VII.3 Plasmonen

Plasmon: kollektive Anregung des Elektronengases (z.B. in den Bändern von Metallen):

Anregung: Licht oder schnelle Elektronen (transversal vs. longitudinale Schwingung)

(i) klassische Theorie (Motivation)

Dynamik der Elektronen

$$\underbrace{\partial_t (m \underline{v}_i)}_{\text{Impuls der Elektronen}} = \underbrace{-e \underline{E}}_{\text{Lorentzkraft (ohne Magnetfeld)}}$$

$$j(r,t) = e \frac{1}{\Delta V} \sum_i v_i \longleftarrow \text{über Elektronen in einem Mittelungsvolumen } \Delta V$$

$$\frac{\partial}{\partial t} j(\underline{r},t) = \frac{e^2}{m} \underbrace{\frac{\Delta N}{\Delta V}}_{\overset{!}{=}\, n} \underline{E}(r,t)$$

ΔN: Anzahl der Elektronen im Volumen ΔV

Die Kontinuitätsgl.

$$\nabla \cdot j = \frac{\partial \rho}{\partial t} \quad \text{außerdem} \quad \nabla \cdot \underline{E} = \frac{\rho}{\varepsilon_0}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\nabla\cdot\frac{\partial}{\partial t}\hat{j} = -\frac{e^2 n}{m}\underbrace{\nabla\cdot \underline{E}(\underline{r},t)}_{\text{Maxwell}} = -\frac{e^2 n}{m\varepsilon_0}\rho$$

$$\left\| \frac{\partial^2}{\partial t^2}\rho(\underline{r},t) = -\frac{e^2 n}{m\,\varepsilon_0}\rho \right\| \qquad \omega_{pe} = \left(\frac{e^2 n_0}{m\,\varepsilon_0}\right)^{\frac{1}{2}}$$

$\Longrightarrow$ Plasma schwingt mit ω_{pe}

(ii) Quantenmechanische Theorie

Dichteschwingungen im Fermigas

$$\rho_q = \frac{1}{\sqrt{V}}\int \underbrace{\psi^*(\underline{r},t)\,\psi(\underline{r},t)}_{\rho(\underline{r},t)}\, e^{i\underline{q}\cdot\underline{r}}\, d^3r$$

Darstellung für freie Elektronen

$$\rho_q = \frac{1}{\sqrt{V}\,V}\sum_{k,k'}\underbrace{\int e^{-i\underline{k}\cdot\underline{x}+i\underline{k}'\cdot\underline{x}+i\underline{q}\cdot\underline{x}}\,d^3x}_{V\,\delta_{-\underline{k}+\underline{k}'+q,0}}\; a^+_{\underline{k}}\, a_{\underline{k}'}$$

$$\rho_q = \frac{1}{\sqrt{V}}\sum_k a^+_{k+q}\, a_k$$

Das bedeutet für den Erwartungswert $\langle\ldots\rangle = tr(\ldots\rho)$

$$\langle\rho_q\rangle = \sum_k \langle a^+_{k+q}\, a_k\rangle$$

Dynamik brauchen wir!

Erinnerung:

$$H = H_0 + H_c \qquad H_0 = \sum_k \varepsilon_k\, a^+_k a_k$$

$$H_c = \frac{1}{2}\sum_{qkk'} V_q\, a^+_k\, a^+_{k'}\, a_{k'+q}\, a_{k-q}$$

Heisenberg Bewegungsgl.:

$$\frac{d}{dt} A = \frac{i}{\hbar}[H, A]_- \quad \Rightarrow \quad \frac{d}{dt} a^\dagger_{k+q} a_k = \frac{i}{\hbar}[H, a^\dagger_{k+q} a_k]_-$$

$$\frac{d}{dt}\langle a^\dagger_{k+q} a_k\rangle = \frac{i}{\hbar}\langle [H, a^\dagger_{k+q} a_k]_- \rangle$$

$$= \frac{i}{\hbar}\underbrace{\langle [H_0, a^\dagger_{k+q} a_k]_- \rangle}_{(a)} + \frac{i}{\hbar}\underbrace{\langle [H_c, a^\dagger_{k+q} a_k]_- \rangle}_{(b)}$$

$$(a) = \sum_{k'} \varepsilon_{k'} \langle [a^\dagger_{k'} a_{k'}, a^\dagger_{k+q} a_k]_- \rangle = \sum_{k'} \varepsilon_{k'} \Big(\langle a^\dagger_{k'} \underbrace{a_{k'} a^\dagger_{k+q}}_{\delta_{k'k+q}} a_k \rangle - \langle a^\dagger_{k+q} \underbrace{a_k a^\dagger_{k'}}_{\delta_{kk'}} a_{k'} \rangle \Big)$$

$$= \sum_{k'} \varepsilon_{k'} \Big(\delta_{k'k+q} \langle a^\dagger_{k+q} a_k \rangle - \cancel{\langle a^\dagger_{k'} a^\dagger_{k+q} a_{k'} a_k \rangle}$$
$$- \delta_{kk'} \langle a^\dagger_{k+q} a_{k'} \rangle + \cancel{\langle a^\dagger_{k+q} a^\dagger_{k'} a_k a_{k'} \rangle} \Big)$$

$$= (\varepsilon_{k+q} - \varepsilon_k) \langle a^\dagger_{k+q} a_k \rangle$$

$$(b) = \frac{1}{2} \sum_{\tilde{q}\tilde{k}'\tilde{k}} V_{\tilde{q}} \langle [a^\dagger_{\tilde{k}} a^\dagger_{\tilde{k}'} a_{\tilde{k}'+\tilde{q}} a_{\tilde{k}-\tilde{q}}, a^\dagger_{k+q} a_k]_- \rangle$$

$$= \frac{1}{2} \sum_{\tilde{q}\tilde{k}'\tilde{k}} V_{\tilde{q}} \Big(\langle a^\dagger_{\tilde{k}} a^\dagger_{\tilde{k}'} a_{\tilde{k}'+\tilde{q}} a_{\tilde{k}-\tilde{q}} a^\dagger_{k+q} a_k \rangle$$
$$- \langle a^\dagger_{k+q} a_k a^\dagger_{\tilde{k}} a^\dagger_{\tilde{k}'} a_{\tilde{k}'+\tilde{q}} a_{\tilde{k}-\tilde{q}} \rangle$$

$$= \ldots\ldots$$

$$= \sum_{q k} V_q \left(\langle a^\dagger_{k+q+\tilde q}\, a^\dagger_{\tilde k}\, a_{\tilde k+q}\, a_k \rangle - \langle a^\dagger_{k+q}\, a^\dagger_{\tilde k}\, a_{\tilde k+\tilde q}\, a_{k-\tilde q} \rangle \right)$$

Problem: Einteilchenobservable $\langle a^\dagger a \rangle$ koppelt an $\langle a^\dagger a^\dagger a a \rangle$ Zweiteilchenobservablen.

Warum: Zweiteilchenwechselwirkung bringt weitere Teilchen dazu!

Führt zu unendlicher Hierarchie!

<u>Mögliche Auflösung</u>: Approximation von Zweiteilchenobservable durch Produkt zweier Einteilchenobservablen.

<u>Hartree-Fock Faktorisierung</u> (HFA) um Hierarchie zu schließen:

$$\langle a_1^\dagger a_2^\dagger a_3 a_4 \rangle = \langle a_1^\dagger a_4 \rangle \langle a_2^\dagger a_3 \rangle - \langle a_2^\dagger a_4 \rangle \langle a_1^\dagger a_3 \rangle$$

$$(b) = \sum_{\tilde q k} V_{\tilde q} \left(\langle a^\dagger_{k+q+\tilde q} a_k \rangle \langle a^\dagger_{\tilde k} a_{\tilde k+\tilde q} \rangle - \langle a^\dagger_{k+q+\tilde q} a_{\tilde k+\tilde q} \rangle \langle a^\dagger_{\tilde k} a_k \rangle - \langle a^\dagger_{k+q} a_{k-\tilde q} \rangle \langle a^\dagger_{\tilde k} a_{\tilde k+\tilde q} \rangle + \langle a^\dagger_{k+q} a_{\tilde k+\tilde q} \rangle \langle a^\dagger_{\tilde k} a_{k-\tilde q} \rangle \right)$$

<u>Random Phase Approximation</u>

Wir nehmen jetzt nur Terme

$\langle a^\dagger_{k+q} a_k \rangle$ und $\langle a^\dagger_k a_k \rangle$ mit! $\langle a^\dagger_{k_1} a_{k_2} \rangle$ schwingt mit

Wir nehmen nur Terme mit die genauso schwingen $e^{i(\omega_{k_1}-\omega_{k_2})t}$ wie die Dichtefluktuation $\langle a^\dagger_{k+q} a_k \rangle$

Hintergrund: Wir betrachten nur Fluktuationen (klein!) der Gleichverteilung der Elektronen, d.h. $\langle a^\dagger_{k+q} a_k \rangle$ als Störung, andere Terme wären starke Abweichung.

$$(b) = \sum_{\tilde k} V_q \left(\langle a^\dagger_k a_k \rangle \cancel{\langle a^\dagger_{\tilde k} a_{\tilde k-q} \rangle}\, \langle a^\dagger_{\tilde k+q} a_{\tilde k} \rangle - \langle a^\dagger_k \cancel{a_{k-q}} \rangle \langle a^\dagger_{k} \cancel{a_{k}} \rangle \delta_{k \tilde k} \right)$$

$$- \langle a^\dagger_{k+q} a_{k+q}\rangle \langle a^\dagger_{\tilde k+q} a_{\tilde k}\rangle + \cancel{\langle a^\dagger_{k+q} a_{k+q}\rangle \langle a^\dagger_{k} a_{k+q}\rangle}$$

$$= V_q \sum_{\tilde k} \left(\langle a_k^\dagger a_k\rangle - \langle a^\dagger_{k+q} a_{k+q}\rangle\right) \langle a^\dagger_{\tilde k+q} a_{\tilde k}\rangle$$

Gesamtgleichung:

$$\frac{d}{dt}\langle a^\dagger_{k+q} a_k\rangle = \frac{i}{\hbar}\left(\varepsilon_{k+q} - \varepsilon_k\right) + \frac{i}{\hbar} V_q \left(\langle a_k^\dagger a_k\rangle - \langle a^\dagger_{k+q} a_{k+q}\rangle\right) \sum_{\tilde k} \langle a^\dagger_{\tilde k+q} a_{\tilde k}\rangle$$

Ziel: Eigenfrequenz der Plasmaschwingung:

Ansatz

$$\langle a^\dagger_{k+q} a_k\rangle(t) = e^{-i(\omega+i\eta)t} \langle a^\dagger_{k+q} a_k\rangle(0)$$

$\eta > 0$, $\eta \to 0$

Kunstgriff

$$\Rightarrow \left(-i(\omega+i\eta)\right)\langle a^\dagger_{k+q} a_k\rangle(0) = \frac{i}{\hbar}\left(\varepsilon_{k+q} - \varepsilon_k\right)\langle a^\dagger_{k+q} a_k\rangle + \frac{i}{\hbar} V_q \Big(\underbrace{\langle a_k^\dagger a_k\rangle}_{f_k} - \underbrace{\langle a^\dagger_{k+q} a_{k+q}\rangle}_{f_{k+q}}\Big) \sum_{\tilde k} \langle a^\dagger_{\tilde k+q} a_{\tilde k}\rangle$$

auflösen nach $\langle a^\dagger_{k+q} a_k\rangle$

$$\langle a^\dagger_{k+q} a_k\rangle = \frac{\frac{i}{\hbar} V_q \left(f_k - f_{k+q}\right)}{\left(-i(\omega+i\eta) + (\varepsilon_{k+q} - \varepsilon_k)\right)} \sum_{\tilde k} \langle a^\dagger_{\tilde k+q} a_{\tilde k}\rangle$$

Summiere über $\sum_k$, beachte $\sum_k \langle a^\dagger_{k+q} a_k\rangle = \rho_q$

$$\rho_q = \sum_k \frac{V_q \left(f_{k+q} - f_k\right)}{\left(\hbar(\omega+i\eta) + (\varepsilon_{k+q} - \varepsilon_k)\right)} \rho_q$$

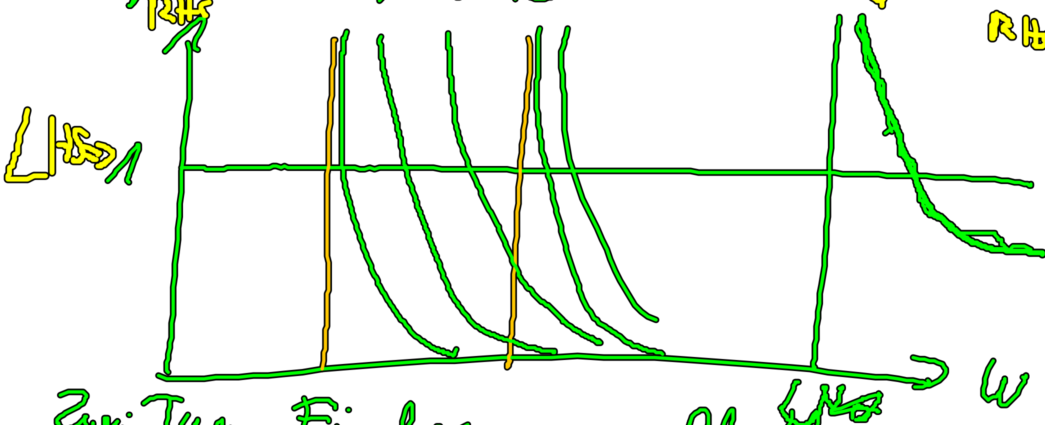
$$\Rightarrow \left\| \; 1 = V_q \sum_k \frac{\left(f_{k+q} - f_k\right)}{\hbar(\omega+i\eta) + \left(\varepsilon_{k+q} - \varepsilon_k\right)} \; \right\|$$

Bestimmungsgleichung für Plasmadispersion!

$$1 = \sum_k \frac{f_k}{\hbar}\left(\frac{1}{\omega + \varepsilon_k - \varepsilon_{k+q}} - \frac{1}{\omega + \varepsilon_{k-q} - \varepsilon_k}\right)$$

LHS RHS

Graphischer Ansatz



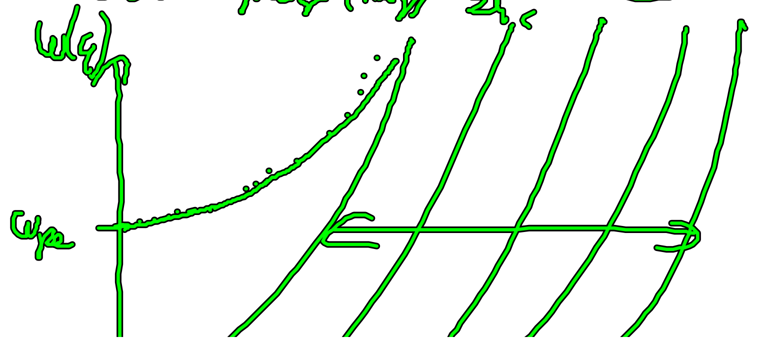
Zwei Typen Eigenfrequenzen Polstellen ungefähr [für kleine q

1) (a) $\omega \approx \hbar \varepsilon_q = \frac{1}{\hbar}(\varepsilon_{k+q} - \varepsilon_k) \approx \frac{\hbar^2}{m} k \cdot q + \frac{\hbar^2 q^2}{2m}$

(b) $\omega \approx \frac{1}{\hbar}(\varepsilon_k - \varepsilon_{k-q}) = \frac{\hbar^2}{m} k \cdot q - \frac{\hbar^2 q^2}{2m}$

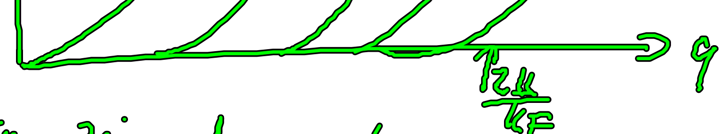
$\left(-i\left(\frac{1}{\hbar}(\varepsilon_{k+q} - \varepsilon_k) + i\eta\right)\right)\langle a^\dagger_{k+q} a_k\rangle = \frac{-1}{\hbar}(\varepsilon_{k+q} - \varepsilon_k)\langle a^\dagger_{k+q} a_k\rangle$
$+ \frac{-1}{\hbar} V_q \ldots$

Nur ein Elektronpaar trägt bei ⟵ Summe muss 0 sein für andere k



(a) $\omega_q^{max} = \frac{\hbar k_F q}{m} + \frac{\hbar^2 q^2}{2m}$

$\omega_q^{min} = -\frac{\hbar k_F q}{m} + \frac{\hbar^2 q^2}{2m}$



2) Man kann zeigen dass $\omega_p(q \to 0) = \omega_{pe}(1 + \alpha q^2)$ (kleine q)

Hier Grenzfrequenz für $q \to 0$

$$f_{k+q} - f_k = f_k + q \cdot \nabla_k f_k - f_k = -q \cdot \nabla f_k$$

$$1 = V_q \sum_k \frac{-q \cdot \nabla f_k}{\hbar(\omega + i\eta) - \hbar^2 \frac{q \cdot k}{m}} = V_q \sum_k q \cdot (\nabla_k f_k)\left(1 + q \cdot k \frac{\hbar^2}{n_0 \omega \hbar}\right)\frac{1}{\omega}$$

$$= V_q \underbrace{\sum_k f_k}_{n}\, q \cdot q \frac{1}{m_0 \omega^2} = \frac{V_q}{m\omega^2} q^2 n_0$$

$$1 = \frac{e^2}{\cancel{q^2} V \varepsilon_0} \cdot \frac{\cancel{q^2}}{m\omega^2} n_0 = \frac{e^2 n_0}{m \omega^2 \varepsilon_0} \Rightarrow \omega_{PR} = \left(\frac{e^2 n_0}{\varepsilon_0 m}\right)^{\frac{1}{2}}$$

Wir sehen $\omega(q) = \omega_{PL}$ $(q \to 0)$

Man kann zeigen mit Plasmon-Pol Näherung.

$\omega(q) = \omega_{pe}(1 + \alpha q^2)$ für kollektive Anregung

Zusammenfassung und Hinweise

1) Im Elektronengas gibt es sowohl Anregungen von Elektronenpaaren als auch kollektive Anregungen aller Elektronen (Plasmonen)

2) Es gibt es gibt viele Arten von Plasmonen (Oberflächen, longitudinal, transversal .....), Erzeugen Verhältnis selbst es.

3) Die kollektiven Anregungen zerfallen sehr schnell in Paaranregungen, Plasmonen haben in der Regel eine kurze Lebensdauer.