

2. Absorptionskoeffizient

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

$$\operatorname{rot} \vec{E}(\vec{r}, t) = -\dot{\vec{B}}(\vec{r}, t), \quad \operatorname{rot} \vec{B}(\vec{r}, t) = \mu_r \mu_0 \vec{j}(\vec{r}, t) + \frac{1}{c_m^2} \dot{\vec{E}}(\vec{r}, t)$$

Ladungsträgerdichte ρ_0

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

Lichtgeschwindigkeit im Medium $c_m = \frac{c}{n} = \frac{c}{\sqrt{\mu_r \mu_0 \epsilon_r \epsilon_0}}$

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

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

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

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

optische Suszeptibilität
 \uparrow

lineare Antwortfunktion des Systems
 auf eine Störung

Propagation einer Welle durch ein ungeladenes, d.h. $\rho_0 = 0$,
 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) $\rho_0 = 0 \Rightarrow \operatorname{div} \vec{E} = 0$

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

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

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

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

Gleichsetzen ergibt

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

$$\square \vec{E}(\vec{r}, t) = - \quad \text{---} \quad \square$$

Für Propagation in z-Richtung Lösungsansatz

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

Eingesetzt 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

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

Im 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

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

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

damit folgt

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

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

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

\Rightarrow Lösung der Telegraphengleichung als gedämpfte ebene

$$\begin{aligned} \text{Welle: } \vec{E}(z,t) &= \vec{E}_0 e^{i k(\omega) z} e^{-i \omega t} \\ &= \vec{E}_0 e^{-k''(\omega) z} e^{i(k'(\omega) z - \omega t)} \end{aligned}$$

\Rightarrow 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

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

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

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

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

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

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

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

mit der makroskopischen Polarisation

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

Dabei handelt es sich um eine Dipoldichte, die in

2. Quantisierung lautet

$$P(t) = \sum_k d_{vc} \uparrow p_k(t) + c.c$$

$$\begin{aligned} & \nearrow a_v^\dagger a_c \\ \text{Dipolmatrixelement} \\ d_{vc} &= \int d^3r \psi_v^* \psi_c \end{aligned}$$

1. Bestimmung von $p_k(t)$ 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 $\vec{E} = -\dot{\vec{A}}, \vec{j} = \dot{\vec{P}} \quad P(\omega) = P_0 e^{i\omega t}$

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

$$\frac{P(\omega)}{\epsilon_0 E(\omega)} = \frac{j(\omega)}{i\omega} \frac{1}{\epsilon_0 (-i\omega A(\omega))}$$

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

makroskopische Stromdichte in 2. Quantisierung

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

2-Band-System, Dipolnäherung

$$\vec{j}(t) = \frac{2e}{m} \frac{\hbar}{i} \operatorname{Re} \left[\sum_k^{\nu c} p_k(t) \right] - \frac{e^2}{m} A(t) n_{tot}$$

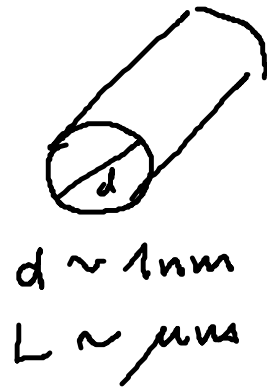
wird häufig vernachlässigt

optisches Matrixelement $\Gamma_{\nu c}^{\nu c} = \langle c k | \nabla | \nu k \rangle$

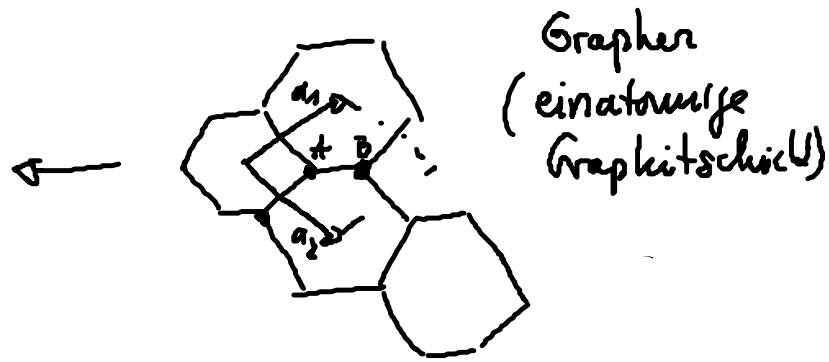
$$\Rightarrow \chi(\omega) = -i \sum_k \frac{\operatorname{Re} \left[\Gamma_{\nu c}^{\nu c} p_k(\omega) \right]}{\epsilon_0 \omega^2 A(\omega)} \quad p = \frac{\hbar}{i} \nabla$$

3. Kohlenstoff-Nanoröhren

Anwendung auf ein konkretes Beispiel der aktuellen Forschung



$d \sim 1 \text{ nm}$
 $L \sim \mu\text{m}$



Graphen
(einschichtige
Graphitschicht)

\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-Operator aufstellen
 Dabei Born-Oppenheimer Näherung ausnutzen

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

$$H_0 = H_{0,c} + H_{0,ph} = \sum_{\ell} \underbrace{\epsilon_{\ell}}_{\text{Energien}} a_{\ell}^{\dagger} a_{\ell} + \sum_i \underbrace{\hbar \omega_i}_{\text{Energien}} (b_i^{\dagger} b_i + \frac{1}{2})$$

$$H_{c-f} = \sum_{\ell \ell'} \vec{d}_{\ell \ell'} \cdot \vec{E} (-i) a_{\ell}^{\dagger} a_{\ell}$$

↑
optisches Matrixelement

$$H_{c-c} = \sum_{\substack{\ell_1 \ell_2 \\ \ell_3 \ell_4}} V \begin{matrix} \ell_1 \ell_2 \\ \ell_3 \ell_4 \end{matrix} a_{\ell_1}^{\dagger} a_{\ell_2}^{\dagger} a_{\ell_3} a_{\ell_4}$$

↑
Coulomb-Matrixelement

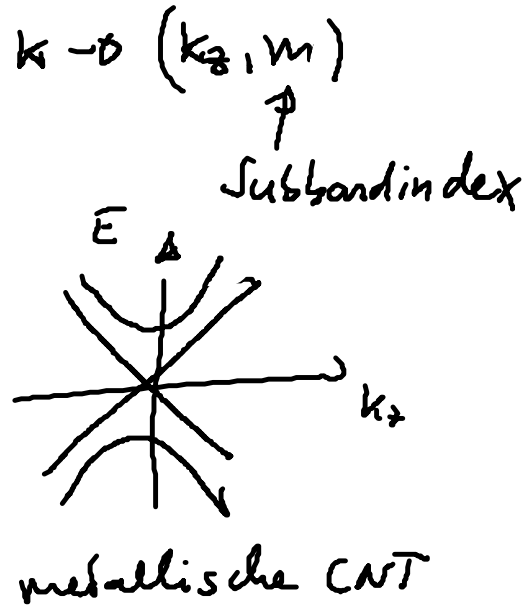
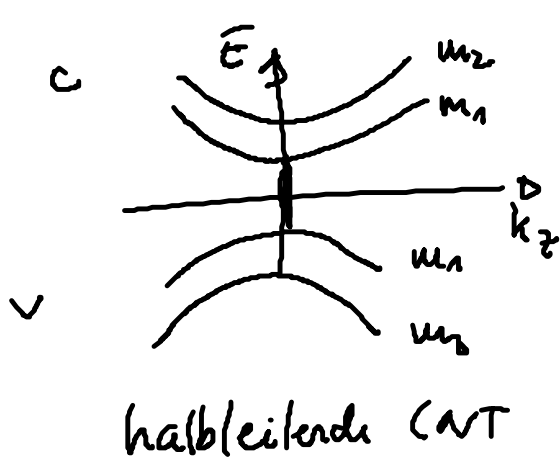
$$H_{c-ph} = \sum_{\ell \ell'} \sum_i g_{\ell \ell'}^i a_{\ell}^{\dagger} b_i a_{\ell'} + c.c.$$

↑
e(-ph) Matrix-Element

2. Schritt: Bestimmung der Energien

elektromisch: tight binding

$$E = \pm \gamma_0 \sqrt{3 + 2 \cos(\hbar \cdot (a_1 - a_2)) + 2 \cos(\hbar a_2) + 2 \cos \hbar a_1}$$



phononisch:

Einsteinmodell bzw.

Debye Modell

ansonsten DFT-Rechnungen

3. Schritt: Berechnung der Matrixelemente

Elektron-Licht $M_{\nu c}^{vc} \sim \langle \psi_{\nu}^v | \nabla | \psi_{\nu}^c \rangle$

Coulomb $V_{l_3 l_4}^{l_1 l_2} = \int d^3 r \int d^3 r' \psi_{l_1}^* \psi_{l_2}^* \frac{1}{|r-r'|} \psi_{l_3} \psi_{l_4}$

El-Phonon

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

4. Schritt

Bestimmung der Dynamik der

Besetzungswahrscheinlichkeiten $f_{k\nu}^c, f_{k\nu}^v$

und Übergangswahrscheinlichkeiten p_k

→ Bloch-Gleichungen

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

Formalismus der 2. Quantisierung
Fundamentale Vertauschungsrelationen

Hartree-Fock-Level → lineare Spektren

2. Born Approximation → Streutermen, Relaxationsdynamik

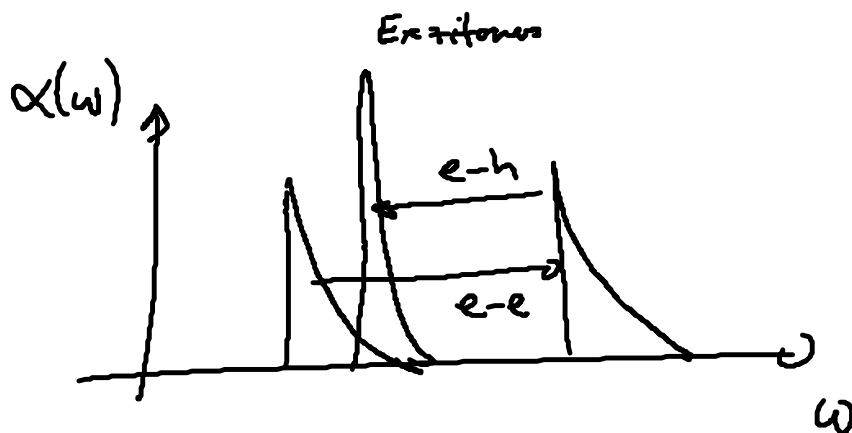
Markov Approximation?

5. Schritt: Bestimmung der optischen Suszeptibilität

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

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

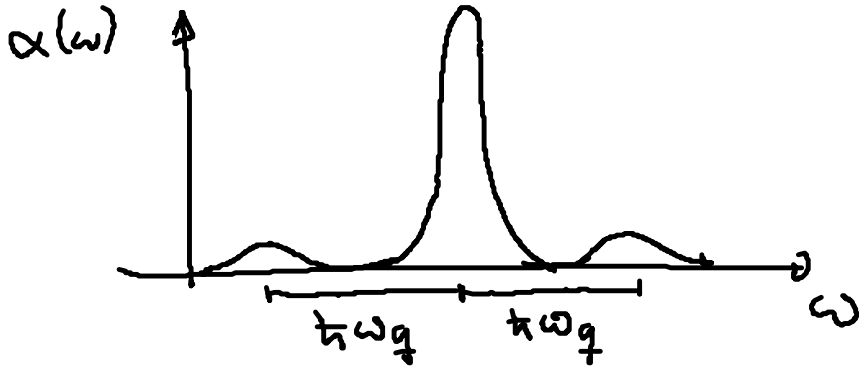
⇒ Rayleigh Streuwirkungsquerschnitt $\sigma(\omega) \sim |\chi|^2$



$\hbar\omega$ - Lage der Peaks

$\hbar c_j$ - Höhe der Peaks

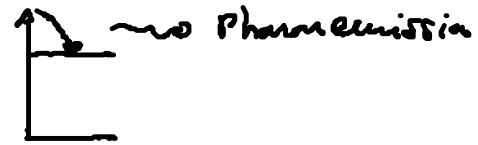
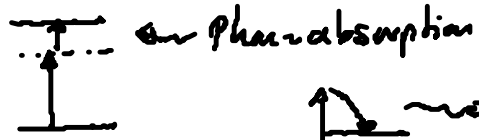
$\hbar c_c$ - Peakshift
Renormierung



Phononen \rightarrow
 Breite der Peaks
 Phononenenergiebanden

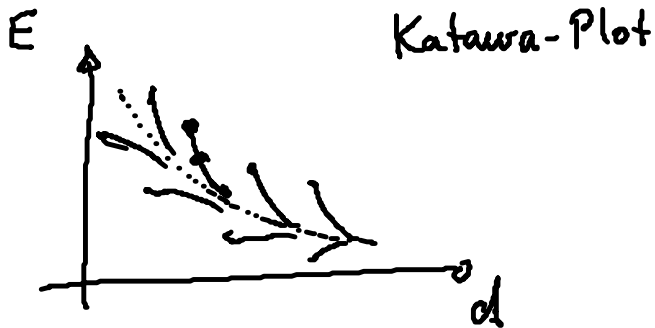
$$E = E_{gap} \pm \hbar\omega_g$$

Nicht-Markovsch

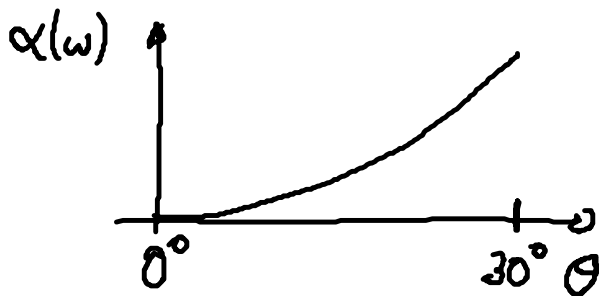


Für Charakterisierung der CNTs:

Lage der Peaks, Intensität der Peaks

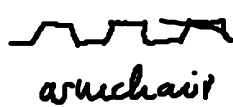
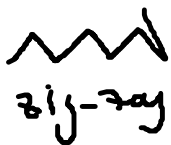


$\frac{1}{d}$ Abhängigkeit



zigzag

Chirale Winkel
 armchair



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