

## 2.1 Makroskopische Beschreibung, frequenzabhängige Dielektrizitätskonstante und Brechungsindex

Lässt man elektromagnetische Wellen, also z. B. Licht, auf einen Festkörper fallen, so können diese vom Festkörper reflektiert oder absorbiert werden oder durch den Kristall transmittiert werden. Messungen von Größen wie dem Transmissions-, Absorptions- oder Reflexionskoeffizienten des Kristalls geben unmittelbar Aufschluss über die möglichen Anregungen in der Probe. In diesem Kapitel sollen zunächst die grundlegenden Definitionen und die Zusammenhänge zwischen diesen Messgrößen und anderen Größen wie frequenzabhängiger Leitfähigkeit und Dielektrizitätskonstante zusammengestellt werden. Diese Größen sollten zum größten Teil schon aus der Elektrodynamik und der experimentellen Festkörperphysik vertraut sein.

Bei einem optischen Experiment wird der Festkörper durch die Anwesenheit eines elektromagnetischen Feldes gestört und aus dem Grundzustand (Gleichgewicht) gebracht. Die elektromagnetischen Felder müssen die Maxwell-Gleichungen erfüllen:

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{\varepsilon_r}{c} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{4\pi}{c} \mathbf{j}, \quad \nabla \cdot \mathbf{E} = 0, \quad \nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\mu}{c} \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t}, \quad \nabla \cdot \mathbf{H} = 0 \quad (2.1)$$

Der Festkörper soll keine das elektrische Feld mit verursachenden Ladungen haben. Magnetische Effekte sollen in diesem Kapitel nicht betrachtet werden, daher nehmen wir für die magnetische Permeabilität  $\mu = 1$  an.  $\varepsilon_r$  soll die statische, z. B. von der Polarisation der inneren Schalen herrührende Dielektrizitätskonstante sein, und es soll die dynamische, frequenzabhängige Dielektrizitätskonstante bestimmt werden, wofür die Polarisation des Mediums bzw. Anregungen wie Stromfluss in Metallen oder Übergänge vom Valenz- ins Leitungsband in Halbleitern berücksichtigt werden. Ströme werden durch das elektromagnetische Feld erst möglich und hier soll das Ohmsche Gesetz gelten, also  $\mathbf{j} = \sigma \mathbf{E}$ . Dann ergibt sich durch einfache, aus der Elektrodynamik bekannte Umrechnung

$$\nabla^2 \mathbf{E} = \frac{\varepsilon_r}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} + \frac{4\pi\sigma}{c^2} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \quad (2.2)$$

Dies ist die wohlbekannte, elementare **Telegraphen-Gleichung**, die elektromagnetische Wellen in einem leitfähigen Medium beschreibt. Als Lösungen ergeben sich gedämpfte elektromagnetische Wellen, also Wellen mit Dissipation im Medium. Macht man nämlich den üblichen Ansatz einer ebenen Welle

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \exp [i (\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)] \quad (2.3)$$

ergibt sich

$$k^2 = \varepsilon_r \frac{\omega^2}{c^2} + \frac{4\pi\sigma i\omega}{c^2} \text{ bzw. } k = \frac{\omega}{c} \left( \varepsilon_r + \frac{4\pi\sigma i}{\omega} \right)^{1/2} \quad (2.4)$$

Im Medium ist also nur die Ausbreitung einer Welle mit komplexer Wellenzahl möglich; da im Vakuum die übliche Beziehung  $k = \frac{\omega}{c}$  gilt, ergibt sich für den komplexen **Brechungsindex**

$$\tilde{n} = n + i\kappa = \sqrt{\varepsilon_r + \frac{4\pi\sigma i}{\omega}} = \sqrt{\varepsilon(\omega)} \quad (2.5)$$

Brechungsindex und Dielektrizitätskonstante (bzw. allgemeiner: Dielektrizitätstensor) sind also in der Regel komplexe Größen. Es gelten die Zusammenhänge

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_1 + i\varepsilon_2 = \varepsilon_r + i \frac{4\pi\sigma}{\omega} = n^2 - \kappa^2 + i2n\kappa \quad (2.6)$$

Der Imaginärteil beschreibt gerade die Dämpfung. Als einfaches Beispiel betrachten wir die Propagation einer elektromagnetischen Welle in einem absorbierenden Medium in x-Richtung, das elektrische Feld sei dabei in y-Richtung polarisiert. Dann gilt

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \exp [i (\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)] = (0, E_0, 0) \exp \left( i\omega \left( \frac{nx}{c} - t \right) \right) \exp \left( -\frac{\kappa\omega x}{c} \right) \quad (2.7)$$

Die Ausbreitungsgeschwindigkeit im Medium ist also  $\frac{c}{n}$ , und die Amplitude klingt exponentiell ab. Das zugehörige Magnetfeld muss gemäß den Maxwell-Gleichungen (2.1)

$$i\mathbf{k} \times \mathbf{H} = \left( -i \frac{\omega\varepsilon_r}{c} + \frac{4\pi\sigma}{c} \right) \mathbf{E} = -i \frac{\omega}{c} \varepsilon(\omega) \mathbf{E} \quad (2.8)$$

erfüllen. Daher gilt

$$\mathbf{H} = \sqrt{\varepsilon(\omega)} (0, 0, E_0) \exp \left( i\omega \left( \frac{nx}{c} - t \right) \right) \exp \left( -\frac{\kappa\omega x}{c} \right) = \frac{c}{\omega} \mathbf{k} \times \mathbf{E} \quad (2.9)$$

Wegen des endlichen Imaginärteils von  $\varepsilon(\omega)$  bzw.  $k$  sind Magnetfeld und elektrisches Feld insbesondere nicht mehr in Phase im leitfähigen Medium. Größen wie der Poynting-Vektor  $\mathbf{P} = \frac{c}{4\pi} \mathbf{E} \times \mathbf{H}$  und die Intensität klingen exponentiell ab wie  $\exp[-\frac{2\kappa\omega x}{c}]$ . Die Abklingkonstante

$$\alpha = \frac{2\kappa\omega}{c} = \frac{4\pi\sigma}{nc} \quad (2.10)$$

bezeichnet man auch als **Absorptionskoeffizient** des Mediums. In guten Metallen mit großer Leitfähigkeit gilt  $\frac{4\pi\sigma}{\omega\varepsilon_r} \gg 1$ , dann ist

$$\tilde{n} = \sqrt{\varepsilon_r + \frac{4\pi\sigma}{\omega}} i \approx \sqrt{\frac{2\pi\sigma}{\omega}} (1 + i), \text{ also } n = \kappa = \sqrt{\frac{2\pi\sigma}{\omega}} \quad (2.11)$$

und für den Absorptionskoeffizienten von Metallen findet man so

$$\alpha = \frac{\sqrt{8\pi\sigma\omega}}{c} \quad (2.12)$$

Ein frequenzabhängiges elektromagnetisches Feld hat also nur eine endliche Eindringtiefe in ein Metall. Diese Eindringtiefe  $\delta$  ist definiert als die Strecke, auf der das Feld auf den Faktor  $1/e$  seiner Anfangsamplitude an der Oberfläche abgeklungen ist, also gilt

$$\frac{\kappa\omega\delta}{c} = 1 \Rightarrow \delta = \frac{c}{\kappa\omega} \approx \frac{c}{\sqrt{2\pi\sigma\omega}} \quad (2.13)$$

Insbesondere ist die Eindringtiefe oder **Skin-Tiefe** also proportional  $\omega^{-1/2}$ , nimmt also mit zunehmender Frequenz ab. Dies ist der bekannte (normale) **Skin-Effekt**, der eben besagt, dass elektromagnetische Wellen nur in eine dünne Schicht an der Oberfläche von Metallen eindringen können. Für Wechselstrom mit Frequenzen von  $50 \text{ s}^{-1}$  ist die Skin-Tiefe noch von der Größenordnung Meter, für Hochfrequenzfelder dagegen kann die Skin-Schichtdicke je nach Leitfähigkeit und Frequenz in der Größenordnung  $10^{-3} \text{ cm}$  liegen.

Was man bei jedem Festkörper messen kann, ist der **Reflexionskoeffizient**  $R$ . Ein Teil der Welle wird nämlich immer reflektiert, ein anderer Teil dringt ins Medium ein und wird dort absorbiert, und nur wenn die Probe dünn genug ist bzw. nur hinreichend wenig Absorption stattfindet, gibt es auch einen durch die Probe transmittierten Anteil und einen entsprechenden **Transmissionskoeffizienten**  $T$ , aus dessen Messung man auch auf den Absorptionskoeffizienten  $\alpha$  rückschließen kann. Wir begnügen uns hier aber mit der Herleitung einer Relation für den Reflexionskoeffizienten. Wir betrachten dazu eine aus dem Vakuum im Bereich  $x < 0$  auf das (absorbierende bzw. leitfähige) Medium im Halbraum  $x > 0$  in  $x$ -Richtung einfallende ebene elektromagnetische Welle. Im Vakuum, d.h. im Halbraum  $x < 0$ , hat man dann eine einfallende und eine reflektierte Welle, im Bereich  $x > 0$

nur eine in das Medium eindringende und dort gedämpfte, in positive x-Richtung propagierende Welle. Somit gilt:

$$\begin{aligned} E_y &= E_1 \exp \left[ i\omega \left( \frac{x}{c} - t \right) \right] + E_2 \exp \left[ -i\omega \left( \frac{x}{c} + t \right) \right] \quad \text{für } x < 0 \\ E_y &= E_3 \exp \left[ i\omega \left( \frac{nx}{c} - t \right) \right] \exp \left[ -\frac{\kappa \omega x}{c} \right] = E_3 \exp \left[ i\omega \left( \frac{\tilde{n}x}{c} - t \right) \right] \quad \text{für } x > 0 \end{aligned} \quad (2.14)$$

Aus den aus der Elektrodynamik bekannten Randbedingungen für die elektromagnetischen Felder an Trennflächen verschiedener Medien erhält man wegen der Stetigkeit der Tangentialkomponente des elektrischen Feldes bei  $x = 0$

$$E_1 + E_2 = E_3 \quad (2.15)$$

und aus der Stetigkeit der Normalkomponente des Magnetfeldes folgt

$$\frac{\omega}{c} (E_1 - E_2) = -\frac{\tilde{n}\omega}{c} E_3 \quad (2.16)$$

Daraus ergibt sich

$$\frac{E_2}{E_1} = \frac{1 - \tilde{n}}{1 + \tilde{n}} \quad (2.17)$$

Der Reflexionskoeffizient ist definiert als das Verhältnis von reflektierter zu einfallender Intensität und daher gegeben durch

$$R = \frac{|E_2|^2}{|E_1|^2} = \left| \frac{1 - \tilde{n}}{1 + \tilde{n}} \right|^2 = \frac{(1 - n)^2 + \kappa^2}{(1 + n)^2 + \kappa^2} \quad (2.18)$$

Für gute Metalle mit (gemäß (2.11))  $n = \kappa = \sqrt{2\pi\sigma/\omega} \gg 1$  erhält man daraus

$$\begin{aligned} R &= \frac{1 - \frac{1}{2}\sqrt{\frac{\omega}{2\pi\sigma}} + \frac{\omega}{4\pi\sigma}}{1 + \frac{1}{2}\sqrt{\frac{\omega}{2\pi\sigma}} + \frac{\omega}{4\pi\sigma}} \\ &\approx 1 - \sqrt{\frac{\omega}{2\pi\sigma}} \end{aligned} \quad (2.19)$$

Dies ist die sogenannte **Hagen-Rubens-Relation** für den Reflexionskoeffizienten von Metallen bei kleinen Frequenzen. Insbesondere geht der Reflexionskoeffizient  $R$  also gegen 1 für Frequenzen  $\omega \rightarrow 0$ . Allerdings ist auch die Leitfähigkeit  $\sigma$  von der Frequenz abhängig, wie man es schon im einfachen Drude-Modell erhält, was im nächsten Abschnitt noch einmal besprochen wird.

Die optischen Eigenschaften eines Festkörpers sind also insgesamt durch den komplexen Brechungsindex bzw. die komplexe, frequenzabhängige Dielektrizitätskonstante bestimmt, und diese wiederum kann auf die komplexe, frequenzabhängige Leitfähigkeit zurückgeführt werden. Leicht messbar sind insbesondere Größen wie der Reflexionskoeffizient. Dieser ist gemäß der allgemein gültigen Beziehung (2.18) allerdings durch Real- und Imaginärteil des komplexen Brechungsindex bestimmt, so dass eine alleinige Messung von  $R$  nicht auszureichen scheint, um Real- und Imaginärteil des Brechungsindex einzeln zu bestimmen. Allerdings sind der Real- und Imaginärteil von  $\tilde{n}$  durch eine

### Kramers-Kronig-Relation

miteinander verknüpft. Bezeichnet  $\mathbf{P}$  wie in der Elektrodynamik üblich die makroskopische Polarisation des Mediums, die ja erst durch die Anwesenheit des elektromagnetischen Feldes induziert wird, dann gelten die Zusammenhänge

$$\begin{aligned}\mathbf{P} &= \chi(\omega)\mathbf{E} \\ \mathbf{D} &= \mathbf{E} + 4\pi\mathbf{P} = \varepsilon(\omega)\mathbf{E} \Rightarrow \varepsilon(\omega) = 1 + 4\pi\chi(\omega) = 1 + 4\pi i \frac{\sigma(\omega)}{\omega}\end{aligned}\quad (2.20)$$

Man kann also die Dielektrizitätskonstante auch durch die elektrische Suszeptibilität  $\chi(\omega)$  ausdrücken; hierbei wurde jetzt  $\varepsilon_r = 1$  gesetzt, also angenommen, dass es keine weiteren Beiträge zur Abschirmung mehr gibt. Zwischen frequenzabhängiger Suszeptibilität und Leitfähigkeit besteht der Zusammenhang

$$\sigma(\omega) = -i\omega\chi(\omega) \quad (2.21)$$

Die elektrische Suszeptibilität  $\chi(\omega)$  ist i. a. auch komplex, hat also einen Realteil  $\chi'(\omega)$  und einen Imaginärteil  $\chi''(\omega)$ :

$$\chi(\omega) = \chi'(\omega) + i\chi''(\omega)$$

und diese sind gemäß Abschn. 1.9 durch die Kramers-Kronig-Relationen

$$\chi'(\omega) = \frac{1}{\pi} \mathcal{P} \int d\omega' \frac{\chi''(\omega')}{\omega' - \omega} \quad \chi''(\omega) = -\frac{1}{\pi} \mathcal{P} \int d\omega' \frac{\chi'(\omega')}{\omega' - \omega} \quad (2.22)$$

miteinander verknüpft. Berücksichtigt man, dass die Suszeptibilitäten in der Regel die Symmetrieeigenschaften

$$\chi'(-\omega) = \chi'(\omega) \quad \chi''(-\omega) = -\chi''(\omega)$$

erfüllen, lassen sich obige Beziehungen auch in der Form

$$\chi'(\omega) = \frac{2}{\pi} \mathcal{P} \int_0^\infty d\omega' \frac{\omega' \chi''(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} \quad \chi''(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi} \mathcal{P} \int_0^\infty d\omega' \frac{\chi'(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} \quad (2.23)$$

schreiben, wobei  $\mathcal{P}$  den (Cauchyschen) Hauptwert bezeichnet. Daher sind Real- und Imaginärteil der Dielektrizitätskonstante miteinander verknüpft über

$$\begin{aligned}\varepsilon_1(\omega) &= 1 + \frac{1}{\pi} \mathcal{P} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\varepsilon_2(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' = 1 + \frac{2}{\pi} \mathcal{P} \int_0^{+\infty} \frac{\omega' \varepsilon_2(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' \\ \varepsilon_2(\omega) &= -\frac{1}{\pi} \mathcal{P} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\varepsilon_1(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' = -\frac{2\omega}{\pi} \mathcal{P} \int_0^{+\infty} \frac{\varepsilon_1(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega'\end{aligned}\quad (2.24)$$

Es genügt also im Prinzip, eine der beiden Größen  $\varepsilon_1(\omega)$  oder  $\varepsilon_2(\omega)$  zu kennen, dann kann die andere daraus berechnet werden. Allerdings muss diese Größe im ganzen Frequenzbereich bekannt sein, da für die Anwendung der Kramers-Kronig-Relation ein Integral über alle Frequenzen durchzuführen ist. Es ist allerdings experimentell vielfach nicht ganz einfach, eine Größe wie den Reflexionskoeffizienten wirklich im ganzen Frequenzbereich, in dem es nichtverschwindende Beiträge gibt, zu messen, da für die verschiedenen Frequenzen elektromagnetischer Strahlung verschiedene Quellen und Apparaturen benötigt werden.

## 2.2 Einfache mikroskopische Modelle, Drude- und Relaxationszeit-Behandlung

### 2.2.1 Reflexionskoeffizient von Metallen im Drude-Modell

Das simple Drude-Modell von Abschn. 1.1 lässt sich auch einfach auf den Fall der frequenzabhängigen Leitfähigkeit übertragen, wie es schon in Band 1, Abschn. 6.7 über Plasmonen kurz skizziert worden ist. Für ein klassisches geladenes Teilchen der Masse  $m$  und Ladung  $e$  gilt im elektrischen Wechselfeld  $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \exp[-i\omega t]$  bei Anwesenheit von durch die Stoßzeit  $\tau$  charakterisierter Reibung die Bewegungsgleichung

$$m\dot{\mathbf{v}} + \frac{m}{\tau}\mathbf{v} = e\mathbf{E}_0 e^{-i\omega t} \quad (2.25)$$

und diese inhomogene lineare Differentialgleichung hat die spezielle Lösung

$$\mathbf{v} = \frac{e}{m(-i\omega + \frac{1}{\tau})} \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t} \quad (2.26)$$

Hierbei wird wieder, wie bei der Drude-Behandlung üblich, von der allgemeinen Lösung der homogenen Gleichung  $\mathbf{v}_h = \mathbf{v}_0 \exp[-t/\tau]$  abgesehen, da dieser Anteil auf einer Zeitskala der Größenordnung der Stoßzeit  $\tau$  auf 0 abklingt. Für die Stromdichte folgt somit

$$\mathbf{j} = n_e e \mathbf{v} = \frac{n_e e^2 \tau}{m} \frac{1}{1 - i\omega\tau} \mathbf{E}_0 e^{-i\omega t} \quad (2.27)$$

Also gilt für die frequenzabhängige Leitfähigkeit

$$\sigma(\omega) = \frac{n_e e^2 \tau}{m} \frac{1}{1 - i\omega\tau} = \frac{\sigma_0}{1 - i\omega\tau} \quad (2.28)$$

mit der statischen Drude-Leitfähigkeit  $\sigma_0 = \frac{n_e e^2 \tau}{m}$ . Um die Bezeichnung vom Realteil des Brechungsindex zu unterscheiden, wurde hier (im Unterschied zu Kap. 1) die Elektronendichte mit  $n_e = N_e/V$  bezeichnet. Setzt man dieses Drude-Ergebnis für die frequenzabhängige Leitfähigkeit in die Relation für die Dielektrizitätskonstante ein, ergibt sich

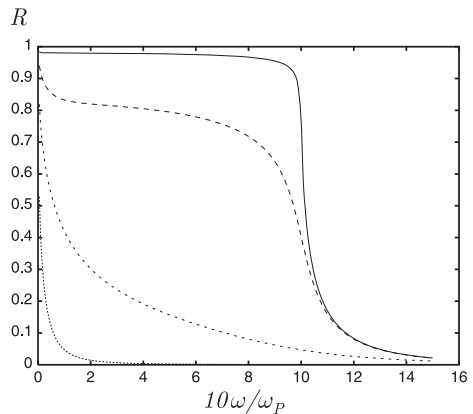
$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2 \tau^2}{1 + \omega^2 \tau^2} + i \frac{\omega_p^2 \tau}{\omega(1 + \omega^2 \tau^2)} \quad (2.29)$$

wobei die schon in Band 1, Abschn. 6.7 eingeführte Plasma-Frequenz  $\omega_p$  gegeben ist durch

$$\omega_p^2 = \frac{4\pi n_e e^2}{m} \quad (2.30)$$

Aus obiger Gleichung lassen sich Real- und Imaginärteil der Dielektrizitätskonstanten sofort ablesen und daraus Realteil und Imaginärteil des komplexen Brechungsindex bestimmen. Setzt man dies in die im vorigen Abschnitt hergeleitete Gleichung für den Reflexionskoeffizienten  $R$  ein, erhält man die in Abb. 2.1 dargestellte, für Metalle charakteristische Frequenzabhängigkeit von  $R$ . Bei guten Metallen (d. h.  $\omega_p \tau \gg 1$ ) ist der Reflexionskoeffizient also nahezu 1. für Frequenzen  $\omega < \omega_p$ , bei der Plasma-Frequenz (an der „Plasma-Kante“) fällt  $R$  aber rapide ab und geht gegen 0 für höhere Frequenzen  $\omega \gg \omega_p$ . Im Hochfrequenz-Bereich werden Metalle somit transparent, bei niedrigen Frequenzen reflektieren sie dagegen elektromagnetische Wellen fast vollständig. Bei Stoß- bzw. Streuzeiten  $\tau$  die von der Größenordnung sind, dass  $\omega_p \tau \gg 1$  gilt, lassen sich drei Bereiche unterscheiden:

**Abb. 2.1** Frequenzabhängigkeit des Reflexionskoeffizienten von Metallen für  $\omega_p \tau = 100$  (durchgezogene Linie), 10 (langgestrichelt), 1 (kurzgestrichelt) und 0.1 (gepunktet)



Im **Niederfrequenz-Bereich**  $\omega \ll \frac{1}{\tau}$  fällt  $R$  von 1 aus ab wie  $1 - \sqrt{\frac{8}{\omega_P^2 \tau}} \sqrt{\omega}$ ; dies ist gerade wieder die im vorigen Abschnitt besprochene Hagen-Rubens-Beziehung. Im sogenannten **Relaxations-Bereich**  $\frac{1}{\tau} \ll \omega \ll \omega_P$  gilt näherungsweise

$$\varepsilon_1 = 1 - \frac{\omega_P^2}{\omega^2} \quad \varepsilon_2 = \frac{\omega_P^2}{\omega^2} \frac{1}{\omega \tau} \quad (2.31)$$

Der Realteil der Dielektrizitätskonstanten ist also immer noch negativ und absolut groß, der Betrag des Imaginärteils ist eine Größenordnung kleiner als der des Realteils. Für Real- und Imaginärteil des Brechungsindex ergibt sich näherungsweise

$$n \approx \frac{\omega_P}{2\omega} \frac{1}{\omega \tau} \quad \kappa \approx \frac{\omega_P}{\omega} \quad (2.32)$$

Für den Reflexionskoeffizienten erhält man

$$R \approx 1 - \frac{4n}{\kappa^2} = 1 - \frac{2}{\omega_P \tau} \quad (2.33)$$

Der Reflexionskoeffizient ist also in diesem Relaxations-Bereich annähernd konstant und um einen Anteil proportional  $\frac{1}{\omega_P \tau}$  reduziert gegenüber dem Idealwert 1, wie man es auch in der Abbildung an den beiden Kurven für  $\omega_P \tau \gg 1$  erkennen kann. Im **Transparenz-Bereich**  $\omega_P \ll \omega$  wird die Dielektrizitätskonstante näherungsweise reell und positiv

$$\varepsilon \approx 1 - \frac{\omega_P^2}{\omega^2} \quad (2.34)$$

Daher ist auch der Brechungsindex reell:

$$n \approx \sqrt{1 - \frac{\omega_P^2}{\omega^2}} \approx 1 - \frac{1}{2} \frac{\omega_P^2}{\omega^2} \quad (2.35)$$

Der Reflexionskoeffizient  $R$  verschwindet also wie  $\omega_P^2/\omega^2$  für  $\omega \rightarrow \infty$ , das Metall wird annähernd transparent für diese hochfrequente elektromagnetische Strahlung.

### 2.2.2 Boltzmann-Gleichung in Relaxationszeit-Näherung, anomaler Skin-Effekt

Wie im Kap. 1 über elektronischen Transport schon erwähnt wurde, hat die phänomenologische Stoßzeit ihre physikalische Interpretation als die Zeit, die zwischen zwei Streuprozessen eines Elektrons (z. B. an Störstellen oder Phononen) vergeht; mit der Stoßzeit hängt daher eng die **mittlere freie Weglänge**  $l_F$  eines Elektrons zusammen über  $l_F = v_F \tau$ , wobei  $v_F$  die Geschwindigkeit der



relevanten Elektronen, also die Fermi-Geschwindigkeit ist. Bei guten, Metallen, also sehr reinen Metallen bei tiefen Temperaturen, sind  $\tau$  und damit auch  $l_F$  relativ groß. In diesem Fall können Elektronen große Strecken zurücklegen, ohne durch einen Streuprozess aus ihrem Zustand herausgestreut zu werden. Ein Elektron, das in einem bestimmten Raumbereich durch das dort vorhandene elektromagnetische Feld angeregt und in einen bestimmten Geschwindigkeits-Zustand gebracht wird, kann dann in einem anderen Raumbereich, in dem eventuell ein anderes (oder kein) elektrisches Feld vorhanden ist, zum Strom beitragen, beeinflusst in diesem Raumbereich das Feld und bestimmt die dortige Dielektrizitätskonstante mit.

Diese **nichtlokalen Effekte** können z. B. beim Skin-Effekt eine Rolle spielen. Ist nämlich die mittlere freie Weglänge  $l_F$  größer als die klassische Skin-Tiefe  $\delta$ , dann gelangen die in der Skin-Schicht durch das dort vorhandene elektrische (Wechsel-) Feld beschleunigten Elektronen auch in Bereiche außerhalb der klassischen Skin-Tiefe, somit fließt dort doch ein Strom und die Skin-Tiefe und der ganze Skin-Effekt werden dadurch modifiziert.

Ein möglicher Zugang zur Behandlung solcher nichtlokaler Effekte ist der über die beim statischen Transport in Kap. 1 schon besprochene Boltzmann-Gleichung. Durch das elektromagnetische Feld  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$  sind die Elektronen nicht mehr im Gleichgewicht, sondern unterliegen einer Nichtgleichgewichts-Verteilung

$$f(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t) = f_0(\mathbf{k}) + f_1(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t) \quad (2.36)$$

In Relaxationszeit-Näherung lautet die Boltzmann-Gleichung

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \frac{\partial f}{\partial \mathbf{r}} \dot{\mathbf{r}} + \frac{\partial f}{\partial \mathbf{k}} \dot{\mathbf{k}} = -\frac{f_1}{\tau} \quad (2.37)$$

Nach der Newtonschen Bewegungsgleichung gilt

$$\hbar \dot{\mathbf{k}} = \dot{\mathbf{p}} = \mathbf{F} = e\mathbf{E} \quad (2.38)$$

da das elektrische Feld die Elektronen beschleunigt. Da das Nichtgleichgewicht erst durch das Feld verursacht wird, braucht bei der partiellen Ableitung nach  $\mathbf{k}$  somit nur die Gleichgewichts-Verteilung  $f_0$  berücksichtigt zu werden, wenn man in linearer Ordnung in der äußeren Störung arbeitet. Da die Gleichgewichts-Verteilung  $f_0$  außerdem orts- und zeitunabhängig ist, reduzieren sich die anderen beiden partiellen Ableitungen auf die Ableitungen der Abweichung von der Gleichgewichts-Verteilung,  $f_1$ . Daher erhält man als **linearisierte Boltzmann-Gleichung**

$$\frac{\partial f_1}{\partial t} + \frac{\partial f_1}{\partial \mathbf{r}} \dot{\mathbf{r}} + \frac{f_1}{\tau} = -\frac{\partial f_0}{\partial \mathbf{k}} \dot{\mathbf{k}} = -\frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} \frac{\hbar^2 \mathbf{k}}{m} \frac{e}{\hbar} \mathbf{E} = -\frac{df_0}{d\varepsilon} e \mathbf{v} \mathbf{E} \quad (2.39)$$

Wenn die elektrische Feldstärke eine Zeitabhängigkeit  $e^{-i\omega t}$  hat, kann man eine entsprechende Zeitabhängigkeit auch für die Abweichung von der Gleichgewichts-Verteilung  $f_1$  ansetzen. Dann ergibt sich

$$\left(-i\omega + \frac{1}{\tau}\right)f_1 + \mathbf{v} \cdot \frac{\partial f_1}{\partial \mathbf{r}} = e\mathbf{E}\mathbf{v} \cdot \left(-\frac{df_0}{d\varepsilon}\right) \quad (2.40)$$

Geht man zur räumlichen Fouriertransformierten über bzw. setzt eine harmonische Ortsabhängigkeit des Feldes an, also insgesamt  $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 e^{i(\mathbf{q}\mathbf{r} - \omega t)}$  und setzt entsprechend auch für  $f_1$  an:

$$f_1(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t) = \left(-\frac{df_0}{d\varepsilon}\right) \Phi(\mathbf{q}) e^{i(\mathbf{q}\mathbf{r} - \omega t)} \quad (2.41)$$

ergibt sich

$$\Phi(\mathbf{q}) = \frac{e\tau \mathbf{v}\mathbf{E}_0}{1 - i\omega\tau + i\tau \mathbf{q}\mathbf{v}} \quad (2.42)$$

Für die Stromdichte erhält man so

$$\mathbf{j} = \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}\sigma} e f_1(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t) \mathbf{v} = \frac{e^2}{4\pi^3} \int d^3k \left(-\frac{df_0}{d\varepsilon}\right) \frac{\tau(\mathbf{v}\mathbf{E}_0)\mathbf{v}}{1 - i\tau(\omega - \mathbf{q}\mathbf{v})} e^{i(\mathbf{q}\mathbf{r} - \omega t)} \quad (2.43)$$

Der Tensor der komplexen, im allgemeinen von der Frequenz  $\omega$  und der Wellenzahl  $\mathbf{q}$  abhängigen Leitfähigkeit ist somit in dieser Relaxationszeit-Behandlung gegeben durch

$$\sigma_{\alpha\beta}(\mathbf{q}, \omega) = \frac{e^2}{4\pi^3} \int d^3k \left(-\frac{df_0}{d\varepsilon}\right) \frac{\tau v_\alpha v_\beta}{1 - i\tau(\omega - \mathbf{q}\mathbf{v})} \quad (2.44)$$

Speziell für isotrope Systeme wird der Leitfähigkeitstensor diagonal; arbeitet man ferner mit dem Modell quasi-freier Elektronen, gilt  $\mathbf{v} = \frac{\hbar}{m}\mathbf{k}$  und es folgt:

$$\sigma(\mathbf{q}, \omega) = \frac{e^2}{2\pi^2} \frac{\hbar^2}{m^2} \int_0^\infty dk k^4 \left(-\frac{df_0}{d\varepsilon}\right) \int_{-1}^{+1} \frac{d \cos \theta \tau \sin^2 \theta}{1 - i\tau(\omega - q \cos \theta \frac{\hbar k}{m})} \quad (2.45)$$

Speziell für  $q \rightarrow 0$  ergibt sich

$$\sigma(q=0, \omega) = \frac{e^2}{3\pi^2 m} \left(\frac{2m}{\hbar^2} \varepsilon_F\right)^{3/2} \frac{\tau(\varepsilon_F)}{1 - i\omega\tau(\varepsilon_F)} = \frac{n_e e^2 \tau}{m} \frac{1}{1 - i\omega\tau} \quad (2.46)$$

wobei die schon aus den früheren Kapiteln für (quasi-)freie Elektronen bekannten Standard-Relationen

$$k_F = \left(3\pi^2 n_e\right)^{1/3}, \quad \left(-\frac{df_0}{d\varepsilon}\right) = \delta(\varepsilon - \varepsilon_F), \quad \varepsilon_F = \frac{\hbar^2 k_F^2}{2m}$$

benutzt wurden. Somit gewinnt man, ähnlich wie im Fall der statischen Leitfähigkeit, aus der Relaxationszeit-Näherung der Boltzmann-Gleichung speziell für  $q \rightarrow 0$  und somit für räumlich homogene Situationen das Drude-Resultat für die frequenzabhängige Leitfähigkeit zurück.

Als Anwendungsbeispiel für die Bestimmung einer  $q$ -abhängigen Leitfähigkeit in einer räumlich nicht homogenen Situation soll die Theorie des anomalen Skin-Effektes kurz skizziert werden. Wir betrachten dazu wieder ein Metall im Halbraum  $x > 0$  und eine in  $x$ -Richtung einfallende elektromagnetische Welle mit in  $z$ -Richtung oszillierendem elektrischen Feldvektor  $E_z(x, t) = E_z(x) e^{-i\omega t}$ . Zu berechnen sind die Leitfähigkeit bzw. die Stromdichte und das elektrische Feld im Metall. Auch hier wird das Feld selbst wieder vom Strom beeinflusst. Neben der Boltzmann-Gleichung ist daher noch die aus den Maxwell-Gleichungen folgende Bestimmungsgleichung für  $E_z(x)$  im Metall zu lösen:

$$\frac{d^2 E_z}{dx^2} + \frac{\omega^2}{c^2} E_z = -\frac{4\pi i\omega}{c^2} j_z \quad (2.47)$$

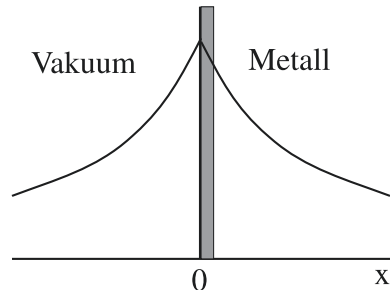
Um obiges Ergebnis für die  $q$ - und  $\omega$ -abhängige Leitfähigkeit benutzen zu können, muss man zu den Fourier-Transformierten übergehen. Da die Lösung nur im Bereich des Metalls interessiert, denkt man sich das Metall durch Spiegelung an der  $yz$ -Ebene in den ganzen Raum fortgesetzt, um die Fourier-Transformierten durch Integration über den ganzen Raum bestimmen zu können. Da aber das wirkliche Feld von  $x = 0$  an zu positiven  $x$  hin exponentiell abfällt, hat das Feld dann eine Singularität in Form einer „Spitze“ bei  $x = 0$ , wie in Abb. 2.2 skizziert. Die Ableitung hat dort einen Sprung:

$$\left( \frac{dE_z}{dx} \right)_{+0} = - \left( \frac{dE_z}{dx} \right)_{-0} \quad (2.48)$$

Diese Bedingung kann man durch Hinzufügen eines Terms mit einer Delta-Funktion berücksichtigen und erhält:

$$\frac{d^2 E_z}{dx^2} + \frac{\omega^2}{c^2} E_z = -\frac{4\pi i\omega\sigma_{zz}}{c^2} E_z + 2 \left( \frac{dE_z}{dx} \right)_{+0} \delta(x) \quad (2.49)$$

**Abb. 2.2** Feldverlauf an einer Metalloberfläche



Fourier-transformiert lautet diese Gleichung

$$\left(-q^2 + \frac{\omega^2}{c^2} + \frac{4\pi i\omega\sigma(\mathbf{q}, \omega)}{c^2}\right) E_q = 2 \left(\frac{dE_z}{dz}\right)_{+0} \quad (2.50)$$

Der gesuchte Feldverlauf  $E_z(x)$  im Metall ergibt sich dann aus

$$E_z(x) = \int_{-\infty}^{+\infty} dq E_q e^{iqx} = -2 \left(\frac{dE_z}{dz}\right)_{+0} \int_{-\infty}^{+\infty} dq \frac{e^{iqx}}{q^2 - \frac{\omega^2}{c^2} + \frac{4\pi i\omega\sigma(q)}{c^2}} \quad (2.51)$$

Zur Bestimmung der  $q$ -Abhängigkeit der Leitfähigkeit ist insbesondere nach (2.45) noch ein Winkel-Integral zu berechnen. In dem hier interessierenden Grenzfall großer freier Weglänge lässt sich dieses analytisch bestimmen und die  $q$ -Abhängigkeit der Leitfähigkeit ist dann näherungsweise

$$\sigma(q) \sim \frac{\sigma_0}{v_F \tau |q|} \quad (2.52)$$

Da die statische Drude-Leitfähigkeit  $\sigma_0$  proportional zur Lebensdauer (Stoßzeit)  $\tau$  ist, wird die  $q$ -abhängige Leitfähigkeit  $\sigma(q)$  unabhängig von der Streuzeit und damit der freien Weglänge, und damit hängen dann auch der Feldverlauf im Metall und die Dicke der Skin-Schicht  $\delta$  – im Unterschied zur Situation beim normalen Skin-Effekt – gar nicht mehr von der freien Weglänge bzw. Streuzeit ab. Bei Metallen ist es üblich, die gemessenen oder berechneten optischen Eigenschaften durch die sogenannte **Oberflächen-Impedanz**  $Z$  auszudrücken. Diese ist im Wesentlichen ein komplexer Widerstand und wird definiert als das Verhältnis des elektrischen Feldes an der Oberfläche zur über die gesamte Dicke des Metalls integrierten Stromdichte:

$$Z = \frac{E_z(0)}{\int_0^\infty j_z(x) dx} \quad (2.53)$$

Sie lässt sich auch schreiben als

$$Z = R - iX = \frac{4\pi}{c} \frac{E_z(0)}{H_y(0)} = \frac{4\pi i\omega}{c^2} \left( \frac{E_z}{\frac{dE_z}{dx}} \right)_{x=0} \quad (2.54)$$

Die Oberflächen-Impedanz, die eng mit dem Absorptionskoeffizienten zusammenhängt, errechnet sich unmittelbar aus Gl. (2.51) und ist daher im Bereich des anomalen Skin-Effekts ebenfalls unabhängig von Stoßzeit und freier Weglänge. Durch Messung von  $Z$  kann daher unmittelbar die Fermi-Geschwindigkeit  $v_F$  bestimmt werden; dies kann zum Ausmessen der Fermi-Fläche eines Metalls benutzt werden.

Dieses Ergebnis der Unabhängigkeit der Oberflächen-Impedanz bzw. der Skin-Dicke von der freien Weglänge  $l_F$  bzw. Stoßzeit  $\tau$  kann qualitativ auch durch

das folgende einfache Argument des sogenannten Pippardschen Ineffektivitäts-Konzepts verstanden werden: Wenn die Skin-Dicke  $\delta$  klein ist gegenüber der freien Weglänge  $l_F$ , werden nur die Elektronen, die sich in einem kleinen Winkel proportional  $\delta/l_F$  zur Oberfläche bewegen, lange genug in der Skin-Schicht bleiben, um merklich Energie aus dem Feld zu absorbieren. Die effektive Ladungsträgerdichte ist also  $n_{\text{eff}} \sim \frac{\delta}{l_F} n_e$ , und die effektive Leitfähigkeit

$$\sigma_{\text{eff}} \sim \frac{\delta}{l_F} \sigma_0 \quad (2.55)$$

Da sowohl  $\sigma_0$  als auch  $l_F$  proportional zur Stoßzeit  $\tau$  sind, kürzt sich diese heraus; setzt man die effektive Leitfähigkeit statt der Drude-Leitfähigkeit  $\sigma_0$  in die Formel für die Skin-Dicke (2.13) ein und löst nach  $\delta$  auf, erhält man

$$\delta \sim \left( \frac{c^2 l_F}{2\pi \sigma_0 \omega} \right)^{1/3} \quad (2.56)$$

und insbesondere die Abhängigkeit  $\sim (l_F/\sigma_0)^{1/3}$ , die durch die oben skizzierte mathematische Theorie (nach Ausführen des  $q$ -Integrals in (2.51)) bestätigt wird.

---

## 2.3 Mikroskopische Theorie der frequenzabhängigen Dielektrizitätskonstanten

Die Elektronen im ungestörten Festkörper seien beschrieben durch ein effektives Einteilchen-Potential, bei dem die Elektron-Elektron-Wechselwirkung z. B. in Hartree-Näherung berücksichtigt wird; das ungestörte Einteilchen-Potential ist dann gegeben durch

$$V(\mathbf{r}) = V_{\text{per}}(\mathbf{r}) + V_H(\mathbf{r})$$

mit dem Hartree-Potential  $V_H(\mathbf{r}) = \int d^3 r' \frac{e \rho_0(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}$  (2.57)

mit  $V_{\text{per}}(\mathbf{r})$  dem periodischen Kristall-Potential und  $\rho_0(\mathbf{r}) = en_0(\mathbf{r})$  der (selbstkonsistent zu bestimmenden) Ladungsdichte der Elektronen.

Das System werde gestört durch ein zeitabhängiges äußeres elektrisches Potential  $\Phi_a(\mathbf{r}, t)$ ; dann spüren die Elektronen ein mechanisches Störpotential  $V_a(\mathbf{r}, t) = e\Phi_a(\mathbf{r}, t)$ . Dieses bewirkt eine Änderung der Ladungs-(Elektronen-)Verteilung im Festkörper, man erhält also eine neue, zeitabhängige Ladungsdichte

$$\rho(\mathbf{r}, t) = \rho_0(\mathbf{r}) + \rho_i(\mathbf{r}, t) \quad (2.58)$$

Die induzierte Ladungsdichte  $\rho_i(\mathbf{r}, t)$  im Medium bewirkt ihrerseits wieder ein zeitabhängiges Potential

$$\Phi_i(\mathbf{r}, t) = \int d^3 r' \frac{\rho_i(\mathbf{r}', t)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \quad (2.59)$$

Es liegt also nicht mehr – wie ohne Störung durch das äußere zeitabhängige Feld – ein zeitunabhängiges Hartree-Potential vor sondern ein zeitabhängiges Gesamt-Potential  $V_g$  als Summe aus Hartree-Potenzial und äußerem Potential:

$$V_g(\mathbf{r}, t) = e\Phi_g(\mathbf{r}, t) = V(\mathbf{r}) + e(\Phi_a(\mathbf{r}, t) + \Phi_i(\mathbf{r}, t)) \quad (2.60)$$

und die modifizierte Ladungsdichte ist selbstkonsistent mit dem Potential  $\Phi_i(\mathbf{r}, t)$  zu bestimmen. Der Zusammenhang zwischen den Potentialen und den sie erzeugenden Ladungs-(Elektronen-)Dichten ist über die Poisson-Gleichung gegeben zu

$$\begin{aligned} \Delta \Phi_i(\mathbf{r}, t) &= -4\pi \rho_i(\mathbf{r}, t), \text{ bzw. für die Fourier-Transformierten} \\ q^2 \Phi_i(\mathbf{q}, \omega) &= 4\pi \rho_i(\mathbf{q}, \omega) \end{aligned} \quad (2.61)$$

Durch das äußere Feld bzw. Potential wird also eine Ladungsumverteilung im System induziert, die das äußere Feld partiell abschirmt. Effektiv wirkt daher die Störung  $e(\Phi_a + \Phi_i)$ . Nach den Gesetzen der Elektrodynamik ist klar, dass dieses Gesamt-Potential dasjenige ist, das die eigentliche elektrische Feldstärke  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$  bestimmt, während  $\Phi_a$  alleine ja nur von äußeren Spannungsquellen oder Ladungen bewirkt wird und daher das zur elektrischen Verschiebungsdichte  $\mathbf{D}(\mathbf{r}, t)$  gehörige Potential ist. Für die komplexe Dielektrizitätskonstante gilt daher

$$\varepsilon(\mathbf{q}, \omega) = \frac{\Phi_a(\mathbf{q}, \omega)}{\Phi_a(\mathbf{q}, \omega) + \Phi_i(\mathbf{q}, \omega)} = 1 - \frac{\Phi_i(\mathbf{q}, \omega)}{\Phi_a(\mathbf{q}, \omega) + \Phi_i(\mathbf{q}, \omega)} = 1 - \frac{4\pi}{q^2} \frac{\rho_i(\mathbf{q}, \omega)}{\Phi(\mathbf{q}, \omega)} \quad (2.62)$$

In zweiter Quantisierung ist der Hamilton-Operator des gestörten Elektronensystems gegeben durch

$$H = \sum_{n\mathbf{k}\sigma} E_n(\mathbf{k}) c_{n\mathbf{k}\sigma}^\dagger c_{n\mathbf{k}\sigma} + \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'n n'\sigma} \langle n\mathbf{k} | V(\mathbf{r}, t) | n'\mathbf{k}' \rangle c_{n\mathbf{k}\sigma}^\dagger c_{n'\mathbf{k}'\sigma} \quad (2.63)$$

Hierbei sollen die  $E_n(\mathbf{k})$  die effektiven Einteilchen-Energien unter Berücksichtigung des zeitunabhängigen Hartree-Potentials sein,  $n$  bezeichnet den Bandindex.  $V(\mathbf{r}, t) = e\Phi(\mathbf{r}, t) = e(\Phi_a(\mathbf{r}, t) + \Phi_i(\mathbf{r}, t))$  beschreibt eine zeitabhängige Störung des Systems, und zwar nicht nur die von außen eingeprägte, sondern auch die durch die daraus resultierende, zeitabhängige Ladungsumordnung bewirkte und somit selbstkonsistent zu bestimmende Störung. Die Änderung der Ladungs- bzw. Teilchendichte infolge dieser äußeren zeitabhängigen Störung, die ihrerseits das Störpotential  $V(\mathbf{r}, t)$  wieder mit bestimmt, kann man in niedrigster Ordnung im Rahmen des Formalismus der Linearen Response-Theorie bestimmen. Wir nehmen nun im folgenden zur Vereinfachung sowohl für das Störpotential als auch für die resultierende

Dichte eine Orts- und Zeitabhängigkeit der Form  $\exp[i(\mathbf{q}\mathbf{r} - (\omega + i\delta)t)]$  an; für beliebige Funktionen von Ort und Zeit muß man dann gegebenenfalls eine Fourier-Transformation durchführen, um die folgenden Relationen anwenden zu können. Bei der Zeitabhängigkeit ist ein adiabatischer Einschaltterm  $e^{\delta t}$  berücksichtigt, der ein Verschwinden der oszillierenden Störung für  $t \rightarrow -\infty$  bewirkt und damit die Anwendbarkeit der Linearen Response-Theorie aus Abschn. 1.9 ermöglicht. Die zeitabhängige Störung lässt sich dann auch schreiben als

$$en(\mathbf{q})\Phi(\mathbf{q})e^{-i(\omega+i0)t}, \quad \text{mit dem Operator der Teilchendichte} \quad (2.64)$$

$$n(\mathbf{q}) = \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'n'n'\sigma} \langle n\mathbf{k}|e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}}|n'\mathbf{k}'\rangle c_{n\mathbf{k}\sigma}^\dagger c_{n'\mathbf{k}'\sigma}$$

Die durch die Störung induzierte Ladungsdichte ist dann gegeben durch den Nichtgleichgewichts-Erwartungswert der Teilchendichte, also in Linearer Response durch

$$\begin{aligned} \rho_i(\mathbf{q})e^{-i(\omega+i\delta)t} &= e\langle n(\mathbf{q})\rangle e^{-i(\omega+i\delta)t} \\ &= \chi_{n(\mathbf{q}),n(\mathbf{q})}(\omega + i\delta)e^2\Phi(\mathbf{q})e^{-i(\omega+i\delta)t} \end{aligned} \quad (2.65)$$

Hierbei ist  $\chi(\mathbf{q}, \omega) = \chi_{n(\mathbf{q}),n(\mathbf{q})}(\omega + i\delta)$  die Dichte-Dichte-Suszeptibilität. Da sowohl der Dichte-Operator als auch der effektive Hamilton-Operator Einteilchen-Operatoren sind, lässt sich gemäß (1.187) bzw. (1.192) unter Benutzung von (1.219) die Suszeptibilität explizit schreiben als

$$\chi(\mathbf{q}, \omega) = \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'n'n'\sigma} |\langle n\mathbf{k}|e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}}|n'\mathbf{k}'\rangle|^2 \frac{f(E_n(\mathbf{k})) - f(E_{n'}(\mathbf{k}'))}{\hbar\omega + i\delta + E_n(\mathbf{k}) - E_{n'}(\mathbf{k}')} \quad (2.66)$$

Für die (komplexe) Dielektrizitätskonstante ergibt sich somit

$$\begin{aligned} \varepsilon(\mathbf{q}, \omega) &= 1 - \frac{4\pi e^2}{Vq^2} \chi(\mathbf{q}, \omega) \\ &= 1 - \frac{4\pi e^2}{Vq^2} \sum_{\mathbf{k}\mathbf{k}'n'n'\sigma} |\langle n\mathbf{k}|e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}}|n'\mathbf{k}'\rangle|^2 \frac{f(E_n(\mathbf{k})) - f(E_{n'}(\mathbf{k}'))}{\hbar\omega + i\delta + E_n(\mathbf{k}) - E_{n'}(\mathbf{k}')} \end{aligned} \quad (2.67)$$

Diese Gleichung heißt manchmal auch **Ehrenreich-Cohen-Gleichung**.<sup>1</sup> Man kann sie auch elementarer herleiten ohne Benutzung des Formalismus der Linearen Response-Theorie. Ausgehend von der Bewegungsgleichung

<sup>1</sup>benannt nach H. Ehrenreich (\*1928 in Frankfurt, † 2008 in Belmont bei Boston, 1939 Flucht aus Deutschland und ab 1940 in den USA lebend, Studium an der Cornell-University, Promotion 1955, seit 1963 Professor an der Harvard-University, Arbeiten zu optischen und Transporteigenschaften von Halbleitern und Metallen und zur Theorie ungeordneter Systeme) und Morrel H. Cohen (Professor an der University of Chicago, später am Exxon Research Center in New Jersey und danach an der Rutgers University)

$$i\hbar \frac{d}{dt} c_{n'\mathbf{k}'\sigma}^\dagger c_{n\mathbf{k}\sigma} = \left[ H, c_{n'\mathbf{k}'\sigma}^\dagger c_{n\mathbf{k}\sigma} \right] \quad (2.68)$$

erhält man nämlich

$$\begin{aligned} (\hbar\omega + i\delta) c_{n'\mathbf{k}'\sigma}^\dagger c_{n\mathbf{k}\sigma} &= (E_{n'}(\mathbf{k}') - E_n(\mathbf{k})) c_{n'\mathbf{k}'\sigma}^\dagger c_{n\mathbf{k}\sigma} \\ &+ e\Phi(\mathbf{q}) \sum_{n_1\mathbf{k}_1} \left[ \langle n_1\mathbf{k}_1 | e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} | n'\mathbf{k}' \rangle c_{n_1\mathbf{k}_1\sigma}^\dagger c_{n\mathbf{k}\sigma} - \langle n\mathbf{k} | e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} | n_1\mathbf{k}_1 \rangle c_{n'\mathbf{k}'\sigma}^\dagger c_{n_1\mathbf{k}_1\sigma} \right] \end{aligned} \quad (2.69)$$

Löst man nach  $c_{n'\mathbf{k}'\sigma}^\dagger c_{n\mathbf{k}\sigma}$  auf, bildet auf beiden Seiten die thermodynamischen Erwartungswerte und vernachlässigt in der  $\mathbf{k}_1 n_1$ -Summe die Nichtdiagonal-Elemente, was wieder der in Band 1, Absch. 6.7 schon einmal durchgeführten „Random-Phase-Approximation“ (RPA) entspricht, dann folgt

$$\left\langle c_{n'\mathbf{k}'\sigma}^\dagger c_{n\mathbf{k}\sigma} \right\rangle = e\Phi(\mathbf{q}) \langle n\mathbf{k} | e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} | n'\mathbf{k}' \rangle \frac{f(E_n(\mathbf{k})) - f(E_{n'}(\mathbf{k}'))}{\hbar\omega + i0 + E_n(\mathbf{k}) - E_{n'}(\mathbf{k}')} \quad (2.70)$$

Multiplikation mit dem Matricelement von  $e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}}$  und Summation über die Quantenzahlen  $n, n', \mathbf{k}, \mathbf{k}', \sigma$  führt zum Erwartungswert der Fourier-transformierten, zeitabhängigen Teilchendichte  $n(\mathbf{q})$  und somit zur induzierten Ladungsdichte  $\rho_i(\mathbf{q}) \cdot e^{-i(\omega+i\delta)t} = e\langle n(\mathbf{q}) \rangle$ . Gl. (2.66) wird offenbar reproduziert. Die hier wieder benutzte RPA, die ihren Namen von der Argumentation her hat, dass die verschiedenen Nichtdiagonal-Elemente zufällige, unkorrelierte Phasen haben, weswegen sie sich bei der Summation gegenseitig wegmitteln, ist hier offenbar äquivalent der Lineare-Response-Näherung. Es soll aber nochmals betont werden, dass diese zeitabhängige Störungsrechnung hier nicht bezüglich der äußeren Störung durchgeführt wurde, sondern bezüglich der äußeren Störung plus dem durch die resultierende Ladungsverschiebung bzw. Polarisation erzeugten zeitabhängigen Potential bzw. Feld. Die (zeitabhängige, oszillierende) Ladungsdichte wird also selbstkonsistent aus dem daraus resultierenden Potential bestimmt. Die durchgeführten Näherungen entsprechen somit auch einer **zeitabhängigen Hartree-Näherung**.

Speziell für das Modell des freien Elektronengases, welches ja einige Metalle gut beschreiben sollte, hat man nur ein Band vorliegen, die Eigenenergien erfüllen  $E(\mathbf{k}) = \frac{\hbar^2 k^2}{2m}$ , die Eigenzustände sind ebene Wellen und es kommen nur **Intraband-Übergänge** als Anregungen in Betracht. Aus der Ehrenreich-Cohen-Formel wird in diesem Spezialfall

$$\varepsilon(\mathbf{q}, \omega) = 1 - \frac{4\pi e^2}{Vq^2} \chi(\mathbf{q}, \omega) = 1 - \frac{4\pi e^2}{Vq^2} \sum_{\mathbf{k}\sigma} \frac{f(E(\mathbf{k})) - f(E(\mathbf{k} + \mathbf{q}))}{\hbar\omega + i\delta + E(\mathbf{k}) - E(\mathbf{k} + \mathbf{q})} \quad (2.71)$$

Dies ist gerade die frequenzabhängige **Lindhard-Dielektrizitätskonstante** für das homogene Elektronengas (Jellium-Modell) in RPA bzw. zeitabhängiger Hartree-Näherung. Im statischen Grenzfall  $\omega \rightarrow 0$  reproduziert sich die in Band 1,



Abschn. 6.8 ausführlich besprochene Lindhard-Theorie der statischen Abschirmung (vgl. in Band 1 Gl. (6.192, 6.194) für die statische Suszeptibilität bzw. Dielektrizitätskonstante). Die frequenzabhängige Dielektrizitätskonstante ist im allgemeinen Fall, wie zu erwarten, komplex:  $\varepsilon(\mathbf{q}, \omega) = \varepsilon_1(\mathbf{q}, \omega) + i\varepsilon_2(\mathbf{q}, \omega)$ . Für den Imaginärteil der Lindhard-Dielektrizitätskonstanten erhält man

$$\varepsilon_2(\mathbf{q}, \omega) = \frac{4\pi^2 e^2}{Vq^2} \sum_{\mathbf{k}\sigma} (f(E(\mathbf{k})) - f(E(\mathbf{k} + \mathbf{q}))) \delta(\hbar\omega + E(\mathbf{k}) - E(\mathbf{k} + \mathbf{q})) \quad (2.72)$$

Ein endlicher Imaginärteil der Dielektrizitätskonstanten und damit auch ein endlicher Absorptionskoeffizient existiert also für die Frequenzen, die Teilchen-Loch-Anregungsenergien  $E(\mathbf{k} + \mathbf{q}) - E(\mathbf{k})$  entsprechen.

Im allgemeinen Fall von mehreren Energiebändern kann man die Dielektrizitätskonstante offenbar in einen Intraband- und einen Interband-Anteil zerlegen. Berücksichtigt man ferner noch, dass optisch nur relativ kleine Impulse  $\mathbf{q}$  übertragen werden können,<sup>2</sup> dann kann man nach  $\mathbf{q}$  entwickeln. Dann gilt für die Matrixelemente von  $e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}}$  näherungsweise

$$\begin{aligned} \langle n\mathbf{k} | e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} | n'\mathbf{k}' \rangle &= \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{R}} e^{i(\mathbf{k}' + \mathbf{q} - \mathbf{k})\mathbf{R}} \frac{1}{V_{EZ}} \int_{EZ} d^3r u_{n\mathbf{k}}^*(\mathbf{r}) e^{i(\mathbf{k}' + \mathbf{q} - \mathbf{k})\mathbf{r}} u_{n'\mathbf{k}'}(\mathbf{r}) \\ &= \delta_{\mathbf{k}' + \mathbf{q}, \mathbf{k}} \frac{1}{V_{EZ}} \int_{EZ} d^3r u_{n\mathbf{k} + \mathbf{q}}^*(\mathbf{r}) u_{n'\mathbf{k}'}(\mathbf{r}) \\ &= \langle n\mathbf{k}' + \mathbf{q} | (1 + i\mathbf{q}\mathbf{r}) | n'\mathbf{k}' \rangle = \delta_{nn'} \delta_{\mathbf{q}0} + i\mathbf{q} \langle n\mathbf{k}' | \mathbf{r} | n'\mathbf{k}' \rangle + O(q^2) \end{aligned} \quad (2.73)$$

Interband-Matrixelemente zu verschiedenem Bandindex  $n, n'$  tragen also in niedrigster Ordnung in  $\mathbf{q}$  bei gleichem  $\mathbf{k}'$  (also  $\mathbf{k}$ -diagonal) bei und sind durch die Matrixelemente des Ortsoperators bestimmt (bzw. wegen des Faktors  $e$  des **Dipol-Operators**  $e\mathbf{r}$ ). Wegen

$$\frac{1}{m} \mathbf{p} = \frac{i}{\hbar} [H, \mathbf{r}]$$

folgt

$$\langle n\mathbf{k} | \mathbf{r} | n'\mathbf{k}' \rangle = \frac{\hbar}{im} \langle n\mathbf{k} | \mathbf{p} | n'\mathbf{k}' \rangle \frac{1}{E_n(\mathbf{k}) - E_{n'}(\mathbf{k})} \quad (2.74)$$

<sup>2</sup>Optische Wellenlängen liegen in der Größenordnung  $10^3$  Gitterkonstanten, die vom Licht bzw. von Photonen übertragene Wellenzahl  $\mathbf{q}$  ist daher betragsmäßig um einen Faktor  $10^{-3}$  kleiner als reziproke Gittervektoren, d. h. die Größenordnung der Brillouin-Zone, auf der die Wellenvektoren  $\mathbf{k}$  variieren

Somit ergibt sich für die komplexe Dielektrizitätskonstante für kleine  $q$

$$\begin{aligned} \varepsilon(\mathbf{q}, \omega) = 1 - \frac{4\pi e^2}{Vq^2} \sum_{\mathbf{k}n\sigma} \frac{f(E_n(\mathbf{k} + \mathbf{q})) - f(E_n(\mathbf{k}))}{E_n(\mathbf{k} + \mathbf{q}) - E_n(\mathbf{k}) + \hbar\omega + i\delta} \\ - \frac{4\pi e^2 \hbar^2}{Vm^2} \sum_{\mathbf{k}n \neq n'\sigma} \frac{|\mathbf{e}_q \langle n\mathbf{k} | \mathbf{p} | n'\mathbf{k} \rangle|^2}{(E_n(\mathbf{k}) - E_{n'}(\mathbf{k}))^2} \frac{f(E_{n'}(\mathbf{k})) - f(E_n(\mathbf{k}))}{E_{n'}(\mathbf{k}) - E_n(\mathbf{k}) + \hbar\omega + i\delta} \end{aligned} \quad (2.75)$$

Hier beschreibt die erste Summe gerade die Intraband-, die zweite die Interband-Beiträge zu  $\varepsilon(\mathbf{q}, \omega)$ ; offenbar sind die für Interband-Übergänge entscheidenden Matrixelemente statt durch die  $k$ -diagonalen Matrixelemente des Dipol-Operators auch durch die entsprechenden  $k$ -diagonalen Interband-Matrixelemente der longitudinalen (d. h. parallel zu  $\mathbf{q}$ ) Komponente des Impuls-Operators  $\mathbf{p}$  bzw. des Strom-Operators  $\mathbf{j} = \frac{e}{m}\mathbf{p}$  ausdrückbar. Die entsprechenden Matrixelemente

$$\frac{|\mathbf{e}_q \langle n\mathbf{k} | \mathbf{p} | n'\mathbf{k} \rangle|^2}{m(E_{n'}(\mathbf{k}) - E_n(\mathbf{k}))}$$

werden manchmal auch als „Oszillator-Stärke“ bezeichnet. Im Intraband-Anteil kann man noch folgende Umformungen vornehmen

$$\begin{aligned} I(\mathbf{q}) &= \sum_{\mathbf{k}n\sigma} \frac{f(E_n(\mathbf{k} + \mathbf{q})) - f(E_n(\mathbf{k}))}{E_n(\mathbf{k} + \mathbf{q}) - E_n(\mathbf{k}) + \hbar\omega + i\delta} \\ &= \sum_{\mathbf{k}n\sigma} f(E_n(\mathbf{k})) \left( \frac{1}{E_n(\mathbf{k}) - E_n(\mathbf{k} - \mathbf{q}) + \hbar\omega + i\delta} - \frac{1}{E_n(\mathbf{k} + \mathbf{q}) - E_n(\mathbf{k}) + \hbar\omega + i\delta} \right) \\ &= \sum_{\mathbf{k}n\sigma} f(E_n(\mathbf{k})) \frac{E_n(\mathbf{k} + \mathbf{q}) + E_n(\mathbf{k} - \mathbf{q}) - 2E_n(\mathbf{k})}{(E_n(\mathbf{k} + \mathbf{q}) - E_n(\mathbf{k}) + \hbar\omega + i\delta)(E_n(\mathbf{k}) - E_n(\mathbf{k} - \mathbf{q}) + \hbar\omega + i\delta)} \end{aligned} \quad (2.76)$$

Für kleine  $q$  ist der Zähler proportional zu  $q^2$  multipliziert mit der zweiten Ableitung von  $E_n(\mathbf{k})$  in  $\mathbf{q}$ -Richtung, und entsprechend geht der Nenner für  $q \rightarrow 0$  in  $\omega^2$  über. Die zweiten partiellen Ableitungen von  $E_n(\mathbf{k})$  bilden aber gerade den inversen Tensor der effektiven Masse:  $\hbar^2 m^{*-1}$ ; setzt man voraus, dass dieser in  $\mathbf{q}$ -Richtung diagonal ist, dann ergibt sich einfach

$$I(\mathbf{q}) \xrightarrow{q \rightarrow 0} \frac{q^2}{m^*(\omega + i\delta)^2} \sum_{\mathbf{k}n\sigma} f(E_n(\mathbf{k})) = \frac{Nq^2}{m^*\omega^2} \quad (2.77)$$

Damit folgt

$$\begin{aligned} \varepsilon(\mathbf{q} \rightarrow 0, \omega) &= 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} - \frac{4\pi e^2 \hbar^2}{Vm^2} \sum_{\mathbf{k}n \neq n'\sigma} \frac{|\mathbf{e}_q \langle n\mathbf{k} | \mathbf{p} | n'\mathbf{k} \rangle|^2}{(E_n(\mathbf{k}) - E_{n'}(\mathbf{k}))^2} \frac{f(E_{n'}(\mathbf{k})) - f(E_n(\mathbf{k}))}{E_{n'}(\mathbf{k}) - E_n(\mathbf{k}) + \hbar\omega + i\delta} \end{aligned} \quad (2.78)$$

Hierbei ist  $\omega_p^2 = \frac{4\pi Ne^2}{Vm^*}$  das Quadrat der Plasma-Frequenz  $\omega_p$ ; das schon in der Drude-Theorie erhaltene charakteristische Hochfrequenzverhalten  $\varepsilon \sim 1 - \omega_p^2/\omega^2$  wird also auch in der mikroskopischen Theorie reproduziert. Der Interbandbeitrag zum Imaginärteil der frequenzabhängigen Dielektrizitätskonstante ergibt sich für kleine  $q$  zu

$$\begin{aligned} \varepsilon_2(\omega) &= \frac{4\pi^2 e^2}{Vm^2 \omega^2} \sum_{\mathbf{k}n \neq n'\sigma} |\mathbf{e}_q \langle n\mathbf{k} | \mathbf{p} | n'\mathbf{k} \rangle|^2 (f(E_{n'}(\mathbf{k})) - f(E_n(\mathbf{k}))) \delta(E_{n'}(\mathbf{k}) - E_n(\mathbf{k}) + \hbar\omega) \end{aligned} \quad (2.79)$$

Dieses Ergebnis kann man auch aus der in Abschn. 2.1 abgeleiteten Relation (2.6)  $\varepsilon = 1 + i \frac{4\pi\sigma(\omega)}{\omega}$  herleiten, woraus

$$\varepsilon_2 = \frac{4\pi}{\omega} \text{Re}\sigma(\omega) \quad (2.80)$$

folgt. Wenn man dort das Ergebnis (1.229) der Kubo-Formel für die frequenzabhängige Leitfähigkeit einsetzt, reproduziert sich (2.79). Der Realteil der frequenzabhängigen Leitfähigkeit bestimmt den Imaginärteil der Dielektrizitätskonstante, und dieser ist ein Maß für die Energieabsorption der elektromagnetischen Welle im Medium. Energieabsorption findet also dann statt, wenn die Frequenz der Strahlung Übergänge zwischen besetzten und unbesetzten Zuständen des Festkörpers ermöglicht und die „Oszillator-Stärken“, d. h. die Matrixelemente des Dipol- bzw. Strom-Operators zwischen besetztem und unbesetztem Zustand, solche Übergänge zulassen.

## 2.4 Optische Eigenschaften von Halbleitern

In (intrinsischen) Halbleitern sind bei tiefen Temperaturen alle Zustände bis einschließlich zum Valenzband  $v$  besetzt und die darüber liegenden Bänder vom Leitungsband  $c$  an unbesetzt, d. h.

$$f(E_n(\mathbf{k})) = \begin{cases} 1 & \text{für } n \leq v \\ 0 & \text{für } n \geq c \end{cases} \quad (2.81)$$

Die Bandlücke von Halbleitern ist in der Größenordnung von 1–3 eV, was von Photonen des sichtbaren Spektralbereichs aufgebracht werden kann. Halbleiter sind daher optisch leicht anzuregen, weil man durch das Einstrahlen von sichtbarem Licht Übergänge vom Valenz- ins Leitungsband induzieren kann. Besonders geeignet dafür sind Halbleiter mit direkter Bandlücke, d. h., wenn Leitungsband-Minimum und Valenzband-Maximum beim gleichen  $\mathbf{k}$ -Wert der 1. Brillouinzone liegen, in der Regel dann bei  $\mathbf{k} = 0$  ( $\Gamma$ -Punkt). Dann ist nämlich für

Anregungen vom Valenzband-Maximum ins Leitungsband-Minimum kein Impulsübertrag notwendig, und Photonen sichtbaren Lichts übertragen gerade einen (auf Skalen der Größenordnung Brillouinzone, d. h.  $10^{10} \text{ m}^{-1}$ ,) vernachlässigbaren Impuls (weil die Wellenlänge sichtbaren Lichts in der Größenordnung  $48 \times 10^4 \text{ \AA}$  liegt, beträgt der Photonen-Impuls  $10^6 \text{ m}^{-1} \ll 10^{10} \text{ m}^{-1}$ ).

### 2.4.1 Dipol-Kopplung an das elektromagnetische (optische) Feld

Zu beschreiben ist wieder ein Festkörper (Halbleiter), auf den das Feld einer monochromatischen elektromagnetischen Welle trifft, die nach der Elektrodynamik bekanntlich durch  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0 e^{i(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)}$  beschrieben werden kann. Bei optischen Feldern ist nun aber wegen der Kleinheit von  $|\mathbf{k}|$  die räumliche Variation auf der Längenskala atomarer Distanzen oder Gitterkonstanten vernachlässigbar klein. Daher kann man das optische Feld in guter Näherung als räumlich homogen und somit nur zeitabhängig betrachten, also

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \approx \mathbf{E}(t) \quad (2.82)$$

Dann kann die Ankopplung des elektromagnetischen Feldes auch rein über ein Skalarpotential  $\Phi(\mathbf{r}, t) = -\mathbf{r}\mathbf{E}(t)$  beschrieben werden und man erhält somit:

$$H(t) = H_0 - \mathbf{d}\mathbf{E}(t) = H_0 - dE(t) \quad (2.83)$$

mit dem Dipol-Operator:  $\mathbf{d} = e\mathbf{r} = e(x, 0, 0)$

wobei im letzten Schritt noch ohne Einschränkung das Feld und der Dipol-Operator parallel zur x-Richtung angenommen wurden ( $\mathbf{E}(t) = (E(t), 0, 0)$ ,  $\mathbf{d} = e(x, 0, 0)$ ) und  $H_0$  natürlich den ungestörten, zeitunabhängigen Festkörper-Hamilton-Operator bezeichnet. Der gesamte Hamilton-Operator (2.83) ist aber zeitabhängig, Ausgangspunkt ist also die zeitabhängige Schrödinger-Gleichung

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\psi(t)\rangle = H(t) |\psi(t)\rangle$$

Unter der Annahme, dass die Eigenzustände und Eigenwerte von  $H_0$  bekannt sind, d. h.  $H_0|n\rangle = \varepsilon_n|n\rangle$ , gilt für den ungestörten zeitabhängigen Zustand natürlich  $|\psi_0(t)\rangle = \sum_n a_{n0} e^{-i\varepsilon_n t/\hbar} |n\rangle$ . Für den gesuchten zeitabhängigen Zustand, wie er sich unter dem Einfluss des zeitabhängigen Feldes entwickelt, kann man daher zunächst den Ansatz machen

$$|\psi(t)\rangle = \sum_n a_n(t) e^{-i\varepsilon_n t/\hbar} |n\rangle \quad (2.84)$$

dann liefert ein Einsetzen in die zeitabhängige Schrödinger-Gleichung

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\psi(t)\rangle = \sum_n \left( \varepsilon_n a_n(t) + i\hbar \frac{\partial a_n(t)}{\partial t} \right) e^{-i\varepsilon_n t/\hbar} |n\rangle = H |\psi(t)\rangle$$

$$\begin{aligned}
&= (H_0 - dE(t)) |\psi(t)\rangle = \sum_n \varepsilon_n a_n(t) e^{-i\varepsilon_n t/\hbar} |n\rangle - E(t) \sum_m a_m(t) e^{-i\varepsilon_m t/\hbar} d|m\rangle \\
&= \sum_n \left( \varepsilon_n a_n(t) e^{-i\varepsilon_n t/\hbar} - E(t) \sum_m a_m(t) e^{-i\varepsilon_m t/\hbar} \langle n|d|m\rangle \right) |n\rangle \quad (2.85)
\end{aligned}$$

Daraus folgt:

$$\sum_n \left( i\hbar \frac{\partial a_n(t)}{\partial t} e^{-i\varepsilon_n t/\hbar} + E(t) \sum_m a_m(t) e^{-i\varepsilon_m t/\hbar} \langle n|d|m\rangle \right) |n\rangle = 0 \quad (2.86)$$

also:

$$\boxed{i\hbar \frac{\partial a_n(t)}{\partial t} = -E(t) \sum_m a_m(t) e^{-i\omega_{mn}t} \langle n|d|m\rangle} \quad (2.87)$$

mit  $\omega_{mn} = (\varepsilon_m - \varepsilon_n) / \hbar$ . Dies ist eine der Schrödinger-Gleichung äquivalente, exakte zeitliche Differentialgleichung für die Koeffizienten  $a_n(t)$  aus dem Ansatz (2.84), die die folgende einfache physikalische Interpretation hat: Die Wahrscheinlichkeitsamplitude  $a_n(t)$  dafür, dass der Eigenzustand  $|n\rangle$  in unserem tatsächlichen Zustand  $|\psi(t)\rangle$  vorkommt, ändert sich zeitlich durch Übergänge in andere Zustände  $|m\rangle$  unter dem Einfluss des zeitabhängigen Feldes, und in diese Übergangsraten geht einerseits die Energiedifferenz  $\omega_{mn}$  zwischen diesen beiden Zuständen ein und andererseits das Matrixelement des Dipol-Operators, welches die sogenannten **Auswahlregeln** bestimmt.

Eine approximative Lösung von (2.87) kann man durch Linearisierung im Feld finden. Da die Zeitabhängigkeit der Koeffizienten  $a_n(t)$  ja erst durch das Feld zustande kommt, kann man ansetzen

$$a_n(t) = a_{n0} + a_{n1}(t) \quad (2.88)$$

und annehmen, dass  $a_{n1}(t)$  in erster Ordnung linear im Feld  $E(t)$  ist. Setzt man dies ein und behält nur Terme linear im Feld bei, erhält man:

$$i\hbar \frac{\partial a_{n1}(t)}{\partial t} = -E(t) \sum_m e^{-i\omega_{mn}t} \langle n|d|m\rangle a_{m0} \quad (2.89)$$

Integration hiervon liefert:

$$a_{n1}(t) = -\frac{1}{i\hbar} \sum_m \int_{-\infty}^t dt' E(t') e^{-i\omega_{mn}t'} \langle n|d|m\rangle a_{m0} \quad (2.90)$$

Man setzt nun  $E(t)$  ganz allgemein als Überlagerung von ebenen Wellen an:

$$E(t) = \int \frac{d\omega}{2\pi} E(\omega) e^{-i(\omega+i\delta)t}$$

wobei wieder der (von der Linearen Response-Theorie her bekannte) adiabatische Einschaltterm  $e^{\delta t}$  eingeführt wurde, der für  $E(t) \rightarrow 0$  für  $t \rightarrow -\infty$  sorgt. Damit erhält man:

$$a_{n1}(t) = -\frac{1}{i\hbar} \sum_m \int_{-\infty}^t dt' \int \frac{d\omega}{2\pi} E(\omega) e^{-i(\omega_{mn}+\omega+i\delta)t'} \langle n|d|m \rangle a_{m0} \quad (2.91)$$

und nach Ausführen der Zeitintegration schließlich:

$$a_{n1}(t) = -\frac{1}{\hbar} \sum_m \int \frac{d\omega}{2\pi} E(\omega) \frac{e^{-i(\omega_{mn}+\omega+i\delta)t}}{\omega + \omega_{mn} + i\delta} \langle n|d|m \rangle a_{m0} \quad (2.92)$$

Das von außen angelegte elektrische Feld bewirkt eine elektrische Polarisation des Mediums, weil die beweglichen Ladungen (Elektronen) bestrebt sind, sich nach dem Feld auszurichten. Diese elektrische Polarisation ist gerade durch den Erwartungswert des Dipol-Operators  $d = ex$  gegeben:

$$P(t) = -\langle \psi(t)|d|\psi(t) \rangle = -\sum_{nm} a_n^*(t) e^{i\varepsilon_n t/\hbar} a_m(t) e^{-i\varepsilon_m t/\hbar} \langle n|d|m \rangle \quad (2.93)$$

Berücksichtigt man die Linearisierung (2.88) und die Tatsache, dass i. a. ohne Feld keine endliche Polarisierung vorhanden ist, also

$$P_0(t) = -\sum_{nm} a_{n0}^*(t) e^{i\varepsilon_n t/\hbar} a_{m0}(t) e^{-i\varepsilon_m t/\hbar} \langle n|d|m \rangle = 0$$

gilt, dann ergibt sich in linearer Ordnung in der Störung:

$$P(t) = -\sum_{nm} (a_{n1}^*(t) a_{m0}(t) + a_{n0}^* a_{m1}(t)) e^{-i\omega_{mn}t} \langle n|d|m \rangle \quad (2.94)$$

Ferner sei angenommen, dass der Ausgangszustand ein Eigenzustand von  $H_0$  ist, bei tiefen Temperaturen ( $T \rightarrow 0$ ) dann natürlich der Grundzustand  $|n_0\rangle$ , weswegen

$$a_{m0} = \delta_{mn_0}$$

gilt, und es folgt:

$$P(t) = -\sum_m (a_{m1}^*(t) \langle m|d|n_0 \rangle e^{-i\omega_{n_0 m}t} + a_{m1}(t) \langle n_0|d|m \rangle e^{-i\omega_{mn_0}t}) \quad (2.95)$$

Setzt man jetzt noch das Ergebnis für  $a_{m1}(t)$  gemäß (2.92) ein, ergibt sich:

$$P(t) = \frac{1}{\hbar} \int \frac{d\omega}{2\pi} \sum_m \left( \frac{e^{i(\omega-i\delta)t} E^*(\omega)}{\omega + \omega_{n_0m} - i\delta} |\langle m|d|n_0 \rangle|^2 + \frac{e^{-i(\omega+i\delta)t} E(\omega)}{\omega + \omega_{n_0m} + i\delta} |\langle m|d|n_0 \rangle|^2 \right) \quad (2.96)$$

Berücksichtigt man außerdem noch, dass für reelle Felder  $E(t)$   $E^*(\omega) = E(-\omega)$  gelten muss, und substituiert dann für einen Summanden  $\omega \rightarrow -\omega$ , ergibt sich:

$$\begin{aligned} P(t) &= \frac{1}{\hbar} \int \frac{d\omega}{2\pi} E(\omega) e^{-i(\omega+i\delta)t} \sum_m |\langle m|d|n_0 \rangle|^2 \left( \frac{1}{\omega + \omega_{n_0m} + i\delta} - \frac{1}{\omega - \omega_{n_0m} + i\delta} \right) \\ &= \int \frac{d\omega}{2\pi} P(\omega) e^{-i(\omega+i\delta)t} \end{aligned} \quad (2.97)$$

Somit gilt

$$P(\omega) = \chi(\omega + i\delta) E(\omega) \quad (2.98)$$

mit der elektrischen Suszeptibilität:

$$\boxed{\chi(\omega + i\delta) = -\frac{1}{\hbar} \sum_m |\langle m|d|n_0 \rangle|^2 \left( \frac{1}{\omega - \omega_{n_0m} + i\delta} - \frac{1}{\omega + \omega_{n_0m} + i\delta} \right)}, \quad (2.99)$$

die sich hier also als Dipol-Dipol-Suszeptibilität im Sinne unserer verallgemeinerten Suszeptibilitäten herausstellt und im Wesentlichen mit dem Ausdruck übereinstimmt, den man auch aus der allgemeinen Linearen Response-Theorie (vgl. Abschn. 1.9) ableiten kann.

## 2.4.2 Zweiniveau-Systeme

Das einfachste Modell, für das man den Einfluss einer zeitabhängigen äußeren Störung untersuchen kann, hat nur zwei stationäre Eigenzustände  $|n\rangle$ ,  $n \in \{1, 2\}$ . Dies könnte durch ein Atom bzw. ein Ensemble gleichartiger Atome realisiert sein, wenn man von den atomaren Zuständen nur den Grundzustand und den ersten angeregten (bzw. den durch das Lichtfeld anregbaren) Zustand mitnimmt. Das Zweiniveau-Modell ist auch für die Halbleiter-Optik relevant. Wie zu Beginn des Kapitels schon erwähnt, kann man nämlich in guter Näherung davon ausgehen, dass das Lichtfeld keinen Impuls überträgt, d. h., in einem einfachen Zweiband-Halbleiter-Modell bleibt die  $\mathbf{k}$ -Diagonalität auch bei Ankopplung an ein elektrisches Feld erhalten, und für jedes feste  $\mathbf{k}$  hat man gerade nur zwei Niveaus (pro Spinrichtung), nämlich den Valenz- und den Leitungsband-Zustand.

Aus der exakten Gl. (2.87) wird in diesem Spezialfall

$$i\hbar \frac{d}{dt} a_1(t) = -E(t) e^{-i\omega_{21}t} d_{12} a_2(t), \quad i\hbar \frac{d}{dt} a_2(t) = -E(t) e^{-i\omega_{12}t} d_{21} a_1(t) \quad (2.100)$$

mit:  $\omega_{21} = \frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_1}{\hbar}$ . Setzt man speziell ein monochromatisches reelles Wechselfeld an, also  $E(t) = E_0 \cos(\omega t)$ , wird daraus:

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d}{dt} a_1(t) &= -\frac{E_0}{2} \left( e^{-i(\omega + \omega_{21})t} + e^{i(\omega - \omega_{21})t} \right) d_{12} a_2(t) \\ i\hbar \frac{d}{dt} a_2(t) &= -\frac{E_0}{2} \left( e^{-i(\omega - \omega_{21})t} + e^{i(\omega + \omega_{21})t} \right) d_{21} a_1(t) \end{aligned} \quad (2.101)$$

An dieser Stelle könnte man nun wieder, wie im vorigen Abschnitt, im Feld linearisieren; dann folgt unter der Annahme, dass vor Einschalten der Störung nur der niedrigere (Grund-)Zustand besetzt ist, und mit Einführung des adiabatischen Einschaltterms:

$$a_2(t) = -d_{21} \frac{E_0}{2} \left( \frac{e^{-i\omega t} e^{i\omega_{21}t}}{\hbar\omega - \hbar\omega_{21} + i\delta} - \frac{e^{i\omega t} e^{i\omega_{21}t}}{\hbar\omega + \hbar\omega_{21} - i\delta} \right) \quad (2.102)$$

worin man ansatzweise schon die Suszeptibilität wieder findet.

Für das einfache Zweiniveau-System (2.101) ist aber auch eine exakte Lösung der beiden gekoppelten zeitlichen Differentialgleichungen möglich. Um analytisch weiterrechnen zu können, nehmen wir nur den **resonanten** Term mit; da  $\omega$  als Licht-Frequenz positiv ist und  $\omega_{21}$  positiv ist ( $\varepsilon_2 > \varepsilon_1$ ), sollte der Term besonders wichtig werden, bei dem  $\omega = \omega_{21}$  zu einer Resonanz führt, wie man ja schon an den Suszeptibilitäten in der linearisierten Gleichung sieht. Unter Beibehaltung nur der resonanten Terme wird aus (2.101):

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d}{dt} a_1(t) &= -\frac{E_0}{2} e^{i(\omega - \omega_{21})t} d_{12} a_2(t) \\ i\hbar \frac{d}{dt} a_2(t) &= -\frac{E_0}{2} e^{-i(\omega - \omega_{21})t} d_{21} a_1(t) \end{aligned} \quad (2.103)$$

Wendet man nun auf die erste Bewegungsgleichung noch einmal  $i\hbar \frac{d}{dt}$  an, ergibt sich

$$-\hbar^2 \frac{d^2 a_1}{dt^2} = -d_{12} \frac{E_0}{2} \left( i\hbar i(\omega - \omega_{21}) e^{i(\omega - \omega_{21})t} a_2 + e^{i(\omega - \omega_{21})t} i\hbar \frac{da_2}{dt} \right) \quad (2.104)$$

Hierin können  $a_2$  und  $\frac{da_2}{dt}$  unter Benutzung von (2.103) eliminiert werden und man erhält:



$$\ddot{a}_1 = i(\omega - \omega_{21})\dot{a}_1 - \frac{\omega_R^2}{4}a_1 \quad (2.105)$$

mit der **Rabi-Frequenz**<sup>3</sup>

$$\omega_R = \frac{|d_{21}E_0|}{\hbar}. \quad (2.106)$$

Mit dem Lösungsansatz

$$a_1(t) = a_{10}e^{i\Omega t}$$

ergibt sich

$$\Omega = \frac{1}{2} \left( \omega - \omega_{21} \pm \sqrt{(\omega - \omega_{21})^2 + \omega_R^2} \right) \quad (2.107)$$

Über die Rabi-Frequenz ist die Oszillations-Frequenz also offenbar von der elektrischen Feldstärke abhängig, wenn man über die linearisierte Bewegungsgleichung (also über die einfache Lineare Response) hinausgeht. Genau bei der Resonanz (d.h. für  $\omega = \omega_{21}$ ) gilt  $\Omega = \pm\omega_R/2$ , dann oszillieren (im Schrödingerbild gemäß dem Ansatz (2.84)) also die vollen Amplituden zeitlich wie  $a_i(t)e^{-i\varepsilon_i t/\hbar} = a_{i0}e^{-i(\varepsilon_i \pm \hbar\omega_R/2)/\hbar}$  bei Anwesenheit des elektrischen Feldes. Man erhält also effektiv gegenüber dem ungestörten (atomaren) Spektrum verschobene Niveaus, und bei Resonanz ist diese Energieverschiebung direkt proportional zur Feldstärke. Da dies eine Analogie zum **Stark-Effekt**<sup>4</sup> aufweist, d.h. der Aufspaltung der Spektrallinien im statischen elektrischen Feld, wird es auch als **optischer Stark-Effekt** bezeichnet.

<sup>3</sup>I.I. Rabi, \*1898 in Rymanow (Galizien, damals Österreich-Ungarn), †1988 in New York, in den USA aufgewachsen, Chemie- und Physik-Studium an der Cornell und Columbia University, ab 1937 Physik-Professor an der Columbia University in New York, Arbeiten zu magnetischen Eigenschaften von Kristallen und Atomkernen, entwickelte Resonanzmethoden zur Messung von Rotationszuständen von Atomen und Molekülen und des magnetischen Momentes von Atomkernen, Physik-Nobelpreis 1944

<sup>4</sup>Johannes Stark, \*1874 in Schickerhof (Bayern), †1957 in Traunstein (Bayern), Studium in München, ab 1909 Professor an der RWTH Aachen, ab 1917 in Greifswald und 1920–1922 in Würzburg, wissenschaftliche Arbeiten zur Elektrizität von Gasen, zur Spektroskopie und zur chemischen Valenz, Physik-Nobelpreis 1919 für die Entdeckung des Doppler-Effekts in Kanalstrahlen und der Aufspaltung der Spektrallinien im elektrischen Feld, nach 1922 zunächst keine Professur mehr, 1933–1939 Präsident der Physikalisch Technischen Reichsanstalt und der „Notgemeinschaft für die Deutsche Wissenschaft“ (Deutsche Forschungsgemeinschaft), überzeugter Nationalsozialist und Rassist und Vertreter der „deutschen“ bzw. „arischen Physik“, lehnte die „jüdische“ Relativitätstheorie und die Quantentheorie (und theoretische Physik allgemein) ab (er bezeichnete Heisenberg als „weißen Juden“).

### 2.4.3 Die Halbleiter-Bloch-Gleichungen

In diesem Abschnitt soll ein realistischeres Halbleiter-Modell betrachtet und behandelt werden. Insbesondere wenn man die Coulomb-Wechselwirkung berücksichtigt, kann man ja nicht mehr davon ausgehen, dass Übergänge infolge eines optischen Feldes nur noch zwischen Valenz- und Leitungsband-Zustand zu gleichem  $\mathbf{k}$  existieren, sondern es sind auch komplexere Anregungen wie die Exzitonen möglich. Ausgangspunkt ist das in Band 1, Abschn. 6.8 schon eingeführte Zwei-Band-Modell

$$\begin{aligned}
 H = & \sum_k \left( \varepsilon_v(k) v_k^\dagger v_k + \varepsilon_c(k) c_k^\dagger c_k \right) \\
 & + \frac{1}{2V} \sum_{k,k',q} U_q \left( c_{k+q}^\dagger c_{k'-q}^\dagger c_{k'} c_k + v_{k+q}^\dagger v_{k'-q}^\dagger v_{k'} v_k + 2c_{k+q}^\dagger v_{k'-q}^\dagger v_{k'} c_k \right) \\
 & - E(t) \sum_k \left( d_{cv} c_k^\dagger v_k + d_{cv}^* v_k^\dagger c_k \right)
 \end{aligned} \tag{2.108}$$

Die erste Zeile beschreibt Valenz- ( $v$ ) und Leitungsband ( $c$ ), die zweite Zeile die Coulomb-Wechselwirkung und die dritte die Kopplung an ein optisches Feld, welches Übergänge zwischen Valenz- und Leitungsband bewirken kann;  $k, k'$  kann kombiniert für die Einteilchenquantenzahlen Wellenvektor und Spin  $\mathbf{k}\sigma$  stehen, es kann aber auch nur  $\mathbf{k}$  bedeuten, weil bei der optischen Anregung in der Regel der Spin sich nicht ändert.  $U_q = \frac{4\pi e^2}{\varepsilon q^2}$  ist das Coulomb-Matrixelement (für freie Teilchen) und  $d_{cv} = \langle kc | ex | kv \rangle$  ist das (als  $k$ -unabhängig angenommene) Dipol-Matrixelement. Zu berechnen ist die durch das Feld induzierte elektrische Polarisation, d. h. der Erwartungswert des Polarisations-Operators

$$P = \sum_k \left( d_{cv} c_k^\dagger v_k + d_{vc} v_k^\dagger c_k \right) \tag{2.109}$$

Im Gleichgewicht, d. h. ohne treibendes Feld, gilt natürlich  $\langle P \rangle_{\rho_0} = 0$ , unter dem Einfluss des zeitabhängigen elektrischen Feldes liegt dagegen eine Nichtgleichgewichts-Situation mit  $\langle P \rangle_{\rho(t)} \neq 0$  vor. Zu berechnen sind daher  $\langle c_k^\dagger v_k \rangle_{\rho(t)}$ ,  $\langle v_k^\dagger c_k \rangle_{\rho(t)}$ . Dies sind gerade die Nichtdiagonal-Matrixelemente der sogenannten (reduzierten, in diesem Fall  $k$ -diagonalen) **Dichtematrix**

$$\begin{pmatrix} \langle v_k^\dagger v_k \rangle & \langle v_k^\dagger c_k \rangle \\ \langle c_k^\dagger v_k \rangle & \langle c_k^\dagger c_k \rangle \end{pmatrix} \tag{2.110}$$

Im Gleichgewicht bzw. als Anfangsbedingung gilt natürlich

$$\langle v_k^\dagger v_k \rangle_0 = f(\varepsilon_v(k)) = 1, \langle c_k^\dagger c_k \rangle_0 = f(\varepsilon_c(k)) = 0, \langle c_k^\dagger v_k \rangle_0 = \langle v_k^\dagger c_k \rangle_0 = 0 \tag{2.111}$$

Durch das Feld werden aber sowohl nicht verschwindende Polarisations-  
Erwartungswerte als auch eine nicht verschwindende Besetzung im Leitungs-  
band (und eine entsprechend reduzierte Elektronen-Besetzung, d.h. L cher im  
Valenzband) induziert. Es gelten dann die folgenden Bewegungsgleichungen:

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{d}{dt} \langle c_k^\dagger c_k \rangle &= \left\langle \left[ c_k^\dagger c_k, H \right] \right\rangle = -E(t) d_{cv} \langle c_k^\dagger v_k \rangle + E(t) d_{cv}^* \langle v_k^\dagger c_k \rangle \\
 &+ \frac{1}{V} \sum_{k',q} U_q \left( \langle c_k^\dagger c_{k'-q}^\dagger c_{k'} c_{k-q} \rangle + \langle c_k^\dagger v_{k'-q}^\dagger v_{k'} c_{k-q} \rangle \right. \\
 &\left. - \langle c_{k+q}^\dagger c_{k'-q}^\dagger c_{k'} c_k \rangle - \langle c_{k+q}^\dagger v_{k'-q}^\dagger v_{k'} c_k \rangle \right) \quad (2.112)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{d}{dt} \langle v_k^\dagger c_k \rangle &= \left\langle \left[ v_k^\dagger c_k, H \right] \right\rangle = (\varepsilon_c(k) - \varepsilon_v(k)) \langle v_k^\dagger c_k \rangle \\
 &- E(t) d_{cv} \left( \langle v_k^\dagger v_k \rangle - \langle c_k^\dagger c_k \rangle \right) \\
 &+ \frac{1}{V} \sum_{k',q} U_q \left( \langle v_k^\dagger c_{k'-q}^\dagger c_{k'} c_{k-q} \rangle + \langle v_k^\dagger v_{k'-q}^\dagger v_{k'} c_{k-q} \rangle \right. \\
 &\left. - \langle v_{k+q}^\dagger v_{k'-q}^\dagger v_{k'} c_k \rangle - \langle c_{k'+q}^\dagger v_{k-q}^\dagger c_k c_{k'} \rangle \right) \quad (2.113)
 \end{aligned}$$

Wie fast immer bei Behandlungen mit Bewegungsgleichungen, schlie en diese  
sich nicht, weil infolge der Wechselwirkungsterme in der Bewegungsgleichung f r  
Zweier-Erwartungswerte auf der rechten Seite Vierer-Erwartungswerte auftreten.  
Eine Hartree-Fock-(RPA-)artige Entkopplung f hrt zu:

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{d}{dt} \langle c_k^\dagger c_k \rangle &= E(t) \left( d_{cv}^* \langle v_k^\dagger c_k \rangle - d_{cv} \langle c_k^\dagger v_k \rangle \right) \\
 &- \frac{1}{V} \sum_q U_q \left( \langle v_{k-q}^\dagger c_{k-q} \rangle \langle c_k^\dagger v_k \rangle - \langle c_{k+q}^\dagger v_{k+q} \rangle \langle v_k^\dagger c_k \rangle \right) \\
 i\hbar \frac{d}{dt} \langle v_k^\dagger c_k \rangle &= (\varepsilon_c(k) - \varepsilon_v(k)) \langle v_k^\dagger c_k \rangle - E(t) d_{cv} \left( \langle v_k^\dagger v_k \rangle - \langle c_k^\dagger c_k \rangle \right) \\
 &- \frac{1}{V} \sum_q U_q \left( \langle v_k^\dagger c_k \rangle \langle c_{k-q}^\dagger c_{k-q} \rangle + \langle v_k^\dagger v_k \rangle \langle v_{k-q}^\dagger c_{k-q} \rangle \right) \\
 &+ \frac{1}{V} \sum_q U_q \left( \langle v_{k+q}^\dagger v_{k+q} \rangle \langle v_k^\dagger c_k \rangle + \langle c_k^\dagger c_k \rangle \langle v_{k-q}^\dagger c_{k-q} \rangle \right) \quad (2.114)
 \end{aligned}$$

Mit den Bezeichnungen  $f_{kc} = \langle c_k^\dagger c_k \rangle$ ,  $f_{kv} = \langle v_k^\dagger v_k \rangle$ ,  $p_{vc} = \langle v_k^\dagger c_k \rangle$  und  $\Omega_k = \frac{1}{\hbar} (d_{cv} E(t) + \frac{1}{V} \sum_q U_q p_{vc-k-q})$  ergibt sich:

$$i\hbar \frac{d}{dt} f_{kc} = \hbar (\Omega_k^* p_{vck} - \Omega_k p_{vck}^*) \quad (2.115)$$

$$i\hbar \frac{d}{dt} p_{vck} = (\varepsilon_c(k) - \varepsilon_v(k)) p_{vck} - \Omega_k (f_{kv} - f_{kc}) - \frac{1}{V} \sum_q U_q (f_{ck-q} - f_{vk-q}) p_{vck} \quad (2.116)$$

Dies sind (zusammen mit der analog herleitbaren Bewegungsgleichung für  $f_{kv}$ ) die

### Halbleiter-Bloch-Gleichungen<sup>5</sup>

Die Gleichungen enthalten eine Inhomogenität durch das treibende elektrische Feld (in den  $\Omega_k$ -Termen). Ohne diese Inhomogenität existiert natürlich immer die triviale Lösung  $f_{kc} = 0$ ,  $f_{kv} = 1$ ,  $p_{vck} = 0$ . Mit Inhomogenität gibt es aber auch nicht-triviale Lösungen.  $\Omega_k$  heißt auch Rabi-Frequenz des Halbleiters wegen der Analogie der Gl. (2.115) zu (2.103); die Rabi-Frequenz enthält jetzt aber auch einen Wechselwirkungsbeitrag. Offenbar ist die rechte Seite von (2.115) bereits quadratisch in der Störung, weil die Nichtdiagonal-Elemente der Dichtematrix  $p_{vck}$  selbst erst vom Feld verursacht werden. In linearer Ordnung im Feld wird also erst eine Polarisierung erzeugt, erst in nächster Ordnung bewirkt diese mit dem Feld eine endliche Besetzung des Leitungsbandes. Linearisiert man im Feld, bleibt somit nur

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} f_{kc,v} = 0 &\Rightarrow f_{kc} = f_{kc}^0 = 0, \quad f_{kv} = f_{kv}^0 = 1 \\ i\hbar \frac{d}{dt} p_{vck} &= (\varepsilon_c(k) - \varepsilon_v(k)) p_{vck} - \Omega_k (f_{kv}^0 - f_{kc}^0) - \frac{1}{V} \sum_q U_q (f_{ck-q}^0 - f_{vk-q}^0) p_{vck} \\ &= (\varepsilon_c^{HF}(k) - \varepsilon_v^{HF}(k)) p_{vck} - \Omega_k \end{aligned} \quad (2.117)$$

wobei  $\varepsilon_{v,c}^{HF}(k)$  die (um den Hartree-Fock-Term modifizierten) Band-Dispersionen sind. Zeitliche Fourier-Transformation führt nun auf:

$$(\hbar\omega + i\gamma - \varepsilon_c^{HF}(k) + \varepsilon_v^{HF}(k)) p_{vck} + \frac{1}{V} \sum_q U_q p_{vck-q} = -d_{cv} E(\omega) \quad (2.118)$$

Der hier vorkommende kleine Imaginärteil der Frequenz ist eigentlich infinitesimal klein und rührt vom adiabatischen Einschaltterm her; in der Praxis wird er vielfach klein, aber endlich gewählt und kann physikalisch dahingehend interpretiert werden, dass er endliche Lebensdauern simuliert, die von im Modell nicht berücksichtigten Effekten (z. B. Störstellen, Elektron-Phonon-Kopplung, über Hartree-Fock hinausgehende Einflüsse der Coulomb-Wechselwirkung, etc.) herrühren sollen.

<sup>5</sup>benannt nach Felix Bloch, siehe Fußnote Band 1 Seite 105, wegen einer formalen Analogie zu den Blochschen Gleichungen in der Theorie der (Kern-)Spin-Resonanz

Zur weiteren Vereinfachung soll angenommen werden, dass sich die (Hartree-Fock-)Leitungs- und Valenzbänder in Effektivmassen-Näherung beschreiben lassen, dass also gilt:

$$\varepsilon_c^{HF}(k) = \Delta + \frac{\hbar^2}{2m_c}k^2; \quad \varepsilon_v^{HF}(k) = -\frac{\hbar^2}{2m_v}k^2 \quad (2.119)$$

mit  $\Delta$  als Energielücke. Dann lässt sich die Differenz zwischen Leitungs- und Valenzband-Dispersion auch schreiben als:

$$\varepsilon_c^{HF}(k) - \varepsilon_v^{HF}(k) = \Delta + \frac{\hbar^2}{2\mu}k^2 \quad (2.120)$$

$$\text{mit } \frac{1}{\mu} = \frac{1}{m_v} + \frac{1}{m_c}$$

und  $\mu$  der reduzierten Masse (aus Valenz- und Leitungsband-Effektivmasse). Damit ergibt sich:

$$\left( \hbar\omega + i\gamma - \Delta - \frac{\hbar^2 k^2}{2\mu} \right) p_{vc} + \frac{1}{V} \sum_q U_q p_{vc-k-q} = -d_{cv}E(\omega) \quad (2.121)$$

Dies ist die (zeitliche und räumliche) Fourier-Transformierte einer Art inhomogenen Schrödinger-Gleichung

$$\left( i\hbar \frac{\partial}{\partial t} - \Delta + \frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_r^2 + V(r) \right) p_{vc}(\mathbf{r}, t) = -d_{cv}E(t)\delta(\mathbf{r}) \quad (2.122)$$

$$\text{bzw. } \left( \hbar\omega + i\gamma - \Delta + \frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_r^2 + V(r) \right) p_{vc}(\mathbf{r}, \omega) = -d_{cv}E(\omega)\delta(\mathbf{r})$$

$$\text{mit } V(\mathbf{r}) = \frac{e^2}{\varepsilon r} \text{ als dem (abgeschirmten) Coulomb-Potential}$$

Die zugehörige homogene Differentialgleichung (Eigenwertgleichung)

$$\left( -\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_r^2 - V(r) \right) \psi_v(\mathbf{r}) = E_v \psi_v(\mathbf{r}) \quad (2.123)$$

ist die sogenannte **Wannier-Gleichung** für Wannier-Exzitonen und entspricht der Schrödinger-Gleichung für das Wasserstoff-Problem, allerdings für Teilchen mit reduzierter Masse  $\mu$  und ein abgeschirmtes Coulomb-Potential. Die gesuchte Lösung der inhomogenen Schrödinger-Gleichung (2.122) kann man nach den Eigenzuständen  $\psi_v(\mathbf{r})$  entwickeln:

$$\begin{aligned}
 p_{vc}(\mathbf{r}, \omega) &= \sum_v b_v(\omega) \psi_v(\mathbf{r}) \\
 \Rightarrow \sum_{v'} (\hbar\omega + i\gamma - \Delta - E_{v'}) b_{v'} \psi_{v'}(\mathbf{r}) &= -d_{cv} E(\omega) \delta(\mathbf{r})
 \end{aligned} \quad (2.124)$$

Durch Skalarproduktbildung mit  $\langle \psi_v |$  erhält man

$$b_v(\omega) = -\frac{d_{cv} E(\omega)}{\hbar\omega + i\gamma - \Delta - E_v} \psi_v^*(0) \quad (2.125)$$

Daraus ergibt sich:

$$p_{vc}(\mathbf{r}, \omega) = -d_{cv} E(\omega) \sum_v \psi_v^*(0) \frac{1}{\hbar\omega + i\gamma - \Delta - E_v} \psi_v(\mathbf{r}) \quad (2.126)$$

Daraus lässt sich der gesuchte (Nichtgleichgewichts-)Erwartungswert der Polarisation gemäß (2.109) bestimmen:

$$\langle P \rangle(t) = \frac{1}{V} \sum_k (d_{cv} P_{vck}^* + d_{cv}^* P_{vck}) = d_{cv} p_{vc}^*(\mathbf{r} = 0, t) + d_{cv}^* p_{vc}(\mathbf{r} = 0, t) \quad (2.127)$$

Für deren zeitliche Fourier-Transformierte ergibt sich:

$$P(\omega) = d_{cv} p_{vc}^*(\mathbf{r} = 0, -\omega) + d_{cv}^* p_{vc}(\mathbf{r} = 0, \omega) \quad (2.128)$$

Unter Berücksichtigung von  $E^*(-\omega) = E(\omega)$  (für reelle  $E$ -Felder) folgt:

$$\begin{aligned}
 P(\omega) &= -|d_{cv}|^2 E(\omega) \sum_v |\psi_v(0)|^2 \left( \frac{1}{\hbar\omega + i\gamma - \Delta - E_v} - \frac{1}{\hbar\omega + i\gamma + \Delta + E_v} \right) \\
 &= \chi(\omega) E(\omega)
 \end{aligned} \quad (2.129)$$

mit der elektrischen (Dipol-Dipol-)Suszeptibilität:

$$\chi(\omega) = -|d_{cv}|^2 \sum_v |\psi_v(0)|^2 \left( \frac{1}{\hbar\omega + i\gamma - \Delta - E_v} - \frac{1}{\hbar\omega + i\gamma + \Delta + E_v} \right) \quad (2.130)$$

Dies stimmt im Wesentlichen mit der in (2.99) gefundenen Suszeptibilität überein, wenn man berücksichtigt, dass die Anregungsenergien jetzt durch  $\Delta + E_v$  gegeben sind und diese  $E_v$  auch Effekte der Coulomb-Wechselwirkung enthalten. Mit der Hartree-Fock-Entkopplung und nach der Linearisierung ergibt sich im Rahmen der Halbleiter-Bloch-Gleichungen somit ein Ausdruck für die Suszeptibilität, der

(natürlich) im Wesentlichen mit dem der früher bereits besprochenen linearen Response-Theorie übereinstimmt. Die in diesem Unterkapitel vorgeführte Behandlung lässt sich aber leicht systematisch verbessern und erweitern; insbesondere kann man über die Hartree-Fock-Entkopplung hinausgehen, indem man die Bewegungsgleichung für die Vierer-Erwartungswerte aufstellt und erst in höherer Ordnung entkoppelt und diese Entkopplungen dann nach (exakt berücksichtigten) höheren Potenzen des elektrischen Feldes klassifizieren kann („dynamically controlled truncation“, DCT) und so die entsprechende Näherung rechtfertigen kann.

Begnügt man sich aber mit der linearen Ordnung im Feld und nimmt nur den besonders wichtigen resonanten Anteil mit, vereinfacht sich der Ausdruck für die Suszeptibilität zu

$$\chi(\omega) = -|d_{cv}|^2 \sum_v \frac{|\psi_v(0)|^2}{\hbar\omega + i\gamma - \Delta - E_v} \quad (2.131)$$

Wenn dann wirklich eine Art Wasserstoff-Problem vorliegt (in Effektiv-Massen-Näherung und bei konstant abgeschirmter, also noch wie  $1/r$  bzw. im reziproken Raum wie  $1/q^2$  abfallender Coulomb-Wechselwirkung), entspricht  $v$  den üblichen Wasserstoff-Quantenzahlen  $(n, l, m_l)$  für die gebundenen und  $(k, l, m_l)$  für die ungebundenen Zustände. Da in dieser Näherung die Eigenzustände nur bei  $\mathbf{r} = 0$  eingehen (was letztlich darauf zurückzuführen ist, dass das Dipol-Matrixelement  $d_{cv}$  als  $k$ -unabhängig und damit lokal angenommen wurde), gehen hier nur die  $l = 0$ -Zustände (s-Zustände) ein, weil nur diese beim Wasserstoffproblem eine am Ursprung nicht verschwindende Wellenfunktion haben. Die Bindungsenergien und auch der Bohrsche Radius sind aber von ganz anderer Größenordnung als beim wirklichen Wasserstoff-Atom. Für einen typischen Halbleiter wie GaAs liegen die effektiven Massen in Valenz- und Leitungsband bei  $m_c \approx 0.0665 m_e$  bzw.  $m_v \approx 0.475 m_e$ , wobei  $m_e$  die freie Elektronenmasse ist; dies führt zu einer reduzierten Masse von  $\mu = 0.058 m_e$ . Mit einer Dielektrizitätskonstante von  $\varepsilon \approx 10$  ergibt sich ein Bohrscher Radius und eine Grundzustands-Bindungsenergie für das Exziton von

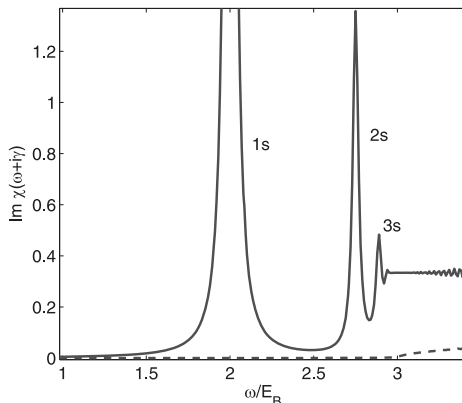
$$a_x = \frac{\hbar^2 \varepsilon}{\mu e^2} = \frac{\varepsilon}{0.058} a_B \approx 90 \text{ \AA}, \quad E_B = -\frac{e^2}{2a_x \varepsilon} = -\frac{0.058}{\varepsilon^2} \frac{e^2}{2a_B} \approx 0.008 \text{ eV}$$

wobei  $a_B \approx 0.5 \text{ \AA}$  der wirkliche Bohrsche Radius des Wasserstoff-Atoms ist. In Abb. 2.3 ist der Imaginärteil der Suszeptibilität als Funktion der Frequenz (in Einheiten der Exziton-Bindungsenergie gemessen) aufgetragen für eine Bandlücke von  $\Delta = 3$  und  $\gamma = 0.02$ . Man erkennt deutlich die Exzitonpeaks bei  $\Delta-1$ ,  $\Delta-0.25$ ,  $\Delta-0.11$  unterhalb der sogenannten Absorptionskante bei  $\Delta = 3$ . Gestrichelt ist das Resultat bei Vernachlässigung der Coulomb-Wechselwirkung eingezeichnet.

Hier ergibt sich im Wesentlichen die sogenannte kombinierte Zustandsdichte

$$N_{vc}(\hbar\omega) = \frac{1}{V} \sum_k \delta(\hbar\omega - \varepsilon_c(k) + \varepsilon_v(k)) \quad (2.132)$$

**Abb. 2.3** Frequenzabhängigkeit des Imaginärteils der Suszeptibilität unterhalb der Bandkante ( $\Delta = 3$ ) in Einheiten der  $1s$ -Exziton-Bindungsenergie  $E_B$



Für freie Elektronen-Dispersionen (mit effektiver Masse) im Leitungs- und Valenzband und in drei Dimensionen ist diese natürlich wurzelförmig an der Absorptionskante, d. h.

$$N_{vc}(\hbar\omega) \sim \sqrt{\hbar\omega - \Delta} \quad (2.133)$$

Man erkennt an Abb. 2.3, dass nicht nur die Exzitonen-Linien hinzu kommen, sondern auch das Absorptionsspektrum im Kontinuum drastisch geändert ist als Folge der berücksichtigten Coulomb-Wechselwirkung, was letztlich von den Wasserstoff-Streuzuständen (statt ebener Wellen) als Kontinuums-Zuständen herrührt. Auch ohne diskrete Exzitonen-Linien ist der kontinuierliche Teil der Suszeptibilität insbesondere nicht mehr wurzelförmig bei  $\Delta$ .

## 2.5 Polaritonen

Als Polariton bezeichnet man eine kombinierte oder gekoppelte Anregung aus Licht bzw. allgemeiner einer elektromagnetischen Welle und einer Festkörperanregung. Die elektromagnetische Welle bewirkt eine Festkörperanregung, die aber ihrerseits wieder durch Rekombination Licht emittieren kann und diese gekoppelte Anregung bzw. Welle kann sich als Ganzes durch den Kristall ausbreiten. Im Teilchenbild kann man es auch so ausdrücken, dass ein Photon des elektromagnetischen Feldes mit bestimmten Festkörperanregungen ein neues Quasiteilchen bildet, eben das Polariton. Als Festkörperanregungen, an die das Photon ankoppeln kann, kommen dabei sowohl Gitteranregungen als auch elektronische Anregungen in Betracht. In Band 1, Abschn. 4.7.2 war schon einmal auf phänomenologischem Niveau die Ankopplung einer elektromagnetischen Welle an optische Phononen (z. B. in Ionen-Kristallen) besprochen worden. In dem Fall spricht man auch vom Phonon-Polariton. Aber eine Lichtwelle kann bekanntlich auch das elektronische System anregen, ein Photon kann absorbiert werden und dabei ein Elektron-Loch-Paar erzeugt werden bzw. es wird dann – zumindest bei Halbleitern – ein Exziton angeregt, da Elektron und Loch



durch die Coulomb-Wechselwirkung aneinander gekoppelt sind; man spricht dann auch vom Exziton-Polariton.

Es soll hier auf dem Niveau der zweiten Quantisierung die Dispersionsrelation für Polaritonen abgeleitet werden. Dazu muss aber auch das elektromagnetische Feld bzw. das Vektorpotential, an das die Kristallanregungen ja gemäß der Standard-Ersetzung koppeln, durch Photonen-Erzeuger und -Vernichter ausgedrückt werden. Dafür wird im Folgenden ein kurzer Abriss über die Quantisierung des elektromagnetischen Feldes gegeben.

### 2.5.1 Quantisierung des elektromagnetischen Feldes

Aus der klassischen Elektrodynamik wissen wir, dass das elektrische und das magnetische Feld durch die Potentiale  $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$  und  $\phi(\mathbf{r}, t)$  dargestellt werden können. Bei geeigneter Eichung dieser Potentiale (Lorenz-Eichung) gilt im Vakuum die Wellengleichung:

$$\nabla^2 \mathbf{A} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{A}}{\partial t^2} = 0 \quad (2.134)$$

Zusätzlich können wir  $\nabla \mathbf{A} = 0$  wählen, wodurch die Transversalität der elektromagnetischen Wellen gewährleistet wird. Außerdem ist die Wahl  $\phi = 0$  möglich, da keine das Feld erzeugenden Ladungen vorhanden sind. Die elektromagnetischen Felder sind dann durch

$$\mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \quad \text{und} \quad \mathbf{B} = \text{rot } \mathbf{A} \quad (2.135)$$

gegeben.

Die Energie des elektromagnetischen Feldes ist:

$$H_{\text{kl}} = \frac{1}{8\pi} \int (\mathbf{E}^2 + \mathbf{B}^2) d^3 r \quad (2.136)$$

Das allgemeine Vektorpotential  $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$  kann nach ebenen Wellen entwickelt werden:

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\alpha} \sum_{\mathbf{q}} \mathbf{e}_{\alpha}(\mathbf{q}) \left( A_{q\alpha}(t) e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} + A_{q\alpha}^*(t) e^{-i\mathbf{q}\mathbf{r}} \right) \quad (2.137)$$

$\mathbf{e}_{\alpha}(\mathbf{q})$  ist der Polarisations-Einheitsvektor.

Aus

$$\nabla \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = 0 \quad (2.138)$$

folgt

$$\sum_{\alpha} \sum_{\mathbf{q}} \mathbf{e}_{\alpha}(\mathbf{q}) \left( A_{q\alpha}(t) i\mathbf{q} e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} - A_{q\alpha}^*(t) i\mathbf{q} e^{-i\mathbf{q}\mathbf{r}} \right) = 0 \quad (2.139)$$

Dies ist erfüllbar, falls  $\mathbf{q} \cdot \mathbf{e}_\alpha(\mathbf{q}) = 0$  ist. Also gibt es zwei unabhängige Polarisationsrichtungen  $\alpha$ , nämlich die beiden Richtungen senkrecht zu  $\mathbf{q}$ .

Die beiden Terme aus der Wellengleichung (2.134)

$$\nabla^2 \mathbf{A} = - \sum_{\alpha} \sum_{\mathbf{q}} \mathbf{e}_\alpha(\mathbf{q}) q^2 \left( A_{q\alpha} e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} + A_{q\alpha}^* e^{-i\mathbf{q}\mathbf{r}} \right) \quad (2.140)$$

und

$$\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{A}}{\partial t^2} = \frac{1}{c^2} \sum_{\alpha} \sum_{\mathbf{q}} \mathbf{e}_\alpha(\mathbf{q}) \left( \frac{\partial^2}{\partial t^2} A_{q\alpha} e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} + \frac{\partial^2}{\partial t^2} A_{q\alpha}^* e^{-i\mathbf{q}\mathbf{r}} \right) \quad (2.141)$$

müssen gleich sein, woraus folgt, dass

$$\frac{\partial^2}{\partial t^2} A_{q\alpha}(t) = -c^2 q^2 A_{q\alpha}(t). \quad (2.142)$$

Es ergibt sich somit die folgende Dispersionsrelation für elektromagnetische Wellen:

$$A_{q\alpha}(t) = A_{q\alpha 0} e^{-i\omega_q t} \Rightarrow \omega_q = cq \quad (2.143)$$

Damit folgt für die elektromagnetischen Felder:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} = \sum_{\alpha, \mathbf{q}} \mathbf{e}_\alpha(\mathbf{q}) i \frac{\omega_q}{c} \left( A_{q\alpha} e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} - A_{q\alpha}^* e^{-i\mathbf{q}\mathbf{r}} \right) \quad (2.144)$$

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = \text{rot } \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = i \sum_{\alpha, \mathbf{q}} \left( \mathbf{q} \times \mathbf{e}_\alpha(\mathbf{q}) \right) \left( A_{q\alpha} e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} - A_{q\alpha}^* e^{-i\mathbf{q}\mathbf{r}} \right) \quad (2.145)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{E}^2(\mathbf{r}, t) + \mathbf{B}^2(\mathbf{r}, t) = & - \sum_{\substack{\alpha, \mathbf{q} \\ \alpha', \mathbf{q}'}} \left( \mathbf{e}_\alpha(\mathbf{q}) \mathbf{e}_{\alpha'}(\mathbf{q}') q q' + \left( \mathbf{q} \times \mathbf{e}_\alpha(\mathbf{q}) \right) \left( \mathbf{q}' \times \mathbf{e}_{\alpha'}(\mathbf{q}') \right) \right) \\ & \times \left( A_{q\alpha} A_{q'\alpha'} e^{i(\mathbf{q}+\mathbf{q}')\mathbf{r}} + A_{q\alpha}^* A_{q'\alpha'}^* e^{-i(\mathbf{q}+\mathbf{q}')\mathbf{r}} \right. \\ & \left. - A_{q\alpha}^* A_{q'\alpha'} e^{i(\mathbf{q}'-\mathbf{q})\mathbf{r}} - A_{q\alpha} A_{q'\alpha'}^* e^{i(\mathbf{q}-\mathbf{q}')\mathbf{r}} \right) \end{aligned} \quad (2.146)$$

Wir betrachten jetzt elektromagnetische Felder in einem endlichen Volumen  $V$ , genauer einem Würfel mit Kantenlänge  $L$ . Fordern wir zusätzlich periodische Randbedingungen  $f(\mathbf{r}) = f(\mathbf{r} + L\mathbf{e}_i)$ , so folgt  $q_i L = 2\pi n$  mit einer natürlichen Zahl  $n$ , wir bekommen also diskrete Werte  $q_i = 2\pi n/L$ .

Wir erhalten folgende Gleichungen:

$$\int_V d^3r e^{i(\mathbf{q}-\mathbf{q}')\mathbf{r}} = V \delta_{\mathbf{q}\mathbf{q}'} \quad (2.147)$$

und

$$\mathbf{e}_\alpha(\mathbf{q})\mathbf{e}_{\alpha'}(\mathbf{q}') = \delta_{\alpha\alpha'} \Rightarrow (\mathbf{q} \times \mathbf{e}_\alpha(\mathbf{q}))(\mathbf{q} \times \mathbf{e}_{\alpha'}(\mathbf{q})) = q^2 \delta_{\alpha\alpha'} \quad (2.148)$$

Damit wird aus der Hamilton-Funktion (2.136):

$$H = \frac{1}{8\pi} \int d^3r \left( \mathbf{E}^2(\mathbf{r}, t) + \mathbf{B}^2(\mathbf{r}, t) \right) = \frac{V}{4\pi} \sum_{\alpha, \mathbf{q}} q^2 \left( A_{q\alpha} A_{q\alpha}^* + A_{q\alpha}^* A_{q\alpha} \right) \quad (2.149)$$

Mittels der Umbenennung

$$A_{q\alpha} = \sqrt{\frac{2\pi \hbar c}{Vq}} a_{q\alpha} \quad (2.150)$$

erhalten wir:

$$\begin{aligned} H &= \frac{1}{2} \sum_{\alpha, \mathbf{q}} \hbar c q \left( a_{q\alpha} a_{q\alpha}^* + a_{q\alpha}^* a_{q\alpha} \right) \\ &= \frac{1}{2} \sum_{\alpha, \mathbf{q}} \hbar \omega_{\mathbf{q}} \left( a_{q\alpha} a_{q\alpha}^* + a_{q\alpha}^* a_{q\alpha} \right) \end{aligned} \quad (2.151)$$

mit  $\omega_{\mathbf{q}} = cq$ . Dies ist noch eine klassische Hamilton-Funktion, d.h. noch kein Operator.

Durch die Quantisierung  $a_{q\alpha} \rightarrow \hat{a}_{q\alpha}$  und  $a_{q\alpha}^* \rightarrow \hat{a}_{q\alpha}^\dagger$  mit den Vertauschungsregeln

$$[\hat{a}_{q\alpha}, \hat{a}_{q'\alpha'}^\dagger] = \delta_{qq'} \delta_{\alpha\alpha'} \quad (2.152)$$

$$[\hat{a}_{q\alpha}, \hat{a}_{q'\alpha'}] = [\hat{a}_{q\alpha}^\dagger, \hat{a}_{q'\alpha'}^\dagger] = 0 \quad (2.153)$$

erhalten wir den Hamilton-Operator:

$$H = \sum_{\mathbf{q}, \alpha} \hbar \omega_{\mathbf{q}} \left( \hat{a}_{\mathbf{q}\alpha}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{q}\alpha} + \frac{1}{2} \right) \quad (2.154)$$

$\hat{a}_{\mathbf{q}\alpha}$  und  $\hat{a}_{\mathbf{q}\alpha}^\dagger$  sind Photonen-Erzeuger bzw. -Vernichter. Analog zu quantenmechanischen harmonischen Oszillatoren ist die Nullpunkts-Energie

$$E_0 = \sum_{\mathbf{q}, \alpha} \frac{\hbar \omega_{\mathbf{q}}}{2} \quad (2.155)$$

und würde somit divergieren. Da dieser Ausdruck jedoch nur der Energie des Vakuums entspricht, kann er auch als Energie-Nullpunkt gewählt werden. Dann ist der Hamilton-Operator nur noch:

$$H = \sum_{\mathbf{q}, \alpha} \hbar \omega_{\mathbf{q}} \hat{a}_{\mathbf{q}\alpha}^{\dagger} \hat{a}_{\mathbf{q}\alpha} \quad (2.156)$$

In den Ausdrücken für die Felder und Potentiale ersetzen wir ebenfalls die dimensionslosen Amplituden  $a_{\mathbf{q}\alpha}$  durch Operatoren und erhalten schließlich:

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \sqrt{\frac{2\pi \hbar c}{V}} \sum_{\alpha, \mathbf{q}} \frac{1}{\sqrt{q}} \mathbf{e}_{\alpha}(\mathbf{q}) \left( a_{\mathbf{q}\alpha} e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} + a_{\mathbf{q}\alpha}^{\dagger} e^{-i\mathbf{q}\mathbf{r}} \right) \quad (2.157)$$

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = i \sqrt{\frac{2\pi \hbar c}{V}} \sum_{\alpha, \mathbf{q}} \sqrt{q} \mathbf{e}_{\alpha}(\mathbf{q}) \left( a_{\mathbf{q}\alpha} e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} - a_{\mathbf{q}\alpha}^{\dagger} e^{-i\mathbf{q}\mathbf{r}} \right) \quad (2.158)$$

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = i \sqrt{\frac{2\pi \hbar c}{V}} \sum_{\alpha, \mathbf{q}} \frac{1}{\sqrt{q}} \left( \mathbf{q} \times \mathbf{e}_{\alpha}(\mathbf{q}) \right) \left( a_{\mathbf{q}\alpha} e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} - a_{\mathbf{q}\alpha}^{\dagger} e^{-i\mathbf{q}\mathbf{r}} \right) \quad (2.159)$$

### 2.5.2 Elektronen in Wechselwirkung mit dem quantisierten Strahlungsfeld

Wie bereits früher erwähnt und benutzt, ist der Hamilton-Operator für  $N$  Elektronen im Potential  $V(\mathbf{r})$  in Anwesenheit eines elektromagnetischen Feldes in 1. Quantisierung gegeben durch:

$$H_e = \sum_{i=1}^N \left( \frac{(\mathbf{p}_i - \frac{e}{c} \mathbf{A}(\mathbf{r}_i, t))^2}{2m} + V(\mathbf{r}_i) \right) + H_{\text{WW}} \quad (2.160)$$

wobei  $H_{\text{WW}}$  die Wechselwirkungsanteile, insbesondere die Elektron-Elektron-Wechselwirkung beinhalten soll. Benutzt man

$$\left( \mathbf{p} - \frac{e}{c} \mathbf{A} \right)^2 = \mathbf{p}^2 - \frac{e}{c} \underbrace{(\mathbf{p}\mathbf{A} + \mathbf{A}\mathbf{p})}_{\substack{=2\mathbf{A}\mathbf{p} \\ \nabla \mathbf{A}=0}} + \frac{e^2}{c^2} \mathbf{A}^2 \quad (2.161)$$

so folgt

$$H_e = H_0 + H_{\text{el-Licht}} + H_{\text{el-Licht}}^{nl} + H_{\text{WW}} \quad (2.162)$$

mit

$$H_0 = \sum_{i=1}^N \left( \frac{p_i^2}{2m} + V(\mathbf{r}_i) \right) \quad (2.163)$$

$$H_{\text{el-Licht}} = - \sum_{i=1}^N \frac{e}{mc} \mathbf{A}(\mathbf{r}_i) \mathbf{p}_i \quad (2.164)$$

$$H_{\text{el-Licht}}^{nl} = \sum_{i=1}^N \frac{e^2}{2mc^2} \mathbf{A}^2(\mathbf{r}_i) \quad (2.165)$$

Der im Vektorpotential quadratische Anteil  $H_{\text{el-Licht}}^{nl}$  wird im Folgenden vernachlässigt. Zweite Quantisierung der Elektronen bezüglich Eigenzuständen vom Einteilchenanteil  $\mathbf{p}^2/2m + V(\mathbf{r})$  liefert

$$H_0 = \sum_{\mathbf{k}, l, \sigma} \varepsilon_l(\mathbf{k}) c_{\mathbf{k}l\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}l\sigma} \quad (2.166)$$

mit  $\varepsilon_l(\mathbf{k}) = \langle \mathbf{k}l\sigma | \mathbf{p}^2/2m + V(\mathbf{r}) | \mathbf{k}l\sigma \rangle$ ,

$$H_{\text{el-Licht}} = - \sum_{\mathbf{k}l, \mathbf{k}'l', \sigma} \frac{e}{mc} \langle \mathbf{k}l\sigma | \mathbf{A}(\mathbf{r}) \mathbf{p} | \mathbf{k}'l'\sigma \rangle c_{\mathbf{k}l\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}'l'\sigma} \quad (2.167)$$

Hier kann man nun gemäß (2.157)  $\mathbf{A}(\mathbf{r})$  als Operator einsetzen, ausgedrückt als Linearkombination von Photonen-Erzeugern und -Vernichtern:

$$H_{\text{el-Licht}} = - \sqrt{\frac{2\pi \hbar c^2}{V}} \frac{e}{mc} \sum_{\substack{\mathbf{k}l, \mathbf{k}'l', \sigma \\ \mathbf{q}, \alpha}} \frac{1}{\sqrt{\omega_{\mathbf{q}}}} c_{\mathbf{k}l\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}'l'\sigma} \left[ a_{\mathbf{q}\alpha} \int d^3r \Psi_{\mathbf{k}l}^*(\mathbf{r}) \mathbf{e}_\alpha(\mathbf{q}) e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} \frac{\hbar}{i} \nabla \Psi_{\mathbf{k}'l'}(\mathbf{r}) + a_{\mathbf{q}\alpha}^\dagger \int d^3r \Psi_{\mathbf{k}l}^*(\mathbf{r}) \mathbf{e}_\alpha(\mathbf{q}) e^{-i\mathbf{q}\mathbf{r}} \frac{\hbar}{i} \nabla \Psi_{\mathbf{k}'l'}(\mathbf{r}) \right] \quad (2.168)$$

Also ist

$$H_{\text{el-Licht}} = \hbar \sum_{\substack{\mathbf{k}l, \mathbf{k}'l', \sigma \\ \mathbf{q}, \alpha}} c_{\mathbf{k}l\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}'l'\sigma} \left( a_{\mathbf{q}\alpha} g_{\mathbf{k}l/\mathbf{k}'l'\mathbf{q}\alpha} + a_{\mathbf{q}\alpha}^\dagger g_{\mathbf{q}\alpha/\mathbf{k}l/\mathbf{k}'l'\mathbf{q}\alpha} \right) \quad (2.169)$$

mit der Kopplungskonstanten

$$g_{\mathbf{k}l/\mathbf{k}'l'\mathbf{q}\alpha} = - \sqrt{\frac{2\pi c}{V \hbar \omega_{\mathbf{q}}}} \frac{e}{m} \int d^3r \Psi_{\mathbf{k}l}^* \mathbf{e}_{\mathbf{q}\alpha} \frac{\hbar}{i} (\nabla \Psi_{\mathbf{k}'l'}(\mathbf{r})) e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} \quad (2.170)$$

Speziell bei ebenen Wellen (freien Teilchen) mit  $\Psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \sim e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}}$  und auch bei Bloch-Elektronen im Kristall lässt sich auf die übliche Weise die Impulserhaltung bei dem Elektron-Photon-Wechselwirkungsprozess zeigen, d. h.:

$$g_{\mathbf{k}l/\mathbf{k}'l'\mathbf{q}\alpha} \sim \delta_{\mathbf{k}', \mathbf{k}+\mathbf{q}} \quad (2.171)$$

$$H_{\text{el-Licht}} = \hbar \sum_{\substack{\mathbf{k}, \mathbf{q}, l, l' \\ \sigma, \alpha}} g_{\mathbf{k}l/\mathbf{k}+\mathbf{q}l'\alpha} c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}l'\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}l\sigma} \left( a_{\mathbf{q}\alpha} + a_{-\mathbf{q}\alpha}^\dagger \right) \quad (2.172)$$

Die einfache physikalische Interpretation für die durch diesen Hamilton-Operator beschriebenen Prozesse ist, dass ein Elektron vom Zustand  $\mathbf{k}l$  in den Zustand  $\mathbf{k} + \mathbf{q}l'$  gestreut wird unter Absorption eines Photons im Impuls  $\mathbf{q}$  oder Emission eines Photons mit Impuls  $-\mathbf{q}$ .

Der Gesamt-Hamilton-Operator unter Einbeziehung der Wechselwirkungsterme und des elektromagnetischen Feldes ist schließlich gegeben durch:

$$H = \sum_{\mathbf{k}, l\sigma} \varepsilon_l(\mathbf{k}) c_{\mathbf{k}l\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}l\sigma} + H_{\text{WW}} + \sum_{\mathbf{q}, \alpha} \hbar \omega_{\mathbf{q}} a_{\mathbf{q}\alpha}^\dagger a_{\mathbf{q}\alpha} + \quad (2.173)$$

$$+ \hbar \sum_{\substack{\mathbf{k}, \mathbf{q}, l, l' \\ \sigma, \alpha}} g_{\mathbf{k}l/\mathbf{k}+\mathbf{q}l'\alpha} c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}l\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}l'\sigma} \left( a_{\mathbf{q}\alpha} + a_{-\mathbf{q}\alpha}^\dagger \right)$$

Die  $a_{\mathbf{q}\alpha}, a_{\mathbf{q}\alpha}^\dagger$  erfüllen Bosonen-Kommutator-Relationen, die  $c_{\mathbf{k}l\sigma}, c_{\mathbf{k}l'\sigma}^\dagger$  erfüllen die Fermionen-Antikommutator-Relationen. Untereinander kommutieren  $a_{\mathbf{q}\alpha}$  und  $c_{\mathbf{k}\sigma}$ .

### 2.5.3 Das Exziton-Polariton

Speziell bei einem Halbleiter wird durch die Absorption eines Photons ein Elektron aus einem besetzten Valenzband-Zustand in einen unbesetzten Leitungsbandzustand angehoben. Da das Leitungsband-Elektron und das Valenzband-Loch miteinander wechselwirken und in der Regel den gebundenen Zustand eines Exzitons bilden (vgl. Band 1, Abschn. 6.8), kann man auch sagen, dass durch die Absorption des Photons ein Exziton erzeugt worden ist; umgekehrt können Leitungsband-Elektron und Valenzband-Loch wieder rekombinieren, d. h., das Exziton wird wieder vernichtet und dabei ein Photon emittiert. Man kann formal den „Exzitonen-Erzeuger“

$$B_{\mathbf{q}}^\dagger = \sum_{\mathbf{k}\sigma} c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}l\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}v\sigma} \quad (2.174)$$

definieren und entsprechend einen Exzitonen-Vernichter  $B_{\mathbf{q}}$ . Gemäß den Ausführungen von Band 1, Abschn. 6.8 kann man die Exzitonen-Freiheitsgrade separieren in ihren Schwerpunktanteil, bezüglich dessen sie sich wie freie Teilchen der Gesamtmasse  $m_e + m_h$  aus Elektron- und Lochmasse verhalten, und in den Relativanteil, bezüglich dessen das Exziton ein effektives Wasserstoff-Problem darstellt mit den entsprechenden gebundenen Zuständen. Zur Vereinfachung sei angenommen, dass sich die Exzitonen bezüglich der inneren Freiheitsgrade, also der Relativ-Koordinate etc., im Grundzustand befinden, so dass nur die kinetische Energie des Exzitons als ganzes verbleibt. Dann hat ein Exziton nach Gl. 6.270 aus Band 1 die Energie

$$E_q = \Delta - E_B + \frac{\hbar^2 q^2}{2(m_e + m_h)} \quad (2.175)$$

wobei  $\Delta$  die Bandlücke ist und  $E_B$  die exzitonische Bindungsenergie. Des Weiteren wollen wir annehmen, dass die Kopplungskonstante  $g_{\mathbf{k}\mathbf{k}+\mathbf{q}\alpha}$  nicht von  $\mathbf{k}$  abhängt. Dann verbleibt im Exziton-Bild der effektive Hamilton-Operator für das gekoppelte System Lichtwelle-Festkörper:

$$H = \sum_{\mathbf{q}} \left( E_q B_{\mathbf{q}}^\dagger B_{\mathbf{q}} + \hbar\omega_q a_q^\dagger a_q + \hbar g_{\mathbf{q}} (a_q B_{\mathbf{q}}^\dagger + a_q^\dagger B_{\mathbf{q}}) \right) \quad (2.176)$$

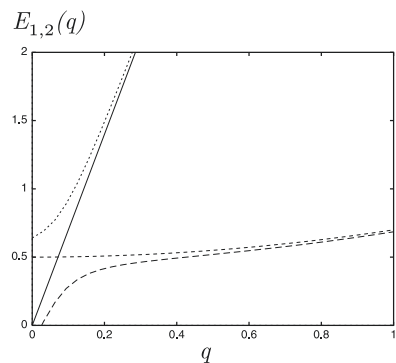
Dieser Hamilton-Operator lässt sich nun formal leicht diagonalisieren durch Einführung neuer Quasiteilchen, nämlich der **Polaritonen**, mit den Eigenenergien

$$E_{1,2}(\mathbf{q}) = \frac{E_q + \hbar\omega_q}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{(\hbar\omega_q - E_q)^2 + 4g_{\mathbf{q}}^2} \quad (2.177)$$

Diese Dispersionsrelationen sind in Abb. 2.4 dargestellt unter der (stark vereinfachenden und wohl nicht realistischen) Annahme einer konstanten,  $q$ -unabhängigen Elektron- bzw. Exziton-Photon-Kopplung  $g_q$ . Die lineare Dispersion des freien Photons (die wegen des Vorfaktors Lichtgeschwindigkeit real sogar noch deutlich steiler ist als in der qualitativen Skizze) und die quadratische Dispersionsrelation des Exzitons (um die Energie  $\Delta - E_B = 0.5$ ) ist ebenfalls eingetragen. Gerade am Schnittpunkt der beiden Dispersionskurven von Exzitonen und Licht, also für mittlere  $q$ , gibt es eine Aufspaltung und deutliche Abweichungen von der Dispersion der nicht gekoppelten Exzitonen bzw. Phononen. In den Grenzfällen großer und kleiner  $q$ , also weit weg von ihrem Schnittpunkt, wird die Differenz zwischen ungestörter Exzitonen- und Photonen-Dispersion groß und es gilt dann

$$E_{1,2}(\mathbf{q}) \rightarrow \frac{1}{2} \left( E_q + \hbar\omega_q \pm \left( E_q - \hbar\omega_q + \frac{2g_q^2}{E_q - \hbar\omega_q} \right) \right) \quad (2.178)$$

**Abb. 2.4** Dispersionsrelation des Exziton-Polaritons



Asymptotisch geht der eine Polariton-Ast  $E_1(q)$  also gegen die Dispersion  $E_q$  des freien Exzitons für große  $q$ , aber gegen die Dispersion der „Licht-Geraden“  $cq$  im anderen Grenzfall  $q \rightarrow 0$ . Der zweite Polariton-Ast verhält sich umgekehrt:  $E_2(q) \rightarrow E_q$  für  $q \rightarrow 0$  und  $E_2(q) \rightarrow cq$  für große  $q$ . Ein Exziton, das ja in der Regel erst durch optische Anregungen erzeugt wird, existiert dann aber nicht unabhängig als freies Exziton, sondern eher als Polariton, da es an das Licht gekoppelt bleibt. Umgekehrt wird Licht hinreichend großer, Anregungen ermöglichender Frequenz nicht frei durch den Kristall propagieren können, sondern allenfalls als Polariton.

Im Prinzip gibt es jetzt aber natürlich für jeden der gebundenen Exziton-Zustände, also für jede der diskreten, Wasserstoff-ähnlichen Bindungsenergien  $E_B/n^2$  (vgl. Band 1 (6.268, 6.270)) entsprechende Polaritonzweige. Außerdem sind Effekte wie der Zerfall bzw. die Streuung des Exzitons bzw. Polaritons, z. B. unter Emission von Phononen, natürlich besonders interessant, machen das Problem aber auch schwieriger, so dass sie hier nicht mehr besprochen werden sollen. Abschließend sei erwähnt, dass das in Band 1, Abschn. 4.7.2 schon einmal phänomenologisch eingeführte Phonon-Polariton sich mikroskopisch – nach Einführung der Quantisierung des Strahlungsfeldes – völlig analog behandeln lässt. Formal muss man oben in Gl. (2.176) nur die Bose-Operatoren  $B_{\mathbf{q}}, B_{\mathbf{q}}^\dagger$  statt als Exziton-Operatoren als Erzeuger und Vernichter eines optischen Phonons auffassen, wobei natürlich auch  $E_q$  durch die Dispersionsrelation der optischen Phononen zu ersetzen ist.

## 2.6 Das Jaynes-Cummings-Modell

Das einfachste nichttriviale Modell, das man aus dem allgemeinen Hamilton-Operator (2.173) von Elektronen, die an ein quantisiertes Lichtfeld koppeln, konstruieren kann, berücksichtigt nur zwei elektronische Niveaus 1, 2 und eine Photonen-Mode. Aus (2.173) ergibt sich dann explizit:

$$H = \varepsilon_1 c_1^\dagger c_1 + \varepsilon_2 c_2^\dagger c_2 + \hbar \omega a^\dagger a + g(a + a^\dagger) c_1^\dagger c_2 + g^*(a + a^\dagger) c_2^\dagger c_1 \quad (2.179)$$

Da das elektronische System ein Zweiniveau-System darstellt (mit diskreten Energie-Niveaus), wird es auch vielfach als Atom-Modell interpretiert und kann mit Hilfe von Spin-(Pauli-)Matrizen beschrieben werden. Der Hamilton-Operator (2.179) hat dann auch die Gestalt

$$H = \frac{\hbar \omega_{12}}{2} \sigma_z + \frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{2} \hat{1} + \hbar \omega a^\dagger a + g(a + a^\dagger) \sigma_- + g^*(a + a^\dagger) \sigma_+ \quad (2.180)$$

mit

$$\hbar \omega_{12} = \varepsilon_2 - \varepsilon_1, \quad \sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}, \quad \sigma_+ = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_- = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.181)$$



Im Prinzip sind also i. A. sowohl der Übergang vom elektronischen Niveau 1 nach 2 als auch der umgekehrte Übergang von 2 nach 1 mit der Absorption und der Emission eines Photons möglich. Wenn aber o. E.  $\varepsilon_1 < \varepsilon_2$  gilt, ist physikalisch anschaulich und intuitiv klar, dass der Übergang vom energetisch höheren ins tiefere Niveau in der Regel nur unter Emission eines Photons erfolgt und der umgekehrte Übergang vom tieferen ins höhere elektronische Niveau nur unter Absorption eines Photons. Lässt man daher in (2.180) jeweils den physikalisch weniger wichtigen Prozess weg, erhält man

$$H = \varepsilon_1 c_1^\dagger c_1 + \varepsilon_2 c_2^\dagger c_2 + \hbar \omega a^\dagger a + g^* a c_2^\dagger c_1 + g a^\dagger c_1^\dagger c_2 \quad (2.182)$$

Dieses Modell heißt auch

### Jaynes-Cummings-Modell<sup>6</sup>

Hier werden also gegenüber (2.179) die Terme  $a^\dagger c_2^\dagger c_1$  und  $a c_1^\dagger c_2$  vernachlässigt, was man auch damit motivieren kann, dass diese Operatoren im Wechselwirkungsbild eine Zeitabhängigkeit der Art  $e^{\pm i(\omega + \omega_{12})t}$  bekommen, also Termen entsprechen, die mit der hohen Frequenz  $\omega + \omega_{12}$  oszillieren, während die beibehaltenen, nicht vernachlässigten Terme mit der kleineren Frequenz  $|\omega - \omega_{12}|$  oszillieren. Die Näherung besteht also darin, dass man die schnell oszillierenden Anteile gegenüber den langsam oszillierenden Termen vernachlässigt, was physikalisch damit begründet werden kann, dass sich die schnell oszillierenden Terme bei (räumlichen oder zeitlichen) Integrationen herausmitteln. Dies nennt man auch

### Rotating Wave Approximation (RWA)

Der Hilbert-Raum, auf dem der ursprüngliche Hamilton-Operator (2.179) und auch das Jaynes-Cummings-Modell (2.182) operieren (definiert sind), wird aufgespannt durch die Zustände  $|n_1, n_2, n\rangle$  in Besetzungszahldarstellung mit  $n_i \in \{1, 2\}$  als den elektronischen Besetzungszahlen und  $n \in \mathbb{N}$  als Photon-Besetzungszahl. Das Jaynes-Cummings-Modell ist exakt lösbar, da nur die Zustände  $|1, 0, n+1\rangle, |0, 1, n\rangle$  durch den Hamilton-Operator gekoppelt werden. Es gilt nämlich

$$\begin{aligned} H|1, 0, n+1\rangle &= (\varepsilon_1 + (n+1)\hbar\omega)|1, 0, n+1\rangle + g\sqrt{n+1}|0, 1, n\rangle \\ H|0, 1, n\rangle &= (\varepsilon_2 + n\hbar\omega)|0, 1, n\rangle + g^*\sqrt{n+1}|1, 0, n+1\rangle \end{aligned} \quad (2.183)$$

Gekoppelt wird der Zustand mit  $n+1$  Photonen und dem Elektron im (ungestörten) Grundzustand 1 mit dem Zustand mit nur  $n$  Photonen und dem Elektron im

<sup>6</sup>benannt nach E.T. Jaynes (\* 1922 in Iowa, † 1998 in St. Louis, Missouri, USA, Physik-Studium in Iowa und an der University of California Berkeley, Promotion 1950 an der Princeton-University bei E. Wigner, danach an der Stanford-University und ab 1960 Professor an der Washington University in St. Louis) und F.W. Cummings (\* 1931 in New Orleans, Promotion 1960 an der Stanford-University bei E.T. Jaynes, seit 1963 Professor an der University of California Riverside, arbeitete über Quantenelektrodynamik und Vielteilchentheorie), 1963 gemeinsame Arbeit zum „Jaynes-Cummings-Modell“

angeregten (ungestörten) Zustand 2. Die Photonenzahl ist in (2.182) nämlich nicht erhalten, sondern es kann ein Photon emittiert werden und somit die Photonenzahl um 1 erhöht werden, wenn das Elektron den Übergang  $2 \rightarrow 1$  macht, oder umgekehrt kann ein Photon absorbiert werden, um das Elektron von  $1 \rightarrow 2$  anzuregen. Es ist also für jedes  $n \in \mathbb{N}$  nur die folgende  $2 \times 2$ -Matrix zu diagonalisieren:

$$\begin{pmatrix} \varepsilon_1 + (n+1)\hbar\omega & g\sqrt{n+1} \\ g^*\sqrt{n+1} & \varepsilon_2 + n\hbar\omega \end{pmatrix} \quad (2.184)$$

Diese hat die Eigenwerte

$$E_n^\pm = \frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{2} + \left(n + \frac{1}{2}\right)\hbar\omega \pm \sqrt{\frac{\hbar^2(\omega_{12} - \omega)^2}{4} + |g|^2(n+1)} \xrightarrow{g \rightarrow 0} \begin{cases} \varepsilon_2 + n\hbar\omega \\ \varepsilon_1 + (n+1)\hbar\omega \end{cases} \quad (2.185)$$

Dies schreibt man vielfach auch in der Form

$$E_n^\pm = \frac{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{2} + \hbar\omega \left(n + \frac{1}{2}\right) \pm \frac{\hbar}{2} \sqrt{\Delta\omega^2 + \omega_{Rn}^2} \quad (2.186)$$

$$\text{mit } \Delta\omega = \omega_{12} - \omega, \omega_{Rn} = 2|g|\sqrt{n+1} \quad (2.187)$$

$\Delta\omega$  nennt man auch **Verstimmung**, weil es die Abweichung der für das elektronische System charakteristischen Resonanzfrequenz  $\omega_{12}$  von der Frequenz des eingestrahlten Lichts ist, und  $\omega_{Rn}$  ist wieder die bereits in Abschn. 2.4 eingeführte **Rabi-Frequenz**, hier jetzt für das quantisierte Lichtfeld und  $n$  Photonen. Die Eigenzustände lassen sich auch angeben:

$$\begin{aligned} |n, +\rangle &= \cos \vartheta_n |1, 0, n+1\rangle - \sin \vartheta_n |0, 1, n\rangle \\ |n, -\rangle &= \sin \vartheta_n |1, 0, n+1\rangle + \cos \vartheta_n |0, 1, n\rangle \end{aligned} \quad (2.188)$$

mit

$$\cos \vartheta_n = \frac{\Delta_n - \Delta\omega}{\sqrt{(\Delta_n - \Delta\omega)^2 + \omega_{Rn}^2}}, \sin \vartheta_n = \frac{\omega_{Rn}}{\sqrt{(\Delta_n - \Delta\omega)^2 + \omega_{Rn}^2}} \quad (2.189)$$

$$\text{mit } \Delta_n = \sqrt{\Delta\omega^2 + \omega_{Rn}^2} \quad (2.190)$$

Die neuen Eigenzustände nennt man auch „dressed states“ („angezogene“ Zustände); die ungestörten („nackten“) elektronischen Zustände des Zweeniveau-Systems werden modifiziert („angezogen“) durch die Wechselwirkung mit dem Photonenfeld (durch ständige Absorption und Emission von Photonen) und die Energie-Eigenwerte werden verschoben um einen Term, der von der Kopplungskonstanten  $g$  abhängt, und diese wiederum ist gemäß (2.106, 2.170) durch die Feldstärke sowie ein Dipol- (oder Strom-Operator-)Matrixelement bestimmt. Diese

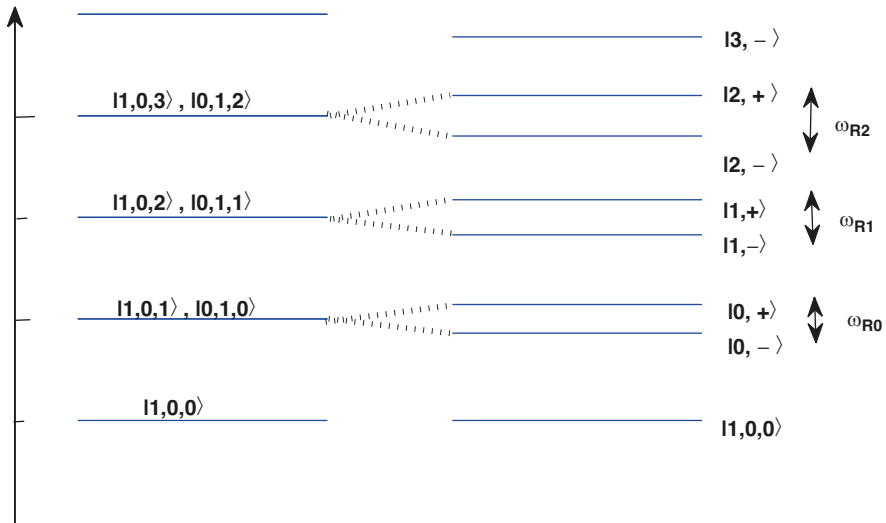
Verschiebung der Eigenenergien im elektromagnetischen Feld ist gerade wieder der bereits diskutierte **optische Stark-Effekt** (auch „dynamischer Stark-Effekt“ genannt). Für verschwindende Verstimmung, d. h. im Resonanzfall  $\omega = \omega_{12}$ ,  $\Delta\omega = 0$ , gilt natürlich  $\Delta_n = \omega_{Rn}$  und somit  $\cos \vartheta_n = \sin \vartheta_n = \frac{1}{\sqrt{2}}$  und man erhält

$$\begin{aligned} |n, +\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} (|1, 0, n+1\rangle - |0, 1, n\rangle) \\ |n, -\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} (|1, 0, n+1\rangle + |0, 1, n\rangle) \end{aligned} \quad (2.191)$$

In dem Fall sind die ungestörten Zustände  $|1, 0, n+1\rangle, |0, 1, n\rangle$  wegen  $\varepsilon_2 = \varepsilon_1 + \hbar\omega$  entartet, und diese Entartung wird durch die Kopplung an die Photonen aufgehoben: die beiden entarteten Zustände spalten auf in zwei Zustände, die sich energetisch um  $\omega_{Rn}$  unterscheiden. Der nicht entartete (und nicht an Photonen gekoppelte) Zustand  $|1, 0, 0\rangle$  (Elektron im Grundzustand ohne Photonen) bleibt außerdem Eigenzustand (Grundzustand) auch des vollen Systems. Das Termschema für den resonanten Fall ist schematisch in Abb. 2.5 dargestellt.

Man kann nun den Zeitentwicklungs-Operator  $U(t) = e^{-iHt/\hbar}$  explizit angeben, nämlich

$$U(t) = e^{-i\varepsilon_1 t/\hbar} |1, 0, 0\rangle \langle 1, 0, 0| + \sum_{n=0}^{\infty} \left( e^{-iE_n^- t/\hbar} |n-\rangle \langle n-| + e^{-iE_n^+ t/\hbar} |n+\rangle \langle n+| \right) \quad (2.192)$$



**Abb. 2.5** Termschema der ungestörten und exakten Eigenenergien beim Jaynes-Cummings-Modell in Resonanz (ohne Verstimmung)

Mittels  $U(t)$  lässt sich der Zustand zur Zeit  $t$ , d. h. die Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung bzw. die Zeitentwicklung des quantenmechanischen Zustands aus einem Anfangszustand zur Zeit  $t = 0$  bestimmen:

$$|\psi(t)\rangle = U(t)|\psi(0)\rangle \quad (2.193)$$

Nehmen wir nun an, dass das System zur Zeit 0 im elektronischen Grundzustand war und im Feld  $n + 1$  Photonen vorhanden waren, d. h.  $|\psi(0)\rangle = |1, 0, n + 1\rangle$ . Dann ergibt sich, weil nur die Eigenzustände  $|n+\rangle, |n-\rangle$  einen Überlapp mit  $|1, 0, n + 1\rangle$  haben:

$$|\psi(t)\rangle = e^{-iE_n^- t/\hbar}|n-\rangle\langle n-|1, 0, n + 1\rangle + e^{-iE_n^+ t/\hbar}|n+\rangle\langle n+|1, 0, n + 1\rangle \quad (2.194)$$

Daraus lässt sich die Wahrscheinlichkeit berechnen, das System zu einem späteren Zeitpunkt  $t$  wieder im Anfangszustand vorzufinden:

$$\begin{aligned} p_{1n}(t) &= |\langle 1, 0, n + 1|\psi(t)\rangle|^2 \\ &= \left| e^{-iE_n^- t/\hbar} \langle n-|1, 0, n + 1\rangle + e^{-iE_n^+ t/\hbar} \langle n+|1, 0, n + 1\rangle \right|^2 \\ &= \cos^4 \vartheta_n + \sin^4 \vartheta_n + 2 \cos^2 \vartheta_n \sin^2 \vartheta_n \cos((E_n^+ - E_n^-)t/\hbar) \end{aligned} \quad (2.195)$$

Durch elementare Umrechnung folgt daraus

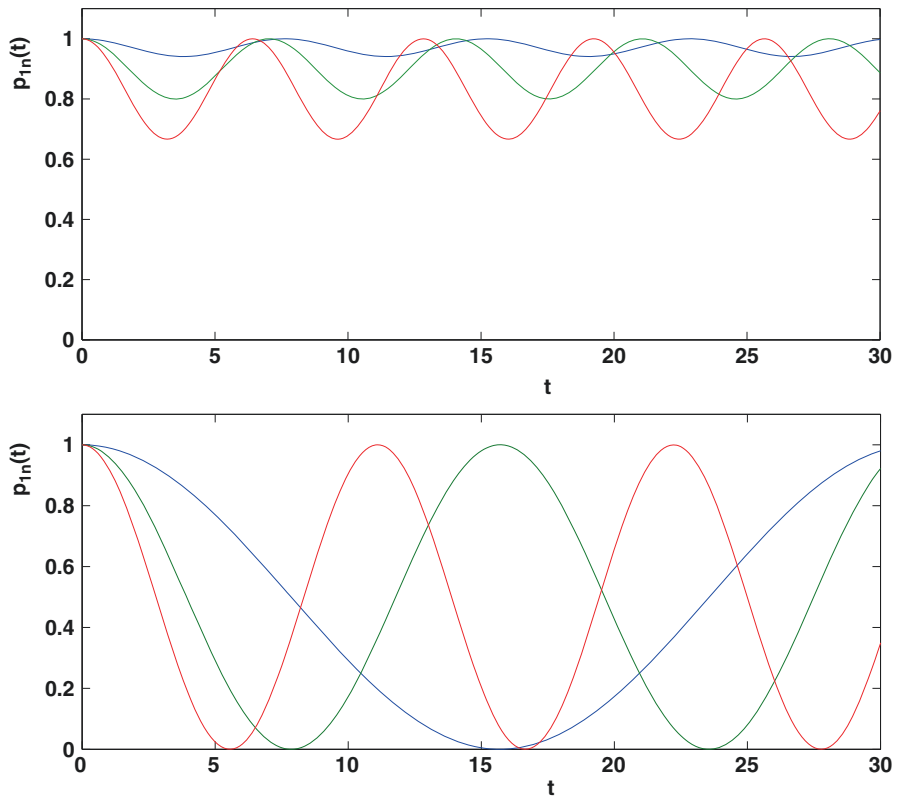
$$p_{1n}(t) = 1 - 2 \frac{(\Delta_n - \Delta\omega)^2 \omega_{Rn}^2}{((\Delta_n - \Delta\omega)^2 + \omega_{Rn}^2)^2} (1 - \cos(\Delta_n t)) \quad (2.196)$$

Ohne Verstimung, d. h. im Resonanzfall, vereinfacht sich dieser Ausdruck noch. Wegen  $\Delta\omega = 0$  hat man dann nämlich  $\Delta_n = \omega_{Rn}$  und somit

$$p_{1n}(t) = 1 - \frac{1}{2} (1 - \cos(\omega_R t)) = \frac{1}{2} (1 + \cos(\omega_R t)) = \cos^2\left(\frac{1}{2}\omega_{Rn} t\right) \quad (2.197)$$

Die Besetzungswahrscheinlichkeit des elektronischen Grundzustands schwankt dann also periodisch zwischen 0 und 1. In Abb. 2.6 ist der zeitliche Verlauf von  $p_{1n}(t)$  mit und ohne Verstimung für drei verschiedene  $n$  dargestellt. Auch mit Verstimung gibt es offensichtlich periodische zeitliche Schwankungen in der Besetzungswahrscheinlichkeit des elektronischen Grundzustandes durch die Kopplung an das Lichtfeld, das auch im nichtresonanten Fall Übergänge in den angeregten elektronischen Zustand ermöglicht.

Das Jaynes-Cummings-Modell beschreibt eigentlich so etwas wie ein Atom (beschrieben durch ein Zweiniveau-System) in einem Resonator (einer Kavität) ohne jegliche Verlustprozesse. Es ist aber durchaus auch für die Halbleiterphysik interessant, weil Photonen im optischen Bereich so gut wie keinen Impuls übertragen, d. h. sie koppeln Valenz- und Leitungsband-Zustände zu gleichem



**Abb. 2.6** Besetzungswahrscheinlichkeit  $p_{1n}(t)$  des elektronischen Grundzustands  $|1, 0, n+1\rangle$  für das Jaynes-Cummings-Modell für 3 verschiedene Werte von  $n = 0, 3, 7$  mit Verstimmung (oben,  $\omega = 0.2 * \omega_{12}$ ) und ohne Verstimmung (d. h. bei Resonanz  $\omega = \omega_{12}$ )

k. Unrealistisch bzw. unphysikalisch ist sicher, dass das Modell keinen Mechanismus enthält, der einen Photonen-Verlust beschreibt, und auch keinen Zerfall des angeregten elektronischen Zustands durch Emission von Photonen in andere Moden erlaubt. Genau um solche Terme kann man das Modell aber erweitern, sehr leicht z. B. indem man solche Verlustmechanismen phänomenologisch durch Terme beschreibt, die eine endliche Lebensdauer der angeregten Zustände bewirken. Man kann dann auch ein Modell für einen Ein-Atom-Laser daraus konstruieren, indem man zusätzlich einen Pumpterm einführt, der eine Energieeinstrahlung simuliert und für eine Besetzungsinversion, d. h. eine stärkere Besetzung des energetisch höheren Niveaus, sorgt. Derartige Ein-Atom-Laser könnten z. B. mittels Halbleiter-Quantenpunkten (siehe Abschn. 3.6) in Festkörpern realisiert werden. Man kann das Modell natürlich auch erweitern durch Berücksichtigung von mehr als zwei elektronischen (atomaren) Niveaus.

## 2.7 Aufgaben zu Kap. 2

### Aufgabe 2.1 Frequenzabhängige Lindhard-Suszeptibilität bzw. -Dielektrizitätskonstante

Gegeben sei ein Einband-Modell (quasi-)freier Elektronen mit Dispersion  $E(\mathbf{k}) = \frac{k^2}{2m}$

- a) Zeigen Sie, dass aus Gl. (2.71) für die frequenzabhängige (Lindhard-) Suszeptibilität folgt:

$$\begin{aligned}\chi(\mathbf{q}, \omega) &= \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}\sigma} \frac{f(E(\mathbf{k})) - f(E(\mathbf{k} + \mathbf{q}))}{\omega + i\delta + E(\mathbf{k}) - E(\mathbf{k} + \mathbf{q})} \\ &= -\frac{m}{2\pi^2 q} \int_0^{k_F} dk \left( \ln \frac{z - \frac{kq}{m} - \frac{q^2}{2m}}{z + \frac{kq}{m} - \frac{q^2}{2m}} - \ln \frac{z - \frac{kq}{m} + \frac{q^2}{2m}}{z + \frac{kq}{m} + \frac{q^2}{2m}} \right)\end{aligned}$$

( $z = \omega + i\delta$ ).

- b) Berechnen Sie das letztere eindimensionale Integral numerisch und plotten Sie die Frequenzabhängigkeit von  $\chi(\mathbf{q}, \omega)$ , der Dielektrizitätskonstante  $\varepsilon(\mathbf{q}, \omega) = 1 - \frac{4\pi e^2}{Vq^2} \chi(\mathbf{q}, \omega)$  (jeweils Real- und Imaginärteil) und des Reflexionskoeffizienten, für den nach (2.18) gilt:  $R = \frac{(1-n)^2 + \kappa^2}{(1+n)^2 + \kappa^2}$  mit  $\sqrt{\varepsilon} = n + i\kappa$ . Bestimmen Sie auch die Plasma-Frequenz  $\omega_P^2$  und vergleichen Sie das Ergebnis für  $\varepsilon(\mathbf{q}, \omega)$  mit dem Näherungsergebnis  $1 - \frac{\omega_P^2}{\omega^2}$ , das nach (2.78) für kleine  $q$  gelten sollte.

### Aufgabe 2.2 Dielektrizitätskonstante für ein eindimensionales Halbleiter-Modell

Ein (eindimensionaler) Halbleiter sei beschrieben durch ein Zweiband-Modell mit Dispersionen  $\varepsilon_v(k) = t \cos(k)$ ,  $\varepsilon_c(k) = E_0 - \cos(k)$  ( $E_0 - 1 - t > 0$ ).

- a) Plotten Sie die Bandstruktur.  
b) Berechnen Sie die frequenzabhängige Suszeptibilität und Dielektrizitätskonstante analytisch und plotten Sie das Ergebnis für die Frequenzabhängigkeit von Real- und Imaginärteil sowie des Reflexionskoeffizienten.

Hinweis:

$$\frac{1}{2\pi} \int_{-\pi}^{+\pi} dk \frac{1}{z \pm \cos(k)} = \frac{1}{z \sqrt{1 - \frac{1}{z^2}}}$$

für komplexe  $z$ .

### Aufgabe 2.3 Kombinierte Zustandsdichte

Bestimmen Sie die kombinierte Zustandsdichte  $N_{vc}(\omega)$  gemäß (2.132) für das Halbleiter-Modell  $E_v(\mathbf{k}) = -\frac{k^2}{2m_v}$ ,  $E_c(k) = \Delta + \frac{k^2}{2m_c}$ . Diskutieren Sie den Verlauf von Real- und Imaginärteil der Dielektrizitäts-Funktion.

### Aufgabe 2.4 Dielektrische Theorie von Polaritonen

Gemäß Abschn. 2.4 lässt sich die elektrische Suszeptibilität eines Halbleiters im Grenzfall  $q \rightarrow 0$  in der Regel in der Form

$$\chi(\omega) = - \sum_v \frac{A_v}{z - \Delta - E_v}$$

mit  $z = \hbar\omega + i\gamma$  darstellen. Dabei bezeichnet  $\Delta$  die Energielücke,  $v, E_v$  bezeichnen z. B. (gebundene und ungebundene) Wasserstoff-artige Wannier-(s-)Exzitonen-Quantenzahlen oder – bei Vernachlässigung der Coulomb-Wechselwirkung – Freie-Elektronen-Zustände  $\mathbf{k}$ . Die frequenzabhängige Dielektrizitätskonstante ist dann gegeben durch:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_0(1 + 4\pi \chi(\omega))$$

( $\varepsilon_0$  ist die statische, frequenzunabhängige Dielektrizitätskonstante, verursacht durch Gitterpolarisation etc.). Diskutieren Sie bei Berücksichtigung nur der niedrigsten Anregung  $v = 1$  die resultierende Dispersions-Relation für die durch das Medium propagierende (und an das Medium gekoppelte) elektromagnetische Welle. Diskutieren Sie insbesondere die Grenzfälle kleine Frequenz und großes  $k$ .

Hinweis: Aus den homogenen Maxwell-Gleichungen bzw. den elektromagnetischen Wellengleichungen folgt hier die Bedingung  $c^2 k^2 = \omega^2 \varepsilon(\omega)$ . Beachten Sie, dass  $k = k_1 + ik_2$  i. A. komplex sein kann und plotten Sie  $\omega$  als Funktion von  $k_1$  und  $k_2$ .

**Aufgabe 2.5 Zweiniveau-System im (optischen) elektrischen Wechselfeld**

Die (zeitabhängige) Schrödinger-Gleichung für ein Zweiniveau-System (vgl. Aufgabe 1.6) im zeitabhängigen äußeren Feld  $E(t)$  ist gegeben durch:

$$i \frac{d}{dt} |\psi(t)\rangle = H(t) |\psi(t)\rangle$$

mit dem (zeitabhängigen) Hamilton-Operator

$$H(t) = \varepsilon_1 |1\rangle\langle 1| + \varepsilon_2 |2\rangle\langle 2| - dE(t) (|1\rangle\langle 2| + |2\rangle\langle 1|)$$

wobei o. E.  $\varepsilon_1 < \varepsilon_2$  sei und  $d$  das Dipol-Matrixelement bezeichnet.

a) Zeigen Sie, dass aus dem Ansatz

$$|\psi(t)\rangle = a_1(t)|1\rangle + a_2(t)|2\rangle$$

$$\text{folgt: } i\dot{a}_n = \varepsilon_n a_n - dE(t)a_m \quad \text{für } n, m \in \{1, 2\}, n \neq m$$

b) Setzen Sie  $a_n(t) = b_n(t)e^{-i\varepsilon_n t}$  an und zeigen Sie:

$$i\dot{b}_n = -E(t)db_m e^{-i\omega_{mn}t} \quad \text{mit: } \omega_{mn} = \varepsilon_m - \varepsilon_n$$

(Dies entspricht dem Übergang ins Wechselwirkungsbild!)

c) Setzen Sie nun ein monochromatisches Feld an, d. h.

$$E(t) = E_0 \cos(\omega t) = \frac{E_0}{2} (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t})$$

Zeigen Sie, dass dann gilt:

$$i\dot{b}_n = -\frac{E_0}{2} db_m \left( e^{-i(\omega+\omega_{mn})t} + e^{i(\omega-\omega_{mn})t} \right)$$

d) Zeigen Sie, dass man bei Vernachlässigung der (für positive äußere Frequenz  $\omega$ ) nichtresonanten Beiträge auf die folgenden gekoppelten Differentialgleichungen kommt:

$$i\dot{b}_1 = -\frac{E_0}{2} db_2 e^{i(\omega-\omega_{21})t}$$

$$i\dot{b}_2 = -\frac{E_0}{2} db_1 e^{-i(\omega-\omega_{21})t}$$



und lösen Sie diese Gleichungen durch Übergang zu einer Integralgleichung zunächst in niedrigster nicht verschwindender Ordnung im Feld unter Benutzung adiabatischer Anfangsbedingungen:  $b_1(t \rightarrow -\infty) = 1$ ,  $b_2(t \rightarrow -\infty) = 0$ .

- e) Zeigen Sie, dass (ohne weitere Näherung) aus den beiden gekoppelten Differentialgleichungen erster Ordnung aus d) die folgende Differentialgleichung zweiter Ordnung folgt:

$$\frac{d^2}{dt^2} b_1 + i\nu \frac{d}{dt} b_1 + \frac{\omega_R^2}{4} b_1 = 0$$

mit  $\omega_R = dE_0$ ,  $\nu = \omega_{21} - \omega$ . Zeigen Sie, dass diese mit dem Ansatz  $b_1(t) = b_1(0)e^{i\Omega t}$  gelöst werden kann. Bestimmen Sie  $\Omega$  und interpretieren Sie das Ergebnis.

### Aufgabe 2.6 Wannier-Exzitonen in 2 Dimensionen

- a) Lösen Sie das zweidimensionale Wasserstoff-Problem, d.h. die zweidimensionale zeitunabhängige Schrödinger-Gleichung

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 \psi(r, \varphi) - \frac{e^2}{r} \psi(r, \varphi) = E \psi(r, \varphi)$$

wobei der zweidimensionale Ortsvektor  $\mathbf{r} = r(\cos(\varphi), \sin(\varphi))$  durch ebene Polarkoordinaten ausgedrückt ist.

Anleitung: Der Laplace-Operator in zweidimensionalen Polarkoordinaten ist gegeben durch:

$$\Delta_{\mathbf{r}} = \nabla^2 = \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2}$$

Machen Sie den Separationsansatz

$$\psi(r, \varphi) = R(r)e^{i\tilde{m}\varphi}$$

und zeigen Sie, dass sich für  $R(r)$  die eindimensionale Differentialgleichung ergibt:

$$\left( \frac{d^2}{dx^2} + \frac{1}{x} \frac{d}{dx} - \frac{\tilde{m}^2}{x^2} + \frac{2}{x} - \frac{E}{E_R} \right) R(x) = 0$$

mit  $r = a_B x$ ,  $a_B = \frac{\hbar^2}{me^2}$  als dem Bohrschen Radius,  $E_R = \frac{me^4}{2\hbar^2} = \frac{e^2}{2a_B^2}$  als Rydberg-Energie (13.6 eV beim wirklichen Wasserstoff-Problem). Machen Sie hierfür den Ansatz

$$R(x) = x^{|\tilde{m}|} e^{-\alpha x} \sum_n \beta_n x^n$$

und folgern Sie (analog zum dreidimensionalen Wasserstoff-Problem), dass diese Reihe für gebundene Zustände abbrechen muss, woraus sich diskrete Eigenzustände mit Eigenenergien

$$E_n = -\frac{E_R}{(n + \frac{1}{2})^2} \text{ mit } n = 0, 1, 2, 3, \dots$$

ergeben.

- b) Bestimmen Sie die Suszeptibilität (und damit aus deren Imaginärteil das lineare Absorptionsspektrum) für einen zweidimensionalen Halbleiter unter dem Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung (und somit zweidimensionaler, Wasserstoff-artiger Exzitonenanregungen), falls Leitungs- und Valenzband durch ein Effektivmassen-Modell beschrieben werden können. Gehen Sie analog zur Behandlung der dreidimensionalen Exzitonen in Abschn. 2.4 vor.

### **Aufgabe 2.7 Besetzungswahrscheinlichkeit des angeregten Niveaus beim Jaynes-Cummings-Modell**

Bestimmen Sie (mit und ohne Verstimmung) die zeitliche Entwicklung der Besetzungswahrscheinlichkeit  $p_{2n}(t)$  des angeregten elektronischen Zustands  $|0, 1, n\rangle$  beim Jaynes-Cummings-Modell, wenn als Anfangsbedingung vorgegeben ist, dass zur Zeit  $t = 0$  der Grundzustand  $|1, 0, n + 1\rangle$  besetzt ist.

Theoretische Festkörperphysik Band 2

Anwendungen: Nichtgleichgewicht, Verhalten in  
äußeren Feldern, kollektive Phänomene

Czycholl, G.

2017, X, 419 S. 115 Abb., 42 Abb. in Farbe., Softcover

ISBN: 978-3-662-53700-8