

X. Optische Eigenschaften von Festkörpern

1. Elektron-Licht-Wechselwirkung

Die Wechselwirkung eines Elektrons mit der Ladung e und der Masse m mit elektromagnetischem Feld wird beschrieben durch den Hamilton-Operator

$$H = \frac{1}{2m} \left(\vec{p} - e \vec{A}(\vec{r}, t) \right)^2 + e \phi(\vec{r}, t) + V(\vec{r})$$

mit dem kanonischen Impuls \vec{p} ,
dem Vektorpotential $\vec{A}(\vec{r}, t)$, dem skalaren Potential $\phi(\vec{r}, t)$
und dem elektrostatischen Potential $V(\vec{r})$

Semiklassischer Ansatz, d.h. Elektronen werden quantenmechanisch und Licht klassisch behandelt.

Potential sind keine Observablen, d.h. sie sind nicht festgelegt.
wie Felder

- Strahlungspeichung: $\nabla \cdot \vec{A} = 0$, $\phi = 0$

- Dipolnäherung $\frac{\vec{k} \cdot \vec{r}}{\omega} \ll 1 \Leftrightarrow |r| \ll \lambda$

Impuls des Lichts ist klein
bzw. die Wellenlänge ist groß
im Vergleich zu Streupartikel

$$\vec{A}(\vec{r}, t) = \vec{A}(\vec{r} + \vec{r}_0, t) = A(t) e^{i\vec{k} \cdot (\vec{r} - \vec{r}_0)} \approx A(t) e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_0}$$

d.h. Vektorpotential ist in Dipolnäherung ortsunabhängig

Daraus folgt für den Hamilton-Operator

$$H = H_0 + H_{e-f} = \left[\frac{p^2}{2m} + V(\vec{r}) \right] + \left[-\frac{e}{m} \vec{p} \cdot \vec{A}(\vec{r}, t) + \frac{e^2}{2m} A^2(\vec{r}, t) \right]$$

Impuls & Vektorpotential
vertauschen in Dipolnäherung
& Strahlungseichung

→ 0
In linearer
Optik, da
A klein

$$H_{e-f} = -\frac{e}{m} \vec{p} \cdot \vec{A}(\vec{r}, t) \quad p \cdot A \text{-Hamiltonian}$$

$$r \cdot E \text{-Hamiltonian} \quad H_{e-f} = -e \vec{r} \cdot \vec{E}(\vec{r}, t) \quad \text{siehe Übungsaufgabe}$$

Im Prinzip sind die beiden Formen identisch. Sie können allerdings aufgrund von Näherungen zu unterschiedlichen Ergebnissen führen.

Man spricht von Länge- bzw. Geschwindigkeit-Eichung. Sie können durch eine Eichtransformation ineinander umgewandelt werden

In 2. Quantisierung:

$$H_{e-f} = \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}_1, \vec{k}_2} \int d^3r \ e^{-i(\vec{k}_1 - \vec{k}_2) \cdot \vec{r}} [-e \vec{r} \cdot \vec{E}(\vec{r}, t)] a_{\vec{k}_1, k_1}^\dagger a_{\vec{k}_2, k_2}$$

Zerlegung des Volumens in Einheitszellen

$$\int d^3r \rightarrow \sum_{\vec{R}_n} \int_{\Omega_0} d^3r_n$$



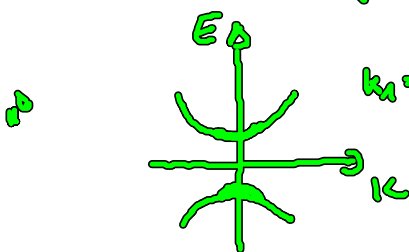
$$\vec{r} = \vec{R}_n + \vec{r}_n$$

$$\frac{1}{V} \sum_{\vec{R}_n} \int_{\Omega_0} d^3r_n \ e^{-i(\vec{k}_1 - \vec{k}_2) \cdot (\vec{R}_n + \vec{r}_n)} [-e (\vec{R}_n + \vec{r}_n)] \times$$

$$\times a_{\vec{k}_1}^\dagger (\vec{R}_n + \vec{r}_n) a_{\vec{k}_2} (\vec{R}_n + \vec{r}_n)$$

|| Periodizität
 $a_{\vec{k}_1}^\dagger(\vec{r}_n)$

Auswertung am Bandminimum,
d.h. $k_1 \approx k_2 \approx 0$

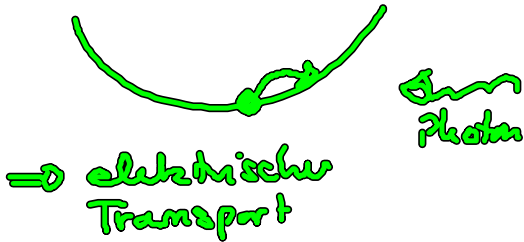


$k_1 = k_2 \approx 0$

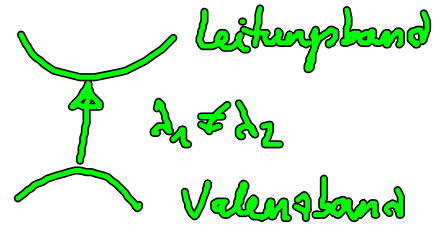
Variation innerhalb der Einheitszelle vernachlässigen

$$= \frac{1}{V} \sum_{\vec{R}_n} e^{-i(\vec{k}_1 - \vec{k}_2) \cdot \vec{R}_n} \left[-e \vec{R}_n \delta_{\lambda_1 \lambda_2} \Omega_0 \quad \textcircled{A} \right. \\ \left. - e \int d^3 r_n u_{\lambda_1}^*(\vec{r}_n) \vec{r}_n u_{\lambda_2}(\vec{r}_n) \right. \\ \left. \vec{d}_{\lambda_1 \lambda_2} \quad (\lambda_1 \neq \lambda_2) \quad \textcircled{B} \right]$$

Ⓐ Licht-induzierte Intra-Band-Übergänge



Ⓑ Intra-Band-Übergänge Optik



Wechselwirkung mit Licht hat zwei Komponenten

\vec{d} ein Maß für die Stärke des Übergangs

$$H_{e-f} = \frac{1}{V} \sum_{\lambda_1 \lambda_2} \sum_{\vec{R}_n} e^{-i(\vec{k}_1 - \vec{k}_2) \cdot \vec{R}_n} \times$$

$$\times \left[-e \vec{R}_n \delta_{\lambda_1 \lambda_2} \Omega_0 - \vec{d}_{\lambda_1 \lambda_2} \right] \cdot \vec{E}(\vec{R}_n) \underline{a_{\lambda_1 k_1}^+ a_{\lambda_2 k_2}}$$

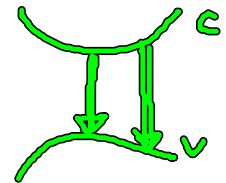
Bewegungsgleichung für $a_{\lambda_1 k_1}^+, a_{\lambda_2 k_2}$

Zweiband-Modell, d.h. $\lambda_1, \lambda_2 = c, v$ ← valence band
conduction band

Wegen Dipolnäherung gilt ja $k_1 \approx k_2$

⇒ zu berechnende Größe ist die mikroskopische Polarisation $p_k = \langle a_{v k}^+ a_{c k} \rangle$

$$p_k = \langle a_{v k}^+ a_{c k} \rangle$$



$$i \hbar \dot{p}_k |_{H_{e-f}} = [p_k, H_{e-f}] \\ = \vec{d}_{cv} \cdot \vec{E}(t) (p_k^c - p_k^v)$$

wobei $\rho_k^c = \langle a_{k\sigma}^\dagger a_{k\sigma} \rangle$ und $\rho_k^v = \langle a_{k\sigma}^\dagger a_{k\sigma} \rangle$

Grenzfall linearer Optik: $E(t)$ ist klein und führt zu einer nur schwachen Aussetzung der Zustände

$\Rightarrow \rho^v \approx 1$ Valenzband voll

$\rho^c \approx 0$ Leitungsband leer

$$\dot{\rho}_k \Big|_{H_{\text{eff}}} = i \frac{d\langle a_{k\sigma}^\dagger \cdot \vec{E}(t) \rangle}{\hbar} = i \Omega(t)$$

Rabi-Frequenz bestimmt die Stärke der Elektron-Licht-WW

Berücksichtigung der wechselwirkungsfreien Beiträge H_0 und der Coulomb-WW in Hartree-Fock-Näherung

$$\dot{\rho}_k(t) = \overset{H_0}{i \omega_k \rho_k(t)} + \overset{H_{\text{eff}}}{i \Omega(t)} - \frac{i}{\hbar} \sum_{k'} V_{\text{ren}}(k, k') \rho_{k'}(t) \quad \textcircled{A}$$

$$\quad \quad \quad \parallel \quad \quad \quad - \frac{i}{\hbar} \sum_{k'} V_{\text{ex}}(k, k') \rho_{k'}(t) \quad \textcircled{B}$$

Ⓐ Abstoßende Elektron-Elektron-Wechselwirkung

$$\Rightarrow \tilde{\omega}_k = \omega_k - \frac{1}{\hbar} \sum_{k'} V_{\text{ren}}(k', k)$$

Renormierung der Energie

Ⓑ Anziehende Elektron-Loch-Wechselwirkung

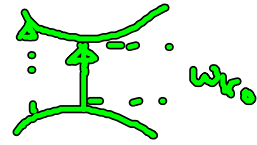
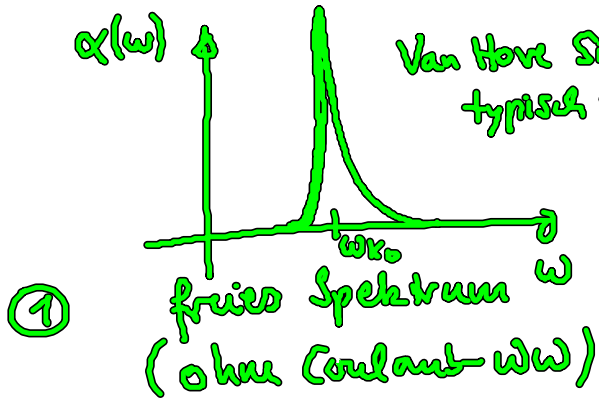
$$\Rightarrow \tilde{\Omega}_k(t) = \Omega_k(t) - \frac{1}{\hbar} \sum_{k'} V_{\text{ex}}(k, k') \rho_{k'}$$

Renormierung der Rabi-Frequenz

Insgesamt lässt sich schreiben

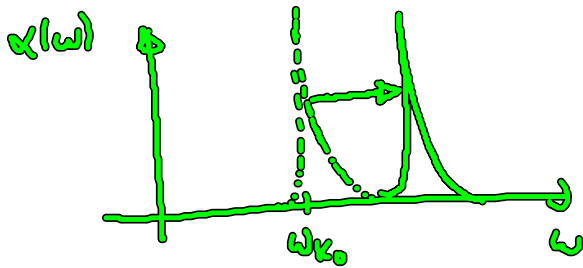
$$\dot{p}_{ik}(t) = i \tilde{W}_{ik} p_{ik}(t) + i \tilde{J}_{ik}(t)$$

Voranschaulichung anhand von Absorptionsspektren von CNTs



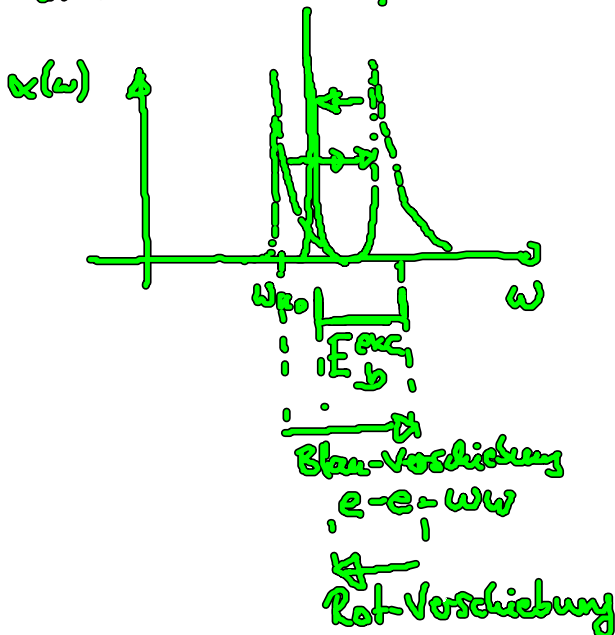
maximale Absorption bei resonanter
Anregung, d.h. Lichtfrequenz
entspricht der Bandlücke

② Renormiertes Spektrum
(inkl. abstoßender Elektron-Elektron- $\omega\omega$)



Energie-Renormierung
→ Blau-Verschiebung, d.h.
Bandlücke wird größer
asymmetrische Van Hove Singularität

③ Exzitonicches Spektrum



Ausbildung von
Exzitonen

symmetrischer Lorentz-Peak

Exzitonen sind gebundene
Elektron-Loch-Paare

→ exzitoniche Bindungsenergie
 E_{exc}
 E_g

(Differenz zwischen exzitonicchem
Peak und dem renormierten)

e-h-w
 $\hat{=} E_{bc}$
b

Peak)