

Национальный исследовательский ядерный университет
«МИФИ»

Институт лазерных и плазменных технологий

С.В.Ивлиев

**УЧЕТ ЭЛЕКТРОН-
ЭЛЕКТРОННОГО
ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ В
ФОРМУЛЕ КУБО-ГРИНВУДА
ДЛЯ ПРОВОДИМОСТИ
ЭЛЕКТРОНОВ МЕТАЛЛА**

ЗНЧ-2017, Снежинск

Поглощение энергии короткого лазерного импульса металлом

Двухтемпературная модель

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla(K_e(T_e) \nabla T_e) - \Delta Q_{ei}(T_e, T_i) + Q_L(z, t)$$

$$C_i(T_i) \frac{\partial T_i}{\partial t} = \Delta Q_{ei}(T_e, T_i)$$

$$\Delta Q_{ei}(T_e, T_i) = \gamma(T_e)(T_e - T_i)$$

$$Q_L(z, t) = \omega_L \operatorname{Im}[\varepsilon(z, \omega_L, t)] \frac{|\mathbf{E}(z, t)|^2}{8\pi}$$

Температура электронов может достигать 15-20 eV ($10^5 \cdot K$)

$$\tau_{e-e} \propto 10^{-15} \text{ c} \quad \tau_{i-i} \propto 10^{-13} \text{ c}$$

Связь диэлектрической проницаемости и проводимости

$$\varepsilon(q, \omega) = 1 + \frac{4\pi i \sigma(\omega)}{\omega}$$

$$\text{Im} \varepsilon(q, \omega) = \frac{4\pi \sigma(\omega)}{\omega}$$

Теория Друде (1900)

$$\sigma = \frac{ne^2 \tau}{m(1 - i\omega)}$$

$$\sigma_1 = \text{Re} \sigma = \frac{ne^2 \tau}{m(1 + \omega^2 \tau^2)}$$

Основная проблема – зависимость времени релаксации от параметров среды и температуры. Частотная зависимость – характерная «друдевость»

Формула Кубо-Гринвуда для проводимости

Формула Кубо (1957)

$$K_{\mu\nu} = \int_0^{1/T} d\lambda \langle j_\mu(0) j_\nu(t - i\hbar\lambda) \rangle$$

$$\sigma_{\mu\nu} = \lim_{\alpha \rightarrow 0} \left(\frac{1}{i\hbar} \int_{-\infty}^0 dt \exp(-i\omega t + \alpha t) K_{\mu\nu} \right)$$

Формула Гринвуда (1958, 1978)

$$\sigma_{\alpha\beta}(\omega) = -\frac{2\pi e^2}{\omega} \sum_{n,m} (f(E_n) - f(E_m)) \langle m | \mathbf{v}_\alpha | n \rangle \langle n | \mathbf{v}_\beta | m \rangle (\delta(E_m - E_n - \hbar\omega))$$

Современный вид формулы Кубо-Гринвуда

$$\sigma_1(\omega) = \frac{2\pi e^2 \hbar^2}{3m^2 \omega \Omega} \sum_{\mathbf{k}, i, j} (f_0(\varepsilon_{i,\mathbf{k}}) - f_0(\varepsilon_{j,\mathbf{k}})) \times \left| \langle \Psi_{j,\mathbf{k}} | \nabla_\alpha | \Psi_{i,\mathbf{k}} \rangle \right|^2 (\delta(\varepsilon_{j,\mathbf{k}} - \varepsilon_{i,\mathbf{k}} - \hbar\omega))$$

Главный вопрос – какие волновые функции нам нужны?

Общие свойства величин ε и $\frac{1}{\varepsilon}$

$$D = \varepsilon E \quad V_{ext} = \varepsilon \cdot V_{tot}$$

$$V = \frac{4\pi e^2}{q^2} \rho$$

$$\frac{1}{\varepsilon} = 1 + \frac{4\pi e^2}{q^2} \frac{\rho_{ind}}{V_{ext}}$$

$$\varepsilon = 1 - \frac{4\pi e^2}{q^2} \frac{\rho_{ind}}{V_{tot}}$$

Введем точную восприимчивость $\rho_{ind} = \chi \cdot V_{ext}$

Введем восприимчивость невзаимодействующих электронов χ_0

$$\rho_{ind} = \chi_0 \cdot V_{ext} \quad \text{--Получается ОЧЕНЬ плохо}$$

$$\rho_{ind} = \chi_0 \cdot \left(V_{ext} + \frac{4\pi e^2}{q^2} \rho_{ind} \right)$$

--Это и есть RPA

$$\rho_{ind} = \chi_0 \cdot \left(V_{ext} + (1 - G) \frac{4\pi e^2}{q^2} \rho_{ind} \right)$$

--Учет обменно-корреляционных эффектов
G – поправка на локальное поле

$$\varepsilon = 1 - \frac{V_q \chi_0}{1 + G V_q \chi_0}$$

Точное выражение для обратной диэлектрической проницаемости

$$\hat{\rho}(q) = \sum_i e^{i\vec{q}\vec{r}_i} \quad H_0 = H_{kin} + H_{e-ion} + H_{e-e}$$

Многочастичная волновая функция взаимодействующих электронов

$$\hat{H}_0 \Psi_n = E_n \Psi_n$$

$$\frac{1}{\varepsilon(q, \omega)} = 1 - \frac{4\pi e^2}{q^2} \sum_n |\langle 0 | \hat{\rho}(q) | n \rangle|^2 \left(\frac{1}{E_n - E_0 - \hbar\omega - i\delta} + \frac{1}{E_n - E_0 + \hbar\omega + i\delta} \right)$$

К сожалению, Ψ_n , E_n вычислить чрезвычайно трудно

Итоговый результат для свободного электронного газа в приближении RPA

$$\varepsilon(\vec{q}, \omega) = 1 + \frac{4\pi e^2}{\Omega q^2} \sum_{\vec{k}} \frac{(f_0(\varepsilon_{\vec{k}}^0) - f_0(\varepsilon_{\vec{k}+\vec{q}}^0))}{\hbar\omega + \varepsilon_{\vec{k}}^0 - \varepsilon_{\vec{k}+\vec{q}}^0 + i\delta} \quad , \text{ где } \varepsilon_{\vec{k}}^{(0)} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m}$$

$$\text{Im} \varepsilon(\vec{q}, \omega) = -\pi \frac{4\pi e^2}{\Omega q^2} \sum_{\vec{k}} \left(f_0(\varepsilon_{\vec{k}}^{(0)}) - f_0(\varepsilon_{\vec{k}+\vec{q}}^{(0)}) \right) \delta(\hbar\omega + \varepsilon_{\vec{k}}^{(0)} - \varepsilon_{\vec{k}+\vec{q}}^{(0)})$$

Для электронного газа, находящегося в решетке потенциала решетки ионов

$$\varepsilon(\vec{q}, \omega) = 1 + \frac{4\pi e^2}{\Omega q^2} \sum_{\vec{k}, n, m} \frac{(f_0(E_{\vec{k}, n}) - f_0(E_{\vec{k}+\vec{q}, m})) \left| \langle \vec{k}, n | e^{i\vec{q}\vec{r}} | \vec{k} + \vec{q}, m \rangle \right|^2}{\hbar\omega + E_{\vec{k}, n} - E_{\vec{k}+\vec{q}, m} + i\delta}$$

В пределе малых q выражение для мнимой части ε превращается в

В пределе малых q выражение для мнимой части ε превращается в

$$\text{Im} \varepsilon(\omega) = \frac{4\pi^2 e^2}{3\Omega} \sum_{\vec{k}, n, m} (f_0(E_{\vec{k}, n}) - f_0(E_{\vec{k}, m})) \left| \langle \vec{k}, n | r_\alpha | \vec{k}, m \rangle \right|^2 \delta(\hbar\omega + E_{\vec{k}, n} - E_{\vec{k}, m})$$

По самой структуре записи этой формулы в такой форме четко видна связь мнимой частью функции диэлектрической проницаемости в приближении хаотических фаз с формулой Кубо-Гринвуда для для проводимости

Переход от матричных элементов r_α к матричным элементам ∇_α

осуществляется с помощью соотношений

$$v_\mu = \frac{i}{\hbar} [H, x_\alpha] = -\frac{i\hbar \nabla_\alpha}{m_e}$$

$$\langle \Psi_i | x_\alpha | \Psi_j \rangle = -\frac{\hbar^2}{m} \frac{\langle \Psi_i | \nabla_\alpha | \Psi_j \rangle}{(E_i - E_j)}$$

в дальнейшем в силу наличия δ -функции разность энергий в знаменателе заменяется на

$$\hbar\omega$$

В итоге с учетом связи мнимой части ε с проводимостью

$$\sigma(\omega) = \frac{\omega \operatorname{Im} \varepsilon(\omega)}{4\pi}$$

$$\sigma_1(\omega) = \frac{2\pi e^2 \hbar^2}{3m^2 \omega \Omega} \sum_{\mathbf{k}, n, m} (f_0(\varepsilon_{n, \mathbf{k}}) - f_0(\varepsilon_{m, \mathbf{k}})) \times \left| \langle \Psi_{m, \mathbf{k}} | \nabla_{\alpha} | \Psi_{n, \mathbf{k}} \rangle \right|^2 \delta(\varepsilon_{m, \mathbf{k}} - \varepsilon_{n, \mathbf{k}} - \hbar\omega)$$

Таким образом, приближение хаотических фаз для диэлектрической проницаемости электронов в металле в точности соответствует применяемой Формуле Кубо-Гринвуда.

Приближение хаотических фаз как метод среднего поля

Но основная идея метода ПВХ (фактически это метод среднего поля) заключается в нахождении отклика системы *невзаимодействующих между собой* электронов на *общий* (внешний плюс индуцированный) потенциал или поле. При вычислении проводимости в методе Кубо-Гринвуда также ищется отклик именно на *общее* (полное) поле. Межэлектронное кулоновское взаимодействие учитывается как в методе среднего поля, т.е. отклик ищется не на внешнее, а на общее поле.

$$H_0 = H_{kin} + H_{e-ion} + H_{e-e}$$

$$H_{ext} = \sum_q \rho_e(q) V_{ext}(q, \omega) \quad H_{e-e} = \left(\sum_q \frac{4\pi e^2}{\Omega q^2} \rho_e(q) \rho_e(-q) \right)$$

$$\tilde{H}_e = \sum_q \rho_e(q) \left(V_{ext}(q, \omega) + \sum_q \frac{4\pi e^2}{\Omega q^2} \langle \rho_e(q) \rangle \right)$$

При этом *одночастичные* волновые функции электронов уже надо искать только в поле ионов *без учета межэлектронного взаимодействия*. При использовании вычислительных пакетов типа VASP или других эти соображения приводят к необходимости исключить учет кулоновского взаимодействия электронов между собой.

Таким образом, в псевдопотенциальном подходе, когда рассматриваются электроны проводимости в решетке ионов волновые функции электронов и зонные энергии и матричные элементы, по-видимому, следует рассчитывать без учета электрон-электронного взаимодействия

Более аккуратный учет межэлектронного взаимодействия возможен через поправку на локальное поле

$$\varepsilon = 1 - \frac{V_q \chi_0}{1 + G V_q \chi_0} \quad G \text{ - Поправка на локальное поле}$$

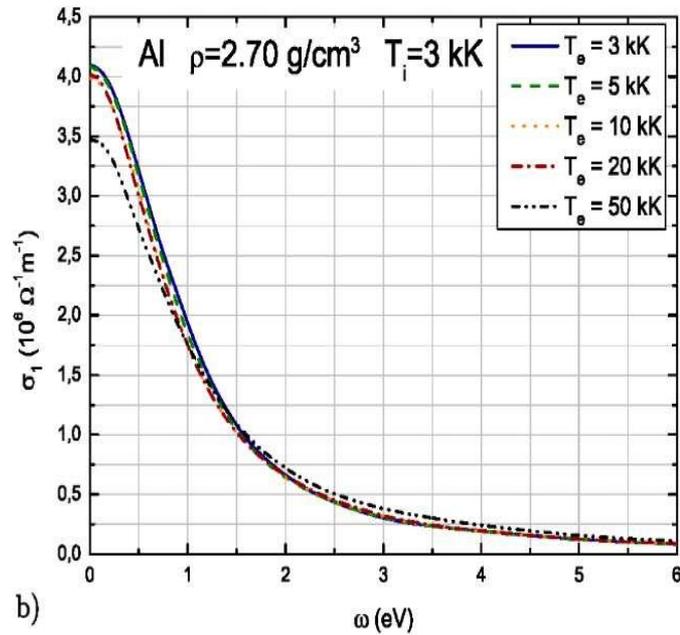
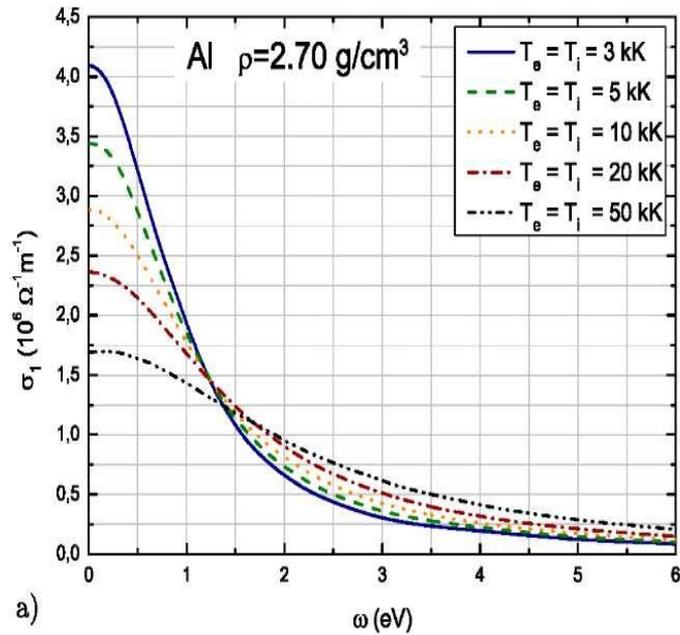
$$\text{Im} \varepsilon(\omega) = \frac{V_q \text{Im} \chi_0}{(1 + G V_q \text{Re} \chi_0)^2 + (G V_q \text{Im} \chi_0)^2} \quad \text{Обычно } G \text{ пропорциональна } q^2$$

В целом, что очевидно, учет e-e взаимодействия должен несколько понижать проводимость

Усреднение по положениям ионов

Также требует более строго осмысления и процесс усреднения по положениям ионов. При воздействии ультракоротких лазерных импульсов (порядка 50 фс) ионы практически не успевают сместиться. Поэтому процесс поглощения энергии от единичного импульса происходит фактически при неподвижных ионах, которые в силу наличия ионной температуры и нулевых колебаний несколько сдвинуты от своих идеальных положений равновесия. Процедура усреднения практически означает усреднение результатов по многим импульсам. Если проводимость оказывается сильно зависящей от конкретной конфигурации ионов (что представляется маловероятным), то наблюдаемые результаты могут отличаться от импульса к импульсу. При этом процесс усреднения по положениям ионов непосредственно при вычислении проводимости требует более аккуратного и взвешенного анализа.

Графики зависимости динамической проводимости для алюминия нормальной плотности при различных электронных температурах. Четко наблюдается «Друдевость» .



Национальный исследовательский ядерный университет
«МИФИ»

Институт лазерных и плазменных технологий

Спасибо за внимание

ЗНЧ-2017, Снежинск