

# Elektrodynamika v pevných látkách

## Úvod do praktika

# Outline

- Propagace elektromagnetické vlny dielektrickým prostředím
  - Dielektrická funkce a optická vodivost
  - Fresnelovy amplitudy na rozhraní s izotropním a anizotropním materiálem
  - Kramersovy-Kronigovy relace
- Techniky experimentálního určení optické odezvy
  - Propustnost
  - Odrazivost
  - Ellipsometrie
- Modelování dielektrické funkce
  - Lorentzova a Drudeova formule
  - Cauchy, Sellmaier
  - Complex Lorentzian
  - Gaussův a Voigtův model
  - Tauc-Lorentz model
  - Critical point model (Rove, Aspnes)
  - Herzinger-Johs model of critical points

# Co chceme určit: dielektrická funkce

definice:  $\epsilon(\omega) = 1 + \frac{P(\omega)}{\epsilon_0 E(\omega)}$

vztah k elektrické indukci:

$$\mathbf{D}(\omega, \mathbf{k}) = \epsilon_0 \epsilon(\omega, \mathbf{k}) \mathbf{E}(\omega, \mathbf{k})$$

(P- polarizace, hustota dipólového momentu

Index lomu jako podíl

fázových rychlostí:

$$N(\omega, \mathbf{k}) \equiv \frac{\left(\frac{\omega}{k}\right)_{\text{vacuum}}}{\left(\frac{\omega}{k}\right)_{\text{matter}}} = \sqrt{\epsilon(\omega, \mathbf{k}) \mu(\omega, \mathbf{k})}$$

na optických  
frekvencích je

$$\mathbf{k} \approx 0, \mu \approx 1.$$

$$N(\omega) = n(\omega) + i\kappa(\omega)$$

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_1(\omega) + i\epsilon_2(\omega)$$

index  
absorpce

# Optická vodivost

určení optické vodivosti  $\sigma(\omega) = -i\omega\epsilon_0(\epsilon(\omega) - 1)$

reálná část vodivosti - absorpce  
elmag. vlny na jednotku frekvence:  $\sigma_1(\omega) \quad (= \omega\epsilon_0\epsilon_2(\omega))$

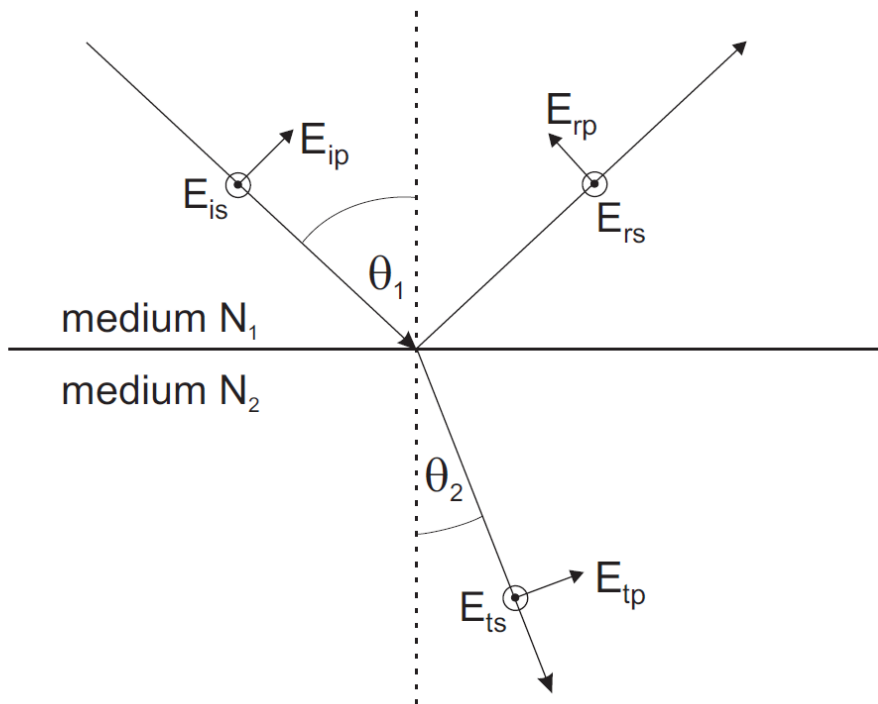
sumační pravidlo:  $\int_0^\infty \sigma_1(\omega) d\omega = \frac{\pi}{2} \frac{nq^2}{\epsilon_0 m} = \text{const.}$

Optická vodivost je velmi vhodná kvantita jak obecně, tak zvláště pro vodiče, kde v limitě pro nulové frekvence odpovídá DC měrné vodivosti.

Ze sumačního pravidla se dá vyjádřit efektivní počet nábojů v objemu  $V$  (typicky elementární buňka odpovídající absorpci mezi určitými frekvencemi ( $m_0$  je efektivní hmotnost))

$$N_{\text{eff}}(\omega_L, \omega_H) = \frac{2m_0 V}{\pi e^2} \int_{\omega_L}^{\omega_H} \sigma_1(\omega) d\omega.$$

# průchod elmag. vlny rozhraním



**Snellův zákon:**

$$N_1 \sin \theta_1 = N_2 \sin \theta_2$$

**Fresnelovy koeficienty:**

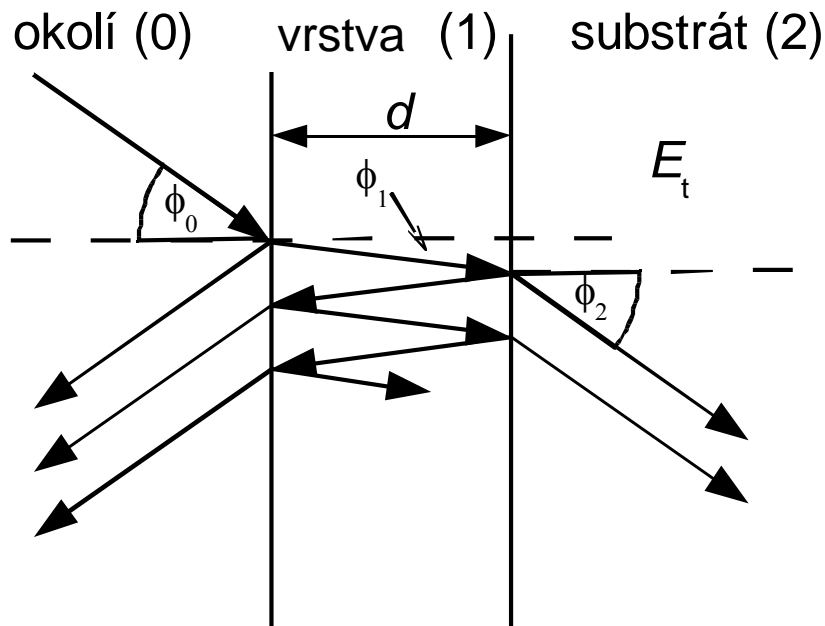
$$r_s = \frac{E_{rs}}{E_{is}} = \frac{N_1 \cos \theta_1 - N_2 \cos \theta_2}{N_1 \cos \theta_1 + N_2 \cos \theta_2}$$

$$r_p = \frac{E_{rp}}{E_{ip}} = \frac{N_2 \cos \theta_1 - N_1 \cos \theta_2}{N_1 \cos \theta_2 + N_2 \cos \theta_1}$$

$$t_s = \frac{E_{ts}}{E_{is}} = \frac{2N_1 \cos \theta_1}{N_1 \cos \theta_1 + N_2 \cos \theta_2}$$

$$t_p = \frac{E_{tp}}{E_{ip}} = \frac{2N_1 \cos \theta_1}{N_1 \cos \theta_2 + N_2 \cos \theta_1}$$

# reflexe a transmise na vrstvě na substrátu



- je třeba sečíst všechny reflexe uvnitř vzorku
- v případě tenké vrstvy (koherentní superpozice) sčítáme el. pole, v opačném případě intenzity záření

pro koherentní interference dostáváme:

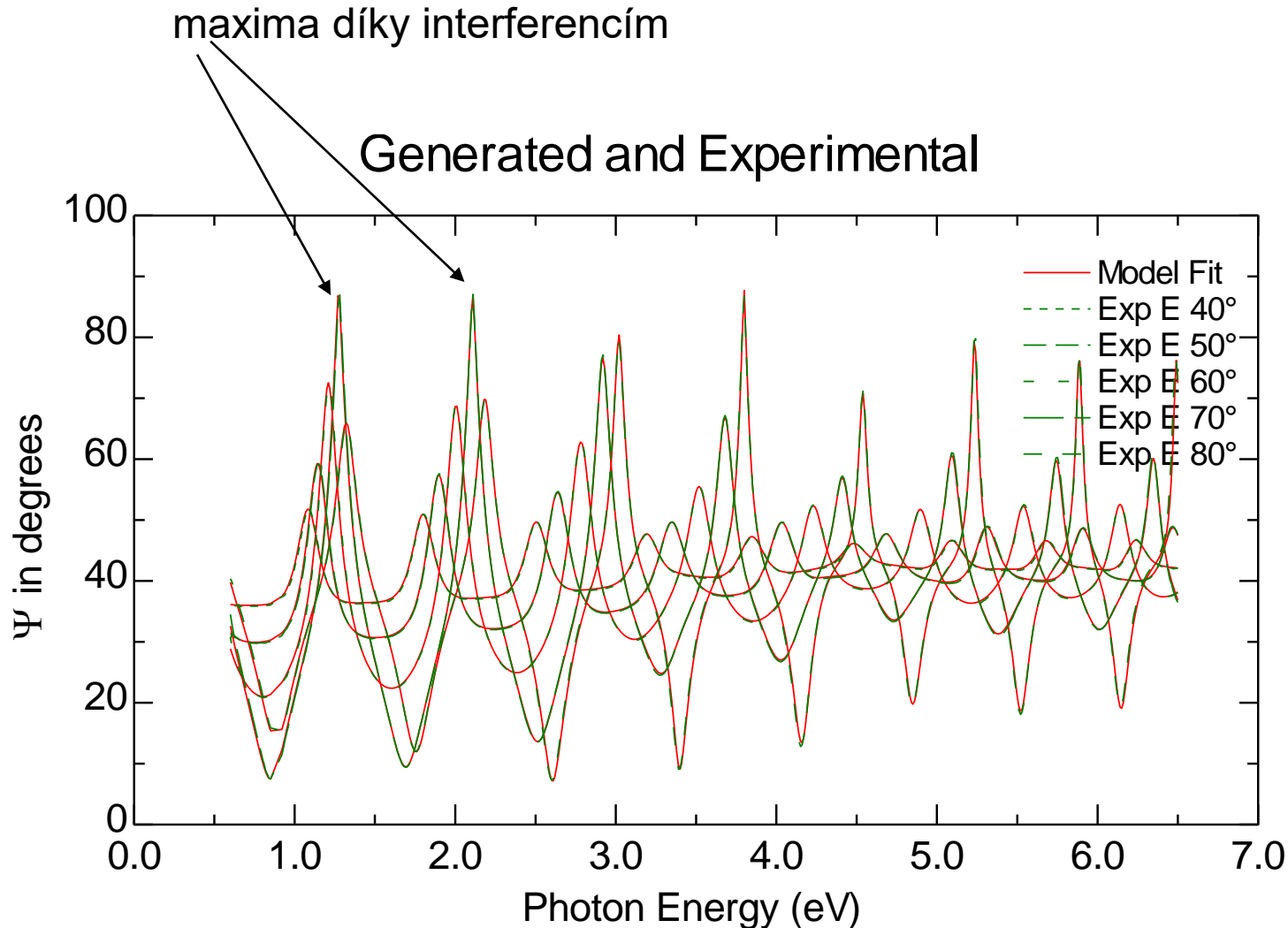
$$r_p^{\text{tot}} = \frac{r_{01p} + r_{12p} e^{i2\beta}}{1 + r_{01p}r_{12p} e^{i2\beta}}, \quad r_s^{\text{tot}} = \frac{r_{01s} + r_{12s} e^{i2\beta}}{1 + r_{01s}r_{12s} e^{i2\beta}}$$

$$t_p^{\text{tot}} = \frac{t_{01p}t_{12p} e^{i2\beta}}{1 + r_{01p}r_{12p} e^{i2\beta}}, \quad t_s^{\text{tot}} = \frac{t_{01s}t_{12s} e^{i2\beta}}{1 + r_{01s}r_{12s} e^{i2\beta}}$$

$$\beta = 2\pi \frac{d_1}{\lambda} N_1 \cos \theta_1 = 2\pi \frac{d_1}{\lambda} (N_1^2 - N_0^2 \sin^2 \theta_0)^{1/2}$$

(viz např. Azzam Bashara, Ellipsometry and polarized light)

# NIR-UV příklad 1: SiO<sub>2</sub> vrstva na Si



- fitováno modelem izolující vrstvy (Cauchy model) na Si substrátu  $d=659 \pm 0.8\text{nm}$
- relativně tlustá vrstva, spektrum obsahuje několik interferenčních maxim, velmi dobře definovaný fit, malá chyba tloušťky

# Anisotropy

Fresnell coefficients for the case of orthorhombic symmetry

$$r_s = \frac{N_i \cos \theta_i - \sqrt{N_{ty}^2 - N_i^2 \sin^2 \theta_i}}{N_i \cos \theta_i + \sqrt{N_{ty}^2 - N_i^2 \sin^2 \theta_i}}, \quad r_p = \frac{N_{tx}N_{tz} \cos \theta_i - N_i \sqrt{N_{tz}^2 - N_i^2 \sin^2 \theta_i}}{N_{tx}N_{tz} \cos \theta_i + N_i \sqrt{N_{tz}^2 - N_i^2 \sin^2 \theta_i}},$$

Where  $N_{tx,y,z}$  is the index of refraction of the medium along the x,y, and z axis

- Ways how to determine the orthorhombic dielectric functions  $\epsilon_x, \epsilon_y, \epsilon_z$ ,
  - Measure polarized reflectivity (transmission) along the x,y,z direction and perform KK transform or analysis with KK consistent model
  - Measure ellipsometry long all three axis. The three dielectric functions are then entangled together since ellipsometry measurements are performed at oblique angle. The above equations have to be used and numerically solved.
  - In case of out of plane anisotropy and ellipsometry: even at one angle of incidence (e.g. in case of thin films) the response contains both: in and out of plane response. Surprisingly, even from one angle and using KK model, the two dielectric functions can be determined.



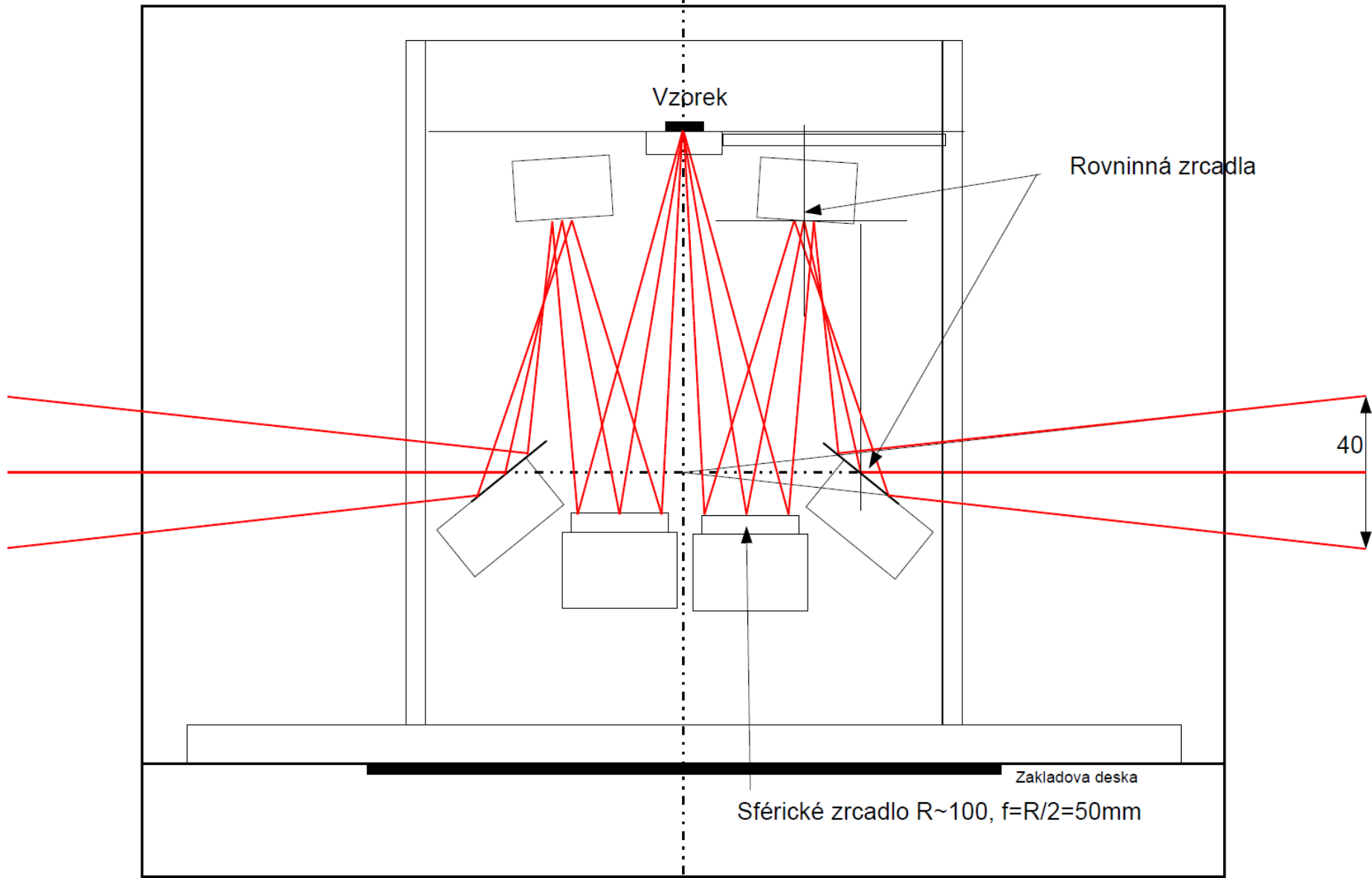
# Odrazivost polonekonečného vzorku

- polonekonečným vzorkem myslíme vzorek tlustší než hloubka průniku, nebo vzorek se zdrsňenou zadní stranou, která rozptyluje záření tak účinně, že se nedostane do detektoru.
- často se měří při téměř kolmém dopadu (uhel dopadu  $< 10\text{st.}$ ), kde  $\cos(\text{uhel dopadu}) \sim 1$  a pak

$$r = \frac{1 - N}{1 + N}, \quad R = |r|^2 = \frac{(1 - n)^2 + k^2}{(1 + n)^2 + k^2}$$

- odrazivost citlivá pouze na  $k$  řádově srovnatelné s  $n$ , tedy typicky  $k > 0.01$ , tedy silné absorpční procesy
- měřením  $R$  ztrácíme informaci o fázi odrazivosti  $r = \sqrt{R} e^{i\phi}$

Reflexní přístavek pro Bruker 80V, úhel dopadu cca  $10^\circ$



- vzorek optickou stranou dolů leží na clonce
- clonka zajišťuje stejnou pozici vzoru a reference

# Kramersovy-Kronigovy relace

Integrální vztahy mezi reálnou a imaginární částí odezvové funkce.

Při znalosti jedné z částí v celém oboru frekvencí (0-nekonečno) lze dopočítat druhou část. Pro odvození viz Kittel. Předpokládá se pouze kauzalita.

$$\text{Im } \epsilon(\omega) = \frac{-2\omega}{\pi} \text{P} \int_0^{\infty} d\Omega \frac{\text{Re } \epsilon(\Omega) - 1}{\Omega^2 - \omega^2} + \frac{\sigma_{\text{DC}}}{\epsilon_0 \omega},$$


$$\text{Re } \epsilon(\omega) - 1 = \frac{2}{\pi} \text{P} \int_0^{\infty} d\Omega \frac{\Omega \text{Im } \epsilon(\Omega)}{\Omega^2 - \omega^2},$$

Tyto vztahy lze také vyjádřit pro logaritmus odrazivosti a její fázi, resp. pro

$$r = |r| e^{i\phi} \quad |r| = \sqrt{R}$$

$$\ln r(\omega) = \ln \sqrt{R(\omega)} + i\phi(\omega)$$

Z (experimentálně) změřené odrazivosti lze dopočítat fázi, a z nich pak komplexní dielektrickou funkci

$$\phi(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi} \int_0^{\infty} d\Omega \frac{\ln \sqrt{R(\Omega)} - \ln \sqrt{R(\omega)}}{\Omega^2 - \omega^2}$$


Odečtení pólu pro snadnou numerickou integraci

- Z (experimentálně) změřené odrazivosti lze dopočítat fázi, a z nich pak komplexní dielektrickou funkci. Je nutno však použít extrapolace nad a pod měřený rozsah. Typicky jsou založeny na Drude-Lorenzově modelu. Mohou (a typicky to dělají) však zanést systematické chyby do integrálu i v rámci měřeného rozsahu

# používané veličiny a jednotky ve spektroskopii

Veličiny a jejich jednotky

vlnová délka  $\lambda$ , jednotka typicky nm pro VIS

energie  $E$ : jednotka typicky eV, meV

vlnočet  $\nu$ : počet elmag. vln na jeden centimetr  
jednotka:  $\text{cm}^{-1}$

frekvence  $f$ : Hz, MHz, THz

$$E_{[\text{eV}]} \approx \frac{1240}{\lambda_{[\text{nm}]}}$$

$$\nu_{[\text{cm}^{-1}]} = \frac{10\,000}{\lambda_{[\mu\text{m}]}}$$

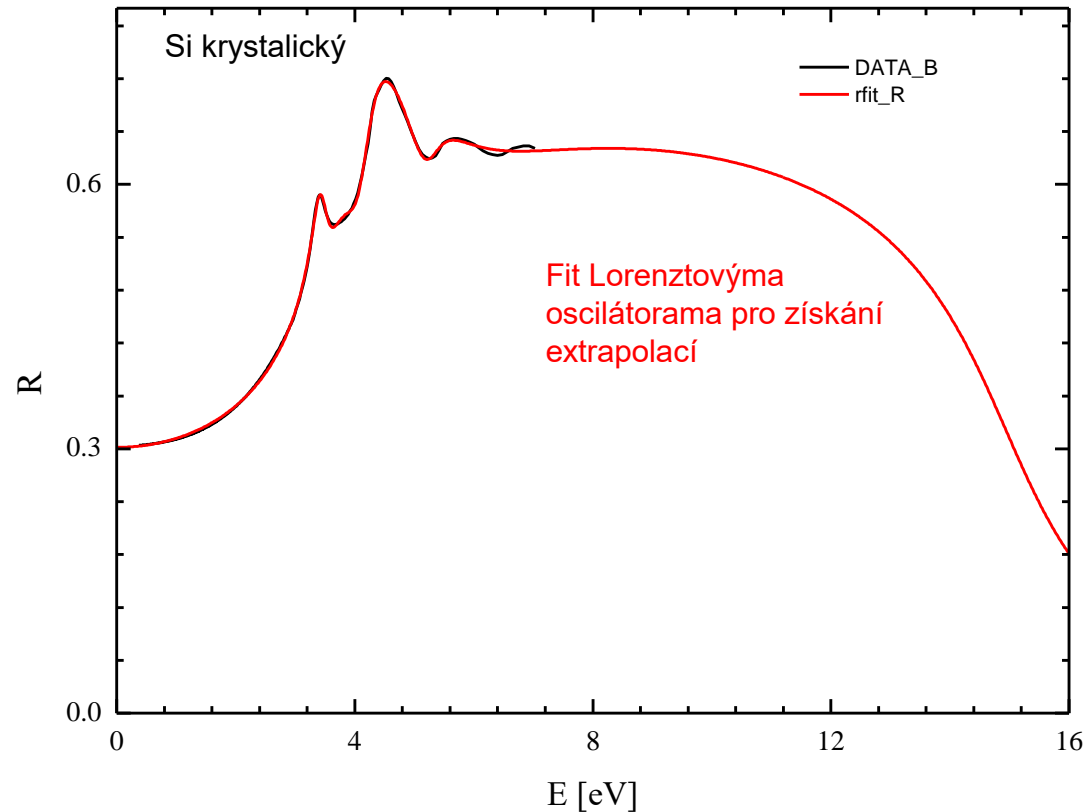
$$\nu_{[\text{cm}^{-1}]} \approx 8E_{[\text{meV}]}$$

$$\nu_{[\text{cm}^{-1}]} \approx 33f_{[\text{THz}]}$$

$$300\text{ K} \approx 25\text{ meV}$$

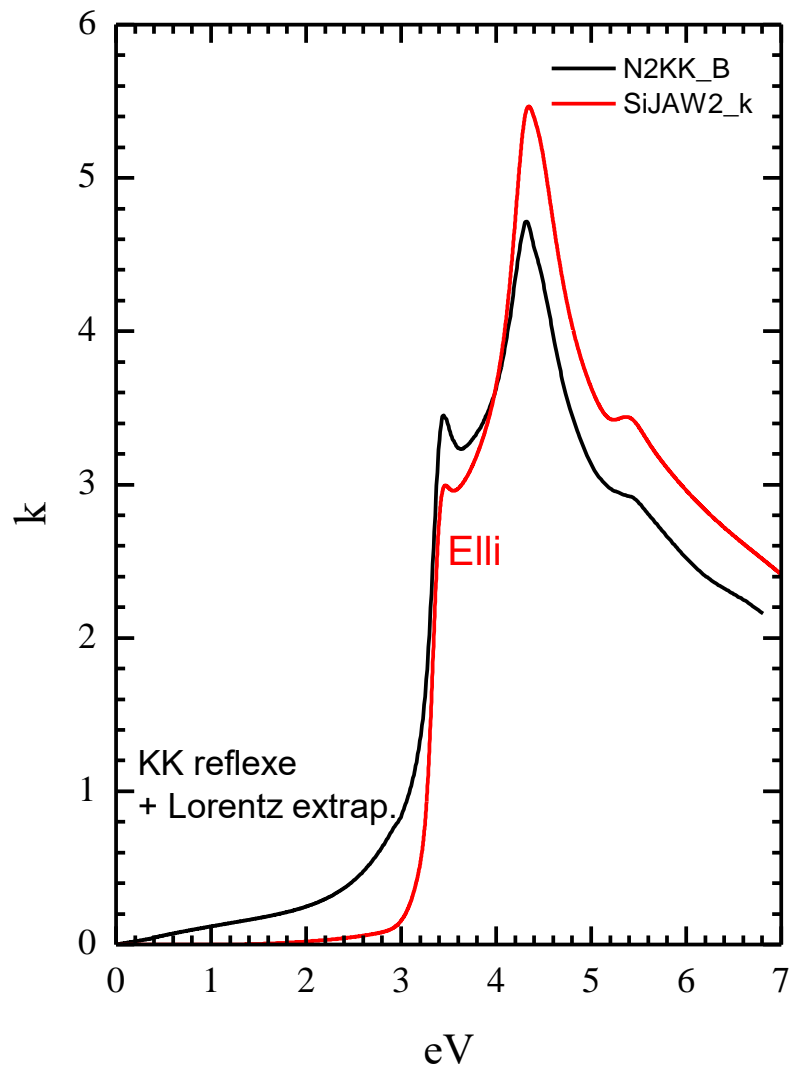
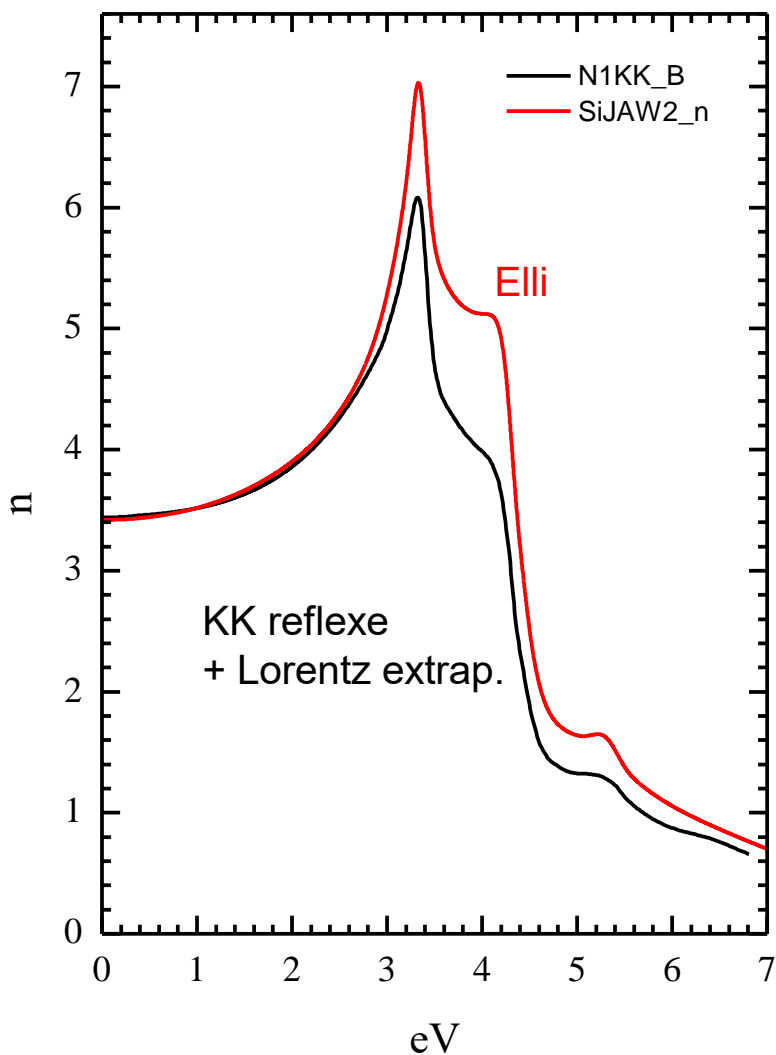
# Příklad aplikace Kramersových Kronigových relací na reflektivitu křemíku

Extrapolace do nižších a vyšších energií získáme pomocí fitu Lorenzovými oscilátory (červená)

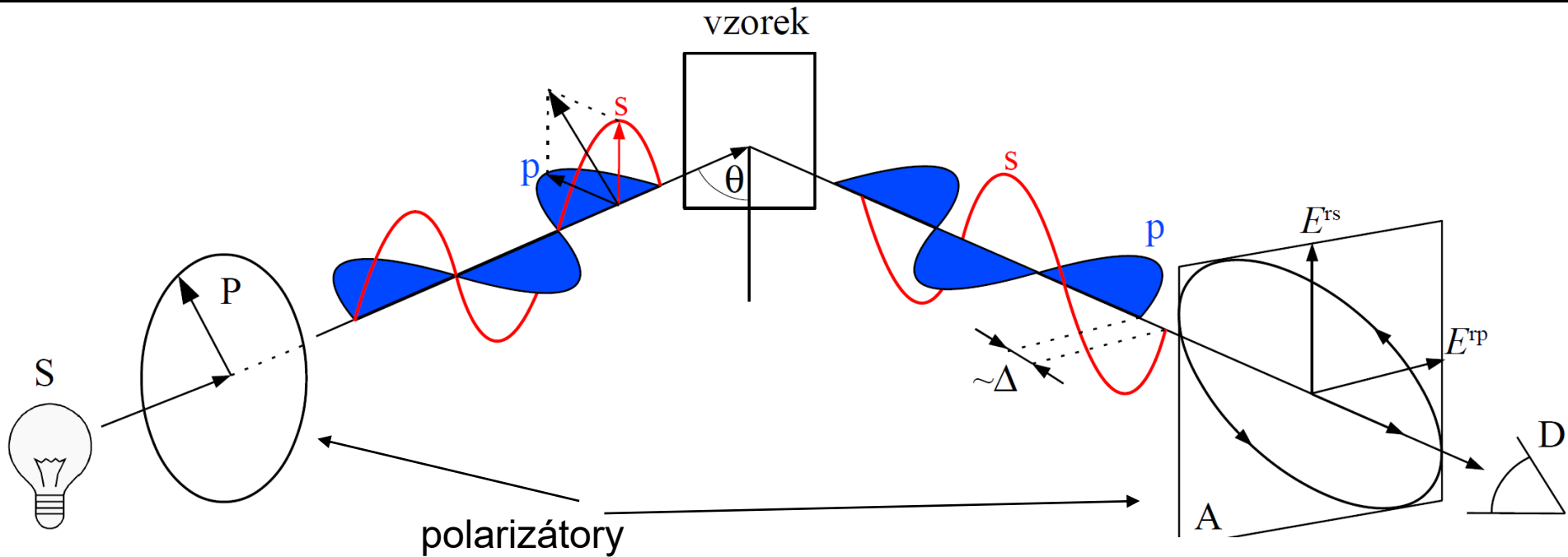


- Drude-Lorentzův model je KK konzistentní (je odvozený z pohybových rovnic).
- Proto fitování Drude-Lorentzovým modelem je v podstatě aplikace KK relací.
- Při limitně velkém počtu oscilátorů (na každý frekvenční bod jeden oscilátor) je to přesná aplikace KK relací (tzv. variational-dielectric function), viz. A. B. Kuzmenko, Rev. Sci. Instr. **76**, 083108 (2005).

- srovnání optických konstant ( $n$  a  $\kappa$ ) získaných z KK odrazivosti a z elipsometrie
- rozdíly jsou způsobené absencí přesné informace o odrazivosti na vyšších energiích
- přesné optické konstanty bez použití extrapolací získáme z elisometrie



# Princip elipsometrie



- Elipsometrie je de facto interferenční experiment s komponentou elektrického pole rovnoběžnou (p) a kolmou (s) k rovině dopadu.

## Měřené veličiny v elipsometrii:

- úhel pootočení elipsy  $\Psi$
- elipticita  $\Delta$

$\Rightarrow$  n,k nebo  $\epsilon_1, \epsilon_2$   
bez dalších předpokladů

# Equilibrium ellipsometry at CEITEC Nano



+



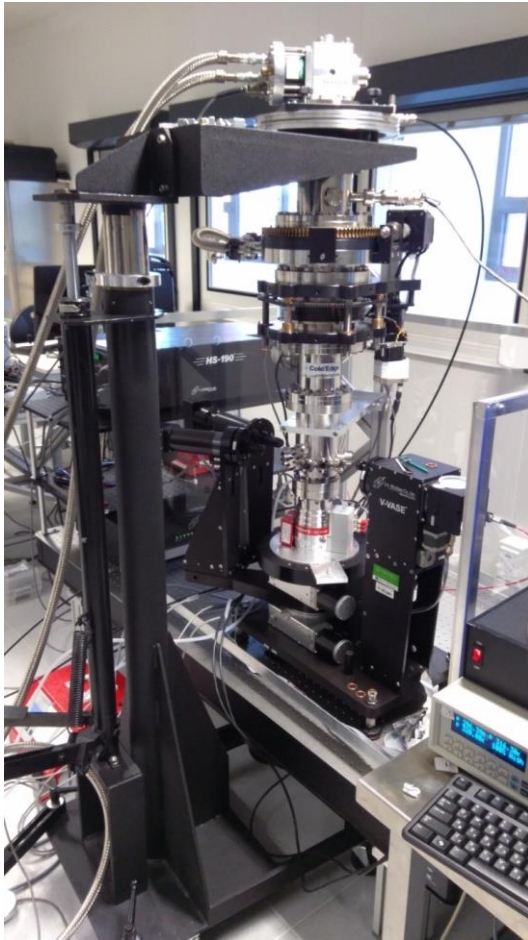
=



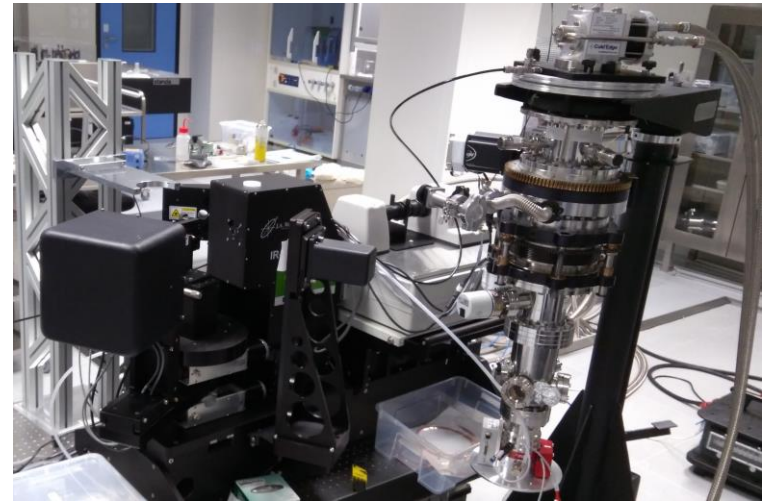
in



Woollam VASE, NIR-UV range  
He closed-cycle cryostat 7-400 K



Woollam IR-VASE, mid infrared range



far-infrared (50-700  $\text{cm}^{-1}$ ) ellipsometer





# základní rovnice elipsometrie

Definice elipsometrických úhlů  $\Psi$  a  $\Delta$ :  $\rho = \frac{r_p}{r_s} = \tan \Psi e^{i\Delta}$

Fresnelovy koeficienty:

$$r_p = \frac{N_2 \cos \theta_1 - N_1 \cos \theta_2}{N_1 \cos \theta_2 + N_2 \cos \theta_1} \quad r_s = \frac{N_1 \cos \theta_1 - N_2 \cos \theta_2}{N_1 \cos \theta_1 + N_2 \cos \theta_2}$$

Snellův zákon:  $N_1 \sin \theta_1 = N_2 \sin \theta_2$

Index lomu okolí:  $N_1 = \sqrt{\epsilon_a}$       Index lomu vzorku:  $N_2 = \sqrt{\epsilon_s}$

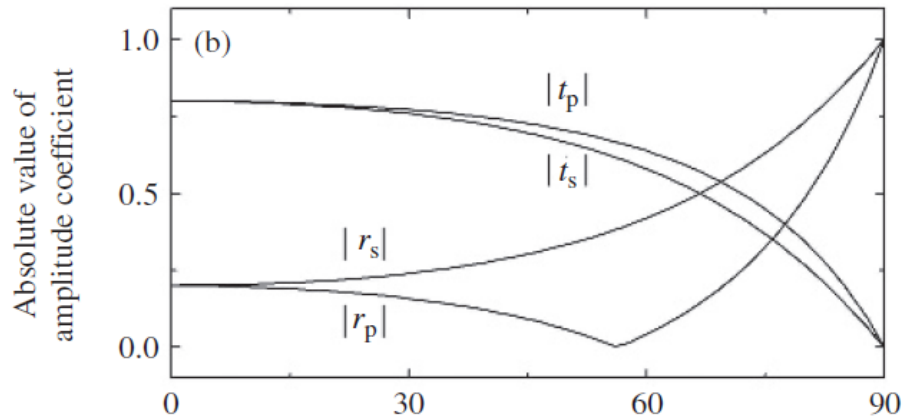
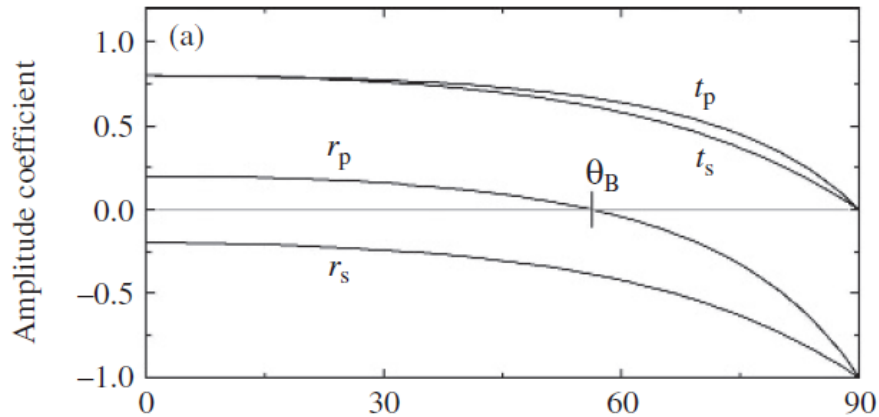
Inverzí výše uvedených rovnic obdržíme v případě polonekonečného izotropního vzorku explicitní analytický výraz pro dielektrickou funkci (jak její reálnou tak i imaginární část):

$$\epsilon_s(\Psi, \Delta) = \epsilon_a \sin^2 \theta_1 \left( 1 + \tan^2 \theta_1 \left( \frac{1 - \rho(\Psi, \Delta)}{1 + \rho(\Psi, \Delta)} \right)^2 \right)$$

shrnutí: ze dvou měřených veličin  $\Psi$  a  $\Delta$  určíme dvě veličiny  $\epsilon_1$  a  $\epsilon_2$

# Brewsterův úhel a citlivost elipsometrie

rozhraní vzduch – sklo



zdroj Fujiwara

$$\rho = \frac{r_p}{r_s} = \tan \Psi e^{i\Delta}$$

Elipsometrie měří poměr mezi  $r_p$  a  $r_s$ , které se nejvíc liší blízko tzv. Brewsterova úhlu

$$\text{tg } \theta_B = N_2$$

Jelikož přesně na Brewsterově úhlu v případě izolátorů je  $\Psi=0$ , je ideální měřit na úhlu dopadu pod, nebo/a nad ním.

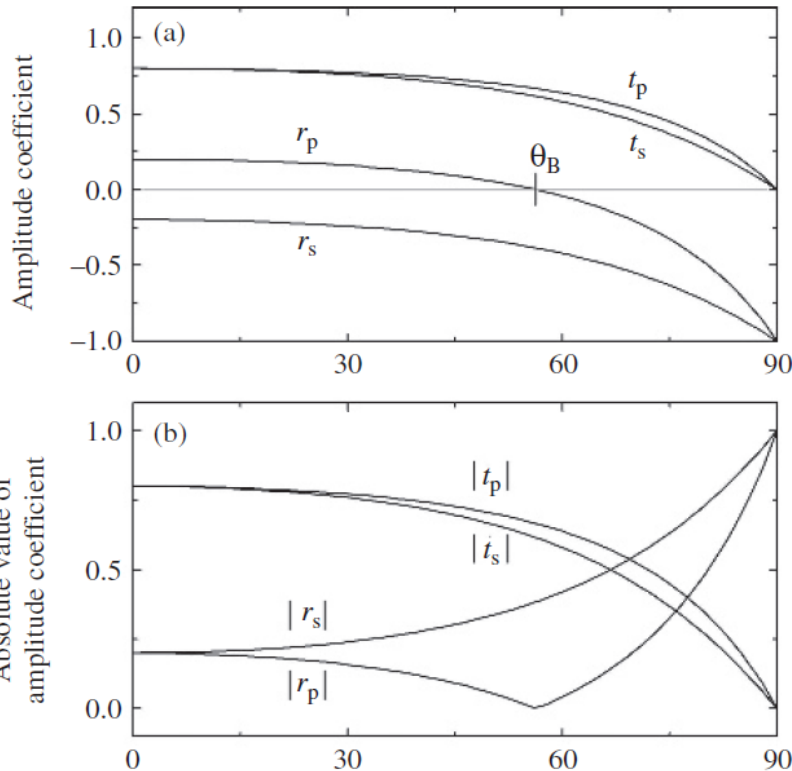
- U materiálů s vysokým indexem lomu je třeba jít k velkým úhlům dopadu, např. kovové materiály zvláště v infračervené oblasti (80 až 85 st.), což zvyšuje nároky na kvalitu (rovnoběžnost) svazku.

- Při velké divergenci svazku je možno numericky sčítat přes různé úhly dopadu a tak ji korigovat, přirozeně je třeba se snažit tyto efekty mít malé jak jen to jde.

# Zvykáme si na $\Psi$ a $\Delta$

$$\rho = \frac{r_p}{r_s} = \tan \Psi e^{i\Delta}$$

rozhraní vzduch – sklo



zdroj: Fujiwara

## Vlastnosti $\Psi$ :

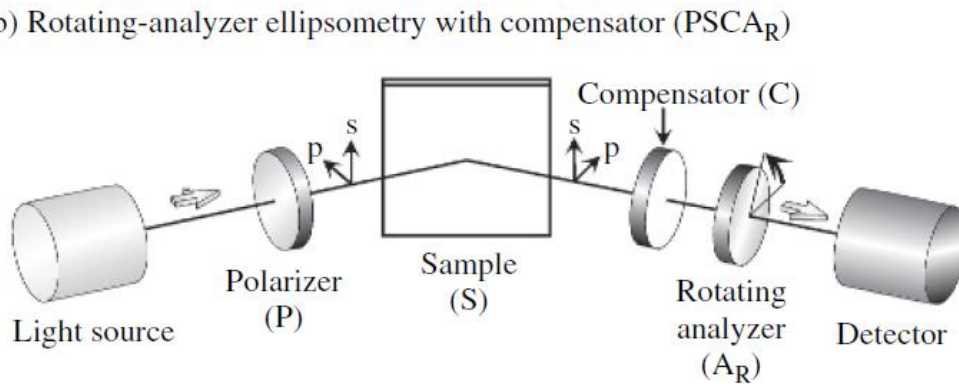
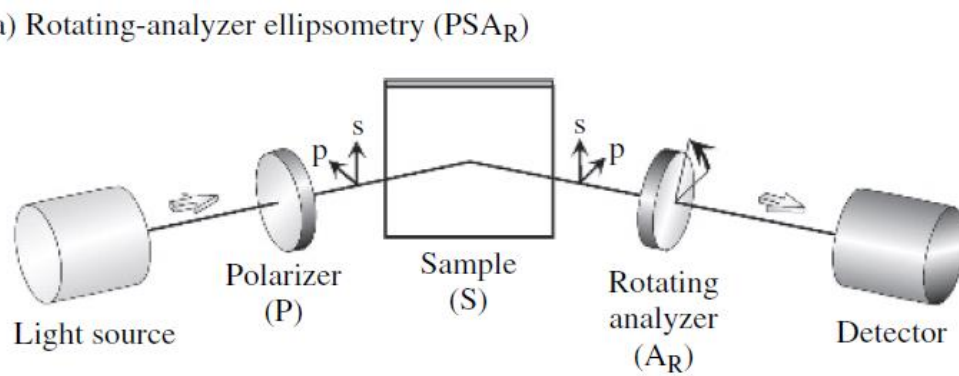
- $\Psi$  je mírou pootočení roviny polarizace po odrazu. Při polarizátoru  $P=45^\circ$  je hodnota  $\Psi$  přímo výsledný úhel polarizace od s složky.
- na Brewsterově úhlu je  $\Psi = 0$ . V tomto bodě není elipsometrie citlivá, je lepší měřit v blízkosti nad a pod Brewsterovým úhlem.
- objemové izotropní materiály mají  $\Psi$  mezi 0 a  $45^\circ$ .
- $\Psi$  blízko  $45^\circ$  mají materiály s velkou odrazivostí pod Brewsterovým úhlem, typicky kovy
- hodnoty nad  $45^\circ$  se objevují na vrstvách případně na anizotropních objemových vzorcích

## Vlastnosti $\Delta$ :

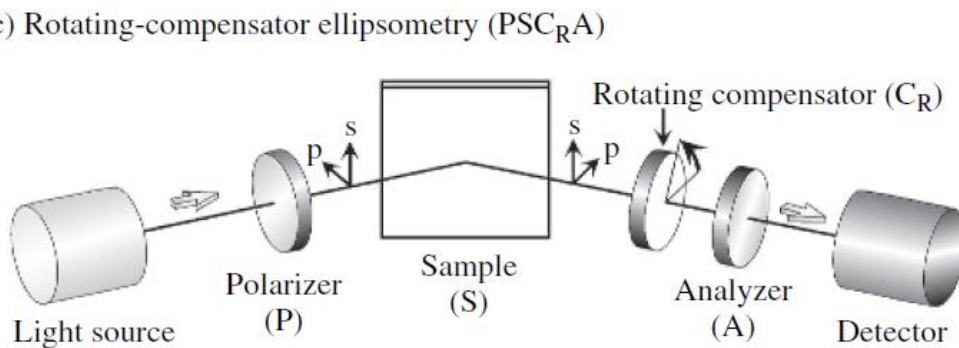
- na izolujících materiálech je  $\Delta=0$  (nad Brewsterovým úhlem) nebo  $180^\circ$  (pod Brewsterovým úhlem)

# Elipsometrické konfigurace

- rotační analyzátor (polarizátor)



- rotační analyzátor (polarizátor) s fixním kompenzátořem



- rotační kompenzátor

zdroj: Fujiwara, Spectroscopic ellipsometry

# Princip elipsometrie s rotačním analyzátozem (PSA)

Jak experimentálně určit  $\Psi$  a  $\Delta$ ?

Pro určitou pozici prvního polarizátoru (zkráceně polarizátoru) měříme závislost intenzity na pozici  $A$  druhého polarizátoru (analyzátozem). Závislost je harmonická funkce s periodou 180 stupňů:

$$I^{\text{exp}} = I_0^{\text{exp}} (1 + \alpha \cos(2A) + \beta \sin(2A))$$

Lze ukázat, že propagace elektrického pole konfigurací PSA dává na detektoru

$$E_A = E_0 r_s (\cos P \cos A \tan \Psi e^{i\Delta} + \sin P \sin A)$$

Jelikož pouze intenzita záření je měřena, dostáváme

$$I = |E_A|^2 = I_0 [1 - \cos(2P) \cos(2\Psi) + (\cos(2P) - \cos(2\Psi)) \cos(2A) + \sin(2P) \sin(2\Psi) \cos \Delta \sin(2A)]$$

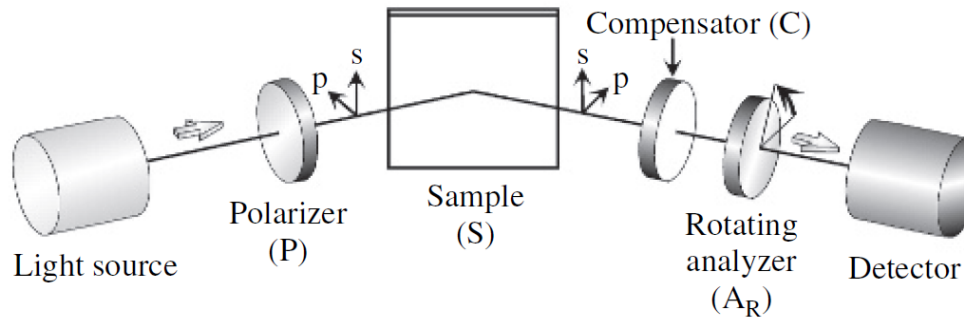
Vyřešením rovnosti  $I^{\text{exp}}=I$ , dostáváme

$$\tan \Psi = \sqrt{\frac{1 + \alpha}{1 - \alpha}} |\tan P| \qquad \cos \Delta = \frac{\beta}{\sqrt{1 - \alpha^2}} \text{sgn} P$$

Z elipsometrie s rotačním analyzátozem (polaryzátozem) určíme  $\tan \Psi$ , tedy  $\Psi$  v celém intervalu, ale „pouze“  $\cos \Delta$ , tedy  $\Delta$  pouze v intervalu 0-180° s tím, že v polohách blízko 0 a 180° je citlivost na  $\Delta$  limitně malá.

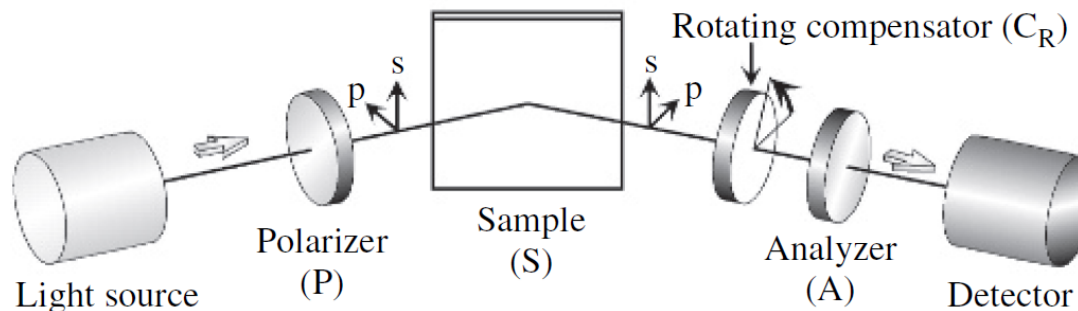
# Elipsometr s kompenzátorem (čtvrt-vlnovou destičkou)

(b) Rotating-analyzer ellipsometry with compensator (PSCA<sub>R</sub>)



- Fixní kompenzátor umožňuje posunout hodnotu  $\Delta$  ze slabých míst - 0 nebo  $180^\circ$ . Toto je užitečné při měření izolátorů nebo naopak kovů, kde  $\Delta$  je blízko 0 nebo  $180^\circ$ .  $\Delta$  kompenzátoru se jednoduše od naměřených dat odečte. Slabá místa se ovšem pouze přesunou do jiných hodnot  $\Delta$ .

(c) Rotating-compensator ellipsometry (PSC<sub>R</sub>A)

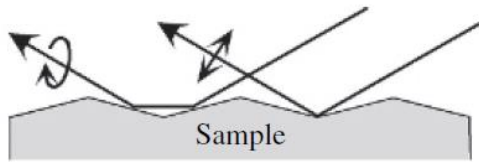


- Ideální metoda měření je ovšem v situaci, kdy můžeme naměřit několik spekter s různou hodnotou retardace, která eliminuje slabá místa úplně. Jedná se o tzv. elipsometrii s rotačním (proměnným) kompenzátorem. Touto metodou lze získat hodnotu  $\Delta$  v celém rozsahu  $0-360^\circ$  s vysokou přesností. Navíc je možno určit stupeň depolarizace světla odraženého od vzorku.

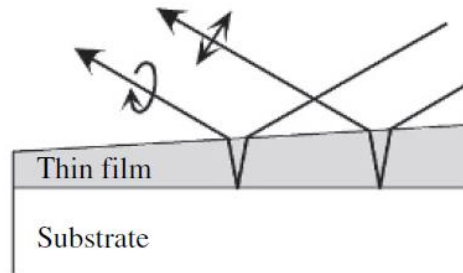
# Depolarizace

- Pouze s polarizátorem stupeň depolarizace nelze určit. Např. úplně depolarizované světlo nelze odlišit od kruhově polarizovaného. Čtvrtvlnová destička převede kruhově polarizované světlo na lineárně polarizované. Tuto změnu již detekují rotujícím polarizátorem. Depolarizované světlo po průchodu kompenzátorem bude opět depolarizované.
- Depolarizace vzniká nekoherentním interferencí vln. Např. nehomogenní vrstva generuje depolarizaci, případně odrazy na příliš tlusté vrstvě (substrátu). Depolarizaci lze v principu zahrnout do modelu pomocí Stokesových vektorů a tyto jevy kvantifikovat.

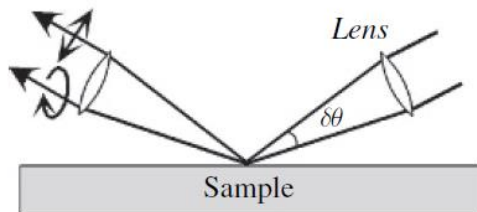
(a) Surface scattering



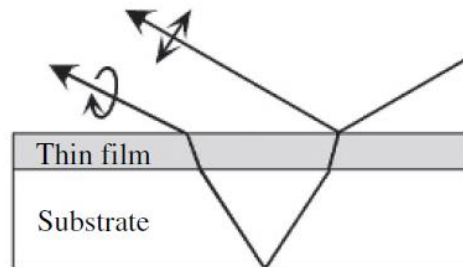
(d) Thickness inhomogeneity



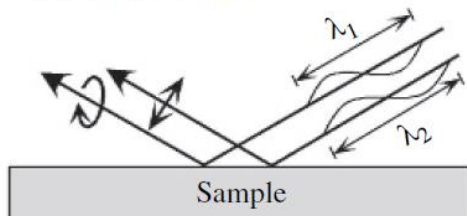
(b) Incidence angle variation



(e) Backside reflection



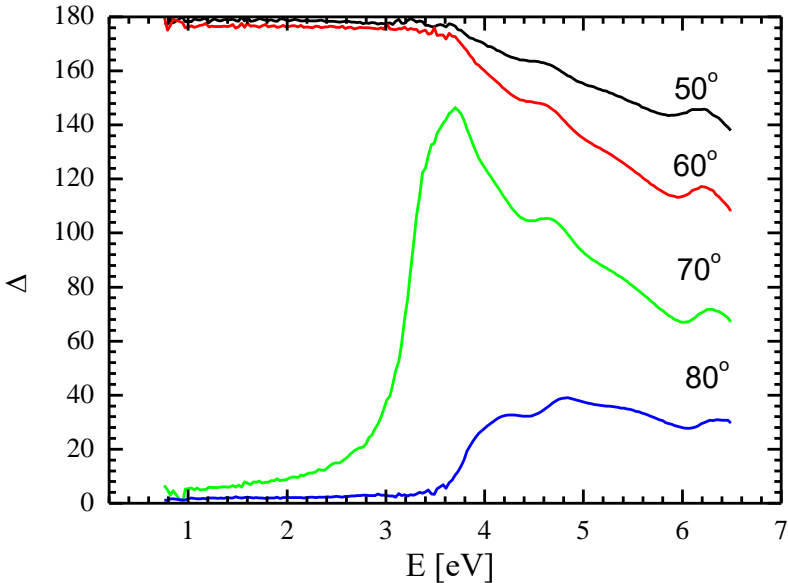
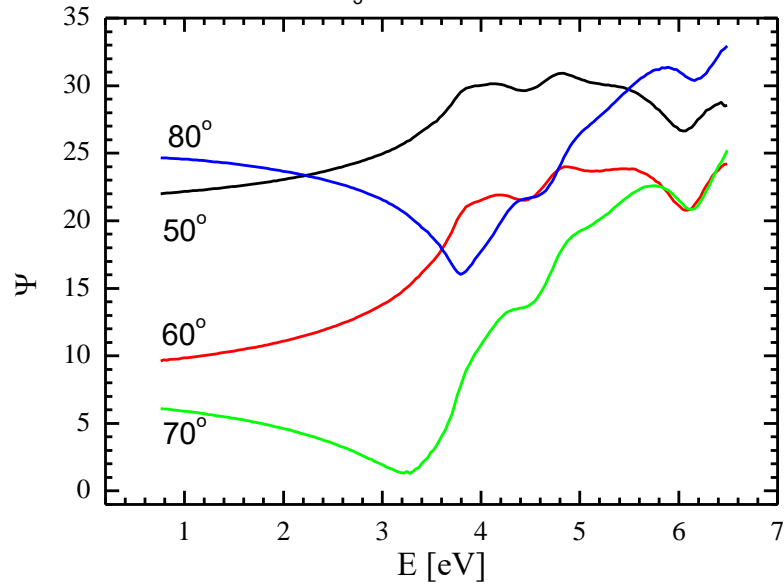
(c) Wavelength variation



# Mezipásové přechody na SrTiO<sub>3</sub> (kubický krystal, opticky izotropní)

data z elipsometru s rotačním analyzátořem

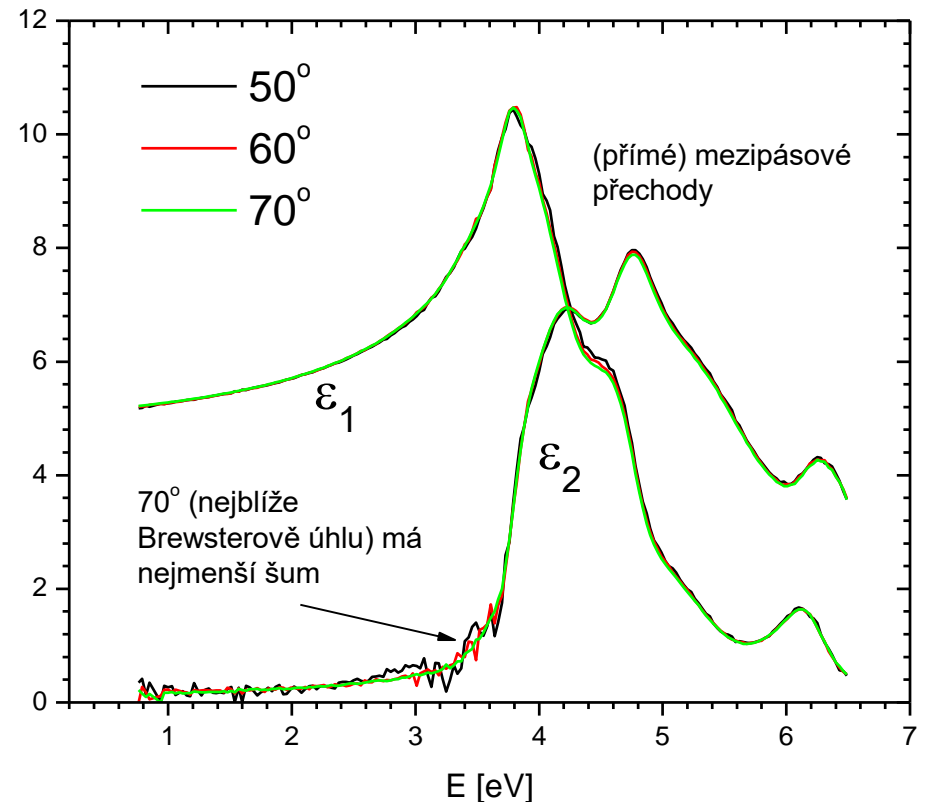
SrTiO<sub>3</sub>, d=0.5mm drsná zřda



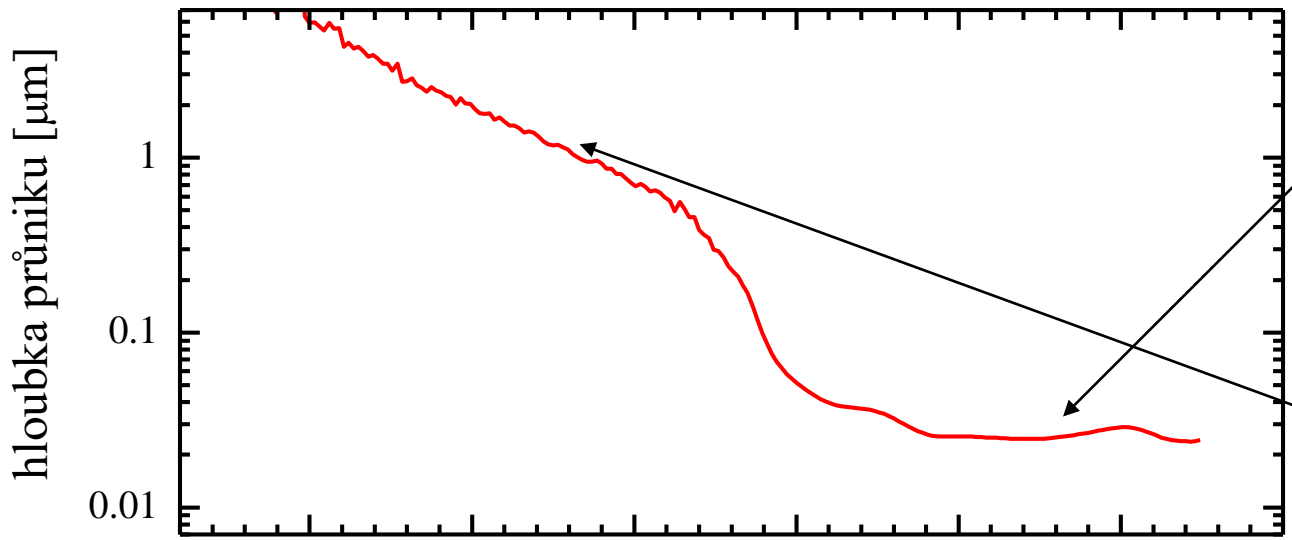
- optické konstanty obdrženy inverzí  $\Psi$  a  $\Delta$  s předpokladem polonekonečného vzorku (pseudo optické konstanty)

- nezávislost na úhlu demonstruje, že různé úhly neobsahují novou informaci

SrTiO<sub>3</sub>

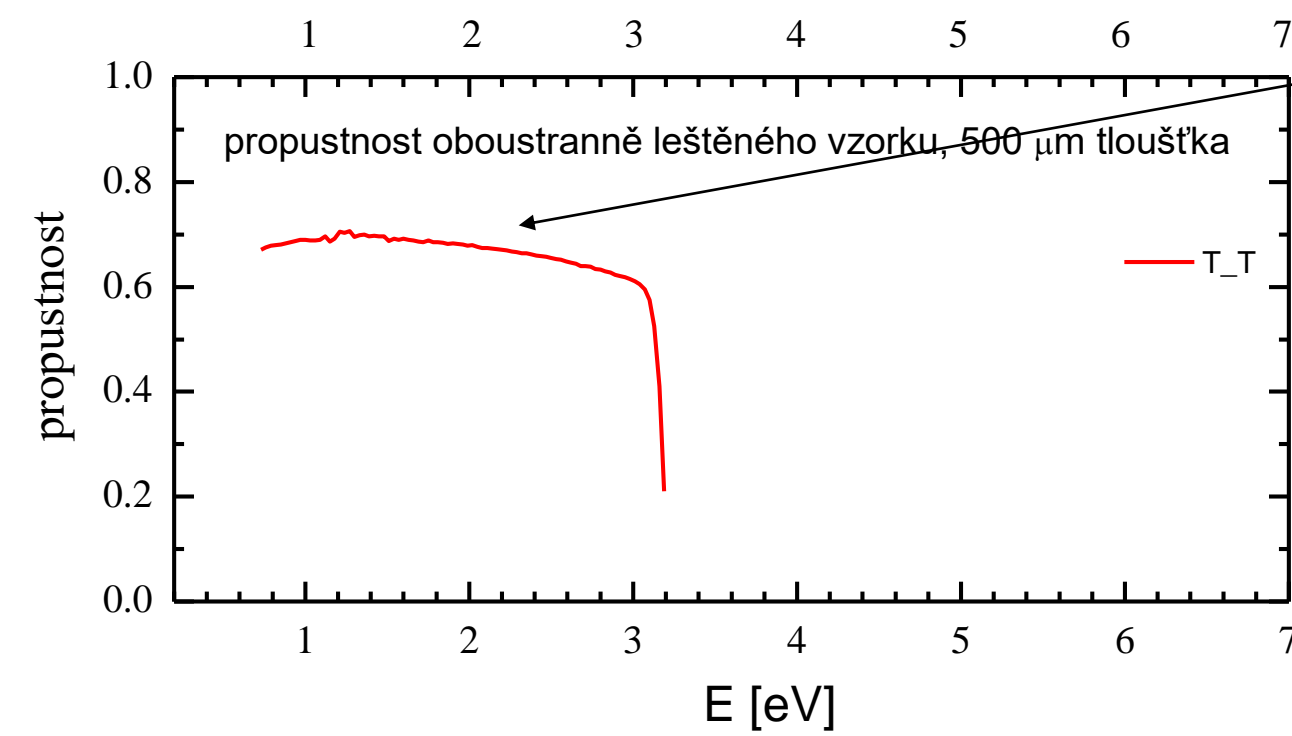






hloubka průniku v oblasti mezipásových přechodů ~20-30 nm

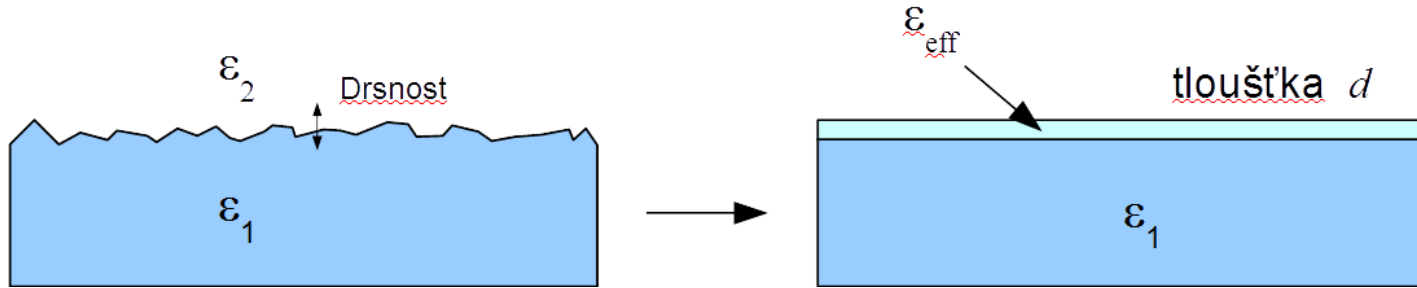
hloubka průniku v zakázaném pásu 1 μm?



nekompatibilní s transmisí na 500 μm vzorku.

# modelování drsnosti povrchu

- drsnost (mnohem menší než vlnová délka) je potřeba vzít v úvahu modelováním. Nejjednodušší způsob je pomocí teorie efektivního prostředí.



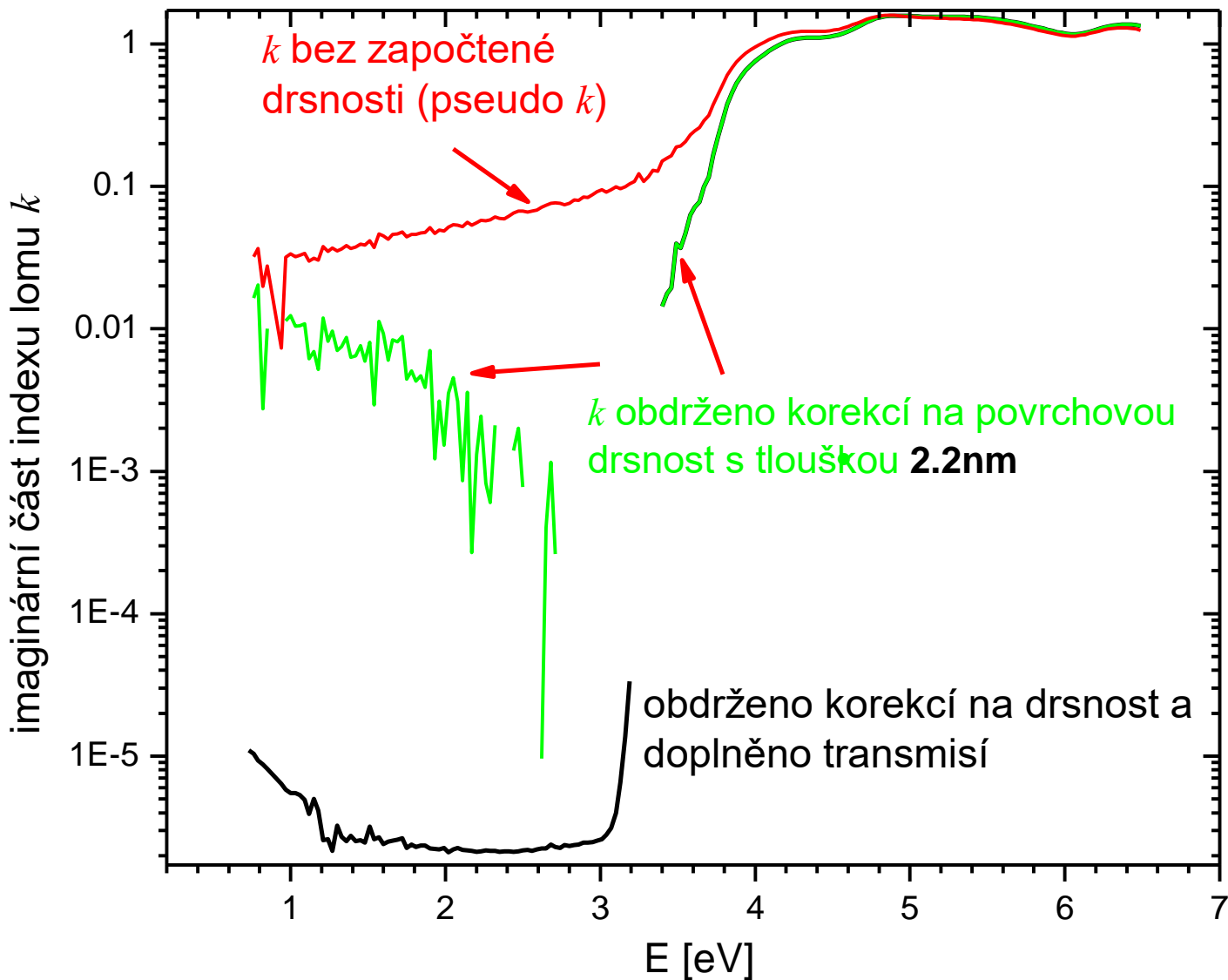
- teorie efektivního prostředí se pokouší vypočítat (efektivní) dielektrickou funkci prostředí složeného ze dvou komponent s dielektrickou funkcí  $\epsilon_1$  a  $\epsilon_2$ . Jelikož se jedná o aproximativní výpočty, existuje několik přístupů. Nejznámější jsou Bruggemanův model a Maxwell-Garnetova formule.

- Pro modelování drsnosti se nejvíce hodí Bruggemanova formule

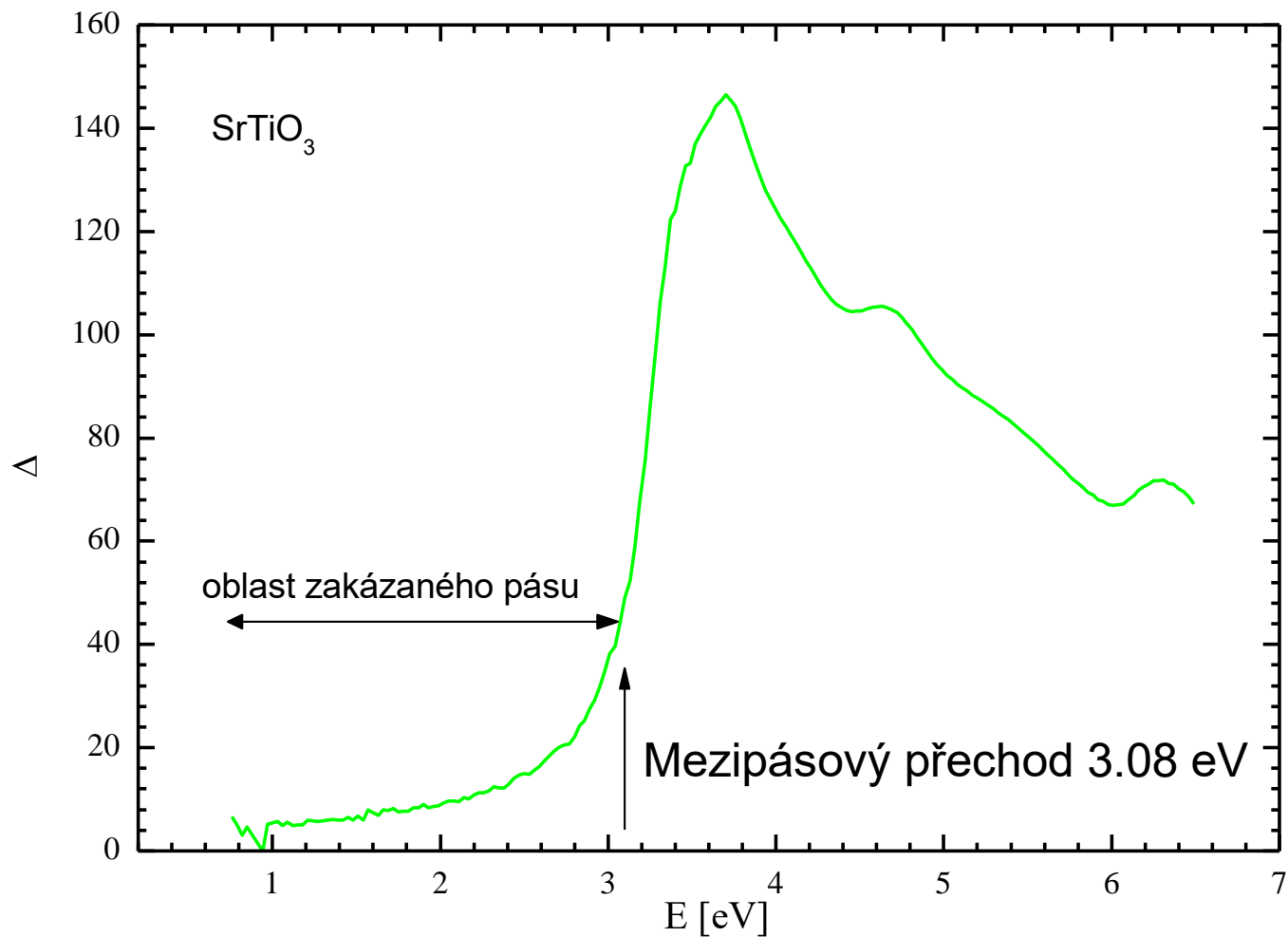
$$\sum_{j=1}^N f_j \frac{\epsilon_j - \epsilon_{\text{eff}}}{\epsilon_j + 2\epsilon_{\text{eff}}} = 0$$

- $N$ .. počet komponent, nejjednodušší případ  $N=2$
- $f_j$ ... objemový podíl komponenty

více informací o teoriích efektivního prostředí: A. Sihvola, electromagnetic mixing formulas and applications, 1999



- pomocí korekce na drsnost povrchu lze obdržet již reálné hodnoty  $k$  v oblasti zakázaného pásu
- tyto hodnoty lze velmi zpřesnit, pokud se navíc započte i propustnost materiálu (citlivost na malé hodnoty  $k$  oproti reflexním metodám)



- v oblasti zakázaného pásu (pod 3 eV) by měla  $\Delta$  být nula nebo 180 st., jelikož jsou Fresnelovy koeficienty reálné
- $\Delta$  má hodnoty v této oblasti až 20 stupňů, což je způsobeno právě povrchovou drsností cca 2 nm.
- Toto dává představu o citlivosti elipsometrie. Jelikož  $\Delta$  se standardně měří s přesností na 1 stupeň až 0.1 stupně, elipsometrie je v principu citlivá na vrstvy tlusté v řádu desetin nanometru.

# Models of dielectric function

- Cauchy
- Sellmaier
- Complex Lorentzian
- Tauc-Lorentz
- Critical point

# Modelování pod-po-bodu vs s KK modelem

- Jak reflexní tak ellipsometrická data lze modelovat dvěma způsoby
  - „bod-po-bodu“ (point-by-point), kdy každý frekvenční bod je zpracováván nezávisle na ostatních a jsou určeny obě části komplexní dielektrické funkce
  - Modelování funkcí, která je Kramersovsky-Kronigovsky (KK) konzistentní
- Fit bod-po-bodu zjevně umožňuje zobrazit data v co nejpůvodnější podobě, např. včetně šumu apod. A pro tyto účely se také používá.
  - V případě elipsometrie na isotropním materiálu se z  $\Psi$  a  $\Delta$  vypočítá reálná a imag. část diel. funkce. Principiálně nemusí být KK konzistentní
  - V případě odrazivosti je nutno použít KK relace.
- Modelování pomocí KK konzistentního modelu (např. Lorentzův, Gausův, Tauc-Lorentzův)
  - Obdržená dielektrická funkce je KK konzistentní
  - Použitím relativně malého množství členů (oscilátorů) je možno udělat vzhled do spektrální závislosti odezvové funkce, např. odlišit vodivostní odezvu od mezipásových přechodů, spočítat koncentraci z plasmové frekvence apod.
- Ve výzkumu je často použito obou přístupů. O toto se také budeme snažit v tomto praktiku...
- V případě elipsometrie je možno také udělat kompromis, tzn. model bod po bodu, který je ale KK konzistentní (tzv. Variational dielectric function, viz A. Kuzmenko , Rev. Sci. Instr. 76, 083108 (2005).

# Lorentzův oscilátor

Newtonova rovnice harmonicky buzeného mechanického oscilátoru:

$$m \frac{d^2 x(t)}{dt^2} = -k x(t) - m\gamma \frac{dx(t)}{dt} + qE_0 e^{-i\omega t}$$

Řešení:

$$x_0(\omega) = \frac{F}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\gamma}$$

$$\omega_0 = \sqrt{\frac{k}{m}}, \quad F = \frac{qE_0}{m}$$

polarizace je hustota dipólového momentu

$$P(\omega) = \sum_j n q x_{0,j}(\omega) \quad n: \text{koncentrace}$$

z definice dielektrické funkce:

$$\varepsilon(\omega) = 1 + \frac{P(\omega)}{\varepsilon_0 E(\omega)} = 1 + \sum_j \frac{\omega_{pl,j}^2}{\omega_{0,j}^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_j}$$

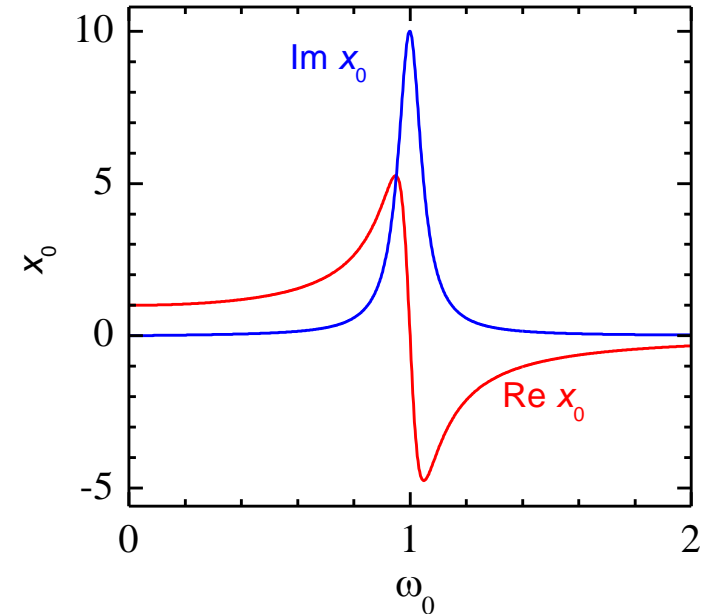
plasmová frekvence:

$$\omega_{pl,j} = \sqrt{\frac{q_j^2 n_j}{\varepsilon_0 m_j}}$$

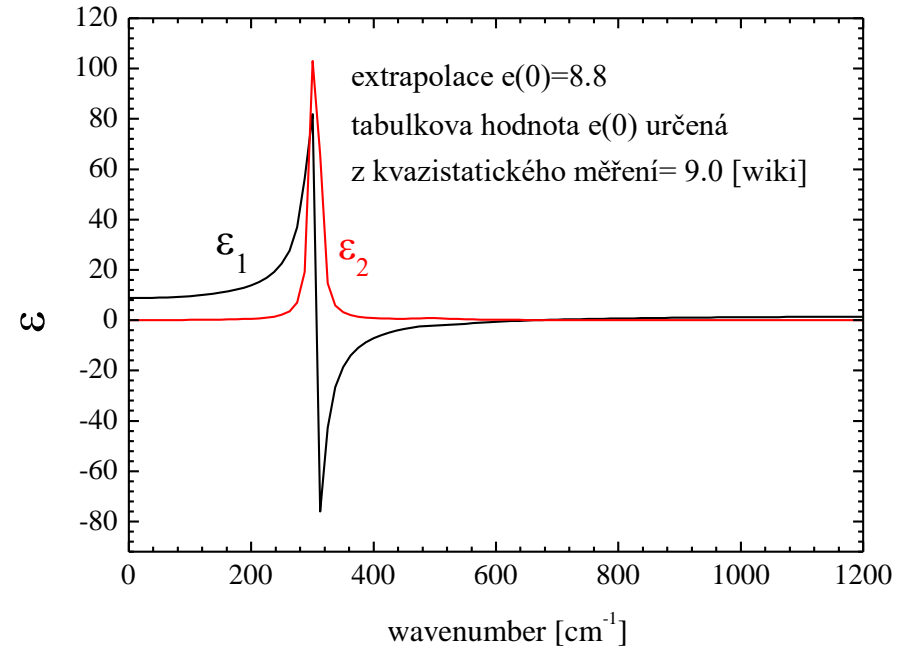
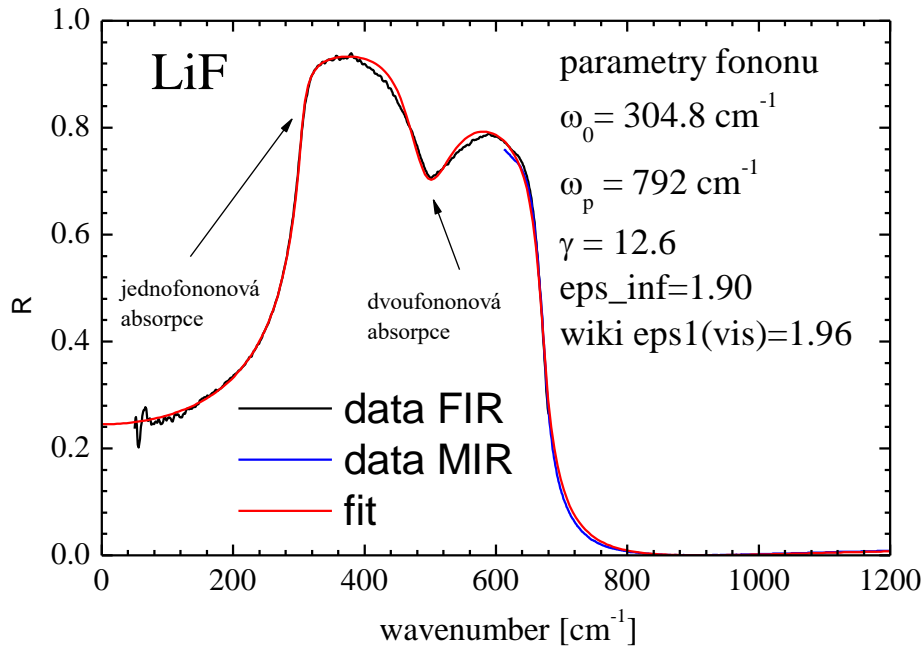
příspěvek vysokofrekvenčních přechodů lze nejhruběji aproximovat konstantou:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty + \sum_j \frac{\omega_{pl,j}^2}{\omega_{0,j}^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_j}$$

- dielektrická funkce nezávislých Lorentzových oscilátorů. Typicky dobře funguje pro fonony. Drudeův model kovů dostaneme dosazením  $\omega_0=0$



# ukázka: IČ Reflektivita LiF





# Drudeova formule

- odezvu volných nosičů náboje získáme pro  $\omega_0=0$

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty - \frac{\omega_{pl}^2}{\omega(\omega + i\gamma)}$$

plasmová frekvence  $\omega_{pl} = \sqrt{\frac{q^2 n}{\varepsilon_0 m^*}}$

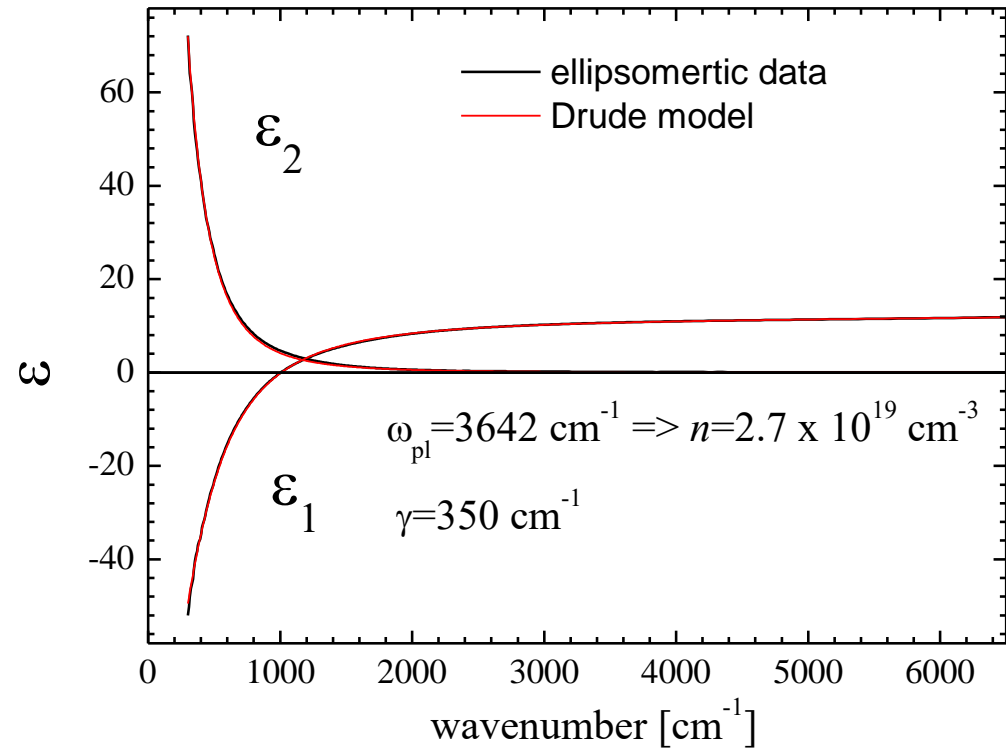
závisí na koncentraci nositelů  $n$  a na jejich efektivní hmotnosti  $m^*$

$\varepsilon_1$  prochází nulou (pro  $\gamma \sim 0$ ) pro

$$\omega = \frac{\omega_{pl}}{\sqrt{\varepsilon_\infty}}$$

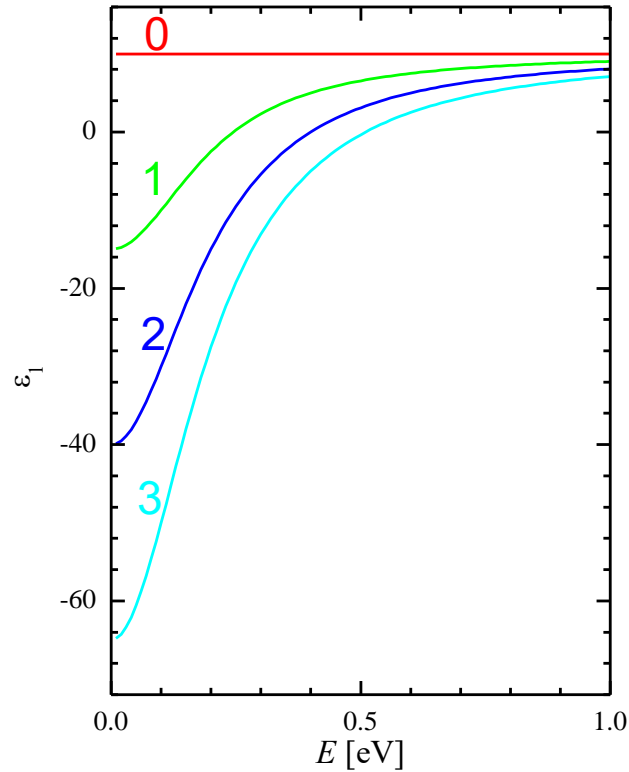
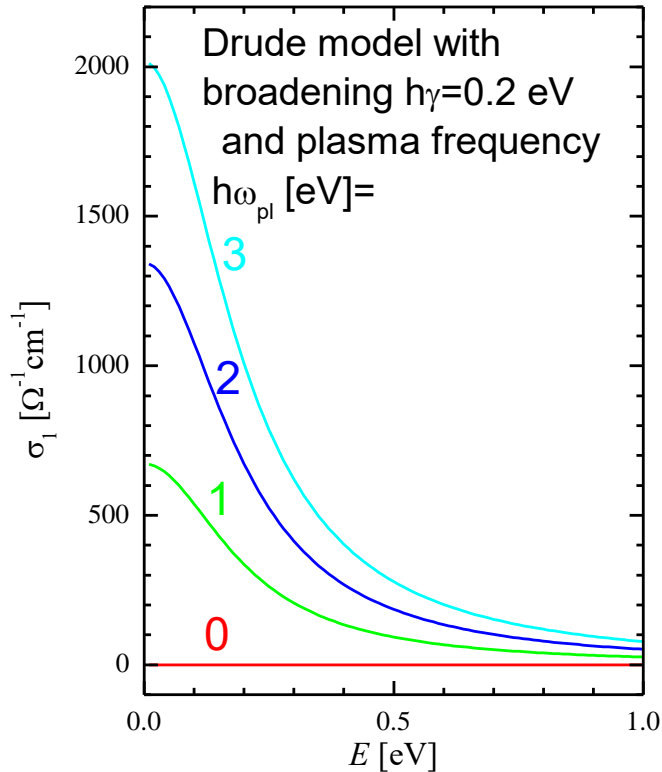
pro  $\varepsilon_\infty = 1$  je to přímo  $\omega_{pl}$ . Na této frekvenci se v látce propaguje longitudinální plasmon, proto se této frekvenci říká plasmová.

Example on n-doped silicon:



Nicméně, dielektrická funkce vodiče diverguje pro nulovou frekvenci, je tedy lepší použít optickou vodivost

# Optical response of the Drude model



Drude model

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_{\infty} - \frac{\omega_{pl}^2}{\omega(\omega + i\gamma)}$$

$$\omega_{pl} = \sqrt{\frac{q^2 n}{\epsilon_0 m^*}}$$

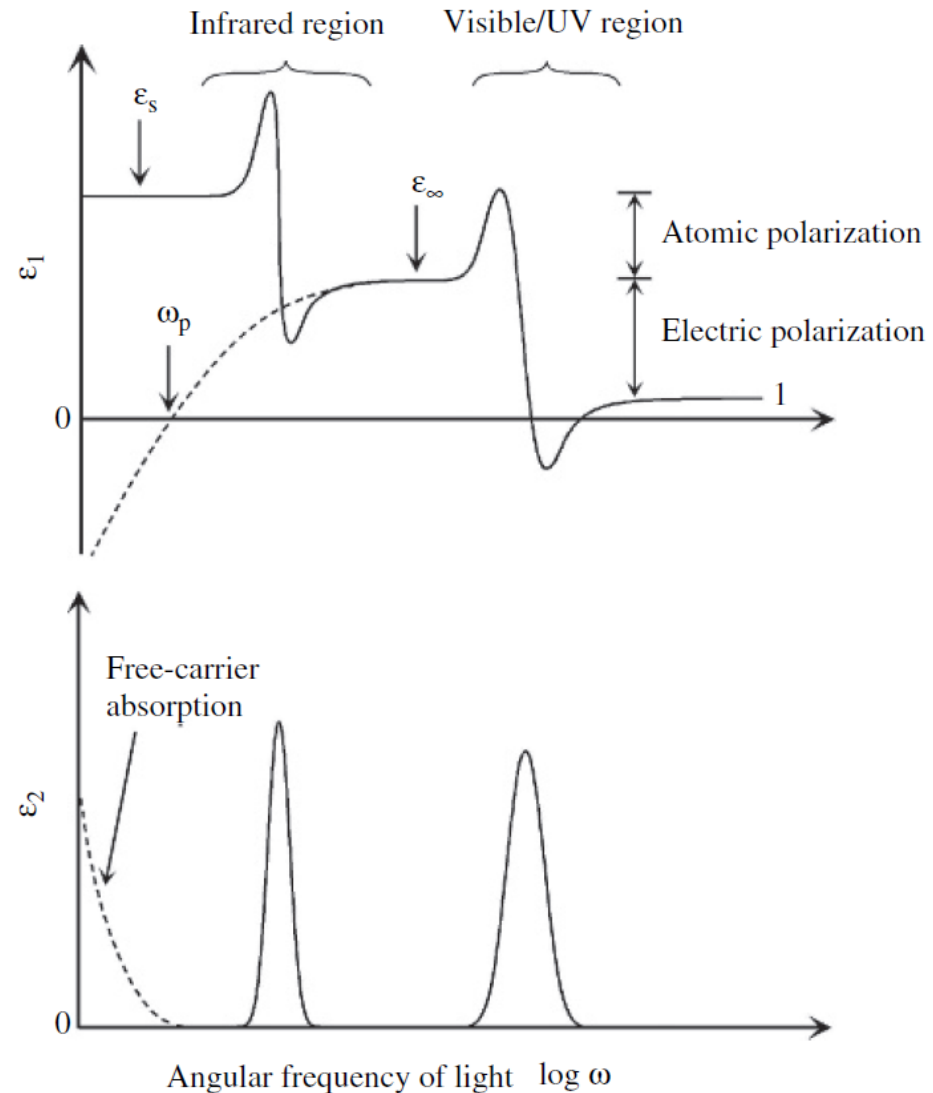
Optical conductivity  $\sigma(\omega) = -i\omega\epsilon_0(\epsilon(\omega) - 1)$

The real part of optical conductivity

is the absorption per unit of frequency  $\sigma_1(\omega) (= \omega\epsilon_0\epsilon_2(\omega))$

absorption sum rule:  $\int_0^{\infty} \sigma_1(\omega) d\omega = \frac{\pi n q^2}{2 \epsilon_0 m} = \text{const.}$

- v obecnosti jsou příspěvky do dielektrické funkce aditivní, tedy se můžou sčítat různé oscilátory, Drudeův příspěvek atp.

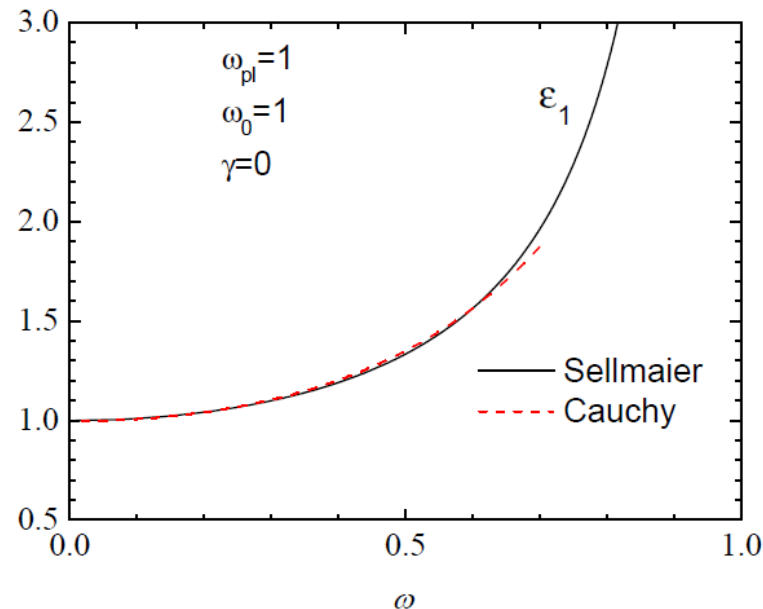


# Cauchy and Sellmaier model

- Models of dispersion in the transparent region
- **Sellmaier** model is given by the Lorentz model with zero broadening
- Usually one or two oscillators at higher energy than measurement range work very well
- Cauchy model is the development of the Sellmaier model at long wavelengths for index of refraction:
- It is only an approximation, but it is often used in the literature because of its simplicity

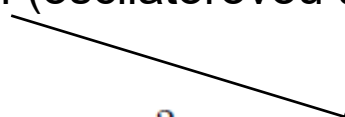
$$\varepsilon(\omega) = \sum_k \frac{\omega_{pl,k}^2}{\omega_k^2 - \omega^2}$$

$$N(\lambda) = A + \frac{B}{\lambda^2} + \frac{C}{\lambda^4} + \dots$$



# Lorentzův oscilátor s komplexní plasmovou frekvencí

- v případě interakce oscilátorů skrze polohu (typický příklad spřažených oscilátorů z mechaniky) dostaneme jen sadu neinteragujících zobecněných oscilátorů
- v případě interakce oscilátorů skrze člen rychlostí obržíme oscilátory s komplexní plasmovou frekvencí (oscilátorovou silou), viz např. J. Humlíček, PRB 61, 14554 (2000)

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_{\infty} + \sum_j \frac{\omega_{pl,j}^2 + i\omega\omega_{c,j}}{\omega_{0,j}^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_j}$$


- aby dielektrická funkce byla Kramersově-Kronigovsky konzistentní, je potřeba aby

$$\epsilon(-\omega) = \epsilon^*(\omega)$$

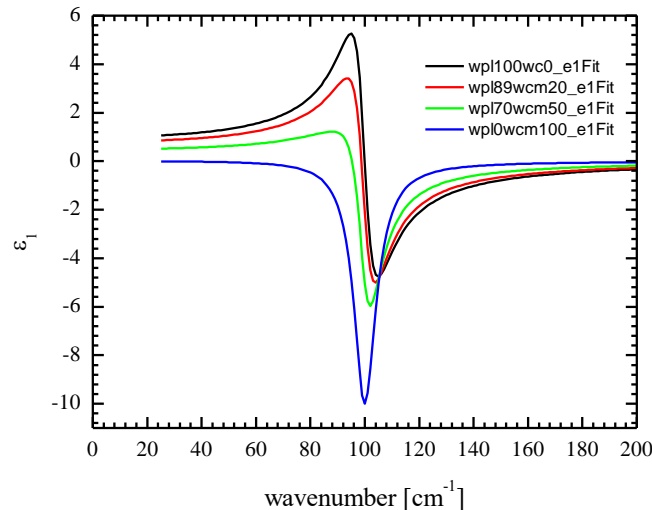
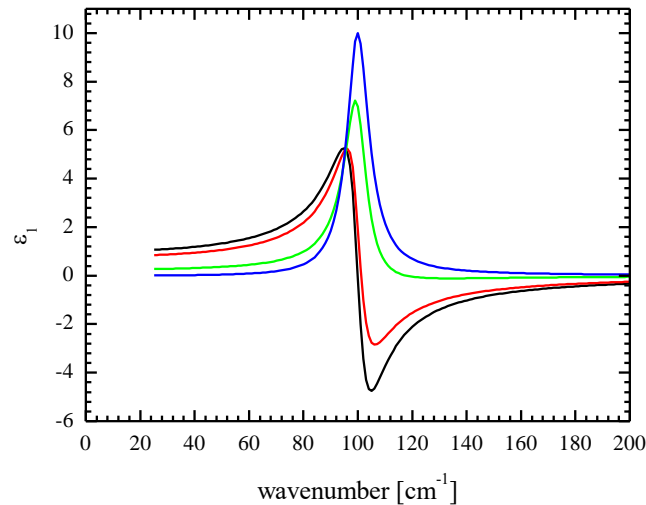
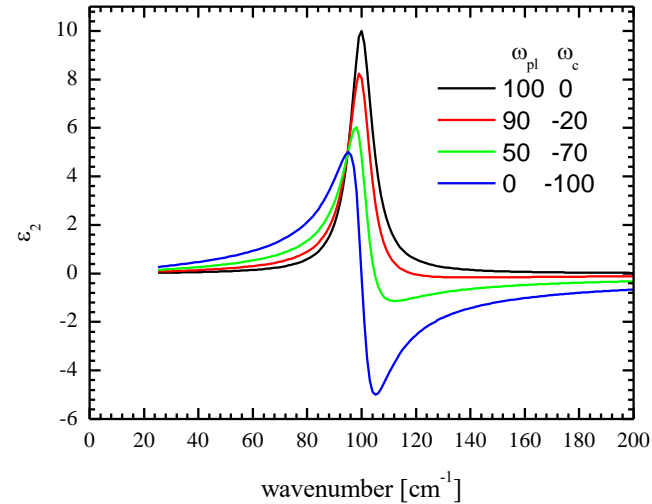
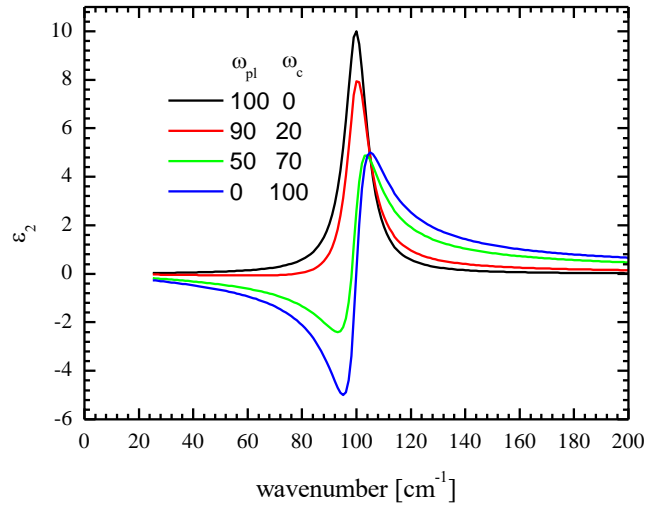
- z tohoto důvodu je  $\omega_c$  násobeno frekvencí
- na vyšších frekvencích než  $\omega_{0j}$  musí  $\epsilon(\omega)$  klesat jako  $1/\omega^2$ , aby byla KK konzistentní také vodivost

$$\sigma(\omega) = -i\omega\epsilon_0(\epsilon(\omega) - 1)$$

- z tohoto důvodu

$$\sum_j \omega_{c,j} = 0$$

# nabírání komplexní fáze v Lorenzově oscilátoru



- simulace pro  $\omega_0=100$ ,  $\gamma=10$
- při zvětšování imaginární části plasmové frekvence odpovídá míchání reálné a imaginární části standardního Lorenzova oscilátoru
- nebezpečí nefyzikálních výsledků při špatném zacházení (negativní  $\epsilon_2$ )

# Gaussův oscilátor

$$\epsilon_2(\omega) = A \left( e^{-\left(\frac{\omega-\omega_0}{\sigma}\right)^2} - e^{-\left(\frac{\omega+\omega_0}{\sigma}\right)^2} \right)$$

$$\epsilon_1(\omega) = \frac{2}{\pi} \text{P} \int_0^{\infty} \frac{\xi \epsilon_2(\xi)}{\xi^2 - \omega^2} d\xi$$

$$\text{FWHM} = \sigma 2\sqrt{2}$$

- symetricky vzatá gausovka aby  $\epsilon(-\omega) = \epsilon^*(-\omega)$

- imaginární část je třeba dopočítat pomocí Kramersových – Kronigových relací. Tato funkce je neanalytická, je třeba jí počítat numericky.

- Gaussův oscilátor je možno chápat jako odezva vibrace náhodného prostředí, kde intisická Lorentzova šířka je mnohem menší než Gaussovská. Pokud jsou šířky srovnatelné, je potřeba použít Voitův profil (Gauss-Lorentzův profil)

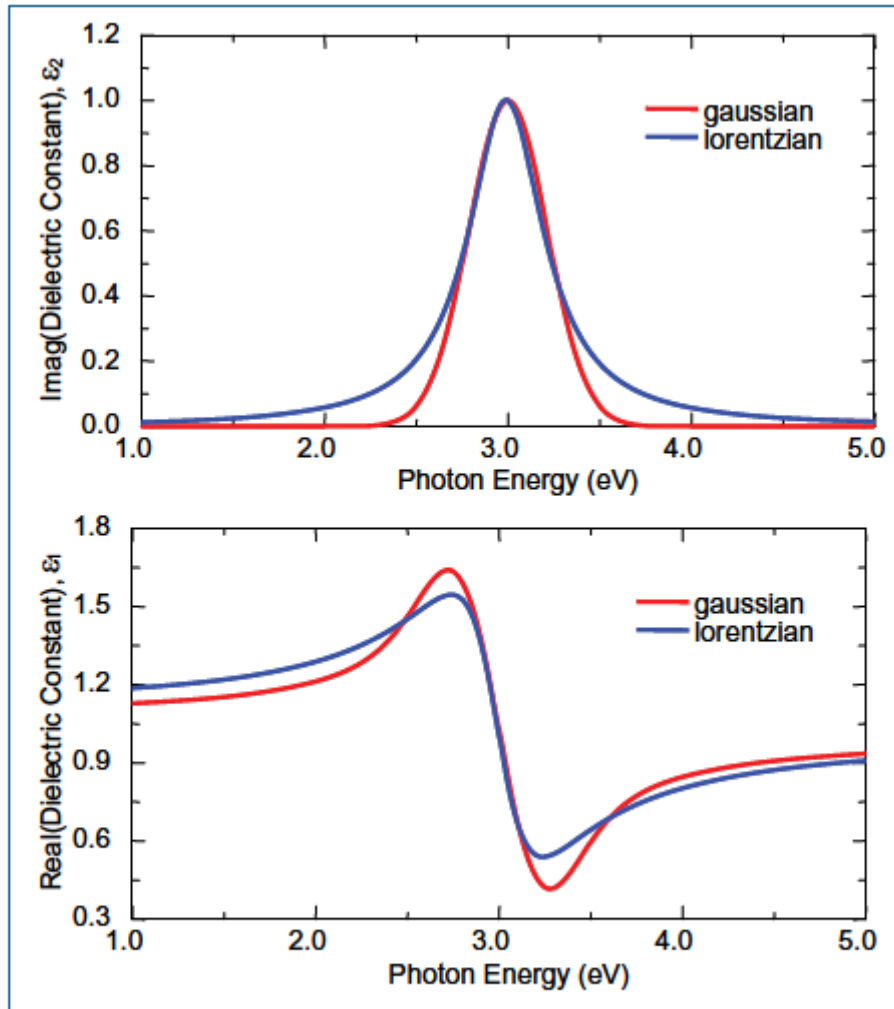


Figure 1. Comparison of Gaussian and Lorentz oscillators.

- Gaussův oscilátor je možno používat zcela fenomenologicky, např. pro fitování mezipásových přechodů, které nemají nic do činění ani s Lorentzovkami, ani s Gaussovkami. S Gaussovkami se v tomto případě lépe pracuje, protože rychleji mizí dále od rezonance (Lorentzoka má delší „ocas“)



# Voigtův oscilátor

•Voigtův profil je dán konvolucí mezi Gaussovským a Lorentzovským profilem. Je to neanalytická funkce, kterou je potřeba počítat numericky, viz např. J. Humlíček JQSRT 27, 437 (1982), a (1972), dohromady 450 citací

$$V(\omega - \omega_0) = \frac{1}{\pi} \frac{\gamma_L}{\gamma_D} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-t^2}}{\left(\frac{\omega - \omega_0}{\gamma_D} - t\right)^2 + \left(\frac{\gamma_L}{\gamma_D}\right)^2} dt.$$

Je možno vyjádřit jako reálnou část komplexní probability function

$$w(z) \equiv u(x, y) + iv(x, y) = \frac{i}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-t^2}}{z - t} dt \quad x = \frac{\omega - \omega_0}{\gamma_D}, \quad y = \frac{\gamma_L}{\gamma_D},$$

- Získáme tím také KK sdruženou imaginární část.
- Umožňuje modelovat např. fonony v materiálech s náhodnými defekty, kde se uplatňuje jak Lorentzovské, tak gausovské rošíření
- implementován v
  - Gnuplot
  - numpy

# Tauc-Lorentz model

Jellison and Modine , APL, 69, 371 (1996)

$$\text{For } E > E_g \quad \epsilon_2(E) = \frac{AE_0C(E - E_g)^2}{(E^2 - E_0^2)^2 + C^2E^2} \frac{1}{E}$$

The imaginary part is obtained by KK relations and can be expressed analytically ☺

$$\begin{aligned} \epsilon_{1\text{TL}}(E) = \epsilon_{1\text{TL}}(\infty) + \frac{1}{2} \frac{A}{\pi} \frac{C}{\zeta^4} \frac{a_{\ln}}{\alpha E_0} \ln \left[ \frac{(E_0^2 + E_g^2 + \alpha E_g)}{(E_0^2 + E_g^2 - \alpha E_g)} \right] - \frac{A}{\pi \cdot \zeta^4} \frac{a_{\text{atan}}}{E_0} \left[ \pi - \text{atan} \left( \frac{2E_g + \alpha}{C} \right) \right. \\ \left. + \text{atan} \left( \frac{-2E_g + \alpha}{C} \right) \right] + 2 \frac{AE_0C}{\pi \zeta^4} \left\{ E_g(E^2 - \gamma^2) \left[ \pi + 2 \text{atan} \left( \frac{\gamma^2 - E_g^2}{\alpha C} \right) \right] \right\} \\ - 2 \frac{AE_0C}{\pi \zeta^4} \frac{E^2 + E_g^2}{E} \ln \left( \frac{|E - E_g|}{E + E_g} \right) + 2 \frac{AE_0C}{\pi \zeta^4} E_g \ln \left[ \frac{|E - E_g|(E + E_g)}{\sqrt{(E_0^2 - E_g^2)^2 + E_g^2 C^2}} \right], \end{aligned}$$

where

$$a_{\ln} = (E_g^2 - E_0^2)E^2 + E_g^2 C^2 - E_0^2(E_0^2 + 3E_g^2),$$

$$a_{\text{atan}} = (E^2 - E_0^2)(E_0^2 + E_g^2) + E_g^2 C^2,$$

$$\zeta^4 = (E^2 - \gamma^2)^2 + \frac{\alpha^2 C^2}{4},$$

$$\alpha = \sqrt{4E_0^2 - C^2},$$

$$\gamma = \sqrt{E_0^2 - C^2/2}.$$

# Tauc-Lorentz model

Jellison and Modine , APL, 69, 371 (1996)

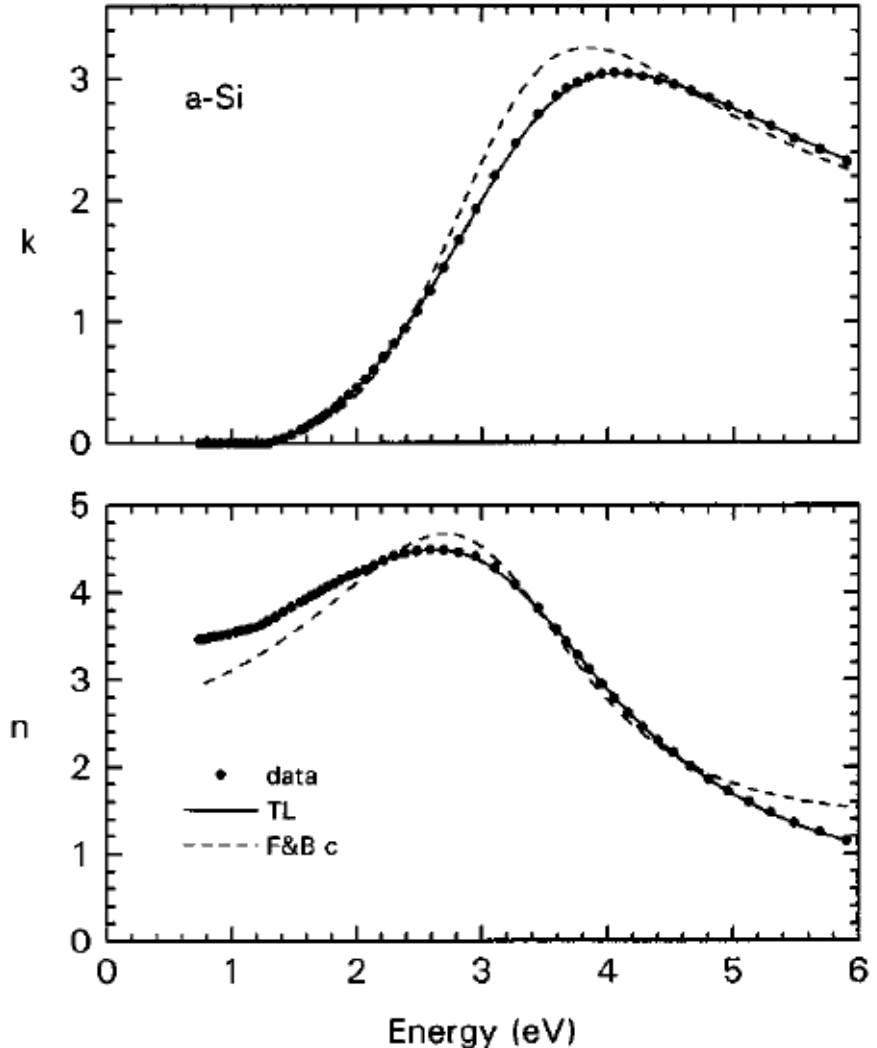
- Most importantly, below the bandgap  $E_g$ , the model is strictly zero. This allow to well model materials with bandgap.

- The model was developed for amorphous materials see the case of a-Si

$$\varepsilon_2(E) = \frac{AE_0C(E - E_g)^2}{(E^2 - E_0^2)^2 + C^2E^2} \frac{1}{E}$$

$E_g$ (eV)	$1.20 \pm 0.01$
$\epsilon_1(\infty)$	$1.15 \pm 0.06$
$A$ (eV)	$122 \pm 1$
$E_0$ (eV)	$3.45 \pm 0.01$
$C$ (eV)	$2.54 \pm 0.02$

- on purely phenomenologic basis can be used for insulators/semiconductors in general as a KK consistent model with zero absorption below bandgap.



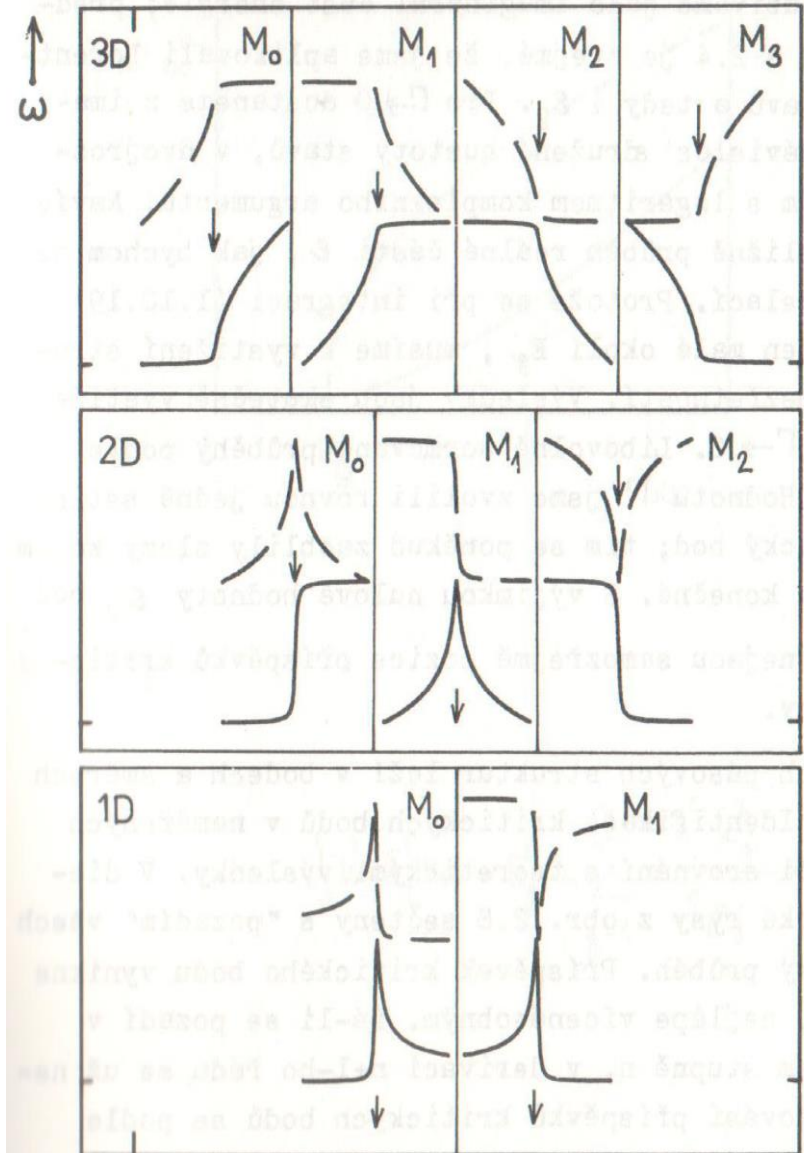
# Critical points of direct transitions

$$\frac{d^j \hat{\epsilon}(E)}{dE^j} = A e^{i\phi} (E - E_{CP} + i\Gamma)^{-n-j}$$

$n = -1/2, 0, +1/2, +1$  for 3D, 2D, 1D, 0D critical point  
 $j \dots$  derivative degree

- For  $A > 0$ , 3D crit. points  
 Phase  $\phi = 0, 90, 180, 270$  deg corresponds to  $M_1, M_2, M_3, M_0$  critical point.
- For  $A > 0$ , 2D crit. points  
 Phase  $\phi = 0, 90, 180$  deg corresponds to  $M_0$  (minimum),  $M_1$  (saddle point),  $M_2$  (maximum)
- $n = +1$  0D critical point corresponds discrete excitations (excitons)
- This is only an approximative formula that works reasonably only around the critical point—usually it is applied to **second derivative of dielectric function to suppress the behaviour in between critical points.**

Dielectric function,  $f \neq 0$

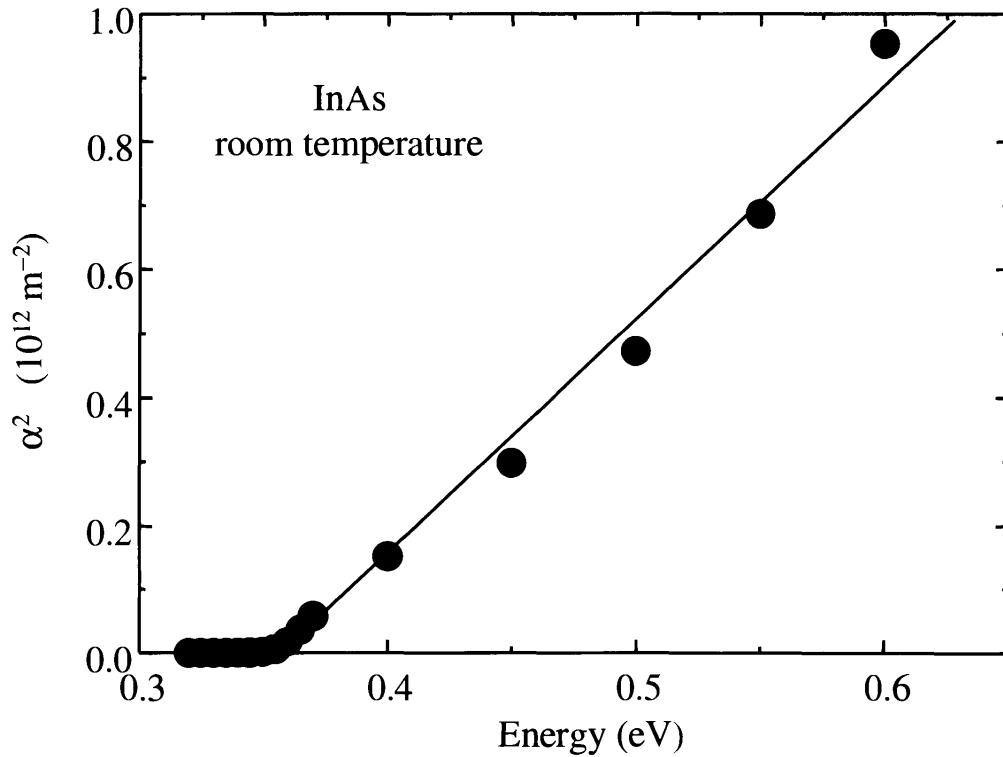


# Critical points of direct transitions

**Table 6.1.** Van Hove singularities in one, two, and three dimensions and the corresponding density of states  $D_j$ .  $C$  stands for an energy-independent constant

	Type	$D_j$	
		$E < E_0$	$E > E_0$
Three dimensions	$M_0$	0	$(E - E_0)^{1/2}$
	$M_1$	$C - (E_0 - E)^{1/2}$	$C$
	$M_2$	$C$	$C - (E - E_0)^{1/2}$
	$M_3$	$(E_0 - E)^{1/2}$	0
Two dimensions	$M_0$	0	$C$
	$M_1$	$-\ln(E_0 - E)$	$-\ln(E - E_0)$
	$M_2$	$C$	0
One dimension	$M_0$	0	$(E - E_0)^{-1/2}$
	$M_1$	$(E_0 - E)^{-1/2}$	0

# M<sub>0</sub> critical point



For  $\hbar\omega < E_g$ ,  $\alpha(\hbar\omega) = 0$ .

For  $\hbar\omega \geq E_g$ ,  $\alpha(\hbar\omega) \propto (\hbar\omega - E_g)^{\frac{1}{2}}$

- InAs has very small binding energy of excitons, M<sub>0</sub> should be not much affected by excitonic effects
- Square root behavior observed.

# Critical points of direct transitions in GaAs

P. Lautenschlager et al, Phys. Rev. B 35 9174 (1987)

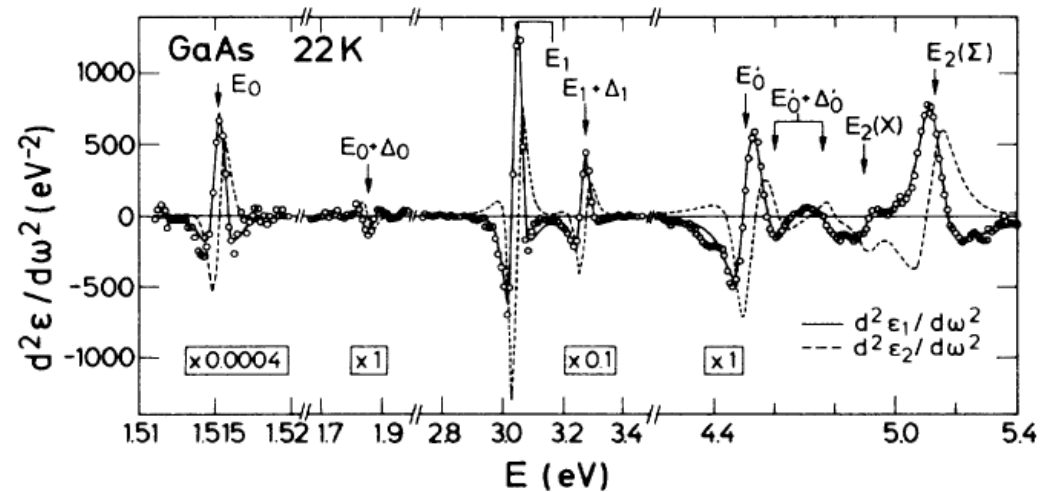
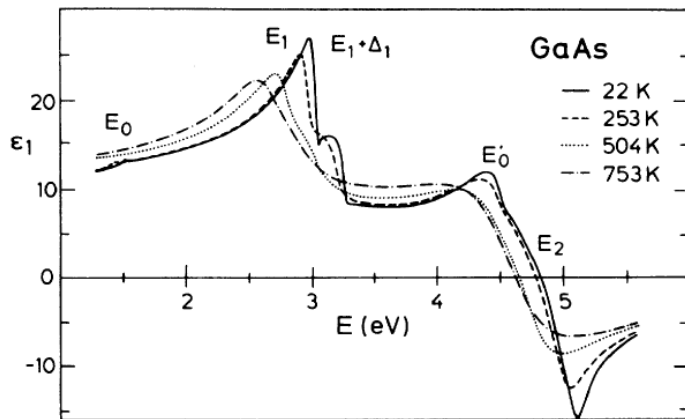
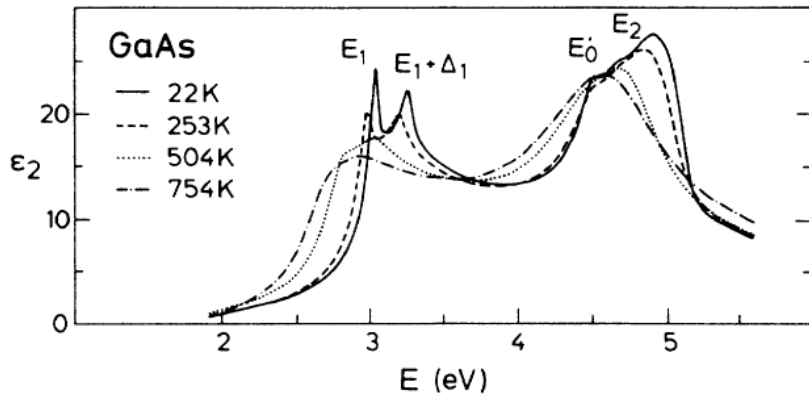


TABLE I. Values of the parameters  $E(0)$ ,  $\alpha$  and  $\beta$  obtained by fitting the critical-point energies versus temperature to the equations  $E(T) = E(0) - \alpha T^2 / (T + \beta)$ , and values of  $E_B$ ,  $a_B$ , and  $\Theta$  obtained by fitting with the equation  $E(T) = E_B - a_B [1 + 2/(e^{\Theta/T} - 1)]$ . The numbers in parentheses indicate error margins.

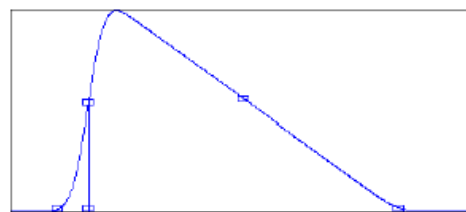
	$E(0)$ (eV)	$\alpha$ ( $10^{-4}$ eV K $^{-1}$ )	$\beta$ (K)	$E_B$ (eV)	$a_B$ (meV)	$\Theta$ (K)	Line shape
$E_0$	1.517(8)	5.5(1.3)	225(174)	1.571(23)	57(29)	240(102)	Excitonic
$E_0 + \Delta_0$	1.851(5)	3.5(4)	225(fixed)	1.907(9)	58(7)	240(fixed)	Excitonic
$E_1$	3.041(3)	7.2(2)	205(31)	3.125(9)	91(11)	274(30)	Excitonic (-300 K) 2D (300-760 K)
$E'_0$	4.509(8)	4.0(7)	241(177)	4.563(21)	59(26)	323(119)	2D
$E_2$	5.133(21)	6.6(4)	43(66)	5.161(33)	38(33)	114(95)	2D

# Hetzinger-Johs model for critical points

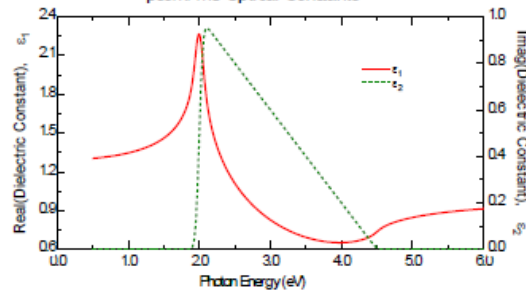
Johs, Herzinger et al, Thin Solid Films 313, (1998) 137-142

Herzinger, Johs et al, APL, J. Appl. Phys. 83, 3323 (1998)

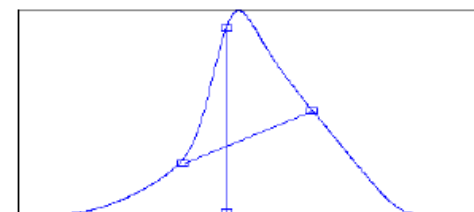
*Psemi-M0*



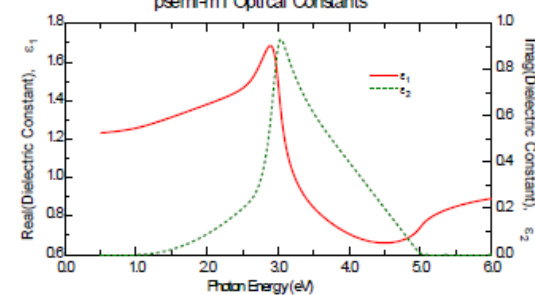
psemi-m0 Optical Constants



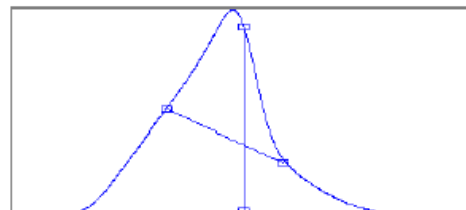
*Psemi-M1*



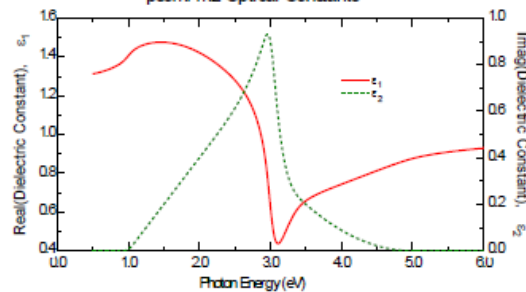
psemi-m1 Optical Constants



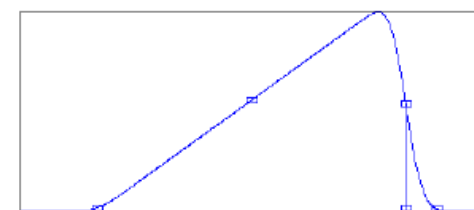
*Psemi-M2*



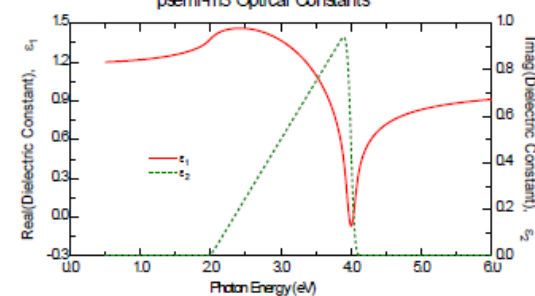
psemi-m2 Optical Constants



*Psemi-M3*



psemi-m3 Optical Constants





# Hertzinger-Johs model for critical points

Johs, Hertzinger et al, Thin Solid Films 313, (1998) 137]142  
 Hertzinger, Johs et al, APL, J. Appl. Phys. 83, 3323 (1998)

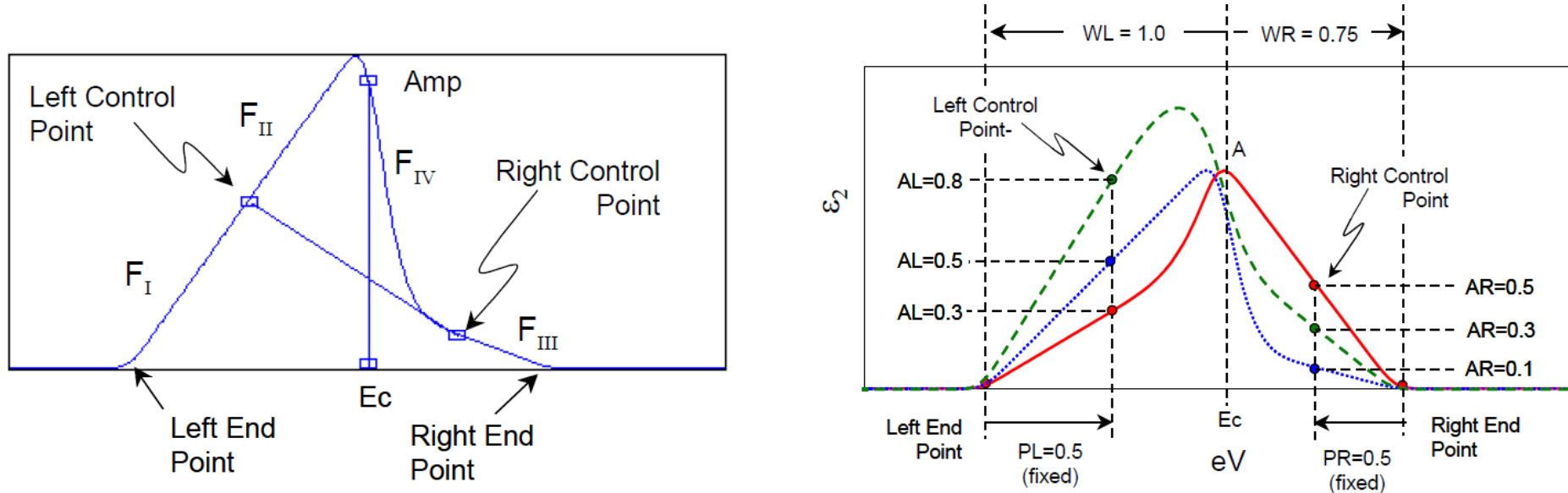


Figure 8-31. Two views of Psemi-Tri oscillator. **Left:** Genosc dielectric function display showing the polynomial spline functions  $F_I$ ,  $F_{II}$ ,  $F_{III}$  &  $F_{IV}$ , as well as the endpoints and control-points. **Right:** Psemi-Tri shape for several combinations of  $AL$  &  $AR$ .

- Phenomenologic way how to model critical points in absolute dielectric function
- The information about dimensionality is lost
- Implemented in Woollam WVASE software

# Hetzinger-Johs model for critical points

Johs, Herzinger et al, Thin Solid Films 313, (1998) 137]142

Herzinger, Johs et al, APL, J. Appl. Phys. 83, 3323 (1998)

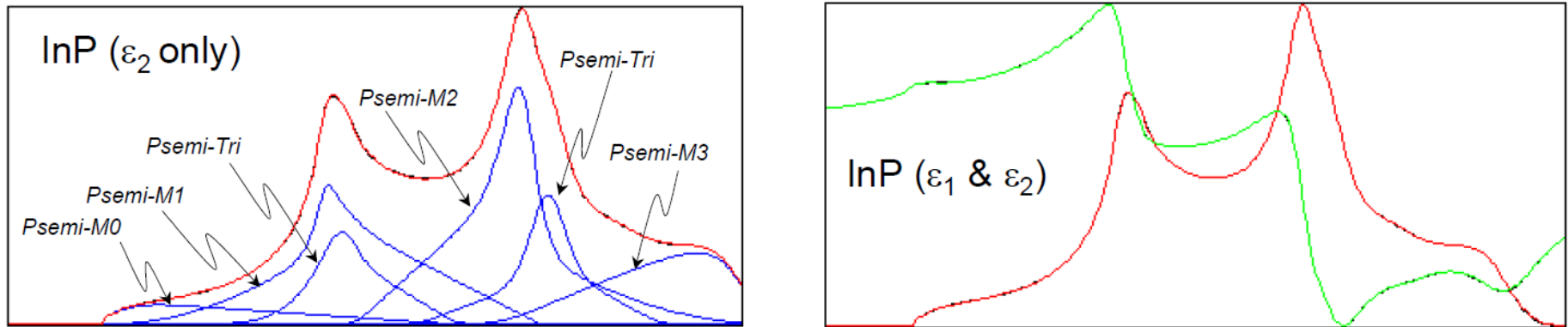


Figure 8-38. **Top:** Genosc Oscillator list for Psemi oscillator fit to InP.mat. **Bottom:** Details of Genosc dielectric function display for same fit. Left:  $\epsilon_2$  only. Right:  $\epsilon_1$  &  $\epsilon_2$ ...

- Phenomenologic way how to model critical points in absolute dielectric function: need to analyze thin films, anisotropic effects etc
- The information about dimensionality is lost
- Implemented in Woollam WVASE software

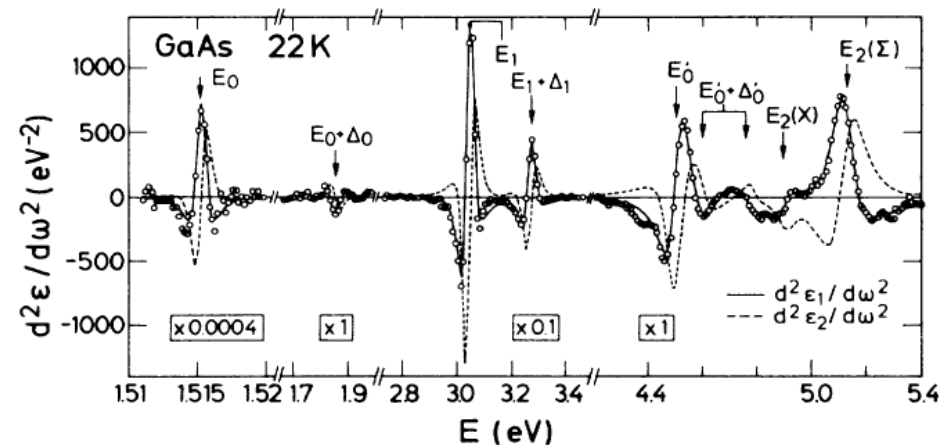
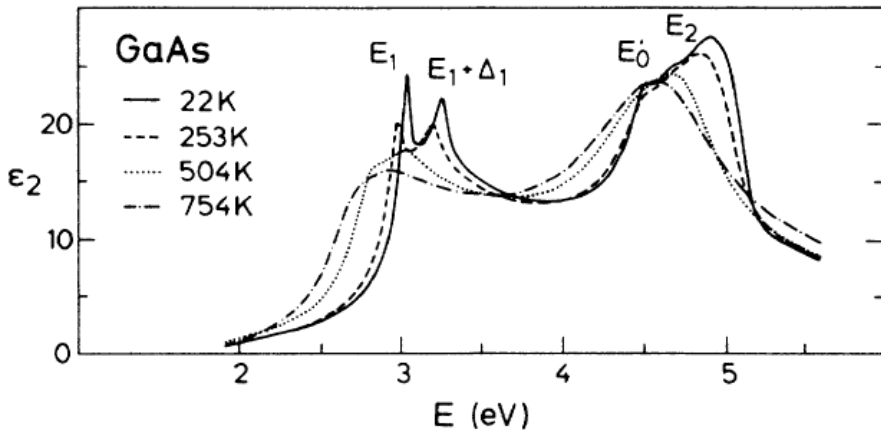
# Spin-orbit splitting

**Table 6.2.** The valence band spin-orbit splitting at zone center ( $\Delta_0$ ) and in the  $\langle 111 \rangle$  directions ( $\Delta_1$ ) and their ratio in several tetrahedrally coordinated semiconductors (list compiled from [6.19]). GaN values were calculated with the LCAO-LDA method in [6.26]. The experimental value of  $\Delta_0$  for GaN is  $17 \pm 1$  meV [6.26]

Semiconductor	$\Delta_0$ [eV]	$\Delta_1$ [eV]	$\Delta_0/\Delta_1$
Si	0.044	0.03	1.47
Ge	0.296	0.187	1.58
GaN	0.019	0.032	0.59
GaAs	0.341	0.220	1.55
InP	0.108	0.133	0.81
InAs	0.38	0.267	1.42
InSb	0.803	0.495	1.62
ZnSe	0.432	0.27	1.59
CdTe	0.949	0.62	1.53

Recommended literature:

Yu, Cardona, Fundamentals of semiconductors



# Excitonic effects in simplest approximation of Bohr atom

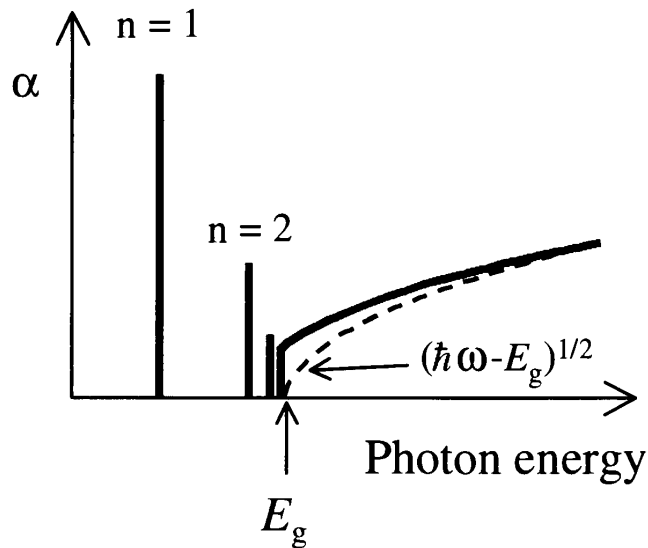
Fox, optical properties of solids

$$E_n = E_g - \frac{R_X}{n^2}.$$

$$R_X = (\mu/m_0\epsilon_r^2) R_H$$

$$\frac{1}{\mu} = \frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_h}$$

Rydberg constant of He:  $R_H = 13.6$  eV



**Fig. 4.2** Band edge absorption spectrum for a direct gap semiconductor with excitonic effects included. The dashed line shows the expected absorption when the excitonic effects are ignored.

# Excitons in narrow bandgap semiconductors – Wannier excitons (small binding energy, large diameter)

$$R_X = (\mu/m_0\epsilon_r^2) R_H$$

$$R_H = 13.6 \text{ eV}$$

$\epsilon_r$  is  $\sim 10$

Effective mass  $\sim 0.1 m$

$$R^* \sim 0.001 R_H$$

**Table 4.1** Calculated Rydberg constant and Bohr radius of the free excitons in several direct gap III–V and II–VI compound semiconductors.

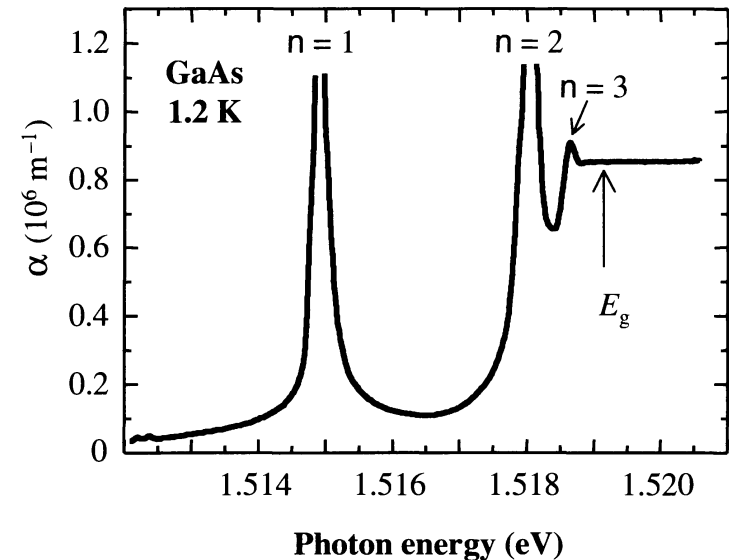
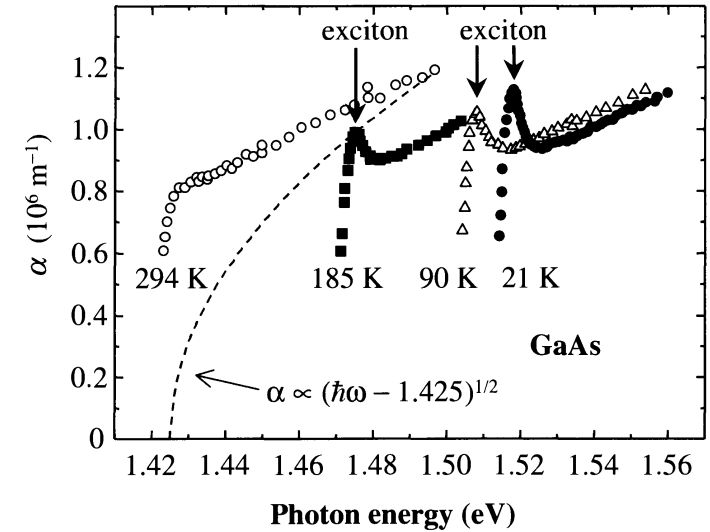
$E_g$ : band gap,

$R_X$ : exciton Rydberg constant from eqn 4.1,

$a_X$ : exciton Bohr radius from eqn 4.2.

The bracketed figures for InSb indicate that there has been no experimental confirmation of the values.

Crystal	$E_g$ (eV)	$R_X$ (meV)	$a_X$ (nm)
GaN	3.5	23	3.1
ZnSe	2.8	20	4.5
CdS	2.6	28	2.7
ZnTe	2.4	13	5.5
CdSe	1.8	15	5.4
CdTe	1.6	12	6.7
GaAs	1.5	4.2	13
InP	1.4	4.8	12
GaSb	0.8	2.0	23
InSb	0.2	(0.4)	(100)



# Excitons in large bandgap insulators – Frenkel excitons (large binding energy, small diameter)

**Table 4.3** Properties of Frenkel excitons in selected alkali halide crystals:

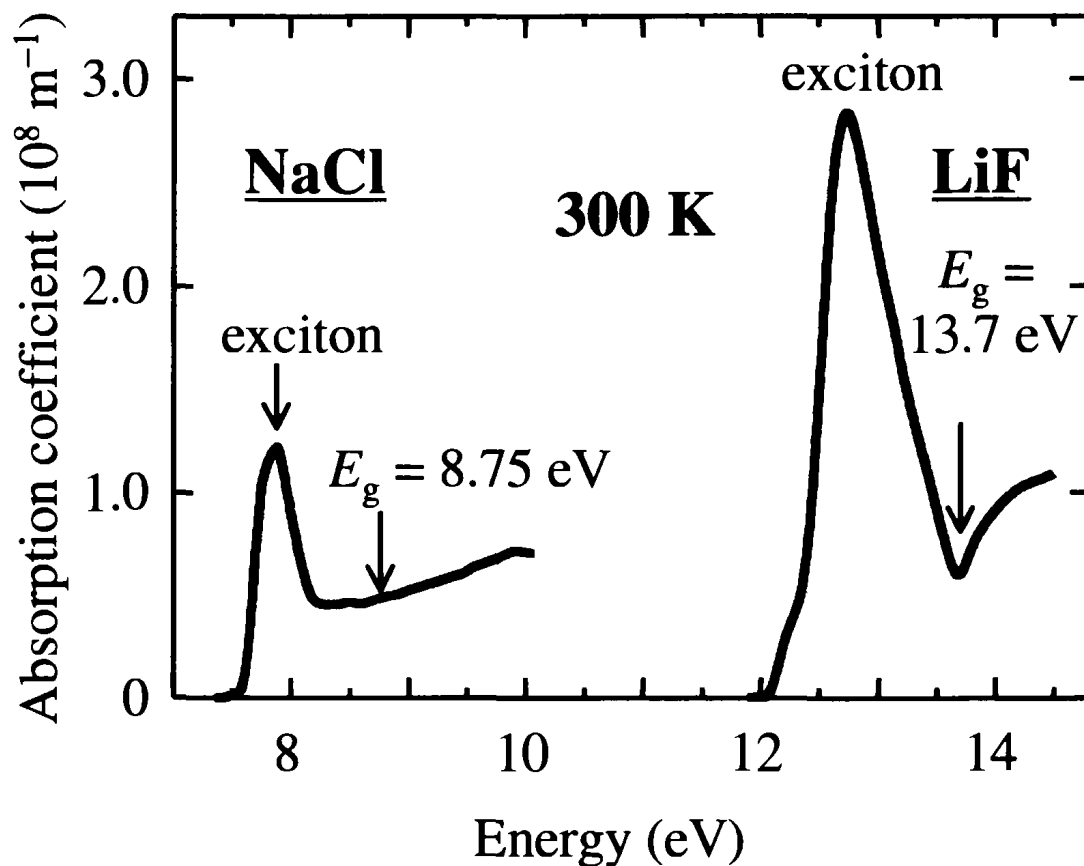
$E_g$ : band gap,

$E_1$ : energy of the  $n = 1$  exciton line,

$E_b$  binding energy of the  $n = 1$  exciton.

All energies are given in eV. After [3].

Crystal	$E_g$	$E_1$	$E_b$
KI	6.3	5.9	0.4
KBr	7.4	6.7	0.7
KCl	8.7	7.8	0.9
KF	10.8	9.9	0.9
NaI	5.9	5.6	0.3
NaBr	7.1	6.7	0.4
NaCl	8.8	7.9	0.9
NaF	11.5	10.7	0.8
CsF	9.8	9.3	0.5
RbF	10.3	9.5	0.8
LiF	13.7	12.8	1.9



# Inverzní (regresní) problém

- měříme výsledek (odezvu), ne přímo vlastnosti materiálu
- vlastnosti materiálu (optické konstanty, anizotropie, tloušťky, nehomogenity...) jsou často spjaty s odezvou nelineárními a transcendentními rovnicemi, které nelze analyticky invertovat
- řešení je nutno hledat numericky, minimalizací rozdílu předpovědi modelu a měřených dat, typicky se jedná o sumu kvadrátů odchylek:

$$\sum_{\lambda, \theta} \left[ \frac{(\Psi_{\text{exp}}(\lambda) - \Psi_{\text{teor}}(\lambda))^2}{\delta\Psi_{\text{exp}}(\lambda)^2} + \frac{(\Delta_{\text{exp}}(\lambda) - \Delta_{\text{teor}}(\lambda))^2}{\delta\Delta_{\text{exp}}(\lambda)^2} (\dots + t_{\text{corr}}T(\lambda) + r_{\text{corr}}R(\lambda)) \right]$$

← vážení pomocí chyb, které elipsometrické měření přímo naměří!

- Pro numerickou minimalizaci sumy čtverců se nejčastěji používá Marquardt-Levenbergův (ML) algoritmus implementovaný v celé řadě programových balíků (např. numpy)

# Example: ferromagnetic response of $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{CoO}_3$

J. B. Goodenough J. Phys. Chem. Solids 6, 287 (1958)

Wu et al, PRB 174408 (2003)

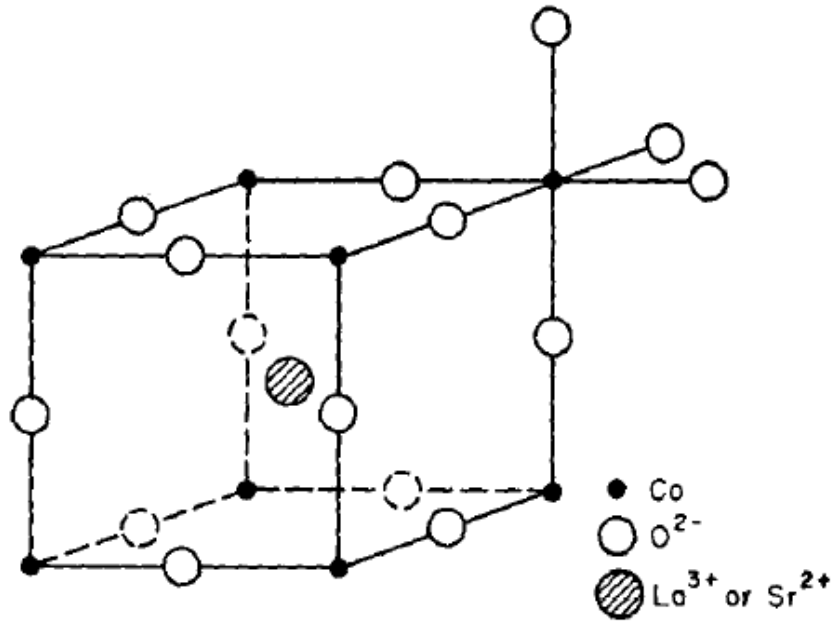
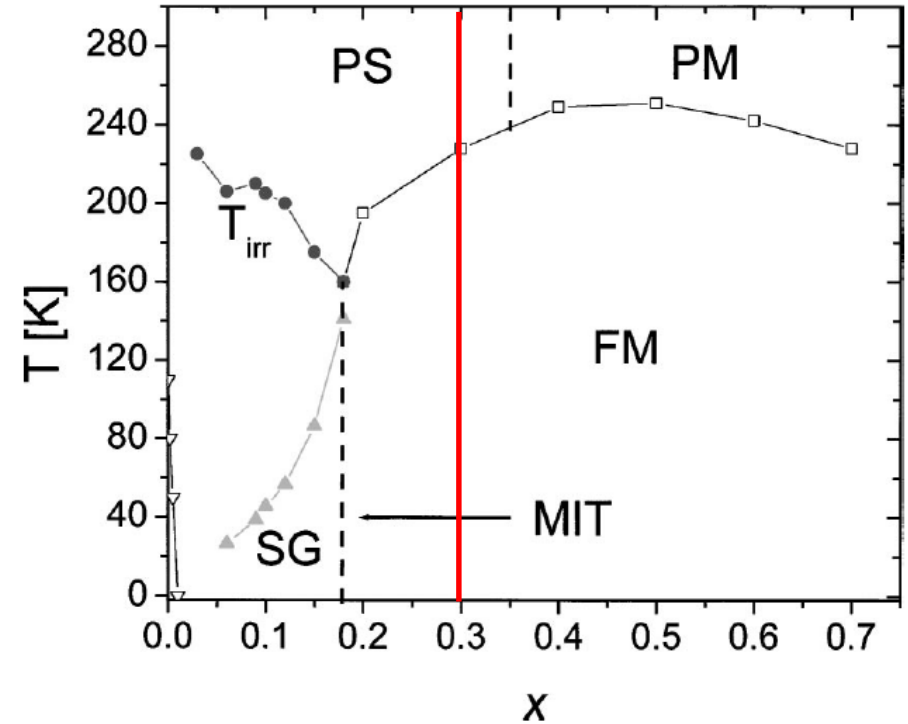


FIG. 1. Ideal perovskite-type structure for the system  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_3$ .

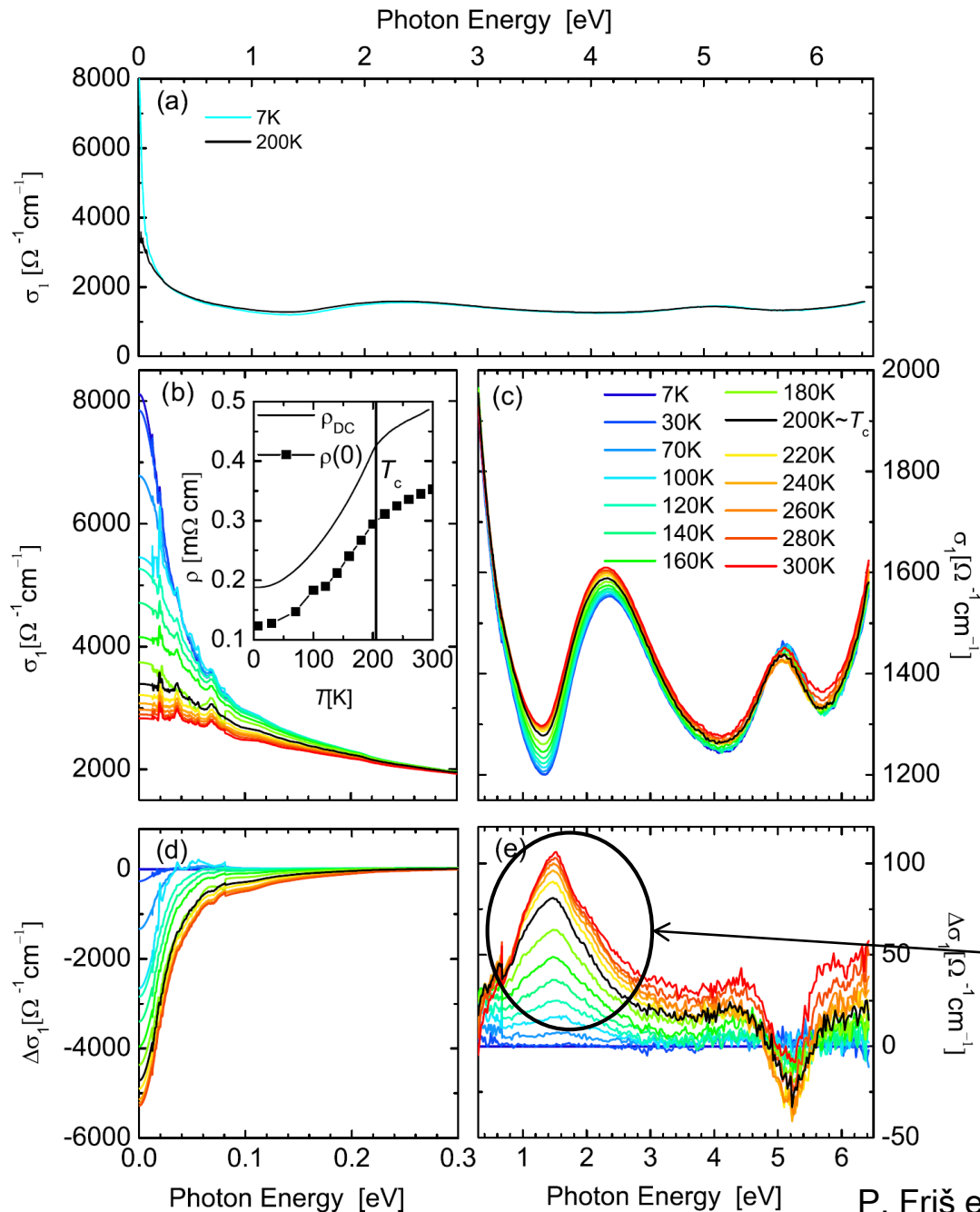
- double exchange vs. superexchange discussed as a mechanism of ferromagnetism
- superexchange suggested



- Ferromagnetic for  $x > 0.18$  with  $T_c$  up to 250K and magnetic moment  $\sim 1.6 \mu_B/\text{Co}$
- For  $x=0$  band insulator paramagnet with transition to a metallic state above  $\sim 500$  K, strain induced ferromagnetism



# Optical conductivity of $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{CoO}_3$



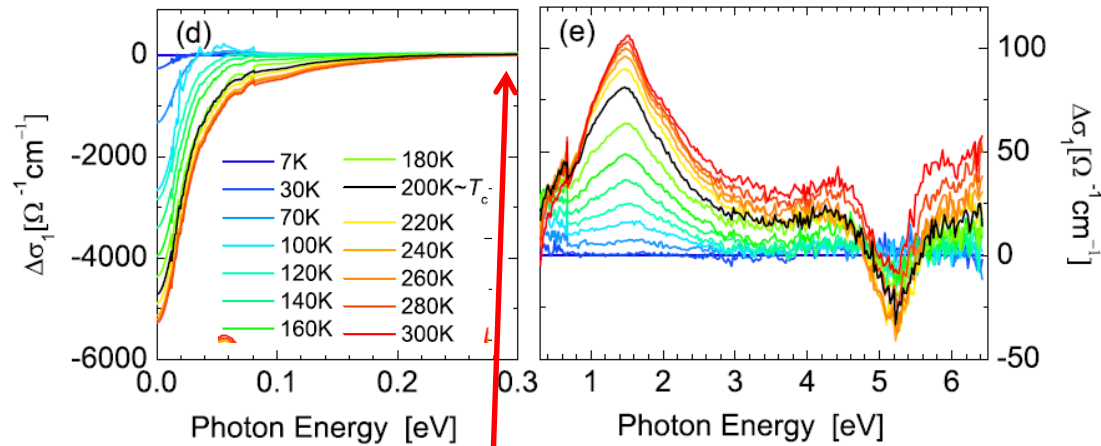
Absolute  
conductivity:

Relative  
conductivity  
vs.  $T=7\text{ K}$ :

Potential  
„wrong“ spin  
transition

# Spectral weight analysis

$$\sigma_1(\omega, T) - \sigma_1(\omega, 7 \text{ K}).$$



Isosbestic point at 0.3 eV

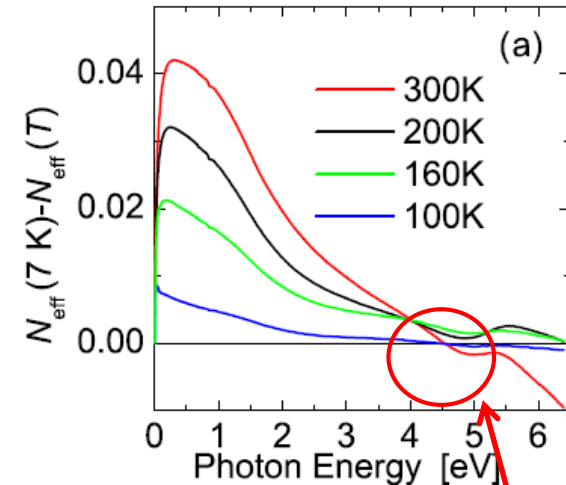
Low Energy  $N_{\text{eff}}^{\text{LE}} = N_{\text{eff}}(0, 0.3 \text{ eV})$

High Energy  $N_{\text{eff}}^{\text{HE}} = N_{\text{eff}}(0.3, 5 \text{ eV})$

effective number of charge carriers per unit cell:

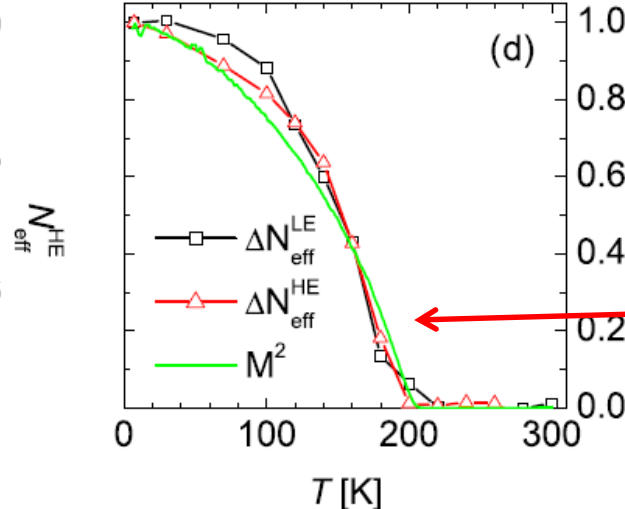
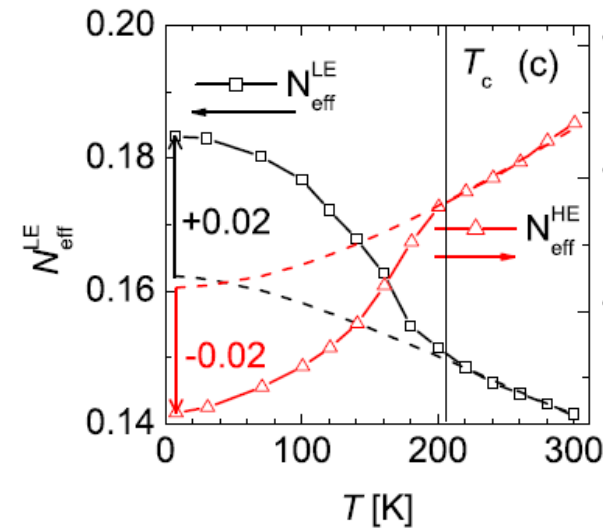
$$N_{\text{eff}}(\omega_L, \omega_H) = \frac{2m_0V}{\pi e^2} \int_{\omega_L}^{\omega_H} \sigma_1(\omega) d\omega$$

$$N_{\text{eff}}(0, \omega, 7 \text{ K}) - N_{\text{eff}}(0, \omega, T)$$



Spectral weight is conserved within 5 eV

Spectral weight transfer scales with magnetic moment  $M^2$  – suggesting leading role of double exchange



# Kinetic energy saving

Lowering of the intraband kinetic energy corresponding to the ferromagnetic transition is calculated using

$$K = -3\hbar^2 N_{\text{eff}} / a_0^2 m_0$$

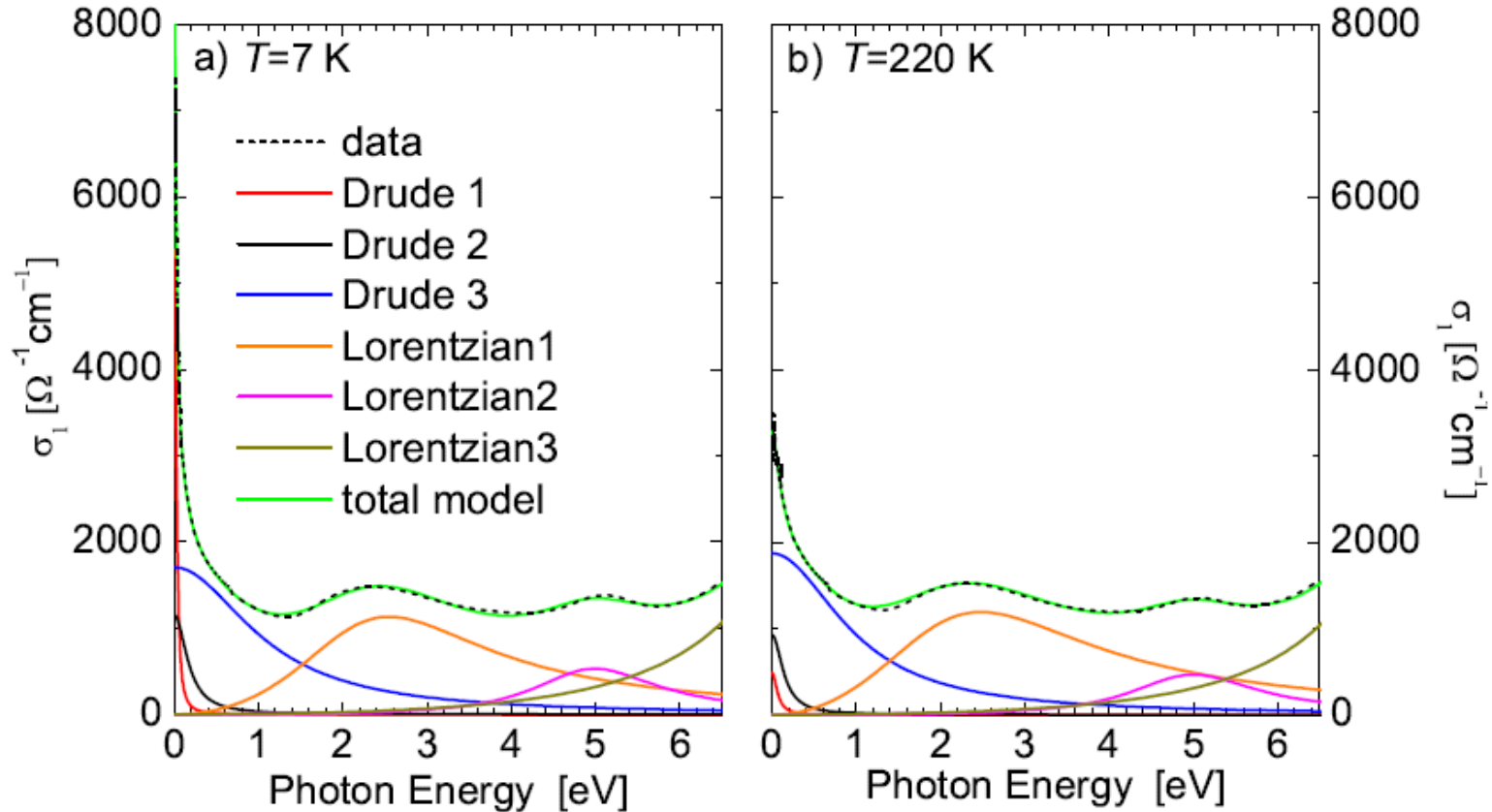
For  $N_{\text{eff}}=0.02$  we get  $\Delta K=30$  meV, which is larger than  $k_B T_c \sim 17$  meV

**=>**

saving of the kinetic energy (double exchange) is large enough to stabilize the ferromagnetic state

# Spectral analysis with the Drude-Lorentz model

P. Friš et al., PRB 97, 045137 (2018)



Drude-Lorentz model: 
$$\epsilon(\omega) = 1 - \sum_j \frac{\omega_{D,j}^2}{\omega(\omega + i\gamma_{D,j})} + \sum_k \frac{\omega_{L,k}^2}{\omega_{0,k}^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_{L,k}}$$

- Narrow Drude term (broadening 30 meV - 240 cm<sup>-1</sup>) strongly changes with temperature
- the broad Drude term (broadening ~1 eV) is essentially temperature independent

# Equilibrium ellipsometry at CEITEC Nano



+



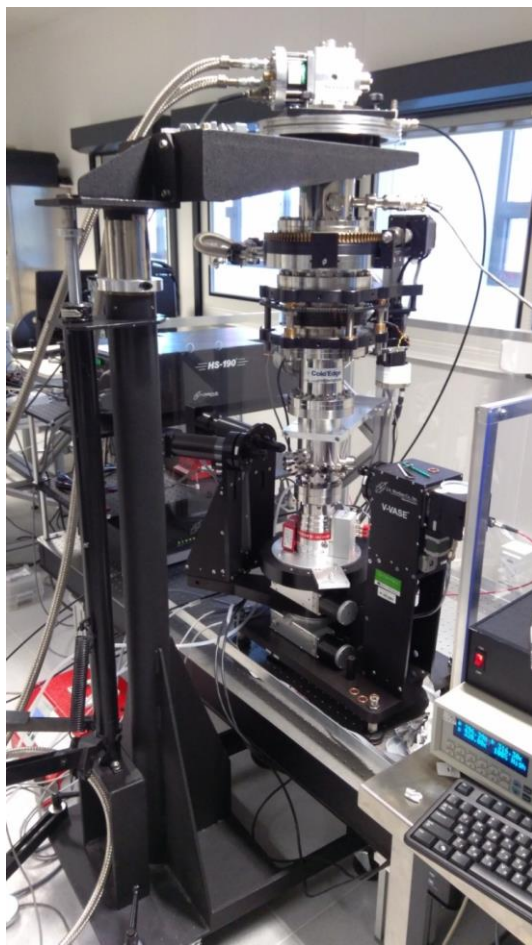
=



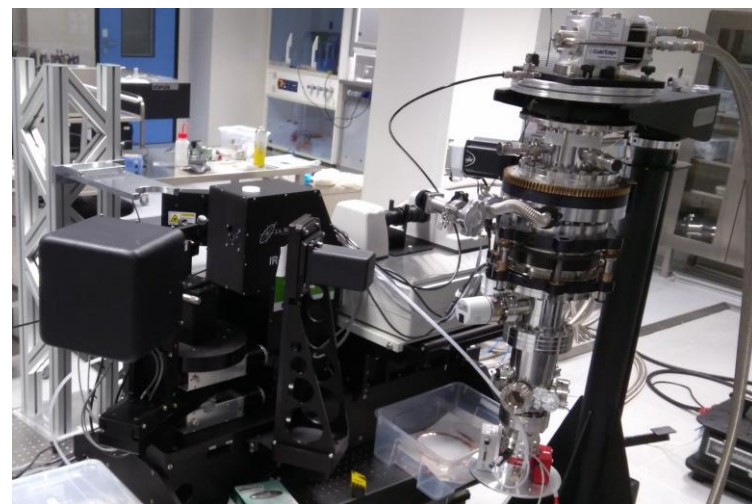
in



Woollam VASE, NIR-UV range  
He closed-cycle cryostat 7-400 K



Woollam IR-VASE, mid infrared range

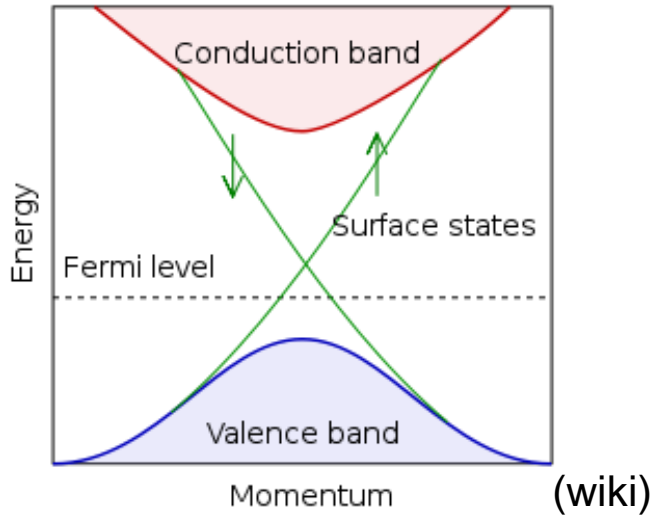


far-infrared (50-700  $\text{cm}^{-1}$ ) ellipsometer

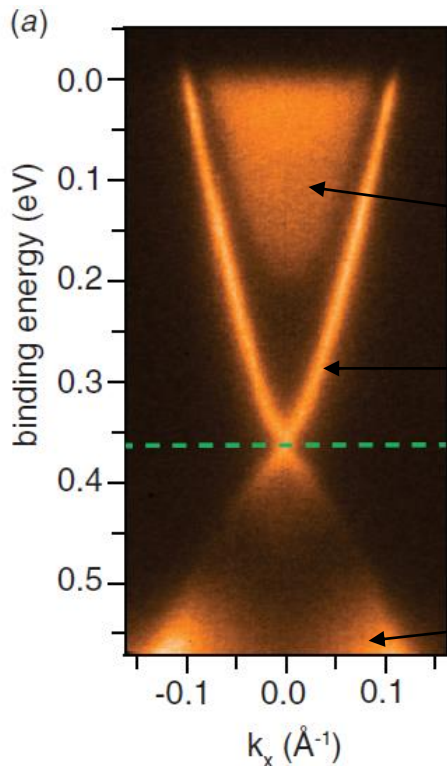


# Examples from UFKL research

# Electronic structure of topologic insulators



- insulators with a larger spin-orbit splitting than energy band gap
- spin polarized conducting surface states
- topological protection = no scattering on nonmagnetic impurities
- possibility for application in spintronics



ARPES on  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$

conduction band

surface states - linear dispersion  
(Dirac cone)

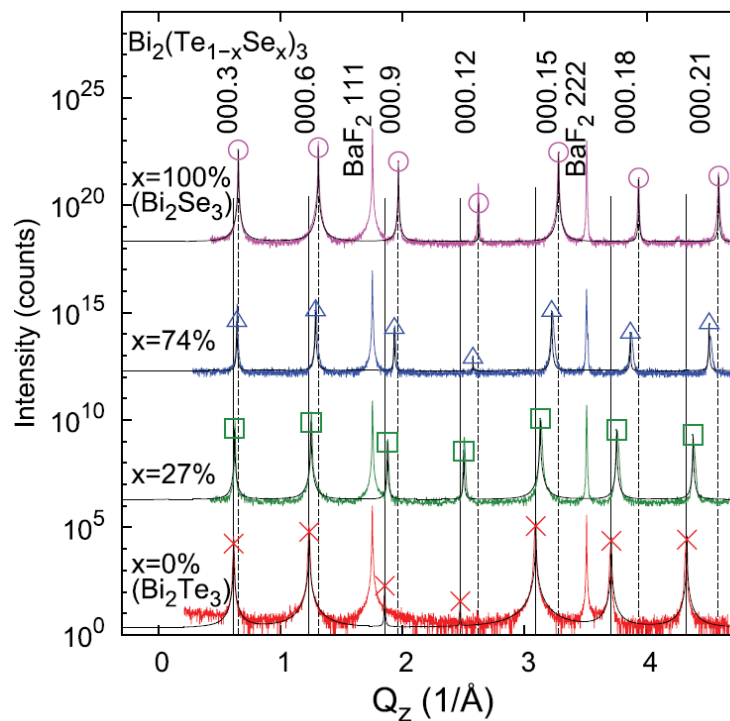
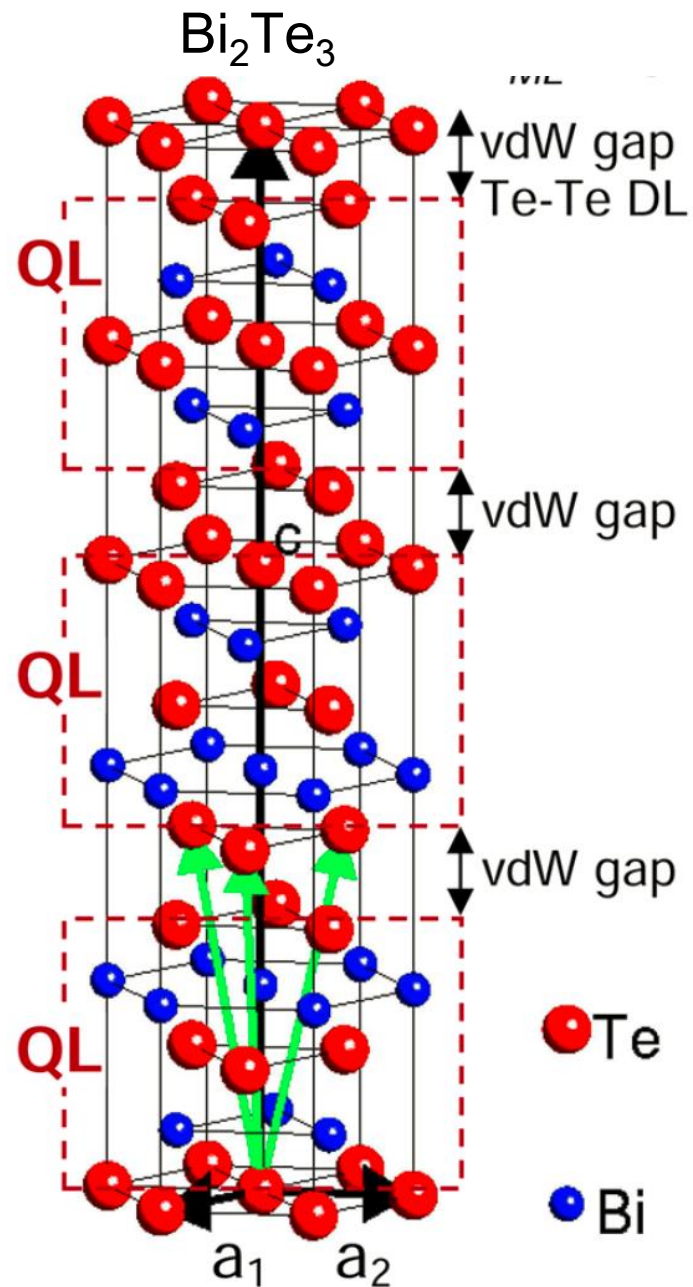
(top of ?) the valence band

# Topologic insulators $\text{Bi}_2(\text{Te}_x\text{Se}_{1-x})_3$ and growth of thin films

- anisotropic layered material
- elementary cell formed by 3 Quintuple layers (QL): Te1-Bi-Te2-Bi-Te1
- known for high thermoelectric constant

## Thin films:

- grown by MBE on  $\text{BaF}_2$ , lattice matched for  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$
- $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ ,  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  and alloys  $\text{Bi}_2(\text{Te}_x\text{Se}_{1-x})_3$
- thickness 200-600 nm





# overview of thin film model

model:

surface roughness (EMA-Bruggeman), typically 5-10 nm

**isotropic** layer of Drude + Lorentz + Tauc-Lorentz + gaussians

BaF<sub>2</sub> substrate modeled with Lorentz + sellmaier

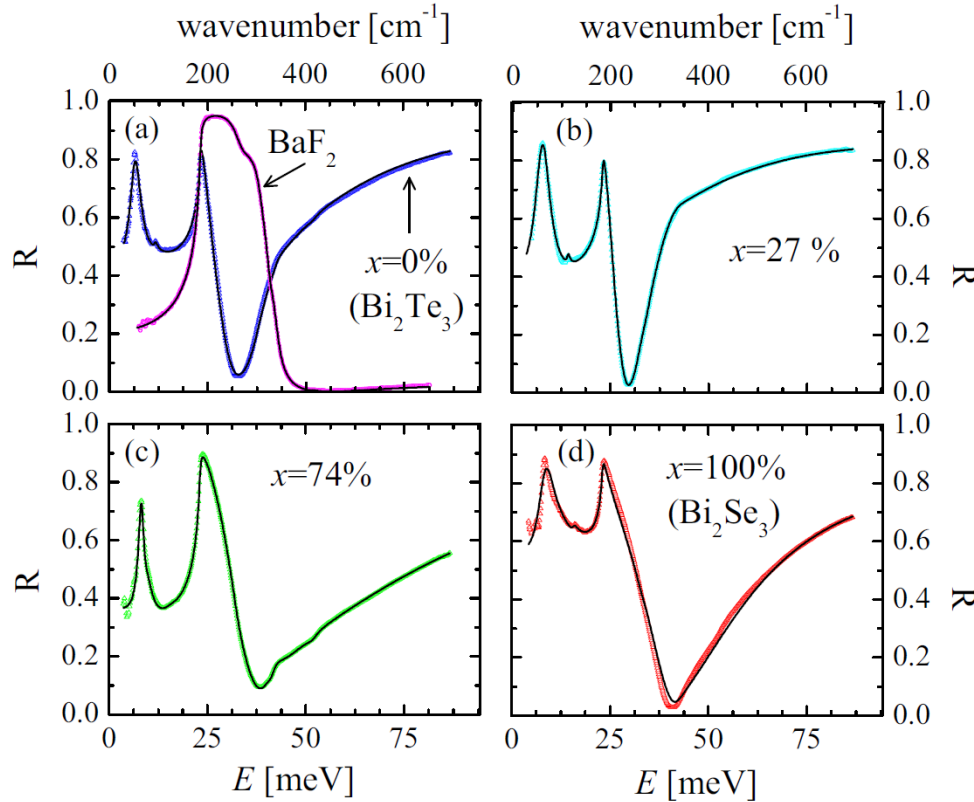
cleaved crystal- corrected for incoherent reflections from backside

- no (strong) signatures of anisotropy
- retrieved optical constants predominantly corresponds to the in-plane response

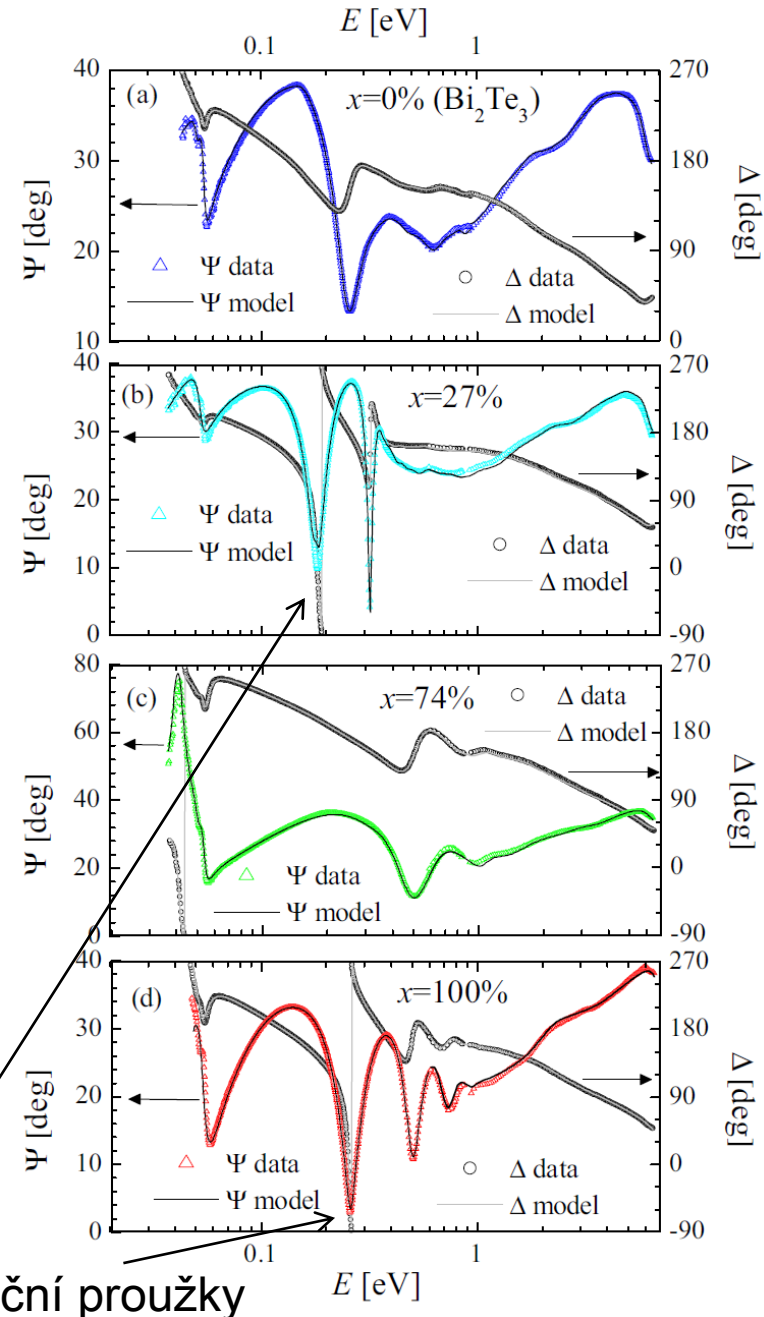
$$\hat{\epsilon}(\omega) = 1 - \frac{\omega_{\text{pl}}^2}{\omega(\omega + i\gamma)} + \sum_j \frac{\omega_{\text{pl},j}^2}{\omega^2 - \omega_j^2 - i\gamma_j} + \sum_j \hat{G}_j(\omega),$$

# overview of raw data and model spectra

## Far-infrared reflectivity

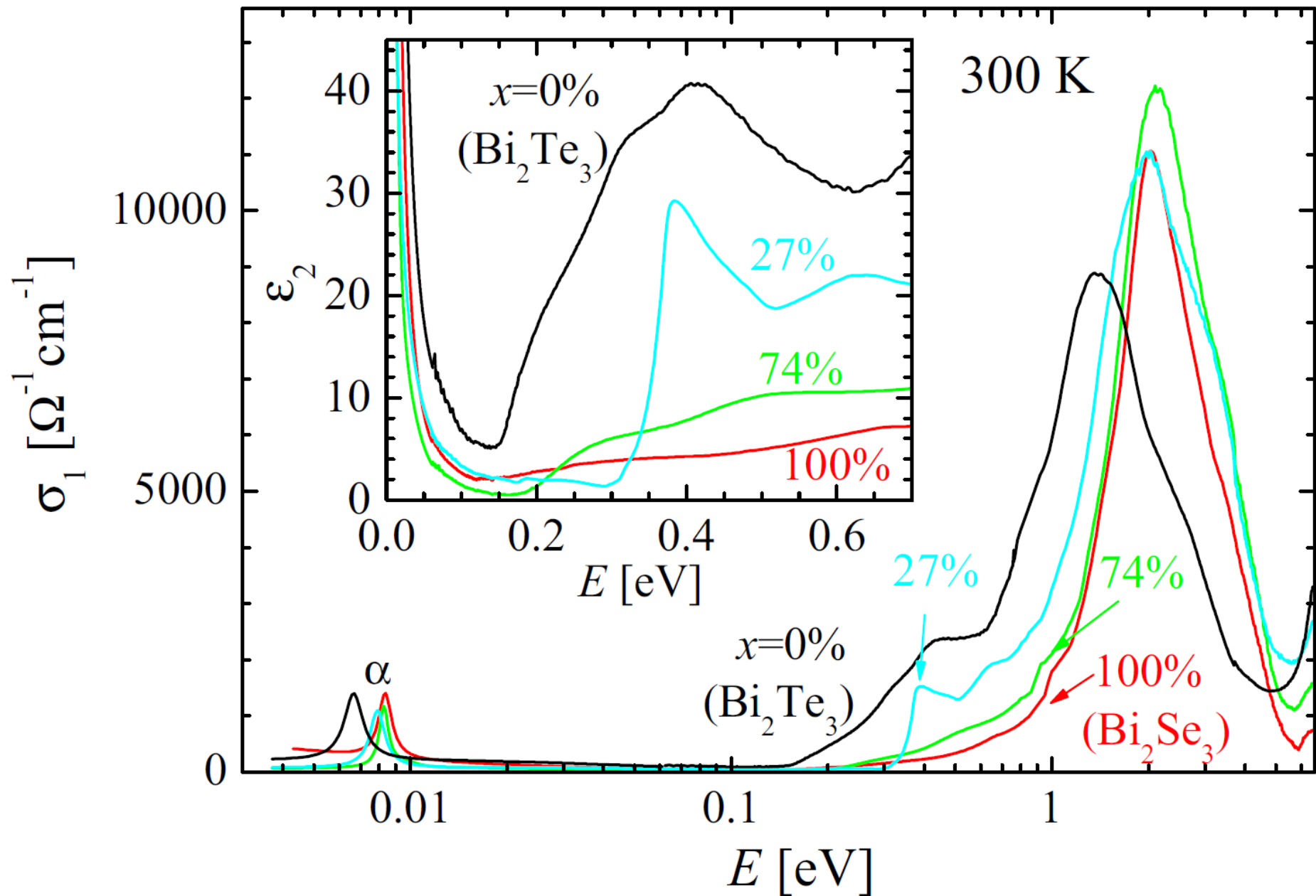


- Kramers-Kronig model function
- fit for all frequency range
- retrieved thickness and surface roughness
- then retrieval of point by point optical constants

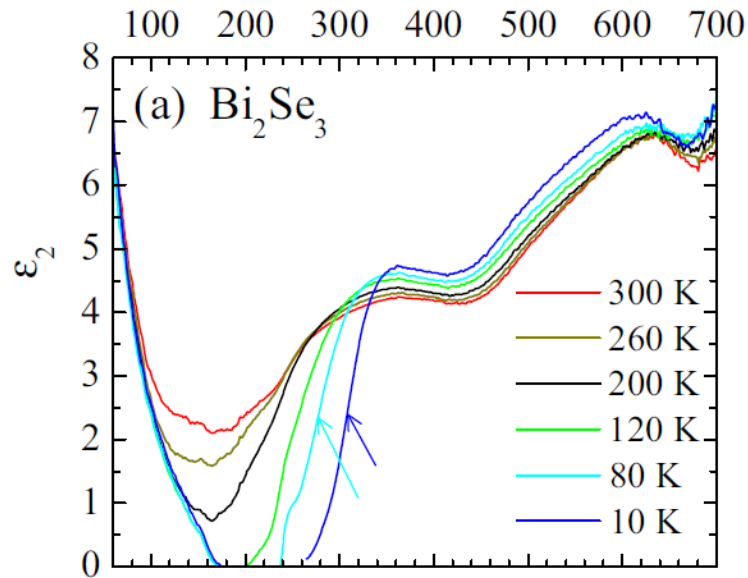


Interferenční proužky

# retrieved point-by point response of $\text{Bi}_2(\text{Te}_x\text{Se}_{1-x})_3$ alloys



# response of $\text{Bi}_2\text{Se}_3$

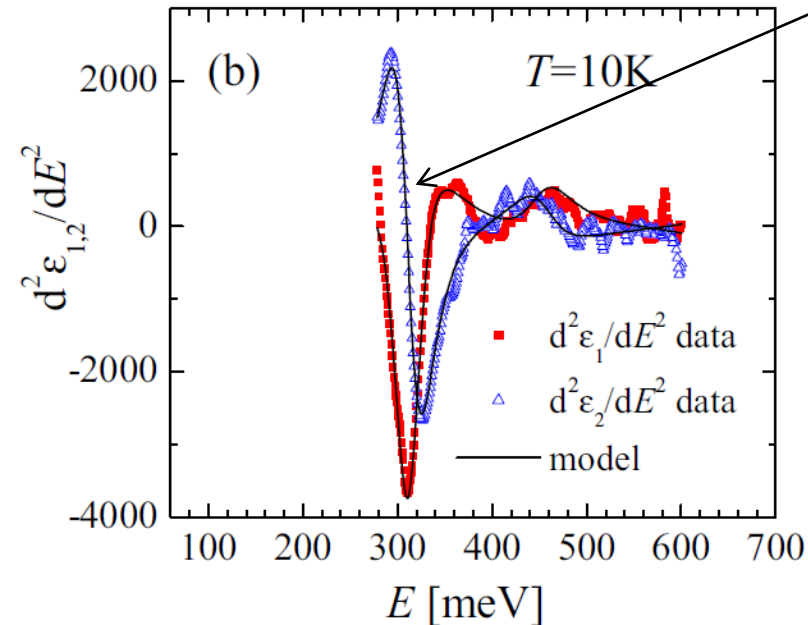


Fit of second derivative of  $\varepsilon$  with a critical point model

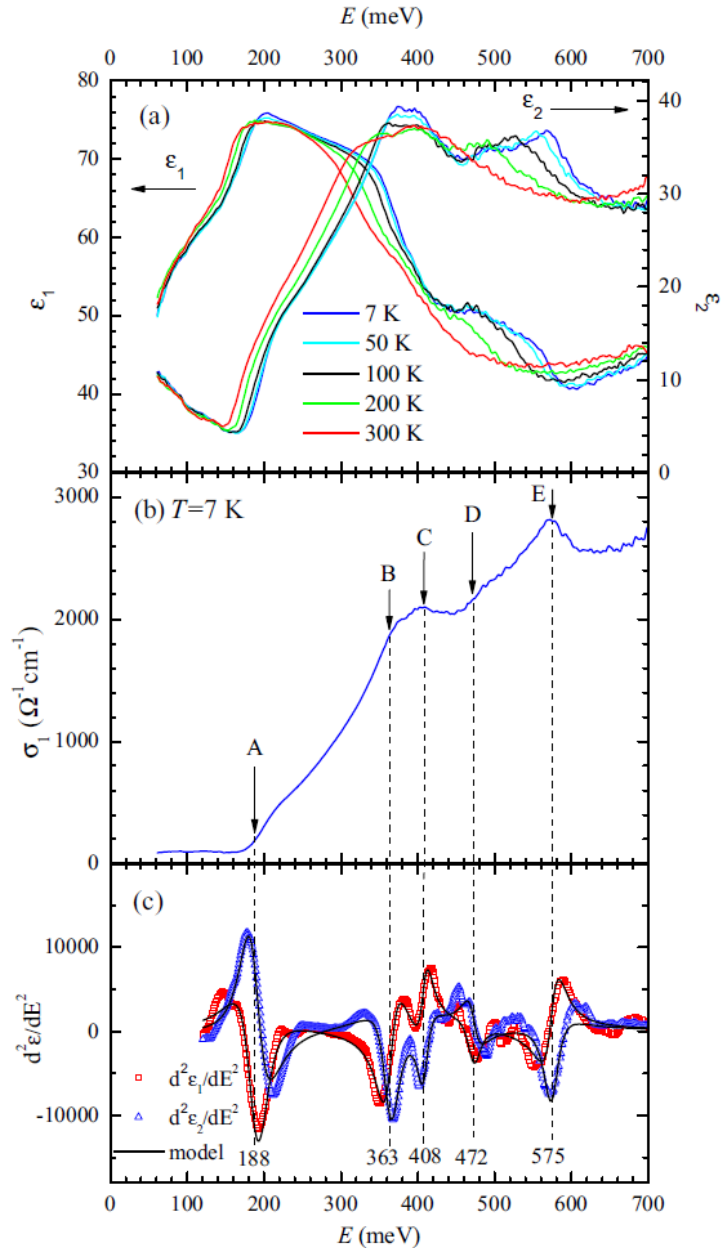
$$\frac{d^j \hat{\varepsilon}(E)}{dE^j} = A e^{i\phi} (E - E_{\text{CP}} + i\Gamma)^{-n-j}$$

$n = -1/2, 0, +1/2$  for 3D, 2D and 1D critical point  
 $j = 2 \dots$  (derivative degree)

- strong 2D critical point at 312 meV
- a weaker 3D critical point at 450 meV

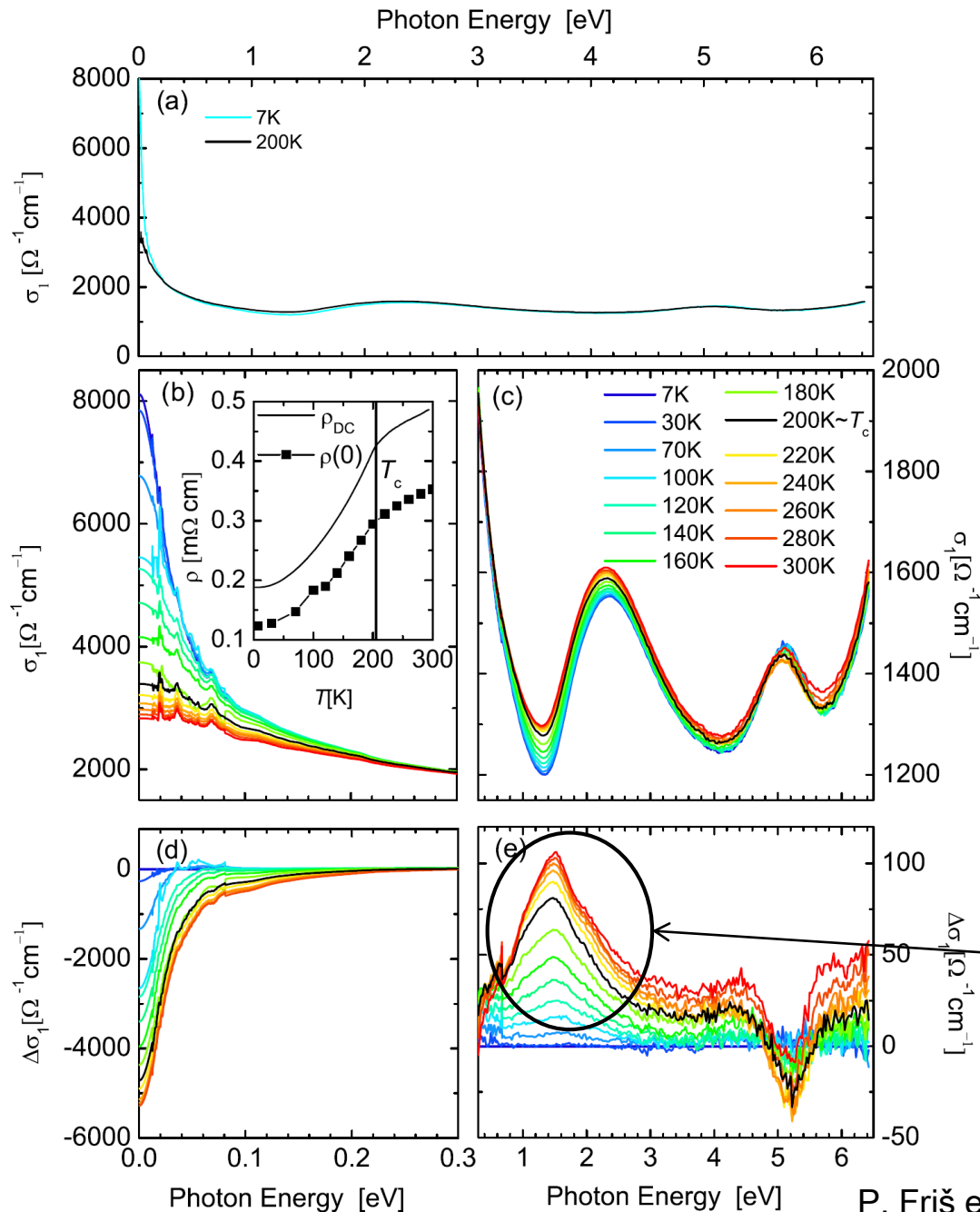


# Low temperature absorption edge of $\text{Bi}_2\text{Te}_3$



Label	A	$E_{CP}$ (meV)	$\zeta$ (meV)	$\phi$ (deg)	Line shape
A	7.8	188	24	-29	2D
B	$21 \text{ eV}^{-1/2}$	363	16	23	3D
C	$8 \text{ eV}^{-1/2}$	408	11	76	3D
D	$6 \text{ eV}^{-1/2}$	472	13	300	3D
E	$16 \text{ eV}^{-1/2}$	575	15	60	3D

# Optical conductivity of $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{CoO}_3$



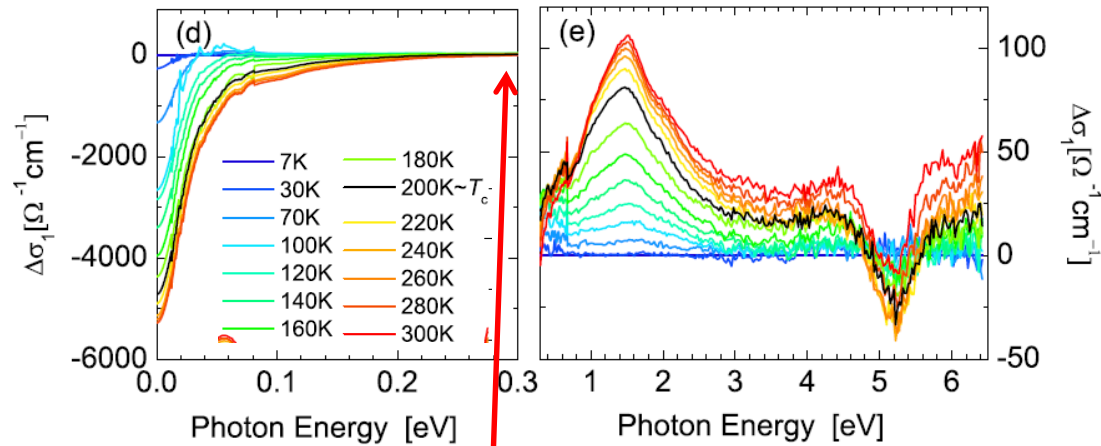
Absolute  
conductivity:

Relative  
conductivity  
vs.  $T=7\text{K}$ :

Potential  
„wrong“ spin  
transition

# Spectral weight analysis

$$\sigma_1(\omega, T) - \sigma_1(\omega, 7 \text{ K})$$



Isosbestic point at 0.3 eV

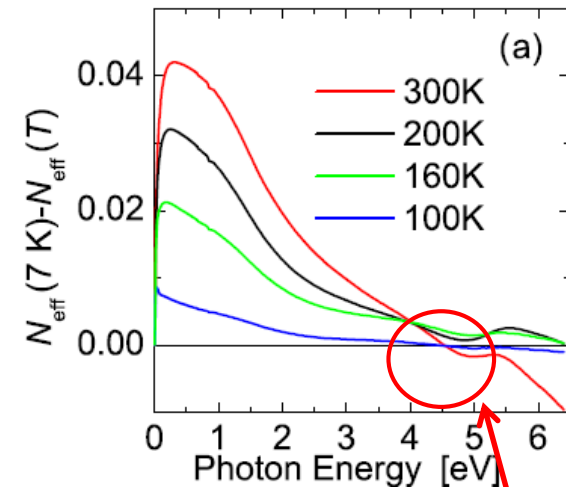
Low Energy  $N_{\text{eff}}^{\text{LE}} = N_{\text{eff}}(0, 0.3 \text{ eV})$

High Energy  $N_{\text{eff}}^{\text{HE}} = N_{\text{eff}}(0.3, 5 \text{ eV})$

effective number of charge carriers per unit cell:

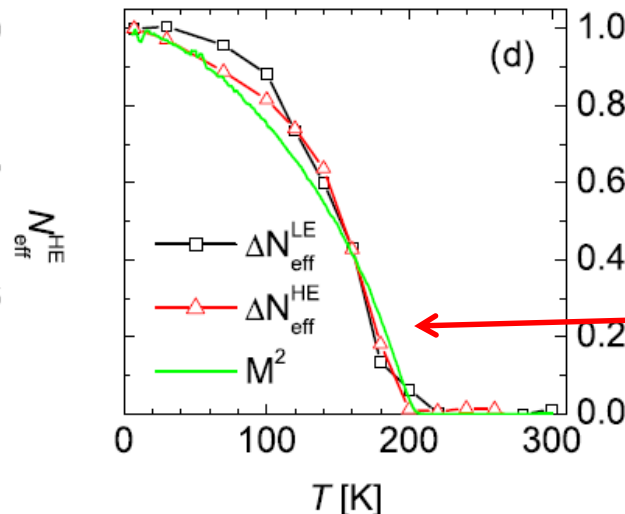
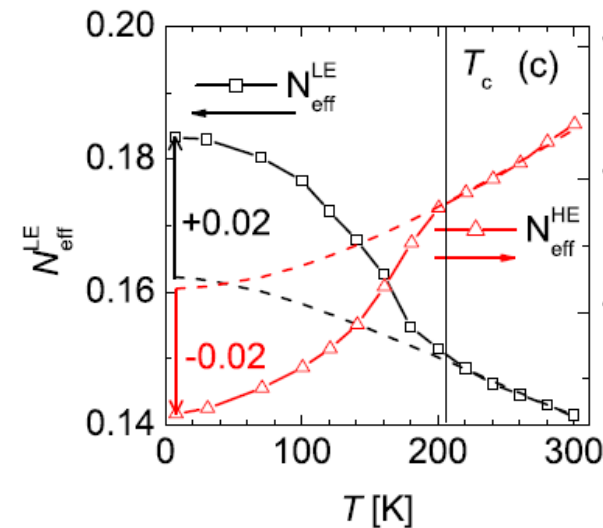
$$N_{\text{eff}}(\omega_L, \omega_H) = \frac{2m_0V}{\pi e^2} \int_{\omega_L}^{\omega_H} \sigma_1(\omega) d\omega$$

$$N_{\text{eff}}(0, \omega, 7 \text{ K}) - N_{\text{eff}}(0, \omega, T)$$



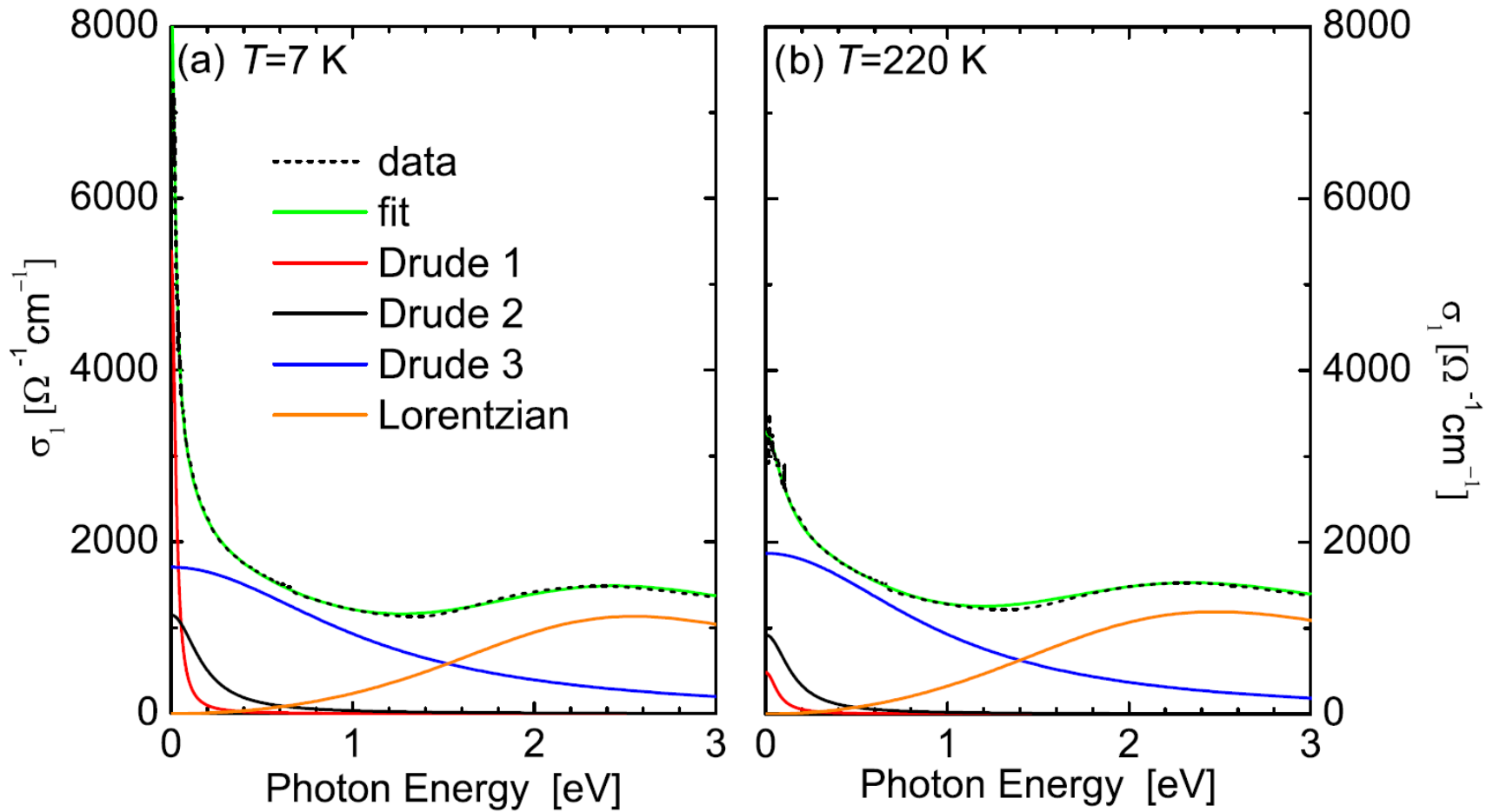
Spectral weight is conserved within 5 eV

Spectral weight transfer scales with magnetic moment  $M^2$  – suggesting leading role of double exchange



# Spectral analysis with the Drude-Lorentz model

P. Friš et al., PRB 97, 045137 (2018)



Drude-Lorentz model: 
$$\epsilon(\omega) = 1 - \sum_j \frac{\omega_{D,j}^2}{\omega(\omega + i\gamma_{D,j})} + \sum_k \frac{\omega_{L,k}^2}{\omega_{0,k}^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_{L,k}}$$

- Narrow Drude term (broadening 30 meV - 240 cm<sup>-1</sup>) strongly changes with temperature
- the broad Drude term (broadening ~1 eV) is essentially temperature independent



# Electrodynamics of correlated electron materials

- see D. Basov et al., Rev. Mod. Phys. 83, (2011)

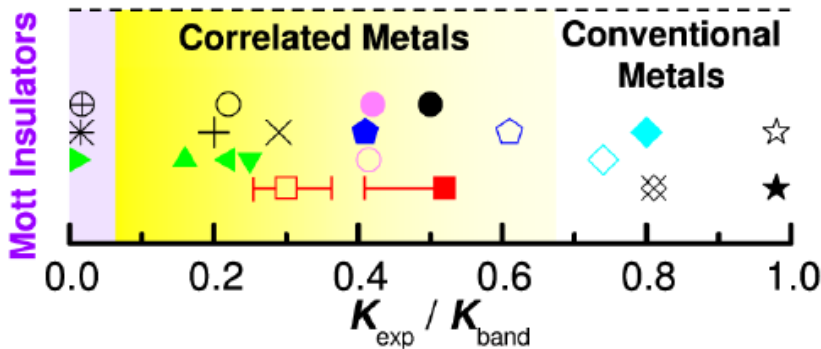
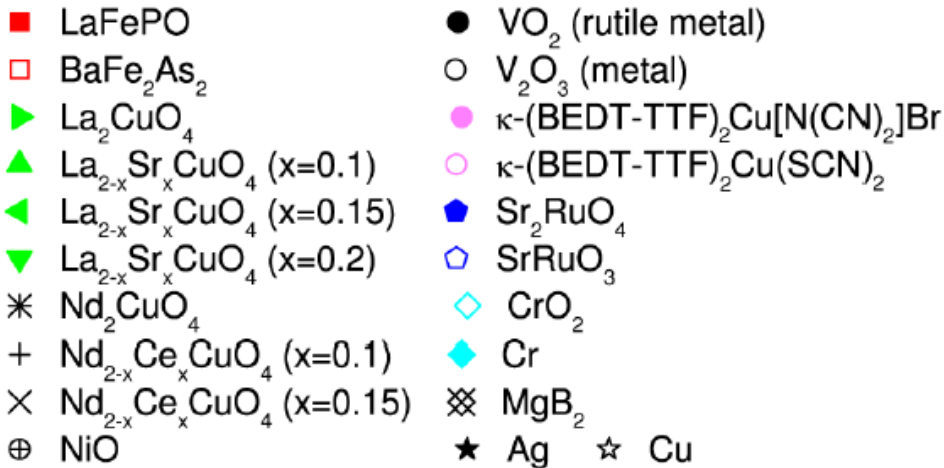


FIG. 1 (color online). The ratio of the experimental kinetic energy and the kinetic energy from band theory  $K_{\text{exp}}/K_{\text{band}}$  for various classes of correlated metals and also for conventional metals. The data points are offset in the vertical direction for clarity. From Qazilbash, Hamlin *et al.*, 2009.

Kinetic energy of conducting electrons can be expressed from integral over Drude tail

$$K_x = -\frac{2\hbar^2 a_0}{\pi e^2} \int_0^{\omega_H} \sigma_1(\omega) d\omega = -\hbar^2 N_{\text{eff}} / a_0^2 m_0$$

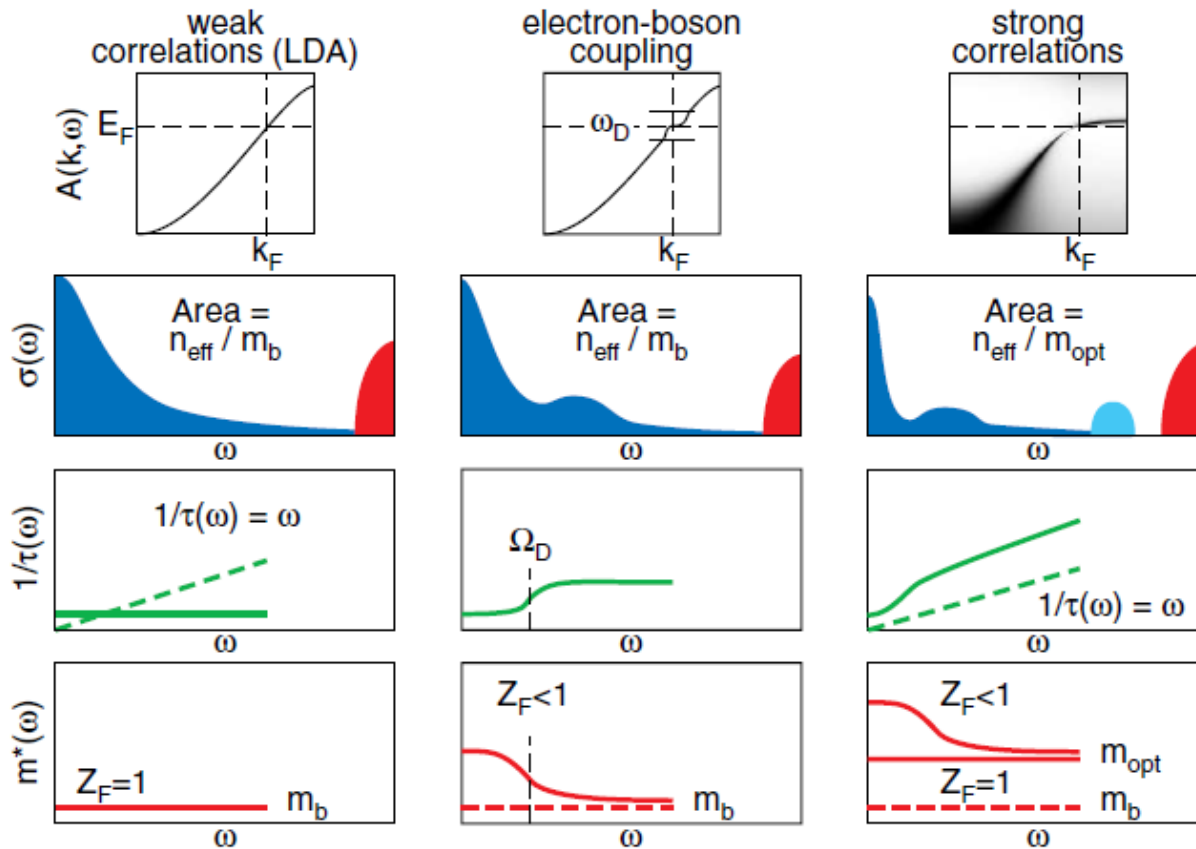
$$N_{\text{eff}}(\omega_L, \omega_H) = \frac{2m_0 V}{\pi e^2} \int_{\omega_L}^{\omega_H} \sigma_1(\omega) d\omega.$$

In isotropic materials it is:

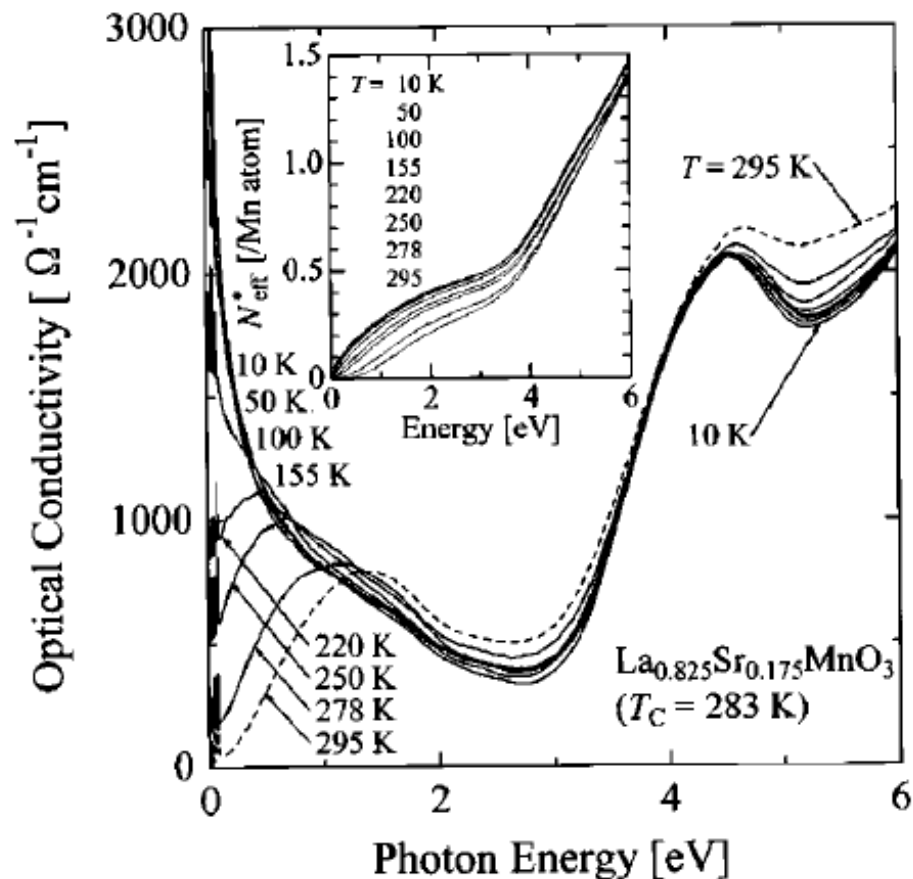
$$K = -3\hbar^2 N_{\text{eff}} / a_0^2 m_0$$

# Electrodynamics of correlated electron materials

- see D. Basov et al., Rev. Mod. Phys. 83, (2011)



# Electrodynamics of correlated electron materials



- Takenaka PRB (1999)
- Insulator-metal transition in ferromagnetic  $\text{La}_{0.85}\text{Sr}_{0.175}\text{MnO}_3$

# Electrodynamics of high Tc superconductors

- see D. Basov et al., Rev. Mod. Phys. 77 (2005)

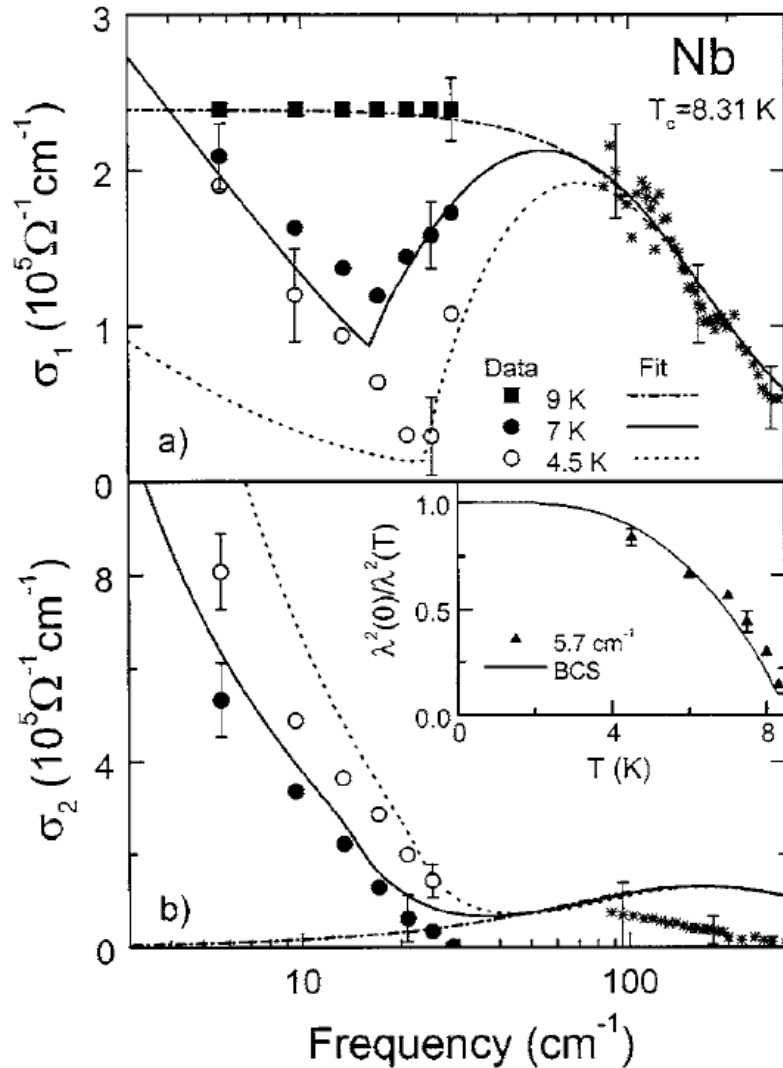


FIG. 8. Frequency dependence of the (a) real and (b) imaginary parts of the conductivity at 4.5 and 7 K compared to the predictions of the BCS weak-coupling limit using the formulas of Mattis and Bardeen with a finite scattering time  $\tau = 3 \times 10^7$  s. Also shown is the normal-state behavior at  $T = 9$  K fitted by the Drude model. The far-infrared data (stars) show no temperature dependence below 10 K. In this spectral range, the imaginary part of the conductivity  $\sigma_2(\omega)$  has large error bars. The inset shows the temperature dependence of the penetration depth  $\lambda(T)$  compared with the predicted behavior. From Pronin *et al.*, 1998.

# Electrodynamics of high T<sub>c</sub> superconductors

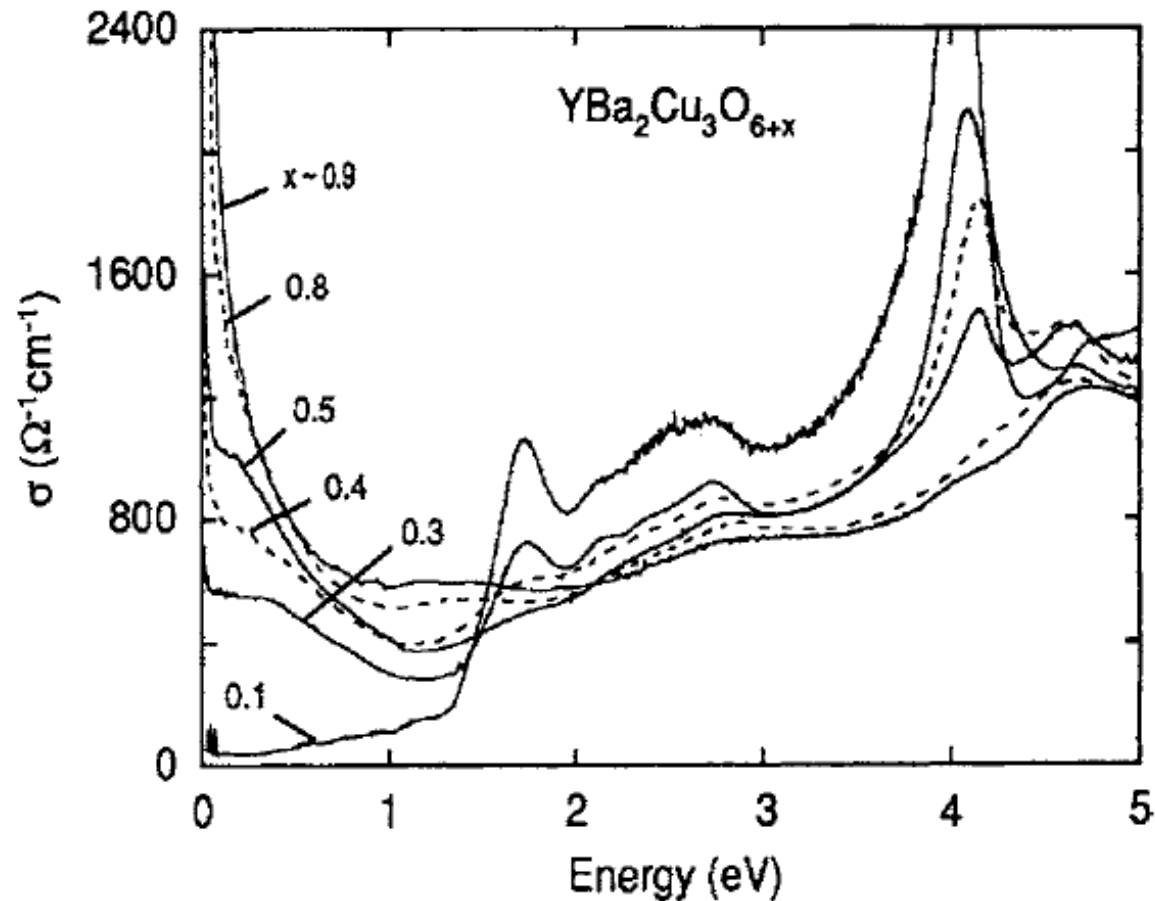


FIG. 10. In-plane ( $E \perp c$ ) optical conductivity  $\sigma(\omega)$  obtained from a Kramers-Kronig analysis of the reflectivity data for various compositions of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ . Adapted from Cooper, Reznik, *et al.*, 1993.

# Inplane response of copper oxide superconductors

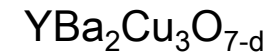
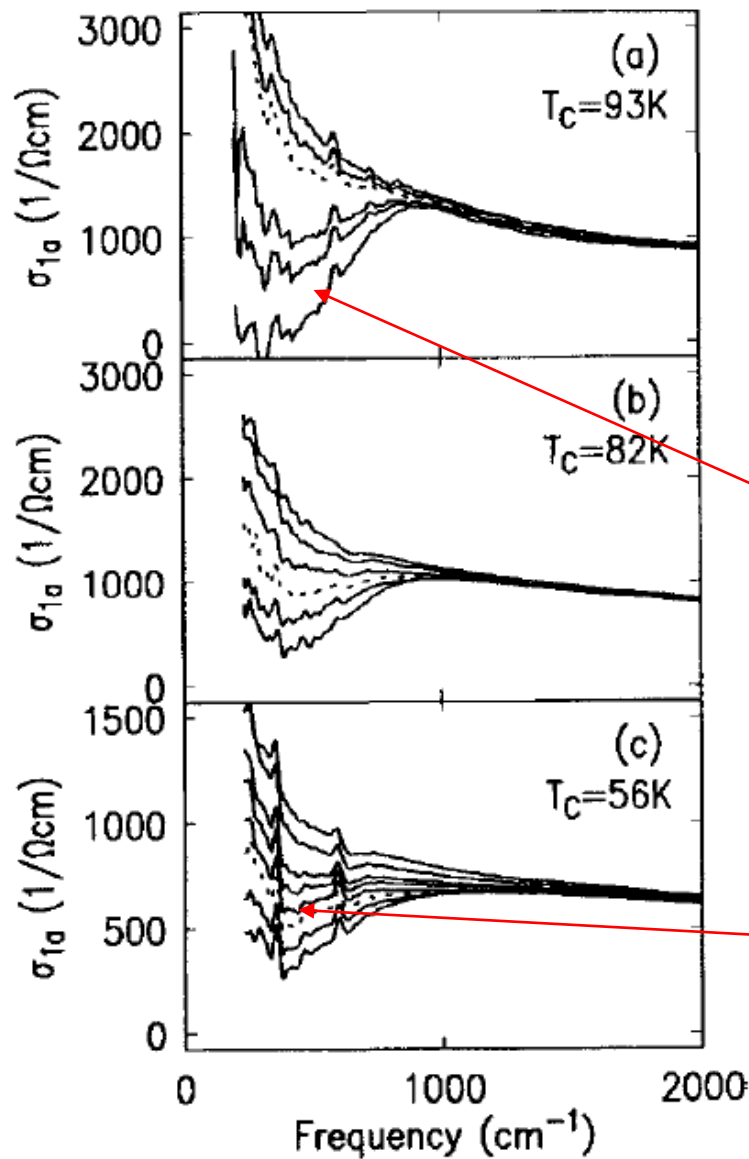


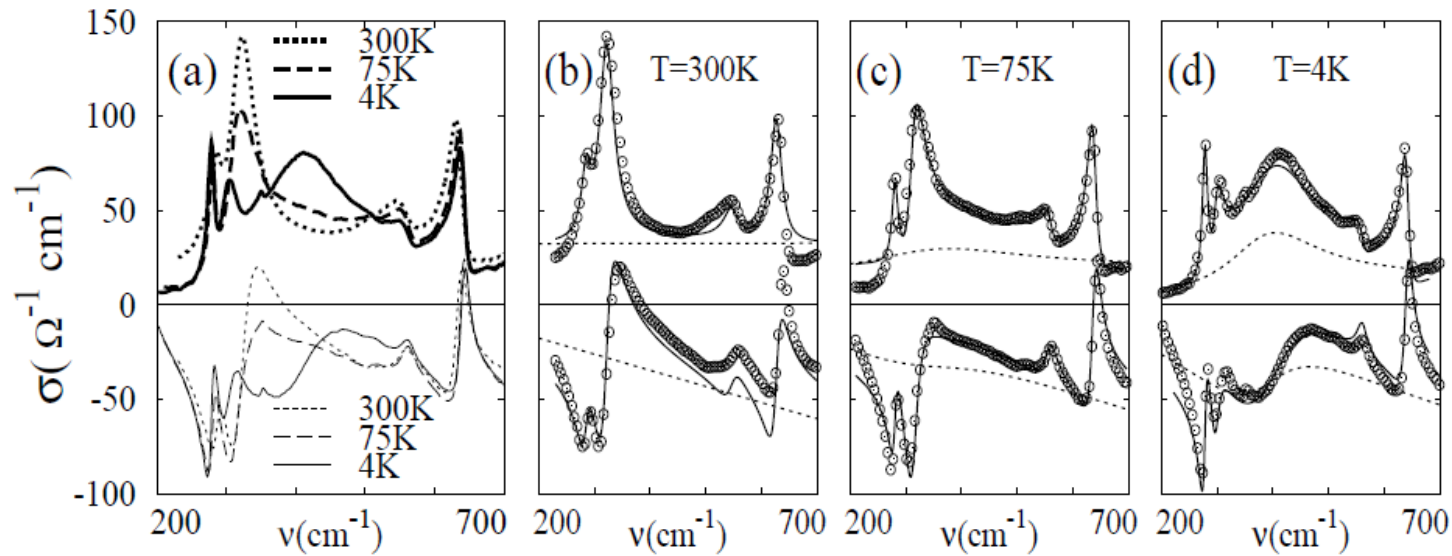
FIG. 14.  $\text{CuO}_2$  plane conductivity  $\sigma_a(\omega)$  for various temperatures in both the normal and superconducting states of Y-123. Panel (a): nearly optimally doped crystal with  $T_c=93\text{K}$  from top to bottom,  $T=120, 100, 90$  (dashed),  $70$ , and  $20\text{K}$ ; panel (b): underdoped crystal with  $T_c=82\text{K}$  at  $T=150, 120, 90, 80$  (dashed),  $70$ , and  $20\text{K}$ ; panel (c): underdoped crystal with  $T_c=56\text{K}$  at  $T=200, 150, 120, 100, 80, 60$  (dashed),  $50$ , and  $20\text{K}$ . Note the persistence of the  $500\text{-cm}^{-1}$  threshold above  $T_c$  (above dashed curves). From Rotter *et al.*, 1991.

Superconducting gap

Pseudo gap in underdoped sample

# Out of plane response of copper oxide superconductors

Munzar et al, Solid. Stat. Commun., 112 (1999)



So called phonon-anomalies due to electrodynamic coupling between charge and phonons due to local field effects