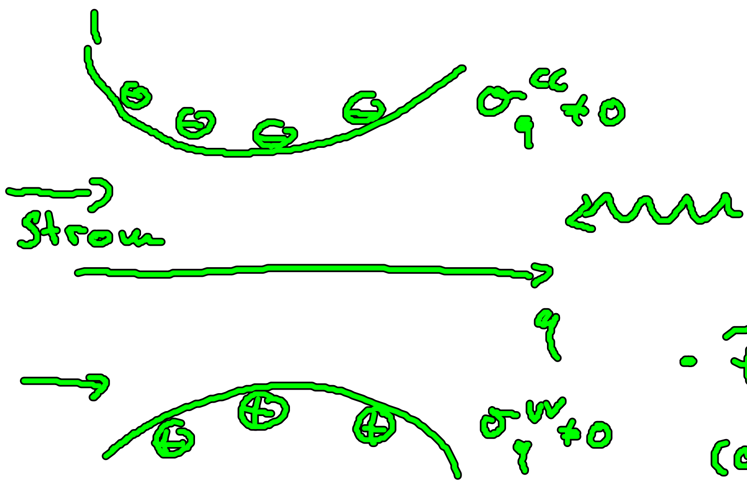
VI Zur WW des quant. Strahlungsfeldes mit Interbandübergängen: Aspekte von stimulierter und spontaner Emission / Absorption

• Model: 2 Band HL, Strom prod e^-/Lö-Verteilung



$0 \leq \sigma_q^{cc} \leq 1 \rightarrow$ Pauli-blocking

Strahlungsfeld soll die Verteilung nicht ändern (LO)

• Fragestellung:

(a) spontaner Emission (nicht klass. Feld

(b) induzierte Emission / Absorption (klass. Feld)

1. Spontane Emission

Rekomb. von El u Löchern

• stimulierte Emission:

Test d. Systems durch ext. Feld → geblockte Absorption
→ opt. Verstärkung
→ Abräumen d. Inversion

kein ext. Feld (Interbandkohärenzen) im System, d.h. $\sigma_q^{vc}(t=0)=0$ und ist nicht durch ein ext. Feld getrieben ($\Omega=0$), so bleibt diese NGG Situation nach der semi-klass. Theorie erhalten, denn

$$\dot{\sigma}_q^{vc} \sim E = 0$$

Die spontane Emission kann nur durch das q'sierte Strahlungsfeld beschrieben werden. WW von q'sierter Materie mit q'sierten Lichtfeld heißt Quanten Elektro Dynamik (QED) → relativ. → nichtrelativ. für Materie

1.1. Das frei q'sierte Strahlungsfeld

$$H_{Str} = \sum_{q\mu} \hbar\nu_q \, c^+_{q\mu} c_{q\mu}$$

Photon Erzeuger/Vernichter für Mode $q\mu$

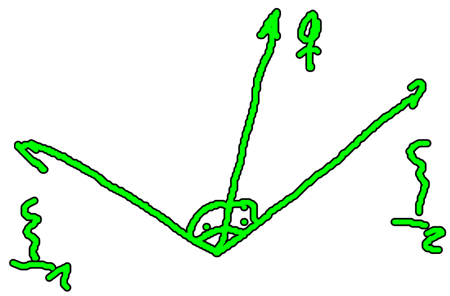
E-Feld in q'sierter Form (analog zu Phononen):

$$\underline{E} = \sum_{q\mu} \underline{\xi}_{q\mu}\, \mathcal{E}_q\, c_{q\mu}\, e^{i\underline{q}\cdot\underline{r}} + h.a.$$

Polarisations-vektor

Feldamplitude

$$\mathcal{E}_q = \left(\frac{\hbar\omega_q}{2\varepsilon_0 V}\right)^{1/2}$$



1.2 WW von EL mit q'sierten Strahlungsfeld

$$H_{WW} = -\int d^3r\, \Psi^\dagger(\underline{r},t)\, \underbrace{e\,\underline{r}\cdot\underline{E}}_{\text{klass. Dipol WW}}\, \Psi(\underline{r},t)$$

$\longrightarrow$ $\underline{E}$ als Quantenfeld einsetzen

$\longrightarrow$ $\Psi^\dagger$ — " ——— nach Blochfkt.

$$H_{WW} = -\sum_{1,2} a_1^\dagger a_2 \left(\frac{1}{\Omega_0}\int d^3r\, e\,\underline{r}\, u^*_{\lambda_1}(\underline{r})\, u_{\lambda_2}(\underline{r})\right)\Omega_0 \times$$

$$\times \sum_n e^{i(\underline{k}_1-\underline{k}_2)\cdot\underline{r}_n}\, \underline{E}(\underline{r}_n,t)$$

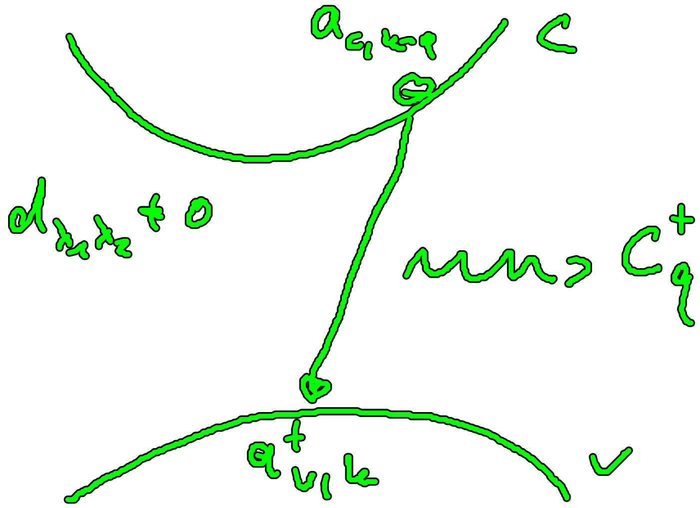
$$= -\sum_{1,2} a_1^\dagger a_2\, \underline{d}_{\lambda_1\lambda_2}\cdot \sum_{q\mu} \underline{\xi}_{q\mu}\cdot \mathcal{E}_q\, c_{q\mu}\, V\, \delta_{\underline{k}_1-\underline{k}_2,q} + h.a.$$

$$= -V \sum_{\lambda_1\lambda_2} \underbrace{\underline{d}_{\lambda_1\lambda_2}}\, \mathcal{E}_q\, a^\dagger_{\lambda_1 k}\, a_{\lambda_2 k-q}\, c_{q\mu} + h.a.$$

$q\mu \quad \alpha_{\lambda_1\lambda_2} \cdot \xi_{q\mu}$

- Interpretation:

Analog z. Phononen beschreibt H_{WW} impulserhaltende Entstehungs- u. Vernichtungsop. von Photonen, allerdings werden e^- nicht in einem Band gestreut, sondern zw. den Bändern $\lambda_1 \neq \lambda_2$, sonst $\alpha_{\lambda_i\lambda_i} = 0$.



Vernichtung v. e^-

unter Emission von Photon

Erzeugung v. e^-

- Observable: Energiedichte / Intensität

$$E E \sim \langle c^+ c \rangle$$ Photonenzahl

Emission ist mit Änderung der Phot.-zahl verbunden

$$\partial_t \langle c_q^+ c_q \rangle \sim I_{\text{emission}}(q)$$

$\frac{\text{Photonenergie}}{\text{Zeit}} \hat{=}$ Leistung – Intensität mit Wellenzahl q

- Berechnung d. Photonzahl durch HBGL f. $\langle c^+ c \rangle$:

$$-i\hbar\,\partial_t \langle c^+_{q\mu} c_{q'\mu'} \rangle = -\hbar(\omega_q - \omega_{q'}) \langle c^+_{q\mu} c_{q'\mu'} \rangle$$

$$- \mathcal{E}_q \langle c_{q'\mu'} P^+_q \rangle + \mathcal{E}_{q'} \underbrace{\langle c^+_{q\mu} P_{q'} \rangle}_{\text{verallgem. Polarisation}}$$

$$P_q = \sum_k d_{vc}\, a^+_{vk} a_{ck+q} + d_{cv}\, a^+_{ck+q} a_{vk} \qquad \text{qm. Dipoldichte}$$

P^+_q ist herm. adj. Operator zu P_q

- Interpretation:

Die Änderung d. Phot.zahl wird durch alle mgl. Übergänge zw. el. Niveaus die ein Photon erzeugen/vernichten getrieben.

- Berechnung d. Übergänge:

$$-i\hbar\,\partial_t \langle c^+_{q\mu} a^+_{vk} a_{ck+q} \rangle = (\mathcal{E}_{ck+q} - \mathcal{E}_{vk} - \hbar\omega_q) \langle c^+ a^+ a \rangle$$

$$- \underbrace{\left(\langle a^+_{vk} a_{vk} \rangle - \langle a^+_{ck+q} a_{ck+q} \rangle \right)}_{\substack{\text{Besetzungszahldiff des Übergangs} \\ \text{hat ein klass. Analogon } (1 - \sigma^e - \sigma^h)}} \cdot g_{\text{stim}} \longrightarrow \text{Stimulierte Emission}$$

$$+ \underbrace{\langle a^+_{ck+q} a_{ck+q} \rangle}_{\sigma^e_{k+q}} \cdot \underbrace{\left(1 - \langle a^+_{vk} a_{vk} \rangle \right)}_{\sigma^h_k} \cdot g_{\text{spont.}} \longrightarrow \text{spont. Emission}$$

Besetzung des mal Besetzung des
Ausgangszustandes Endzustandes

$$\gamma_{spont} = \sum_q d_{cv} \quad (\text{Zahl})$$

$$\gamma_{stim} = \mathcal{F}\left(\langle c^+ c\rangle, \langle c^+ P\rangle\right) \xrightarrow{\text{Anfangsbed.}} \gamma_{stim} = 0$$

- Interpretation:

(i) spont. Emission ist prod z. Produkt von El- u. Loch-dichte / Besetzung, d.h. spontane Emission fragt ab, wieviele El u. Lö simultan da sind um zu rekombinieren, dabei muß wg der Impulserhaltung die Wellenzahl von El u. Lo ungl. sein (Diff $\hat{=}$ Photonwellenzahl

(ii) stimulierte Emission hat klass. Analogon, Besetzungsdiff. geht ein, analog zu Pauliblocking bei NLO

1.3 Skizze einer analytischen Lsg. für die Lumineszenzgl. für spontane Emission

- stationäre Lsg.: $\partial_t \langle c^+_{q\mu} a^+_{v\nu} a_{c\nu} \rangle \to 0$

$$\langle c^{+}_{q\mu} a^{+}_{vk} a_{c\,k+q} \rangle \approx \frac{\gamma_{sp}\, \sigma^{e}_{q+k}\, \sigma^{h}_{k}}{\underbrace{\varepsilon_{c\,k+q}}_{\substack{\approx 0 \\ \text{(sehr klein)}}} - \varepsilon_{vk} - \hbar \underbrace{\omega_q}_{=\omega} - i\gamma}$$

$q \approx 0$

$$I_{pl} = \frac{\partial}{\partial t} \langle c^{+}_{q} c_{q} \rangle \Big|_{\text{Stationär}} \sim \underbrace{\sum_{\vec{k}} \frac{\gamma_{sp}\, \sigma^{e}_{k}\, \sigma^{h}_{k}}{(\varepsilon_{vk} - \varepsilon_{ck} - \hbar\omega)^2 + \gamma^2}}_{I(\omega)}$$

$$\alpha(\omega) \sim \sum_{\vec{k}} \frac{(1 - \sigma^{e}_{k} - \sigma^{h}_{k})\, \gamma}{(\varepsilon_{vk} - \varepsilon_{ck} + \hbar\omega)^2 + \gamma^2}$$

Fermi-
fkt.

$$\sigma^{e}_{k}\, \sigma^{h}_{k} = (1 - \sigma^{e}_{k} - \sigma^{h}_{k}) \underbrace{\frac{1}{e^{\left(\frac{\hbar^2 k^2}{2m_{red}} - \mu\right)/k_B T} - 1}}_{g\left(\frac{\hbar^2 k^2}{2m_{red}}\right)}$$

$$I_{pl}(\omega) \sim \alpha(\omega) \cdot g(\hbar\omega) \quad \text{für } \gamma \to 0$$

Sinn: Emissionsmessung ist einfacher als Absorptionsmessung

- Skizze für HL im Bereich der stimulierten Emission:

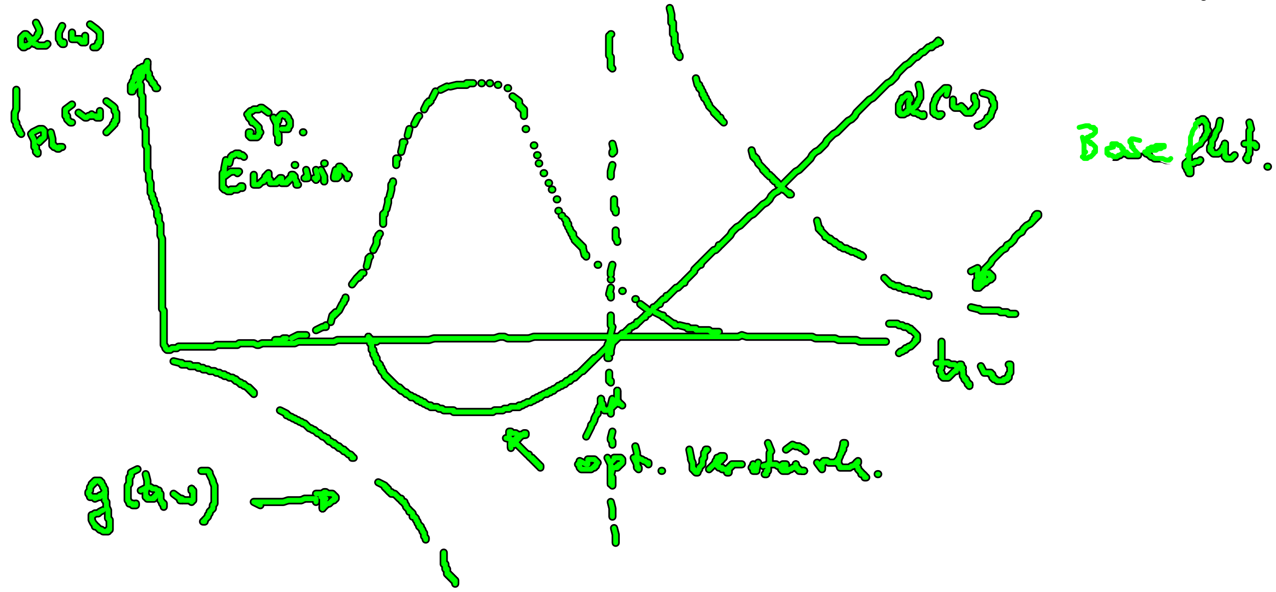


Bild bricht zusammen für einfache Exzitonen.

→ aus $I_{PL}(\omega)$ kann $\alpha(\omega)$ bestimmt werden

2. Stimulierte Emission u. Absorption

halbklass. Bew. Gl. für Dipoldichte:

$$\underline{P} = \frac{1}{V} \sum_q \left(\underline{d}_{cv} \sigma_q^{cv}(t) + \underline{d}_{vc} \sigma_q^{vc}(t) \right)$$

Dipolmoment

Wahrscheinlichkeit für Übergang

$$-\underline{i}\, \dot{\sigma}_q^{vc} = \overbrace{\left(\omega_q^v - \omega_q^c\right)}^{\Delta\omega_q} \sigma_q^{vc} + \Omega(t) \underbrace{\left(\sigma_q^{vv} - \sigma_q^{cc}\right)}_{(1 - \sigma_q^h - \sigma_q^e)\ (\#)}$$

$$\Delta\omega_q = -E_g - \frac{\hbar^2 q^2}{2 m_{red}}$$

Rabifrequenz

$$\Omega = \frac{\underline{d}_{cv} \cdot \underline{E}(t)}{\hbar}$$

(#) ist „Paulibockingterm", Besetzungszahldiff. in

EL lLo - Darstellung, durch ext. Strom vorgegeben (Fermiverteilung)

- Bemerkung: ohne Coulomb-WW, also keine Exzitonen suchen nach $\chi(\omega)$, also die Antwort auf ext. Feld.

- Bezug zur Optik:

$$\left(\partial_z^2 + \frac{\omega^2}{c_0^2}\right)E = \underbrace{-\mu_0\omega^2 P}_{\text{gesamter Materialanteil}} = -\mu_0\varepsilon_0\omega^2\chi(\omega)E(\omega) = -\frac{\omega^2}{c_0^2}\chi E$$

$$\left(\partial_z^2 + \frac{\omega^2}{c_0^2}(1+\chi)\right)E = 0 \to \chi+1 = n^2 = \varepsilon$$ komplexe Dielektrische Fkt.

- Ansatz für ebene Welle:

$$k^2 = \frac{\omega^2}{c_0^2}(1+\chi) \to k = \pm\frac{\omega}{c_0}(1+\chi)^{\frac{1}{2}}$$

$$\approx \frac{\omega}{c_0} + \frac{\omega}{c_0}\frac{\chi}{2}$$

Re χ Brechzahl im Medium

Im χ Absorption

Lsg. für prop. Welle

$$e^{-i\omega t + ikz} \to e^{\underbrace{-i\omega\left(t-\frac{z}{c}\right)}_{\text{ebene Welle im freien Raum}} + \underbrace{i\frac{\omega}{c_0}\frac{\chi}{2}z}_{\text{Korrektur durch Medium}}}$$

Deshalb

$$-i\omega\sigma_q^{vc}(\omega) = (i\Delta\omega_q - \gamma)\sigma_q^{vc} + i\Omega(\omega)\left(1-\sigma_q^{h}-\sigma_q^{<}\right)$$

nicht zeitveränderl., sonst NLO

$$\sigma_q^{vc}(\omega) = \frac{i}{\hbar} \frac{d_{cv} \,(1 - \sigma_q^h - \sigma_q^e)}{-i(\Delta\omega_q + \omega) + \gamma} E(\omega) \qquad (\underline{E} \parallel \underline{d}_{cv})$$

- Gesamtpolarisation:

$$P(\omega) = \frac{|d_{cv}|^2}{V\hbar} \sum_q (1 - \sigma_q^h - \sigma_q^e) \left\{ \underbrace{\frac{i E(\omega)}{-i(\Delta\omega_q + \omega) + \gamma}}_{\approx \frac{1}{0}\ \text{mitnehmen}} + \underbrace{\frac{i E(-\omega)}{-i(\Delta\omega_q - \omega) + \gamma}}_{\approx \frac{1}{2\omega_g}\ \text{vernachlässigen}} \right\}$$

für $\omega \approx \omega_g$

$\gamma \to 0$

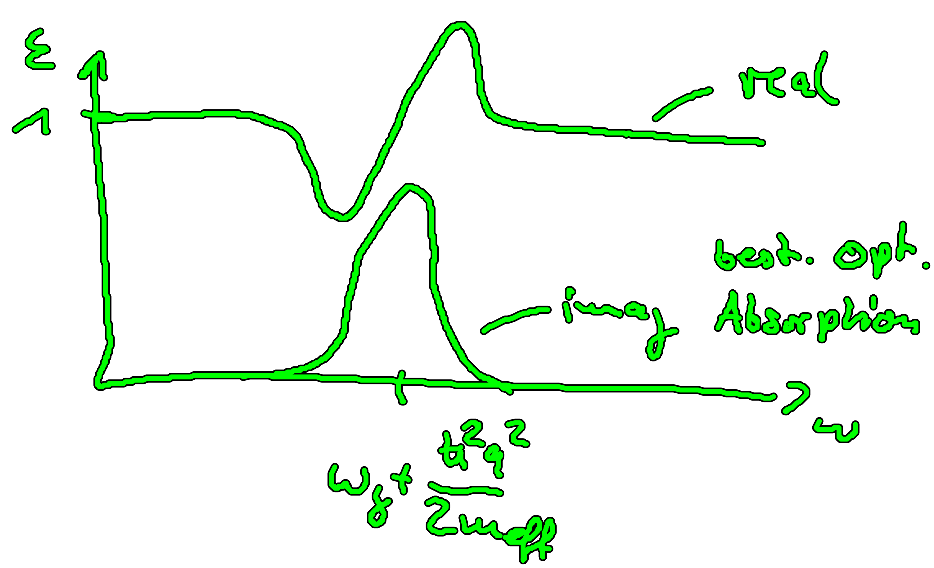
$\Rightarrow$ aus $P = \varepsilon_0 \chi E$, χ ablesen:

$$\chi(\omega) = \frac{|d_{cv}|^2}{V\varepsilon_0 \hbar} \sum_q \underbrace{\frac{i(\gamma + i(\Delta\omega_q + \omega))}{(\Delta\omega_q + \omega)^2 + \gamma^2}}_{\text{komplexe Lorentzfkt.}} \underbrace{(1 - \sigma_q^e - \sigma_q^h)}_{\text{Pauliblocking}}$$

Diskussion für einen q-Punkt:

$$\mathrm{Im}\,\chi_q \sim \frac{\gamma(1 - \sigma_q^h - \sigma_q^e)}{\left(\omega - (\omega_g + \frac{\hbar q^2}{2m_{red}})\right)^2 + \gamma^2}$$

(i)



verhält sich in Resonanzumgebung wie harm. Oszi.

(ii) aber: Vorfaktor $(1-\sigma^h_q-\sigma^e_q)$ aus Pauliprinzip, das ist Modifikation durch QM

$\sigma^e_q \neq 0$ — e

wenn also e^-/Lö im System vorhanden sind, so wird χ um den Faktor $(1-\sigma^h_q-\sigma^e_q)$ verringert

— h

$\sigma^h_q \neq 0$

opt. Absorpt.: $e^{-\operatorname{Im}\chi \frac{\omega}{c_0} z}$

(Lambert-Beer'sch Gesetz)

daher schwächt Paulibockingfaktor die Absorption ab, es kommt mehr Licht durch Probe als wenn $\sigma^h_q = \sigma^e_q = 0$;

Extremfall: $= 0$ transparent

$$(1-\sigma^h_q-\sigma^e_q) < 0 \; ; \text{ d.h. } \sigma^e_q + \sigma^h_q > 1$$

$\longrightarrow$ neg. Absorption = opt. Gewinn

Wenn genügend El/Lö im System sind, dann wirkt die Probe als opt. Lichtverstärker!

stimulierte

- Emission