Der Übergang vom mikroskopischen, kohärenten zum makroskopischen, dissipativen Verhalten. (Quantenkinetik und Femtosekunden-Halbleiter-Spektroskopie.)

Ladislaus Alexander Bányai

H. Haug,

C. Remling, B. Tran Thoai, K. ElSayed, E. Reitsamer, A. Schmenkel, Q. T. Vu

- Einleitung
- Zeitumkehr und Irreversibilität. Offene Systeme.
- Klassische lösbare Elektron-Phonon-Modelle
- Halbleiter-Bloch-Gleichungen mit Gedächtnis in der Femtosekunden-Optik
- Quantenkinetische Effekte in der Kurzzeitspektroskopie.

Femtosekunden-Laserpulse im Wellenlengenbereich der Halbleiterbandlücken

$$1fs = 10^{-15}s$$

Kontrollierbare Zeiten (Pulsbreite und Verzögerungen) auf einer Skala die kurzer als die typische Relaxationszeiten ist.

Zeitumkehr und Irreversibilität

Lagrange-Funktion eines klassischen Teilchensystem:

$$L = \sum_{i=1}^{N} \frac{m\dot{x}_i^2}{2} - U(x_i) - \frac{1}{2}\sum_{i=1}^{N}\sum_{j=1}^{N} V(x_i - x_j)$$

invariant gegen $t \Rightarrow -t \qquad (\dot{x} \Rightarrow -\dot{x})$

Jeder Anfangszustand kann wiedererzeugt werden durch Spiegelung der Geschwindigkeiten!

Poincaré : *Nach einer gewissen Zeit kehrt jedes System in die Nähe des Anfangszustandes im Phasenraum zurück !*

Wie kann man das mit der makroskopischen **Irreversibilität** und der Tendenz zum Gleichgewicht vereinbaren !?

Bewegung eines Elektrons im elektrischen Feld:

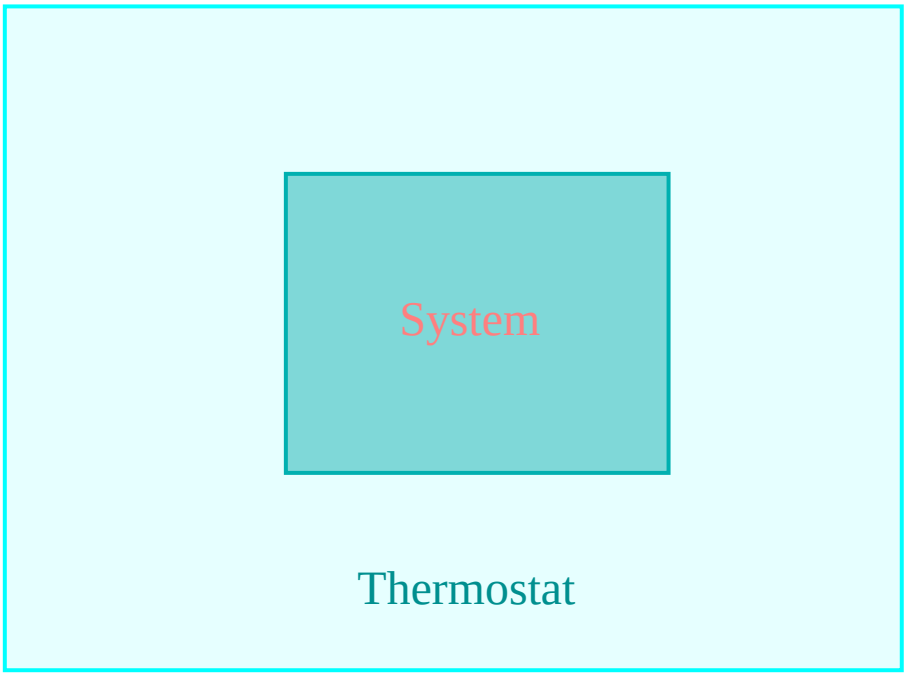
$$m\ddot{x}(t) = \mathcal{E} - \gamma\dot{x}(t)$$

- Nichtmechanische Kräfte: Reibungskonstante γ
  Das Ohmsches Gesetz zeigt eine Verletzung der T - Invarianz!

Mit der Quantenmechanik ist die Lage identisch, obwohl formal komplizierter.

Offene Systeme

Thermodynamischer Grenzübergang - *unendliche Anzahl von Freiheitsgraden und unendliches Volumen bei endlichen Dichten mindestens für eine Komponente des Systems* (Thermostat)



Bis sich die volle Wirkung der Umgebung auswirkt, vergeht Zeit.

Neuer Ansporn:

Bei den optischen Experimenten mit ultrakurzen Femtosekunden-Laserpulsen in Halbleitern sind wir genau am Übergang vom kohärenten quantenmechanischen zum dissipatives Verhalten.

Klassische lösbare Elektron-Phonon-Modelle

A) **Das (1D) Caldeira-Leggett-Modell** (1983)

Bewegung eines Elektrons, das mit akustischen Phononen wechselwirkt, in einem konstanten elektrischen Feld.

$$L = \frac{1}{2}m\dot{x}^2 + \mathcal{E}x + \frac{1}{2}\sum_q \{\dot{Q}_q^2 - (\frac{F_q}{\omega_q}x - \omega_q Q_q)^2\}$$

$$\begin{aligned} \omega_q &= c\,|\,q\,| \qquad \text{- } akustische\ Phononen \\ (F_q^2 &= Cc^2 q) \end{aligned}$$

- formale Lösung der Phononengleichung mit den Anfangsbedingungen:
  $Q_q(0) = 0 \qquad \dot{Q}_q(0) = 0$

führt zur geschlossener Gleichung mit Gedächtnis für das Elektron

$$\boxed{m\ddot{x}(t) = \mathcal{E} - C\int_0^t dt'\,\frac{\sin\omega_D(t-t')}{t-t'}\dot{x}(t')}$$

ω_D -Debye-Frequenz

$$\lim_{\omega_D\to\infty}\frac{\sin\omega_D t}{t} = \delta(t)$$

Asymptotische Reibungskonstante : $\gamma = \frac{C}{2}$

Wichtig: *Thermodynamisches Limes für die Phononen*

B) **Klassisches Polaron-Modell**

Fröhlich-Kopplung mit LO-Phononen:

$$-\frac{1}{\epsilon_\infty}\int d\mathbf{x}\int d\mathbf{y}\frac{\nabla\vec{P}(\mathbf{x})\rho(\mathbf{y})}{\mid \mathbf{x}-\mathbf{y}\mid}$$

Gitterpolarisierung: $\vec{P}(\mathbf{x})$

Ladungsdichte: $\rho(\mathbf{x})$

Elektronische dielektrische Konstante: ϵ_∞

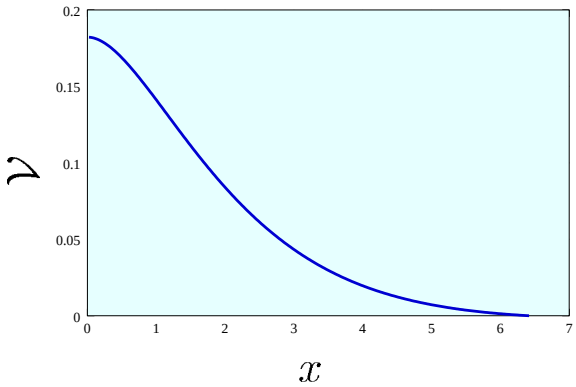
Wichtig: Debye-Regularisierung des Coulomb-Potentials

(*Anzahl der Freiheitsgrade im Kontinuummodell = Anzahl der Freiheitsgrade im Gitter*)

Nach der Eliminierung der Phononenfreiheitsgraden, bekommt man die geschlossene Gleichung mit Gedächtnis für das Elektron (Bewegung in der Feldrichtung) (Bányai, Phys. Rev. Lett. **70**, 1674 (1993))

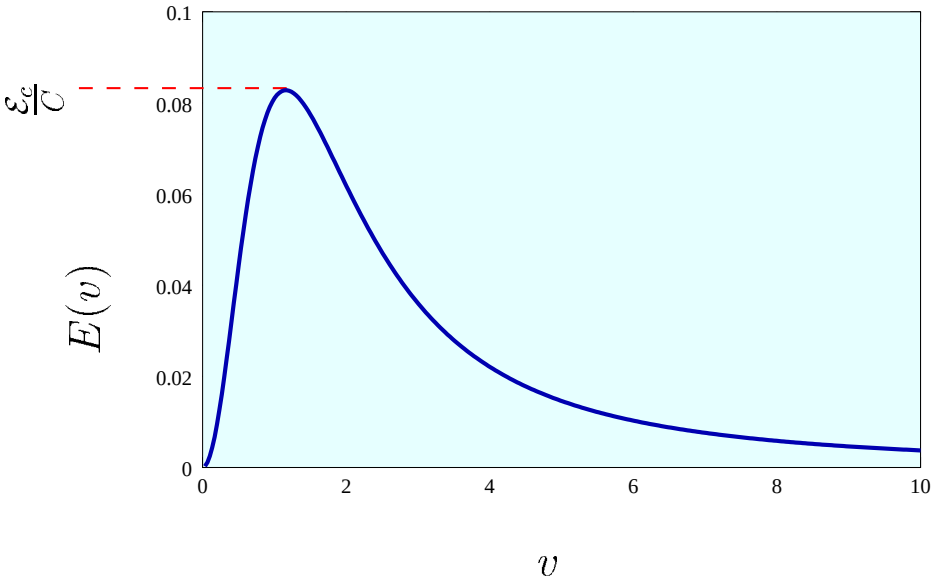
$$\boxed{\frac{d^2x(t)}{dt^2}=\mathcal{E}+C\int_0^t dt'\sin(t-t')\frac{\partial}{\partial x(t)}\mathcal{V}(\mid x(t)-x(t')\mid)}$$

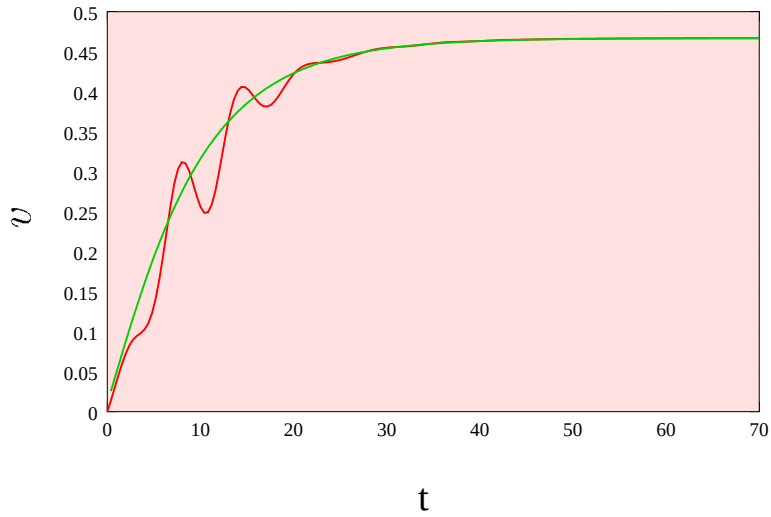
C- Kopplungskonstante, $\mathcal{V}(\mid x\mid)$ - effektives Potential



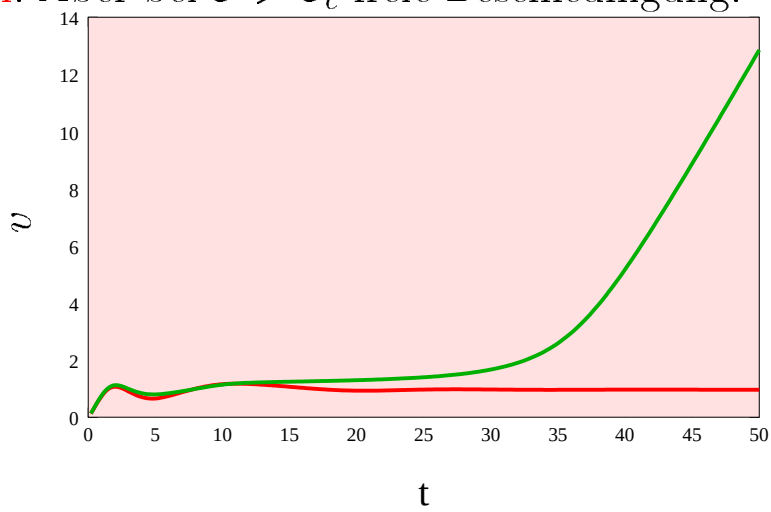
Asymptotisch stationäre Bewegung: $x(t)\approx vt$ für $t\to\infty$

$$0=\mathcal{E}+C\int_0^\infty dt\sin(t)\frac{\partial}{\partial vt}\mathcal{V}(vt)=\mathcal{E}+CE(v)$$





Typisch für die Übergangsphase zur dissipativen Bewegung sind die Oszillationen. Aber bei $\mathcal{E} > \mathcal{E}_c$ freie Beschleunigung:



Kann man die Übergangsregime experimentell beobachten?

Einfachster Effekt des Gedächtniskerns: Spektrallinienform

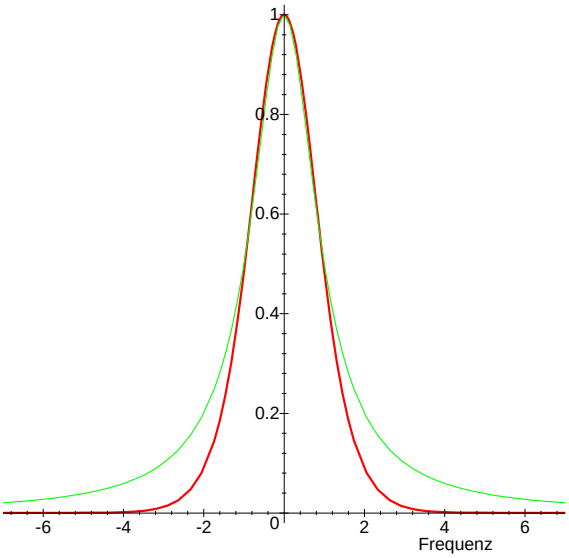
Gedämpfter Oszillator im optischen Feld:

$$\ddot{x} = -\omega_0^2 x - \gamma \dot{x} - \frac{e}{m}\mathcal{E}(t)$$

führt zur Leitfähigkeit $\sigma(\omega) = \frac{ne^2}{m}\frac{\imath\omega}{\omega_0^2-\omega^2+\imath\omega\gamma}$

Dämpfung mit Gedächtnis

$$\gamma\dot{x} \to \int_{-\infty}^{t} dt'\Gamma(t-t')\dot{x}(t'); \qquad \text{z. B.} \qquad \Gamma(t) = \frac{2\gamma}{\tau\sqrt{\pi}}\exp-\left(\frac{t}{\tau}\right)^2$$



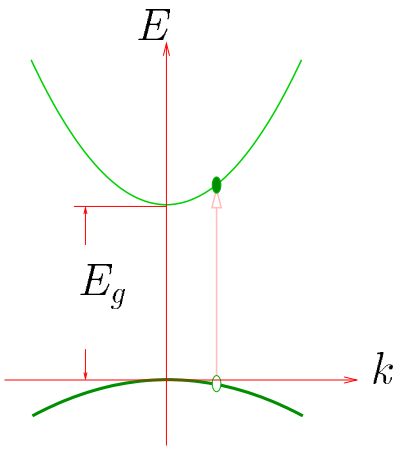
$$\sigma(\omega) = \frac{ne^2}{m}\frac{\imath\omega}{\omega_0^2-\omega^2+\imath\omega\Gamma(\omega)}$$

Urbach-Ausläufer der exzitonischer Resonanz in Halbleiter wegen der Wechselwirkung mit LO-Phononen.

Echtzeitexperimente ?

Ultrakurzzeitspektroskopie an Halbleitern.

Zweiband-Halbleiter



Halbleiter-Bloch-Gleichungen

$f_{e,\vec{k}}$, $f_{v,\vec{k}}$ - Besetzung der $\vec{k}$-Zustände in der Leitungsband und Valenzband (Wahrscheinlichkeit, "Population")

$p(\vec{k})$ - Korrelation der $\vec{k}$-Zustände in den zwei Bändern (Wahrscheinlichkeitsamplitude, "Polarisierung")

$$\frac{\partial f_{\alpha,\vec{k}}(t)}{\partial t} = Im\left(\Omega^*_{\vec{k}}(t) p_{\vec{k}}(t)\right) + \left.\frac{\partial f_{\alpha,\vec{k}}(t)}{\partial t}\right|_{coll} \qquad (\alpha = e, h)$$

$$\left[\frac{\partial}{\partial t} + \frac{i}{\hbar}\delta\epsilon_k(t)\right] p_{\vec{k}}(t) = \frac{i}{2}\Omega_{\vec{k}}(t)\left(1 - f_{e,\vec{k}}(t) - f_{h,\vec{k}}(t)\right) + \left.\frac{\partial p_{\vec{k}}(t)}{\partial t}\right|_{coll}$$

$\delta\epsilon_k(t) = \epsilon_{e,\vec{k}}(t) + \epsilon_{h,\vec{k}}(t) - \hbar\omega + E_g$ Verstimmung gegen der Bandlücke

$\epsilon^0_{\alpha,\vec{k}} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_\alpha}$;

$\epsilon_{\alpha,\vec{k}}(t) = \epsilon^0_{\alpha,\vec{k}} - \sum_{\vec{k}'} V_{\vec{k}-\vec{k}'}\, f_{\alpha,\vec{k}'}(t)$ HF- renormierte Energien

$\hbar\Omega_{\vec{k}}(t) = d\mathcal{E}(t) + 2\sum_{\vec{k}'} V_{\vec{k}-\vec{k}'}\, p_{\vec{k}'}(t)$ HF- renormierte Rabi-Frequenz

Markovsche Näherung:

$$\left.\frac{\partial f_{\vec{k}}(t)}{\partial t}\right|_{coll}^{Boltzmann} = -\sum_{\vec{q},\pm} W_{\vec{k},\vec{q}} f_{\vec{k}}(t)(1 - f_{\vec{k}-\vec{q}}(t)) N_{\vec{q}} - \cdots$$

mit $N_{\vec{q}} = \frac{1}{exp\frac{\hbar\omega_{\vec{q}}}{k_B T}-1}$;

$W_{\vec{k},\vec{q}} = \frac{2\pi}{\hbar} g_{\vec{q}}^2 \delta(e_{\vec{k}} - e_{\vec{k}-\vec{q}} - \hbar\omega_{\vec{q}})$

Quantenkinetik:

$$\left.\frac{\partial f_{\vec{k}}(t)}{\partial t}\right|_{coll}^{QK} - \sum_{\vec{q}} \int_{-\infty}^{t} dt' K_{k,\vec{q}}(t-t') f_{\vec{k}}(t')(1 - f_{\vec{k}-\vec{q}}(t')) N_{\vec{q}} - \cdots$$

mit $\quad K_{\vec{k},\vec{q}}(t-t') = 2g_{\vec{q}}^2 \cos\left(\frac{1}{\hbar}(\epsilon_{\vec{k}} - \epsilon_{\vec{k}-\vec{q}} - \omega_{\vec{q}})(t-t')\right)$

Energieerhaltung nur bei $t \to \infty$

$$\lim_{t\to\infty} \int_0^t dt' \cos\left(\frac{1}{\hbar}(\epsilon_{\vec{k}} - \epsilon_{\vec{k}-\vec{q}} - \omega_{\vec{q}})t'\right) = \pi\delta(e_{\vec{k}} - e_{\vec{k}-\vec{q}} - \hbar\omega_{\vec{q}})$$

unter der Annahme, daß die Population asymptotisch langsam variiert. Sonnst wirkt die quantenmechanische Energie-Zeit-Unschärfe:

$$\boxed{\Delta E \Delta t \geq \hbar}$$

Für kurze Zeiten nach der optischen Anregung sind die Phänomene noch rein quantenmechanisch zu beschreiben.

Später zerfällt die Kohärenz

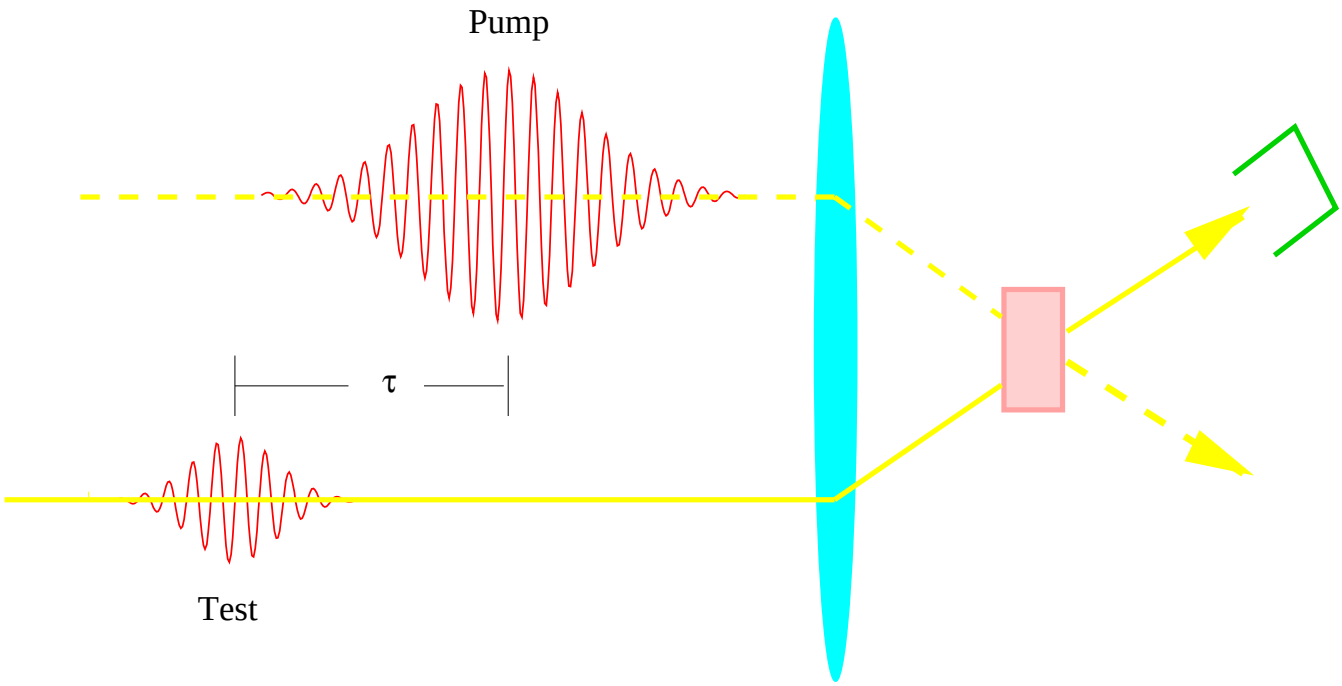
$$p(\vec{k}, t) \to 0$$

und bleibt übrig nur ein langsamer Markowscher Prozeß für die Populationen $f_{e,\vec{k}} \quad , \quad f_{v,\vec{k}}$

Schnapschüsse der mikroskopischen Erreignisse. Realzeitspektroskopie.

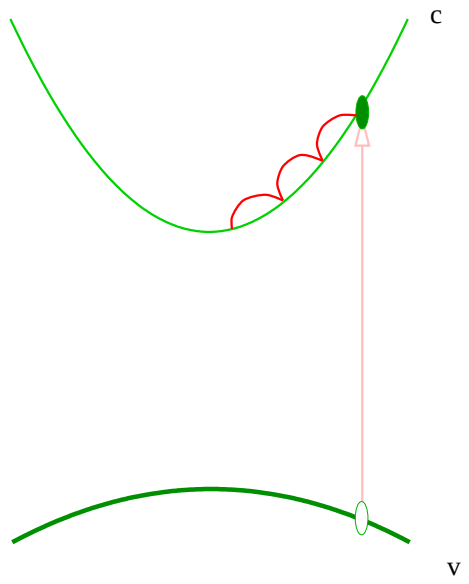
Femtosekunden-Pump-Test-Experimente

Differentielle Transmissionsspektrum.(DTS)

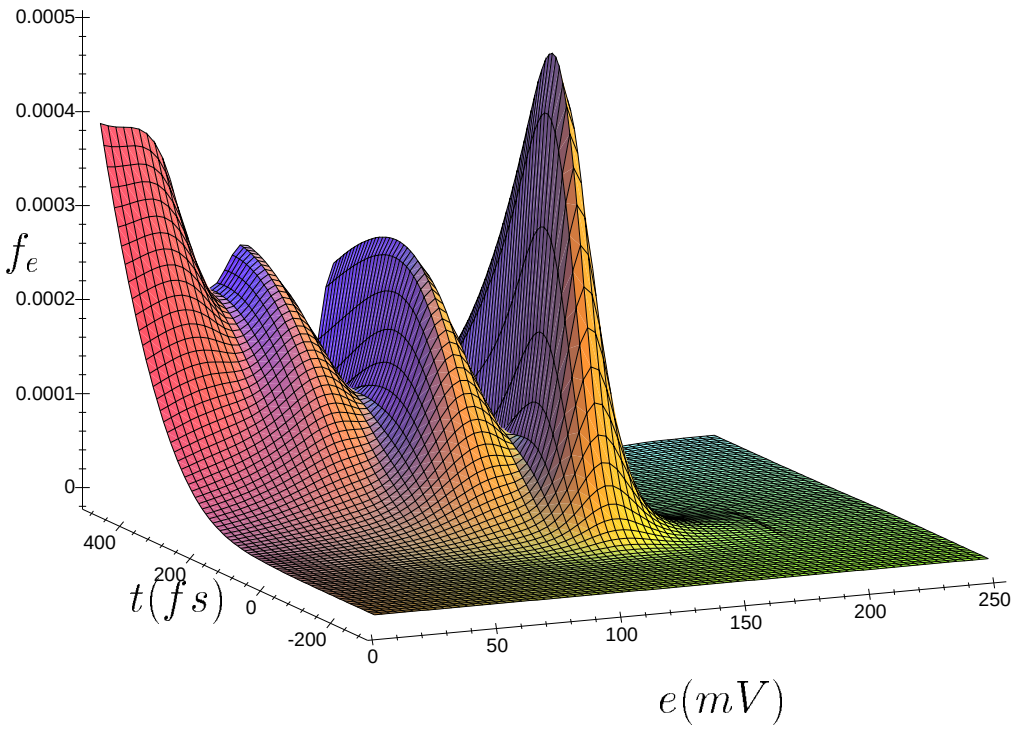


Lichtpulsdauer: 10 -400 fs ($1\ \text{fs} = 10^{-15}\ \text{s}$)

Phonen-Kaskaden:



Theoretisch berechnete Elektronenverteilung:

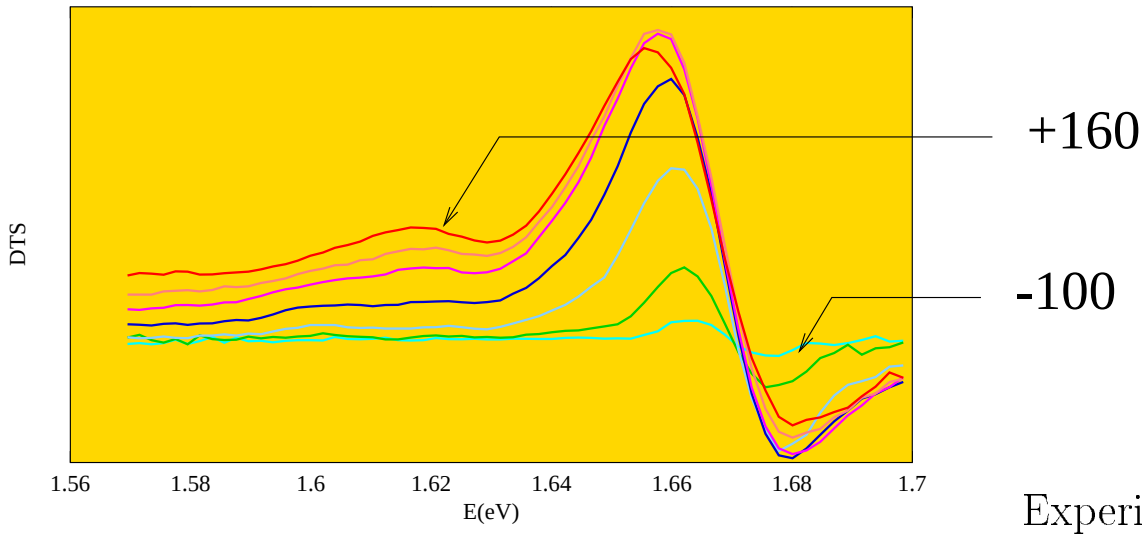


Differentielle Transmissionsspektrum (experimentell und theoretisch)

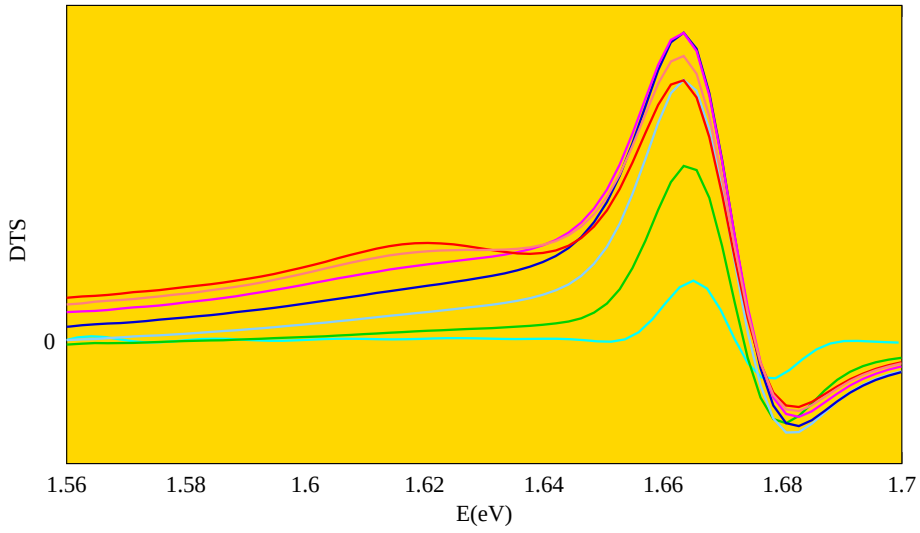
C.Fürst, A. Leitenstorfer, A. Lauberau, und R. Zimmermann, Phys. Rev. Lett. **78**, 3733 (1997)

A. Schmenkel, L. Bányai, und H. Haug, J. Lumin. **76-77**, 134 (1998)

(Verzögerungszeiten: -100, -40, 0, 40, 80, 120, 160 fs)



Experiment



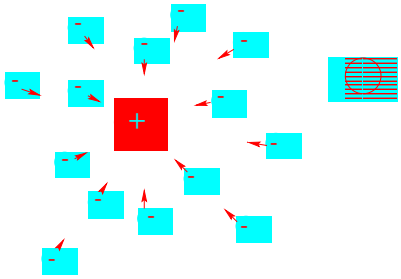
Quantenkinetik

Quantenkinetik mit Coulomb-Streuung

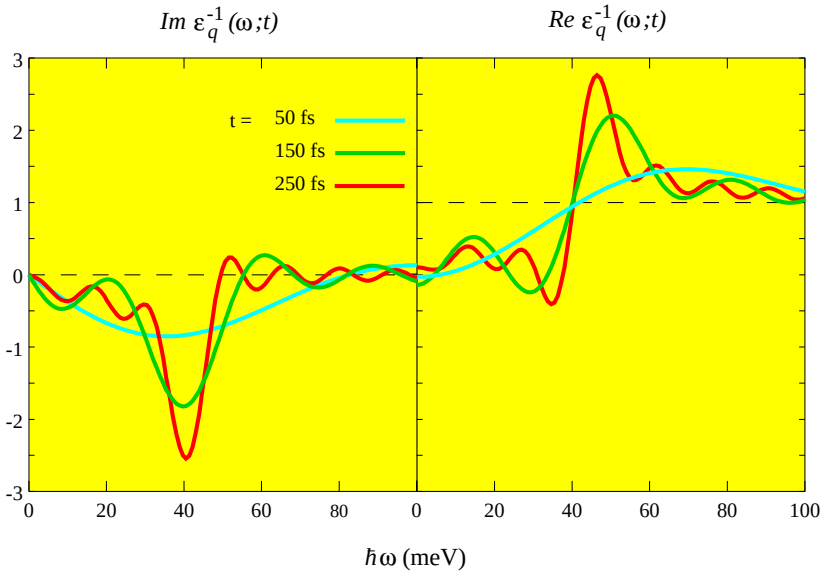
Aufbau der Abschirmung

Das Coulomb Potential wird in Anwesenheit der Ladungsträger abgeschirmt:

$$V(q) \rightarrow \frac{V(q)}{\epsilon(\omega,q)} \qquad \epsilon(\omega, q) \text{ - Dielektrische Funktion}$$



$$\epsilon(\omega, q, t)$$



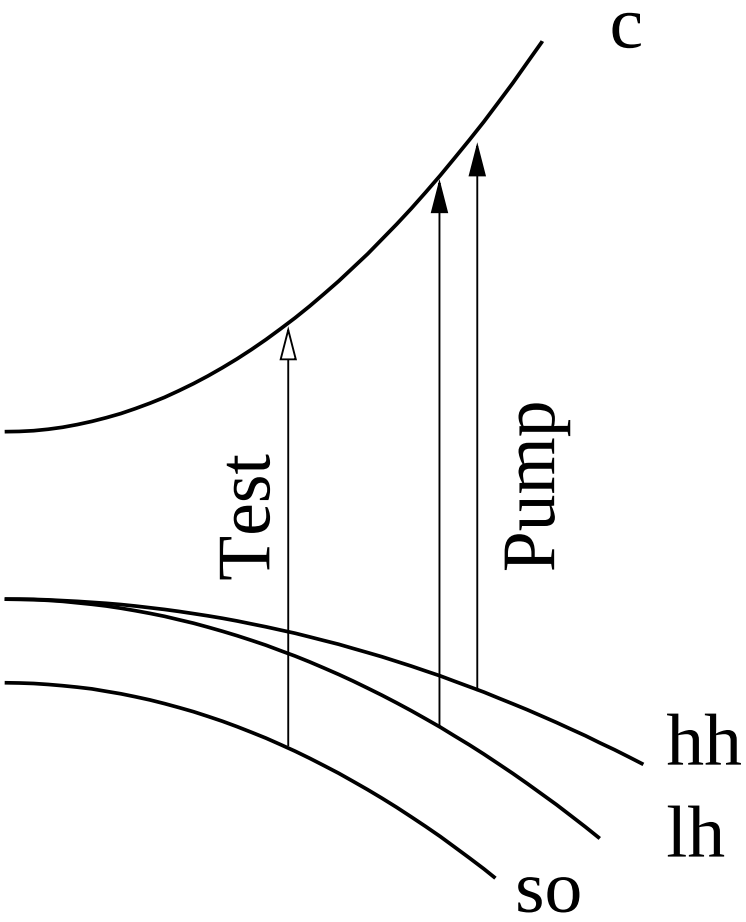
15 fs Puls, $\quad qa_0 = 1 \quad \hbar\omega_{Plasma} = 31meV \quad T_{Plasma} = 200fs$

Die Abschirmung ist träge, erst einige Zeit nach dem Puls voll Aufgebaut!

$$\delta t \approx \frac{2\pi}{\omega_{pl}}$$

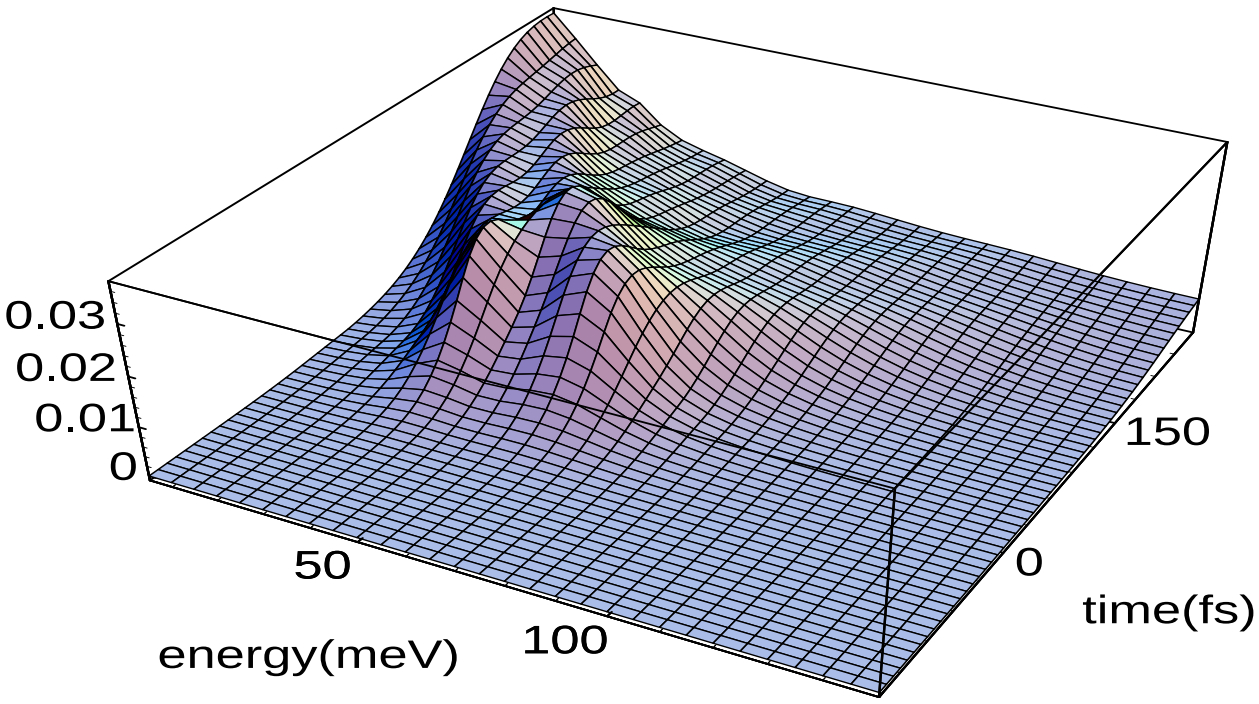
Für kurze Zeitintervalle: Nacktes Coulomb-Potential.

Ohne Quantenkinetik ist die Theorie überhaupt nicht möglich!



DTS-Experiment kann durch Quantenkinetik mit *nackten* Coulomb-Potential gut erklärt werden. (Camescasse, Alexandrou, Hulin, Bányai, Tran Thoai, Haug, Phys. Rev. Lett. **77**, 5429 (96))

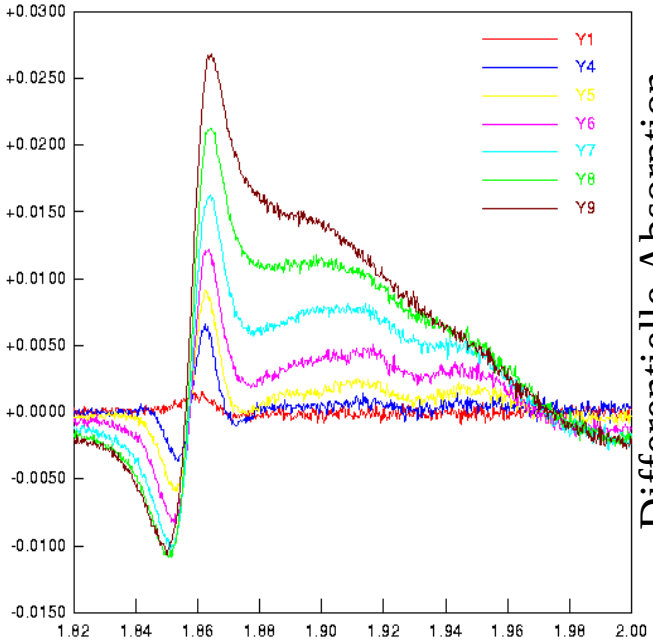
Berechnete Elektronen-Verteilung in Leitungsband



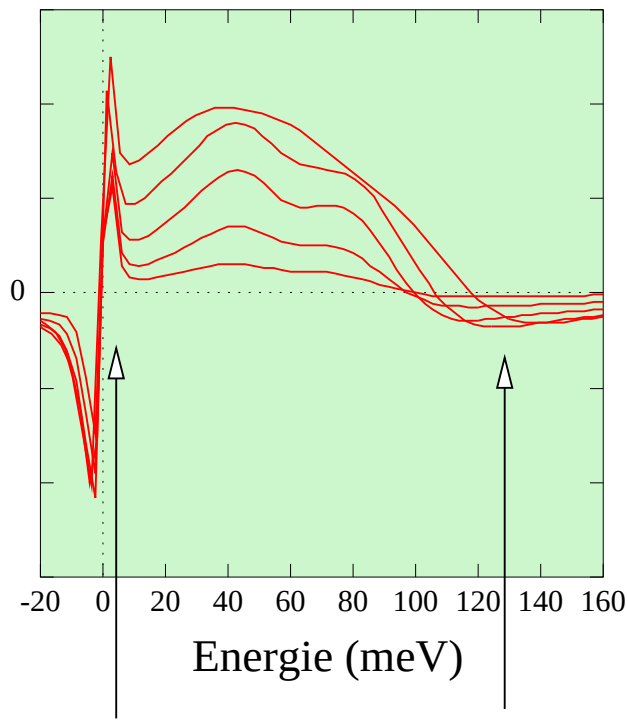
Zwei Maxima durch Pumpen aus schwerem und leichtem Lochband

Teststrahl-Spektren (*Verzögerungen: -80, -40, 0, 40, 80 fs*)

Experiment



Theorie

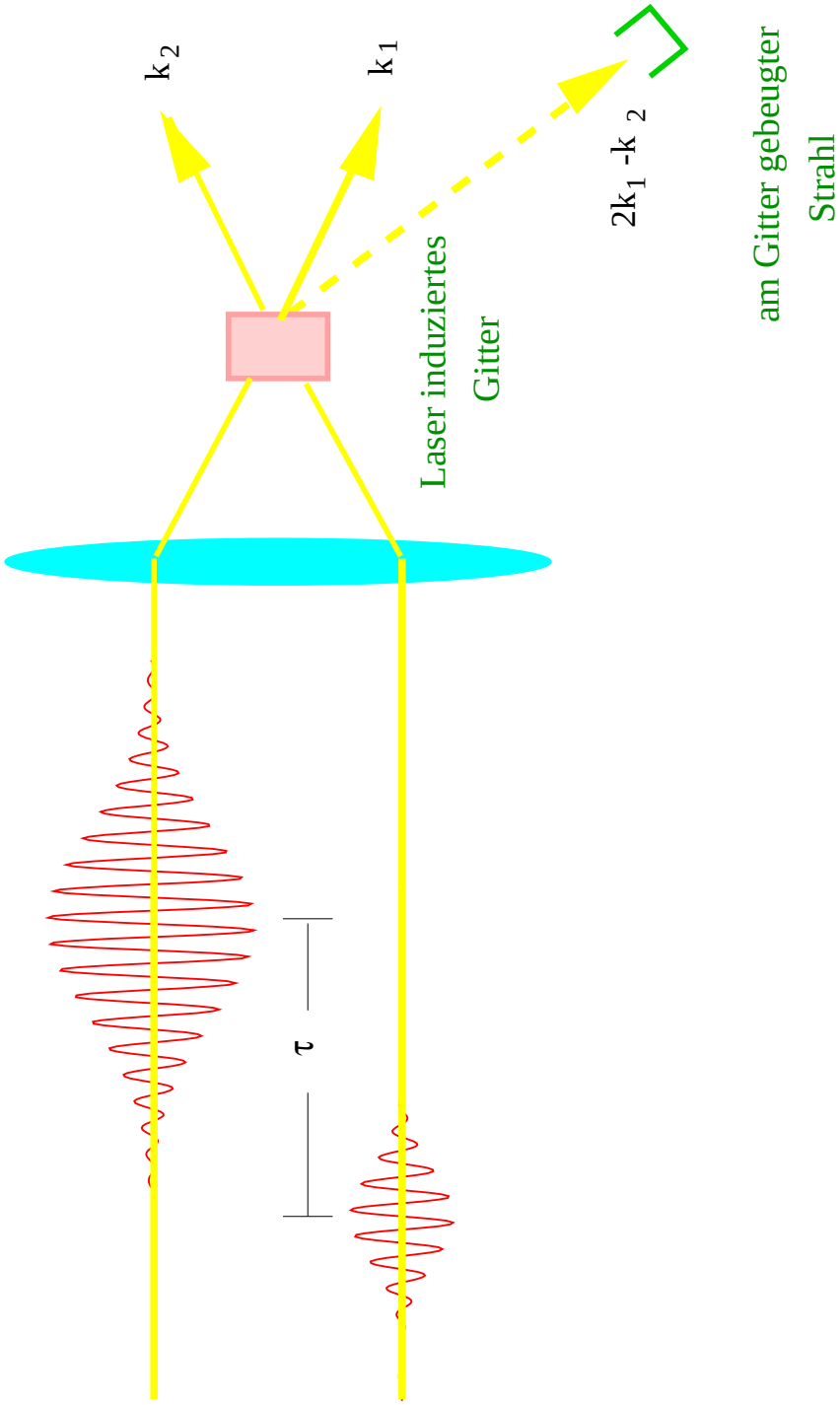


Verschobenes Exziton

Exzitonische Verstärkung

Spektren beeinflußt durch unvollständige Fourier-Transform.
Verteilung nicht direkt ablesbar!

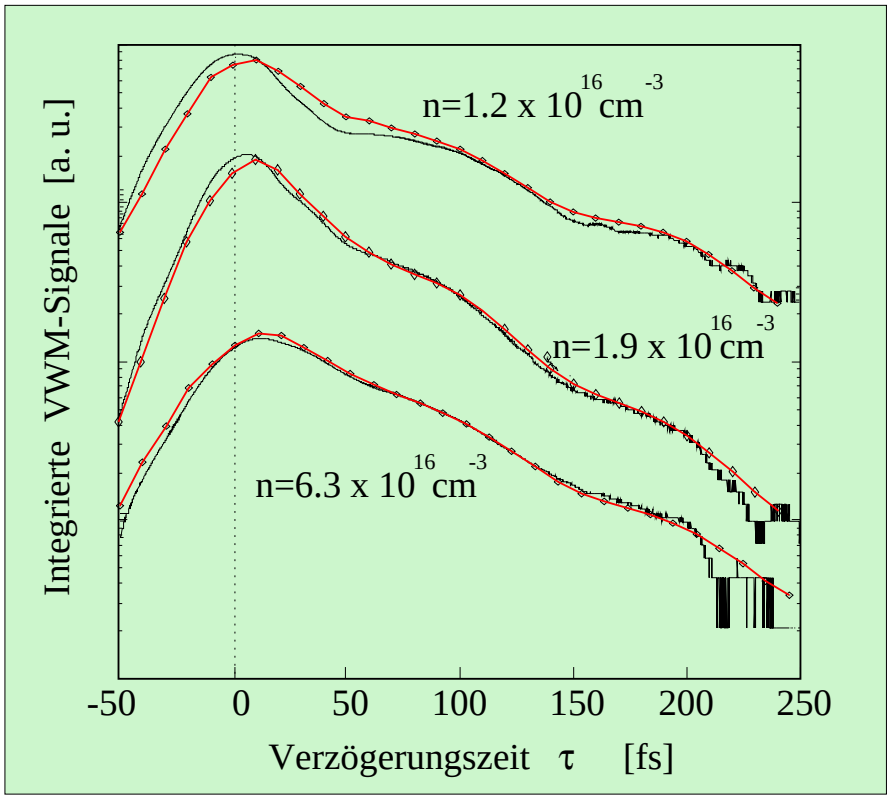
Femtosekunden-Vierwellenmischen (FWM)



Quantenkinetik mit LO-Phononenstreuung

FWM mit 15 fs Pulsen in GaAs von Wegener et al. zeigen vorhergesagte Oszillationen.

(L. Bányai, D. B. Tran Thoai, E. Reitsamer, H. Haug, D. Steinbach, M. U. Wehner, and M. Wegener, Phys. Rev. Lett. 75, 11 (1995))



Theorie

Experiment

Oszillationen im Vierwellenmisch-Signal nur durch Quantenkinetik erklärbar.

Oszillation: Kohärenter Interferenzeffekt

Zerfall: Dissipation

Zusammenfassung

- Offene klassische und quantummechanische Systeme werden durch Bewegungsgleichungen mit Gedächtnis beschrieben .
- Diese Gleichungen beschreiben den Übergang vom kohärenten mechanischen zu den inkohärenten dissipativen Verhalten
- In der zeitaufgelöster Ultrakurzzeitspektroskopie der Halbleiter kann man die Folgen dieser Verhaltensweise beobachten und analysieren.