



Physik der Kondensierten Materie 2

Rudolf Gross

SS 2021

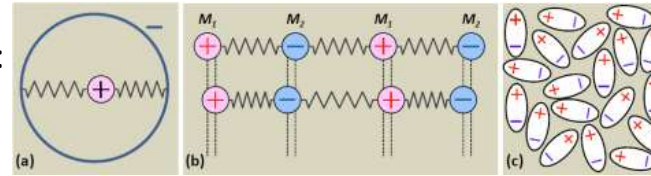
Teil 11

Vorlesungsstunde: 27.04.2021-1

• mikroskopische Theorie

- Analyse der WW zwischen FK und em-Feld auf mikroskopischer Ebene:

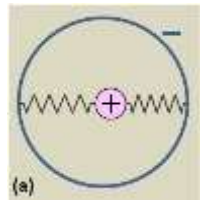
- *di-, para- und ferro-/antiferroelektrische Festkörper*
- *elektronische, ionische und Orientierungspolarisation*



• elektronische Polarisation von Isolatoren: Lorentzches Oszillatormodell

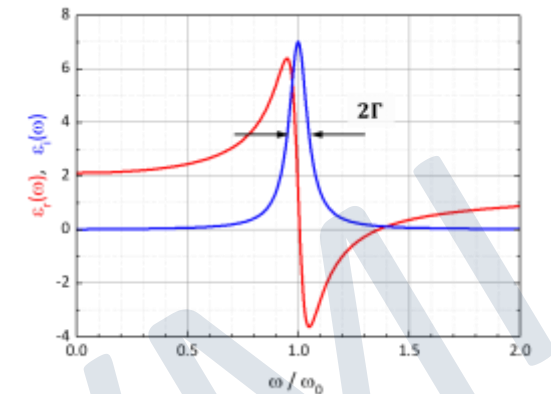
- Definition der **Polarisierbarkeit**: $\mathbf{p}_{el} = \alpha \epsilon_0 \mathbf{E}_{lok}$ oder $\mathbf{P} = n_V \alpha \epsilon_0 \mathbf{E}_{ext}$ } $\chi = n_V \alpha$ falls $E_{lok} = E_{ext}$ (z.B. für einzelnes Atom)
- Definition der **diel. Suszeptibilität**: $\mathbf{P} = \chi \epsilon_0 \mathbf{E}_{ext}$ } $\epsilon = 1 + n_V \alpha$

$$m \frac{d^2 x}{dt^2} + m\Gamma \frac{dx}{dt} + m\omega_0^2 x = (-e) E_0 e^{-i\omega t} \Rightarrow x(t) = \frac{-e}{m} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega} E_0 e^{-i\omega t} \Rightarrow p_{el} = -ex$$



$$\Rightarrow \alpha(\omega) = \frac{(-e)}{\epsilon_0 E_0} x = \frac{e^2}{\epsilon_0 m} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega}$$

$$\Rightarrow \epsilon(\omega) = 1 + \chi(\omega) = 1 + \frac{n_V e^2}{\epsilon_0 m} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega}$$



- in realem FK:

viele Frequenzen ω_{ik} , die Übergängen $|i\rangle \rightarrow |k\rangle$ zwischen elektronischen Zuständen entsprechen

→ Aufsummieren und Wichtung mit Oszillatorstärke:

$$\epsilon(\omega) = 1 + \frac{n_V e^2}{\epsilon_0 m^*} \sum_k \frac{f_{ik}}{\omega_{ik}^2 - \omega^2 - i\Gamma_{ik}\omega}$$

• Polarisierbarkeit α von Atomen

- $\mathbf{p}_{el} = \epsilon_0 \alpha \mathbf{E}_{lok}$, $\alpha \simeq a^3 \simeq 10^{24} \text{cm}^3$
mit $a = \text{Atomradius} \simeq 1 \text{\AA}$

Atom/Ion	F ⁻	Cl ⁻	He	Ne	Ar	Kr	Xe	Na ⁺	K ⁺	Rb ⁺	Cs ⁺
$\alpha (10^{-24} \text{cm}^3)$	1.2	3	0.205	0.396	1.64	2.48	4.04	0.147	0.81	1.35	2.34

• Clausius-Mossotti Beziehung

es gilt einerseits: $\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi \mathbf{E}_{\text{mak}}$

es gilt andererseits: $\mathbf{P} = n_V \epsilon_0 \alpha \mathbf{E}_{\text{lok}}$

$$P = \epsilon_0 n_V \alpha \left(E_{\text{mak}} + \frac{P}{3\epsilon_0} \right) \\ = \epsilon_0 n_V \alpha E_{\text{mak}} + \frac{\epsilon_0 n_V \alpha}{3\epsilon_0} P$$

$$\chi = \frac{n_V \alpha}{1 - \frac{1}{3} n_V \alpha}$$

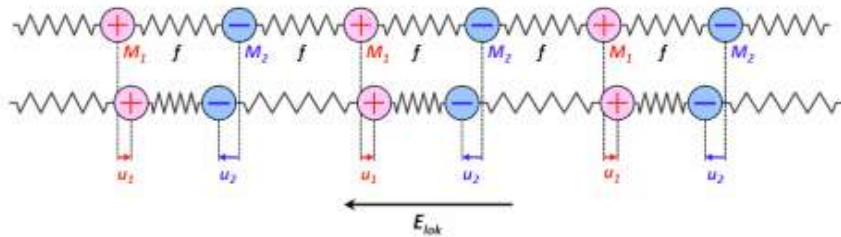
$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \frac{n_V \alpha}{1 - \frac{1}{3} n_V \alpha} \mathbf{E}_{\text{mak}}$$

Clausius-Mossotti-Beziehung

$$\frac{1}{3} n_V \alpha = \frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 2}$$

→ aus gemessenem ϵ kann Aussage über Polarisierbarkeit α der Gitteratome gemacht werden

• Ionische Polarisation



$$M_1 \frac{\partial^2 \mathbf{u}_1}{\partial t^2} + M_1 \Gamma \frac{\partial \mathbf{u}_1}{\partial t} + 2f(\mathbf{u}_2 - \mathbf{u}_1) - q\mathbf{E}_{\text{lok}} = 0$$

$$M_2 \frac{\partial^2 \mathbf{u}_2}{\partial t^2} + M_2 \Gamma \frac{\partial \mathbf{u}_2}{\partial t} + 2f(\mathbf{u}_1 - \mathbf{u}_2) + q\mathbf{E}_{\text{lok}} = 0$$

zusätzliche Rückstellkraft

$$\mu \frac{\partial^2 \mathbf{u}}{\partial t^2} + \mu \Gamma \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \mu \omega_0^2 \mathbf{u} = q\mathbf{E}_{\text{lok}}$$

reduzierte Masse $\mu = \frac{M_1 M_2}{M_1 + M_2}$ und relative Auslenkung $\mathbf{u} = \mathbf{u}_1 - \mathbf{u}_2$

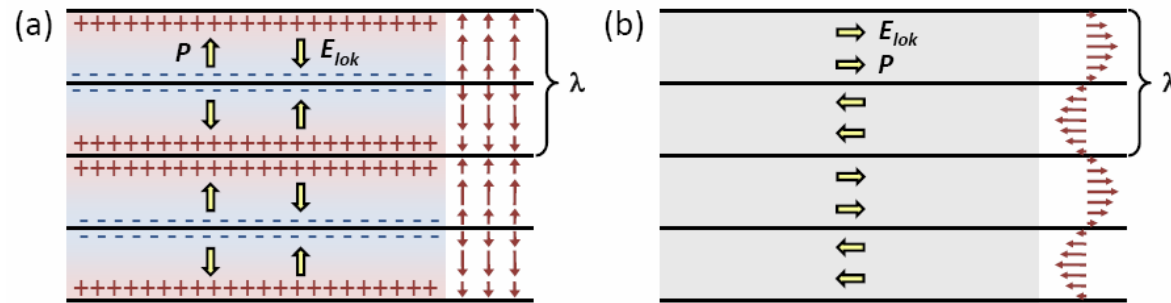
$$\omega_0 = \sqrt{2f \left(\frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2} \right)}$$

DGL von gedämpftem, getriebenen harmonischen Oszillator → Lösung wie für Lorentzches Oszillator-Modell

$$u(t) = \frac{q}{\mu} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega} E_0 e^{-i\omega t}$$

$$\mathbf{P} = \mathbf{P}_{\text{el}} + \mathbf{P}_{\text{ion}} = \underbrace{n_V \alpha_{\text{el}} \epsilon_0 \mathbf{E}_{\text{lok}}}_{\text{elektronisch}} + \underbrace{n_V q \mathbf{u}}_{\text{ionisch}}$$

• **Eigenschwingungen von Ionenkristallen ($E_{\text{ext}} = 0$)**



$$\mathbf{P} = \epsilon_0 n_V \alpha_{\text{el}} \mathbf{E}_{\text{lok}} + n_V q \mathbf{u}$$

(a) Longitudinale Schwingung ($N = 1$):

$$\mathbf{E}_{\text{lok}} = \mathbf{E}_N + \mathbf{E}_L = -2\mathbf{P}/3\epsilon_0,$$

Rückstellkraft und damit ω_L wird höher

(b) Transversale Schwingung ($N = 0$):

$$\mathbf{E}_{\text{lok}} = \mathbf{E}_N + \mathbf{E}_L = +\mathbf{P}/3\epsilon_0,$$

Rückstellkraft und damit ω_T wird niedriger

$$\omega_L = \omega_0 \sqrt{1 + \frac{\frac{2}{3} n_V \alpha_{\text{ion}}(0)}{1 + \frac{2}{3} n_V \alpha_{\text{el}}(0)}}$$

$$\omega_T = \omega_0 \sqrt{1 - \frac{\frac{1}{3} n_V \alpha_{\text{ion}}(0)}{1 - \frac{1}{3} n_V \alpha_{\text{el}}(0)}}$$

LST-Relation

$$\frac{\omega_L^2}{\omega_T^2} = \frac{\epsilon(0)}{\epsilon_{\text{stat}}}$$

Dielektrizitätskonstante für $\omega \rightarrow 0$

$$\epsilon(0) = 1 + \frac{n_V [\alpha_{\text{el}}(0) + \alpha_{\text{ion}}(0)]}{1 - \frac{1}{3} n_V [\alpha_{\text{el}}(0) + \alpha_{\text{ion}}(0)]}$$

$$\epsilon_{\text{stat}} = 1 + \frac{n_V \alpha_{\text{el}}(0)}{1 - \frac{1}{3} n_V \alpha_{\text{el}}(0)}$$

statische elektronische Dielektrizitätskonstante

($\omega \gg \omega_{\text{ion}}$ aber $\omega \ll \omega_{\text{el}}$)

→ elektronisches System verhält sich quasi „statisch“

Kapitel 11

Dielektrische Eigenschaften

WZM

11.4.2 Erzwungene Schwingungen in Ionenkristallen

- bisher: *Eigenschwingungen* von Ionenkristallen (Isolatoren)
 - $\mathbf{E}_{\text{ext}} = 0$, freie Schwingung
 - modifizierte Schwingungsfrequenzen ω_L und ω_T der optischen Phononen in Ionenkristallen durch lokale elektrische Felder

- jetzt: *Erzwungene Schwingungen* in Ionenkristallen (Isolatoren) durch äußeren Antrieb
 - $\mathbf{E}_{\text{ext}} = \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t}$, erzwungene Schwingung
 - optisches Verhalten von Ionenkristallen



11.4.2 Erzwungene Schwingungen in Ionenkristallen

- Allgemeine Eigenschaften von longitudinalen und transversalen Polarisationswellen

longitudinale Polarisationswelle

$$P_L = P_{x0} e^{i(qx - \omega t)}$$

$$\nabla \times \mathbf{P}_L = 0 \quad \text{und} \quad \nabla \cdot \mathbf{P}_L \neq 0$$

transversale Polarisationswelle

$$P_T = P_{y0} e^{i(qx - \omega t)}$$

$$\nabla \times \mathbf{P}_L \neq 0 \quad \text{und} \quad \nabla \cdot \mathbf{P}_L = 0$$

Ausbreitung der Welle in x -Richtung

- für neutrales Medium gilt $\rho = 0$

$$\Rightarrow \nabla \cdot \mathbf{D} = \rho = \epsilon(\omega) \epsilon_0 \nabla \cdot \mathbf{E} = \epsilon(\omega) \frac{\nabla \cdot \mathbf{P}}{\epsilon(\omega) - 1} = 0$$

- Folgerungen für longitudinale Schwingungen in Ionenkristallen:

- für eine longitudinale Polarisationswelle muss $\epsilon(\omega_L) = 0$ sein, da $\nabla \cdot \mathbf{P}_L \neq 0$
- eine **longitudinale Schwingungsmode kann nur für eine Eigenfrequenz ω_L existieren, für die $\epsilon(\omega_L) = 0$**
- für eine longitudinale Schwingungsmode ist \mathbf{E}_{lok} antiparallel zu \mathbf{P}
 - ➔ **keine Anregung mit transversalen elektromagnetischen Wellen möglich**
 - ➔ Anregung z.B. durch Beschuss von FK mit hochenergetischen Elektronen

11.4.2 Erzwungene Schwingungen in Ionenkristallen

- Anregung und Kopplung von transversalen optischen Gitterschwingungen an transversale em-Wellen

- Ausgangspunkt ist Wellengleichung

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \mu_0 \epsilon_0 \epsilon(\omega) \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \nabla^2 \mathbf{E} - \frac{\epsilon(\omega)}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = 0 \quad (\text{unmagnetisches Medium: } \mu = 1)$$

- Polarisation ist proportional zum lokalen elektrischen Feld, wir erwarten deshalb als Lösung ebene Wellen:

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{P}_0 e^{i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r} - \omega t)}$$

mit der Dispersionsrelation

$$\omega^2 = \frac{c^2}{\epsilon(\omega)} q^2 = \tilde{c}^2 q^2$$

- Kopplung von em-Wellen und optischen Phononen erfordert, dass Frequenz und Wellenzahlen etwa gleich sind
 - für typische Phononenfrequenzen $\omega \simeq 10^{13} \text{ s}^{-1}$ ist $k_{\text{photon}} = \frac{\omega}{c} \simeq 10^3 \text{ cm}^{-1} \ll \frac{\pi}{a} \simeq 10^8 \text{ cm}^{-1}$
 - **Beschränkung auf $q \simeq 0$ möglich**

11.4.2 Erzwungene Schwingungen in Ionenkristallen

- optisches Verhalten von Ionenkristallen für $q = 0$ (gleiche Vorgehensweise wie bei Diskussion von transversalen Eigenschwingungen)

$$\mathbf{E}_{\text{lok}} = \mathbf{E}_{\text{ext}} + \mathbf{E}_N + \mathbf{E}_L = \mathbf{E}_{\text{ext}} + \frac{1}{3\epsilon_0} \mathbf{P} \longleftarrow \mathbf{P} = \epsilon_0 n_V \alpha_{el} \mathbf{E}_{\text{lok}} + n_V q \mathbf{u} \quad \mathbf{E}_{\text{ext}} \neq \mathbf{0} \text{ (erzwungene Schwingung)}$$

– wir führen ionische Polarisierbarkeit α_{ion} ein: $\mathbf{p}_{\text{ion}} = \epsilon_0 \alpha_{\text{ion}} \mathbf{E}_{\text{lok}}$

$$\Rightarrow \mathbf{P} = \epsilon_0 n_V \alpha_{el} \mathbf{E}_{\text{lok}} + n_V \epsilon_0 \alpha_{\text{ion}} \mathbf{E}_{\text{lok}}$$

– aus DGL folgt für statischen Grenzfall $\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} \rightarrow 0$:

$$\mu \frac{\partial^2 \mathbf{u}}{\partial t^2} + \mu \Gamma \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \mu \omega_0^2 \mathbf{u} = q \mathbf{E}_{\text{lok}}$$

$$\mathbf{u} = \frac{q \mathbf{E}_{\text{lok}}}{\mu \omega_0^2} \Rightarrow \mathbf{E}_{\text{lok}} = \frac{\mu_0 \omega_0^2}{q} \mathbf{u} \quad \Rightarrow \mathbf{P} = \epsilon_0 n_V \alpha_{el} \mathbf{E}_{\text{lok}} + \frac{\mu \omega_0^2}{q} \epsilon_0 n_V \alpha_{\text{ion}}(0) \mathbf{u}$$

– Einsetzen in $\mathbf{E}_{\text{lok}} = \mathbf{E}_{\text{ext}} + \frac{1}{3\epsilon_0} \mathbf{P}$ und auflösen nach \mathbf{E}_{lok} ergibt: $\mathbf{E}_{\text{lok}} = \frac{1}{1 - \frac{1}{3} n_V \alpha_{el}} \mathbf{E}_{\text{ext}} + \frac{1}{q} \mu \omega_0^2 \frac{\frac{1}{3} n_V \alpha_{\text{ion}}(0)}{1 - \frac{1}{3} n_V \alpha_{el}} \mathbf{u}$

– Einsetzen von \mathbf{E}_{lok} in DGL ergibt:

$$\mu \frac{\partial^2 \mathbf{u}}{\partial t^2} + \mu \Gamma \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \mu \omega_0^2 \mathbf{u} = q \mathbf{E}_{\text{lok}} = \frac{q}{1 - \frac{1}{3} n_V \alpha_{el}} \mathbf{E}_{\text{ext}} + \mu \omega_0^2 \frac{\frac{1}{3} n_V \alpha_{\text{ion}}(0)}{1 + \frac{1}{3} n_V \alpha_{el}} \mathbf{u}$$

$$\mu \frac{\partial^2 \mathbf{u}}{\partial t^2} + \mu \Gamma \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \underbrace{\mu \omega_0^2 \left(1 - \frac{\frac{1}{3} n_V \alpha_{\text{ion}}(0)}{1 - \frac{1}{3} n_V \alpha_{el}} \right)}_{\omega_T^2} \mathbf{u} = \frac{q}{1 - \frac{1}{3} n_V \alpha_{el}(0)} \mathbf{E}_{\text{ext}}$$

erzwungene Schwingung: $\mathbf{E}_{\text{ext}} = \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t}$

11.4.2 Erzwungene Schwingungen in Ionenkristallen

– DGL hat Lösung:
$$\mathbf{u}(t) = \frac{q}{m} \frac{1}{1 - \frac{1}{3}n_V\alpha_{el}(0)} \frac{1}{\omega_T^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega} \mathbf{E}_{ext}$$

– mit $\mathbf{P}_{ion} = n_V q \mathbf{u}$ und dem allgemeinen Zusammenhang $\mathbf{P}_{ion} = \epsilon_0 \chi_{ion} \mathbf{E}_{ext}$ folgt:

$$\chi_{ion} = \frac{n_V q |\mathbf{u}|}{\epsilon_0 |\mathbf{E}_{ext}|} = \frac{n_V q^2}{\epsilon_0 \mu} \frac{1}{1 - \frac{1}{3}n_V\alpha_{el}(0)} \frac{1}{\omega_T^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega}$$

– wir benutzen den statischen Wert

$$\chi_{ion}(0) = \frac{n_V q^2}{\epsilon_0 \mu} \frac{1}{1 - \frac{1}{3}n_V\alpha_{el}(0)} \frac{1}{\omega_T^2} \quad \Rightarrow \quad \chi_{ion}(\omega) = \chi_{ion}(0) \frac{\omega_T^2}{\omega_T^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega}$$

– **gesamte dielektrische Funktion:**
$$\epsilon(\omega) = 1 + \chi_{el}(\omega) + \chi_{ion}(\omega) = 1 + \chi_{el}(\omega) + \chi_{ion}(0) \frac{\omega_T^2}{\omega_T^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega}$$

– mit $\epsilon(0) = 1 + \chi_{el}(0) + \chi_{ion}(0) = \epsilon_{stat} + \chi_{ion}(0)$ folgt $\chi_{ion}(0) = \epsilon(0) - \epsilon_{stat}$ erhalten wir

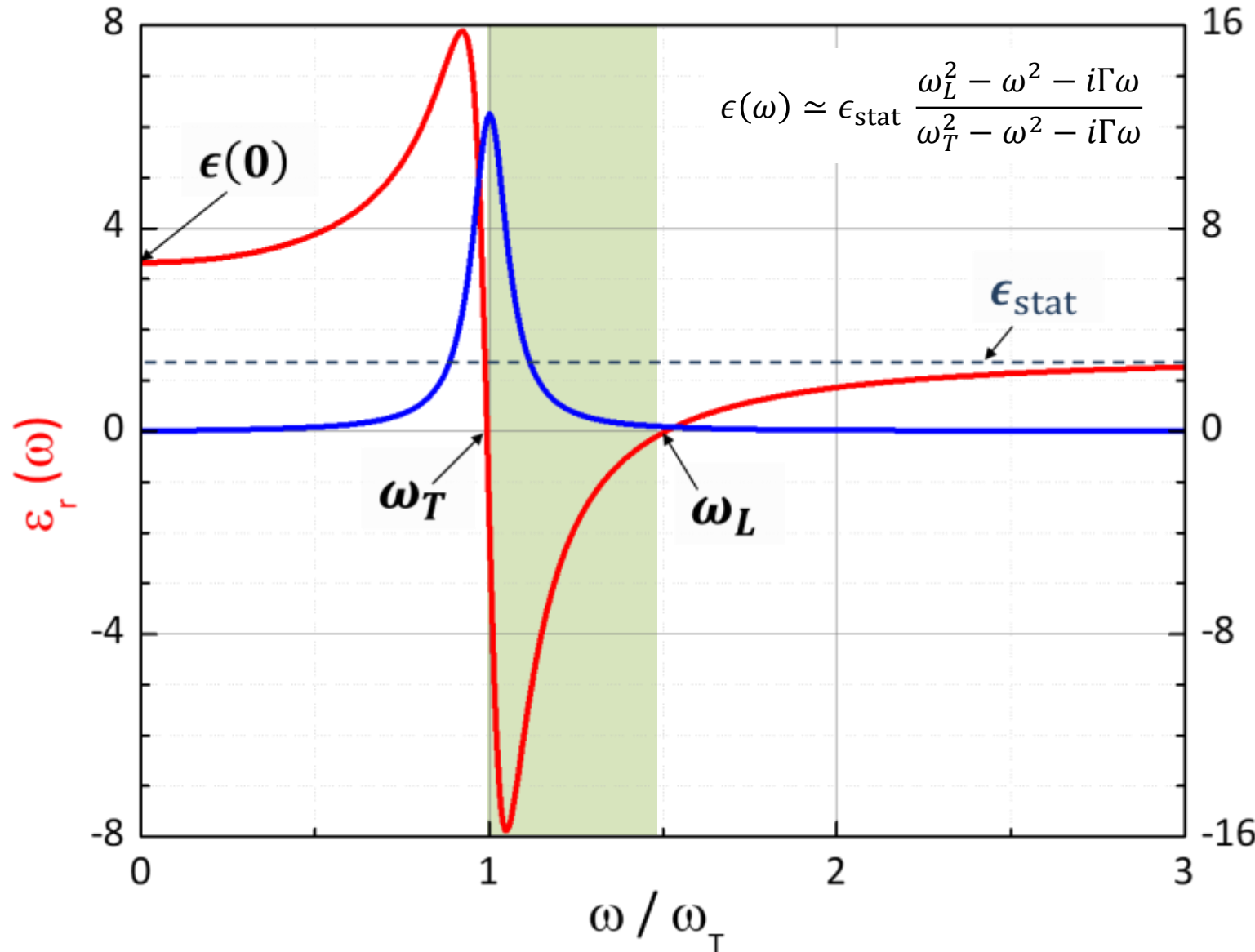
$$\Rightarrow \epsilon(\omega) = 1 + \chi_{el}(\omega) + \chi_{ion}(\omega) \simeq \epsilon_{stat} + \chi_{ion}(0) \frac{\omega_T^2}{\omega_T^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega} \simeq \epsilon_{stat} + [\epsilon(0) - \epsilon_{stat}] \frac{\omega_T^2}{\omega_T^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega}$$

$$\Rightarrow \epsilon(\omega) \simeq \epsilon_{stat} \frac{\omega_L^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega}{\omega_T^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega}$$

LST:
$$\frac{\omega_L^2}{\omega_T^2} = \frac{\epsilon(0)}{\epsilon_{stat}} \Rightarrow \epsilon(0) = \epsilon_{stat} \frac{\omega_L^2}{\omega_T^2}$$

11.4.2 Erzwungene Schwingungen in Ionenkristallen

- dielektrische Funktion von Ionenkristall für $q = 0$



Singularität bei $\omega = \omega_T$
(transversale Eigenschwingung)

Nullstelle für $\omega = \omega_L$
(longitudinale Eigenschwingung,
nur möglich für $\epsilon(\omega) = 0$)

$$\omega_T = \omega_0 \sqrt{1 - \frac{\frac{1}{3} n_V \alpha_{\text{ion}}(0)}{1 - \frac{1}{3} n_V \alpha_{\text{el}}(0)}}$$

$$\omega_L = \omega_0 \sqrt{1 + \frac{\frac{2}{3} n_V \alpha_{\text{ion}}(0)}{1 + \frac{2}{3} n_V \alpha_{\text{el}}(0)}}$$

11.4.2 Erzwungene Schwingungen in Ionenkristallen

- optisches Verhalten von Ionenkristall für $q = 0$

Es gilt:

$$\tilde{n} = n + i\kappa = \sqrt{\tilde{\epsilon}}$$

$$n^2 - \kappa^2 = \epsilon_r, \quad 2n\kappa = \epsilon_i$$

Annahme:

$$\tilde{\epsilon} = \epsilon_r + i\epsilon_i \approx \epsilon_r$$

$\epsilon_r < 0$ für $\omega_T < \omega < \omega_L$

$$\rightarrow n = 0$$

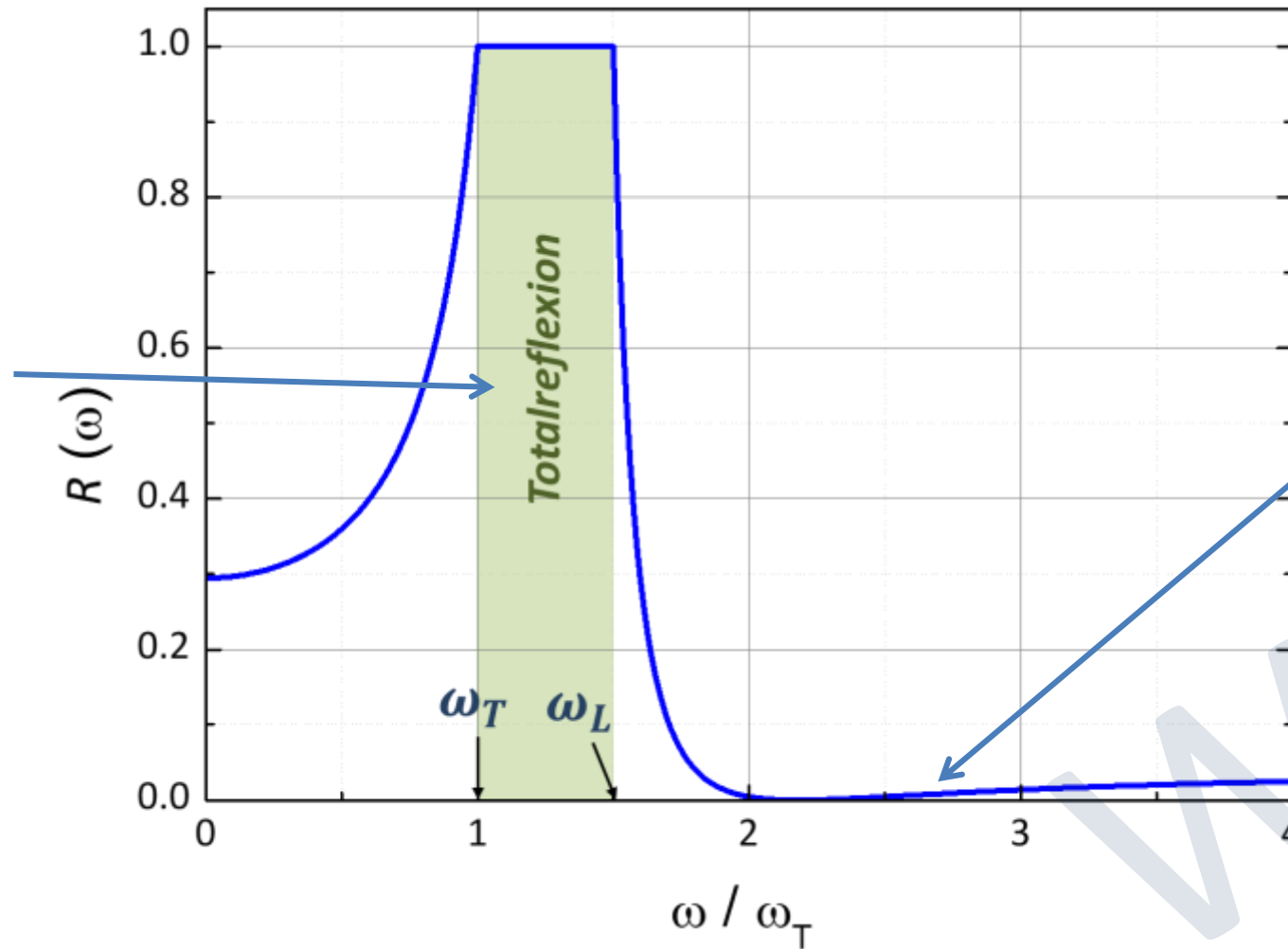
$$\rightarrow \kappa = \sqrt{|\epsilon_r|}$$

$$R = \frac{(n-1)^2 + \kappa^2}{(n+1)^2 + \kappa^2} = 1$$

Totalreflexion

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t} e^{-\sqrt{|\epsilon_r|} \frac{\omega}{c} t}$$

Welle kann sich in FK nicht ausbreiten!



$\epsilon_r > 0$ für $\omega > \omega_L$

$$\rightarrow n = \sqrt{\epsilon_r}$$

$$\rightarrow \kappa \approx 0$$

$$R = \frac{(n-1)^2 + \kappa^2}{(n+1)^2 + \kappa^2} < 1$$

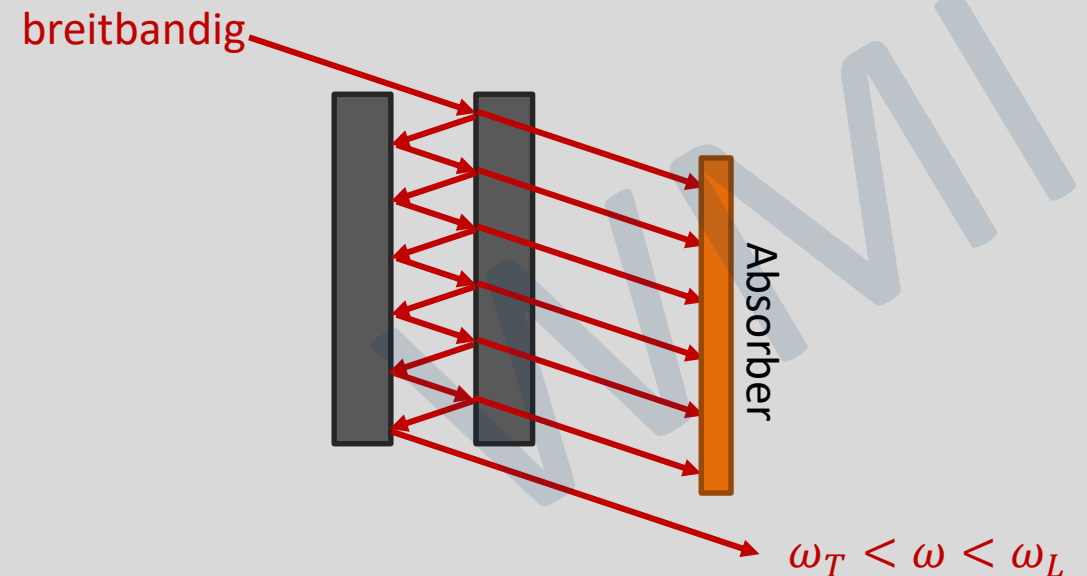
11.4.2 Erzwungene Schwingungen in Ionenkristallen

Material	$\epsilon(0)$	ϵ_{stat}	ω_T (10^{13} Hz)	ω_L (10^{13} Hz)
LiF	8.9	1.9	5.8	12
NaF	5.1	1.7	4.5	7.8
KF	5.5	1.5	3.6	6.1
LiCl	12.0	2.7	3.6	7.5
NaCl	5.9	2.25	3.1	5.0
KCl	4.85	2.1	2.7	4.0
LiBr	13.2	3.2	3.0	6.1
NaBr	6.4	2.6	2.5	3.9
KI	5.1	2.7	1.9	2.6
MgO	9.8	2.95	7.5	14
GaAs	12.9	10.9	5.1	5.5
InAs	14.9	12.3	4.1	4.5
GaP	10.7	8.5	6.9	7.6
InP	12.4	9.6	5.7	6.5
C	5.5	5.5	25.1	25.1
Si	11.7	11.7	9.9	9.9
Ge	15.8	15.8	5.7	5.7

Experimentelle Bestimmung:

- $\epsilon(0)$: Plattenkondensator
- ω_T : Absorptionsspektren
- ϵ_{stat} : Messung des Brechungsindex
- ω_L : berechnet mit LST-Relation
(oder Messung mit inel. Neutronenstreuung)

Anwendung: Bandpassfilter im Infraroten



11.4.2 Erzwungene Schwingungen in Ionenkristallen

- optisches Verhalten von Ionenkristall für $q > 0$: Polaritonen

- transversale elektromagnetische Wellen können transversale optische Phononen anregen, falls q und ω passen
 - Bisher: Beschränkung auf $q = 0$, da Impuls der Photonen sehr klein ist
 - Jetzt: Diskussion von $q > 0$, aber Beschränkung auf sehr kleine $q \ll \pi/a$
- Verwendung von allgemeiner Dispersionsrelation für elektromagnetische Wellen

$$\left. \begin{array}{l} q^2 = \frac{1}{c^2} \omega^2 = \frac{\epsilon(\omega)}{c^2} \omega^2 \\ \text{und } \epsilon(\omega, q = 0) \\ \epsilon(\omega) \simeq \epsilon_{\text{stat}} \frac{\omega_L^2 - \omega^2}{\omega_T^2 - \omega^2} \end{array} \right\} \Rightarrow q^2 = \frac{\epsilon_{\text{stat}}}{c^2} \frac{\omega_L^2 - \omega^2}{\omega_T^2 - \omega^2} \omega^2$$

Dispersionsrelation von em-Wellen in Ionenkristallen

- photonen-artige Bereiche ($\omega \propto q$) für

i. $\omega \ll \omega_T$: $\Rightarrow q^2 = \frac{\epsilon_{\text{stat}}}{c^2} \frac{\omega_L^2}{\omega_T^2} \omega^2$

ii. $\omega \gg \omega_L$: $\Rightarrow \omega = \frac{c}{\sqrt{\epsilon_{\text{stat}}}} q$

$$\frac{\omega_L^2}{\omega_T^2} = \frac{\epsilon(0)}{\epsilon_{\text{stat}}}$$

LST-Relation

$$\omega = \frac{c}{\sqrt{\epsilon(0)}} q$$

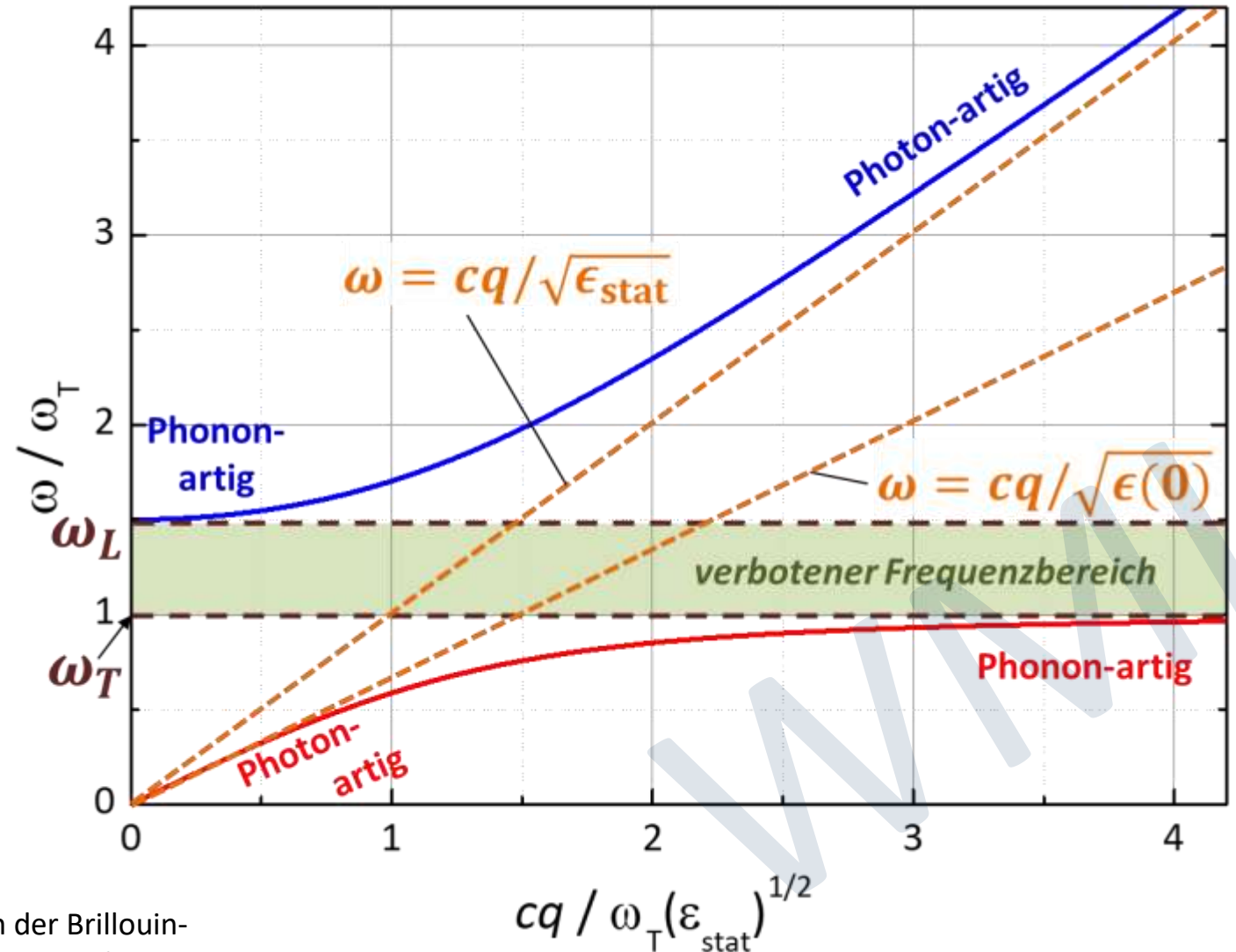
\Rightarrow Dispersionsrelationen für Photonen mit unterschiedlichen Ausbreitungsgeschwindigkeiten

11.4.2 Erzwungene Schwingungen in Ionenkristallen

- optisches Verhalten von Ionenkristall für $q > 0$: Polaritonen

- im Bereich, in dem Wellenvektor und Frequenz von Photonen und Phononen übereinstimmen entsteht starke Kopplung von Photon und Phonon (Hybridisierung)
- neue quantisierte Anregung:

Polariton

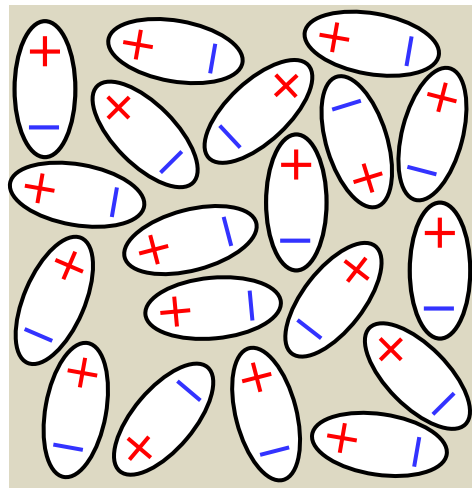


Hinweis:

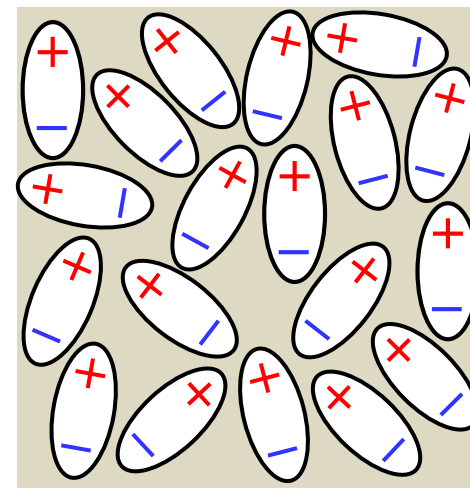
die Dispersion ist nur für sehr kleine Wellenvektoren im Zentrum der Brillouin-Zone gezeigt. Dort verläuft die Dispersion der Phononen quasi horizontal.

11.5 Orientierungspolarisation

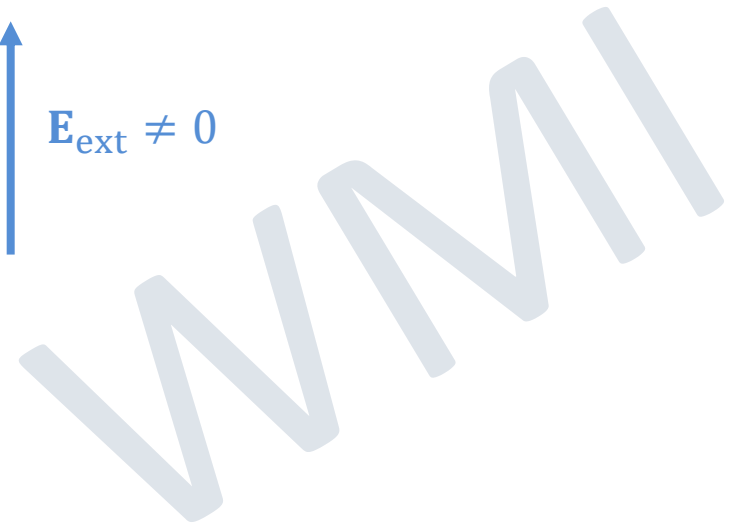
- Dielektrische Eigenschaften von Kristallen mit bereits vorhandenen elektrischen Dipolen
 - Ausrichtung der Dipole in angelegtem elektrischem Feld \mathbf{E}_{ext} → **Orientierungspolarisation**
 - thermische Energie wirkt Ausrichtung entgegen: **Wie groß ist Ausrichtung im statistischen Mittel?**
 - Analogon zum Paramagnetismus (Ausrichtung von bereits vorhandenen magnetischen Dipolen durch \mathbf{H}_{ext})



$$\mathbf{E}_{\text{ext}} = 0$$



$$\mathbf{E}_{\text{ext}} \neq 0$$



11.5.1 Statische Orientierungspolarisation

- **Statistische Physik: Wie groß ist mittlere Ausrichtung der elektrischen Dipole durch \mathbf{E}_{ext} ?**

- **Relevante Energien:**

- potentielle Energie von elektrischem Dipol in \mathbf{E}_{ext} :

$$E_{\text{pot}} = -\mathbf{p}_{\text{dip}} \cdot \mathbf{E}_{\text{ext}} = -p_{\text{dip}} E_{\text{ext}} \cos \theta$$

- thermische Energie:

$$E_{\text{th}} = k_B T$$

- **Annahmen:**

- $p_{\text{dip}} E_{\text{ext}} \ll k_B T$

→ geringe Ausrichtung von Dipolen → $E_{\text{lok}} \simeq E_{\text{ext}}$

- klassische Behandlung

→ klassische Dipole können jede beliebige Orientierung einnehmen

- **Statistik:**

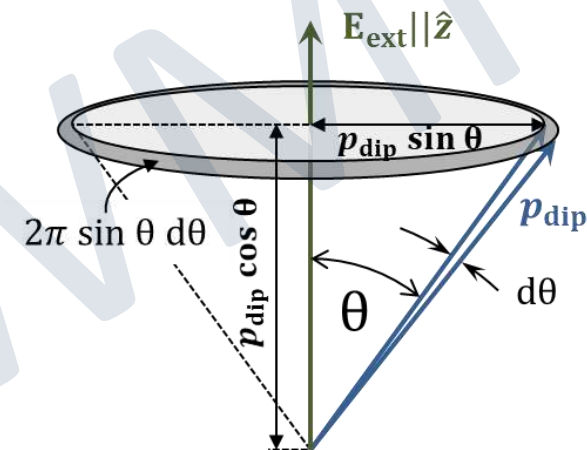
- $E_{\text{ext}} \parallel \hat{\mathbf{z}}$

- mittleres Dipolmoment in z-Richtung:

$$\langle p_{\text{dip},z} \rangle = \frac{1}{4\pi} \int p_{\text{dip}} \cos \theta p_{\theta} d\Omega$$

Wahrscheinlichkeit, das Dipolmoment im Winkelbereich zwischen θ und $\theta + d\theta$ zu finden

$$p_{\theta} = \frac{\exp(p_{\text{dip}} E_{\text{ext}} \cos \theta / k_B T)}{\frac{1}{4\pi} \int \exp(p_{\text{dip}} E_{\text{ext}} \cos \theta / k_B T) d\Omega}$$



11.5.1 Statische Orientierungspolarisation

- Berechnung von $\langle p_{\text{dip},z} \rangle$

$$\langle p_{\text{dip},z} \rangle = \frac{1}{4\pi} \int p_{\text{dip}} \cos \theta \frac{\exp(p_{\text{dip}} E_{\text{ext}} \cos \theta / k_B T)}{\frac{1}{4\pi} \int \exp(p_{\text{dip}} E_{\text{ext}} \cos \theta / k_B T) d\Omega} d\Omega$$

- wir benutzen Abkürzung: $d\alpha_\theta = \frac{1}{4\pi} 2\pi \sin \theta d\theta \exp(p_{\text{dip}} E_{\text{ext}} \cos \theta / k_B T)$
 $d\alpha_\theta = \frac{1}{2} \sin \theta \exp(p_{\text{dip}} E_{\text{ext}} \cos \theta / k_B T) d\theta$

$$\Rightarrow \langle p_{\text{dip},z} \rangle = \frac{\int_0^\pi p_{\text{dip}} \cos \theta d\alpha_\theta}{\int_0^\pi d\alpha_\theta}$$

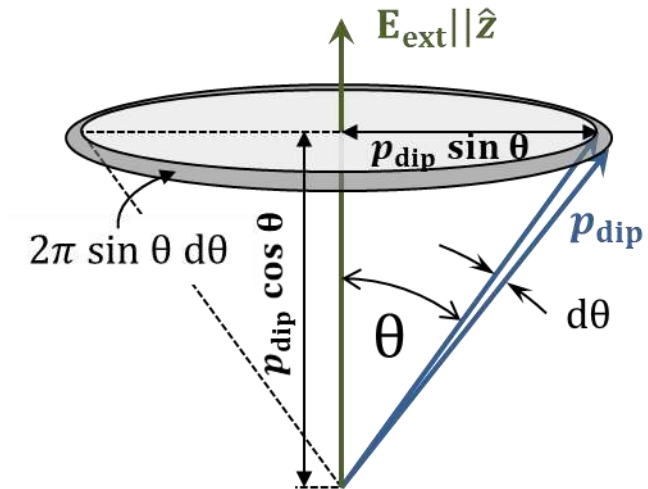
- wir benutzen die Substitutionen: $y = p_{\text{dip}} E_{\text{ext}} / k_B T$ und $x = \cos \theta$, $dx = -\sin \theta d\theta$

$$\Rightarrow \langle p_{\text{dip},z} \rangle = p_{\text{dip}} \frac{\int_{-1}^{+1} x e^{xy} dx}{\int_{-1}^{+1} e^{xy} dx}$$

$$\frac{\langle p_{\text{dip},z} \rangle}{p_{\text{dip}}} = \coth y - \frac{1}{y} = \mathcal{L}(y) = \coth \left(\frac{p_{\text{dip}} E_{\text{ext}}}{k_B T} \right) - \frac{k_B T}{p_{\text{dip}} E_{\text{ext}}}$$

- Näherung für $p_{\text{dip}} E_{\text{ext}} \ll k_B T$: $\coth y \simeq \frac{1}{y} + \frac{y}{3}$:

$$\frac{\langle p_{\text{dip},z} \rangle}{p_{\text{dip}}} \simeq \frac{y}{3} = \frac{p_{\text{dip}} E_{\text{ext}}}{3k_B T}$$



Langevin-Funktion

11.5.1 Statische Orientierungspolarisation

- Dielektrische Suszeptibilität ($p_{\text{dip}} E_{\text{ext}} \ll k_B T$)

$$\frac{\langle p_{\text{dip},z} \rangle}{p_{\text{dip}}} \simeq \frac{p_{\text{dip}} E_{\text{ext}}}{3k_B T}$$

– es gilt: $P_{\text{dip}} = \epsilon_0 \chi_{\text{dip}} E_{\text{ext}} = n_V \langle p_{\text{dip},z} \rangle$

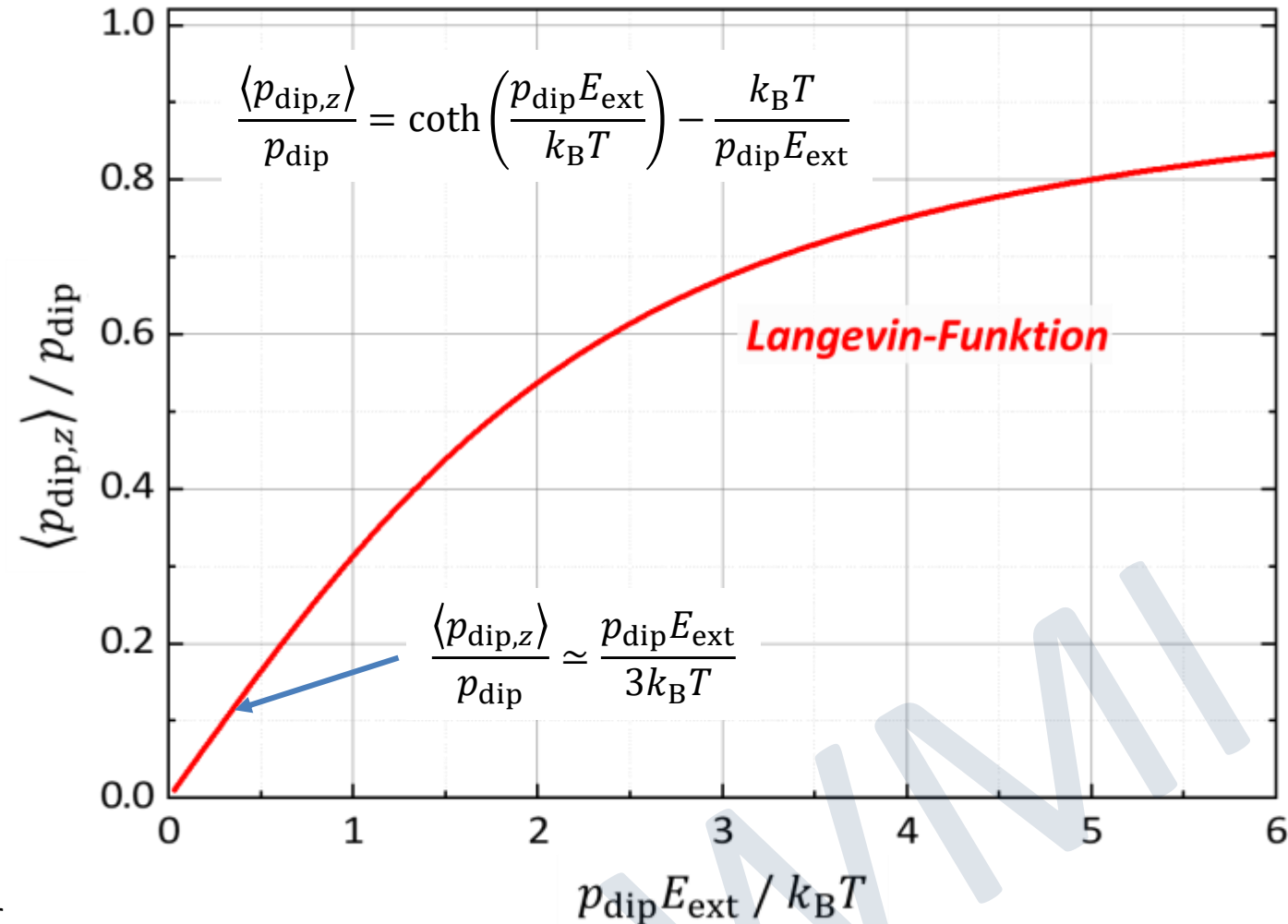
$$\rightarrow \chi_{\text{dip}} = \frac{n_V \langle p_{\text{dip},z} \rangle}{\epsilon_0 E_{\text{ext}}}$$

$$\chi_{\text{dip}} = \frac{n_V p_{\text{dip}}^2}{3\epsilon_0 k_B T} = \frac{C}{T}$$

Curie-Gesetz

$$C = \frac{n_V p_{\text{dip}}^2}{3\epsilon_0 k_B}$$

Curie-Konstante



Hinweis 1: Ausdruck für χ_{dip} entspricht dem Curieschen Gesetz für die magnetische Suszeptibilität von paramagnetischen Substanzen

Hinweis 2: falls die elektrischen Dipole nur zwei Einstellmöglichkeiten hinsichtlich der durch \mathbf{E}_{ext} vorgegebenen Achse hätten (Beispiel: Spin- $\frac{1}{2}$ System in \mathbf{H}_{ext} : Paramagnetismus), würden wir $C = n_V p_{\text{dip}}^2 / \epsilon_0 k_B$ erhalten, also ein nur um den Faktor 3 unterschiedliches Ergebnis

11.5.2 Frequenzabhängigkeit der Orientierungspolarisation

- Beschreibung der Frequenzabhängigkeit mit einfachem Relaxationsmodell

- durch $\mathbf{E}_{\text{ext}}(t) = \mathbf{E}_{\text{ext}}(0)e^{-i\omega t}$ erzeugte mittlere Polarisationsamplitude $\mathbf{P}_{\text{dip}}(\omega) = n_V \langle p_{\text{dip},z}(\omega) \rangle \hat{\mathbf{E}}_{\text{ext}}$ relaxiert mit charakteristischer Zeit τ gegen Wert $\mathbf{P}_{\text{dip}}(0)e^{-i\omega t}$, den wir für $\tau = 0$ erhalten würden

$$\frac{d\mathbf{P}_{\text{dip}}}{dt} = -\frac{\mathbf{P}_{\text{dip}}(\omega) - \mathbf{P}_{\text{dip}}(0)e^{-i\omega t}}{\tau}$$

Beispiel: Einschalten von $\mathbf{E}_{\text{ext}}(0)$ bei $t = 0$

$$\mathbf{P}_{\text{dip}}(t) = \mathbf{P}_{\text{dip}}(0)[1 - e^{-t/\tau}]$$

- Ansatz:**

$$\mathbf{P}_{\text{dip}}(\omega) = \epsilon_0 [\chi_{\text{dip}}^r(\omega) + i\chi_{\text{dip}}^i(\omega)] \mathbf{E}_{\text{ext}}(0)e^{-i\omega t}$$

$$\mathbf{P}_{\text{dip}}(0) = \epsilon_0 \chi_{\text{dip}}(0) \mathbf{E}_{\text{ext}}(0)$$

- Lösung:**

$$-i\omega [\chi_{\text{dip}}^r(\omega) + i\chi_{\text{dip}}^i(\omega)] = \frac{\chi_{\text{dip}}(0) - [\chi_{\text{dip}}^r(\omega) + i\chi_{\text{dip}}^i(\omega)]}{\tau}$$

- Real- und Imaginärteil:**

$$\chi_{\text{dip}}^r(\omega) = \frac{1}{1 + \omega^2\tau^2} \chi_{\text{dip}}(0)$$

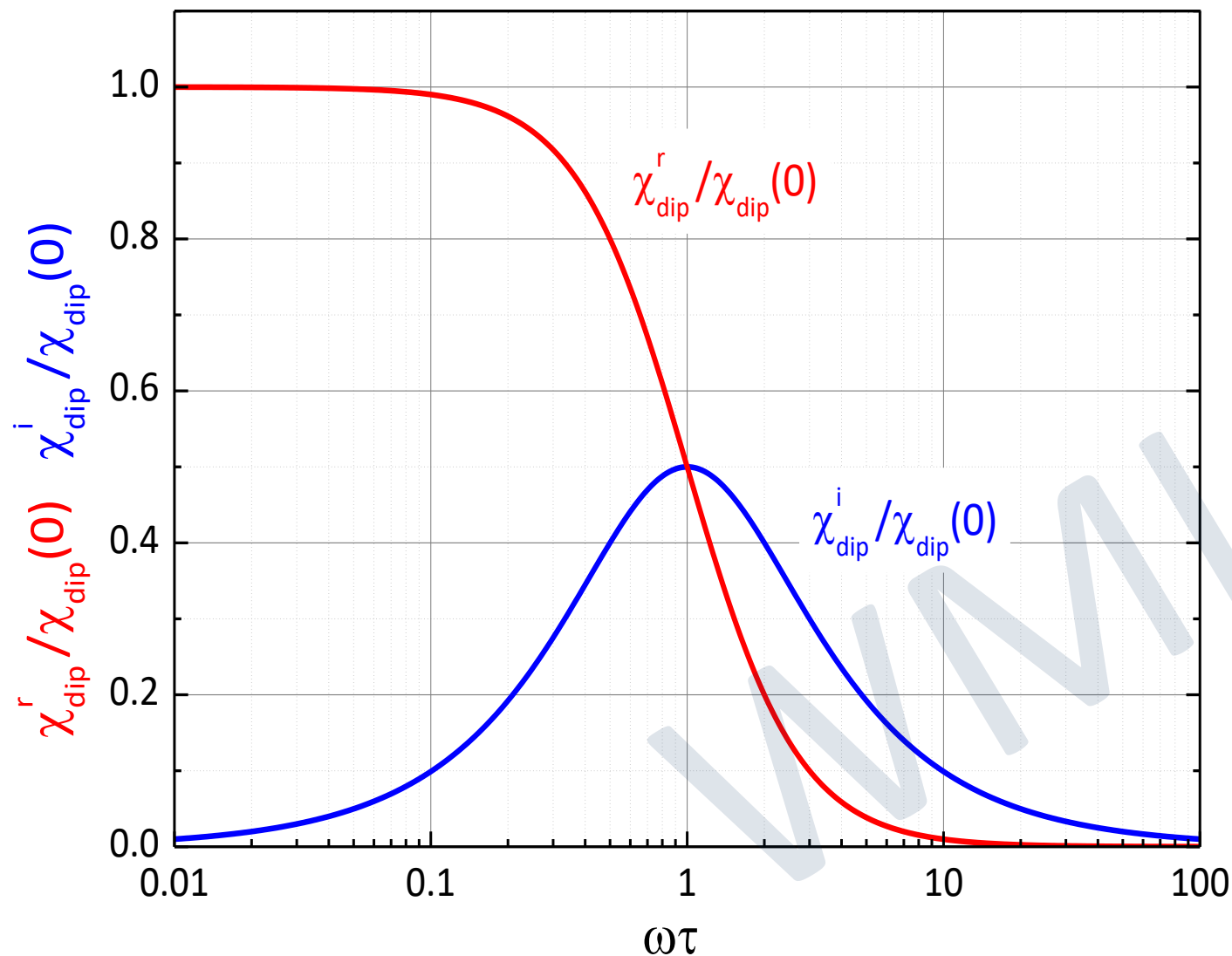
$$\chi_{\text{dip}}^i(\omega) = \frac{\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \chi_{\text{dip}}(0)$$

Debyesche Formeln

11.5.2 Frequenzabhängigkeit der Orientierungspolarisation

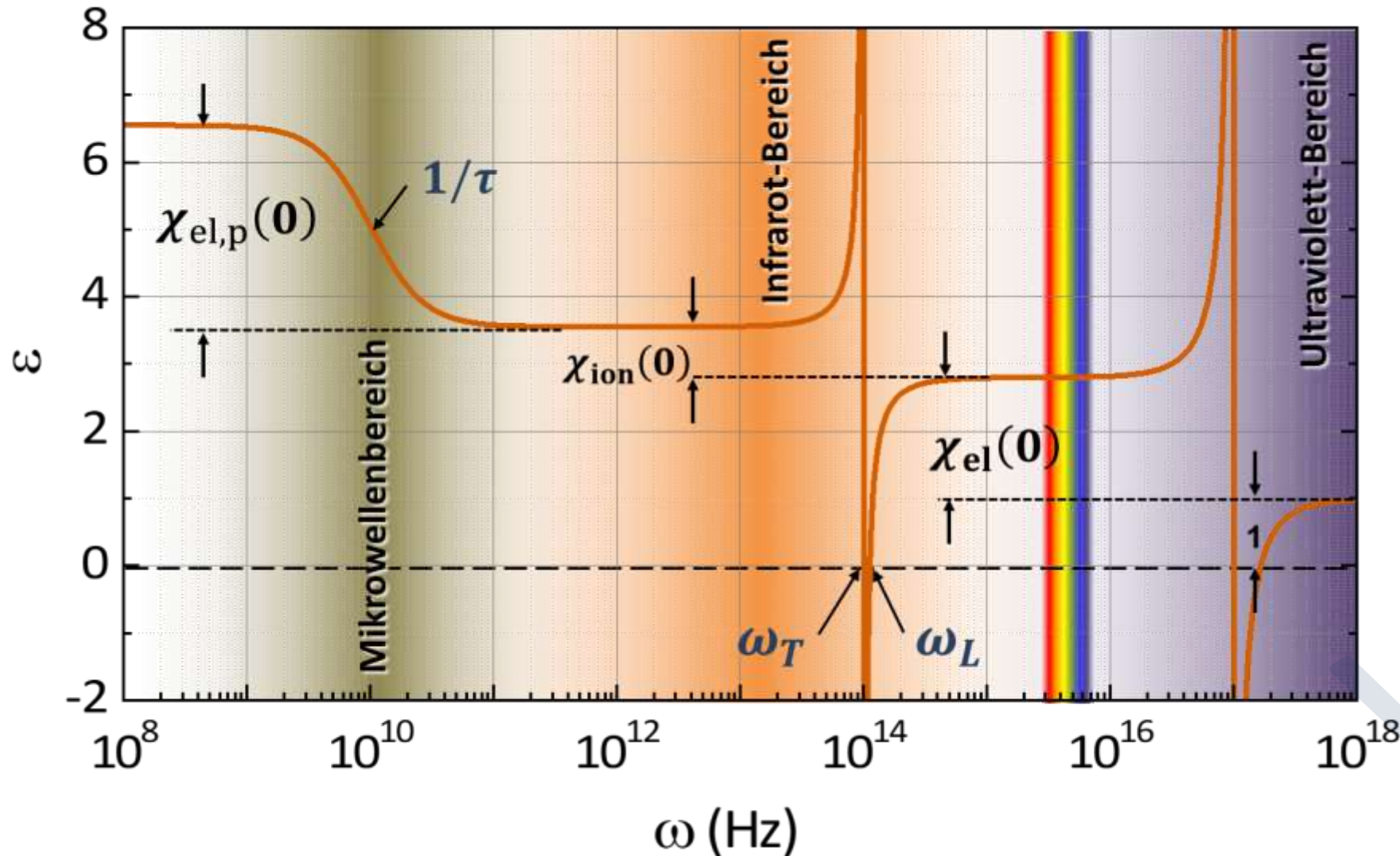
- Beschreibung der Frequenzabhängigkeit mit einfachem Relaxationsmodell

- **niedrige Frequenzen:**
Dipole können $E_{\text{ext}}(t)$ instantan folgen,
 $\chi_{\text{dip}}^r(\omega) \rightarrow \chi_{\text{dip}}(0)$ und $\chi_{\text{dip}}^i(\omega) \rightarrow (0)$
(keine Verluste)
- **höhere Frequenzen, $\omega\tau < 1$:**
 $\chi_{\text{dip}}^r(\omega)$ nimmt kontinuierlich ab und
 $\chi_{\text{dip}}^i(\omega)$ (Verluste) zu, da Dipole nicht mehr
vollständig ausgerichtet werden können
- **Resonanzfrequenz, $\omega\tau = 1$**
 $\chi_{\text{dip}}^i(\omega) = \text{max.}$, maximale Verluste
- **hohe Frequenzen, $\omega\tau > 1$**
 $\chi_{\text{dip}}^r(\omega)$ und $\chi_{\text{dip}}^i(\omega)$ gehen gegen Null, da
Dipole schnellen Feldänderungen nicht
folgen können
- **charakteristische Frequenz, $\omega = 1/\tau$:**
typischerweise zwischen 0.1 bis 10 GHz



11.5.2 Frequenzabhängigkeit der Gesamtpolarisation

- gesamte Polarisation eines Isolators: Summe aus elektronischer, ionischer und Orientierungspolarisation



Typische Frequenzbereiche:

- I. **Orientierungspolarisation:**
 $10^8 - 10^{10}$ Hz
- II. **ionische Polarisation:**
 $10^{13} - 10^{14}$ Hz
- III. **elektronische Polarisation:**
 10^{16} Hz

- *erzwungenen Schwingungen von Ionenkristallen, optisches Verhalten ($E_{\text{ext}} \neq 0$)*

langwelliger Grenzfall: $q \rightarrow 0$

$$\epsilon(\omega) \simeq \epsilon_{\text{stat}} \frac{\omega_L^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega}{\omega_T^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega}$$

optische Eigenschaften: $\tilde{n} = n + i\kappa = \sqrt{\tilde{\epsilon}}$
 $n^2 - \kappa^2 = \epsilon_r, 2n\kappa = \epsilon_i$

$\epsilon_r < 0$ für $\omega_T < \omega < \omega_L$

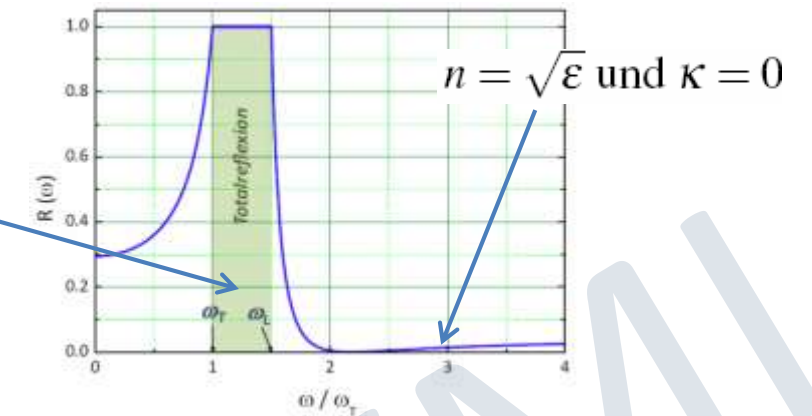
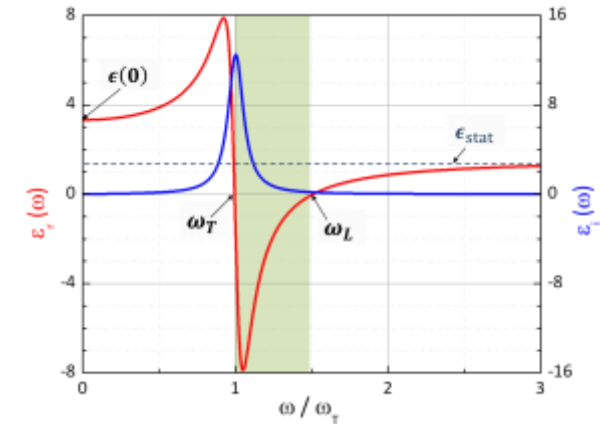
$$\rightarrow R = \frac{(n-1)^2 + \kappa^2}{(n+1)^2 + \kappa^2} = 1$$

- **Polaritonen**

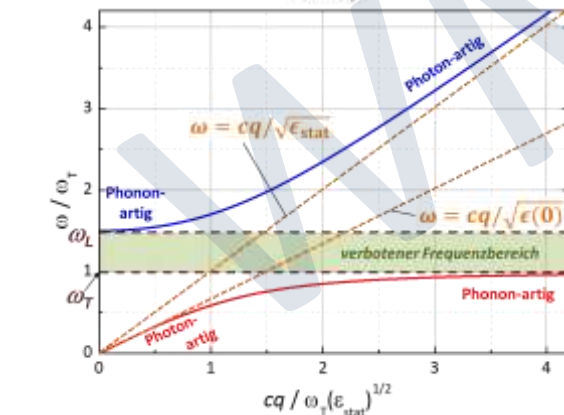
transversale em-Wellen können transversale optische Phononen anregen, falls q und ω passen

→ Gekoppelte Ausbreitung von Photon und Phonon
 → **Polariton**

$$q^2 = \frac{\epsilon(\omega, q=0)}{c^2} \omega^2 = \frac{\epsilon_{\text{stat}}}{c^2} \frac{\omega_L^2 - \omega^2}{\omega_T^2 - \omega^2} \omega^2$$



$$n = 0, \kappa = \sqrt{|\epsilon_r|}$$



• Orientierungspolarisation

- partielle Ausrichtung von vorhandenen Dipolen durch \mathbf{E}_{ext}
- für $p_{\text{dip}}E_{\text{ext}} \ll k_B T$ gilt $E_{\text{lok}} \simeq E_{\text{ext}}$

(i) statisch:

$$\chi_{\text{dip}}(0) = \frac{C}{T} \quad \text{mit} \quad C = \frac{n_v p_{\text{dip}}^2}{3\epsilon_0 k_B}$$

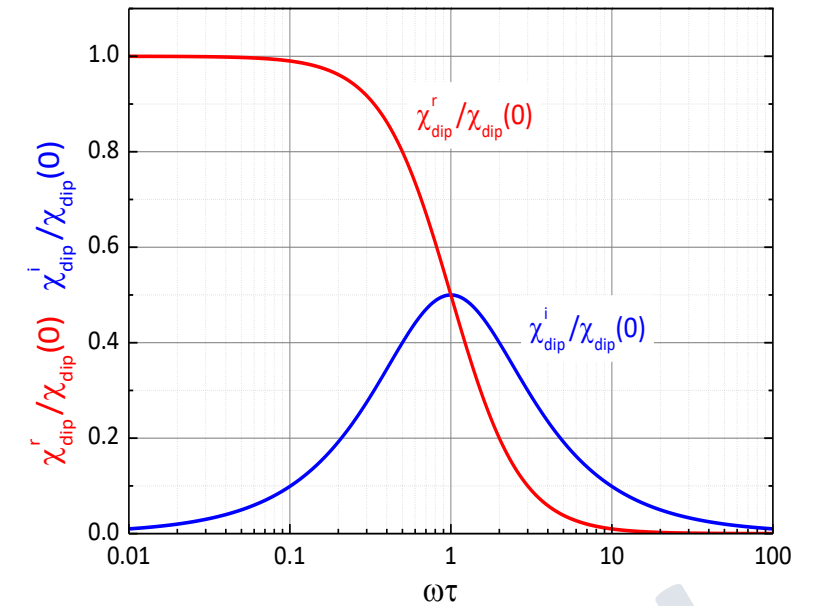
Curie-Gesetz ($p_{\text{dip}}E_{\text{ext}} \ll k_B T$)

(ii) dynamisch:

$$\chi_{\text{dip}}^r(\omega) = \chi_{\text{dip}}(0) \frac{1}{1 + \omega^2 \tau^2}$$

Debyesche Formeln

$$\chi_{\text{dip}}^i(\omega) = \chi_{\text{dip}}(0) \frac{\omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2}$$



• gesamte dielektrische Funktion von Isolator

