

## 2. Absorptionskoeffizient

Startpunkt:  $\operatorname{div} \vec{E}(\vec{r}, t) = \frac{\rho_0(\vec{r}, t)}{\epsilon_0 \epsilon_r}$  ;  $\operatorname{div} \vec{B}(\vec{r}, t) = 0$

$$\operatorname{rot} \vec{E}(\vec{r}, t) = -\dot{\vec{B}}(\vec{r}, t) \quad , \quad \operatorname{rot} \vec{B}(\vec{r}, t) = \mu_0 \vec{j}(\vec{r}, t) + \frac{1}{c_m} \dot{\vec{E}}(\vec{r}, t)$$

Ladungsträgerdichte  $\rho_0$

Strandichte  $\vec{j} = \sigma \vec{E}$

Lichtgeschwindigkeit im Medium  $c_m = \frac{c}{n} = \frac{c}{\sqrt{\mu_r \epsilon_r \epsilon_0}}$

In Anwesenheit eines em. Feldes  $\rightarrow$  Polarisation  $\vec{P}(\vec{r}, t)$   
Magnetisierung  $\vec{M}(\vec{r}, t)$

$$\vec{D}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \vec{E}(\vec{r}, t) + \vec{P}(\vec{r}, t)$$

$$\vec{H}(\vec{r}, t) = \frac{1}{\mu_0} (\vec{B}(\vec{r}, t) - \vec{M}(\vec{r}, t))$$

Für lineare, isotrope und homogene Materialien gilt

$$\vec{D}(\omega) = \epsilon(\omega) \epsilon_0 \vec{E}(\omega)$$

$\Rightarrow$  Polarisation und elektrisches Feld sind parallel

$$\vec{P}(\omega) = \vec{D}(\omega) - \epsilon_0 \vec{E}(\omega)$$

$$= \epsilon_0 [\epsilon(\omega) - 1] \hat{E}(\omega)$$

$$\vec{p}(\omega) = \epsilon_0 \underline{\chi(\omega)} \hat{E}(\omega)$$

optische Suszeptibilität

↑  
lineare Antwortfunktion des Systems  
auf eine Störung

Propagation einer Welle durch ein ungeladenes, d.h. <sup>Medium</sup>  $\rho_0 = 0$ ,  
und  $\gamma = 0 \Rightarrow$  homogene Wellengleichung

$$\square \vec{E}(\vec{r}, t) = 0$$

Verallgemeinerung der Wellengleichung für homogene ungeladene  
elektrische Leiter, d.h.  $\rho_0 = 0$  aber  $\gamma \neq 0$

$\Rightarrow$  Telegraphengleichung

$$\square \vec{E}(\vec{r}, t) = -\mu_r \mu_0 \sigma \frac{\partial}{\partial t} \vec{E}(\vec{r}, t)$$

Aus Maxwellgl. folgt:

$$i) \quad \rho_0 = 0 \Rightarrow \operatorname{div} \vec{E} = 0$$

$$\operatorname{rot} \operatorname{rot} \vec{E}(\vec{r}, t) = \operatorname{grad}(\operatorname{div} \vec{E}(\vec{r}, t)) - \Delta \vec{E}(\vec{r}, t)$$

$$= -\Delta \vec{E}(\vec{r}, t)$$

$$ii) \quad \operatorname{rot} \operatorname{rot} \vec{E}(\vec{r}, t) = -\operatorname{rot} \vec{B}(\vec{r}, t)$$

$$= -\mu_r \mu_0 \underbrace{\sigma \vec{E}(\vec{r}, t)}_{\vec{j}(\vec{r}, t)} + \frac{1}{c_m^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E}(\vec{r}, t)$$

Gleichsetzen ergibt

$$\Delta \vec{E}(\vec{r}, t) - \frac{1}{c_m^2} \frac{\partial^2 \vec{E}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} = \mu_r \mu_0 \sigma \vec{E}(\vec{r}, t)$$

$$\square \vec{E}(\vec{r}, t) = - \text{''} \text{''}$$

Für Propagation in z-Richtung Lösungsansatz

$$\vec{E}(z, t) = \vec{E}_0 e^{i(kz - \omega t)}$$

Einsetzen in die Telegraphengleichung ergibt

$$\left( -k^2 + \frac{1}{c_m^2} \omega^2 \right) E(z, t) = -i \mu_r \mu_0 \sigma \omega E(z, t)$$

$$\Rightarrow k^2 = \frac{1}{c_m^2} \omega^2 + i \mu_r \mu_0 \sigma \omega$$

d.h. im Medium propagieren Wellen mit komplexer Wellenzahl  $k$

$$\text{Im Vakuum} \quad k = \frac{\omega}{c} \quad \text{Im Medium} \quad k = \frac{\omega}{c} n = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon'}$$

In Analogie

$$\left( \underset{\substack{\uparrow \\ \text{Realteil}}}{k'} + i \underset{\substack{\uparrow \\ \text{Imaginärteil}}}{k''} \right)^2 = \frac{\omega^2}{c^2} \left( \epsilon' + i \epsilon'' \right)$$

dielektrische Funktion

Der Realteil und Imaginärteil von  $k(\omega)$  können separiert werden

$$i) \quad \epsilon'(\omega) = \frac{c^2}{\omega^2} \left[ k'(\omega)^2 - k''(\omega)^2 \right]$$

$$\text{ii) } \epsilon''(\omega) = 2 \frac{c^2}{\omega^2} k'(\omega) k''(\omega) \quad \curvearrowright$$

damit folgt

$$\epsilon(\omega) = \frac{c^2}{\omega^2} (k' + i k'')^2$$

$$\text{aus ii) } k''(\omega) = \frac{\omega}{2cn(\omega)} \epsilon''(\omega) \quad \text{mit} \quad n(\omega) = \frac{c}{\omega} k'(\omega)$$

$$\text{aus i) } k'(\omega) = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{1}{2} (\epsilon'(\omega) + |\epsilon(\omega)|)}$$

⇒ Lösung der Telegraphengleichung als gedämpfte ebene

Welle:

$$\vec{E}(z,t) = \vec{E}_0 e^{i k(\omega) z} e^{-\lambda \omega t} - \vec{E}_0 e^{-k''(\omega) z} e^{i(k'(\omega) z - \omega t)}$$

⇒ Das Lambert-Beersche Gesetz

$$I(\omega) = |E|^2 = |E_0|^2 e^{-2k''(\omega) z}$$

mit dem Absorptionskoeffizient  $\alpha(\omega) = 2k''(\omega)$

$\alpha(\omega)$  bestimmt die Eindringtiefe des Lichts ins Medium

Der Realteil des Wellenvektors  $k'(\omega)$  bestimmt

den Brechungsindex  $n(\omega)$ . Dieser bestimmt die

Änderung der Lichtgeschwindigkeit im Medium  $c_m = \frac{c}{n}$ .

Für die meisten Materialien gilt  $\epsilon(\omega) \gg \epsilon''(\omega)$

$$\Rightarrow n(\omega) = \frac{c}{\omega} \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon'(\omega)} = \sqrt{\epsilon'(\omega)}$$

Der Brechungsindex hat in der Regel nur schwache

$\omega$ -Abhängigkeit  $\Rightarrow \alpha(\omega) = 2k''(\omega)$

$$= 2 \frac{\omega}{2c n(\omega)} \epsilon''(\omega)$$

$$\approx \frac{1}{cn} \omega \epsilon''(\omega)$$

$$\begin{aligned} \epsilon''(\omega) &= \operatorname{Im} \epsilon(\omega) = \operatorname{Im} [\chi(\omega) + 1] \\ &= \operatorname{Im} \chi(\omega) \end{aligned}$$

$$\Rightarrow \boxed{\chi(\omega) \sim \omega \operatorname{Im} \chi(\omega)}$$

Optische Suszeptibilität  $\chi(\omega)$  gibt es zu bestimmen

$$\chi(\omega) = \frac{P(\omega)}{\epsilon_0 E(\omega)}$$

mit der makroskopischen Polarisation

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = e \sum_{\vec{r}_j} \vec{r}_j \delta(\vec{r} - \vec{r}_j)$$

Dabei handelt es sich um eine Dipoldichte, die in

2. Quantisierung lautet

$$P(t) = \sum_{\vec{k}} d_{\vec{v}\vec{c}} p_{\vec{k}}(t) + c.c.$$

Dipolmatrixelement  
 $d_{\vec{v}\vec{c}} = \int d^3r \psi_{\vec{v}}^* \vec{r} \psi_{\vec{c}}$

1. Bestimmung von  $p_{\vec{k}}(t)$  über Bloch-Gleichungen

→ 2. Makroskopische Polarisation  $P(t)$

→ 3. Optische Suszeptibilität  $\chi(\omega)$

## → 4. Absorptionskoeffizient

Es gibt einen anderen Weg, um  $\chi(\omega)$  zu bestimmen

$$\chi(\omega) = \frac{j(\omega)}{\epsilon_0 \omega^2 A(\omega)}$$

folgt aus  $\vec{E} = -\dot{\vec{A}}, \quad \vec{j} = \dot{\vec{P}} \quad P(\omega) = \tilde{P} e^{i\omega t}$

$$E(\omega) = -i\omega A(\omega) \quad j(\omega) = \underline{i\omega P(\omega)}$$

$$\begin{aligned} \frac{P(\omega)}{\epsilon_0 E(\omega)} &= \frac{j(\omega)}{i\omega} \frac{1}{\epsilon_0 (-i\omega A(\omega))} \\ &= \frac{j(\omega)}{\omega^2 A(\omega)} \end{aligned}$$

makroskopische Stromdichte in 2. Quantisierung

$$\vec{j}(t) = \frac{e}{2m} \sum_{\lambda} \sum_{k, k'} (\langle \lambda k | \vec{p} - e\vec{A} | \lambda' k' \rangle \langle a_{\lambda k}^\dagger a_{\lambda' k'} \rangle + \text{c.c.})$$

2-Band-System, Dipolnäherung

$$\vec{j}(t) = \frac{2e}{m} \frac{\hbar}{i} \text{Re} \left[ \sum_{\kappa} \Gamma_{\kappa}^{vc} p_{\kappa}(t) \right] - \frac{e^2}{m} A(t) n_{\text{tot}}$$

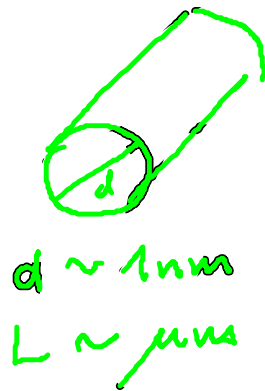
optisches Matrixelement  $\Gamma_{\kappa}^{vc} = \langle c k | \nabla | v k \rangle$

$$\Rightarrow \chi(\omega) = -i \sum_{\kappa} \frac{\text{Re} [\Gamma_{\kappa}^{vc} p_{\kappa}(\omega)]}{\epsilon_0 \omega^2 A(\omega)} \quad p = \frac{\hbar}{i} \nabla$$

wird häufig vernachlässigt

### 3. Kohlenstoff-Nanoröhren

Anwendung auf ein konkretes Beispiel der aktuellen Forschung



$\Rightarrow$  1dim Struktur

Vollständig bestimmt durch die chiralen Indizes  $(n_1, n_2)$   
Können metallisch oder halbleitend sein

$(n_1 - n_2) \bmod 3 = 0$  metallisch  
sonst halbleitend

Viele interessante Eigenschaften, wie z.B. leicht, fest, gute Wärme- und Stromleiter, Bandlücke variabel etc.

Herausforderung: CNTs (carbon nanotubes) lassen sich nicht gezielt herstellen

Unsere Motivation: Charakterisierung durch optische Eigenschaften  
(als 1d Strukturen haben sie stark ausgeprägte optische Fingerabdrücke)

Aufgabe: Bestimmung des Absorptionskoeffizienten  $\alpha(\omega)$

1. Schritt: Hamilton-Operatoren aufstellen  
 Dabei Born-Oppenheimer Näherung ausnutzen

$$H = H_0 + H_{c-f} + H_{c-c} + H_{c-ph}$$

$$H_0 = H_{0,c} + H_{0,ph} = \sum_{\underline{k}} \epsilon_{\underline{k}} a_{\underline{k}}^\dagger a_{\underline{k}} + \sum_1 \hbar \omega_1 (b_1^\dagger b_1 + \frac{1}{2})$$

Energien

$$H_{c-f} = \sum_{\underline{k}, \underline{k}'} \vec{d}_{\underline{k}, \underline{k}'} \cdot \vec{E}(\underline{r}) a_{\underline{k}}^\dagger a_{\underline{k}'}$$

↑  
optisches Matrixelement

$$H_{c-c} = \sum_{\substack{\underline{k}_1, \underline{k}_2 \\ \underline{k}_3, \underline{k}_4}} V \begin{matrix} \underline{k}_1, \underline{k}_2 \\ \underline{k}_3, \underline{k}_4 \end{matrix} a_{\underline{k}_1}^\dagger a_{\underline{k}_2}^\dagger a_{\underline{k}_3} a_{\underline{k}_4}$$

↑  
Coulomb-Matrixelement

$$H_{c-ph} = \sum_{\underline{k}, \underline{k}'} \sum_i g_{\underline{k}, \underline{k}'}^i a_{\underline{k}}^\dagger b_i a_{\underline{k}'}$$

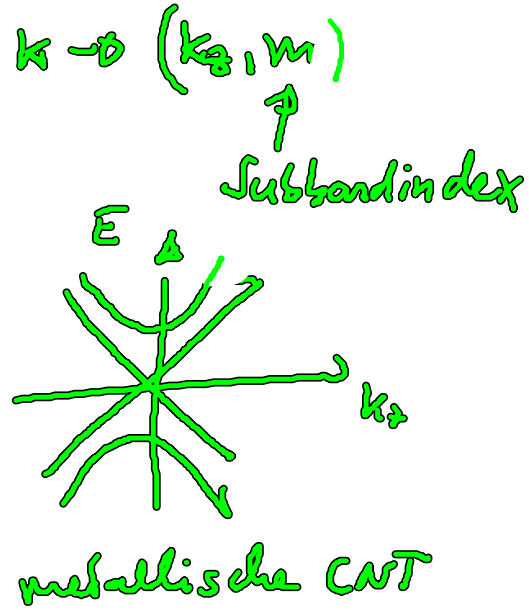
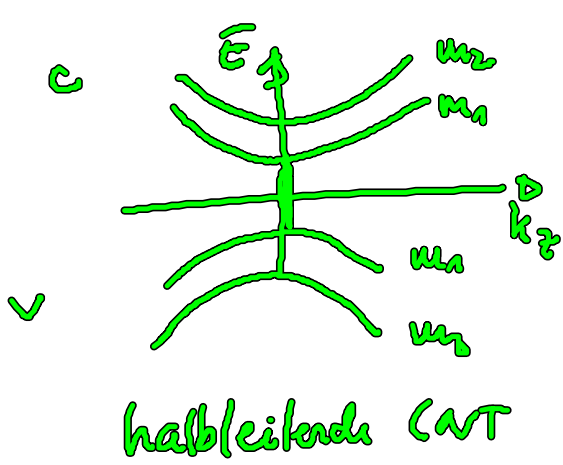
↑  
el-ph Matrix-Element

2. Schritt: Bestimmung der Energien

elektromisch: tightly binding

$$E = \pm \gamma_0 \sqrt{3 + 2 \cos(\hbar \cdot (q_1 - q_2)) + 2 \cos(\hbar q_2) + 2 \cos \hbar q_1}$$





phononisch:

Einsteinmodell bzw.

Debye Modell

ansonsten DFT-Rechnungen

### 3. Schritt: Berechnung der Matrixelemente

Elektron-Licht  $\Pi_{\mathbf{k}}^{vc} \sim \langle \psi_{\mathbf{k}}^v | \nabla | \psi_{\mathbf{k}}^c \rangle$

Coulomb  $V_{\mathbf{k}_1 \mathbf{k}_2}^{l_1 l_2} = \int d^3r \int d^3r' \psi_{\mathbf{k}_1}^{l_1} \psi_{\mathbf{k}_2}^{l_2} \frac{1}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} \psi_{\mathbf{k}_1}^{l_1} \psi_{\mathbf{k}_2}^{l_2}$

El-Phonon

$$g_{\mathbf{q}\nu}^{k''l''} = \frac{\hbar}{2m\omega_{\mathbf{q}}} \langle \psi^{i'}(\mathbf{k}+\mathbf{q}) | \frac{\partial V}{\partial u(\mathbf{q},\nu)} | \psi^{i''}(\mathbf{k}) \rangle$$

### 4. Schritt

Bestimmung der Dynamik der

Besetzungswahrscheinlichkeiten  $f_{\mathbf{k}i}^c, f_{\mathbf{k}i}^v$

und Übergangswahrscheinlichkeiten  $p_{\mathbf{k}}$

→ Bloch-Gleichungen

Heisenberg Gleichung  $i\hbar \frac{d\hat{O}}{dt} = [\hat{O}, H] + \frac{\partial \hat{O}}{\partial t}$

Formalismus der 2. Quantisierung  
Fundamentale Vertauschungsrelationen

Hartree-Fock-Level → lineare Spektren

2. Born Approximation → Streutermen, Relaxationsdynamik

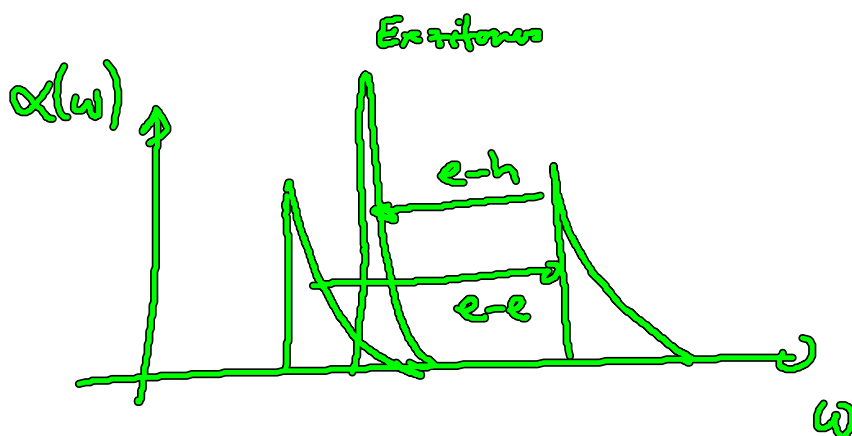
Markov Approximation?

5. Schritt: Bestimmung der optischen Suszeptibilität

$$\chi(\omega) = \frac{P(\omega)}{\epsilon_0 E(\omega)}$$

⇒ Absorptionskoeffizient  $\alpha(\omega) \sim \text{Im} \chi(\omega)$

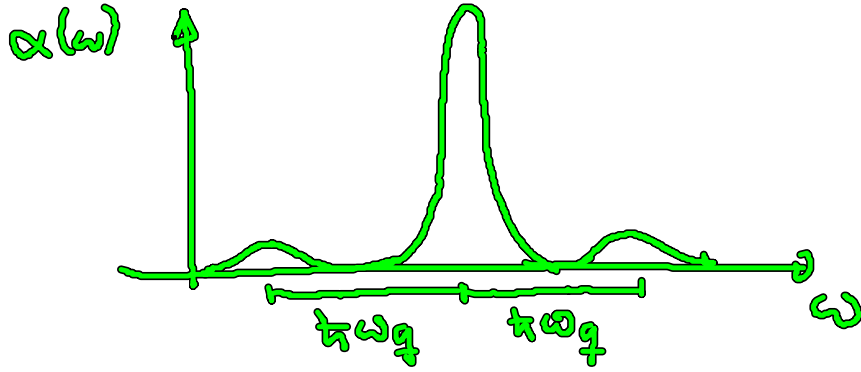
⇒ Rayleigh Streuwirkungsquerschnitt  $\sigma(\omega) \sim |\chi|^2$



$\hbar\omega_0$  - Lage der Peaks

$\hbar\omega_0$  - Höhe der Peaks

$\hbar\omega_0$  - Peakshift  
Renormierung



Phononen  $\rightarrow$   
Breite der Peaks  
Phononenenergiebanden

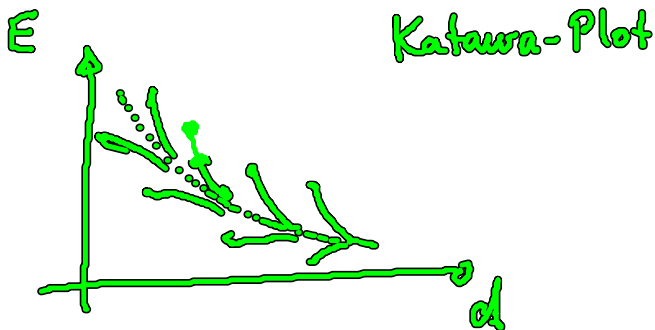
$$E = E_{gap} \pm \hbar\omega_g$$

Nicht-Markovsch

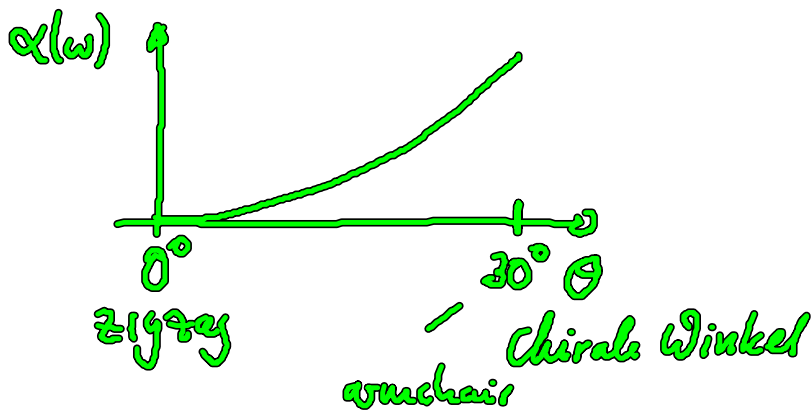


Für Charakterisierung der CNTs:

Lage der Peaks, Intensität der Peaks



$\frac{1}{d}$  Abhängigkeit



Wichtige Konzepte : Quantenteilchen  
Effektive Einteilchen-Potentiale Nicht WW-System  
Effektive Masse  $\Rightarrow$  QM + Statistik  
Born-Oppenheimer Näherung  $\rightarrow$  Separation  
des Problems  
in Teilprobleme