Pokročilé disperzní modely v optice tenkých vrstev
Lekce 5: Kvantově mechanický popis a jeho souvislost s klasickými disperzními modely; komplexní rozšiřovací funkce

Daniel Franta

Ústav fyzikální elektroniky, Přírodovědecká fakulta, Masarykova univerzita

16. 4. 2020

Obsah

Fermiho zlaté pravidlo a Kubova transportní rovnice

- V rámci poruchové teorie se na elektrony díváme jako na kvantově mechanické částice popsané vlnovou funkcí v klasickém EM poli (v úvahu bereme pouze elektrickou část Lorentzovy síly).
- Poruchu (změnu energie na jednotku objemu za jednotku času) popíšeme v rámci dipólové aproximace pomocí dipólového operátoru:

$$\varepsilon_{\mathrm{i}}(E) = \frac{\pi}{\epsilon_0 V} \sum_{f}^{f \neq i} |\langle f | \hat{d}_{x\mathrm{e}} | i \rangle|^2 [\delta(E_f - E_i - E) - \delta(E_i - E_f - E)]$$

  kde dipólový moment lze napsat pomocí polohového operátoru, či operátoru hybnosti následovně

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

  Přechod sytému ze stavu i do stavu f je reprezentován v imaginární části dielektrické funkce (susceptibility) delta funkcí – model harmonického oscilátoru.
- Obvyklý vztah popisující **Fermiho zlaté pravidlo**

$$\varepsilon_{\mathrm{i}}(E) = \frac{(eh)^2}{4\pi \epsilon_0 m_{\mathrm{e}}^2 V} \sum_{f}^{f \neq i} \frac{|\langle f | \hat{p}_{x\mathrm{e}} | i \rangle|^2}{(E_f - E_i)^2} [\delta(E_f - E_i - E) - \delta(E_i - E_f - E)]$$

Fermiho zlaté pravidlo a Kubova transportní rovnice

- Obvyklý vztah popisující **Fermiho zlaté pravidlo**

$$\varepsilon_{\mathrm{i}}(E) = \frac{(eh)^2}{4\pi\epsilon_0 m_{\mathrm{e}}^2 V} \sum_{f}^{f\neq i} \frac{|\langle f|\hat{p}_{x\mathrm{e}}|i\rangle|^2}{(E_f - E_i)^2} [\delta(E_f - E_i - E) - \delta(E_i - E_f - E)]$$

Předchozí vztah popisuje dielektrickou odezvu nacházející se ve specifickém počátečním stavu i (základní stav $T = 0\,\mathrm{K}$).

- Pro konečnou teplotu
  1. Je nutné předpokládat systém ve smíšeném stavu.

$$\varepsilon_{\mathrm{i}}(E) = \frac{(eh)^2}{4\pi\epsilon_0 m_{\mathrm{e}}^2 V} \sum_{i,f}^{f\neq i} \exp\left(\frac{\Omega - E_i}{k_{\mathrm{B}} T}\right) \frac{|\langle f|\hat{p}_{x\mathrm{e}}|i\rangle|^2}{(E_f - E_i)^2} [\delta(E_f - E_i - E) - \delta(E_i - E_f - E)]$$

$$\exp\left(\frac{\Omega}{k_{\mathrm{B}} T}\right) \sum_i \exp\left(-\frac{E_i}{k_{\mathrm{B}} T}\right) = 1$$

  2. Zavést konečnou dobu života jednotlivých čistých stavů: $\delta(x) \to \beta(x)$, kde rozšiřovací funkce mohou být

$$\beta(x) = -\frac{\gamma}{2\pi} \frac{1}{x^2 + \gamma^2/4} \qquad \text{nebo} \qquad \beta(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} B} \exp\left(-\frac{x^2}{2B^2}\right)$$

Fermiho zlaté pravidlo a Kubova transportní rovnice

- **Fermiho zlaté pravidlo pro systém ve smíšeném stavu**

$$\varepsilon_{\mathrm{i}}(E) = \frac{(eh)^2}{4\pi\epsilon_0 m_{\mathrm{e}}^2 V} \sum_{i,f}^{f\neq i} \exp\left(\frac{\Omega - E_i}{k_{\mathrm{B}}T}\right) \frac{|\langle f|\hat{p}_{x\mathrm{e}}|i\rangle|^2}{(E_f - E_i)^2} [\delta(E_f - E_i - E) - \delta(E_i - E_f - E)]$$

- Téměř shodný vztah jako Fermiho zlaté pravidlo obdržíme z **Kubovy transportní formule**, která dielektrickou odezvu popisuje pomocí vodivosti

$$\sigma_{\mathrm{r}}(E) = \frac{\pi\hbar}{V} \sum_{i,f}^{f\neq i} \exp\left(\frac{\Omega - E_i}{k_{\mathrm{B}}T}\right) \frac{|\langle f|\hat{j}_{x\mathrm{e}}|i\rangle|^2}{E_f - E_i} [\delta(E_f - E_i - E) + \delta(E_i - E_f - E)]$$

  kde $\hat{j}_{x\mathrm{e}} = \frac{e}{m_{\mathrm{e}}}\hat{p}_{x\mathrm{e}}$

- Pozor tyto vztahy nejsou shodné, když provedeme rozšíření $\delta(x) \to \beta(x)$!
- V principu není v pohledu na dielektrickou odezvu u disipativních systémů pro konečnou frekvenci rozdíl mezi popisem pomocí polarizace nebo pomocí proudové hustoty v případě, že studujeme vázané stavy. V případě volných nábojů je situace složitější.

Obsah

Kvantově mechanická interpretace klasických modelů

Vázané stavy – Lorentzův model

$$\hat{\chi}(\omega) = \frac{\omega_\mathrm{p}^2}{\omega_\mathrm{c}^2 - \omega^2 - \mathrm{i}\gamma\omega} \qquad \equiv \qquad \hat{\chi}(\omega) = \frac{\pi\omega_\mathrm{p}^2}{2\omega_\mathrm{r}}\,\hat{\beta} * (\delta(\omega - \omega_\mathrm{r}) - \delta(\omega + \omega_\mathrm{r}))$$

kde $\hat{\beta}(x) = -\dfrac{1}{\pi}\dfrac{1}{x + \mathrm{i}\gamma/2}$ a $\omega_\mathrm{c}^2 = \omega_\mathrm{r}^2 + \gamma^2/4$

Volné částice – Drudeho model

$$\hat{\chi}(\omega) = \frac{-\omega_\mathrm{p}^2}{\omega^2 + \mathrm{i}\gamma\omega} \qquad \equiv \qquad \hat{\chi}(\omega) = \frac{\pi\omega_\mathrm{p}^2}{\omega}\,\hat{\beta} * \delta(\omega)$$

kde $\hat{\beta}(x) = -\dfrac{1}{\pi}\dfrac{1}{x + \mathrm{i}\gamma}$

Komplexní rozšiřovací funkce

$$\hat{\beta}(x) = H[\beta(x)] + \mathrm{i}\beta(x)$$

Hilbertova transformace

$$H[\beta(x)] = \frac{1}{\pi}\int_{-\infty}^{\infty} \frac{\beta(\xi)}{\xi - x}\mathrm{d}\xi$$

Kvantově mechanická interpretace klasických modelů

Vázané stavy – Lorentzův model

$$\hat{\chi}(\omega) = \frac{\omega_\mathrm{p}^2}{\omega_\mathrm{c}^2 - \omega^2 - \mathrm{i}\gamma\omega} \qquad \equiv \qquad \hat{\chi}(\omega) = \frac{\pi\omega_\mathrm{p}^2}{2\omega_\mathrm{r}}\,\hat{\beta} * (\delta(\omega - \omega_\mathrm{r}) - \delta(\omega + \omega_\mathrm{r}))$$

$$\text{kde} \qquad \hat{\beta}(x) = -\frac{1}{\pi}\frac{1}{x + \mathrm{i}\gamma/2} \qquad \text{a} \qquad \omega_\mathrm{c}^2 = \omega_\mathrm{r}^2 + \gamma^2/4$$

Volné částice – Drudeho model

$$\hat{\chi}(\omega) = \frac{-\omega_\mathrm{p}^2}{\omega^2 + \mathrm{i}\gamma\omega} \qquad \equiv \qquad \hat{\chi}(\omega) = \frac{\pi\omega_\mathrm{p}^2}{\omega}\,\hat{\beta} * \delta(\omega)$$

$$\text{kde} \qquad \hat{\beta}(x) = -\frac{1}{\pi}\frac{1}{x + \mathrm{i}\gamma}$$

- Pro klasické modely platí, že Drudeho model je Lorentzův model pro $\omega_\mathrm{c} \to 0$.
- Pro kvantově mechanickou interpretaci neplatí, že Drudeho model je Lorentzův model pro $\omega_\mathrm{r} \to 0$.
- Lorenzův model pro $0 < \omega_\mathrm{c} \leq \gamma/2$ se nedá interpretovat jako Lorenzovsky rozšířené diskrétní spektrum.
- Drudeho model má dvojnásobně širší rozšiřovací Lorentzovu funkci než Lorentzův model.

Obsah

Rozšiřování distribuční funkce

Sdružená hustota stavů

$$J(E) = \frac{(eh)^2}{4\pi\epsilon_0 m_\mathrm{e}^2 V} \sum_{i,f}^{f\neq i} \exp\left(\frac{\Omega - E_i}{k_\mathrm{B}T}\right) |\langle f|\hat{p}_{xe}|i\rangle|^2 [\delta(E_f - E_i - E) - \delta(E_i - E_f - E)]$$

Funkce síly přechodu

$$F(E) = \frac{(eh)^2}{4\pi\epsilon_0 m_\mathrm{e}^2 V} \sum_{i,f}^{f\neq i} \exp\left(\frac{\Omega - E_i}{k_\mathrm{B}T}\right) \frac{|\langle f|\hat{p}_{xe}|i\rangle|^2}{(E_f - E_i)} [\delta(E_f - E_i - E) + \delta(E_i - E_f - E)]$$

Distribuční funkce dipólů

$$D(E) = \frac{(eh)^2}{4\pi\epsilon_0 m_\mathrm{e}^2 V} \sum_{i,f}^{f\neq i} \exp\left(\frac{\Omega - E_i}{k_\mathrm{B}T}\right) \frac{|\langle f|\hat{p}_{xe}|i\rangle|^2}{(E_f - E_i)^2} [\delta(E_f - E_i - E) - \delta(E_i - E_f - E)]$$

Pro které platí

$$F(E) = ED(E) \qquad J(E) = EF(E) = E^2 D(E) \qquad D(E) \equiv \varepsilon_\mathrm{i}(E) \qquad F(E) \sim \sigma_\mathrm{r}(E)$$

Sumační pravidlo spojující hustotu s integrálními hodnotami

$$\int_0^\infty F(E)\mathrm{d}E = \int_0^\infty ED(E)\mathrm{d}E = \int_0^\infty \frac{J(E)}{E}\mathrm{d}E = N \qquad [\mathrm{eV}^2]$$

N je úměrné hustotě nabitých částic $\sim \omega_\mathrm{p}^2$
Dielektrickou odezvu (rozšířenou dielektrickou funkce) lze potom definovat následovně

$$\hat{\varepsilon}(E) = 1 + \hat{\beta} * D(E) \qquad \text{nebo} \qquad \hat{\varepsilon}(E) = 1 + \frac{1}{E}[\hat{\beta} * F(E)] \qquad \text{ale ne} \quad \hat{\varepsilon}(E) = 1 + \frac{1}{E^2}[\hat{\beta} * J(E)]$$

Proč?

Sumační pravidlo spojující hustotu s integrálními hodnotami

$$\int_0^\infty F(E)\mathrm{d}E = \int_0^\infty ED(E)\mathrm{d}E = \int_0^\infty \frac{J(E)}{E}\mathrm{d}E = N \qquad [\mathrm{eV}^2]$$

N je úměrné hustotě nabitých částic $\sim \omega_\mathrm{p}^2$
Dielektrickou odezvu (rozšířenou dielektrickou funkce) lze potom definovat následovně

$$\hat{\varepsilon}(E) = 1 + \hat{\beta} * D(E) \qquad \text{nebo} \qquad \hat{\varepsilon}(E) = 1 + \frac{1}{E}[\hat{\beta} * F(E)] \qquad \text{ale ne} \quad \hat{\varepsilon}(E) = 1 + \frac{1}{E^2}[\hat{\beta} * J(E)]$$

protože

1. pouze rozšiřování funkce síly přechodu $F(E)$ a distribuční funkce dipólů $D(E)$ zachovává sumační pravidlo a potom není nutné zavádět normalizaci.
2. rozšiřovací funkce jsou dvě, protože je nutné rozlišit jestli se jedná o vázané nebo volné částice. Vztah s $D(E)$ je vhodný pro vázané částice a vztah s $F(E)$ je vhodný pro volné částice.

Sumační pravidlo spojující hustotu s integrálními hodnotami

$$\int_0^\infty F(E)\mathrm{d}E = \int_0^\infty ED(E)\mathrm{d}E = \int_0^\infty \frac{J(E)}{E}\mathrm{d}E = N \qquad [\mathrm{eV}^2]$$

N je úměrné hustotě nabitých částic $\sim \omega_\mathrm{p}^2$
Dielektrickou odezvu (rozšířenou dielektrickou funkce) lze potom definovat následovně

$$\hat{\varepsilon}(E) = 1+\hat{\beta}*D(E) \qquad \text{nebo} \qquad \hat{\varepsilon}(E) = 1+\frac{1}{E}[\hat{\beta}*F(E)] \qquad \text{ale ne} \quad \hat{\varepsilon}(E) = 1+\frac{1}{E^2}[\hat{\beta}*J(E)]$$

protože

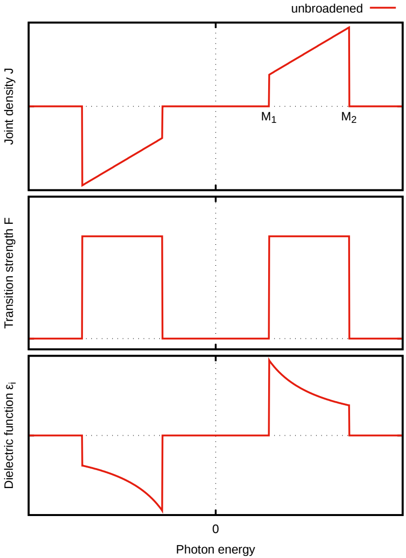
1. pouze rozšiřování funkce síly přechodu $F(E)$ a distribuční funkce dipólů $D(E)$ zachovává sumační pravidlo a potom není nutné zavádět normalizaci.
2. rozšiřovací funkce jsou dvě, protože je nutné rozlišit jestli se jedná o vázané nebo volné částice. Vztah s $D(E)$ je vhodný pro vázané částice a vztah s $F(E)$ je vhodný pro volné částice.

Co se stane, když se to prohodí?

Obsah

Mezipásové přechody

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

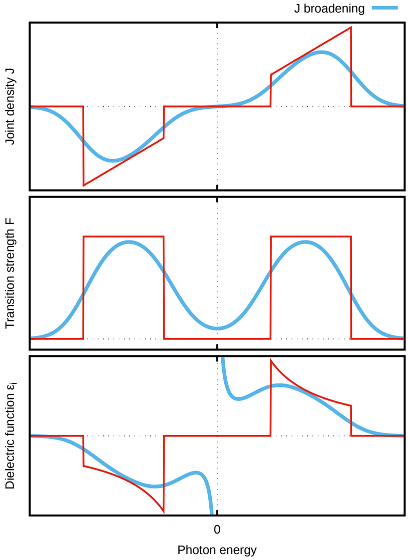


Mezipásové přechody

J rozšíření:

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

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



Mezipásové přechody

J rozšíření:

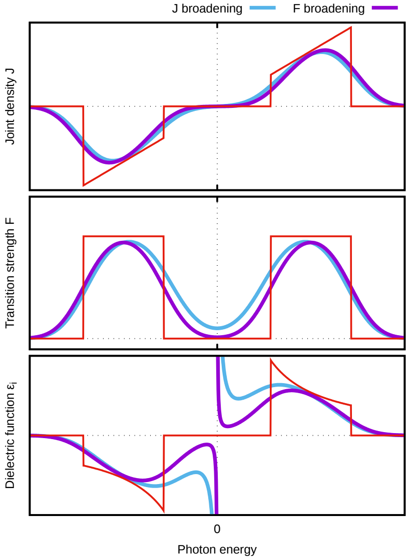
$$\varepsilon_{\mathrm{i}}(E) = \frac{1}{E^2}\beta * J(E)\,,$$

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

F rozšíření:

$$\varepsilon_{\mathrm{i}}(E) = \frac{1}{E}\beta * F(E)\,,$$

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:

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

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

F rozšíření:

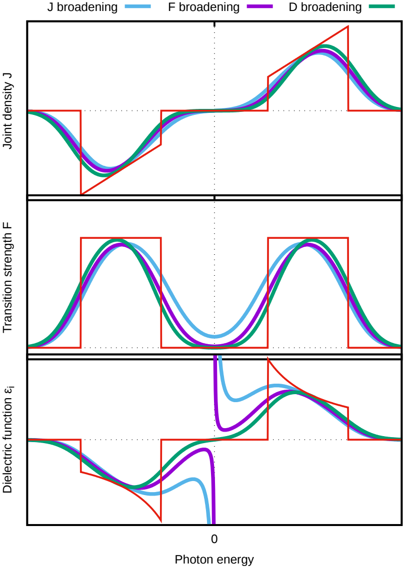
$$\varepsilon_{\mathrm{i}}(E) = \frac{1}{E}\beta * F(E)\,,$$

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

D rozšíření:

$$\varepsilon_{\mathrm{i}}(E) = \beta * D(E)\,,$$

funkci rozšíří, ale singularitu nevyrobí.

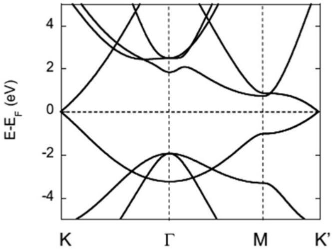


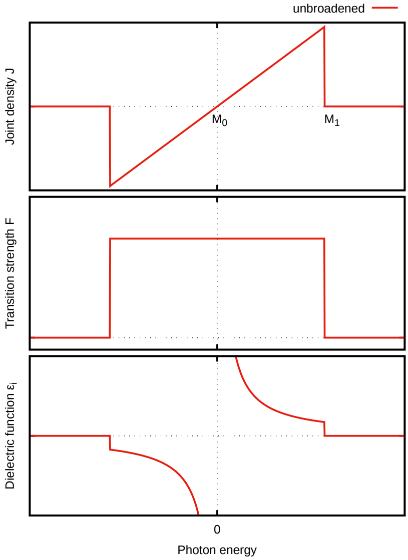
Obsah

Vnitropásové přechody

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

Pásová struktura grafenu





Vnitropásové přechody

F rozšíření:

$$\varepsilon_{\mathrm{i}}(E) = \frac{1}{E}\beta * F(E)\,,$$

D rozšíření:

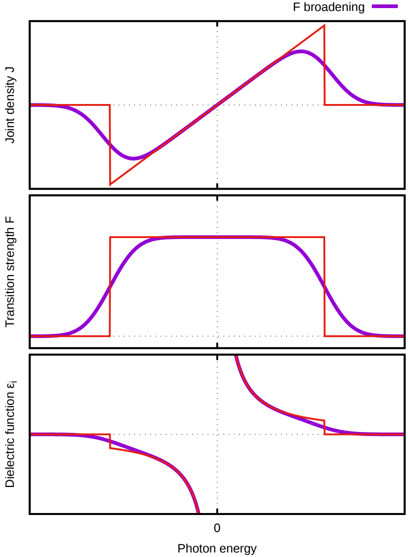
$$\varepsilon_{\mathrm{i}}(E) = \beta * D(E)\,,$$

Jestliže jsou finální a počáteční stavy blízko Fermiho energie ($E \lessapprox k_{\mathrm{B}}T$) je nutné vztah pro rozšířenou dielektrickou funkci vynásobit teplotním faktorem f_{T}:

$$f_{\mathrm{T}} = f_{\mathrm{e}}^{\mathrm{FD}}(E_i) - f_{\mathrm{e}}^{\mathrm{FD}}(E_f)$$

FT rozšíření:

$$\varepsilon_{\mathrm{i}}(E) = \frac{1}{E}\left[f_{\mathrm{e}}^{\mathrm{FD}}(-E/2) - f_{\mathrm{e}}^{\mathrm{FD}}(E/2)\right]\beta * F(E)$$



Vnitropásové přechody

F rozšíření:

$$\varepsilon_{\mathrm{i}}(E) = \frac{1}{E}\beta * F(E)\,,$$

D rozšíření:

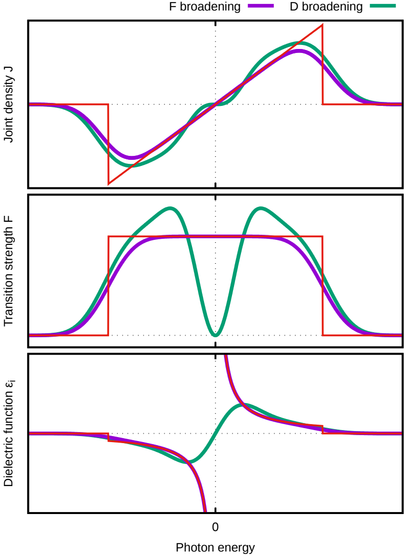
$$\varepsilon_{\mathrm{i}}(E) = \beta * D(E)\,,$$

Jestliže jsou finální a počáteční stavy blízko Fermiho energie ($E \lessapprox k_{\mathrm{B}}T$) je nutné vztah pro rozšířenou dielektrickou funkci vynásobit teplotním faktorem f_{T}:

$$f_{\mathrm{T}} = f_{\mathrm{e}}^{\mathrm{FD}}(E_i) - f_{\mathrm{e}}^{\mathrm{FD}}(E_f)$$

FT rozšíření:

$$\varepsilon_{\mathrm{i}}(E) = \frac{1}{E}\left[f_{\mathrm{e}}^{\mathrm{FD}}(-E/2) - f_{\mathrm{e}}^{\mathrm{FD}}(E/2)\right]\beta * F(E)$$



Vnitropásové přechody

F **rozšíření:**

$$\varepsilon_{\rm i}(E) = \frac{1}{E}\beta * F(E)\,,$$

D **rozšíření:**

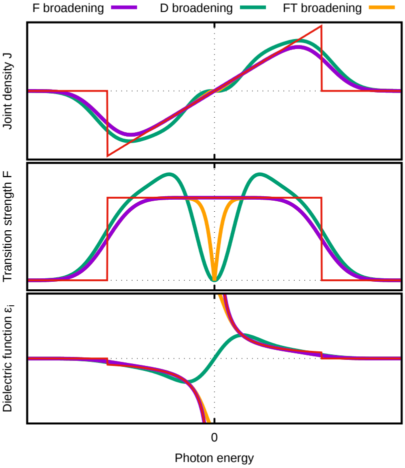
$$\varepsilon_{\rm i}(E) = \beta * D(E)\,,$$

Jestliže jsou finální a počáteční stavy blízko Fermiho energie ($E \lessapprox k_{\rm B}T$) je nutné vztah pro rozšířenou dielektrickou funkci vynásobit teplotním faktorem $f_{\rm T}$:

$$f_{\rm T} = f_{\rm e}^{\rm FD}(E_i) - f_{\rm e}^{\rm FD}(E_f)$$

FT **rozšíření:**

$$\varepsilon_{\rm i}(E) = \frac{1}{E}\left[f_{\rm e}^{\rm FD}(-E/2) - f_{\rm e}^{\rm FD}(E/2)\right]\beta * F(E)$$



Obsah

Numerický výpočet gaussovského rozšíření

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:

$$\varepsilon_{\mathrm{r}}(E) = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\varepsilon_{\mathrm{i}}(x)}{x - E} \mathrm{d}x \equiv H[\varepsilon_{\mathrm{i}}(E)] \ ,$$

kde H značí Hilbertovu transformaci.
V případě rozšíření lze prohodit pořadí integrálů (pro toto je důležitý předpoklad, že v rámci příspěvku rozšiřovací parametr B je konstantní):

$$\varepsilon_{\mathrm{r}}(E) = H[\varepsilon_{\mathrm{i}}(E)] = H[\beta * D(E)] = H[\beta] * D(E),$$

kde Hilbertova transformace gaussovky je Dawsonova funkce:

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

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

V případe F rozšíření lze provést podobný trik:

$$\varepsilon_{\mathrm{r}}(E) = H[\frac{\beta * F(E)}{E}] = \frac{1}{E}(H[\beta] * F(E)) \ .$$

Z hlediska zjednodušení zápisu můžeme zavést komplexní rozšiřovací funkce:

$$\hat{\beta} = H[\beta] + \mathrm{i}\beta$$

a pro rozšířenou dielektrickou funkci potom psát:

$$\hat{\varepsilon}(E) = \hat{\beta} * D(E)$$

nebo

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

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