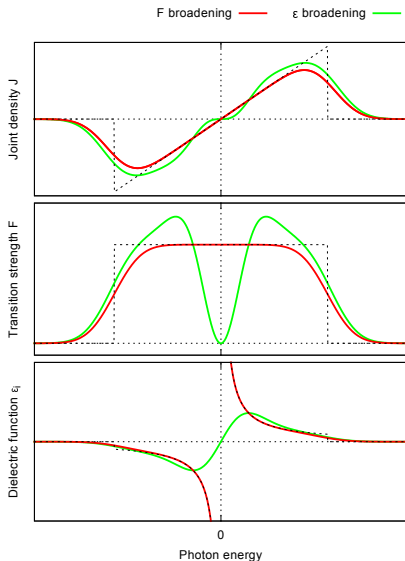
$$\varepsilon_i(E) = \left( \frac{J}{E^2} * \beta \right) (E),$$

Jestliže jsou finální a počáteční stavy blízko Fermiho energie ( $E \approx k_B T$ ) je nutné vztah pro rozšířenou dielektrickou funkci vynásobit teplotním faktorem  $f_T$ :

$$f_T = f_e^{\text{FD}}(E_i) - f_e^{\text{FD}}(E_f)$$

**FT rozšíření:**

$$\varepsilon_i(E) = \frac{1}{E} [f_e^{\text{FD}}(-E/2) - f_e^{\text{FD}}(E/2)] \left( \frac{J}{E} * \beta \right) (E)$$



# Vnitropásové přechody

## F rozšíření:

$$\varepsilon_i(E) = \frac{1}{E} \left( \frac{J}{E} * \beta \right) (E),$$

## $\varepsilon$ rozšíření:

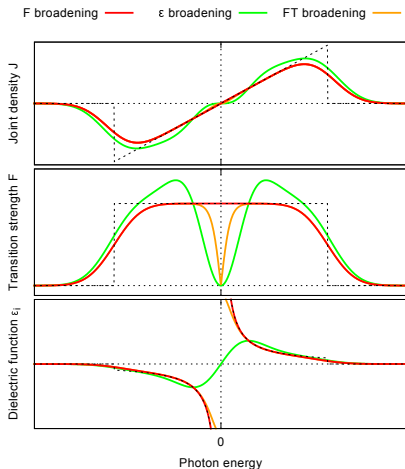
$$\varepsilon_i(E) = \left( \frac{J}{E^2} * \beta \right) (E),$$

Jestliže jsou finální a počáteční stavy blízko Fermiho energie ( $E \lesssim k_B T$ ) je nutné vztah pro rozšířenou dielektrickou funkci vynásobit teplotním faktorem  $f_T$ :

$$f_T = f_e^{\text{FD}}(E_i) - f_e^{\text{FD}}(E_f)$$

## FT rozšíření:

$$\varepsilon_i(E) = \frac{1}{E} [f_e^{\text{FD}}(-E/2) - f_e^{\text{FD}}(E/2)] \left( \frac{J}{E} * \beta \right) (E)$$



# Obsah

- 1 Úvod
- 2 Rozšíření dielektrické odezvy
- 3 Mezipásové přechody
- 4 Vnitropásové přechody
- 5 Numerický výpočet**
- 6 Shrnutí

## Numerický výpočet

Jelikož pro většinu fyzikálně rozumných funkcí popisující nerozšířenou dielektrickou odezvu není možné hledat gausovské rozšíření na třídě speciálních funkcí je nutné problém řešit numericky. Jestliže imaginární část dielektrické funkce je počítána numericky pomocí konvoluce, tak kompletní dielektrická funkce vede na výpočet dvojného integrálu:

$$\tilde{\varepsilon}_r(E) = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\tilde{\varepsilon}_i(x)}{x - E} dx \equiv H[\tilde{\varepsilon}_i] ,$$

kde  $H$  značí Hilbertovu transformaci.

V případě  $\varepsilon$  rozšíření lze prohodit pořadí integrálů (pro toto je důležitý předpoklad, že v rámci příspěvku rozšiřovací parametr  $B$  je konstantní):

$$\tilde{\varepsilon}_r = H[\tilde{\varepsilon}_i] = H[\beta * \varepsilon_i] = H[\beta] * \varepsilon_i ,$$

kde Hilbertova transformace gaussovky je Dawsonova funkce:

$$H[\beta](x) = -\frac{\sqrt{2}}{\pi B} D\left(\frac{x}{\sqrt{2}B}\right) .$$

Tedy ve výsledku místo dvojného integrálu numericky počítáme dva jednoduché integrály reprezentující konvoluci s Gaussovou a Dawsonovou funkcí.

# Numerický výpočet

V případě  $F$  rozšíření lze provést podobný trik:

$$\tilde{\epsilon}_r = H \left[ \frac{\tilde{F}}{E} \right] = \frac{1}{E} (H[\beta] * F) .$$

Z hlediska zjednodušení zápisu můžeme zavést komplexní rozšiřovací funkce:

$$\hat{\beta} = H[\beta] + i\beta \quad (1)$$

a pro rozšířenou dielektrickou funkci potom psát:

$$\tilde{\epsilon} = \hat{\beta} * \epsilon_i = \hat{\beta} * \frac{F}{E} ,$$

nebo

$$\tilde{\epsilon} = \frac{1}{E} (\hat{\beta} * F) ,$$

což ale z praktického hlediska nic nemění na tom, že počítáme dva reálné integrály, protože Gaussova a Dawsonova funkce mají jiné asymptotické chování.

# Obsah

- 1 Úvod
- 2 Rozšíření dielektrické odezvy
- 3 Mezipásové přechody
- 4 Vnitropásové přechody
- 5 Numerický výpočet
- 6 Shrnutí**

## Shrnutí

- $F$  a  $\varepsilon$  rozšíření zachovává sumační pravidlo.
- $J$  rozšíření nezachovává sumační pravidlo.
- $F$  rozšíření přímých mezipásových přechodů vytváří nepřirozenou vodivost blízko  $E = 0$  (vodivost s energií roste na rozdíl od přirozené vodivosti Drudeho typu).
- $\varepsilon$  rozšíření přímých vnitropásových přechodů naopak vytváří díru v absorpci (ve vodivosti), ale jiného druhu, než bychom potřebovali pro termální efekt způsobený Fermi-Diracovou statistikou.
- $\varepsilon$  rozšíření by se mělo používat pro mezipásové elektronové přechody.
- $F$  rozšíření vynásobené teplotním faktorem by se mělo používat pro vnitropásové elektronové přechody mající nulový kritický  $M_0$  bod.
- $\varepsilon$  rozšíření by se mělo též používat pro rozšíření vícefononových procesů.