

# **Licht-Materie-Wechselwirkung in Halbleiter-Nanostrukturen zur Erzeugung nichtklassischen Lichts und stimulierter Emission**

**Dissertation**  
zur Erlangung des akademischen Grades  
Doktor der Naturwissenschaften  
(Dr. rer. nat.)  
am Fachbereich Physik und Elektrotechnik  
der Universität Bremen

vorgelegt von  
Dipl. Phys.  
Matthias Florian

Bremen, 17. September 2014

1. Gutachter: Prof. Dr. Frank Jahnke  
2. Gutachter: Prof. Dr. Tim Wehling

Eingereicht am: 17.09.2014  
Tag des Promotionskolloquiums: 17.11.2014

*“Wissenschaftliche Forschung läuft immer darauf hinaus, dass es plötzlich mehrere Probleme gibt, wo es früher ein einziges gegeben hat.”*

— Norman Mailer



## Abstract

The framework of quantum optics was developed side by side with groundbreaking experiments involving lasers and atoms as active medium. The amount of control one nowadays has on the design of semiconductor nanostructures is constantly leading to new progress in this field, and we can use quantum dots (QDs) that possess atom-like discrete states as emitters instead. With a single QD in a high-quality cavity with three-dimensional mode confinement, the ultimate limit of miniaturization is reached, where one electronic transition interacts with a single mode of the electromagnetic field. The application potential of this system lies in efficient light sources, new devices for quantum information technologies, as well as in highly tunable platforms to perform fundamental studies in the field of semiconductor quantum optics. We investigate the characteristics of microcavity lasers with single QD gain and discuss the possibility to realize stimulated emission in the strong-coupling regime. The impact of non-resonant background emitters present in experimental realizations is addressed, where off-resonant coupling between emitter resonances and the cavity mode is enabled via phonons or additional carriers in delocalized states. Furthermore, new schemes for electrically driven single-photon sources and the generation of polarization-entangled photons are proposed. Our theoretical analysis is based on microscopic theories going beyond simple atomic models. This allows us to investigate many-body effects and incorporates carrier-photon correlations, providing direct access to the statistical properties of the emission. The dynamical evolution of the system is described by means of density matrix approaches, or relies on cumulant expansion techniques where the first is numerically not possible. Multi-exciton effects of the quantum dot carriers play an important role, as well as the coupling to continuum states of the embedding material.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2. Licht-Materie-Wechselwirkung in Halbleiter-Nanostrukturen</b>	<b>7</b>
2.1. Einteilchenzustände . . . . .	7
2.2. Hamiltonoperator . . . . .	9
2.3. Multi-Exziton-Konfigurationen und Einteilchenbeschreibung . . . . .	16
2.4. Ladungsträger-Streuprozesse in Quantenpunkten . . . . .	18
2.4.1. System-Reservoir-Wechselwirkung . . . . .	22
2.4.2. Ladungsträger-Coulomb-Streuung . . . . .	23
2.4.3. Streuung der Ladungsträger mit LO-Phononen . . . . .	25
2.4.4. Ergebnisse . . . . .	30
<b>3. Theoretische Beschreibung des Einzel-Quantenpunkt-Lasers</b>	<b>35</b>
3.1. Theoretische Beschreibung eines Einzel-Quantenpunktes in einer Mikrokavität .	37
3.2. Charakteristische Größen . . . . .	39
3.3. Einzel-Quantenpunkt-Emission und Lasing . . . . .	41
3.3.1. Multi-Konfigurationsmodell . . . . .	42
3.3.2. Emissionscharakteristik im reduzierten Konfigurationsraum . . . . .	45
3.3.3. Mittlere Photonenzahl und spektrale Linienbreite . . . . .	49
3.3.4. Photonen-Statistik . . . . .	49
3.3.5. Spektren und Linienbreite . . . . .	52
3.4. Stimulierte Emission im Regime der starken Kopplung . . . . .	53
<b>4. Nichtresonante optische Emission von Quantenpunkten in eine Mikrokavitätsmode</b>	<b>57</b>
4.1. Phänomenologische Beschreibung des nichtresonanten Hintergrundes in Quantenpunkt-Mikrokavitätslasern . . . . .	59
4.2. Einfluss Phonon-assistierter nichtresonanter Kopplung auf die Emission von Quantenpunkt-Mikrokavitätslasern . . . . .	63
4.2.1. Quantenpunkte in Wechselwirkung mit einer Kavitätsmode . . . . .	64
4.2.2. Phonon-assistierte nichtresonante Kopplung . . . . .	67

4.2.3. Stimulierte Emission in Anwesenheit eines nichtresonanten Hintergrundes	73
4.3. Coulomb-assistierte nichtresonante Kopplung	78
4.3.1. Schrieffer-Wolff-Transformation	80
4.3.2. Streupotential-Methode	84
<b>5. Erzeugung nichtklassischen Lichtes mit Halbleiter-Quantenpunkten</b>	<b>91</b>
5.1. Erzeugung einzelner Photonen mit elektrisch betriebenen Quantenpunkten unter gepulster Anregung	93
5.1.1. Theoretisches Modell	94
5.1.2. Charakterisierung der Einzel-Photonen-Emission	95
5.1.3. Diskussion der Autokorrelationsfunktion	98
5.2. Vergleich mit Experimenten	101
5.3. Erzeugung polarisationsverschränkter Photonen durch direkte Zwei-Photonen-Emission des Quantenpunkt-Biexzitons	106
5.3.1. Theoretisches Modell	107
5.3.2. Ergebnisse	109
<b>6. Bewegungsgleichungsmethode zur Beschreibung von Korrelationseffekten in endlichen Quantenpunkt-Systemen</b>	<b>115</b>
6.1. Vielteilchenbeschreibung eingebetteter Quantenpunkt-Systeme	117
6.1.1. Korrelationsentwicklung für elektronische Freiheitsgrade	118
6.1.2. Vielteilchenbeschreibung für gemischte Erwartungswerte	121
6.2. Formulierung der Bewegungsgleichungen	123
6.2.1. Hamilton-Dynamik	125
6.2.2. System-Reservoir-Wechselwirkung	129
6.3. Photolumineszenz in den freien Raum	135
6.4. Numerische Ergebnisse für einen einzelnen Quantenpunkt in einer Mikrokavität	140
<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>145</b>
<b>Anhang</b>	<b>151</b>
<b>A. Hintergrundemission im Random-Injection-Modell</b>	<b>151</b>
<b>B. Kubo-Martin-Schwinger-Bedingung</b>	<b>153</b>
<b>C. Materialparameter für InGaAs Quantenpunkt-Systeme</b>	<b>155</b>
<b>D. Bewegungsgleichungen der FSH Methode</b>	<b>157</b>
D.1. Licht-Materie-Wechselwirkung	157
D.2. Coulomb-Wechselwirkung	159



---

D.3. System-Reservoir-Wechselwirkung . . . . .	161
D.3.1. Streuprozesse . . . . .	161
D.3.2. Pumpanregung . . . . .	162
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>165</b>
<b>Publikationsliste</b>	<b>191</b>

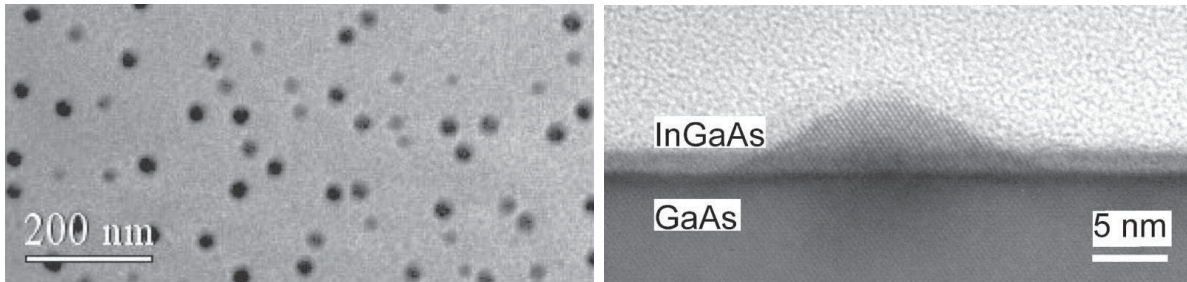


# Kapitel 1

## Einleitung

Fortschritte in der Herstellung und Nanostrukturierung von Halbleitern haben es ermöglicht, niederdimensionale Systeme zu erzeugen. Halbleiter-Quantenpunkte sind nulldimensionale Strukturen mit einer Ausdehnung im Nanometerbereich, bestehend aus einer inselartigen Ansammlung von mehreren tausend Atomen, siehe Abb. 1.1. Durch die Einbettung, z.B. in ein Halbleitermaterial mit größerer Bandlücke, wird das periodische Potential des Kristalls infolge des Bandversatzes vom Potential der Heterostruktur überlagert; dies ermöglicht den Einschluss von Ladungsträgern in allen drei Raumrichtungen. Typisch hierfür ist ein diskretes Energiespektrum im Unterschied zur quasi-kontinuierlichen Bandstruktur des Volumenmaterials. Die damit verbundene  $\delta$ -artige Zustandsdichte ähnelt der Situation in atomaren Systemen, weshalb Quantenpunkte in der Literatur auch als „künstliche Atome“ bezeichnet werden. Der Vorteil von Quantenpunkten liegt in der Abhängigkeit des Einschlusspotentials von der Größe, Geometrie und Materialzusammensetzung, wodurch es möglich ist die Quantenpunkt-Eigenschaften durch geeignete Wahl der Wachstumsparameter zu konfektionieren [73, 124, 261]. Auf diese Weise lässt sich z.B. die Emissionswellenlänge über einen großen Bereich einstellen, wie aus dem einfachen Modell eines Teilchens im Potentialtopf ersichtlich ist. Zudem sind mit der diskreten Natur der Einteilchenzustände ein hoher optischer Gewinn und eine geringe Temperaturabhängigkeit assoziiert [5, 6, 53], was Quantenpunkte in Kombination mit dem hohen Maß an Integrierbarkeit zu einem herausragenden aktiven Material für Anwendungen in optoelektronischen Bauelementen macht [125, 181, 182, 291]. Hierbei spielt das InGaAs/GaAs Materialsystem mit einer direkten Bandlücke im infraroten und roten Spektralbereich eine wichtige Rolle. Die langjährige Erfahrung mit diesen Zinkblendestrukturen ermöglicht es, Quantenpunkte mit sehr hoher optischer Qualität zu erzeugen, welche sich daher insbesondere für diese Arbeit eignen.

Eine gängige Methode, Quantenpunkte herzustellen, ist das selbstorganisierte Wachstum im Stranski-Krastanow-Modus [124, 261, 268]: Mit Hilfe der Molekularstrahlepitaxie (MBE) oder

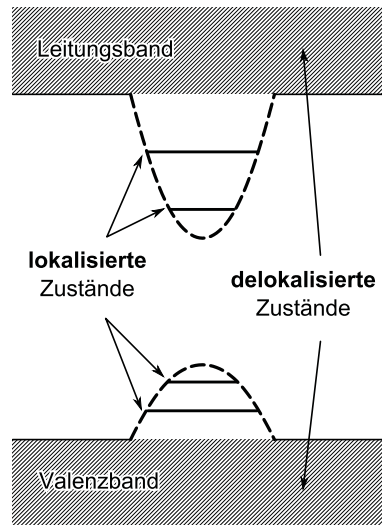


**Abbildung 1.1.:** Transmissionselektronenmikroskopie-Aufnahme selbstorganisierter InGaAs Quantenpunkte. **Links:** Ensemble von zufällig verteilten Quantenpunkten in der Draufsicht. **Rechts:** Querschnitt eines einzelnen linsenförmigen Quantenpunkts mit Benetzungsschicht auf einem GaAs Substrat. Die Abbildungen sind Ref. [4] entnommen. Copyright (2002) by the American Physical Society.

Metallorganischer Gasphasenepitaxie (MOVPE) wird auf einem Substrat ein anderes Material kleinerer Bandlücke aufgebracht. Bei geringer Gitterfehlانpassung wächst dieses zunächst homogen und übernimmt die Gitterkonstante des Substrats, wodurch es zwischen den Materialien zu Verspannungen kommt. Ab einer kritischen Schichtdicke werden diese durch Inselbildung zugunsten einer höheren Oberflächenenergie abgebaut. Typisch für diesen Wachstumsmodus ist eine dünne, remanente Benetzungsschicht, auf der die Inseln, welche die eigentlichen Quantenpunkte bilden, zufällig verteilt sind, wie in Abb. 1.1 zu sehen ist. Abschließend wird die Struktur mit dem Material des Substrates überwachsen.

Das zugehörige Energiespektrum der in dieser Arbeit untersuchten Quantenpunkte ist in Abb. 1.2 gezeigt: Es weist lokalisierte Zustände durch den dreidimensionalen Einschluss der Ladungsträger im Quantenpunkt auf, welche sich einem Quasi-Kontinuum delokalisierte Zustände, entsprechend der zweidimensionalen Bewegung der Ladungsträger in der Benetzungsschicht, anschließen. [125, 270]. Wir betrachten das energetisch niedrigste Leitungsband sowie das höchste Valenzband in der Nähe des  $\Gamma$ -Punktes der Brillouin-Zone von InGaAs, welche den Hauptbeitrag zur optischen Absorption liefern. Alle anderen Bänder sind spektral wohlsepariert und Bandmischungseffekte spielen in diesem Materialsystem eine untergeordnete Rolle [86, 233, 277, 307].

Die Untersuchung der Licht-Materie-Wechselwirkung von Quantenpunkten in optischen Mikrokavitäten mit einem dreidimensionalen Einschluss der Photonen ist aktuell von großem Interesse. Diese Systeme bieten einen Zugang zu quantenoptischen Effekten in einer Halbleiterumgebung und potentiellen Anwendungen in Quanteninformationstechnologien sowie neuen Licht-emittierenden Bauteilen. Für individuelle Quantenpunkte in optischen Mikrokavitäten wurde die deterministische Emission von einzelnen [183, 211] und verschränkten [185, 193, 230] Photonen demonstriert. Stimulierte Emission ist für eine kleine Anzahl von Quantenpunkt-Emittern untersucht worden [112, 223, 269, 280, 294] und aktuell wurde Lasing in einer Mi-



**Abbildung 1.2.:** Schematische Darstellung der energetischen Struktur von selbstorganisierten Quantenpunkten. Infolge des dreidimensionalen Einschlusses existieren lokalisierte Quantenpunkt-Zustände für Elektronen im Leitungsband (Valenzband), welche sich energetisch unterhalb (oberhalb) eines quasikontinuierlichen Spektrums delocalisierter Zustände befinden. Diese entstehen durch die freie Bewegung der Ladungsträger in der zweidimensionalen Benetzungsschicht. Gestrichelt dargestellt ist das effektive Einschlusspotential des Quantenpunktes in Wachstumsrichtung, relativ zur Bandkante der Benetzungsschicht.

krokavität beobachtet, wo der Hauptbeitrag zur Emission von einem einzelnen Quantenpunkt stammt [201, 202, 224, 300]. Charakteristisch für diese Systeme ist ein stark reduzierter oder sogar verschwindender Sprung beim Übergang von thermischer zu kohärenter Emission, wodurch die Definition der Laserschwelle hinterfragt werden muss. Hierbei können Einzel-Photonen-Emission und stimulierte Emission mit zunehmender Anregung aufeinander folgen, was durch eine entsprechende Änderung in der Photonenstatistik reflektiert wird [178, 201]. Experimentell stellt die Realisierung stimulierter Emission mit einem einzelnen Quantenpunkt eine Herausforderung dar. Um eine ausreichende Emission zu ermöglichen, wird eine starke Licht-Materie-Kopplung benötigt, was neben einer großen Oszillatorstärke einen perfekten räumlichen und spektralen Überlapp mit der Kavitätsmode erfordert. Gleichzeitig müssen verstimmte Hintergrundemitter ausgeschlossen werden, die sich jedoch beim Wachstumsprozess kaum vermeiden lassen. Aktuell wurden daher mögliche Mechanismen einer nichtresonanten Emission in die Kavitätsmode intensiv diskutiert, wobei eine effiziente Kopplung selbst für Verstimmungen von mehreren 10 meV demonstriert werden konnte [133, 153, 296]. In diesem Zusammenhang stellt sich jedoch die Frage nach der Interpretation aktueller Experimente und den Eigenschaften eines Einzel-Quantenpunkt-Lasers.

Daneben spielt für die effiziente Erzeugung nichtklassischer Licht-Zustände sowie stimulierter Emission sowohl die Anregung, als auch die Ladungsträgerdynamik des Quantenpunkt-Emitters eine zentrale Rolle. Die Besetzung der Einteilchenzustände mit Ladungsträgern führt

unter dem Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung zur Bildung einer Vielzahl möglicher Anregungskonfigurationen (Multi-Exziton-Zustände). Die Ladungsträger werden dabei entweder durch optisches Pumpen oder durch elektrische Anregung in höherenergetischen Zuständen erzeugt und müssen anschließend in die Quantenpunkt-Zustände relaxieren. Die Wechselwirkung der Quantenpunkt-Ladungsträger mit der Umgebung ermöglicht hierbei schnelle Einfang- und Relaxationsprozesse. Gleichzeitig gehen schnelle Streuprozesse mit einer starken Dephasierung optischer Polarisierungen einher, was sich im Allgemeinen negativ auf die Kohärenzeigenschaften der Emission auswirkt. Die Wechselwirkung der Quantenpunkt-Anregungen mit den Kontinuumszuständen des Umgebungsmaterials sowie mit den Gitterschwingungen stellt ein komplexes Vielteilchenproblem dar und unterscheidet Quantenpunkte fundamental von atomaren Systemen.

Für eine theoretischen Beschreibung können verschiedene Methoden verwendet werden. Ist der Hilbertraum klein genug, so kann die von-Neumann-Lindblad-Gleichung für die Vielteilchendichtematrix des wechselwirkenden Systems aus Quantenpunkt-Anregungen und Photonen der Kavitätsmode numerisch exakt gelöst werden. Aktuell ist dies jedoch nur für einzelne oder wenige Quantenpunkte mit einer geringen Anzahl lokalisierter Zustände möglich. Bei der Modellierung eines Quantenpunkt-Ensembles ist man daher auf approximative Verfahren angewiesen. In der Vergangenheit wurde die Methode der Nichtgleichgewichts-Greenschen-Funktionen erfolgreich verwendet [15, 29, 164, 238, 249]. Diese erlaubt eine systematische Beschreibung von Vielteilcheneffekten in Form einer Selbstenergie und führt auf ein effektives Einteilchenproblem. Um Photonenkorrelationen zu untersuchen, werden mindestens Zweiteilchen-Greensche-Funktionen benötigt, deren Berechnung eine große Herausforderung darstellt. Allerdings ermöglicht dieser Formalismus die zu den Lindblad-Termen gehörigen Raten, die typischerweise in Born-Markov-Näherung formuliert werden [38, 46], nicht-störungstheoretisch zu berechnen und Quasiteilchen-Renormierungen selbstkonsistent zu beschreiben. Alternativ bieten Bewegungsgleichungsmethoden in Kombination mit der Clusterentwicklung [82, 239] einen direkten Zugang zu Korrelationsfunktionen höherer Ordnung.

## Gliederung der Arbeit

Nach dieser Einleitung werden in Kapitel 2 die Einteilchen-Eigenschaften der betrachteten InGaAs Quantenpunkte sowie die relevanten Vielteilchenwechselwirkungen diskutiert. Anschließend erfolgt eine Beschreibung der Ladungsträgerdynamik in Quantenpunkten im Konfigurationsbild unter Berücksichtigung von Quasiteilchen-Renormierungen. Inhalt von Kapitel 3 ist die mikroskopische Beschreibung des Einzel-Quantenpunkt-Lasers. Die statistischen und spektralen Eigenschaften des quantisierten Lichtfeldes und der Einfluss verschiedener Anregungskonfigurationen auf die Emissionscharakteristik werden untersucht. Diskutiert werden zudem mögliche Situationen, in denen starke Kopplung und Lasing realisiert werden können.

---

In Kapitel 4 wird das Modell des Einzel-Quantenpunkt-Lasers um Beiträge nichtresonanter Hintergrundemitter erweitert und die Emissionseigenschaften werden studiert. Neben der Phonon-assistierten Rekombination werden Auger-artige Streuprozesse als mögliche nichtresonante Kopplungsmechanismen diskutiert. Gegenstand von Kapitel 5 ist die Erzeugung nichtklassischen Lichtes in Form einzelner und verschränkter Photonen mithilfe einzelner Quantenpunkte. Dem Kapitel 6 gewidmet ist die Entwicklung einer Bewegungsgleichungsmethode zur Beschreibung eines Quantenpunkt-Ensembles unter dem Einfluss von Korrelationen. Als Anwendung wird die Photolumineszenz von Quantenpunkten untersucht. Für den Grenzfall eines einzelnen Quantenpunktes in einer Mikrokavität erfolgt ein Vergleich mit den Ergebnissen der von-Neumann-Lindblad-Gleichung, um die Praktikabilität der vorgeschlagenen Methode zu verifizieren. Eine ausführliche Einleitung wird jeweils am Anfang jedes Kapitels gegeben.





## Kapitel 2

# Licht-Materie-Wechselwirkung in Halbleiter-Nanostrukturen

### 2.1. Einteilchenzustände

Ausgangspunkt für die Beschreibung der optischen Eigenschaften des Quantenpunktes und der Vielteilchenwechselwirkung der Ladungsträger ist die Lösung des Einteilchenproblems in Abwesenheit von Anregungen. Die Eigenenergien und Wellenfunktionen gehen in die Berechnung der Übergangsenergien und Kopplungsstärken ein und bestimmen die Eigenschaften optischer Interband-Übergänge, sowie der Intraband-Streuprozesse durch Coulomb- und Phonon-Wechselwirkung, wie im anschließenden Abschnitt diskutiert wird. Ist die Geometrie, Zusammensetzung und Verspannungssituation der Quantenpunktprobe bekannt, so kann das elektronische Problem durch Lösung der Einteilchen-Schrödingergleichung ( $\hbar = 1$ )

$$\left[ -\frac{1}{2m}\Delta + U(\mathbf{r}) \right] \psi_i(\mathbf{r}) = \varepsilon_i \psi_i(\mathbf{r}) \quad (2.1)$$

für ein vorgegebenes Einteilchenpotential  $U(\mathbf{r})$  gelöst werden, worin der Index  $\nu$  einen Satz von Quantenzahlen repräsentiert und den Spin implizit enthält. Dies ist im Allgemeinen mitnichten eine einfache Aufgabe, weshalb Methoden unterschiedlicher Genauigkeit entwickelt wurden (vgl. z.B. [190, 243]): Aktuelle ab-initio-Verfahren sind in der Lage experimentelle Bandstrukturmessungen für Volumenkristalle unterschiedlicher Materialien gut zu reproduzieren. Durch die gebrochene Translationsinvarianz in den Nanostrukturen wächst der Rechenaufwand allerdings erheblich und beschränkt die Praktikabilität von Dichte-Funktional-Methoden auf kleine Systeme [158, 219, 289]. Routinemäßig werden Kontinuumsansätze wie  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  [132, 235, 266] und Effektivmassenmodelle [40, 41, 101, 253, 297] eingesetzt. Alternativ ermöglichen die rechenintensiveren Tight-Binding- [12, 94, 128, 242, 254] und Pseudopotential-Methoden [26, 290]

Einteilchenenergien und Wellenfunktionen mit atomarer Auflösung zu bestimmen.

Im InGaAs/GaAs Materialsystem findet man häufig linsenförmige Quantenpunkte mit Durchmessern von 10 – 30 nm und einer Höhe von wenig als 10 nm [65, 124, 159]. Für solche Systeme konnte gezeigt werden, dass im Vergleich zu den Resultaten von  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ - und Tight-Binding-Modellen die Effektivmassen-Näherung eine gute Wahl darstellt [253]: Hierbei wird die elektronische Dispersion für jedes Band  $\lambda$  um den  $\Gamma$ -Punkt parabolisch genähert, sodass sich im Volumenmaterial die Elektronen quasi-frei und mit einer effektiven Masse  $m_\lambda$  durch den Kristall bewegen [58]. Die Einteilchenzustände erfüllen im translationsinvarianten Kristallgitter das Blochtheorem [106] und lassen sich als Produkt aus ebenen Wellen  $e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$  und gitterperiodischer Blochfunktion  $u_{\mathbf{k}\lambda}(\mathbf{r})$  schreiben. Für den relevanten Bereich in der Nähe der Bandkante ist  $\mathbf{k} \approx 0$ , sodass sich die ebenen Wellen als Einhüllende der Wellenfunktion interpretieren lassen. Die Einbettung von Quantenpunkt und Benetzungsschicht in das umgebende Substrat- und Barrierenmaterial, erzeugt ein externes Potential  $U_{\text{conf}}^\lambda(\mathbf{r})$ , welches langsam über der Einheitszelle des Kristalls variiert und die Translationsinvarianz bricht. In der Einhüllenden-Näherung [105] werden daher die ebenen Wellen durch eine über der Einheitszelle langsam veränderliche Funktion  $\phi_i^\lambda(\mathbf{r})$  ersetzt, welche die Einteilchen-Schrödingergleichung

$$\left[ -\frac{1}{2m_\lambda} \Delta + U_{\text{conf}}^\lambda(\mathbf{r}) \right] \phi_i^\lambda(\mathbf{r}) = \varepsilon_i^\lambda \phi_i^\lambda(\mathbf{r}) \quad (2.2)$$

erfüllt und die Nanostrukturierung nur noch über das externe Potential enthält [53].

Bedingt durch den starken Einschluss des Quantenpunktes und der Benetzungsschicht in Wachstumsrichtung  $z$ , im Vergleich zur Ebene  $\mathbf{r}_\perp$  senkrecht dazu separieren die Einhüllendenfunktionen in guter Näherung:

$$\phi_i^\lambda(\mathbf{r}) = \phi_{n\nu}^\lambda(z, \mathbf{r}_\perp) \approx \xi_n^\lambda(z) \varphi_\nu^\lambda(\mathbf{r}_\perp). \quad (2.3)$$

In Wachstumsrichtung entspricht das Problem dem eines eindimensionalen Potentialtopfes, wobei der energetische Abstand zwischen den Subbändern  $n$  groß ( $\sim 1$  eV) im Vergleich zum optisch relevanten Energiebereich ( $\sim 50$  meV) ist, sodass wir uns auf das energetisch niedrigste Band beschränken können. Für linsenförmige Quantenpunkte lassen sich die Eigenzustände senkrecht zur Wachstumsrichtung durch die eines zweidimensionalen harmonischen Oszillators beschreiben [297]. Zudem erlaubt es die zylindrische Symmetrie der Struktur die Einteilchenzustände nach Drehimpulsquantenzahlen zu klassifizieren. In dieser Arbeit betrachten wir zwei gebundene Zustände für Elektronen und Löcher: Berücksichtigt man den Spin, so ist der energetisch niedrigste lokalisierte  $s$ -Zustand zweifach und der angeregte  $p$ -Zustand vierfach entartet. Tatsächlich hängt die Anzahl der gebundenen Einteilchenzustände von der Form und Tiefe des Einschlusspotentials, sowie vom Abstand zur Bandkante der Benetzungsschicht ab. Für eine konkrete experimentelle Situation kann es daher notwendig sein eine größere Anzahl lokalisierter Zustände zu berücksichtigen, um eine adäquate Beschreibung zu erreichen [18].

Des Weiteren nehmen wir zumeist identische Einhüllenden für Elektronen im Valenz- und Leitungsband an, was für das hier verwendete harmonische Potential näherungsweise erfüllt ist [14, 297].

Sieht man zunächst von den Quantenpunkt ab, so kann die zweidimensionale ebene Bewegung der Ladungsträger in der Benetzungsschicht durch eine ebene Welle dargestellt werden, da der zugehörige Impuls  $\mathbf{k}_\perp$  eine gute Quantenzahl darstellt. Diese Eigenzustände bilden allerdings für das gekoppelte System aus Quantenpunkt und Benetzungsschicht zusammen mit den diskreten Zuständen keine orthogonale Basis, da sie keine Lösung eines gemeinsamen Einteilchenproblems sind. Als Folge würden Coulomb-Matrixelemente zwischen Quantenpunkt und Benetzungsschicht erheblich überschätzt werden (s. Abschnitt 4.3). Aus diesem Grund werden die ebenen Wellen auf die Quantenpunkt-Zustände orthogonalisiert und die so erhaltene delokalisierten Zustände üblicherweise als orthogonalisierte ebene Wellen (OPW) bezeichnet. Für eine konkrete Umsetzung unter Verwendung des Gram-Schmidt-Verfahrens, siehe z.B. [31, 200, 237].

## 2.2. Hamiltonoperator

Die Untersuchung des wechselwirkenden Systems erfordert die Formulierung des Hamiltonoperators, welcher Beiträge der kinetischen Energie der Ladungsträger, des quantisierten Photonen- und Phononenfeldes sowie der Vielteilchenwechselwirkung enthält:

$$H = H_e^0 + H_{\text{pt}}^0 + H_{\text{pn}}^0 + H_{e-e} + H_{e-\text{pn}} + H_{e-\text{pt}}. \quad (2.4)$$

Die wesentlichen Schritte hierfür werden im Folgenden dargestellt und relevante Näherungen diskutiert. Für weitere Details verweisen wir auf Ref. [51, 105, 139, 233].

Wir beginnen mit der mikroskopischen Beschreibung des Systems wechselwirkender Ladungsträger in zweiter Quantisierung. Dies enthält neben der quasi-freien Bewegung der Ladungsträger im periodischen Potential des Gitters auch das Einschlusspotential  $U(\mathbf{r})$  der Nanostruktur

$$H_e^0 = \int d^3\mathbf{r} \Psi^\dagger(\mathbf{r}) \left[ -\frac{1}{2m} \Delta + U(\mathbf{r}) \right] \Psi(\mathbf{r}) \quad (2.5)$$

sowie die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Ladungsträgern

$$H_{e-e} = \int d^3\mathbf{r} \int d^3\mathbf{r}' \Psi^\dagger(\mathbf{r}) \Psi^\dagger(\mathbf{r}') V(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \Psi(\mathbf{r}') \Psi(\mathbf{r}). \quad (2.6)$$

Hierin ist  $V(\mathbf{r} - \mathbf{r}') = e^2/4\pi\epsilon_0\epsilon_b|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$  das Coulomb-Potential und  $\epsilon_b$  die statische dielektrische Funktion des Hintergrundes. Die Feldoperatoren  $\Psi(\mathbf{r})$  werden nach Eigenfunktionen des

Einteilchenoperators (2.1) entwickelt

$$\Psi(\mathbf{r}) = \sum_{\lambda,i} \phi_i^\lambda(\mathbf{r}) u_\lambda(\mathbf{r}) a_{\lambda,i}, \quad (2.7)$$

wobei der fermionische Operator  $a_{\lambda,i}$  ein Elektron im Band  $\lambda$  mit dem Einteilchenzustand  $|i\rangle$  und der zugehörigen Einhüllenden-Wellenfunktion  $\phi_i^\lambda(\mathbf{r})$  vernichtet. Die gitterperiodische Blochfunktion  $u_\lambda(\mathbf{r})$  beschreibt die atomare Struktur des Volumenkristalls. Der Diskussion des vorigen Abschnittes folgend, beschränken wir uns auf zwei Bänder und verwenden hierfür die Operatoren  $e_i$  ( $e_i^\dagger$ ) und  $h_i$  ( $h_i^\dagger$ ) für die Vernichtung (Erzeugung) eines Elektrons im Leitungsband ( $\lambda = c$ ) und eines fehlenden Elektrons im Valenzband ( $\lambda = v$ ), welches als Loch bezeichnet wird. Der Spin sei im Index  $i$  implizit enthalten und wird nur an den entscheidenden Stellen ausgeschrieben.

In dieser Basis ist der wechselwirkungsfreie Anteil  $H_e^0$  diagonal und enthält das Einteilchenspektrum für Elektronen ( $\varepsilon_i^e$ ) und Löcher ( $\varepsilon_i^h$ ) in den lokalisierten Quantenpunkt-Zuständen und den quasi-kontinuierlichen Zuständen der Benetzungsschicht:

$$H_e^0 = \sum_i \varepsilon_i^e e_i^\dagger e_i + \sum_i \varepsilon_i^h h_i^\dagger h_i. \quad (2.8)$$

Der Coulomb-Hamiltonoperator  $H_{e-e}$  beschreibt neben der elektrostatischen Abstoßung der Ladungsträger im gleichen Band auch eine attraktive Wechselwirkung zwischen Ladungsträgern in unterschiedlichen Bändern

$$\begin{aligned} H_{e-e} = & \frac{1}{2} \sum_{ijkl} V_{ijkl}^{ee} e_i^\dagger e_j^\dagger e_k e_l + \frac{1}{2} \sum_{ijkl} V_{ijkl}^{hh} h_i^\dagger h_j^\dagger h_k h_l \\ & - \sum_{ijkl} V_{ijkl}^{he} h_i^\dagger e_j^\dagger e_k h_l, \end{aligned} \quad (2.9)$$

welche Anlass zu gebunden Elektron-Loch-Paaren, den Exzitonen, gibt. Für die Berechnung der Coulomb-Matrixelemente  $V_{ijkl}^{\lambda\lambda'}$  werden die Einteilchen-Wellenfunktionen  $\psi_i^\lambda(\mathbf{r})$  benötigt. Als Konsequenz der Einhüllenden-Näherung vereinfacht sich die Berechnung der Matrixelemente insofern, als dass im Vergleich zum schnell oszillierenden Blochfaktor  $u_\lambda(\mathbf{r})$  die Einhüllenden-Wellenfunktion  $\phi_i^\lambda(\mathbf{r})$  nur langsam über der Einheitszelle variiert und beide Anteile separiert werden können. Mit der Orthonormalität der Blochfunktionen folgt somit:

$$V_{ijkl}^{\lambda\lambda'} = \frac{1}{2} \int d^3\mathbf{r} \int d^3\mathbf{r}' \phi_i^{\lambda*}(\mathbf{r}) \phi_j^{\lambda'*}(\mathbf{r}') V(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \phi_k^{\lambda'}(\mathbf{r}') \phi_l^\lambda(\mathbf{r}), \quad (2.10)$$

wobei nur noch die Einhüllenden-Wellenfunktionen in die Berechnung der Matrixelemente eingehen. Für weitere Details verweisen wir auf [10, 200]. An dieser Stelle sei jedoch darauf angemerkt, dass eine Erweiterung des Modells jenseits der Effektivmassen-Näherung möglich ist, siehe z.B. [13, 240].

Für die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Ladungsträgern des Quantenpunktes ist es häufig von Vorteil eine approximative Darstellung zu verwenden, die diagonal in Bezug auf die Besetzungszahlen  $n_i^\lambda = a_{\lambda,i}^\dagger a_{\lambda,i}$  ist, wobei  $i$  die Quantenpunkt-Einteilchenzustände indiziert. Für das Einschlusspotential typischer selbstorganisierter Quantenpunkte wurde in [10] gezeigt, dass der dominante Beitrag aus direkten und austauschartigen Termen besteht. Betrachten wir einen Quantenpunkt mit zwei gebundenen Zuständen für Elektronen und Löcher, so verknüpft, infolge der begrenzten Anzahl an Einteilchenzuständen und deren Symmetrie, das einzige nichtdiagonale Coulomb-Matrixelement Ladungsträger in der  $s$ - und  $p$ -Schale und hat einen Wert von wenigen meV. Dieses Matrixelement ist eine Größenordnung kleiner als der energetische Abstand zwischen den involvierten Zuständen (typischerweise mehrere 10 meV), sodass die Mischung der Zustände gefahrlos vernachlässigt werden kann. Als Resultat kann der Coulomb-Hamiltonoperator für die Quantenpunkt-Ladungsträger durch Besetzungszahloperatoren ausgedrückt werden:

$$\begin{aligned}
H_{e-e}^{\text{QD}} \approx & \sum_i \left( \varepsilon_i^e - \frac{1}{2} D_{ii}^{ee} \right) n_i^e + \sum_i \left( \varepsilon_i^h - \frac{1}{2} D_{ii}^{hh} \right) n_i^h \\
& + \frac{1}{2} \sum_{ij} \left( D_{ij}^{ee} n_i^e n_j^e + D_{ij}^{hh} n_i^h n_j^h - D_{ij}^{eh} n_i^e n_j^h - D_{ij}^{he} n_i^h n_j^e \right) \\
& - \frac{1}{2} \sum_{\substack{i \neq j \\ \sigma}} \left( X_{ij}^{ee} n_{i\sigma}^e n_{j\sigma}^e + X_{ij}^{hh} n_{i\sigma}^h n_{j\sigma}^h \right) .
\end{aligned} \tag{2.11}$$

In der obigen Notation wurde  $D_{ij}^{\lambda\lambda'} = V_{ijji}^{\lambda\lambda'}$  für die direkten (Hartree-) und  $X_{ij}^{\lambda\lambda'} = V_{ijij}^{\lambda\lambda'}$  für die Austausch-(Fock-)Beiträge verwendet. Zudem enthält  $n_i^\lambda = \sum_\sigma n_{i\sigma}^\lambda$  explizit eine Summe über Elektronen und Löcher beider Spinsubsysteme.

Unter der vereinfachenden Annahme, dass die Einhüllenden zwischen den Elektronen im Valenz- und Leitungsband gleich sind [107], hängen die Coulomb-Matrixelemente nicht mehr von den Bandindizes ab und die zweite Zeile in Gl. (2.11) kann zu  $D_{sp}(n_s^e - n_s^h)(n_p^e - n_p^h)$  zusammengefasst werden. Dies zeigt, dass ein Exziton (mit  $n_i^e = n_i^h$ ) nicht zur direkten Wechselwirkung beiträgt und daher nicht nur global, sondern auch lokal ladungsneutral ist. Die direkten Integrale tauchen zwar in der Exziton-Bindungsenergie (erste Zeile in Gl. (2.11)) auf, jedoch nicht in der Exziton-Exziton-Wechselwirkung. Diese wird durch die Austausch-Wechselwirkung in der dritten Zeile vermittelt.

Um das elektromagnetische Feld zu quantisieren, wird das Vektorpotential  $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$  nach Eigenmoden  $\mathbf{u}_\xi(\mathbf{r})$  des Systems ohne aktives Material, d.h. ohne Quantenpunkte und Benetzungsschicht, entwickelt (vgl. Ref. [139]):

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \sum_\xi A_\xi(t) \mathbf{u}_\xi(\mathbf{r}) . \tag{2.12}$$

Das Vektorpotential genügt in Coulomb-Eichung der quellenfreien Wellengleichung

$$\left[ \Delta - \frac{n^2(\mathbf{r})}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right] \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = 0 \quad (2.13)$$

mit der Vakuum-Lichtgeschwindigkeit  $c$ . Sie besitzt Lösungen der Form  $\mathbf{u}_\xi(\mathbf{r})e^{-i\omega_\xi t}$  mit der Frequenz  $\omega_\xi = c|\mathbf{q}|$ , wobei der Modenindex  $\xi$  neben dem Wellenvektor  $\mathbf{q}$  auch die Polarisation  $\mathbf{e}_\mathbf{q}$  enthält. Im freien Raum ( $n(\mathbf{r}) \equiv n$ ) sind die Eigenmoden ebene Wellen  $\mathbf{u}_\xi(\mathbf{r}) = \frac{\mathbf{e}_\mathbf{q}}{\sqrt{V}} e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}}$ , normiert auf das Volumen  $V$ . Bei Quantenpunkten in optischen Mikrokanalitäten besitzt der Brechungsindex, bedingt durch die dielektrischen Braggspiegelpaare der Resonatorstruktur, eine starke räumliche Abhängigkeit. Die Berechnung der Eigenmoden solcher Strukturen kann z.B. durch vektorielle Transfermatrixmethoden erfolgen [39, 126, 163]. Sind die Eigenmoden bekannt, so kann im Rahmen der kanonischen Feldquantisierung das Potential durch Operatoren  $b_\xi$  ( $b_\xi^\dagger$ ) ausgedrückt werden, welche ein Photon der Energie  $\omega_\xi$  in der Mode  $\xi$  vernichten (erzeugen) [56, 167, 172, 234]:

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \sum_\xi \frac{E_\xi}{\omega_\xi} \left[ b_\xi(t) + b_\xi^\dagger(t) \right] \mathbf{u}_\xi(\mathbf{r}). \quad (2.14)$$

Die Größe  $E_\xi = \sqrt{\omega_\xi/2\varepsilon_0}$  wird typischerweise als Amplitude des Vakuum-Feldes bezeichnet [56]. Die Gesamtenergie des freien elektromagnetischen Feldes,

$$H_{\text{pt}}^0 = \sum_\xi \omega_\xi \left( b_\xi^\dagger b_\xi + \frac{1}{2} \right), \quad (2.15)$$

setzt sich dann aus einer Summe von unabhängigen quantenmechanischen harmonischen Oszillatoren zu unterschiedlichen Eigenfrequenzen zusammen [180]. Die Wechselwirkung des quantisierten Lichtfeldes mit der Materie kann in Dipolnäherung durch den Hamiltonoperator

$$H_{\text{e-pt}} = -i \sum_{ij\xi} \left( g_{ij\xi} b_\xi c_i^\dagger h_j^\dagger - g_{ij\xi}^* b_\xi^\dagger h_j c_i \right) \quad (2.16)$$

ausgedrückt werden; dieser beschreibt Interbandübergänge zwischen den Einteilchenzuständen  $|i\rangle$  und  $|j\rangle$ , wobei ein Elektron-Loch-Paar unter Emission (Absorption) eines Photons der Energie  $\omega_\xi$  vernichtet (erzeugt) wird<sup>1</sup>. Nichtresonante Terme, die z.B. mit einer Rekombination unter Absorption eines Photons verbunden wären, sind in der Systemdynamik mit schnell oszillierenden Phasenfaktoren assoziiert und werden im Sinne der Rotating Wave Näherung vernachlässigt [247, 288]. Wichtig werden diese Terme erst, wenn z.B. die Wechselwirkungsstärke von der gleichen Größenordnung wie die Bandlücke ist, was im Regime der ultrastarken Kopplung der Fall ist [102].

<sup>1</sup>Entsprechend geht im cv-Bild ein Elektron unter Emission eines Photons aus einem Zustand im Leitungsband in einen freien Valenzbandzustand über.

Motivieren lässt sich der Hamiltonoperator der Licht-Materie-Wechselwirkung (2.16), indem man die Dipolwechselwirkung der Materie mit dem transversalen elektrischen Feld

$$\int d^3\mathbf{r} \Psi^\dagger(\mathbf{r})[-e\mathbf{r}\mathbf{E}_T]\Psi(\mathbf{r}) \quad (2.17)$$

betrachtet und das Feld  $\mathbf{E}_T = -\partial\mathbf{A}/\partial t$  gemäß Gl. (2.14) nach Eigenmoden entwickelt. In Einhüllenden-Näherung folgt für die Kopplungsstärke zwischen der Mode  $\xi$  und den Einteilchenzuständen, analog zum Vorgehen bei der Berechnung der Coulomb-Matrixelemente:

$$g_{ij\xi} = E_\xi \mathbf{d}_{cv} \int d^3\mathbf{r} \phi_i^{c*}(\mathbf{r}) \mathbf{u}_\xi(\mathbf{r}) \phi_j^v(\mathbf{r}), \quad (2.18)$$

wobei  $\mathbf{d}_{cv}$  die Interband-Dipolstärke des Volumenkristalls ist. Tatsächlich ist die Ausdehnung der Nanostruktur klein gegenüber der optischen Wellenlänge, sodass der relevante Beitrag durch die Modenfunktion  $\mathbf{u}_{\xi,\mathbf{R}}$  am Ort des Quantenpunktes  $\mathbf{R}$  gegeben ist:

$$g_{ij\xi} = E_\xi \mathbf{d}_{cv} \mathbf{u}_{\xi,\mathbf{R}} \int d^3\mathbf{r} \psi_i^c(\mathbf{r}) \psi_j^h(\mathbf{r}). \quad (2.19)$$

Sind die Einhüllenden-Wellenfunktionen des Valenz- und Leitungsbandes näherungsweise identisch, so ist  $g_{ij\xi} = g_\xi \delta_{ij}$  und optische Übergänge erfolgen ausschließlich zwischen gleichen Zuständen des Einschlusspotentials, d.h. zwischen den  $s$ - oder  $p$ -Zuständen des Quantenpunktes bzw. der Benetzungsschichtzustände  $\mathbf{k}_\perp$ .

Bereits in der Bandstruktur wurde die Wechselwirkung der Elektronen mit den Ionen berücksichtigt, indem deren Dynamik im Sinne der Born-Oppenheimer Näherung adiabatisch separiert wurde [58]. Die Elektronen bewegen sich dabei im Kristallpotential

$$U(\mathbf{r}) = \sum_j v(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j) \quad (2.20)$$

der Ionen, die sich an den Orten  $\mathbf{R}_j$  befinden und in den Gleichgewichtspositionen die gitterperiodische Kristallstruktur bilden. Darüber hinaus koppeln die Elektronen an die Gitterschwingungen des Kristalls, deren quantisierte Anregungen als Phononen bezeichnet werden. Betrachtet man kleine Abweichungen der Ionen von der Gleichgewichtslage, so lässt sich die Energie der Kristallionen durch unabhängige harmonische Oszillatoren darstellen gemäß

$$H_{\text{pn}}^0 = \sum_{\mathbf{q},\nu} \omega_{\mathbf{q},\nu} \left( D_{\mathbf{q},\nu}^\dagger D_{\mathbf{q},\nu} + \frac{1}{2} \right), \quad (2.21)$$

wobei  $D_{\mathbf{q},\nu}$  ( $D_{\mathbf{q},\nu}^\dagger$ ) ein Phonon in der Mode  $(\mathbf{q}, \nu)$  vernichtet (erzeugt). Die Dispersion  $\omega_\eta = \omega_{\mathbf{q},\nu}$  weist hierbei mehrere Zweige  $\nu$  auf, die sich bei einer Basis mit mehreren Atomen pro Einheitszelle, wie z.B. im Fall von GaAs, in akustische und optische Phononmoden unterteilen lassen. Im langwelligen Grenzfall, d.h. für  $\mathbf{q} \rightarrow 0$ , zeigen erstere ein lineares Verhalten, pro-

portional zur Schallgeschwindigkeit im Kristall, während die Energie letzterer näherungsweise konstant ist. Im Folgenden nehmen wir an, dass die Nanostrukturen nur eine kleine Störung der Moden des sie umgebenden Volumenkristalls darstellen, sodass wir die Diskussion auf diese beschränken können. Durch die Einbettung unterscheidet sich die Situation hier von der Beschreibung von Nanokristallen, welche sich typischerweise in Lösung befinden, wodurch das Phononen-Spektrum maßgeblich von der Größe und Form des Nanokristalls abhängt [278].

Bei einer kleinen Auslenkung  $\mathbf{u}_j = \mathbf{R}_j - \mathbf{R}_{0j}$  der Ionen aus den Gleichgewichtspositionen  $\mathbf{R}_{0j}$  spüren die Elektronen die Änderung des Kristallpotentials

$$v(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j) - v(\mathbf{r} - \mathbf{R}_{0j}) \approx -\mathbf{u}_j \nabla v(\mathbf{r} - \mathbf{R}_{0j}) \quad (2.22)$$

und erfahren damit eine potentielle Energie

$$H_{e-pn} = - \sum_j \int d^3\mathbf{r} \Psi^\dagger(\mathbf{r}) \mathbf{u}_j \nabla v(\mathbf{r} - \mathbf{R}_{0j}) \Psi(\mathbf{r}), \quad (2.23)$$

die eine Wechselwirkung der elektronischen Ladungsdichte  $\rho_e(\mathbf{r}) = \Psi^\dagger(\mathbf{r})\Psi(\mathbf{r})$  und der Ladungsdichte der Ionen  $\rho_i(\mathbf{r}) = -\nabla \mathbf{P}(\mathbf{r})$ , mit der zugehörigen Dipolverteilung  $\mathbf{P}(\mathbf{r}) \sim \sum_j \mathbf{u}_j \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_{0j})$ , beschreibt [58, 169]. Die Auslenkungen der Gitterionen können nach Normalmoden entwickelt werden

$$\mathbf{u}_j = \sum_{\mathbf{q}, \nu} \sqrt{\frac{1}{2\rho\omega_{\mathbf{q},\nu}V}} \mathbf{e}_{\mathbf{q},\nu} \left( D_{\mathbf{q},\nu} + D_{-\mathbf{q},\nu}^\dagger \right) e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}_{0j}}, \quad (2.24)$$

worin  $\mathbf{e}_{\mathbf{q},\nu}$  die Polarisationsrichtung beschreibt, mit der sich die Phononmoden in longitudinale ( $\mathbf{e}_{\mathbf{q},\nu} \sim \mathbf{q}$ ) und transversale ( $\mathbf{e}_{\mathbf{q},\nu} \perp \mathbf{q}$ ) Zweige unterscheiden lassen. Ferner ist die Massendichte des betrachteten Halbleitermaterials durch  $\rho$  gegeben und  $V$  ist das Normierungsvolumen. Mit Gl. (2.23) ergibt sich der Hamiltonoperator der Elektron-Phonon-Wechselwirkung, für den wir in Einhüllenden-Näherung den folgenden Ausdruck erhalten,

$$H_{e-pn} = \sum_{ij\lambda} \sum_{\mathbf{q}, \nu} M_{ij}^{\lambda\nu}(\mathbf{q}) \left( D_{\mathbf{q},\nu} + D_{-\mathbf{q},\nu}^\dagger \right) a_{\lambda,i}^\dagger a_{\lambda,j}, \quad (2.25)$$

wobei die Matrixelementen durch

$$M_{ij}^{\lambda\nu}(\mathbf{q}) = M_{\lambda\mathbf{q}}^\nu \int d^3\mathbf{r} \phi_i^{\lambda*}(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} \phi_j^\lambda(\mathbf{r}) \quad \text{mit} \quad M_{\lambda\mathbf{q}}^\nu = -iv_{\mathbf{q}}^\lambda \sqrt{\frac{1}{2\rho\omega_{\mathbf{q},\nu}V}} \mathbf{e}_{\mathbf{q}} \mathbf{q} \quad (2.26)$$

gegeben sind. Tatsächlich tragen im Rahmen der harmonischer Näherung in Gl. (2.22) nur longitudinale Phononen bei, da

$$\nabla v(\mathbf{r} - \mathbf{R}_{0j}) = \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{q}} i\mathbf{q} e^{i\mathbf{q}(\mathbf{r} - \mathbf{R}_{0j})} \sim \mathbf{q}. \quad (2.27)$$



Anharmonische Terme stellen entsprechend Korrekturen dar, weshalb die Wechselwirkung mit den transversalen Phononen deutlich schwächer ist, sodass wir sie im Folgenden vernachlässigen.

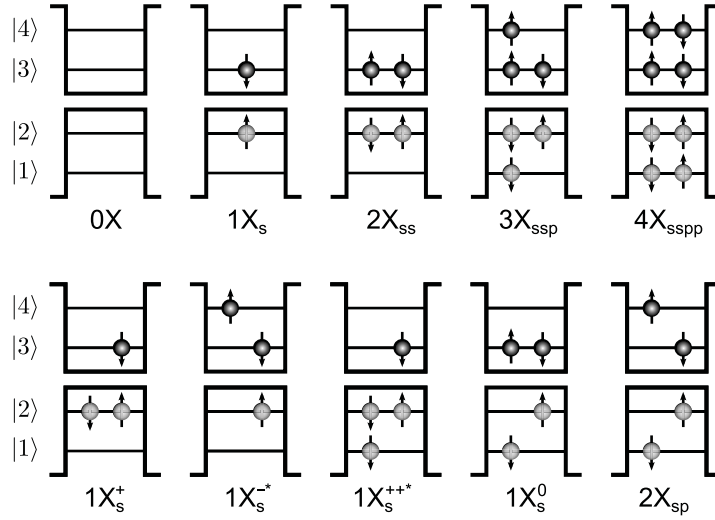
Der dominante Beitrag der Wechselwirkung mit akustischen Phononen erfolgt über die Deformationspotentialkopplung, während piezoelektrische Effekte in III-V Halbleitern wie GaAs vergleichsweise schwach sind [147, 169]. Das Deformationspotential  $D^\lambda$  entspricht gerade dem langwelligen Grenzfall des Elektron-Ion-Potentials  $v_{\mathbf{q}}^\lambda$ , wobei zu berücksichtigen ist, dass bei mehreren elektronischen Bändern die Wechselwirkung zwischen den Ionen und den Elektronen vom konkreten Band  $\lambda$  abhängt. Mit der linearen Dispersion der longitudinalen akustischen Phononen  $\omega_{\mathbf{q},\nu} = c_{\text{LA}}|\mathbf{q}|$  und der Schallgeschwindigkeit  $c_{\text{LA}}$  folgt für die Kopplungskonstante der akustischen Phononen

$$M_{\lambda\mathbf{q}}^{\text{LA}} = \frac{D_\lambda^2}{2\rho c_{\text{LA}}V}|\mathbf{q}|. \quad (2.28)$$

Der Wechselwirkung mit den optischen Phononen liegt eine polare Kopplung zugrunde: Die Polarisierungen der gegenphasig schwingenden Ionen erzeugt ein elektrisches Feld an dessen Potential die Elektronen streuen [169]. Die Beschreibung im Fröhlich-Modell führt dabei unter Verwendung der konstanten Dispersion der optischen Phononen  $\omega_{\mathbf{q},\nu} = \omega_{\text{LO}}$  auf die Kopplungsstärke

$$M_{\lambda\mathbf{q}}^{\text{LO}} = \frac{\omega_{\text{LO}}}{2V} \frac{e^2}{\varepsilon_0} \left( \frac{1}{\varepsilon(\infty)} - \frac{1}{\varepsilon(0)} \right) \frac{1}{|\mathbf{q}|}, \quad (2.29)$$

mit der dielektrischen Funktion  $\varepsilon(\omega)$ , welche im Hochfrequenz-Grenzfall die Abschirmung durch die Elektronen beschreibt, während im statischen Limes auch Ionen beitragen [58]. Die Wechselwirkung mit den optischen Phononen hat einen Coulomb-artigen Charakter und kann in polaren Halbleitern sehr stark sein.



**Abbildung 2.1.:** Beispiele für mögliche Konfigurationen in einem Quantenpunkt mit einer  $p$ - und  $s$ -Schale für Elektronen ( $|4\rangle$  und  $|3\rangle$ ) und Löcher ( $|1\rangle$  und  $|2\rangle$ ). Gezeigt sind der Grundzustand  $0X$  und die Konfigurationen, die eine Rekombination an der  $s$ -Schale erlauben, z.B. das  $s$ -Exziton  $1X_s$ , das Grundzustands-Biexziton  $2X_{ss}$ , geladene und „heiße“ geladene (mit \* gekennzeichnete) Zustände, sowie die Konfiguration des vollständig gefüllten Quantenpunktes  $4X_{sspp}$ . Bei der Klassifikation beziehen wir uns später auch auf höher angeregte, ladungsneutrale Zustände, z.B.  $1X_s^0$ . Die Gesamtzahl möglicher Konfigurationen beträgt 256.

### 2.3. Multi-Exziton-Konfigurationen und Einteilchenbeschreibung

Voraussetzung für die Emission von Licht durch den Quantenpunkt ist das Vorhandensein von Elektronen und Löchern in den lokalisierten Zuständen. Konfigurationen werden gebildet, indem die verschiedenen Einteilchenzustände sukzessiv mit Ladungsträgern besetzt werden. Die Einteilchenzustände sind dabei die intrinsischen Basiszustände der quantenmechanischen Beschreibung und bestimmen die möglichen Konfigurationen des elektronischen Systems. Die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Ladungsträgern ändert die Konfigurationsenergien (typischerweise um mehrere meV) und modifiziert die Energie optischer Übergänge sowie deren Oszillatorstärke. Zur Diskussion betrachten wir einen Quantenpunkt mit zwei gebundenen Zuständen für Elektronen und Löcher, die lediglich spinentartet sind, und als  $s$ - und  $p$ -Schale bezeichnet werden. Der Grundzustand des elektronischen Quantenpunkt-Systems ist charakterisiert durch ein leeres Leitungsband und ein volles Valenzband.<sup>2</sup> Zur Illustration sind in Abb. 2.1 die Konfigurationen des Exzitons  $1X_s$  und Biexzitons  $2X_{ss}$  für den Grundzustand gezeigt, zusammen mit Konfigurationen die infolge der Licht-Materie-Wechselwirkung eine Rekombination an der  $s$ -Schale erlauben. Darunter befinden sich z.B. das  $sp$ -Biexziton  $2X_{sp}$  und der vollständig gefüllte Quantenpunkt  $4X_{sspp}$ . Insgesamt existieren  $2^{2N}$  mögliche Konfigurationen für einen Quantenpunkt mit  $N$  spinentarteten Einteilchenzuständen. Als Konsequenz

<sup>2</sup>Entsprechend sind im Elektron-Loch-Bild keine Elektronen oder Löcher vorhanden.

wächst der Hilbertraum rapide mit zunehmender Zahl  $N$ .

Dies führt auf die Frage, inwieweit es notwendig ist, das System anhand einer möglicherweise großen Anzahl von Vielteilchen-Konfigurationen zu beschreiben, oder ob stattdessen eine Formulierung der Dynamik der Quantenpunkt-Ladungsträger durch (wenige) Einteilchen-Erwartungswerte erfolgen kann, d.h. durch Besetzungswahrscheinlichkeiten der Elektronen  $f_i^e = \langle e_i^\dagger e_i \rangle$  und Löcher  $f_i^e = \langle h_i^\dagger h_i \rangle$  und Übergangsamplituden zwischen den Einteilchenzuständen  $\Psi_{i,j} = \langle e_i^\dagger h_j \rangle$ . Diese Observablen sind dabei entweder über ein Quantenpunkt-Ensemble und/oder über wiederholte Messungen gemittelt.

Im Gegensatz zu den Konfigurationen enthält die Besetzungswahrscheinlichkeit jedoch nur einen Teil der Informationen über das angeregte System: Betrachtet man ein Elektron in der  $s$ -Schale des Leitungsbandes (mit der Besetzungswahrscheinlichkeit  $f_s^e$ ), so kann dieses z.B. (i) ohne weitere Elektronen bzw. Löcher vorhanden sein, (ii) mit dem zugehörigen Loch in der  $s$ -Schale ein optisch aktives Exziton bilden ( $1X_s$  in Abb. 2.1) oder (iii) durch weitere Ladungsträger eine Vielzahl von Multi-Exziton-Komplexen bilden. Die Konfigurationen sind gemeinsame Eigenzustände des Besetzungszahloperators  $n_\nu$  und enthalten daher die Information über die simultane Besetzung und Nichtbesetzung jedes Einteilchenzustandes des Systems. Bei gleicher Besetzung des Einteilchenzustandes muss folglich bei Anwesenheit weiterer Ladungsträger zwischen verschiedenen Konfigurationen unterschieden werden.

Übergänge zwischen den (mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit realisierten) Konfigurationen werden dabei durch Wechselwirkungsprozesse induziert, z.B. durch optische Rekombination oder Streuung der Ladungsträger. Durch das Pauli-Prinzip sind Prozesse im Konfigurationsbild daher entweder vollständig erlaubt oder verboten. In der Einteilchenbeschreibung ist dieses Prinzip nur noch näherungsweise erfüllt: Betrachtet man ein Ensemble von  $N$  identischen Quantenpunkten, so ist die Besetzung  $f_\nu$  äquivalent dazu, den Einteilchenzustand  $|\nu\rangle$  in  $N_\nu = f_\nu \cdot N$  Quantenpunkten mit einem Ladungsträger besetzt zu finden, sodass der Übergang eines zweiten Ladungsträgers aus dem Zustand  $|\nu'\rangle$  nach  $|\nu\rangle$  blockiert ist. Die Besetzungsänderung des Zustandes  $|\nu\rangle$  durch einen Einstreuprozess ist dabei proportional zu dessen Nichtbesetzung, sodass nur in  $(1 - f_\nu) \cdot N$  Quantenpunkten ein Übergang in den Zustand  $|\nu\rangle$  möglich ist. Folglich ist in einer Ensemblebeschreibung die Rate des Einstreuprozesses in den Zustand  $|\nu\rangle$  um den Faktor  $1 - f_\nu$  abgeschwächt. Dies entspricht dem Bild, dass jeder Ladungsträger nicht auf dem tatsächlichen Zustand des Streupartners reagiert, sondern auf eine unabhängig gemittelte Verteilung eines „mittleren Feldes“. Die tatsächliche Besetzung der verschiedenen Ensemblemitglieder wird nicht abgebildet bzw. es wird nicht zwischen verschiedenen Konfigurationen unterschieden, die sich in der gleichen gemittelten Besetzung  $f_\nu$  manifestieren.

Ob eine Beschreibung im Einteilchenbild praktikabel ist, hängt davon ab, wie relevant Ladungsträger-Korrelationen und deren Berücksichtigung in den theoretischen Modellen sind, die

den Unterschied zwischen den beiden Bildern ausmachen. Eine Korrelationen zwischen zwei Teilchen ist dabei durch  $\delta \langle n_1 n_2 \rangle = \langle n_1 n_2 \rangle - f_1 f_2$  gegeben, worin entsprechend  $\langle n_1 n_2 \rangle$  und  $f_\nu = \langle n_\nu \rangle$  die Erwartungswerte einer simultanen und individuellen Besetzung der Zustände  $|1\rangle$  und  $|2\rangle$  sind. In einem System mit zwei Einteilchenzuständen ist es dann für eine positive (negative) Korrelation wahrscheinlicher (unwahrscheinlicher), beide Zustände gleichzeitig besetzt oder unbesetzt vorzufinden, als wenn ihre Statistik unabhängig wäre. Entsprechend lassen sich Korrelationen zwischen drei, vier etc. Teilchen formulieren.

Solange die relevanten elektronischen Zustände Teil eines großen Hilbertraumes sind, z.B. eines Quasikontinuums von Zuständen, lassen sich die Ladungsträger-Korrelationen näherungsweise behandeln. Trägt andererseits nur eine kleine Anzahl diskreter elektronischer Zustände bei, wird eine Beschreibung im Konfigurationsbild erforderlich [100]. Selbstorganisierte Quantenpunkte bilden jedoch ein Hybridsystem, da typischerweise eine kleine Anzahl lokalisierter elektronischer Zustände mit diskreten Energien mit einem Quasikontinuum delocalisierter Zustände wechselwirkt. Zur Beschreibung der Systemdynamik ist es daher erforderlich, die Quantenpunkt-Korrelationen möglichst exakt zu behandeln, während Korrelationen z.B. durch Wechselwirkung mit Ladungsträgern in den Benetzungsschichtzuständen approximiert werden können. Im nachfolgenden Abschnitt werden hierzu geeignete Verfahren vorgestellt.

## 2.4. Ladungsträger-Streuprozesse in Quantenpunkten

Die Ladungsträger-Streuung ist ein wichtiger Bestandteil der Quantenpunkt-Dynamik. Experimentell können Elektron-Loch-Paare durch optische Anregungen entweder direkt in den Quantenpunkt-Zustände oder nichtresonant in den delokalisierten Zuständen der Benetzungsschicht bzw. des Barrierenmaterials erzeugt werden, wobei die Frequenz des Laserpulses auf den entsprechenden optischen Übergang abgestimmt wird. Optoelektronische Bauteile werden bevorzugt elektronisch kontaktiert, wobei Ladungsträger durch einen elektrischen Strom in die delokalisierten Zustände injiziert werden. Wie frühere Untersuchungen gezeigt haben, werden die Ladungsträger auf einer ps-Zeitskala in die Quantenpunkt-Zustände eingefangen [150, 260]. Die Streuung zwischen den lokalisierten und delokalisierten Zuständen sowie innerhalb des Quantenpunktes wird durch die Coulomb-Wechselwirkung der Ladungsträger [31, 200] und deren Wechselwirkung mit LO-Phononen [249] ermöglicht. Diese Prozesse stellen Ladungsträger für die optischen Übergänge bereit und liefern gleichzeitig den dominanten Beitrag zur Dephasierung optischer Polarisierungen sowie zur Dämpfung von Korrelationen. Bei der Relaxation eines Ladungsträgers wird im Falle der Coulomb-Streuung ein zweiter Ladungsträger in einen höheren Zustand im Quantenpunkt oder in der Benetzungsschicht gebracht, während bei der Wechselwirkung der Ladungsträger mit LO-Phononen die überschüssige Energie an das Kristallgitter abgegeben wird. Longitudinal akustische Phononen stellen für kleine Impulsüberträge typischerweise keine hinreichend großen Energien bereit, um in Bezug auf die

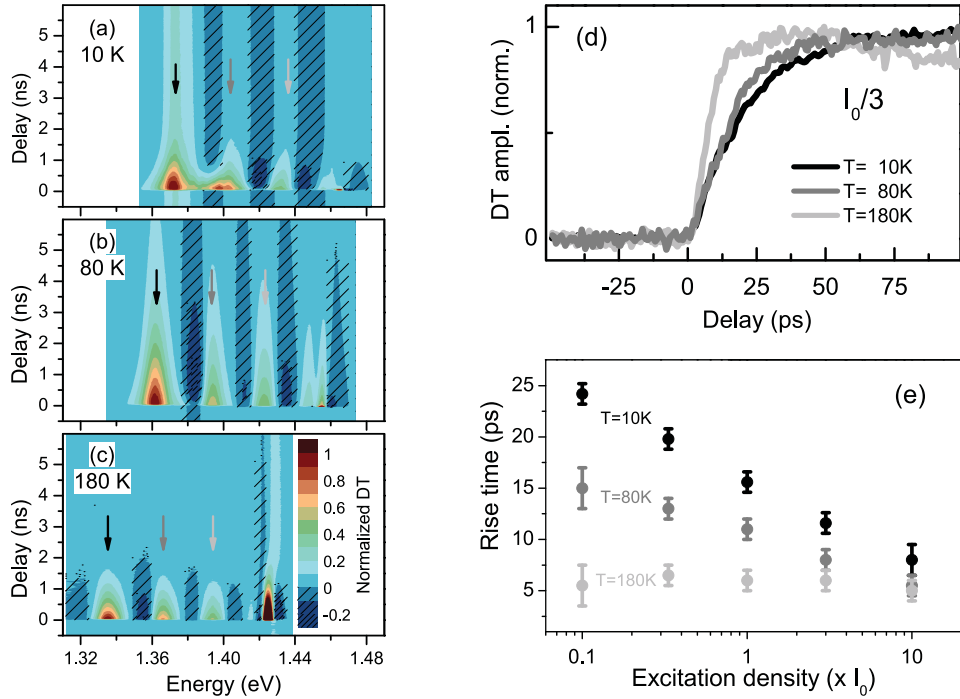
diskreten Zustände selbstorganisierter Quantenpunkte eine effiziente Änderung der Ladungsträgerbesetzung zu ermöglichen. Jedoch liefern die LA-Phononen insbesondere bei tiefen Temperaturen und niedriger Ladungsträgerdichte einen wesentlichen Beitrag zur reinen Dephasierung<sup>3</sup> (vgl. Abschnitt 4.2.2) [147, 192].

Wegen der direkten Relevanz der Anregungsdynamik für eine Vielzahl von Anwendungen, ist deren Verständnis von zentraler Bedeutung. In Kooperation mit der experimentellen Gruppe von Prof. Manfred Bayer in Dortmund wurde die Relaxation der Ladungsträger systematisch untersucht. Im Folgenden werden die Ergebnisse mit verschiedenen theoretischen Modellen verglichen, um das Zusammenspiel der Coulomb- und Phonon-Wechselwirkung und deren Relevanz über einen großen Temperatur- und Dichtebereich zu charakterisieren. Detaillierte Informationen über die Dynamik der Ladungsträger sind experimentell durch Pump-Probe-Spektroskopie mit zwei synchronisierten Lasern variabler Frequenz und Zeitverzögerung zugänglich, die eine zeitaufgelöste Messung der differentiellen Transmission erlaubt [150]: Ladungsträger können vom Pump-Laser mit variabler Anregungsleistung in den Barrierenzuständen erzeugt werden, während die Besetzung der elektronischen Zustände durch den Probe-Laser zeitverzögert getestet wird. Das zeitaufgelöste Signal der Transmission des Testpulses durch die Probe kann dann mit und ohne Pumpanregung gemessen werden. Die Differenz beider Messungen gibt dabei Aufschluss über die Absorption unter den spezifischen Bedingungen, die durch die Anregung von Ladungsträgern und deren sukzessive Relaxation erzeugt werden. Das Signal ist dabei positiv, wenn die Transmission durch die Pumpanregung verstärkt wird und negativ, falls sie abgeschwächt wird.

In Abb. 2.2 (a)-(c) ist die zeitaufgelöste differentielle Transmission (TRDT<sup>4</sup>) als Funktion der Probe-Energie und der Verzögerung zwischen dem Pump- und Probe-Puls gezeigt. Interbandübergänge werden als Funktion der Energie abgebildet und es zeigt sich die Schalenstruktur des Quantenpunktes als näherungsweise äquidistante Variation der Transmissionsamplitude, wobei die Resonanzen den Übergängen zwischen den gebundenen Elektron- und Lochzuständen entsprechen. Signale mit negativer differentieller Transmission werden hervorgerufen durch Multi-Exziton-Zustände, die in Anwesenheit von Ladungsträgern entstehen, die durch den Pump-Puls angeregt wurden. Diese Zustände besitzen infolge der Coulomb-Wechselwirkung eine renormierte Energie im Vergleich zum unangeregten Quantenpunkt. Zudem verschiebt sich mit steigender Temperatur das gesamte Spektrum der Transmission zu niedrigeren Energien, was eine Folge der Renormierung der Bandkante ist [206]. Abb. 2.2 (d) zeigt das TRDT Signal für drei verschiedene Temperaturen bei einer festen Anregungsleistung  $I_0/3$ . Der rapide Anstieg des Signals auf einer Zeitskala von wenigen 10 ps weist auf den schnellen Aufbau einer Besetzung der Schalen infolge des Ladungsträgereinfangs und der Relaxationsdynamik hin, während der nachfolgende Zerfall durch optische Prozesse viel lang-

<sup>3</sup>engl.: pure dephasing

<sup>4</sup>engl.: time-resolved differential transmission



**Abbildung 2.2.:** **Links:** Konturplot der differentiellen Transmission als Funktion der Probe-Energie und Pump-Probe Verzögerung für die Temperaturen  $T=10, 80$  und  $180$  K, gemessen an einem Quantenpunkt mit einer Höhe des Einschlusspotentials von  $90$  meV. Die GaAs Barriere wurde mit einer Anregungsdichte  $I_0$  gepumpt. **Rechts:** Es ist der zeitliche Verlauf des DT Signals bei einer Anregungsdichte von  $I_0/3$  für Temperaturen von  $T=10, 80$  und  $180$  K gezeigt (oben) sowie die aus den TRDT Transienten des Quantenpunkt-Grundzustandes bestimmten Anstiegszeiten bei verschiedenen Anregungsintensitäten (unten). (Für beide Abbildungen gilt eine Höhe des Einschlusspotentials des Quantenpunktes von  $90$  meV und eine Anregung in die GaAs Barriere bei einer Photonenenergie von  $1.55$  eV.)

samer erfolgt. Um die zugrunde liegende Dynamik quantitativ bewerten zu können, wurde der Anstieg des DT Signals mit einem monoexponentiellen Fit analysiert. In Abb. 2.2 (e) ist die Abhängigkeit der Anstiegszeit des Grundzustandsübergangs von der Anregungsleistung für Temperaturen von  $T=10, 80$  und  $180$  K gezeigt. Die Daten für  $T=10$  K unterstreichen die Bedeutung der Coulomb-Streuprozesse für die Relaxation, wie an dem starken Abfall der Anstiegszeit mit der Anregungsdichte zu sehen ist, da zunehmend Streupartner in der Benetzungsschicht zur Verfügung stehen. Im Gegensatz dazu zeigt die Anstiegszeit bei  $T=80$  K nur eine schwache Änderung mit der Anregungsdichte, die bei  $T=180$  K praktisch verschwindet. Diese Resultate deuten darauf hin, dass sich mit steigender Temperatur weitere effiziente Relaxationskanäle öffnen.

Grundlage für die theoretische Beschreibung der Ladungsträger-Relaxation für das gekoppelte System aus den lokalisierten Quantenpunkt-Zuständen und den delokalisierten Zuständen der Benetzungsschicht und des Barrierenmaterials bildet zumeist die Boltzmann-Gleichung [31,

36, 76, 282]; sie basiert auf einer Formulierung der elektronischen Anregungen im Einteilchenbild: Ist  $|i\rangle$  die Einteilchenbasis der Quantenpunkt- und Benetzungsschichtzustände, so wird die Anregungsdynamik durch die Einteilchen-Besetzungswahrscheinlichkeiten  $f_i$  beschrieben, deren Bewegungsgleichung durch die Boltzmann-Gleichung gegeben ist. Beschränkt man sich auf eine Markovsche Zeitentwicklung, d.h. unter Vernachlässigung von Gedächtniseffekten, so folgen die Besetzungen  $f_i$  der Bewegungsgleichung

$$\frac{\partial f_i}{\partial t} = (1 - f_i)S_i^{\text{in}} - f_i S_i^{\text{out}}, \quad (2.30)$$

worin die Ein- und Ausstreuraten  $S_i^{\text{in}}$  und  $S_i^{\text{out}}$  in einfachster Form durch Fermis goldene Regel bestimmt sind.

Eine Verallgemeinerung bieten quantenkinetische Methoden, z.B. basierend auf der Technik der Nichtgleichgewichts-Greenschen-Funktionen [28, 66, 105, 113, 114, 131, 144], die zudem nicht-Markovsche Effekte, eine selbstkonsistente Beschreibung der Quasiteilchen-Renormierungen sowie die Abschirmung der Coulomb-Matrixelemente berücksichtigen. Dies ermöglicht z.B. die Charakterisierung der durch die Wechselwirkung induzierten Dephasierung in Absorptions- und Gewinnspektren [164, 238]. Ferner kann das Zusammenwirken der Coulomb- und Elektron-Phonon-Wechselwirkung beschrieben werden. Mit beiden Wechselwirkungen gehen Quasiteilchen-Renormierungen einher, wodurch die Effizienz der individuellen Streuprozesse stark beeinflusst wird [241]. Dennoch basieren diese Methoden auf einer geschlossenen Formulierung in Bezug auf Einteilchen-Erwartungswerte. Für Quantenpunkt-Systeme wurde jedoch darauf hingewiesen, dass infolge des endlichen Zustandsraums der elektronischen Anregungen und der starken Coulomb-Wechselwirkung Ladungsträger-Korrelationen eine wichtige Rolle spielen [100]. Konsequenzen für die Schwellstromdichte eines Quantenpunkt-Lasers [100] sowie die Dynamik der Regeneration des Quantenpunkt-Gewinns [34] wurden diskutiert. Dies motiviert die Beschreibung der Quantenpunkt-Ladungsträger durch den Dichteoperator  $\rho(t)$  in der Konfigurationsbasis, wobei der Hamiltonoperator des Systems die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Quantenpunkt-Ladungsträgern explizit berücksichtigt.

Betrachtet man den Quantenpunkt als ein offenes Quantensystem, so kann die Kopplung an die LO-Phononen und die Ladungsträger in der Benetzungsschicht durch Lindblad-Terme beschrieben werden, wie wir in den nachfolgenden Abschnitten ausführen werden. Dabei können die beinhalteten Raten sowohl störungstheoretisch als auch im Rahmen einer quantenkinetischen Formulierung berechnet werden. Die Zeitentwicklung der Dichtematrix ist durch die von-Neumann-Lindblad-Gleichung gegeben [38, 46], deren Lösung die volle Dynamik der Multi-Exziton-Zustände beschreibt. Damit ergeben sich zwei wesentliche Neuerungen im Vergleich zu der Einteilchenbeschreibung: (i) eine exakte Berücksichtigung des Pauli-Prinzips und der damit verbundenen Korrelationen anstatt einer (Zeit- oder Ensemble-)gemittelten Wahrscheinlichkeit von Einteilchenbesetzungen, da in den Konfigurationen die Einteilchenzustände vollständig



besetzt oder unbesetzt sind; (ii) Übergänge werden zwischen Multi-Exziton-Konfigurationen betrachtet, wobei die Konfigurationsenergie bei Anwesenheit weiterer Ladungsträger durch die Coulomb-Wechselwirkung richtig renormiert wird.

Die im Folgenden gezeigten theoretischen Ergebnisse sind in direkter Zusammenarbeit mit Alexander Steinhoff und Paul Gartner entstanden, aus der zwei gemeinsame Publikationen hervorgegangen sind [262, 263]. Die Entwicklung der theoretischen Modelle ist dabei gemeinsam erfolgt, wobei Alexander Steinhoff insbesondere bei der numerischen Umsetzung federführend war. Die experimentellen Untersuchungen wurden in der Gruppe von Prof. Manfred Bayer in Dortmund durchgeführt. Die Proben wurden in der Gruppe von Prof. Andreas Wieck in Bochum hergestellt. Nachfolgend geben wir eine Zusammenfassung der gemeinsamen Ergebnisse und verweisen für weitere Details auf die Dissertation von Alexander Steinhoff.

### 2.4.1. System-Reservoir-Wechselwirkung

Die diskrete Natur der lokalisierten Quantenpunkt-Zustände ermöglicht es, zwischen dem Quantenpunkt und seiner Umgebung zu unterscheiden. Die verschiedenen Quantenpunkt-Anregungen bilden das *System*, das von Interesse ist. Dissipation in dem diskreten System kann nur durch Kopplung an andere Ladungsträger oder Phononen mit einer quasi-kontinuierlichen Zustandsdichte erfolgen. Durch die zugehörige große Zahl an Freiheitsgraden können diese als ein *Reservoir* für das Quantenpunkt-System angesehen werden.

Die Dynamik des Quantenpunkt-Dichteoperators folgt der von-Neumann-Lindblad-Gleichung

$$\frac{d}{dt} \rho = -i[H_S, \rho] + \sum_X \mathcal{L}_X \rho. \quad (2.31)$$

Der Anteil des Kommutators auf der rechten Seite repräsentiert die quantenmechanische Entwicklung des Systems, während der zweite Beitrag die irreversible, dissipative Kinetik durch den Kontakt mit dem Reservoir über Lindblad-Terme

$$\mathcal{L}_X \rho = \frac{\gamma_X}{2} \left( 2s_X \rho s_X^\dagger - s_X^\dagger s_X \rho - \rho s_X^\dagger s_X \right) \quad (2.32)$$

widerspiegelt [97, 160]. Der Hamiltonoperator des Systems  $H_S = H_e^0 + H_{e-e}$  beschreibt das wechselwirkende Ladungsträgersystem, sodass die zeitabhängige Lösung von Gl. (2.31) die volle Vielteilchenbeschreibung der Quantenpunkt-Anregungen enthält. Die dissipativen Lindblad-Terme können durch Berücksichtigung der Wechselwirkung zwischen System und Reservoir über der Hamiltonoperator mit

$$H_{SR} = \sum_X s_X \Gamma_X \quad (2.33)$$



formuliert werden, worin  $s_X$  und  $\Gamma_X$  entsprechend System- und Reservoiroperatoren sind. Wie wir nachfolgend zeigen werden, kann die Wechselwirkung mit den Phononen und die Coulomb-Wechselwirkung mit den Ladungsträgern in der Benetzungsschicht auf diese Form gebracht werden.

Der Operator  $s_X$  beschreibt dabei Übergänge zwischen zwei Eigenzuständen des System-Hamiltonoperators  $H_S$ , wobei  $\omega_X$  die hiermit assoziierte Änderung der Energie ist. Die übliche Vorgehensweise basiert auf einer Born-Markov-Näherung der System-Reservoir-Wechselwirkung [38, 46]. Die Informationen über das Reservoir sind in den Übergangsraten

$$\gamma_X = \int_{-\infty}^{\infty} dt' e^{i\omega_X(t-t')} \left\langle \tilde{\Gamma}_X^\dagger(t) \tilde{\Gamma}_X(t') \right\rangle_R \quad (2.34)$$

enthalten, wobei die  $\Gamma$ -Operatoren im Wechselwirkungsbild in Bezug auf den Reservoir-Hamiltonoperator  $H_R$  erscheinen und deren Erwartungswerte  $\langle \cdot \rangle_R$  über die Reservoirzustände bestimmt werden. Wir nehmen im Folgenden an, dass sich das Reservoir im thermischen Gleichgewicht befindet<sup>5</sup> und werden hierfür auch die Bezeichnung *Bad* verwenden. Die Erwartungswerte hängen dann nur noch von der Differenz der Zeitargumente ab

$$\gamma_X = 2\text{Re} \int_0^{\infty} d\tau e^{i\omega_X\tau} \left\langle \tilde{\Gamma}_X^\dagger(\tau) \tilde{\Gamma}_X(0) \right\rangle_R \quad (2.35)$$

und sie enthalten ein Kontinuum von Reservoir-Übergängen, wie durch Fourierentwicklung ersichtlich ist:

$$\left\langle \tilde{\Gamma}_X(t) \tilde{\Gamma}_X(t') \right\rangle_R = \sum_{\lambda} C_X(\lambda) e^{-iE_{\lambda}(t-t')} . \quad (2.36)$$

Dies führt zu

$$\gamma_X = 2\pi \sum_{\lambda} C_X(\lambda) \delta(E_{\lambda} - \omega_X) \quad (2.37)$$

und beschreibt die exakte Energieerhaltung, die eine Kompensation der Energie  $\omega_X$  durch das Reservoir erfordert, die durch den Übergang im System ausgetauscht wird. Spezifische Beispiele werden nun im Folgenden diskutiert.

### 2.4.2. Ladungsträger-Coulomb-Streuung

Der Quantenpunkt in Kontakt mit den Ladungsträgern der Benetzungsschicht ist Gegenstand einer Reihe von Auger-artigen Streuprozessen. Ladungsträger werden durch Coulomb-

<sup>5</sup>Im Prinzip folgen die Ladungsträger in den delokalisierten Zuständen oder die Phononen ihrer eigenen Dynamik, die durch entsprechende kinetische Gleichungen beschrieben wird. Dies würde jedoch über den Rahmen dieser Arbeit weit hinausgehen und stellt eine zukünftige Erweiterung dar, um z.B. ultra-schnelle Thermalisierungsprozesse zu studieren.

Wechselwirkung mit denen der Benetzungsschicht in den Quantenpunkt eingefangen, aus ihm herausgestreut oder gehen von einem lokalisierten Zustand in einen anderen über. Die Ladungsträger in den delokalisierten Zuständen stellen dabei die notwendige Energie für den Prozess zur Verfügung.

Der Reservoir-Hamiltonoperator der Ladungsträger in der Benetzungsschicht ist durch

$$H_R = \sum_k \varepsilon_k a_k^\dagger a_k \quad (2.38)$$

gegeben, worin  $k$  sowohl den Impuls als auch den Bandindex repräsentiert. Während die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Quantenpunkt-Ladungsträgern Bestandteil des System-Hamiltonoperators  $H_S$  ist, beschreibt der System-Reservoir-Hamiltonoperator die Wechselwirkung zwischen den Ladungsträgern des Quantenpunktes und der Benetzungsschicht. Diese ist durch Gl. (2.9) gegeben, wobei die Summation sowohl Quantenpunkt- als auch Benetzungsschicht-Indizes enthält. Die systematische Auswertung von Gl. (2.35) für diese Wechselwirkung entsprechend des Wick-Theorems [293] führt zu verschiedenen Streuprozessen, die gemäß Ref. [200] klassifiziert werden können. Für jeden Streuprozess wird der zugehörige Quantenpunkt-Operator als Systemoperator  $s_X$  und der verbleibende Benetzungsschicht-Operator als Reservoiroperator  $\Gamma_X$  identifiziert.

Betrachten wir als konkretes Beispiel den Übergang eines Quantenpunkt-Ladungsträgers von  $|j\rangle$  nach  $|i\rangle$ , assistiert durch einen Ladungsträger in der Benetzungsschicht, der von  $|k'\rangle$  nach  $|k\rangle$  gestreut wird. Dies ist durch die Terme

$$\sum_{k,k'} V_{ikk'j} a_i^\dagger a_k^\dagger a_{k'} a_j + \sum_{k,k'} V_{ikjk'} a_i^\dagger a_k^\dagger a_j a_{k'} = a_i^\dagger a_j \sum_{k,k'} [V_{ikk'j} - V_{ikjk'}] a_k^\dagger a_{k'} \quad (2.39)$$

beschrieben, welche zwei Quantenpunkt- und zwei Benetzungsschicht-Operatoren enthalten. Entsprechend würde der Benetzungsschicht-assistierte Einfang in den Quantenpunkt (bzw. die Ausstreuung aus dem Quantenpunkt) einen Quantenpunkt- und drei Benetzungsschicht-Operatoren involvieren. Zunächst liegt es nahe, in Gl. (2.39) den Systemoperator  $s_X$  mit  $a_i^\dagger a_j$  und

$$\Gamma_X = \sum_{k,k'} [V_{ikk'j} - V_{ikjk'}] a_k^\dagger a_{k'} \quad (2.40)$$

zu identifizieren. Damit erhalten wir die Lindblad-Terme

$$\mathcal{L}_{\text{scatt}} \rho = \sum_{i,j} \frac{\gamma_{ij}}{2} \left[ 2a_i^\dagger a_j \rho a_j^\dagger a_i - a_j^\dagger a_i a_i^\dagger a_j \rho - \rho a_j^\dagger a_i a_i^\dagger a_j \right], \quad (2.41)$$

die den Benetzungsschicht-assistierten Relaxationsprozess im Quantenpunkt beschreiben, worin  $\gamma_{ij}$  entsprechend Gl. (2.35) die Streurrate vom Zustand  $|j\rangle$  nach  $|i\rangle$  bezeichnet.

Als zweites Beispiel betrachten wir den Einfangprozess, der durch die Operatoren  $s_X = a_i^\dagger$  und  $\Gamma_X = \sum_{k_1, k_2, k_3} V_{ik_1 k_2 k_3}$  beschrieben wird. Entsprechend besitzt der Lindblad-Term für den Einfang- und Ausstreuprozess die Form

$$\mathcal{L}_{\text{capt}}\rho = \sum_i \left\{ \frac{\gamma_i^{\text{in}}}{2} [2a_i^\dagger \rho a_i - a_i a_i^\dagger \rho - \rho a_i a_i^\dagger] + \frac{\gamma_i^{\text{out}}}{2} [2a_i \rho a_i^\dagger - a_i^\dagger a_i \rho - \rho a_i^\dagger a_i] \right\}, \quad (2.42)$$

worin die Summation alle Einteilchenzustände im Quantenpunkt enthält und  $\gamma_i^{\text{in}}$  ( $\gamma_i^{\text{out}}$ ) die Raten für den Einfang in den (die Ausstreuung aus dem) Zustand  $|i\rangle$  sind.

Die von-Neumann-Lindblad-Gleichung beschreibt die Besetzungsdynamik des Quantenpunktes und dessen Ladungsträger-Korrelationen vollständig. Durch die Antikommutator-Relationen der Einteilchen-Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren ist das Pauli-Prinzip automatisch enthalten. Allerdings entspricht die obige Wahl lediglich einem freien System-Hamiltonoperator, wodurch Coulomb-Korrelationen vernachlässigt werden. Tatsächlich beschreibt der Operator  $a_i^\dagger a_j$  viele Übergänge zwischen den Quantenpunkt-Konfigurationen, wobei die Energieänderung durch die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Quantenpunkt-Ladungsträgern nicht für alle Konfigurationen gleich ist. Daher ist die Frequenz  $\omega_X$  in Gl. (2.35) für die diversen möglichen Konfigurationen verschieden. Die Ursache ist die Abhängigkeit der Energie der Ausgangs- und Endkonfigurationen von zusätzlichen Ladungsträgern, die nicht Teil des Übergangs sind. Ein Übergang der in  $a_i^\dagger a_j$  enthalten ist, findet zwischen den Konfigurationen  $|J\rangle = a_j^\dagger |\Phi\rangle$  und  $|I\rangle = a_i^\dagger |\Phi\rangle$  statt. Hierin ist  $|\Phi\rangle$  ein Referenzzustand und spezifiziert die zusätzlichen Ladungsträger, wobei die Einteilchenzustände  $i, j$  unbesetzt sind. Die zugehörigen Energien sind  $\varepsilon_J$  und  $\varepsilon_I$ ; diese enthalten explizit die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Quantenpunkt-Ladungsträgern. Hieraus folgt eine Übergangsenergie  $\omega_{IJ} = \varepsilon_I - \varepsilon_J$  für jeden Projektor  $|I\rangle \langle J|$ , der in  $a_i^\dagger a_j$  enthalten ist. Als Konsequenz identifiziert man den Systemoperator in  $H_{\text{SR}}$  mit  $s_X = s_{IJ} = |I\rangle \langle J|$  und  $\Gamma_{IJ} = \Gamma_X$ . Aus Gl. (2.35) erhält man dann die zugehörigen Übergangsraten

$$\gamma_{IJ} = 2\pi \sum_{k, k'} |V_{ikk'j} - V_{ikjk'}|^2 (1 - f_k) f_{k'} \delta(\omega_{IJ} + \varepsilon_k - \varepsilon_{k'}) \quad (2.43)$$

in Übereinstimmung mit Fermis goldener Regel. Der Übergang im Quantenpunkt von  $|J\rangle$  nach  $|I\rangle$  wird dann energetisch durch eine Streuung von  $k'$  nach  $k$  im Reservoir der Benetzungsschicht kompensiert, das durch die Besetzungswahrscheinlichkeiten  $f_k$  beschrieben ist.

### 2.4.3. Streuung der Ladungsträger mit LO-Phononen

Ein zweites (bosonisches) Reservoir wird durch die Phononen bereitgestellt. In polaren Halbleitern liefern LO-Phononen den stärksten Beitrag zu den Ladungsträger-Streuprozessen, für die ein dispersionsloses Spektrum  $\omega_{\mathbf{q}} = \omega_{\text{LO}}$  angenommen wird. Der Hamiltonoperator des LO-

Phononen Reservoirs  $H_R$  ist durch Gl. (2.21) gegeben und die Wechselwirkung zwischen dem Quantenpunkt System und dem Phononen-Reservoir  $H_{SR}$  wird durch den Hamiltonoperator in Gl. (2.25) beschrieben, mit den Matrixelementen  $M_{ij}^{\text{LO}}(\mathbf{q})$  der Fröhlich-Kopplung für gleiche Einhüllenden der Elektronen im Valenz- und Leitungsband [169].

In Gl. (2.25) müssen wir zwischen zwei Fällen unterscheiden. Beziehen sich beide Indizes  $i, j$  auf Zustände des Quantenpunktes, so werden elektronische Übergänge  $|j\rangle \rightarrow |i\rangle$  durch Emission oder Absorption von Phononen assistiert und beschreiben eine Intraband-Relaxation der Quantenpunkt-Ladungsträger. Der zweite Fall involviert einen Quantenpunkt- und einen Benetzungsschicht-Zustand und entspricht einem Ladungsträgereinfang aus der (oder einer Reemission in die) Benetzungsschicht, erneut assistiert durch Phononen. Betrachten wir zur Illustration den ersten Fall, so begegnen wir der gleichen Situation wie im vorigen Abschnitt. Die Berücksichtigung von Vielteilchen-Korrelationen erfordert, dass die Born-Markov Näherung nicht direkt bezüglich  $a_i^\dagger a_j$  angewandt wird, sondern dass Übergänge  $|I\rangle \langle J|$  zwischen allen möglichen Konfigurationen stattfinden, die eine Ladungsträger-Streuung von  $|j\rangle$  nach  $|i\rangle$  erlauben. Mit dem Reservoiroperator  $\Gamma_{IJ} = \sum_{\mathbf{q}} M_{ij}^{\text{LO}}(\mathbf{q})(D_{\mathbf{q}} + D_{-\mathbf{q}}^\dagger)$  erhält man aus Gl. (2.35) die Übergangsraten in der Form

$$\begin{aligned} \gamma_{IJ} &= 2\text{Re} \int_0^\infty d\tau e^{-i(\varepsilon_I - \varepsilon_J)\tau} \sum_{\mathbf{q}} |M_{ij}^{\text{LO}}(\mathbf{q})|^2 \left\{ (1 + N_{\text{LO}}) e^{-i\omega_{\text{LO}}\tau} + N_{\text{LO}} e^{i\omega_{\text{LO}}\tau} \right\} \\ &= 2\pi \sum_{\mathbf{q}} |M_{ij}^{\text{LO}}(\mathbf{q})|^2 \left\{ (1 + N_{\text{LO}}) \delta(\omega_{IJ} + \omega_{\text{LO}}) + N_{\text{LO}} \delta(\omega_{IJ} - \omega_{\text{LO}}) \right\}, \end{aligned} \quad (2.44)$$

worin  $N_{\text{LO}}$  die Besetzung der Phononen für eine gegebene Gittertemperatur ist. Der erste Term entspricht einem Prozess der durch Phonon-Emission assistiert ist, während der zweite Term eine Phonon-Absorption beinhaltet. Ohne Coulomb-Korrelationen lassen sich die Beiträge für den Ladungsträgereinfang und die Relaxation erneut auf die Lindbladform der Gln. (2.41) und (2.42) zurückführen.

In Gl. (2.44) begegnet man einem Problem, das spezifisch für die LO-Phonon-getriebene Ladungsträgerdynamik in elektronischen Systemen mit diskreten Zuständen ist. Aus Sicht der Störungstheorie ist eine Relaxation eines im Quantenpunkt gebundenen Ladungsträgers zu niedrigeren Zuständen nur möglich, wenn der Streuprozess die Energie in Termen freier Ladungsträgerzustände erhält, was durch eine  $\delta$ -Funktion in Fermis goldener Regel ausgedrückt wird. Tatsächlich ist die LO-Phonon-Dispersion schwach und LA-Phononen sowie höhere Ordnungsprozesse (kombinierte LA-LO-Streuung) tragen nur geringfügig zur Umverteilung der Ladungsträger bei [122, 129]. Hingegen ermöglicht die Coulomb-Streuung eine effiziente Relaxation, vorausgesetzt, Streupartner sind in der Benetzungsschicht vorhanden [281]. In mehreren Experimenten wurden jedoch auch bei niedrigen Dichten effiziente Streuprozesse beobachtet [184, 189, 204]. Dies hat zu der Frage geführt, welcher Mechanismus den in frühen theoretischen Arbeiten [20, 30] vorhergesagten „Phonon Bottleneck“ überwindet.

Tatsächlich verschwindet die Streurrate nur in einer Störungstheorie niedrigster Ordnung (Fermis goldene Regel). Für die LO-Phononen wurde allerdings demonstriert, dass die Störungstheorie nicht die Antwort in Bezug auf die Modellierung des Quantenpunktes liefert, sondern dass Quasiteilchen („Polaronen“) verwendet werden müssen (siehe auch Abschnitt 4.2.2), die aus einer nicht-perturbativen Beschreibung der Ladungsträger-Phonon-Wechselwirkung resultieren [123, 145, 287] und insbesondere für die polare Kopplung in Quantenpunkten zu effizienten Streuraten führen [84, 249].

Die Effekte der Quasiteilchen-Renormierungen können auch in einer verallgemeinerten Form von Gl. (2.44) durch Verwendung von Spektralfunktionen berücksichtigt werden. Hierzu machen wir von der Technik der Nichtgleichgewichts-Greenschen Funktionen Gebrauch, die erfolgreich verwendet wurde, sowohl Boltzmann-Streuintegrale um nicht-Markovsche Effekte zu erweitern als auch eine selbstkonsistente Beschreibung von Quasiteilchen-Renormierungen und Abschirmung der Coulomb-Matrixelemente zu erreichen [15, 29, 249]. Eine systematische Berücksichtigung von Wechselwirkungsprozessen beliebiger Ordnung wird im Rahmen einer quantenkinetischen Theorie durch die Kadanoff-Baym-Gleichung [60, 105, 233] ermöglicht. Gleichwohl basiert diese Formulierung auf einer geschlossenen Beschreibung in Bezug auf Einteilchen-Erwartungswerte. Im Folgenden wird ein Ansatz diskutiert werden, der es erlaubt, eine Beschreibung im Konfigurationsbild mit quantenkinetischen Methoden zu kombinieren, um systematisch Quasiteilchen-Renormierungen in der Wechselwirkung der Quantenpunkt-Ladungsträger mit den LO-Phononen und den Ladungsträgern der Benetzungsschicht zu berücksichtigen.

Die Kadanoff-Baym-Gleichungen [60, 105, 233] führen auf ein Resultat ähnlich zu Gl. (2.44) und entsprechenden Gleichungen für die Coulomb-Streuung, wobei die mit den Systemenergien oszillierenden Exponentialfaktoren durch komplexere retardierte Greensche Funktionen ersetzt sind (vgl. z.B. Ref. [164, 249]):

$$-ie^{-i\varepsilon_I t} \implies G_i^r(t). \quad (2.45)$$

Deren zeitliche Entwicklung ist durch

$$\left(i \frac{d}{dt} - \varepsilon_I\right) G_i^r(t) = \delta(t) + \int_0^t dt' \Sigma_i^r(t-t') G_i^r(t'), \quad (2.46)$$

gegeben, wobei die Wechselwirkung durch die Selbstenergie  $\Sigma_i^r(t-t')$  spezifiziert ist. Hierin ist  $|i\rangle$  der Einteilchenzustand, der in der Konfiguration  $|I\rangle$  besetzt ist, jedoch nicht in der Referenzkonfiguration  $|\Phi\rangle$ , siehe oben. Zu beachten ist, dass bestimmte Coulomb-Streuprozesse zwei Einteilchenzustände involvieren können, sodass ein Produkt von zwei Greenschen Funktionen in Gl. (2.45) auftaucht. Die obige Ersetzung entspricht einer Substitution der freien Teilchen durch Quasiteilchen mit einer komplexen spektralen Struktur, vermittelt durch die

Wechselwirkungsprozesse, die in der retardierten Greenschen Funktion

$$G_i^r(t) = -\theta(t)i \langle \Phi | a_i(t) a_i^\dagger + a_i^\dagger a_i(t) | \Phi \rangle \quad (2.47)$$

enthalten sind.

Ersetzt man die Exponentialfaktoren in Gl. (2.44) durch retardierte Greensche Funktionen, so erhält man den folgenden Ausdruck für die Übergangsraten

$$\gamma_{IJ} = 2\text{Re} \int_0^\infty dt G_i^r(t) G_j^{r,*}(t) D_{i,j}^>(t), \quad (2.48)$$

worin

$$D_{i,j}^>(t-t') = \sum_{\mathbf{q}} |M_{ij}^{\text{LO}}(\mathbf{q})|^2 \left\{ (1 + N_{\text{LO}}) e^{\mp i\omega_{\text{LO}}(t-t')} + N_{\text{LO}} e^{\pm i\omega_{\text{LO}}(t-t')} \right\} \quad (2.49)$$

der Phonon-Propagator im thermischen Gleichgewicht ist, vgl. Abschnitt 4.3.2. Die Folge der Quasiteilchen-Renormierungen wird deutlich, wenn Gl. (2.48) in Bezug auf die Spektralfunktion ausgedrückt wird, die durch Fouriertransformation der retardierten Greenschen Funktionen

$$\hat{G}_i(\omega) = -1/\pi \text{Im } G_i^r(\omega) \quad (2.50)$$

gemäß

$$\begin{aligned} \gamma_{IJ} &= 2\pi \sum_{\mathbf{q}} |M_{ij}^{\text{LO}}(\mathbf{q})|^2 \int \int d\omega d\omega' \hat{G}_i(\omega) \hat{G}_j(\omega') \\ &\times \left\{ (1 + N_{\text{LO}}) \delta(\omega - \omega' + \omega_{\text{LO}}) + N_{\text{LO}} \delta(\omega - \omega' - \omega_{\text{LO}}) \right\} \end{aligned} \quad (2.51)$$

erhalten werden kann. Anstatt einer einzelnen Frequenz des Teilchens alleine weisen die Quasiteilchen ein erweitertes Energiespektrum mit zusätzlichen Resonanzen durch höhere Ordnungsprozesse (Multi-Phonon-Emission and -Absorption) auf [249]. Die Spektralfunktion spiegelt diese Eigenschaften wider und die Streuraten durch LO-Phonon-Emission oder -Absorption wird durch den Überlapp

$$\int d\omega \hat{G}_i(\omega \mp \omega_{\text{LO}}) \hat{G}_j(\omega) \quad (2.52)$$

zwischen den Spektralfunktionen für die Anfangs- und Endzustände bestimmt [84, 249]. Dies macht den Unterschied zwischen Gl. (2.44), die einen „Phonon Bottleneck“ vorhersagt, und dem renormierten Ergebnis in Gl. (2.51) aus, wo die  $\delta$ -artige Energieerhaltung nun durch das spektrale Kontinuum von  $\hat{G}(\omega)$  erfüllt werden kann.

Für die Berechnung der retardierten Greenschen Funktion verwenden wir die spektrale Kada-

noff-Baym-Gleichung (2.46) mit der Selbstenergie

$$\begin{aligned} \Sigma_i^r(t-t') = & \delta(t-t') \left\{ \Sigma_i^{\text{HF}}(t)|_{\text{Coul}} + \Sigma_i^{\text{H}}(t)|_{\text{LO}} \right\} \\ & + \theta(t-t') \left\{ \Sigma_i^>(t-t')|_{\text{Coul}} - \Sigma_i^<(t-t')|_{\text{Coul}} \right. \\ & \left. + \Sigma_i^>(t-t')|_{\text{LO}} - \Sigma_i^<(t-t')|_{\text{LO}} \right\}, \end{aligned} \quad (2.53)$$

worin die instantanen Beiträge die Hartree-Fock Energie-Renormierungen  $\Sigma_i^{\text{HF}}(t)|_{\text{Coul}}$  durch die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Quantenpunkt- und den Benetzungsschicht-Ladungsträgern und die Hartree-Wechselwirkung  $\Sigma_i^{\text{H}}(t)|_{\text{LO}}$  durch LO-Phononen beschreiben. Die Propagatoren  $\Sigma_i^>$  und  $\Sigma_i^<$  enthalten hierbei die Quasiteilchen-Renormierungen der Streuprozesse. Die Beiträge der Phonon- und Coulomb-Wechselwirkung mit den Ladungsträgern sind nicht unabhängig, sondern beeinflussen sich wechselseitig. Die selbstkonsistente Berücksichtigung beider Beiträge in der Selbstenergie führt hierbei zur einer renormierten Spektralfunktion, die sowohl polaronische als auch Coulomb-Effekte enthält [241]. Die Coulomb-Streuung trägt dabei durch Stoßverbreiterung zur Dämpfung bei und ändert die polaronische Greensche Funktion auf nicht-triviale Weise. Der Gesamteffekt beider Reservoirs ist daher nicht mehr additiv, da die nicht-perturbativen Übergangsraten den kombinierten Einfluss der Renormierungen beider Wechselwirkungen enthält. Für weitere Details verweisen wir an dieser Stelle auf Ref. [241].

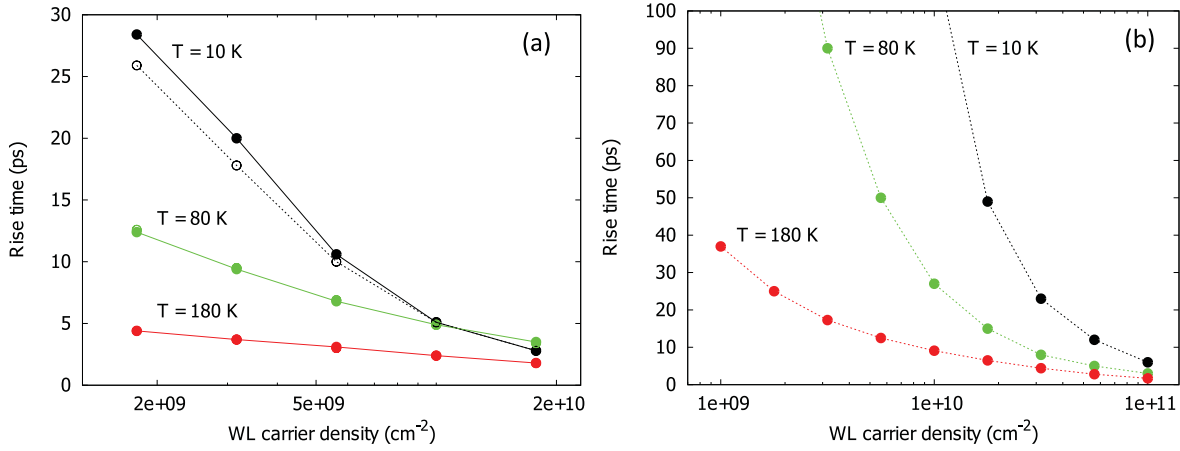
Die Beiträge der LO-Phononen zu  $\Sigma_i^>$  und  $\Sigma_i^<$  liefert die Polaron-Selbstenergie in selbstkonsistenter RPA<sup>6</sup> [105, 233]

$$\begin{aligned} \Sigma_i^>(t-t')|_{\text{LO}} &= \sum_j (1-f_j) G_j^r(t-t') D_{i,j}^>(t-t'), \\ \Sigma_i^<(t-t')|_{\text{LO}} &= - \sum_j f_j G_j^r(t-t') D_{i,j}^<(t-t'); \end{aligned} \quad (2.54)$$

dies beschreibt die Quasiteilchen-Renormierungen der Ladungsträger durch den Austausch von Phononen mit dem umgebenden Kristall, wobei die Summation die Zustände des Quantenpunktes und der Benetzungsschicht enthält. Im Falle der Quantenpunkt-Zustände bezieht sich die Besetzung  $f_j = n_j^\Phi$  des Einteilchenzustandes  $|j\rangle$  auf den Referenzzustand  $|\Phi\rangle$ . Für die Besetzung  $f_j$  der Benetzungsschicht verwenden wir eine thermische Gleichgewichtsverteilung. Die retardierten Greenschen Funktionen der Benetzungsschicht werden ohne den Quantenpunkt berechnet, was konsistent mit der Annahme ist, dass das Bad nicht vom System beeinflusst wird. Für die Beiträge  $\Sigma_i^>|_{\text{Coul}}$  und  $\Sigma_i^<|_{\text{Coul}}$  in Gl. (2.53) wird die Selbstenergie in zweiter Born'scher Näherung verwendet [105, 233, 241].

---

<sup>6</sup>engl.: random phase approximation



**Abbildung 2.3.:** (a) Anstiegszeit des TRDT Signals für den Quantenpunkt-Grundzustand als Funktion der Ladungsträgerdichte der Benetzungsschicht bei verschiedenen Temperaturen. Sowohl die Wechselwirkung zwischen den Ladungsträgern untereinander als auch zwischen Ladungsträgern und Phononen wurden im Rahmen einer nicht-perturbativen Theorie berücksichtigt, die gemeinsame Quasiteilchen-Renormierungen enthält. Gezeigt sind die Ergebnisse im Bild der Multi-Exziton-Konfiguration (ausgefüllte Kreise) sowie für die Einteilchenbeschreibung (offene Kreise). Für 80K und 180K sind die zugehörigen Resultate praktisch identisch. (b) Die nicht-perturbativen Streuraten wurden hier durch Boltzmann-Streuintegrale ersetzt.

#### 2.4.4. Ergebnisse

In Abb. 2.3 (a) sind die Ergebnisse für die Anstiegszeiten der Gesamtbesetzung (Elektron und Loch) des Grundzustandes, infolge der Wechselwirkung mit beiden Reservoiren, gezeigt, die für verschiedene Temperaturen und Ladungsträgerdichten in der Benetzungsschicht berechnet wurden. Generell zeigt sich eine höhere Temperaturabhängigkeit bei niedrigeren Dichten, was auf eine dominante Rolle der Phononen in diesem Regime hinweist. Bei niedrigen Temperaturen steigt die Übergangsrate mit zunehmender Ladungsträgerdichte in der Benetzungsschicht stark an. Zurückzuführen ist dies auf effiziente Coulomb-Streuprozesse, die durch Ladungsträger in der Benetzungsschicht assistiert werden. Diese Prozesse verursachen zudem eine starke Verbreiterung der Spektralfunktion und beschleunigen somit wechselseitig die Ladungsträger-Phonon-Streuung. Geht man zu höheren Temperaturen, so wird die Dichteabhängigkeit durch die starken Beiträge der Phononen abgeschwächt. Der allgemeine Trend sowie die quantitativen Ergebnisse für die Übergangsraten sind dabei in guter Übereinstimmung mit dem Experiment, siehe Abb. 2.2. Hierbei spielen Renormierungseffekte eine zentrale Rolle. Um dies zu demonstrieren, verwenden wir zum Vergleich eine Einteilchenbeschreibung und berechnen die Übergangsraten störungstheoretisch, entsprechend Fermis goldener Regel. In diesem Fall hängen die Raten nur noch von den freien Energien der Ladungsträger ab und Energierenormierungen durch angeregte Ladungsträger (sowohl im Quantenpunkt als auch in der Benetzungsschicht).

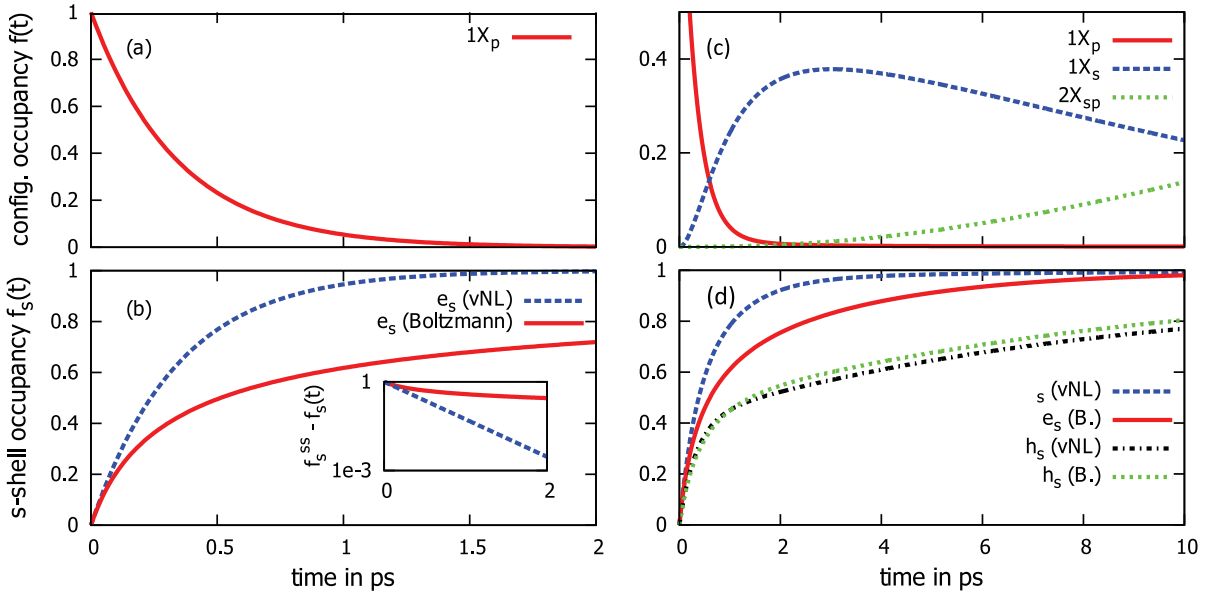


schicht) werden vernachlässigt. Die zugehörigen Anstiegszeiten sind in Abb. 2.3 (b) dargestellt und zeigen in Bezug auf die Dichte- und Temperaturabhängigkeit ein Verhalten, das sich von den experimentellen Ergebnissen deutlich unterscheidet. Wie sich gezeigt hat, ermöglicht die in der Berechnung der Übergangsraten verwendete renormierte Spektralfunktion eine Vielzahl an Streukanälen im Vergleich zu einer Beschreibung mit freien Energien. Polaronische Renormierungen erzeugen zusätzliche Seitenbänder, die durch die Coulomb-Wechselwirkung mit wachsender Anregungsdichte verbreitert werden, was insbesondere die Resonanzbedingung der nahezu konstanten LO-Dispersion aufweicht.

Ein Vergleich zwischen der Vielteilchenbeschreibung im Konfigurationsbild (ausgefüllte Kreise) und der Einteilchenbeschreibung (offene Kreise) in Abb. 2.3 (a) zeigt, dass lediglich bei tiefen Temperaturen signifikante Unterschiede bestehen. Die Anstiegszeit wird im wesentlichen durch den Einfangprozess bestimmt, da dieser langsamer als die anschließende Relaxation innerhalb des Quantenpunktes ist. Der dominante Beitrag zum Ladungsträgereinfang erfolgt durch den Übergang eines Ladungsträgers von einem Benetzungsschicht- in einen Quantenpunkt-Zustand, assistiert durch Phononen oder durch Streuung eines Ladungsträgers in der Benetzungsschicht zu höheren Energien. Dieser Prozess involviert lediglich einen Quantenpunkt-Zustand, sodass Ladungsträger-Korrelationen approximativ behandelt werden können.

Tatsächlich ist die Relevanz von Ladungsträger-Korrelationen wesentlich von der konkreten Anregungssituation beeinflusst. Um dies zu illustrieren, betrachten wir im Folgenden die Ladungsträgerdynamik im Quantenpunkt unter dem Einfluss der Coulomb-Streuprozesse und nehmen an, dass der Quantenpunkt in einem Zustand präpariert wurde, für den das  $p$ -Exziton mit einer Wahrscheinlichkeit eins realisiert ist. Dies ist durch  $\rho_0 = |1X_p\rangle\langle 1X_p|$  im Konfigurationsbild und  $f_1 = f_4 = 1$ ,  $f_2 = f_3 = 0$  im Einteilchenbild beschrieben (vgl. Abb 2.1). Zu beachten ist, dass dieser Anfangszustand nicht korreliert und daher in beiden Bildern äquivalent ist. Dies entspricht einem inkohärenten  $p$ -Exziton, da keine nicht-diagonal Elemente von  $\rho$  betrachtet werden. Auf diese Weise können die Effekte der Korrelationen auf die Ladungsträger-Streuung untersucht werden, da diese nicht durch Kohärenzeffekte beeinflusst werden.

Ergebnisse für die Zeitentwicklung für verschiedene Ladungsträgerdichten in der Benetzungsschicht sind in Abb. 2.4 gezeigt. Als Umgebungsparameter nehmen wir an, dass das Reservoir von Ladungsträgern in der Benetzungsschicht mit der Dichte  $n_{WL}$  eine Temperatur von  $T = 77\text{ K}$  besitzt. Im Grenzfall verschwindender Ladungsträgerdichte sind nahezu alle Streuprozesse unterdrückt, da sie eine endliche Besetzung der Elektron- und Lochzustände in der Benetzungsschicht erfordern. Der einzige verbleibende Streuprozess ist die Quantenpunkt-assistierte Ausstreuung eines Lochs in der  $p$ -Schale in die Benetzungsschicht, begünstigt durch die Nichtbesetzung der Lochzustände in der Benetzungsschicht. Aus diesem Grund und durch die fehlende Abschirmung der Wechselwirkung zwischen Quantenpunkt und Benetzungsschicht ist die zugehörige Streurrate maximal für eine verschwindende Dichte in der Benetzungsschicht. Dieser Mechanismus wurde bereits in Ref. [281] betrachtet, um eine schnelle Ladungsträger-



**Abbildung 2.4.:** Zeitentwicklung des Quantenpunkt-Systems bei  $T = 77$  K für den Anfangszustand eines Quantenpunkt  $p$ -Exzitons bei einer Ladungsträgerdichte in der Benetzungsschicht von  $n_{WL} = 0 \text{ cm}^{-2}$  (a)–(b) und  $n_{WL} = 11^{10} \text{ cm}^{-2}$  (c)–(d). Es sei auf den Unterschied in der Zeitachse hingewiesen. (a) und (c) zeigen die Besetzungen einiger ausgewählter Konfigurationen, siehe Abb. 3.2. (b) und (d) enthalten die Besetzung der  $s$ -Schalen-Zustände  $|2\rangle$  ( $h_s$ ) und  $|3\rangle$  ( $e_s$ ) in beiden Bildern (vNL: von-Neumann-Lindblad-Gleichung, B.: Boltzmann-Gleichung). Eingebettete Figur: semi-logarithmischer Plot der Differenz zur Gleichgewichtsbesetzung  $f_s^{ss}$  als Funktion der Zeit in ps.

Relaxation bei niedriger Ladungsträgerdichte in der Benetzungsschicht zu berücksichtigen.

Die Präsenz eines einzelnen Lindblad-Terms in Gl. (2.31), der die Dynamik des  $p$ -Exzitons beeinflusst, führt auf einen rein exponentiellen Abfall der Besetzung des  $p$ -Exzitons und eine simultane Erhöhung der Elektronenbesetzung in der  $s$ -Schale. Im Gegensatz dazu konvergiert die Boltzmann-Gleichung  $\propto t^{-1/2}$  zu dem selben stationären Zustand und ist signifikant langsamer als eine exponentielle Konvergenz. Zu beachten ist, dass im Fall verschwindender Ladungsträgerdichte der Gleichgewichtszustand kein thermischer Zustand ist. Die Ursache liegt in dem fehlenden Energie- und Teilchenaustausch mit der Benetzungsschicht. Trotzdem zerfallen alle Korrelationen mit der Zeit, sodass der stationäre Wert in beiden Bildern gleich ist.

Die Unterschiede zwischen beiden Bildern sind wie zuvor weniger signifikant für höhere Ladungsträgerdichten in der Benetzungsschicht, was bedeutet, dass Korrelationen infolge des Pauli-Prinzips unwichtiger werden und in diesem Regime schneller abklingen. Ursache hierfür ist die Tatsache, dass viele Konfigurationen durch effektive Streukanäle verbunden sind, während bei niedriger Dichte nur wenige Kanäle existieren, sodass die Information darüber, ob Zustände simultan besetzt sind, viel länger im Quantenpunkt-System erhalten bleibt. In anderen Worten, eine kleine Anzahl von Prozessen, die das System aus dem Anfangszustand

herausbringen, wird zu einem nahezu exponentiellen Verhalten in der voll korrelierten Dynamik führen, welche nicht durch das nicht-exponentielle Verhalten der Boltzmann-Gleichung reproduziert werden kann. Mit steigender Anzahl an Streukanälen wird diese Diskrepanz abgeschwächt und die Praktikabilität zur Beschreibung des Systems durch die Boltzmann-Gleichung nimmt zu.

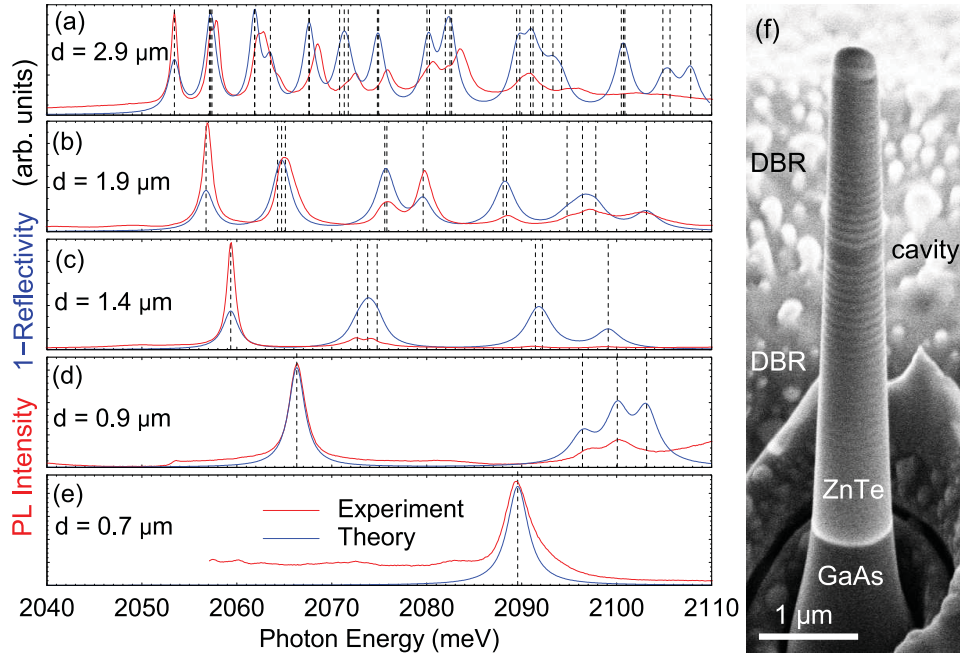


## Kapitel 3

# Theoretische Beschreibung des Einzel-Quantenpunkt-Lasers

Mikrokavitäten ermöglichen einen dreidimensionalen Einschluss des elektromagnetischen Feldes, wobei die Ausdehnung der Kavität von der Größenordnung der Lichtwellenlänge ist und basieren zumeist auf den effizienten Mechanismen der Bragg- oder totalen internen Reflektion, bzw. einer Kombination beider. Als Folge der reduzierten Dimensionalität ergibt sich ein Spektrum wohl-separierter, scharfer Moden, was in Abb. 3.1 anhand von Messungen der Photolumineszenz an Mikro-Pillarstrukturen unterschiedlicher Größe demonstriert ist. Hierdurch wird eine Situation ermöglicht, in der ein Interband-Übergang des Quantenpunktes mit einer einzelnen optischen Mode wechselwirkt und sich entweder im nichtperturbativen Regime starker Kopplung oder im perturbativen Regime schwacher Kopplung unter dem Einfluss des Purcell-Effekts [218, 283] befindet. Eine Verstärkung der spontanen Emissionsrate kann im zweiten Regime, als Konsequenz der Erhöhung der photonischen Zustandsdichte, erreicht werden und ist ein wichtiger Bestandteil in der Entwicklung von Mikrokavitätslasern. Dennoch bleibt der Quantenpunkt selbst in den besten aktuellen Mikrokavitäten schwach an das Kontinuum von Hintergrund- (nichtresonanten) Moden gekoppelt, was zu einer Dissipation im elektronischen System führt. Die Realisierung eines Lasers mit nur einem einzelnen Quantenpunkt als Gewinnmaterial stellt die maximale Form der Miniaturisierung dar und erfordert eine effiziente Kopplung an die Kavitätsmode. Infolgedessen können unter Umständen beide Regime erreicht werden, in dem Sinne, dass das System mit steigender Anregungsleistung von starker zu schwacher Kopplung übergeht [201, 227]. Insbesondere die Möglichkeit, starke Kopplung bis in den Laserbetrieb aufrecht zu erhalten, ist von aktuellem Interesse [87, 136, 202, 227].

Die Laser-Emission eines einzelnen Quantenpunktes stellt erhebliche Anforderungen an das Wechselspiel von Materialparametern und dissipativen Effekten. Einerseits wird eine große Licht-Materie-Kopplungsstärke  $g$  (bestimmt durch die Quantenpunkt-Oszillatorstärke und den



**Abbildung 3.1.:** (a) - (e) Messungen der Mikro-Photolumineszenz (rote Linien) von Mikropillar-Strukturen mit unterschiedlichen Durchmessern bei einer Temperatur von 80 K. Die transversalen optischen Moden sind deutlich sichtbar, wie durch die theoretischen Spektren bestätigt wird, die mit einer vektoriellen Transfermatrix-Methode berechnet wurden (blaue Linien). Die vertikalen schwarzen gestrichelten Linien zeigen die energetische Position jeder Mode entsprechend der Simulationen. (f) Rasterelektronenmikroskopische Aufnahme eines Mikropillars, der mit fokussierten Elektronenstrahlen präpariert wurde. Für Details siehe Ref. [126, 148].

räumlichen wie spektralen Überlapp des Quantenpunktes und des Feldes der Kavität) benötigt, um eine Photonenproduktionsrate zu erreichen, welche die Kavitätsverluste übersteigt. Andererseits hängt die maximale Photonen-Emission dabei nicht nur von der Rekombinationsrate ab, sondern beruht auch auf einem schnellen Einfang von Ladungsträgern in das Laser-Niveau, wobei eine Grenze durch die Sättigung infolge von Pauli-blocking gesetzt ist. Die schnelle Ladungsträgerdynamik, die benötigt wird, um das gekoppelte System aus Quantenpunkt und Kavität in die stimulierte Emission zu treiben, führt zu Dephasierung der optischen Polarisierungen und verbreitert die Linie des Laser-Überganges. Wenn die Breite vergleichbar zur Licht-Materie-Kopplungsstärke wird, so ist eine starke Kopplung nicht länger möglich.

Ziel dieses Kapitels ist es, eine quantitative Analyse des Einzel-Quantenpunkt-Lasers zu geben, die auf den Halbleitereigenschaften des Quantenpunkt-Emitters basiert. Wir berücksichtigen explizit die elektronische Struktur, die mehrere lokalisierte Zustände aufweist, sowie die Anregung mehrerer Ladungsträger. Ausgehend von den Einteilchenzuständen bestimmen wir die Multi-Exziton-Zustände durch die Coulomb-Wechselwirkung und deren Emissionsbeiträge in die Kavitätsmode. Zudem berücksichtigen wir den Zusammenhang zwischen den Streuprozessen, die Ladungsträger für die optischen Übergänge bereitstellen, und der anregungsinduzierten

Dephasierung [227]. Ein wichtiger Aspekt in diesem Kapitel ist das Wechselspiel mehrerer elektronischer Konfigurationen während des Emissionsprozesses.

Die in diesem Kapitel gezeigten Ergebnisse basieren im Wesentlichen auf [87, 88].

### 3.1. Theoretische Beschreibung eines Einzel-Quantenpunktes in einer Mikrokapazität

Im Folgenden betrachten wir einen selbstorganisierten Quantenpunkt mit diskreten Einteilchenzuständen für Elektronen und Löcher. Um das eingebettete Quantenpunkt-Mikrokapazitätssystem zu modellieren, bestimmen wir die Dichtematrix  $\rho(t)$  im Zustandsraum, der durch die gebundenen Quantenpunkt-Zustände und die Fock-Zustände der Kavitätsmode bestimmt ist. Der elektronische Teil ist auf natürliche Weise durch das endliche Einschlusspotential für Elektronen und Löcher beschränkt, und führt zu einer endlichen Zahl lokalisierter Zustände, die durch Ladungsträger besetzt werden, siehe Abschnitt 2.3. In Bezug auf Photonen der Kavität betrachten wir eine hinreichend große maximale Photonenzahl. Die von-Neumann-Lindblad-Gleichung für die Quantenpunkt-Photon Dichtematrix  $\rho(t)$  hat die Form

$$\frac{\partial}{\partial t}\rho = -i[H_{\text{e-pt}} + H_{\text{e-e}}, \rho] + \mathcal{L}_{\text{nl}}\rho + \mathcal{L}_{\text{C}}\rho + \mathcal{L}_{\text{scatt}}\rho + \mathcal{L}_{\text{capt}}\rho, \quad (3.1)$$

wobei wir das Wechselwirkungsbild bzgl.  $H_e^0 + H_{\text{pt}}^0$  verwendet haben. Die nichtperturbative Licht-Materie-Wechselwirkung zwischen dem Interband-Übergang des Quantenpunktes und dem quantisierten Feld einer Mikrokapazitätsmode ist durch den Jaynes-Cummings Hamiltonoperator

$$H_{\text{e-pt}} = \sum_{i,j,\sigma} g_{ij\sigma} \left[ b_{\sigma}^{\dagger} a_i^{\dagger} a_j + b_{\sigma} a_j^{\dagger} a_i \right] \quad (3.2)$$

beschrieben. Hierbei sind  $a^{\dagger}, a$  fermionische Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren für Elektronen, wobei sich der Index  $i$  ( $j$ ) auf die Zustände des Valenzbandes (Leitungsbandes) bezieht.  $b_{\sigma}^{\dagger}$  und  $b_{\sigma}$  sind die bosonischen Operatoren für die Photonen in der Lasermode mit der Polarisierung  $\sigma$  und  $g_{ij\sigma}$  ist die Licht-Materie-Kopplungsstärke für das entsprechende elektronische Niveau und die Kavitätsmode. In den meisten Fällen ist der energetische Abstand zwischen lokalisierten Zuständen groß genug (mehrere 10 meV), sodass es hinreichend ist, nur eine Kopplung eines Rekombinationskanals, z.B. den der  $s$ -Schale, an die Kavitätsmode zu berücksichtigen. Im Folgenden nehmen wir zusätzlich eine Situation an, in der beide Polarisationsmoden entartet sind und eine gleiche Kopplungsstärke aufweisen, sodass unter diesen Voraussetzungen  $g_{ij\sigma} \equiv g$  ist.

Im Gegensatz zum atomaren Modell beginnen wir ausgehend von den Einteilchenzuständen und

berücksichtigen explizit den Coulomb-Hamiltonoperator  $H_{e-e}$  zwischen den Quantenpunkt-Ladungsträgern in der von-Neumann-Gleichung. Unter Verwendung von Gl. (2.9) ist die numerische Lösung äquivalent zu einer CI (configuration interaction) Rechnung, da diese die Zeitentwicklung des Systems in Bezug auf die wechselwirkenden Zustände beschreibt, die ebenfalls Eigenzustände des exakt diagonalisierten CI Hamiltonoperators sind. In der Vergangenheit wurden CI Rechnungen für Quantenpunkte erfolgreich durchgeführt [12, 16, 25, 107]. Auch wenn der volle Coulomb-Hamiltonoperator berücksichtigt werden kann, verwenden wir entsprechend der Diskussion in Abschnitt 2.2 eine approximative Form, die diagonal in der Konfigurationsbasis ist.

Selbstorganisierte Quantenpunkte sind im Gegensatz zu isolierten Atomen eingebettete Systeme und daher stark durch die Umgebung beeinflusst. Delokalisierte Zustände existieren in energetischer Nachbarschaft der lokalisierten Elektron- und Loch-Zustände. Für Bauteilanwendungen werden Ladungsträger präferiert in die delokalisierten Zustände angeregt. Die Ladungsträgerstreuung ist ein wichtiger Bestandteil der Physik Quantenpunkt-basierter Laser. Wie bereits in Abschnitt 2.4 gezeigt wurde, werden Ladungsträger auf einer ps-Zeitskala in den Quantenpunkt eingefangen. Streuung zwischen den lokalisierten und delokalisierten Zuständen sowie innerhalb des Quantenpunktes werden durch die Coulomb-Wechselwirkung und durch LO-Phononen ermöglicht.

Wir beschreiben die Ladungsträgerstreuung zwischen den Quantenpunkt-Zuständen mit den Lindblad-Termen

$$\mathcal{L}_{\text{scatt}}\rho = \sum_{i,j} \frac{\gamma_{ij}}{2} \left( 2a_i^\dagger a_j \rho a_j^\dagger a_i - a_j^\dagger a_i a_i^\dagger a_j \rho - \rho a_j^\dagger a_i a_i^\dagger a_j \right), \quad (3.3)$$

wobei  $\gamma_{ij}$  die Intraband-Streuratens zwischen den Niveaus  $j$  und  $i$  sind, vgl. Abschnitt 2.4. Zu beachten ist, dass wir durch diese Wahl Korrelationseffekte infolge der Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Ladungsträgern in Bezug auf die Berechnung der Streuratens vernachlässigen. Wie wir allerdings im vorigen Kapitel gezeigt haben, spielen diese bei einer starken Anregung von Ladungsträgern in den delokalisierten Zustände eine vernachlässigbare Rolle.

Auf ähnliche Weise kann die Ladungsträgerstreuung zu einem Einfang von Elektronen und Löchern aus den delokalisierten Zuständen in die Quantenpunkt-Zustände, und umgekehrt, führen. Die zugehörigen Lindblad-Terme

$$\mathcal{L}_{\text{capt}}\rho = \sum_i \frac{\gamma_i^{\text{in}}}{2} \left( 2a_i^\dagger \rho a_i - a_i a_i^\dagger \rho - \rho a_i a_i^\dagger \right) + \frac{\gamma_i^{\text{out}}}{2} \left( 2a_i \rho a_i^\dagger - a_i^\dagger a_i \rho - \rho a_i^\dagger a_i \right) \quad (3.4)$$

enthalten die Streuratens  $\gamma_i^{\text{in}}$  von den delokalisierten Zuständen in die Quantenpunkt-Zustände  $i$  und  $\gamma_i^{\text{out}}$  für den entgegengesetzten Prozess.

In Ref. [227] wurde eine Situation studiert, wo im Regime starker Anregung die Ansamm-



lung von Ladungsträgern in den delokalisierten Benetzungsschicht-Zuständen zu anregungsinduzierten Effekten führt. Mit zunehmender Ladungsträgerdichte in der Benetzungsschicht nehmen die Dephasierungsraten durch die größere Anzahl möglicher Streukanäle zu und zur gleichen Zeit wird die Coulomb-Wechselwirkung durch Abschirmung reduziert. Als ein Resultat wurden Energieverschiebungen und Verbreiterungen der Quantenpunkt-Emissionslinie in Abhängigkeit von der Anregungsdichte beobachtet, z.B. in Ref. [175]. Andererseits wurden in anderen Experimenten, wo die Anregung durch kurze Laserpulse erfolgt ist [153, 232], keine Linienverschiebungen detektiert. In diesem Fall verschwindet die durch die Pumpanregung erzeugte Ladungsträgerdichte in der Benetzungsschicht rapide, z.B. durch den Einfang in die lokalisierten Zustände oder andere Prozesse, wie Diffusion von Ladungsträgern aus dem Anregungsbereich. Linienverschiebungen sind daher nicht in den gemessenen Spektren aktueller Experimente zum Einzel-Quantenpunkt-Laser [202] zu finden. Um diese Situation im Folgenden zu beschreiben, nehmen wir an, dass die Stärke der Coulomb-Wechselwirkung und die Streuraten nur durch die Systemeigenschaften selbst bestimmt sind und unabhängig von der Anregungsdichte fixiert bleiben. Es sei betont, dass experimentelle Belege für beide Situationen existieren.

Das System ist zudem an über andere Photonenmoden die Umgebung gekoppelt. Ladungsträger-Rekombination durch spontane Emission in das Kontinuum, das nicht an der stimulierten Emission beteiligt ist, wird über den folgenden Lindblad-Term [46]

$$\mathcal{L}_{\text{nl}}\rho = \sum_{i,j} \frac{\gamma_{ij}^{\text{nl}}}{2} \left( 2a_i^\dagger a_j \rho a_j^\dagger a_i - a_j^\dagger a_i a_i^\dagger a_j \rho - \rho a_j^\dagger a_i a_i^\dagger a_j \right) \quad (3.5)$$

modelliert und beschreibt eine Interband-Rekombination eines Elektrons im Zustand  $j$  und eines Loches im Zustand  $i$  mit einer Rate  $\gamma_{ij}^{\text{nl}}$ . Die endliche Lebensdauer der Photonen in der Kavität wird durch

$$\mathcal{L}_{\text{C}}\rho = \frac{\kappa}{2} \left( 2b\rho b^\dagger - b^\dagger b\rho - \rho b^\dagger b \right) \quad (3.6)$$

berücksichtigt [46], wobei die Verlustrate  $\kappa = \omega/Q$  direkt mit der Güte  $Q$  der zugehörigen Kavitätsmode bei der Energie  $\omega$  verbunden ist.

## 3.2. Charakteristische Größen

Die Möglichkeit, die volle Zeitentwicklung des Dichteoperators zu erhalten, ist in Halbleitersystemen ein seltener Luxus und nur für eine kleine Anzahl elektronischer Konfigurationen möglich. Selbst für relativ kleine Systeme mit nur zwei gebundenen Schalen für Elektronen und Löcher sind 256 elektronische Konfigurationen möglich. Für einen Quantenpunkt mit sechs Niveaus (z.B. bei entarteten  $p$ -Zuständen) steigt diese Zahl bereits auf 4096. Zusätzlich müssen im

Allgemeinen die Freiheitsgrade für Photonen zu zwei unterschiedlichen Polarisationsrichtungen berücksichtigt werden, mit einer Fock-Basis mit typischerweise bis zu 20 Photonen pro Lichtpolarisation. Bereits für den ersten Fall ist die typische Dimension des Dichteoperators  $256 \times 20^2$ . Die Zeitentwicklung der von-Neumann-Gleichung muss den schnellsten Prozess (typischerweise von der Größenordnung  $1/\text{ps}$ ) im System auflösen, während die Entwicklung über mehrere Nanosekunden verfolgt werden muss, damit die Rekombinationsdynamik stationär wird. Daher ist diese Methode selbst für einen einzelnen Quantenpunkt numerisch anspruchsvoll und es überrascht nicht, dass verschiedene Techniken verwendet wurden [75, 89, 225, 269, 302], um ein Ensemble von Quantenpunkten in einer Mikrokavität zu beschreiben.

Stationäre Größen können berechnet werden, indem die von-Neumann-Gleichung für konstante Pumprate in der Zeit entwickelt wird, bis ein stationärer Zustand erreicht ist. Alternativ ist bei gepulster Anregung die gesamte Zeitentwicklung des Systems bekannt und kann verwendet werden, um die Systemdynamik zu beschreiben. Alle relevanten (Einteilchen-)Erwartungswerte können dann unter Verwendung von

$$\langle A \rangle = \text{Sp}\{\rho A\} \quad (3.7)$$

explizit berechnet werden. Von besonderem Interesse ist die Photonenstatistik

$$p_n = \rho_{nn} = \sum_j \langle n, j | \rho | n, j \rangle, \quad (3.8)$$

wobei die diagonalen Elemente der Dichtematrix  $\rho_{nn}$  erhalten werden können, indem die Spur über die elektronischen Freiheitsgrade  $j$  gebildet wird. Für ein System in einem thermischen, kohärenten oder Fock-Zustand ist die Verteilungsfunktion der Photonen bekannt und durch eine Exponential-, Poisson- oder delta-artige Verteilung, entsprechend der Besetzung des Fock-Zustandes gegeben. Speziell auf einer logarithmischen Skala besitzt ein thermischer Zustand eine lineare Abhängigkeit und entsprechend auch  $n!p_n$  für einen kohärenten Zustand. Ein Vergleich mit der berechneten Photonenstatistik erlaubt somit eine Charakterisierung des Lichtfeldes in der Kavität.

Hierzu hat Glauber einen Satz von Korrelationsfunktionen eingeführt, um quantisierte elektromagnetische Felder zu charakterisieren [93]. Die Korrelationsfunktion erster Ordnung

$$g^{(1)}(t, \tau) = \frac{\langle b^\dagger(t)b(t+\tau) \rangle}{\langle b^\dagger(t) \rangle \langle b(t+\tau) \rangle} \quad (3.9)$$

beschreibt die Kohärenz der Emission, während die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung, oder Autokorrelationsfunktion,

$$g^{(2)}(t, \tau) = \frac{\langle b^\dagger(t)b^\dagger(t+\tau)b(t+\tau)b(t) \rangle}{\langle b^\dagger(t)b(t) \rangle \langle b^\dagger(t+\tau)b(t+\tau) \rangle} \quad (3.10)$$

Informationen über die statistischen Eigenschaften des Lichtfeldes enthält; diese können entsprechend mit einem Michelson Interferometer und einem Hanbury-Brown und Twiss Aufbau experimentell bestimmt werden. Im stationären Fall hängen diese Größen nur noch von der Differenzzeit  $\tau$  ab, wobei die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung für  $\tau = 0$  ein Maß für die Wahrscheinlichkeit ist, zwei Photonen zur gleichen Zeit anzutreffen. Folglich ist diese Größe über

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle n^2 \rangle - \langle n \rangle^2}{\langle n \rangle^2} \quad (3.11)$$

mit dem ersten und zweiten Moment der Photonenstatistik verknüpft, wobei  $\langle n^k \rangle = \sum_n n^k p_n$  ist. Die Emission einer thermischen, kohärenten oder Einzel-Photonen-Quelle ist durch  $g^{(2)}(0)$  charakterisiert, mit entsprechenden Werten von 2, 1 und 0 bei Detektion einer Polarisationsrichtung [88]. Im Vergleich zur zufälligen Emission einer kohärenten Quelle, die mit einer Poission-Statistik assoziiert ist, weist die thermische Emission ein Photonen-Bunching und eine Quelle einzelner Photonen ein Photonen-Antibunching auf.

Bei niedriger Anregung ist die gesamte mittlere Photonenzahl für einen einzelnen Quantenpunkt als Gewinnmaterial sehr klein, sodass die Wahrscheinlichkeit, dass kein Photon die Kavitätsmode besetzt um Größenordnungen höher ist als die Wahrscheinlichkeit, ein oder mehrere Photonen vorzufinden. Entwickelt man Gl. (3.11) in eine Reihe in  $n$  und behält Terme bis zur zweiten Ordnung (dies ist sinnvoll, da  $p_n$  schnell mit  $n$  abfällt, s. Abb. 3.6), so erhält man im Grenzfall schwacher Anregung für die Autokorrelationsfunktion

$$g^{(2)} \approx 2p_2/p_1^2. \quad (3.12)$$

Wenn sowohl  $p_1$  als auch  $p_2$  nahe null sind, reagiert  $g^{(2)}(0)$  sehr sensitiv, da es ein Verhältnis kleiner Zahlen ist. Daher kann es instruktiver sein, stattdessen direkt die gesamte Photonenstatistik als Indikator für die Charakteristik des Lichtes zu betrachten. Auf der anderen Seite muss  $p_1 \gg p_2$  erfüllt sein, um ein Ergebnis für einen Einzel-Photonen-Quelle zu erhalten, was intuitiv zu erwarten ist.

### 3.3. Einzel-Quantenpunkt-Emission und Lasing

Die Eigenschaften eines einzelnen Quantenpunktes in einer Mikrokavität unterscheidet sich in mehreren wichtigen Aspekten von denen eines Quantenpunkt-Ensembles. Bei niedriger Anregung erzeugt ein Ensemble thermisches Licht und arbeitet wie eine Licht-emittierende Diode (LED), während der einzelne Emitter in der Lage ist, einzelne, wohl-separierte und daher hoch geordnete Photonen zu emittieren [48]. Wie wir später diskutieren werden, geht diese Eigenschaft verloren, wenn die Lebensdauer der Kavitätsmode vergleichbar mit der spontanen

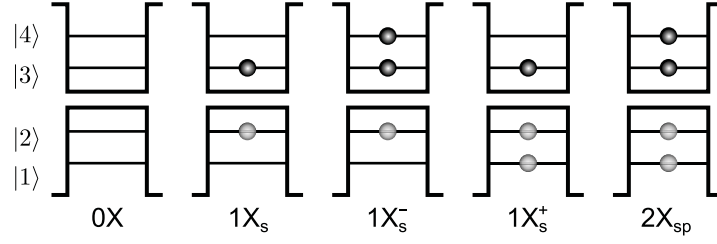
Emissionszeit des Emitters wird. Auf der anderen Seite kann bei hoher Anregung nicht garantiert werden, dass sich der einzelne Quantenpunkt in das Regime der stimulierten Emission treiben lässt. Zudem kann jede mögliche Übergangslinie im Emissionsspektrum des Quantenpunktes auf die Kavitätsmode gestimmt werden, wobei die Emissionscharakteristik stark zwischen diesen variieren kann.

Ein zentrales Thema ist die Anzahl relevanter elektronischer Konfigurationen, die im Quantenpunkt durch Besetzung der Einteilchenzustände entstehen. In atomaren Systemen führt die Coulomb-Wechselwirkung zu starken Energieverschiebungen und es ist typischerweise möglich, eine Situation zu finden, wo nur zwei elektronische Konfigurationen mit dem Feld der Kavität wechselwirken, während der Einfluss anderer Konfigurationen schwach ist [32]. In Halbleiter-Quantenpunkten ist auf der anderen Seite die Coulomb-Wechselwirkung durch die räumliche Ausdehnung der gebundenen Einteilchen-Wellenfunktionen im Einschlusspotential viel schwächer. Innerhalb eines Fensters von mehreren meV findet man die Übergangsenergien von mehreren Konfigurationen, die zur Emission in die Kavitätsmode beitragen können [227]. Zudem unterstützen nichtresonante Kopplungsmechanismen diese Situation, wie wir im Kapitel 4 ausführlich diskutieren werden.

Die nachfolgenden Ergebnisse wurden durch direkte numerische Lösung der von-Neumann-Lindblad-Gleichung erhalten, wie wir im vorigen Abschnitt diskutiert haben. Aus der Zeitentwicklung der Dichtematrix erhalten wir die Photonenstatistik, so dass zentrale Größen wie die mittlere Photonenzahl und die Autokorrelationsfunktion bestimmt werden können. Ferner bekommen wir Zugang zum Emissionsspektrum, das Informationen über die Oszillatorstärke, die Dephasierung optischer Übergänge sowie die Übergangsenergien enthält.

### 3.3.1. Multi-Konfigurationsmodell

Die Wahl der Quantenpunkt-Einteilchenzustände bestimmt die möglichen System-Konfigurationen, die durch sukzessive Besetzung dieser Zustände mit Ladungsträgern entstehen. Für einen Quantenpunkt mit zwei gebundenen Schalen für Elektronen und Löcher, was wir im gesamten Kapitel betrachten wollen, ist die niedrigste optisch aktive Konfiguration das Exziton, welches je ein Elektron und ein Loch zu unterschiedlichen Spin-Richtungen enthält. Der höchste angeregte Multi-Exziton-Zustand entspricht dem gefüllten Quantenpunkt und besteht aus vier Elektron-Loch-Paaren. Insgesamt sind 256 Konfigurationen möglich, siehe Abschnitt 2.3. Die Basis des wechselwirkenden Ladungsträger-Photon-Systems enthält zusätzlich die Fock-Zustände von zwei orthogonalen Polarisationsrichtungen der Photonen. Die numerische Zeitintegration der von-Neumann-Lindblad-Gleichung in so einer großen Basis stellt eine Herausforderung dar.



**Abbildung 3.2.:** Beispiele für Konfigurationen des gleichen Quantenpunktes wie in Abb. 2.1, falls nur Ladungsträger einer Spinrichtung betrachtet werden. Gezeigt sind der Grundzustand und alle optisch aktiven Konfigurationen, die eine Rekombination an der  $s$ -Schale erlauben. Die Gesamtzahl möglicher Konfigurationen beträgt 16.

**Konfigurationsraum in der Beschreibung eines Spinsubsystems** Um die Diskussion des Wechselspiels zwischen den Konfigurationen transparent und den numerischen Aufwand praktikabel zu halten, sollte die Anzahl an System-Konfigurationen klein genug sein. Unter bestimmten Voraussetzungen kann das Verhalten des Einzel-Quantenpunkt-Lasers auf ein Spinsubsystem abgebildet werden, sodass es nicht notwendig ist, Ladungsträger beider Spinrichtungen explizit zu berücksichtigen. Die Gültigkeit dieses Vorgehens hängt jedoch von den konkreten Werten der Coulomb-Matrixelemente sowie von den Eigenschaften des Anregungs- und des Messprozesses ab [88].

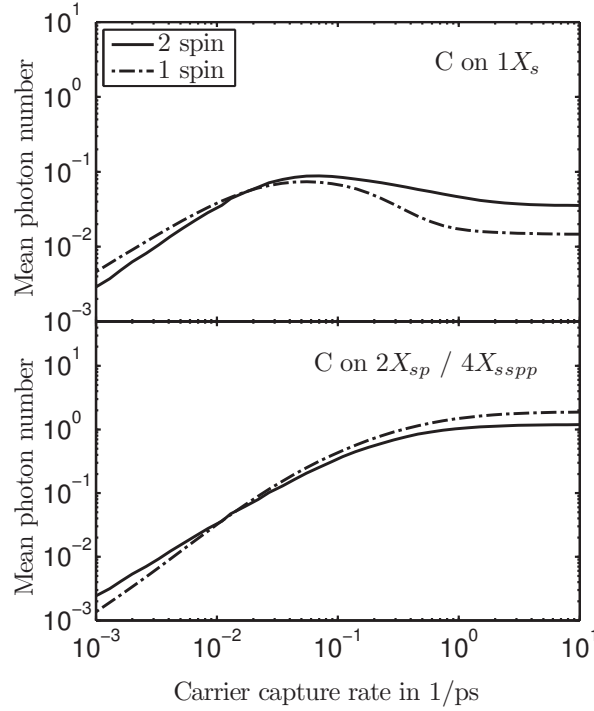
Erfolgt die Anregung des Systems spinpolarisiert, so ist die Beschränkung der Konfigurationen auf ein Spinsubsystem eine hervorragende Näherung. Spin-flip-Prozesse können hierbei vernachlässigt werden, da diese in den hier betrachteten Systemen eine Größenordnung langsamer als die Dynamik der Relaxations- und Rekombinationsprozesse sind [209, 246]. Haben stattdessen beide Spinrichtungen Anteil an der Ladungsträger- und Rekombinationsdynamik, so kann die Beschreibung in einem Spinsubsystem als Näherung im folgenden Sinne verstanden werden: Vorausgesetzt, die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Ladungsträgern ist näherungsweise diagonal in der Basis der Konfigurationen, d.h. eine Mischung der Konfigurationen kann vernachlässigt werden, siehe Gl. (2.11), so ist jede Konfiguration unabhängig von der Anwesenheit weiterer Ladungsträger mit dem entgegengesetzten Spin. Folglich ist das Exziton nach wie vor die erste optisch aktive Anregung des Systems. Jedoch fasst sie weitere Konfigurationen effektiv zusammen, wie z.B. die Trionen und das Biexziton des Grundzustandes, da diese zusätzliche Ladungsträger mit entgegengesetztem Spin enthalten. Höher angeregte Konfigurationen besitzen stets einen Ladungsträger in der  $p$ -Schale und können insofern als „heiße“ Konfigurationen bezeichnet werden. Der höchste Multi-Exziton-Zustand ist dann das  $sp$ -Biexziton und verhält sich ähnlich zur Konfiguration des gefüllten Quantenpunktes  $4X_{sspp}$  in der Zwei-Spin-Beschreibung (vgl. Abb. 2.1).

Eine Beschreibung im Konfigurationsraum eines Spinsubsystems ist aus den folgenden Gründen gerechtfertigt: Energieshifts, die durch zusätzliche Ladungsträger der zweiten Spinrichtung in-

duziert werden (verantwortlich für die Bindungsenergie des Grundzustand-Biexzitons), sind typischerweise klein im Vergleich zur Coulomb-Austauschenergie (verantwortlich für den Energieabstand zwischen den „heißen“ Konfigurationen, mit zusätzlichen Ladungsträgern in der  $p$ -Schale). Bei höheren Anregungen kann die Verbreiterung der Emissionslinie, infolge einer Dephasierung der optischen Polarisation durch Streuprozesse, kleine Aufspaltungen zusätzlich überdecken. In diesem Regime ist zudem die Dynamik des Systems hauptsächlich durch die höchste Multi-Exziton-Konfiguration bestimmt und der Einfluss anderer Konfigurationen spielt nur eine untergeordnete Rolle. Dennoch kann im Allgemeinen die große Anzahl an möglichen Konfigurationen in der Zwei-Spin-Beschreibung die Systemdynamik modifizieren. Auch wenn diese Vereinfachung als Approximation zu sehen ist, so können in diesem Modell dennoch wichtige Schlussfolgerungen über die Beiträge konkurrierender Multi-Exziton-Zustände gezogen werden. Betrachtet man nur Ladungsträger im Subsystem eines Spins, so ist die Gesamtzahl an möglichen Konfigurationen des Quantenpunktes stark reduziert. In Abb. 3.2 sind jeweils der Grundzustand und die optisch aktiven Konfigurationen dargestellt. Ein direkter Vergleich mit der numerisch erheblich anspruchsvolleren Rechnung für beide Spinsubsysteme wird nachfolgend diskutiert.

In Abb. 3.3 sind Eingangs-/Ausgangs-Kennlinien, d.h. die mittlere Photonenzahl als Funktion der Ladungsträger-Einfangrate, eines Einzel-Quantenpunkt-Lasers gezeigt, wobei wir die Ergebnisse einer Rechnung mit beiden Spinsubsystemen und 256 elektronischen Konfigurationen mit einer Rechnung für einen Spin und 16 Konfigurationen vergleichen. Zwei Resonanzbedingungen werden betrachtet: Entweder ist das  $s$ -Exziton (oben) oder der höchste Multi-Exziton-Zustand (unten) auf die Kavitätsmode gestimmt. Die erste Konfiguration ist die bevorzugte bei schwacher Anregung, während letztere die Emission bei hoher Anregung dominiert. Aus den Ergebnissen können wir schlussfolgern, dass für die betrachtete Situation das Modell für einen Spin in der Lage ist, die relevante Physik in quantitativer Übereinstimmung abzubilden. Abweichungen zwischen beiden Modellen resultieren sowohl aus der höheren Anzahl möglicher Konfigurationen im Modell für zwei Spins als auch aus der unterschiedlichen energetischen Position der beitragenden Konfigurationen durch die Coulomb-Wechselwirkung. Zum Beispiel ist die kleinere mittlere Photonenzahl in der oberen Figur von Abb. 3.3 das Resultat einer größeren Verstimmung des  $sp$ -Biexzitons für die verwendeten Parameter, während in der Zwei-Spin-Beschreibung die zusätzliche Coulomb-Wechselwirkung den energetischen Abstand zwischen der Kavitätsmode und der Konfiguration, die dem vollen Quantenpunkt entspricht, reduziert (vgl. Ref. [88]). Eine detaillierte Diskussion der zugrunde liegenden Physik wird im verbleibenden Kapitel gegeben werden.

Schließlich möchten wir darauf hinweisen, dass jedes Spinsubsystem nur an eine zirkulare Lichtpolarisation koppelt. Unter der Annahme optischer Anregung mit zirkular polarisiertem Licht werden nur Ladungsträger in einem Spinsubsystem angeregt und die betrachtete (Spin-erhaltende) Ladungsträger-Relaxation und optischen Rekombinationsprozesse sind typi-



**Abbildung 3.3.:** Eingangs-/Ausgangs-Kennlinien für das Grundzustand-Exziton (**oben**) oder den höchsten Multi-Exziton-Übergang (**unten**) in Resonanz mit der Kavitätsmode C. Verglichen sind die Ergebnisse einer Rechnung mit einem Spin (gestrichelte Linie) und zwei Spins (durchgezogene Linie). Die Parameter sind in Abschnitt 3.3.2 beschrieben und mit Parametersatz A bezeichnet, wobei wir abweichend unterschiedliche Elektron- und Loch-Einhüllenden für die harmonischen Oszillator-Wellenfunktionen in der Berechnung der Coulomb-Matrixelemente verwenden, um eine typische Bindungsenergie von 1 meV für das Grundzustand-Biexziton zu erhalten.

scherweise schneller als Spin-flip Prozesse. In diesem Fall liefert das Modell für den einzelnen Spin eine angemessene Beschreibung.

### 3.3.2. Emissionscharakteristik im reduzierten Konfigurationsraum

Das Ziel vieler aktueller Experimente ist es, stimulierte Emission mit einem einzelnen Quantenpunkt-Emitter zu erreichen. In diesem Abschnitt analysieren wir die Situation, in der nur ein einzelner Quantenpunkt-Emitter zur Emission beiträgt. Eine Erweiterung auf mehrere Emittter wird im nächsten Kapitel erfolgen. Die Kopplungsstärke der Licht-Materie-Wechselwirkung aktueller Experimente [202] ist aus der Vakuumfeld-Rabi-Aufspaltung bekannt, die von der Größenordnung 100 meV ist; dies entspricht Jaynes-Cummings-Kopplung zwischen dem Grundzustand für Elektron und Loch ( $s$ -Zustand) von  $g = 0.15/\text{ps}$ . Der typischen Zerfallsrate der Kavität von  $\kappa = 0.1/\text{ps}$  entspricht eine Kavitätsgüte  $Q = 20,000$  im roten Spektralbereich der



InGaAs Quantenpunkt-Emission.

Es zeigte sich allerdings, dass mit diesen Parametern das Regime der stimulierten Emission für einen einzelnen Quantenpunkt-Emitter nicht erreicht werden kann. Die Anforderungen für die stimulierte Emission in einem Quantenpunkt-System mit mehreren Niveaus sind nicht offensichtlich, sodass wir im Folgenden die Emissionsrate in Bezug auf die Quantenpunkt-Parameter diskutieren werden.

**Emissionsrate des Quantenpunktes** Eine Abschätzung der Rekombinationsrate des Quantenpunkt-Laser-Überganges kann erhalten werden, indem die zugehörigen Nichtdiagonalelemente der Dichtematrix durch die Jaynes-Cummings-Wechselwirkung im adiabatischen Grenzfall (wir betrachten die Eigenschaften des stationären Zustandes) berechnet und in die Gleichungen der diagonalen Matrixelemente eingesetzt werden. Dies führt auf eine inverse Zeit der spontanen Rekombination

$$\frac{1}{\tau_{sp}} = \frac{4g^2}{\kappa + \gamma} , \quad (3.13)$$

worin die Dephasierung des Überganges durch den Einfang, die Relaxation oder die Rekombination der Ladungsträger in der Größe  $\gamma$  zusammengefasst ist. Der Wert von  $\gamma$  ist für jeden Übergang ( $1X_s \rightarrow 0X$ ,  $1X_s^\pm \rightarrow 0X^\pm$ ,  $2X_{sp} \rightarrow 1X_p$ ) entsprechend der Diskussion des Emissionsspektrums der Kavität in Abschnitt 3.3.5 gegeben.

Betrachten wir für die Argumentation den Exziton-Übergang und nehmen an, dass dieser resonant mit der Kavitätsmode ist, so folgt die spontane Rekombinationsrate  $R_X$  durch Multiplikation von  $1/\tau_{sp}$  mit der Besetzungswahrscheinlichkeit  $f_X$  der betrachteten Exziton-Konfiguration:

$$R_X = \frac{f_X}{\tau_{sp}} . \quad (3.14)$$

Um eine Rekombinationsrate zu erhalten, die gleich der Verlustrate der Kavität und somit  $\langle n \rangle = 1$  ist, müssen Elektronen und Löcher im Quantenpunkt-Grundzustand mit einer Rate von (mindestens) 0.1/ps erzeugt werden; dies entspricht dem angenommenen Wert für  $\kappa$ . Dies führt zu einer Dephasierungsrate von  $\gamma = 0.2/\text{ps}$  (unter Vernachlässigung des kleinen Beitrags von  $\gamma_{ij}^{\text{nl}}$ ) und mit  $g = 0.15/\text{ps}$  erhält man  $1/\tau_{sp} = 0.3/\text{ps}$ . Die Photonen-Emission gleicht die Kavitätsverluste nur dann aus, wenn die Besetzungswahrscheinlichkeit der entsprechenden elektronischen Konfiguration einen Wert von 1/3 übersteigt. An diesem Punkt spielt die Besetzungsdynamik eine Rolle. Ist die Rate der Erzeugung von Ladungsträgern langsamer als die spontane Emission, so rekombinieren die Ladungsträger im Grundzustand des Quantenpunktes schneller als sie durch den stationären Pumpprozess erzeugt werden können. Folglich bleibt die Besetzung des Quantenpunkt-Exzitons klein. Wird die Pumprate schneller als die der spontanen Rekombination, so erhöht dies die Besetzung des Exzitons, jedoch auch im gleichen



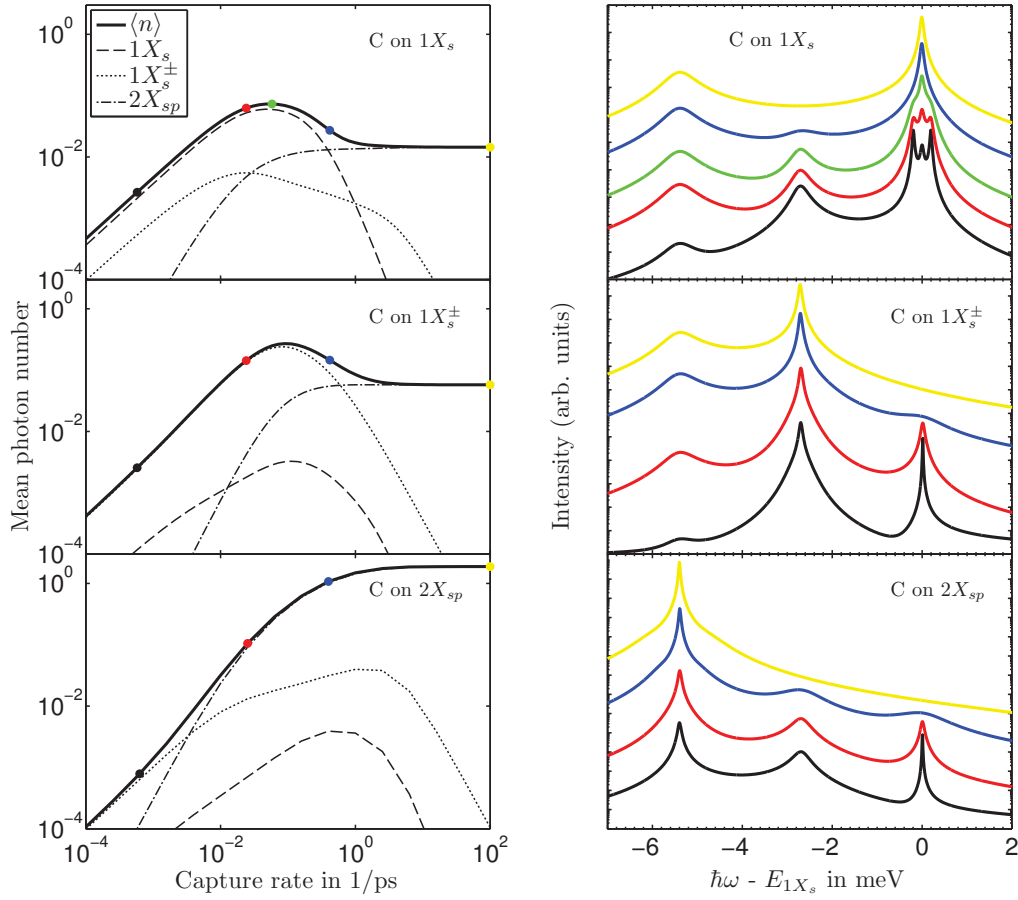
Maße  $\gamma$ . Diese von der Pumpe induzierte Dephasierung wiederum reduziert die Emissionsrate entsprechend Gl. (3.13). Wenn die Ladungsträger auch die höheren Quantenpunkt-Zustände besetzen, so wird die Wahrscheinlichkeit der Exziton-Konfiguration zugunsten angeregter Konfigurationen reduziert. Zu beachten ist, dass durch hinzufügen weiterer gebundener Ladungsträger zum Quantenpunkt-Exziton höhere Multi-Exziton-Zustände gebildet werden, wodurch als Konsequenz die Wahrscheinlichkeit  $f_X$  der Exziton-Konfiguration *abnimmt* und damit auch die Rekombinationsrate  $R_X$  des Exzitons.

In Hinblick darauf, eine hohe Photonen-Emission zu erhalten, sollte die Kavität auf die höchste angeregte Quantenpunkt-Konfiguration gestimmt sein, deren Besetzung unter hoher Anregung dominant wird. Zudem sollte die Konfiguration nicht durch den Pumpprozess selbst dephasiert werden, um Quenching<sup>1</sup> zu vermeiden. In den nachfolgenden Rechnungen können diese Bedingungen erfüllt werden, indem die Kavität auf den Übergang des Biexzitons gestimmt wird. Es sei an dieser Stelle darauf hingewiesen, dass für ein Zwei-Niveau-Modell ein Quenching der Photonen-Emission charakteristisch ist, unabhängig vom verwendeten Pumpmechanismus.

In den folgenden Rechnungen betrachten wir einen Quantenpunkt mit zwei Zuständen in jedem Band, die mit  $s$  und  $p$  indiziert werden, sowie ein Spinsubsystem, entsprechend der Diskussion des vorigen Abschnittes. Das System wird angeregt, indem Elektronen aus dem Kontinuum in die Leitungsband- $p$ -Zustände injiziert und aus den Valenzband- $p$ -Zuständen wieder herausgestreut werden (Loch-Einfang). Diese beiden Prozesse werden über Lindblad-Terme in Gl. (3.4) modelliert, mit den entsprechenden Raten  $\gamma_{\text{in}}^{e,h}$ . Die Ladungsträgerstreuung zwischen den Quantenpunkt-Zuständen ist durch Gl. (3.3) beschrieben, in der nur die  $p$ - nach  $s$ -Streuung in beiden Bändern betrachtet wird, mit der zugehörigen Rate  $\gamma_r^{e,h}$ . Dies ist äquivalent zu einem Kontakt mit einem thermischen Bad bei tiefen Temperaturen.

Um tatsächlich einen Einzel-Quantenpunkt-Laser zu modellieren, verwenden wir  $g = 0.3/\text{ps}$ , wobei wir erwarten, dass dieser Wert aktuell oder in naher Zukunft erreicht werden kann. Unabhängige Rechnungen im Sinne von Ref. [200, 249] für eine Dauerstrich-Anregung der Benetzungsschicht legen eine Elektron- und Loch-Relaxationsrate von der Größenordnung  $1/\text{ps}$  nahe, abhängig von der Anregungssituation und den Quantenpunkt-Parametern. Für die verwendeten Werte für  $g$  und  $\kappa$  finden wir, dass eine  $p$ - nach  $s$ -Intraband-Relaxationsrate  $\gamma_r^{e,h}$  um  $0.5/\text{ps}$  für Elektronen und Löcher die Emissionsrate maximiert und wir verwenden diesen Wert im Folgenden. Radiative Verluste in Moden, die nicht zur stimulierten Emission beitragen, sind typischerweise in Mikrokavitätssystemen stark unterdrückt und wir verwenden  $\gamma^{\text{nl}} = 0.01/\text{ps}$ . Diese Parameter bezeichnen wir im Folgenden mit Parametersatz A. Unter Verwendung einer konstanten Einfangrate entwickeln wir die Gln. (3.1)–(3.4) für die Dichtematrixelemente für ein leeres System zu Beginn der Zeitentwicklung bis ein stationärer Wert erreicht ist.

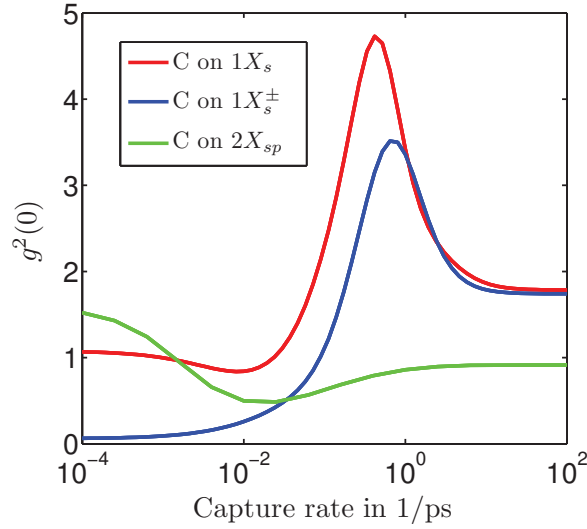
<sup>1</sup>Quenching der Photonen-Emission, d.h. die Reduktion der mittleren Photonenzahl mit erhöhter Anregungsrate, ist ein wohl bekanntes Phänomen in Zwei-Niveau-Systemen [178, 191, 285] und entsteht durch eine Dephasierung des kohärenten Laser-Überganges, hervorgerufen durch den Pumpprozess selbst.



**Abbildung 3.4.:** Eingangs-/Ausgangs-Kennlinien (**links**) und Emissionsspektren (**rechts**) für einen Einzel-Quantenpunkt-Laser mit der Kavitätsresonanz (C) auf dem  $1X_s$ -Exziton- (**oben**), dem  $1X_s^\pm$  geladenen Exziton- (**Mitte**) und dem  $2X_{sp}$ -Biexziton-Übergang (**unten**). Die Beiträge zur gesamten mittleren Photonenzahl (durchgezogene Linie) von der Emission des Exzitons (gestrichelte Linie), der Summe der geladenen Exzitonen (gepunktete Linie) und des Biexzitons (gestrichpunktete Linie) sind separat gezeigt. Emissionsspektren der Kavität sind für Einfangraten von  $6 \times 10^{-4}$ ,  $3 \times 10^{-2}$ ,  $6 \times 10^{-2}$  (nur obere Figur), 0.4 und 100/ps von unten nach oben gezeigt. Die Energieachse ist relativ zur  $1X_s$ -Exziton-Rekombination. Spektrale Peaks von drei Übergängen sind sichtbar, separiert durch die Coulomb-Wechselwirkung, mit einem Austauschbeitrag von  $X_{sp} = 2.6$  meV, den wir durchgehend in diesem Kapitel verwenden. Die Berechnungen wurden mit dem Parametersatz A durchgeführt.

### 3.3.3. Mittlere Photonenzahl und spektrale Linienbreite

In der linken Spalte von Abb. 3.4 sind Eingangs-/Ausgangs-Kennlinien für einen Einzel-Quantenpunkt-Laser für die Fälle gezeigt, dass die Kavität mit dem (i)  $1X_s$ -Exziton-, (ii)  $1X_s^\pm$  geladenen Exziton- und (iii)  $2X_{sp}$ -Biexziton-Übergang in Resonanz ist. Die Beiträge zur mittleren Photonenzahl von den  $1X_s$ -,  $1X_s^\pm$ - und  $2X_{sp}$ -Konfigurationen sind entsprechend separat als gestrichelte, gepunktete und gestrichpunktete Linie gezeigt. Bei niedrigen Anregungsleis-



**Abbildung 3.5.:** Autokorrelationsfunktion  $g^{(2)}(0)$  für die drei Fälle in Abb. 3.4, wobei die Kavität entweder mit dem Übergang des Exzitons (rot), des geladenen Exzitons (blau) oder des Biexzitons (grüne Linie) in Resonanz ist. Für die drei Punkte auf der grünen Kurve ist die Photonenzahl in Abb. 3.6 gezeigt.

tungen weisen diese einen unterschiedlichen Anstieg auf. Der des Biexzitons ist doppelt so groß wie der des Exzitons und der Anstieg des geladenen Exziton-Zustandes liegt dazwischen.

Für die betrachtete Situation in Bezug auf das Einschlusspotential sind dies die einzigen hellen Konfigurationen, welche eine Rekombination an der  $s$ -Schale erlauben. Bei niedriger Anregung ist das Exziton die wahrscheinlichste Konfiguration und die höchste Photonen-Emission kann erzielt werden, wenn die Kavität in Resonanz mit dem entsprechenden Übergang ist. Der Einfang eines zusätzlichen Ladungsträgers in die  $p$ -Schale wird favorisiert für Einfangraten größer als  $10^{-3}/\text{ps}$  und führt zu einer Präferenz der beiden geladenen Exziton-Konfigurationen. Folglich ist in diesem Regime die mittlere Photonenzahl dann höher, wenn die Kavität auf den Übergang des geladenen Exzitons gestimmt wird. Bei hoher Anregung werden Ladungsträger schneller in die höheren Quantenpunkt- $p$ -Zustände eingefangen als ein optischer Rekombinationsprozess stattfinden kann, sodass die  $sp$ -Biexziton-Konfiguration stets dominant ist. Daher maximiert ein Stimmen des Biexziton-Übergangs in Resonanz mit der Kavität den Photonen-Output. Lediglich in diesem Fall kann die stimulierte Emission mit  $\langle n \rangle > 1$  für den gewählten Parametersatz erreicht werden. Zur gleichen Zeit wird die Realisierung der anderen hellen Konfigurationen stark unterdrückt, was ein Grund für das beobachtete Quenching der Photonen-Emission im Fall einer Resonanz der Kavität mit dem Übergang des geladenen oder neutralen Exzitons ist. Ein weiterer Grund ist die durch den Einfangprozess induzierte Dephasierung.

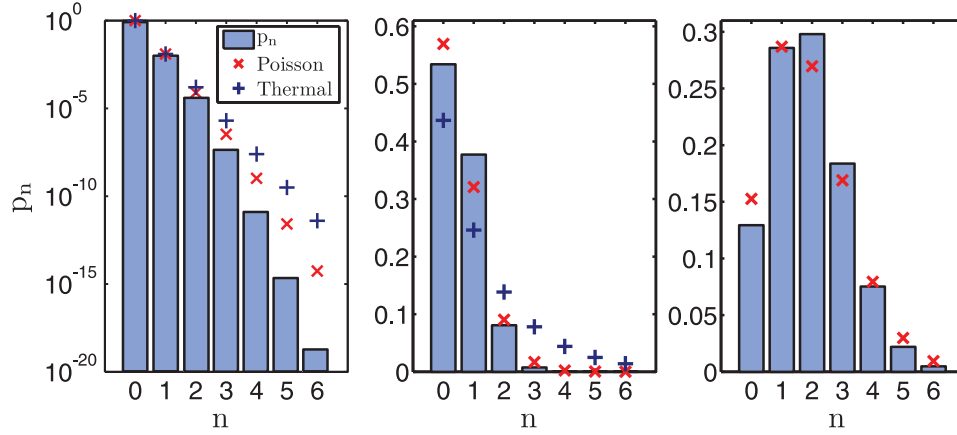
### 3.3.4. Photonen-Statistik

Die statistischen Eigenschaften der Emission sind von zentralem Interesse für die Charakterisierung von Bauteilen. Die Emission eines einzelnen Quantenpunktes bei schwacher Pumprate zeigt ein charakteristisches Photonen-Antibunching [183] (vgl. auch Abschnitt 5.1). Platziert man diesen in einen Mikroresonator mit einer langlebigen Mode, so können sich die Emissionseigenschaften stark ändern. Photonen, die in der Kavität gespeichert sind, können reabsorbiert werden oder die Emission verstärken. Die Antibunching-Eigenschaft ist dann nicht länger die des Emitters alleine, sondern des gekoppelten Emitter-Kavitätssystems. Bei schwacher Anregung hängt deren Ausprägung sowohl stark von der Kavitätslebensdauer als auch von den Streu- und Dephasierungsraten ab. Ist beispielsweise die Kavitätsgüte  $Q$  zu hoch, so ist das Photonen-Antibunching unterdrückt [227], da mehrere Photonen in der Kavitätsmode akkumuliert werden.

Betrachten wir nun in Abb. 3.5 die Autokorrelationsfunktion im Regime niedriger Anregung, so werden abhängig davon, welche Quantenpunkt-Konfigurationen in Resonanz mit der Kavitätsmode sind, unterschiedliche Werte erreicht. Zu beachten ist, dass ein Wert von 1 in der Korrelationsfunktion zweiter Ordnung bei niedrigen Pumpraten keine Signatur von kohärenter Emission ist. Obgleich die Autokorrelationsfunktion eine große Bedeutung in quantenoptischen Experimenten hat, sollte man im Hinterkopf behalten, dass diese Größe sich nur auf das zweite Moment der Photonenstatistik bezieht und nicht auf die Photonenstatistik  $p_n$  an sich. Unter der Annahme, dass  $p_n$  mit wachsendem  $n$  rapide abfällt, ist entsprechend der Diskussion in Abschnitt 3.2 die Autokorrelationsfunktion  $g^{(2)}(0) \approx 2p_2/p_1^2$ . In dem hier diskutierten Fall schwacher Pumprate sind die Größen  $p_1^2$  und  $p_2$  jedoch kleine Zahlen, sodass Beiträge von eher unwahrscheinlichen Ereignissen in  $g^{(2)}(0)$  verstärkt werden, da die Wahrscheinlichkeit, kein Photon in der Mode vorzufinden, praktisch gleich 1 ist.

Durch Berechnung der System-Dichtematrix haben wir direkten Zugriff auf die Photonenstatistik und können Signaturen kohärenter Lichtemission, gekennzeichnet durch eine Poissonsche Wahrscheinlichkeitsverteilung, oder thermisches Licht mit einer exponentiellen Abhängigkeit in Bezug auf die Photonenzahl  $n$  überprüfen. Als Beispiel betrachten wir den Fall, wo der Biexziton-Übergang resonant mit der Kavitätsmode ist. Für schwaches Pumpen (links in Abb. 3.6) unterscheidet sich die Photonenstatistik  $p_n$  von einem Einzel-Photon Fock-Zustand, obwohl die Wahrscheinlichkeit  $p_n$  für  $n > 1$  unterhalb der einer idealen thermischen oder kohärenten Lichtquelle mit gleicher mittlerer Photonenzahl liegt.

Für Einfangraten zwischen 0.1 und 10/ps zeigt  $g^{(2)}$  Photonen-Bunching, wenn die Kavität in Resonanz entweder mit dem Übergang des Exzitons oder des geladenen Exzitons ist und verschwindet auf dem Biexziton-Übergang. Betrachtet man Abb. 3.4, so lässt sich schlussfolgern, dass es dann zu einem Bunching-Phänomen kommt, wenn mehr als eine Konfiguration vergleichbar zur Gesamt-Photonenproduktion beiträgt. In anderen Worten: Das Photonen-



**Abbildung 3.6.:** Photonenzahlstatistik für niedrige, mittlere und hohe Einfangraten  $5 \times 10^{-3}$ , 0.14 und 100/ps und die Kavität in Resonanz mit dem Biexziton-Übergang (entspricht der Figur unten links der Abb. 3.4. Zum Vergleich ist die Photonenzahlstatistik für ein perfekt thermisches und kohärentes System mit der gleichen mittleren Photonenzahl gezeigt, die entsprechend mit + und × gekennzeichnet sind. Zu beachten ist die logarithmische Skala in der linken Figur. Die Photonenzahlstatistik bei der höchsten Pumprate zeigt keine Ähnlichkeit mit einer thermischen Verteilung und wurde daher fortgelassen.

Bunching reflektiert konkurrierende Emissionskanäle, welche in der Dichtematrix mit vergleichbarer Wahrscheinlichkeit realisiert sind.

Bei starker Anregung weisen sowohl die Photon-Korrelationsfunktion zweiter Ordnung in Abb. 3.5 als auch die Photonenzahlstatistik in Abb. 3.6 auf eine kohärente Emission hin, falls die Kavitätsresonanz auf den Biexziton-Übergang gestimmt ist. Nur in diesem Fall übersteigt die mittlere Photonenzahl den Wert von eins und ermöglicht stimulierte Emission. Ist die Kavität in Resonanz mit dem neutralen oder geladenen Exziton, so verhindern zum einen Quenching der resonanten Beiträge, zum anderen ineffiziente Kopplung des verstimmten Biexziton-Überganges die stimulierte Emission, was auf nahezu thermische Photonen-Emission bei starkem Pumpen führt, siehe Abb. 3.5.

### 3.3.5. Spektren und Linienbreite

Die Beiträge der unterschiedlichen Konfigurationen zeigen sich zudem im Emissionsspektrum der Kavität  $S(\omega)$ , welches durch die Fourier-Transformierte  $\mathcal{F}$  der Photon-Korrelationsfunktion erster Ordnung  $g^{(1)}(t, \tau)$  in Bezug auf die Verzögerungszeit  $\tau$  gegeben ist [70]:

$$S(\omega) = \mathcal{F} \left[ g^{(1)}(t_{ss}, \tau) \right] . \quad (3.15)$$

Die Korrelationsfunktion kann durch Anwendung des Quanten-Regressionstheorems erhalten werden. Dies erfordert eine separate Zeitentwicklung des Dichteoperators in  $\tau$  mit modifizierten

Anfangsbedingungen, welche aus der stationären Lösung der Dichtematrix  $\rho(t_{ss})$  der Zeitentwicklung in  $t$  gewonnen werden [83]. Für weitere Details verweisen wir an dieser Stelle auf Ref. [88].

Auf der rechten Seite von Abb. 3.4 sind mehrere Spektren für verschiedene Einfangraten und unterschiedliche Resonanzsituationen der Kavität gezeigt. Bei niedriger Anregung (schwarze Linie) sind Peaks an drei energetischen Position sichtbar: Die  $s$ -Exziton-Resonanz, der Beitrag durch das geladene Exziton, welcher energetisch durch die Coulomb-Austausch-Wechselwirkung  $X_{sp}$  mit dem zusätzlichen Ladungsträger in der  $p$ -Schale verschoben ist, und das  $sp$ -Biexziton, separiert vom  $s$ -Exziton entsprechend durch den doppelten Austausch-Beitrag.

Die Erhöhung der photonischen Zustandsdichte an der Kavitätsmode führt zu einer signifikanten Verstärkung der resonanten Emission. Die Verbreiterung der spektralen Linie reflektiert mögliche Streuprozesse durch Ladungsträger-Anregung, Relaxation und Rekombination und unterscheidet sich bei verschiedenen angeregten Konfigurationen. Hierfür kann eine einfache Regel aus den Beiträgen der Lindblad-Terme zu den Bewegungsgleichungen der relevanten Polarisationen abgeleitet werden: Ein gegebener optischer Übergang wird durch solche Prozesse dephasiert, welche entweder die Anfangs- oder die Endkonfiguration ändern. Zum Beispiel wird der  $1X_s$ -Exziton-Übergang durch den Ladungsträger-Einfangprozess dephasiert, der auf die Anfangs- und Endkonfiguration wirkt, jedoch nicht durch die Relaxation, solange man die bei niedrigen Temperaturen unwahrscheinlichen  $s$ -nach- $p$ -Interband-Streuprozesse vernachlässigt. Für den Biexziton-Übergang ist es genau entgegengesetzt; nur die  $p$ -nach- $s$ -Relaxation, jedoch nicht die Einfangprozesse tragen zur Dephasierung bei. Im Falle des geladenen Exziton-Übergangs sind beide relevant. Ferner ist der Beitrag des neutralen und geladenen Exzitons zur Photonen-Emission Gegenstand von Quenching, im Sinne der anregungsabhängigen Dephasierung, was für den Biexziton-Beitrag nicht zutrifft.

Zunächst soll die zugrunde liegende Physik der spektralen Peaks des  $1X_s \rightarrow 0X$  Übergangs diskutiert werden. Für niedrige Einfangraten ist die endliche Lebensdauer der Kavität die Hauptquelle der Dephasierung ( $\gamma_{in}^{e,h} \ll \kappa = 0.1/\text{ps}$ ). Ist die inverse Kavitätslebensdauer kleiner als die Licht-Materie-Kopplungsstärke und der  $s$ -Exziton-Übergang spektral dicht an der Kavitätsmode, so führt dies zu einer Hybridisierung, gekennzeichnet durch die Doppel-Peak Struktur der Vakuum-Rabi-Aufspaltung, was eine Signatur der starken Kopplung ist, zu sehen in der oberen Figur von Abb. 3.4.

Mit zunehmendem Einfang von Ladungsträgern in die Quantenpunkt- $p$ -Zustände fängt auch der Einfangprozess selbst an, zur Dephasierung beizutragen, welche in einer Verbreiterung und letztlich einem Übergang in das Regime schwacher Kopplung endet. Die Spektren der anderen beiden Übergänge unterscheiden sich unter schwacher Anregung signifikant. Da die schnelle Ladungsträger-Relaxation eine starke Linienverbreiterung verursacht, welche die Licht-Materie-Kopplungsstärke unabhängig von der Ladungsträger-Einfangrate übersteigt ( $\gamma_r^{e,h} > g$ ), können

keine Signaturen von starker Kopplung in den unteren Figuren von Abb. 3.4 gefunden werden.

Ein weiteres interessantes Feature kann in den Spektren mit dem  $s$ -Exziton in Resonanz beobachtet werden: Schon bei schwacher Pumprate taucht ein innerer Peak innerhalb des  $s$ -Exziton Rabi-Doublets auf; dieser wird verursacht durch die verstimmte Resonanz des geladenen Exzitons und des Biexzitons. Diese sind jedoch zu stark verstimmt, um mit der Kavitätsmode zu hybridisieren. Als Konsequenz weisen geladenes Exziton und Biexziton jeweils *zwei* spektrale Beiträge auf: einen an der Energie des  $s$ -Schalen-Übergangs, welcher durch die Coulomb-Wechselwirkung renormiert wird, und einen an der Energie der Kavitätsmode. Im Spektrum kann beobachtet werden, dass der Kavitätspeak durch die verstimmten Konfigurationen auftaucht und an Oszillatorstärke gewinnt, sobald der geladene Exziton- und Biexziton-Zustand an Wahrscheinlichkeit zunimmt (siehe obere rechte Figur von Abb. 3.4).

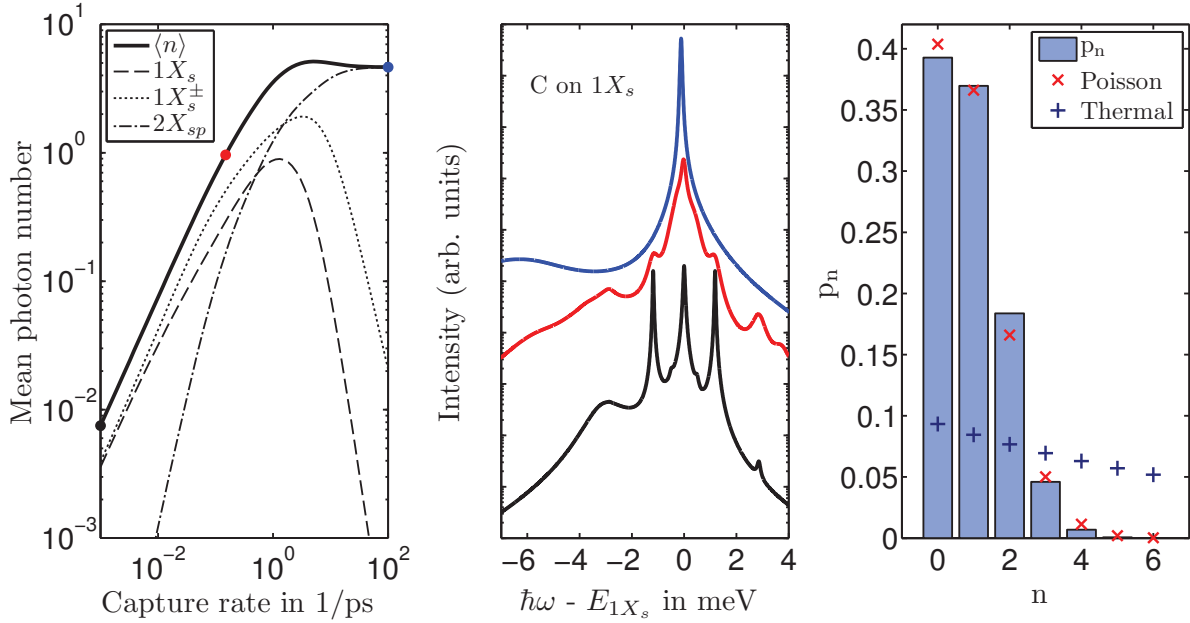
### 3.4. Stimulierte Emission im Regime der starken Kopplung

Die Realisierung des Regimes starker Kopplung mit individuellen Quantenpunkten in Mikrokavitäten [222, 303] ist ein weiterer aktueller Fokus. Die starke Kopplung der niedrigsten Interband-Anregung des einzelnen Quantenpunktes mit der leeren Kavitätsmode manifestiert sich in zwei Linien im Emissionsspektrum. Deren Energie entspricht den wechselwirkenden Zuständen der Vakuumfeld-Rabi-Oszillation und weist ein charakteristisches Anticrossing in Abhängigkeit der Verstimmung zwischen Kavitätsmode und dem Interband-Übergang des Emitters auf.

Komplexer ist das Verhalten im Grenzfall starker Pumpanregung. Typischerweise tritt der Übergang zwischen starker und schwacher Kopplung mit zunehmender Anregungsrate auf, bevor die stimulierte Emission einsetzt. In diesem Fall geht die Doppelpeak-Struktur der hybridisierten Zustände durch anregungsinduzierte Dephasierung sowie einen Verlust an Oszillatorstärke für den Quantenpunkt-Übergang in eine einzelne Emissionslinie über. In diesem Regime ist das Verhalten des einzelnen Emitters analog zur Polariton-Normalmoden-Kopplung räumlich ausgedehnter exzitonischer Zustände [138]. In aktuellen Experimenten [202] war das Ziel, starke Kopplung eines einzelnen Emitters an die Kavitätsmode bis zum Einsetzen der stimulierten Emission zu erreichen. Prinzipiell gibt es keinen Grund, weshalb sich die stimulierte Emission im Regime schwacher Kopplung fundamental von der im Regime der starken Kopplung unterscheiden sollte. Die Realisierung der zweiten Situation stellt jedoch eine große technologische Herausforderung dar.

Im Rahmen des vorgestellten Halbleitermodells und für Situationen und Parameter aktueller Experimente untersuchen wir die Möglichkeiten und Signaturen stimulierter Emission im Regime starker Kopplung. Für den in den vorigen beiden Abschnitten verwendeten Parametersatz  $A$  verschwindet die Vakuum-Rabi-Aufspaltung mit zunehmender Anregung bei einer mittleren



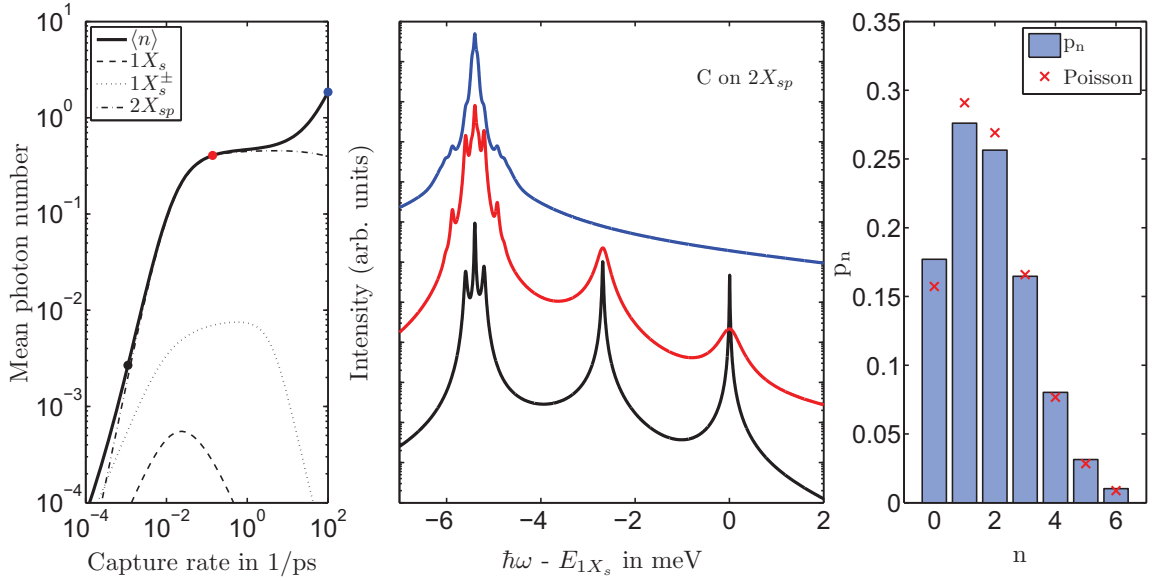


**Abbildung 3.7.:** Links: Eingangs-/Ausgangs-Kennlinien für den Parametersatz B (siehe Text) und eine Kavität in Resonanz mit dem Exziton-Übergang. Mitte: Emissionsspektrum der Kavität für Einfangraten von  $10^{-3}$ , 0.14 und 100/ps. Rechts: Photonenstatistik im Regime stimulierter Emission für eine Einfangrate von 0.14/ps. Für weitere Erklärungen verweisen wir auf die vorigen Abbildungen.

Photonenzahl von etwa 0.1 und bevor die Photonenzahl in eine Poissonverteilung übergeht. Wie wir im Zusammenhang mit den Emissionsspektren der Kavität in Abschnitt 3.3 diskutiert haben, wird jeder Übergang zwischen den Konfigurationen dephasiert, je nachdem, wie die verschiedenen Prozesse auf die zugehörigen Anfangs- und Endzustände wirken. Das Verhältnis zwischen Stärke der Dephasierung und der Licht-Materie-Kopplung bestimmt daher, ob starke Kopplung für diesen Übergang beobachtet werden kann. Im Folgenden diskutieren wir zwei Szenarien, wo die starke Kopplung auch in Anwesenheit stimulierter Emission bestehen bleibt. Die Frage nach dem Einfluss von Hintergrundemittern wird im nächsten Kapitel diskutiert werden.

**Starke Kopplung und Lasing auf dem Exziton-Übergang.** Die Ladungsträger-Einfangrate bestimmt die Verbreiterung des  $1X_s$ -Exziton-Übergangs (was unter Umständen eine starke Kopplung verhindert) und stellt die notwendigen Ladungsträger für den Laser-Übergang bereit. Daher wird ein optimales Verhältnis dieser beiden entgegenwirkenden Effekte benötigt. Mit einer Intraband-Relaxationsrate von 2/ps und einer (im Vergleich zum Parametersatz A sechsmal größeren) Licht-Materie-Kopplungsstärke von  $g = 1.8/\text{ps}$  kann starke Kopplung in Anwesenheit von stimulierter Emission erreicht werden. Wir bezeichnen diese Situation als Parametersatz B.





**Abbildung 3.8.:** Links: Eingangs-/Ausgangs-Kennlinien für den Parametersatz C und eine Kavität in Resonanz mit dem Biexziton-Übergang. Mitte: Emissionsspektrum der Kavität für Einfangraten von  $10^{-3}$ , 0.2 und 100/ps. Rechts: Photonenstatistik im Regime stimulierter Emission für eine Einfangrate von 100/ps. Für weitere Erklärungen verweisen wir auf die vorigen Abbildungen.

In der Eingangs-/Ausgangs-Kennlinie, welche in Abb. 3.7 gezeigt ist, wird eine mittlere Photonenzahl von eins bei einer Ladungsträger-Einfangrate von etwa 0.14/ps erreicht. Das Spektrum bei niedriger Anregung zeigt Signaturen der starken Kopplung mit zusätzlichen Peaks bei  $\pm 2.9$  und  $\pm 0.5$  meV, entsprechend der Übergänge  $g(\sqrt{2} \pm 1)$  zwischen dem ersten und zweiten Rang der Jaynes-Cummings-Leiter [136, 155, 285]. Der ausgeprägte Peak in der Mitte ist der Kavitätsbeitrag vom geladenen Exziton und Biexziton, den wir am Ende von Abschnitt 3.3 diskutiert haben. Das Spektrum in der Mitte entspricht der Situation, wo die mittlere Photonenzahl den Wert eins erreicht.

Die Signaturen der starker Kopplung bleiben auch dann bestehen, wenn die stimulierte Emission einsetzt, wie sich aus der Poissonschen Photonenzahlstatistik schließen lässt, die für die gleiche Einfangrate berechnet wurde und in der rechten Abbildung von Figur 3.7 gezeigt ist. Der zugehörige Wert der Autokorrelationsfunktion ist hierbei  $g^{(2)}(0) = 0.9$ . Durch die hohe mittlere Photonenzahl im Regime stimulierter Emission treten höhere Übergänge zwischen den Jaynes-Cummings-Rängen auf (z.B. bei 3.7 meV, entsprechend dem  $g(\sqrt{3} + \sqrt{2})$  Übergang). Die inneren Linien bei  $g(\sqrt{n+1} - \sqrt{n})$  können nicht aufgelöst werden und erscheinen als verbreiteter Peak. Bei hoher Anregung übernimmt das stark verstimte Biexziton die Emission, sodass die starke Kopplung verloren geht (siehe oberes Spektrum).

**Starke Kopplung und Lasing auf dem Biexziton-Übergang** Wir stimmen die Kavität nun in Resonanz mit dem  $sp$ -Biexziton, welches unter allen Konfigurationen die Photonenproduktionsrate bei hoher Anregung maximiert. In Abschnitt 3.3 haben wir die Intraband-Relaxationsprozesse als dominanten Dephasierungskanal für diesen Übergang identifiziert. In einem Quantenpunkt, in dem diese Streurrate stark unterdrückt ist, kann erwartet werden, Signaturen der starken Kopplung zu beobachten. Um dies zu demonstrieren, betrachten wir einen weiteren Parametersatz C, wo die Relaxationsrate auf  $\gamma_r^{e,h} = 0.02/\text{ps}$  reduziert ist. Während hierdurch die Dephasierung reduziert wird, ist auch die Effizienz der Ladungsträgerstreuung in die Quantenpunkt- $s$ -Zustände nach Einfang in die  $p$ -Zustände signifikant erniedrigt. Um dennoch stimulierte Emission zu erreichen, wird eine verbesserte Kavitätsgüte  $Q$  von 100,000 (entspricht  $\kappa = 0.02/\text{ps}$ ) benötigt, zusammen mit zusätzlichen Photonen durch eine nichtresonante Kopplung von Hintergrundemittern (parametrisiert durch  $\alpha = 0.001$  und  $S = 3$ ), vgl. Abschnitt 4.1. Die verwendete Licht-Materie-Kopplungsstärke ist  $g = 0.3/\text{ps}$ , entsprechen dem Parametersatz A.

Die Eingangs-/Ausgangs-Kennlinie in der linken Figur von Abb. 3.8 zeigt für eine Einfangrate bis zu  $1/\text{ps}$  eine ähnliche Form wie in dem Fall, welcher in der unteren linken Figur von Abb. 3.4 gezeigt ist. Danach wirkt die zusätzliche Hintergrundemission der Sättigung entgegen und die mittlere Photonenzahl übersteigt den Wert von eins. Durch die verringerte Relaxationsrate zeigt sich die Vakuum-Rabi-Aufspaltung im Spektrum niedriger Anregung und weitere Peaks erscheinen auf beiden Seiten mit zunehmender Pumprate. Die starke Kopplung besteht auch bei hoher Anregung, wo die Photonenstatistik ein charakteristisches Poisson-Verhalten zeigt (rechte Abbildung); dies spiegelt eine Koexistenz von starker Kopplung und stimulierter Emission auf dem Biexziton-Übergang wider.

## Kapitel 4

# Nichtresonante optische Emission von Quantenpunkten in eine Mikrokovitätsmode

Im Gegensatz zu isolierten atomaren Emitttern weisen Quantenpunkte eine bemerkenswerte Eigenheit auf: Selbst wenn die Quantenpunkt-Emissionslinie signifikant von der Kavitätsresonanz verstimmt ist, können Photonen in die Kavitätsmode emittiert werden. Der Nachweis, dass die Emission tatsächlich durch die Quantenpunkt-Anregung vermittelt war, konnte durch Messung zeitlicher Antikorrelation zwischen den Ereignissen der Photonen-Emission des Quantenpunktes und der Kavitätsmode erbracht werden [115, 217]. Eindrucksvoll ist zudem das Auftreten von Emission an der Kavitätsmode für Verstimmungen des Quantenpunkt-Emitters von mehreren 10 meV [50, 133, 296]. Diese in der Literatur als nichtresonante Kopplung bezeichneten Effekte sind mit der Jaynes-Cummings-Kopplung eines zwei-Niveau-Systems an eine Kavitätsmode alleine nicht zu erklären. Dies verdeutlicht, dass die Wechselwirkung des Quantenpunktes mit seiner Umgebung ein wesentlicher Bestandteil der Emissionsdynamik ist.

Als Ergebnis intensiver experimenteller und theoretischer Untersuchungen wurden in den letzten Jahren verschiedene Mechanismen diskutiert: Eine Erklärung der nichtresonanten Kopplung im Bereich weniger meV lieferte eine Verbreiterung der Emissionslinie (reine Dephasierung), verursacht durch die Wechselwirkung der Quantenpunkt-Ladungsträger mit den Gitterschwingungen und durch Streuprozesse mit Ladungsträgern der Benetzungsschicht [9, 57, 170, 195, 272, 301]. Zudem wurde demonstriert, dass Phonon-assistierte Rekombinationsprozesse eine wichtige Rolle bei der nichtresonanten Kopplung spielen [117, 171]. Hierbei wird die überschüssige (fehlende) Energie der Verstimmung durch Emission (Absorption) von akustischen Phononen kompensiert [116]. Dies ist insbesondere bei tiefen Temperaturen mit einer ausgeprägten Asymmetrie der Kopplungsstärke als Funktion der Verstimmung

verbunden [117, 207, 212, 275]. Es zeigte sich jedoch, dass diese Prozesse für Verstimmungen jenseits  $2 - 3 \text{ meV}$  ineffizient werden, da die Quantenpunkt-Exzitonen das atomare Gitter nur lokal deformieren, sodass es zu einer signifikanten Exziton-Phonon-Kopplung nur innerhalb der exzitonischen Lokalisierungslänge kommen kann, was in typischen InGaAs Systemen gerade wenigen meV entspricht [147, 306]. Besitzt der Quantenpunkt hingegen eine Vielzahl von gebundenen Einteilchenzuständen, so nimmt die Anzahl der möglichen Konfigurationen für die Ladungsträger rapide zu, und deren Coulomb-Wechselwirkung ermöglicht ein breites Quasi-Kontinuum von Multi-Exziton-Übergängen. Vorausgesetzt, die zugehörigen Multi-Exziton-Zustände sind angeregt, so erlaubt deren Überlapp mit der Kavitätsmode eine durch den Purcell-Effekt verstärkte Photonenproduktion auch für Verstimmung von der Größenordnung  $\sim 10 \text{ meV}$  [61, 153, 296]. In diesem Rahmen ließ sich sowohl das experimentell beobachtete bunching-Verhalten (i) der Kreuzkorrelation bei positiver Verzögerung zwischen der Photonen-Emission auf der Exziton- und Kavitätsresonanz [115] als auch (ii) der Autokorrelationsfunktion der Kavitätsmode bei höherer Anregung durch eine kaskadierte Emission der Multi-Exziton-Zustände erklären [296].

Das Vorhandensein zusätzlicher, verstimmter Quantenpunkt-Emitter ist selbst mit aktuellen Fertigungsmethoden nahezu unvermeidbar. Folglich ist neben der Frage nach der Interpretation aktueller Einzel-Quantenpunkt-Experimente (vgl. Kapitel 3) auch das Verständnis der physikalischen Prozesse hinter den Effekten der nichtresonanten Kopplung von zentraler Bedeutung, u.a. für die Beschreibung und Charakterisierung von Quantenpunkt-Mikrokavitätslasern [269], aber auch für die Effizienz von Quellen einzelner Photonen [295]. In diesem Kapitel untersuchen wir die Rolle nichtresonanter Kopplung residualer Emitter in einem Quantenpunkt-Mikrokavitätssystem. Der Fokus liegt hierbei auf der Quantifizierung der Photonenerzeugung in der Kavitätsmode und der resultierenden Photonenstatistik. Neben den in der Literatur vielfältig diskutierten spektralen Eigenschaften der Photolumineszenz sind die Fragestellungen, ob die nichtresonante Kopplung (i) zu einer kohärenten oder inkohärenten Emission beiträgt und (ii) imstande ist, eine hinreichende Photonenproduktionsrate zu erzeugen, um mit anderen (Streu- und Verlust-)Prozessen zu konkurrieren, von zentraler Bedeutung für Anwendungen quantenoptischer Experimente mit Quantenpunkten in Mikrokavitäten hoher Güte.

Im Folgenden wird das in Kapitel 3 betrachtete Modell eines Einzel-Quantenpunkt-Lasers um Beiträge residualer Emitter zur Emission erweitert. Zunächst wird in Abschnitt 4.1 eine in der Literatur vielfältig verwendete Methode zur phänomenologischen Beschreibung residualer Emitter diskutiert. Hierbei werden durch Ankopplung eines bosonischen Bades Photonen mittels eines Lindblad-Terms direkt in der Kavitätsmode erzeugt [202, 285]. Dieser Ansatz vernachlässigt jedoch, (i) dass die durch residuale Emitter erzeugten Photonen durch eine Mediumsanregung eines optischen Gewinn-Materials vermittelt sind und (ii) den zugrunde liegenden nichtresonanten Kopplungsmechanismus. In Bezug auf den ersten Punkt kann eine Verallgemeinerung dieses phänomenologischen Ansatzes im Rahmen des Random-Injection-

Modells [247, 264, 288] gefunden und Sättigungseffekten Rechnung getragen werden.

Gegenstand des Abschnittes 4.2 ist eine mikroskopische Beschreibung der an die Kavitätsmode gekoppelten Emitter, wobei der gesamte Hilbertraum betrachtet wird. Auf diesem Wege werden die Hintergrundemitter als Gewinn-Medium berücksichtigt und auf gleicher Ebene wie der resonante Emitter behandelt. Der Ladungsträgerdynamik und den Sättigungseffekten wird Rechnung getragen, was eine realistischere Beschreibung im Vergleich zu den phänomenologischen Modellen erlaubt. Die Berücksichtigung von Streuprozessen mit akustischen Phononen führt hierbei auf eine von-Neumann-Gleichung mit effektiven Lindblad-Beiträgen [177, 228], welche neben einem Multi-Exziton-Spektrum auch Phonon-assistierte Rekombinationsprozesse mit temperaturabhängigen Raten beinhaltet.

Neben der Coulomb-Wechselwirkung innerhalb des Quantenpunktes wurde die Rolle der Wechselwirkung mit der Benetzungsschicht in der Erzeugung eines multi-exzitonischen, spektralen Hintergrundes erkannt [296] und eine Hybridisierung der gebundenen Quantenpunkt-Zustände mit dem Kontinuum der delokalisierten Zustände demonstriert [50, 133, 135]. Bestärkt wurde dies durch gezielte Reduktion der Kopplung an die delokalisierten Zustände durch Anlegen eines elektrischen Feldes [50], Verwendung einer geeigneten Quantenpunktgeometrie [42] oder gezielte resonante Anregung [7]. Im Abschnitt 4.3 wird die Effizienz eines kinetischen Rekombinationskanals studiert, wobei Auger-artige Prozesse der Ladungsträger der delokalisierten Zustände, welche als thermisches Reservoir agieren, die fehlende Energie der verstimmten Quantenpunktanregung in Bezug auf die Kavitätsmode bereitstellen. Dies ist ein alternativer Mechanismus im Vergleich zur Coulomb-Konfigurationswechselwirkung zwischen den Ladungsträgern [296], da die Rolle der Coulomb-Wechselwirkung nicht im multi-exzitonischen Spektrum, sondern in der Dynamik der Exziton-Rekombination betrachtet wird. Wohl bekannt ist, dass die Wechselwirkung mit den delokalisierten Zuständen zu sehr effizienten Intraband-Ladungsträger-Relaxationsprozessen führt [31, 72, 200, 282]. Im Gegensatz zur Intraband-Kinetik der Quantenpunkt Elektron- und Loch-Relaxation benötigt der Interband-Kopplungsmechanismus allerdings eine starke Elektron-Loch-Korrelation, die in Abschnitt 4.3 systematisch berücksichtigt wird.

Dieses Kapitel basiert auf den Ergebnissen aus [78, 79, 87] und enthält weitere Details sowie zusätzliche Diskussionen.

## **4.1. Phänomenologische Beschreibung des nichtresonanten Hintergrundes in Quantenpunkt-Mikrokavitätslasern**

Eine in der Literatur gängige phänomenologische Methode, Emissionsbeiträge zusätzlicher verstimmter Emitter zu berücksichtigen, ist die Nutzung eines Cavity-Feeding Lindblad-Terms [152,

154, 156, 202, 285]. Durch Ankopplung eines bosonischen Bades wird die Emission nichtresonanter Emitter als inverser Prozess zu den Kavitätsverlusten beschrieben:

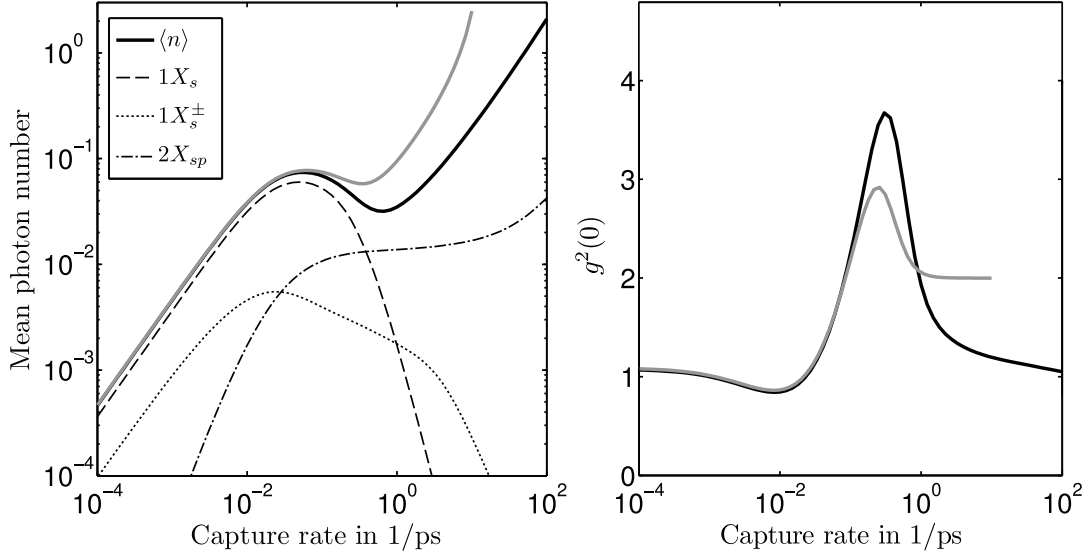
$$\left. \frac{\partial}{\partial t} \rho \right|_{\text{cf}} = \frac{\Gamma}{2} (2b^\dagger \rho b - bb^\dagger \rho - \rho bb^\dagger) \quad (4.1)$$

und Photonen mit einer Rate, parametrisiert durch die Größe  $\Gamma$ , direkt in der Kavitätsmode erzeugt. Da die Anregung zumeist nichtresonant erfolgt, wird  $\Gamma$  typischerweise proportional zur Pumprate  $P$  des einzelnen Emitters gewählt [202]. Diese Vorgehensweise hat allerdings die folgenden Nachteile:

1. Die Ladungsträgerdynamik der zusätzlichen Emitter wird vernachlässigt und man berücksichtigt lediglich die Anzahl an Photonen, welche vermittelt durch eine Reservoirankopplung in die Kavität emittiert werden, was sich durch fehlende Sättigungseffekte äußert.
2. Solange  $\Gamma$  kleiner als die Rate der Kavitätsverluste  $\kappa$  ist, beschreiben die zugehörigen Lindblad-Terme den Kontakt des photonischen Subsystems mit einem Reservoir, wobei dessen Temperatur  $T$  durch das Verhältnis  $\Gamma/\kappa = e^{-\omega/(k_B T)}$  gegeben ist (s. Diskussion zu Gl. (4.29)).

Wie im Folgenden gezeigt wird, kann diese Herangehensweise zur Beschreibung der nichtresonanten Emission lediglich thermische, inkohärente Photonen erzeugen. Ferner ist die Situation mit  $\Gamma > \kappa$  pathologisch, da sie auf eine exponentiell anwachsende Photonenstatistik mit „negativer Temperatur“ führt.

Um diese Probleme zu lösen, darf die Photonen-Emission des Hintergrundes nicht als durch ein thermisches Reservoir vermittelt angesehen werden. Vielmehr wird sie durch ein aktives Medium erzeugt, welches in der Lage ist, kohärente Emission und Sättigungseffekte durch Pauli-blocking und Photonenreabsorption zu zeigen. Eine Möglichkeit, dieses Feature auf phänomenologischer Ebene zu berücksichtigen, bietet die Verwendung des Random-Injection-Modells von Scully und Lamb [248, 264, 288]. Dieses diente ursprünglich der Beschreibung von Mikromasern, wobei hoch angeregte Rydbergatome eine Kavität hoher Güte kreuzen, sodass diese für einen begrenzten Zeitraum  $\tau$  mit dem Mikrowellenfeld wechselwirken. Unter der Annahme, dass die Wechselwirkungszeit  $\tau$  als Lebensdauer einer an die Lasermode gekoppelten Emitteranregung interpretiert wird, kann dieses Modell auch zur Beschreibung eines Lasers verwendet werden [205, 248, 264]. Die Emitter werden hierbei als invertierte Zwei-Niveau-Systeme angenommen, welche zufällig und mit vorgegebener Rate  $\Gamma$  in das System eingebracht/injiziert werden und über die Jaynes-Cummings-Wechselwirkung an die Kavitätsmode koppeln. Der Wechselwirkungszeitraum wird hierbei ebenfalls als Zufallsvariable betrachtet. Zum Ende der Wechselwirkung wird der Kontakt mit dem System unterbrochen und die Freiheitsgrade des Emitters durch Bildung der Spur eliminiert. Unter diesen Voraussetzungen lässt sich, wie in



**Abbildung 4.1.:** Einzel-Quantenpunkt-Emission mit zusätzlichen Hintergrundbeiträgen. Verwendet wurde der Parametersatz A aus Kapitel 3, zusammen mit den Parametern der Hintergrundbeiträge  $\alpha = 0.007$  und  $S = 3.0$ . Die Kavität ist in Resonanz mit dem Exziton-Übergang. Die grauen Kurven entsprechen jeweils einer Rechnung unter Verwendung von Gl. (4.1) anstatt Gl. (4.2) zur Beschreibung der Hintergrundemission. **Links:** Die Eingangs-/Ausgangs-Kennlinie zeigt, wie die Hintergrundbeiträge die Photonproduktion übernehmen, nachdem der Exziton-Übergang in den Bereich des Quenchings übergeht. **Rechts:** Bei Verwendung des inversen Verlusttermes deutet die Autokorrelationsfunktion für hohe Einfangraten auf eine thermische und unter Berücksichtigung von Sättigungseffekten auf eine kohärente Photonstatistik hin.

Anhang A gezeigt wird, ein Beitrag zur Zeitentwicklung der Photonen-Dichtematrix ableiten:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \rho_f^{n,m} \Big|_{\text{cf}} = & -\Gamma \left[ \frac{\Delta_{n+1,m+1}}{1 + S\Delta_{n+1,m+1}} + \frac{\Sigma_{n+1,m+1}}{1 + S\Sigma_{n+1,m+1}} \right] \rho_f^{n,m} \\ & + \Gamma \left[ \frac{\sqrt{nm}}{(1 + S\Delta_{n,m})(1 + S\Sigma_{n,m})} \right] \rho_f^{n-1,m-1}, \end{aligned} \quad (4.2)$$

wobei die Notation  $\Delta_{n,m} = (\frac{\sqrt{n}-\sqrt{m}}{2})^2$  und  $\Sigma_{n,m} = (\frac{\sqrt{n}+\sqrt{m}}{2})^2$  verwendet und  $S$  als Sättigungskoeffizient bezeichnet wird. Zu beachten ist, dass diese Gleichung im Grenzfall verschwindender Sättigung ( $S = 0$ ) die Gl. (4.1) enthält.

**Numerische Ergebnisse** Experimentell wurde stimulierte Emission auf der Exziton-Resonanz in Anwesenheit von Hintergrundemittern beobachtet [201, 202, 224], sodass diese Situation Gegenstand der folgenden Diskussion sein soll. Wir verwenden hierzu das in Kapitel 3 vorgestellte Modell eines Einzel-Quantenpunkt-Lasers und berücksichtigen den Einfluss residualer Emitters auf die Photonenerzeugung in der Kavitätsmode, indem wir den zugehörigen Gewinnterm (4.2)



zur von-Neumann Entwicklung hinzufügen. Für den Parameter  $\Gamma$  nutzen wir einen Wert proportional zu den Einstreuratzen, d.h.  $\Gamma = \alpha\gamma_p^{\text{in}}$  und halten zudem den Sättigungskoeffizienten  $S$  konstant. Tatsächlich ist die Wahl einer unbeschränkten Gewinnrate nur für eine sehr große Anzahl an Hintergrundemittern gültig. In einem System mit wenigen residualen Quantenpunkten weist auch diese Rate eine Sättigung auf, wie der Vergleich mit den Ergebnissen eines mikroskopischen Modells in Abschnitt 4.2.3 zeigt.

In Abb. 4.1 ist die mittlere Photonenzahl für den Parametersatz A aus Kapitel 3 gezeigt, wobei zusätzlich Hintergrundbeiträge berücksichtigt sind. Anstelle einer Sättigung der Photonproduktion wie in Abb. 3.4 nimmt diese mit steigender Einstreuung der Ladungsträger weiter zu, sodass das Laserregime erreicht werden kann. Der zugehörige Wert der Autokorrelationsfunktion  $g^{(2)} = 1$  weist hierbei auf kohärente Emission hin. Bei der höchsten Einfangrate ist zu sehen, dass die Photonproduktion hauptsächlich durch die zusätzlichen Emitter verursacht wird. Folglich kann der Wert der kohärenten Emission in der Autokorrelationsfunktion allein auf die Beiträge des Hintergrundes zurückgeführt werden. Zum Vergleich wurde als graue Kurve in Abb. 4.1 das Resultat unter Verwendung des gängigen inversen Verlusttermes (4.1) bei gleicher Rate dargestellt. In diesem Fall zeigt die Photonstatistik, dass zum Photonenfeld eine rein thermische Komponente hinzugefügt wurde und  $g^{(2)}$  stattdessen einen Wert von 2 annimmt. Des Weiteren ist zu beachten, dass bei Verwendung von Gl. (4.1) eine stabile Lösung nicht über den gesamten Anregungsbereich gefunden werden kann.

Zur Diskussion der Ergebnisse betrachten wir neben den durch Gl. (4.2) beschriebenen Gewinnbeiträgen auch Kavitätsverluste<sup>1</sup> mit der Rate  $\kappa$  und erhalten für die Diagonalelemente

$$\frac{\partial}{\partial t}\rho_f^{n,n} = -\frac{\Gamma(n+1)}{1+S(n+1)}\rho_f^{n,n} + \frac{\Gamma n}{1+S n}\rho_f^{n-1,n-1} + \kappa(n+1)\rho_f^{n+1,n+1} - \kappa n\rho_f^{n,n}. \quad (4.3)$$

Im stationären Zustand kompensieren sich Gewinn- und Verlustbeiträge, sodass für die zugehörige Photonstatistik

$$\rho_f^{n,n} = \frac{\Gamma/\kappa}{1+S n}\rho_f^{n-1,n-1} \quad (4.4)$$

folgt. Aus Gl. (4.4) wird deutlich, dass die Photonstatistik für verschwindende Sättigung ( $S = 0$ ) thermisch verteilt ist, da

$$\rho_f^{n,n} \propto \left(\frac{\Gamma}{\kappa}\right)^n \quad \text{mit} \quad \Gamma/\kappa = e^{-\omega/(k_B T)}. \quad (4.5)$$

Jedoch wächst  $\rho_f^{n,n}$  für den Fall  $\Gamma > \kappa$  monoton an, sodass Sättigungseffekte des Gewinnmaterials für eine Beschränkung der Photonenzahl notwendig sind. Folglich wird in Abb. 4.1 unter

<sup>1</sup>Im Scully-Lamb Modell werden Verluste durch weitere, ebenfalls zufällig injizierte Emitter erzeugt, die sich zu Beginn der Zeitentwicklung im Grundzustand befinden. Unter der Annahme, dass sich diese wie ideale Absorber verhalten, folgt der gleiche Lindblad-Beitrag zur Beschreibung von Kavitätsverlusten (3.6) [264].



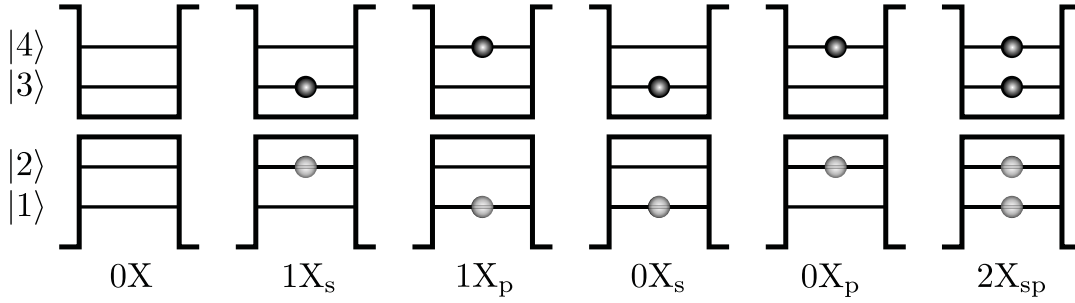
Verwendung des inversen Verlusttermes (4.1) die Lösung ab einer Pumprate von  $\approx 14.3/\text{ps}$  instabil. Hingegen führt die Berücksichtigung von Sättigungseffekten mit  $S > 0$  zu einer Stabilisierung der Lösung. Des Weiteren kann für diesen Fall gezeigt werden, dass jenseits der Laserschwelle die Beiträge zur Photonenstatistik (4.4) kohärenten Charakter haben [205, 264], was in Abb. 4.1 bei hoher Anregung zu erkennen ist.

Offensichtlich sind beide Methoden zur Modellierung der Hintergrundemission nicht beliebig austauschbar, da sie unterschiedliche physikalische Situationen im obigen Sinne beschreiben. Der Einfluss auf die Photonenstatistik hängt dabei nicht von den verwendeten Parametern ab, sondern liegt in den Termen selbst. Folglich kann für den Fall, dass ein signifikanter Anteil der Photonen durch den Hintergrund erzeugt wird, keine kohärente Emission bei Verwendung eines inversen Verlustterms erwartet werden.

## **4.2. Einfluss Phonon-assistierter nichtresonanter Kopplung auf die Emission von Quantenpunkt-Mikrokavitätslasern**

Bisher erfolgte eine rein phänomenologische Beschreibung der Hintergrundemission, welche insbesondere in Systemen mit einer großen Anzahl nichtresonanter Emitter Anwendung findet, wo eine explizite Lösung mit exzessivem numerischen Aufwand verbunden ist. Die Freiheitsgrade der residualen Emitter wurden zunächst vollständig vernachlässigt und anschließend im Rahmen des Random-Injection-Modells effektiv behandelt. Dieser Zugang sorgt allerdings für eine gewisse Freiheit in der Wahl der involvierten Parameter und vernachlässigt neben der Ladungsträgerdynamik in den Quantenpunkten auch den zugrunde liegenden nichtresonanten Kopplungsmechanismus und wechselseitige Effekte der Emitter untereinander. Aus diesem Grund werden die residualen Emitter im Folgenden explizit berücksichtigt, wobei der gesamte Hilbertraum mehrerer an die Kavitätsmode gekoppelter Quantenpunkte den Ausgangspunkt darstellt. Exemplarisch für die nichtresonante Emission der verstimmten Emitter werden Phonon-assistierte Prozesse betrachtet, welche für kleine bis moderate Verstimmungen dominieren. Der Fokus liegt hierbei auf dem Einfluss dieser Kopplungseffekte auf die Produktion und statistischen Eigenschaften der Kavitätsphotonen.

Der Hilbertraum des Systems, bestehend aus mehreren Quantenpunkten und den Kavitätsphotonen, wird einerseits aufgespannt durch die Konfigurationen, welche durch Besetzung der Quantenpunkt-Einteilchenzustände mit Ladungsträgern gebildet werden, und andererseits durch die Photonenzahl in der Kavitätsmode. Der elektronische Unterraum wächst jedoch rapide mit zunehmender Anzahl an Emittern und Quantenpunkt-Zuständen. Aus diesem Grund ist die numerische Behandlung der Erweiterung des in Kapitel 3 vorgestellten Modells eines Einzel-Quantenpunkt-Lasers auf  $N$  Emitter nicht ohne Einschränkungen möglich: Pro Quantenpunkt werden zwei gebundene Einteilchenzustände ( $s$ - und  $p$ -Zustände) angenommen und



**Abbildung 4.2.:** Mögliche Konfigurationen eines vier-Niveau Quantenpunktes, dessen Elektronen und Löcher im Leitungs- und Valenzband nur paarweise erzeugt und vernichtet werden können.

die Ladungsträger entsprechend der Diskussion in Abschnitt 3.3.1 auf eine Spinrichtung beschränkt. Zudem werden nur solche Streuprozesse betrachtet, welche die Ladungsträgerzahl in jedem Quantenpunkt erhalten und eine paarweise Anregung von Elektronen und Löchern involvieren. Ausgehend von den Zuständen mit vollem Valenz- und leerem Leitungsband, verbleiben für jeden Quantenpunkt sechs mögliche Konfigurationen (s. Abb. 4.2), anstelle von 4096 bei unabhängiger Einstreuung und unter Berücksichtigung von beiden Spin-Freiheitsgraden. Diese reduzierte Anzahl elektronischer Konfigurationen beschreibt jedoch bereits wesentliche Charakteristiken durch das Wechselspiel von Multi-Exziton-Konfigurationen [227, 263]. Andererseits eröffnen zusätzliche Multi-Exziton-Konfigurationen eine Vielzahl von Rekombinationskanälen, die sich teilweise als resonant mit der Kavitätsmode herausstellen können [296]. Der Fokus soll hier jedoch auf der nichtresonanten Kopplung liegen.

Mit diesen Einschränkungen erlaubt das Modell aktuell, bis zu vier Quantenpunkte in Anwesenheit einer Kavitätsmode zu berechnen. Auch wenn eine größere Anzahl an Emittlern wünschenswert wäre, so lassen sich schon auf diesem Niveau Tendenzen ableiten. Eine numerische Auswertung für mehr als vier Emittler wäre zwar unter Verwendung eines Zwei-Niveau-Systems möglich; dieses zeigt allerdings anregungsinduziertes Quenching [191] (s. Abschnitt 3.3), welches experimentell bisher nicht beobachtet wurde [269, 280, 294].

#### 4.2.1. Quantenpunkte in Wechselwirkung mit einer Kavitätsmode

Wir beginnen mit der Beschreibung des Systems, bestehend aus mehreren Quantenpunkten, welche mit einer Kavitätsmode wechselwirken, unter Verwendung des Dichteoperators  $\rho$ , dessen Zeitentwicklung durch die von-Neumann-Lindblad-Gleichung (2.31) gegeben ist. Die kohärente Dynamik wird hierbei durch den System-Hamiltonoperator

$$H_S = \sum_{\nu=1}^N H_{\text{QD}}^{\nu} + H_{\text{pt}}^0 + \sum_{\nu=1}^N H_{\text{e-pt}}^{\nu} \quad (4.6)$$

bestimmt, welcher Beiträge der Quantenpunkt-Ladungsträger, der Kavitätsphotonen und Jaynes-Cummings Elektron-Photon-Wechselwirkung enthält. Der Hamiltonoperator des  $\nu$ -ten Quantenpunktes  $H_{\text{QD}}^\nu$  besteht hierbei neben dem Einteilchen-Anteil aus dem der Coulomb Wechselwirkung,

$$H_{\text{QD}}^\nu = \sum_i \varepsilon_i^\nu a_{\nu,i}^\dagger a_{\nu,i} + \frac{1}{2} \sum_{ijkl} V_{ijkl}^\nu a_{\nu,i}^\dagger a_{\nu,j}^\dagger a_{\nu,k} a_{\nu,l}, \quad (4.7)$$

worin  $a_{\nu,i}, a_{\nu,i}^\dagger$  fermionische Ladungsträgeroperatoren sind. Der Index  $i$  läuft hierbei über den Satz der Quantenpunkt-Einteilchenzustände  $\{1 \dots 4\}$ , wobei die Zustände  $|i\rangle$  in der Ordnung aufsteigender Energie nummeriert sind (s. Abb. 4.2). Wir beschränken uns auf die dominanten Coulomb-Beiträge  $V_{ijji}^\nu$  und  $V_{ijij}^\nu$ , welche einer direkten/Hartree- und Austausch-/Fock-Wechselwirkung entsprechen (vgl. Abschnitt 2.2). Diese sind diagonal in der Basis der Besetzungen, sodass die sechs möglichen Konfigurationen in Abb. 4.2 eine Eigenbasis von  $H_{\text{QD}}^\nu$  darstellen. Die weiteren Beiträge in Gl. (4.6) beschreiben die Photonenmode und deren Wechselwirkung mit den Quantenpunkten

$$H_{\text{pt}}^{0,\nu} + \sum_{\nu=1}^N H_{\text{e-pt}}^\nu = \omega_c b^\dagger b + g \left( b^\dagger a_{\nu,2}^\dagger a_{\nu,3} + b a_{\nu,3}^\dagger a_{\nu,2} \right), \quad (4.8)$$

wobei  $b, b^\dagger$  Photonoperatoren,  $\omega_c$  die Frequenz der Kavitätsmode und  $g$  die Kopplungskonstante der Licht-Materie-Wechselwirkung sind. Der Jaynes-Cummings-Hamiltonoperator führt hierbei zu einem kohärenten Energieaustausch zwischen der Kavität und dem Elektron-Loch-Paar des  $s$ -Zustandes. Zudem wurde in Gl. (4.7) und (4.8) angenommen, dass kein Überlapp zwischen den Wellenfunktionen von Zuständen zu unterschiedlichen Quantenpunkten besteht, da typischerweise die Quantenpunkt-Dichte im Bereich von  $10^8 - 10^{11}/\text{cm}^2$  liegt, sodass der Abstand benachbarter Quantenpunkte hinreichend groß ist. Als Konsequenz sind  $H_{\text{QD}}^\nu$  und  $H_{\text{e-pt}}^\nu$  diagonal im Quantenpunkt-Index, welcher der Übersicht halber im Folgenden fortgelassen wird.

**Dissipative Prozesse und inkohärente Dynamik** Die Quantenpunkte sind zudem in einem Halbleitermaterial eingebettet, wobei der Kontakt mit der Umgebung den Einfang von Ladungsträgern in die Quantenpunkt-Zustände auf einer ps-Zeitskala ermöglicht [150, 260, 262]. Hierbei kommt es zu einem Energieaustausch mit den Gitterschwingungen und den Ladungsträgern der Benetzungsschicht bzw. des Volumenmaterials. Streuprozesse zwischen den lokalisierten und delokalisierten Zuständen sowie innerhalb des Quantenpunktes werden entsprechend durch die Wechselwirkung der Ladungsträger mit LO-Phononen [249] und durch die Coulomb-Wechselwirkung [31, 200] vermittelt (vgl. Abschnitt 2.4). Durch die große Zahl an Freiheitsgraden spielen diese delokalisierten Zustände die Rolle eines Reservoirs und führen zu irreversiblen Relaxations- und Dephasierungsprozessen. Ferner ist das System an seine

Umgebung durch andere Photonenmoden gekoppelt. Dies ermöglicht (i) eine Ladungsträger-Rekombination durch spontane Emission in ein Kontinuum von Moden, welche nicht zur stimulierten Emission beitragen und (ii) Kavitätsverluste der Photonen in der Laser-Mode, sodass diese nur eine endliche Lebensdauer besitzen.

Neben der kohärenten Dynamik in Gl. (2.31) resultieren folglich inkohärente, dissipative Effekte aus der System-Reservoir-Wechselwirkung, welche auf eine Summe von Lindblad-Operatoren  $\mathcal{L}_x(\rho)$ , entsprechend Gl. (2.32), führt. Die im System stattfindenden Reservoir-assistierten Übergänge werden im Folgenden durch den Operator  $x$  beschrieben. Die relevanten Informationen über das Reservoir und seine Wechselwirkung mit dem System sind in den zugehörigen Übergangsraten  $\gamma_x$  enthalten.

Ist  $x$  ein Operator, der die Energie im System erniedrigt, z.B. durch Verlust eines Photons ( $x = b$ ) oder einen Streuprozess ( $x = a_i^\dagger a_j$  mit  $\varepsilon_i < \varepsilon_j$ ), dann erscheint dieser Operator im Hamiltonoperator der System-Reservoir-Wechselwirkung  $H_{\text{SR}}$  zusammen mit einem Reservoir-Operator  $\Gamma^\dagger$ , welcher die Energie im Reservoir erhöht. Der Term  $x \Gamma^\dagger$  führt in Born-Markov Näherung [38, 46] auf einen Lindblad-Operator  $\mathcal{L}_x$  mit der zugehörigen Übergangsrate

$$\gamma_x = \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\omega t} \langle \Gamma(t) \Gamma^\dagger \rangle_{\text{R}} . \quad (4.9)$$

Diese ist bestimmt durch die fouriertransformierte Reservoir-Korrelationsfunktion  $\langle \cdot \rangle_{\text{R}}$ , ausgewertet an der Frequenz  $\omega$ , welche dem Energieverlust im System entspricht. Der Hamiltonoperator  $H_{\text{SR}}$  enthält ebenfalls den inversen Operator  $x^\dagger \Gamma$ , dessen Übergänge die Energie im System erhöhen, und in der Gl. (2.31) als Lindblad-Term  $\mathcal{L}_{x^\dagger}$ , mit der zugehörigen Rate

$$\gamma_{x^\dagger} = \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} \langle \Gamma^\dagger(t) \Gamma \rangle_{\text{R}} \quad (4.10)$$

erscheint. Stark nichtresonante Beiträge zu  $H_{\text{SR}}$  der Form  $x \Gamma$  oder  $x^\dagger \Gamma^\dagger$  gehen einher mit, im Vergleich zur Dynamik des Systems, schnell oszillierenden Phasenfaktoren und werden typischerweise vernachlässigt. Dieses Vorgehen wird in der Quantenoptik auch als Rotating Wave Näherung [247, 288] bezeichnet.

Zusammenfassend erhalten wir für den dissipativen Anteil der von-Neumann-Lindblad-Gleichung (2.31)

$$\sum_x \mathcal{L}_x(\rho) = \sum_{(i,j)} \mathcal{L}_{a_i^\dagger a_j}(\rho) + \mathcal{L}_b(\rho) , \quad (4.11)$$

wobei die Summation über Paare  $(i, j)$  läuft und neben dem paarweisen Anregungsprozess (4, 1) auch Intraband-Relaxationsprozesse für Elektronen (3, 4) und Löcher (1, 2) sowie den nicht-radiativen Zerfall des Quantenpunkt-Exzitons (3, 4) enthält. Zu bemerken ist, dass bei tiefen Temperaturen die Streuung in einen Zustand, welcher auf eine energetisch bevorzug-

te Konfiguration führt, über den inversen Prozess dominiert, weshalb nur diese Beiträge in Gl. (4.11) enthalten sind. Zudem beschreibt der letzte Term in Gl. (4.11) die Verluste von Photonen in der Kavitätsmode.

#### 4.2.2. Phonon-assistierte nichtresonante Kopplung

Die gebundenen Ladungsträger der Quantenpunkte wechselwirken effektiv mit den Schwingungsfreiheitsgraden des Halbleiterkristalls. Als Konsequenz kommt es z.B. durch die Wechselwirkung mit den LO-Phononen zu effizienten Streuprozessen, welche in zahlreichen Experimenten auch bei niedriger Anregungsdichte festgestellt werden konnten [184, 189, 204]. Daneben spielen LA-Phononen, welche vergleichsweise ineffizient für Besetzungsänderungen der Ladungsträger sind, in Verbindung mit der Linienform des Exziton-Übergangs eine wichtige Rolle [147, 295, 306], wobei die Wechselwirkung insbesondere bei tiefen Temperaturen und niedrigen Anregungsdichten einen wesentlichen Beitrag zur reinen Dephasierung liefert [147, 192]. Bedingt durch den dreidimensionalen Einschluss beeinflussen die Ladungsträger die Moden der Gitterschwingungen stark lokal, sodass es zu einer Hybridisierung der elektronischen und phononischen Freiheitsgrade kommt. Dies macht eine nicht-störungstheoretische Beschreibung der Elektron-Phonon-Wechselwirkung erforderlich und geht einher mit einem Spektrum, welches ausgeprägte Seitenbanden durch Multi-Phonon-Prozesse enthält [24, 33, 74, 306]. Die gemeinsame Anregung eines Elektrons und der es umgebenden Gitterverspannungen kann hierbei als Quasi-Teilchen, das Polaron, beschrieben werden. Dieses Bild lässt sich für einen polaren Kristall folgendermaßen verstehen [58]: Bewegt sich ein Ladungsträger durch einen ionischen Kristall, so polarisiert er seine Umgebung, was der Emission eines oder mehrerer optischer Phononen entspricht. Andererseits wird der Ladungsträger selbst durch die Gitterpolarisationen beeinflusst, indem er Phononen absorbiert. Somit bewegt sich der Ladungsträger zusammen mit der ihn umgebenden Polarisationswolke als gemeinsame Anregung durch den Kristall. Für ein einzelnes Elektron erlaubt das Problem, welches auch als Independent-Boson-Modell [169] bezeichnet wird, eine analytische Lösung. Andererseits ist der dominante Beitrag zur Elektron-Phonon-Kopplung in den diagonalen Matrix-Elementen mit Bezug auf den elektronischen Zustandsindex enthalten. Aus diesem Grund wurde dieses Modell vielfältig zur Berechnung der Linienform verwendet. In letzter Zeit wurde zudem auf die Rolle der LA-Phononen in Hinblick auf die nichtresonante Kopplung hingewiesen [7, 42, 59, 133, 275] und es konnte gezeigt werden, dass zur Beschreibung des Phonon-assistierten Energietransfers zwischen dem Exziton und der Kavität das Polaron-Bild eine geeignete Wahl darstellt [116, 177, 228, 299].

Zur Illustration dieser Idee betrachten wir das zuvor beschriebene Quantenpunkt-Mikrokavitätssystem in Kontakt mit dem Kontinuum der LA-Phononen

$$H = H_S + H_{pn} + H_{S-pn} = H_S + \sum_{\mathbf{q}} \omega_{\mathbf{q}} D_{\mathbf{q}}^{\dagger} D_{\mathbf{q}} + \sum_{i, \mathbf{q}} M_{\mathbf{q}}^i a_i^{\dagger} a_i (D_{-\mathbf{q}}^{\dagger} + D_{\mathbf{q}}) . \quad (4.12)$$

Hierin vernichtet (erzeugt) der Operator  $D_{\mathbf{q}}$  ( $D_{\mathbf{q}}^\dagger$ ) ein Phonon in der Mode  $\mathbf{q}$ . Die Wechselwirkungsstärke zwischen dem Zustand  $|i\rangle$  und der Mode  $\mathbf{q}$  ist hierbei durch  $M_{\mathbf{q}}^i = M_{-\mathbf{q}}^{i*}$  gegeben.

Würden wir das phononische Subsystem nun als ein thermisches Reservoir betrachten und die System-Reservoir-Wechselwirkung  $H_{\text{S-pn}}$  entsprechend der Diskussion im vorigen Abschnitt 4.2.1 in Born-Markov Näherung behandeln, erhielten wir einen Lindblad-Term  $\mathcal{L}_{a_i^\dagger a_i}$  [8, 215], welcher ausschließlich reine Dephasierung erzeugt. Die Ursache liegt im zugehörigen Systemoperator  $x = a_i^\dagger a_i$ , durch den keine Besetzungsumverteilung stattfindet. Zusammen mit den anderen dissipativen Prozessen ist folglich der einzige Kanal für einen kohärenten Energieaustausch zwischen dem Quantenpunkt und der Kavität gegeben durch die Jaynes-Cummings-Wechselwirkung. Die Ursache hierfür liegt in der Annahme eines Reservoirs, sodass die Phononen durch die Anwesenheit der Quantenpunktanregung nicht gestört werden.

**Polaron Transformation** Eine alternative Möglichkeit, einen Phonon-assistierten Prozess zur Kinetik hinzuzufügen, bietet daher das Polaron-Bild. Aus diesem Grund verwendet man eine unitäre Transformation, welche im Independent-Boson-Modell gebräuchlich ist [169]. Zur Illustration betrachten wir zunächst den Fall eines einzelnen Elektrons mit der Energie  $\varepsilon$  in Kontakt mit den Phononen, wobei der zugehörige Hamiltonoperator durch

$$H_{\text{IBM}} = \varepsilon a^\dagger a + \sum_{\mathbf{q}} \omega_{\mathbf{q}} D_{\mathbf{q}}^\dagger D_{\mathbf{q}} + a^\dagger a \sum_{\mathbf{q}} M_{\mathbf{q}} (D_{-\mathbf{q}}^\dagger + D_{\mathbf{q}}) \quad (4.13)$$

gegeben ist. Die Anwendung der unitären Transformation

$$\tilde{D}_{\mathbf{q}} = e^{\mathcal{S}} D_{\mathbf{q}} e^{-\mathcal{S}} = D_{\mathbf{q}} - \frac{M_{\mathbf{q}}}{\omega_{\mathbf{q}}} a^\dagger a, \quad (4.14)$$

$$\text{mit } \mathcal{S} = a^\dagger a \sum_{\mathbf{q}} \frac{M_{\mathbf{q}}}{\omega_{\mathbf{q}}} (D_{-\mathbf{q}}^\dagger - D_{\mathbf{q}}), \quad (4.15)$$

verschiebt das Phononenfeld um den Betrag  $M_{\mathbf{q}}/\omega_{\mathbf{q}}$ , sodass in Anwesenheit des Elektrons die Phononen eine neue Gleichgewichtsposition einnehmen und der transformierte Hamiltonoperator

$$\tilde{H}_{\text{IBM}} = (\varepsilon - \Delta_{\text{p}}) a^\dagger a + \sum_{\mathbf{q}} \omega_{\mathbf{q}} \tilde{D}_{\mathbf{q}}^\dagger \tilde{D}_{\mathbf{q}} \quad (4.16)$$

eine Diagonalgestalt annimmt. Aus diesem Grund wird die Transformation auch als Polaron-Transformation und die Energierenormierung  $\Delta_{\text{p}} = \sum_{\mathbf{q}} |M_{\mathbf{q}}|^2 / \omega_{\mathbf{q}}$  als Polaron-Shift bezeichnet [116]. Durch eine Verallgemeinerung dieser Transformation

$$\tilde{H} = e^{\mathcal{S}} H e^{-\mathcal{S}} \quad \text{mit} \quad \mathcal{S} = \sum_{i,\mathbf{q}} \alpha_{\mathbf{q}}^i a_i^\dagger a_i (D_{-\mathbf{q}}^\dagger - D_{\mathbf{q}}), \quad \alpha_{\mathbf{q}}^i = M_{\mathbf{q}}^i / \omega_{\mathbf{q}} \quad (4.17)$$

kann der Hamiltonoperator (4.12) auf die Form

$$\tilde{H} = \tilde{H}_{\text{QD}} + g (b^\dagger a_2^\dagger a_3 B^\dagger + b a_3^\dagger a_2 B) + H_{\text{pt}}^0 + H_{\text{ph}} , \quad (4.18)$$

gebracht werden. Die zentralen Ergebnisse der Polaron-Transformation sind: (i) das Verschwinden des Hamiltonoperators der System-Phonon-Wechselwirkung  $H_{\text{S-ph}}$  und (ii) eine Modifikation der Jaynes-Cummings-Wechselwirkung, welche nun neben den Ladungsträger- und Photon-Operatoren auch Phonon-Operatoren enthält. Das erste Ergebnis folgt, wie im Fall eines einzelnen Elektrons, aus der Verschiebung des Phonon-Operators, wobei  $\tilde{D}_{\mathbf{q}} = D_{\mathbf{q}} - \sum_i \alpha_{\mathbf{q}}^{i*} a_i^\dagger a_i$  ist. Hingegen folgt das zweite durch die Modifikation der Ladungsträger-Operatoren, entsprechend  $\tilde{a}_i = a_i B_i^\dagger$ , wobei die unitären Operatoren  $B_i = e^{\mathcal{D}_i}$  und  $B_i^\dagger = e^{-\mathcal{D}_i}$  durch  $\mathcal{D}_i = \sum_{\mathbf{q}} \alpha_{\mathbf{q}}^i (D_{-\mathbf{q}}^\dagger - D_{\mathbf{q}})$  gegeben und folglich rein phononisch sind. Unter Verwendung der Tatsache, dass die Operatoren  $\mathcal{D}_i$  kommutieren, folgt  $B = B_3^\dagger B_2 = e^{\mathcal{D}}$ , wobei

$$\mathcal{D} = \mathcal{D}_2 - \mathcal{D}_3 = \sum_{\mathbf{q}} (\alpha_{\mathbf{q}}^2 - \alpha_{\mathbf{q}}^3) (D_{-\mathbf{q}}^\dagger - D_{\mathbf{q}}) = \sum_{\mathbf{q}} \alpha_{\mathbf{q}} (D_{-\mathbf{q}}^\dagger - D_{\mathbf{q}}) . \quad (4.19)$$

Hieraus wird ersichtlich, dass die relevante Kopplungskonstante für das Problem

$$M_{\mathbf{q}} = \alpha_{\mathbf{q}} \omega_{\mathbf{q}} = M_{\mathbf{q}}^2 - M_{\mathbf{q}}^3 \quad (4.20)$$

durch die Differenz der Kopplungskonstanten für den Elektron- und Loch- $s$ -Zustand gegeben ist. Viele Autoren betrachten aus diesem Grund schon von vornherein einen effektiven Exziton-Phonon-Hamiltonoperator [117, 177, 197, 228, 295]. Zudem enthält der Quantenpunkt-Hamiltonoperator

$$\tilde{H}_{\text{QD}} = H_{\text{QD}} - \sum_{i,j,\mathbf{q}} \alpha_{\mathbf{q}}^i \alpha_{\mathbf{q}}^{j*} a_i^\dagger a_i a_j^\dagger a_j \quad (4.21)$$

nun zusätzlich die Beiträge des Polaron-Shifts, welche diagonal in der Besetzungszahl sind und die Konfigurationsenergien, ähnlich der Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Quantenpunkt-Ladungsträgern (s. Gl. (4.7)), renormieren. Für die hier betrachteten InAs/GaAs Quantenpunkte sind die Energieverschiebungen allerdings klein im Vergleich zu den Coulomb-induzierten Renormierungen und werden daher im Folgenden vernachlässigt.

Zusammen mit den Phononen, welche in Gl. (4.18) als thermisches Reservoir agieren, ist die System-Reservoir-Wechselwirkung nun Bestandteil des Jaynes-Cummings Terms. Dies ist die wesentliche Neuerung durch die Verwendung des Polaron-Bildes und trägt der Tatsache Rechnung, dass eine Änderung in den elektronischen Zuständen von Gitterverzerrungen begleitet wird. Teilt man den Jaynes-Cummings-Hamiltonoperator folgendermaßen auf

$$\tilde{H}_{\text{e-pt}} = g \langle B \rangle_{\text{R}} (b^\dagger a_2^\dagger a_3 + b a_3^\dagger a_2) + g (b^\dagger a_2^\dagger a_3 \Gamma^\dagger + b a_3^\dagger a_2 \Gamma) , \quad (4.22)$$



so beschreibt der Operator  $\Gamma = B - \langle B \rangle_R$  die Fluktuationen des Reservoir-Anteils der System-Reservoir-Wechselwirkung in Bezug auf dessen thermischen Erwartungswert. Mit Gl. (4.9) und (4.10) führt der zweite Term auf zwei neue Lindblad-Operatoren  $\mathcal{L}_{b^\dagger a_2^\dagger a_3}$  und  $\mathcal{L}_{b a_3^\dagger a_2}$ , wohingegen der erste Beitrag die Struktur einer Jaynes-Cummings-Wechselwirkung, allerdings mit einer renormierten Kopplungskonstante  $g \langle B \rangle_R$ , hat. Der thermische Erwartungswert des Verschiebeoperators kann analytisch ausgewertet werden [169] und man erhält

$$\langle B \rangle_R = \langle B^\dagger \rangle_R = e^{-\sum_{\mathbf{q}} |\alpha_{\mathbf{q}}|^2 (N_{\mathbf{q}} + 1/2)}, \quad (4.23)$$

worin  $N_{\mathbf{q}} = [\exp(\omega_{\mathbf{q}}/(k_B T)) - 1]^{-1}$  die thermisch gemittelte Phononenzahl der Phonon-Mode  $\mathbf{q}$  ist.

Fassen wir die Ergebnisse zusammen, so ist die Zeitentwicklung des transformierten Dichteoperators durch

$$\frac{\partial}{\partial t} \tilde{\rho} = -i [\tilde{H}_S, \tilde{\rho}] + \sum_{(i,j)} \mathcal{L}_{a_i^\dagger a_j}(\tilde{\rho}) + \mathcal{L}_b(\tilde{\rho}) + \mathcal{L}_{b^\dagger a_2^\dagger a_3}(\tilde{\rho}) + \mathcal{L}_{b a_3^\dagger a_2}(\tilde{\rho}) \quad (4.24)$$

gegeben, mit dem System-Hamiltonoperator

$$\tilde{H}_S = \tilde{H}_{QD} + \omega_c b^\dagger b + g \langle B \rangle_R (b^\dagger a_2^\dagger a_3 + b a_3^\dagger a_2). \quad (4.25)$$

Hierbei ist zu beachten, dass für die Berechnung von Besetzungswahrscheinlichkeiten  $\langle a_i^\dagger a_i \rangle$  und der mittleren Photonenzahl  $\langle b^\dagger b \rangle$  der transformierte Dichteoperator direkt verwendet werden kann, da das Produkt  $a_i^\dagger a_i$  durch die unitäre Transformation unverändert bleibt und Photon-Operatoren nicht beeinflusst werden. Zudem erhält die Transformation die Form der Lindblad-Operatoren aus Abschnitt 4.2.1.

Aus Gl. (4.24) und (4.25) ist ersichtlich, dass die Anwesenheit der Phononen den kohärenten Energietransfer zwischen dem Exziton und der Kavität durch die Jaynes-Cummings-Wechselwirkung reduziert, da  $\langle B \rangle_R < 1$ . Andererseits eröffnet diese auch neue Kanäle durch die Lindblad-Terme. So beschreibt  $\mathcal{L}_{b^\dagger a_2^\dagger a_3}$  den Phonon-assistierte Transfer von Emitteranregungen zur Kavität, wobei der entgegengesetzte Prozess durch  $\mathcal{L}_{b a_3^\dagger a_2}$  vermittelt wird. Ferner sind die beteiligten Energien in den Phononen-Prozessen zu klein, als dass sie die Nutzung einer Rotating-Wave-Näherung erlauben würden. Folglich treten sowohl Phonon-Emission als auch -Absorption in den Reservoir-Operatoren  $\Gamma^\dagger$  und  $\Gamma$  auf, sodass eine Charakterisierung als Auf- oder Absteigeoperator nicht eindeutig ist. Eine Klassifizierung der zugehörigen Systemoperatoren  $b^\dagger a_2^\dagger a_3$  und  $b a_3^\dagger a_2$  hängt stattdessen von den Systemparametern ab. So ist  $b^\dagger a_2^\dagger a_3$  ein Absteigeoperator, falls die Kavität im Vergleich zum Übergang des  $s$ -Exzitons zu niedrigeren Energien verstimmt ist. Bei einer Rekombination wird mehr Energie frei, als durch das erzeugte Photon benötigt wird, sodass der Energieüberschuss  $\Delta$  durch das Phononbad absorbiert



werden muss. Unter Verwendung von Gl. (4.9) erhält man als Rate für diesen Prozess

$$\gamma_{b^\dagger a_2^\dagger a_3} = g^2 \langle B \rangle_R^2 \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\Delta t} (e^{\Phi(t)} - 1) , \quad (4.26)$$

wobei die Reservoir-Korrelationsfunktion durch

$$\langle \Gamma(t) \Gamma(0) \rangle_R = \langle B(t) B(0) \rangle_R - \langle B \rangle_R^2 = e^{\Phi(t)} \langle B \rangle_R^2 \quad (4.27)$$

gegeben ist [228], mit

$$\Phi(t) = \sum_{\mathbf{q}} |\alpha_{\mathbf{q}}|^2 \left[ (N_{\mathbf{q}} + 1) e^{-i\omega_{\mathbf{q}} t} + N_{\mathbf{q}} e^{i\omega_{\mathbf{q}} t} \right] . \quad (4.28)$$

Der Beitrag  $\propto N_{\mathbf{q}} + 1$  beschreibt hierbei die stimulierte und spontane Phonon-Emission und der Term  $\propto N_{\mathbf{q}}$  die Phonon-Absorption. Entwickelt man den  $\Phi$  enthaltenden Exponenten in Gl. (4.26) nach Potenzen der Wechselwirkungsstärke, so sieht man, dass alle Multi-Phonon-Emissions- und Absorptionsprozesse, die eine Gesamtenergie  $\Delta$  erzeugen, beitragen, was den nicht-perturbativen Charakter dieser Methode unterstreicht.

Ferner sind die Raten  $\gamma_{b^\dagger a_2^\dagger a_3}$  und  $\gamma_{b a_3^\dagger a_2}$  nicht unabhängig voneinander, sondern erfüllen

$$\gamma_{b^\dagger a_2^\dagger a_3} = e^{\Delta/(k_B T)} \gamma_{b a_3^\dagger a_2} , \quad (4.29)$$

was eine Konsequenz der Kubo-Martin-Schwinger (KMS) Bedingung für Korrelatoren im thermodynamischen Gleichgewicht [149, 173] ist, wie in Anhang B gezeigt wird. Folglich müssen beide Prozesse betrachtet werden, da die Verstimmung klein ist und beide Raten vergleichbare Größe haben.

Zur Auswertung der Summation über das Kontinuum der Phonon-Moden verwenden wir die Spektraldichte  $J(\omega)$ , wobei für jedes  $f(\omega)$  gilt:

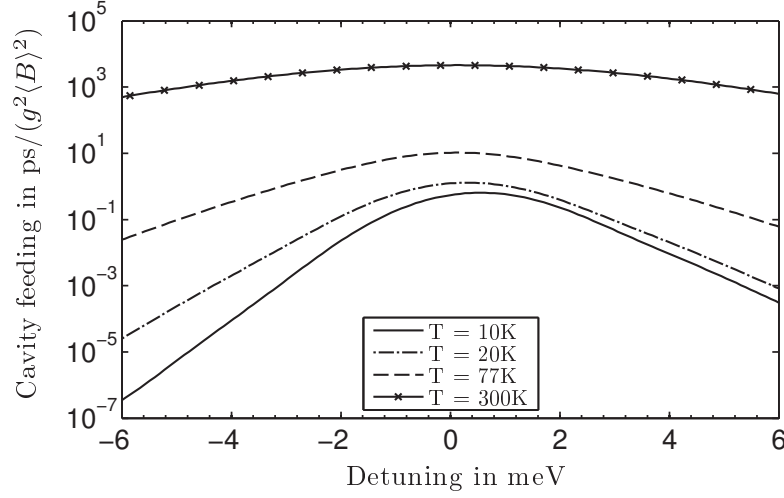
$$\sum_{\mathbf{q}} |M_{\mathbf{q}}|^2 f(\omega_{\mathbf{q}}) = \int_0^\infty d\omega J(\omega) f(\omega) \quad \text{mit} \quad M_{\mathbf{q}} = \alpha_{\mathbf{q}} \omega_{\mathbf{q}} , \quad (4.30)$$

sodass sich Gln. (4.23) und (4.28) folgendermaßen schreiben lassen [176, 177, 228]:

$$\langle B \rangle = \exp \left[ -\frac{1}{2} \int_0^\infty d\omega \frac{J(\omega)}{\omega^2} \coth(\omega/(2k_B T)) \right] \quad (4.31)$$

$$\Phi(t) = \int_0^\infty d\omega \frac{J(\omega)}{\omega^2} [\coth(\omega/(2k_B T)) \cos(\omega t) - i \sin(\omega t)] . \quad (4.32)$$

Der dominante Beitrag zur Wechselwirkung der Quantenpunkt-Zustände mit den LA-Phononen erfolgt in den hier betrachteten InAs/GaAs Quantenpunkten über die Deformationspotential-



**Abbildung 4.3.:** Effektive Rate der nichtresonanten Emission durch die Kopplung der Quantenpunkt Ladungsträger an Phononen als Funktion der Verstimmung von der Kavitätsresonanz. Die Ergebnisse wurden mittels Gl. (4.26) berechnet, gezeigt ist jeweils das Resultat für Temperaturen von 10, 20, 77 und 300 K.

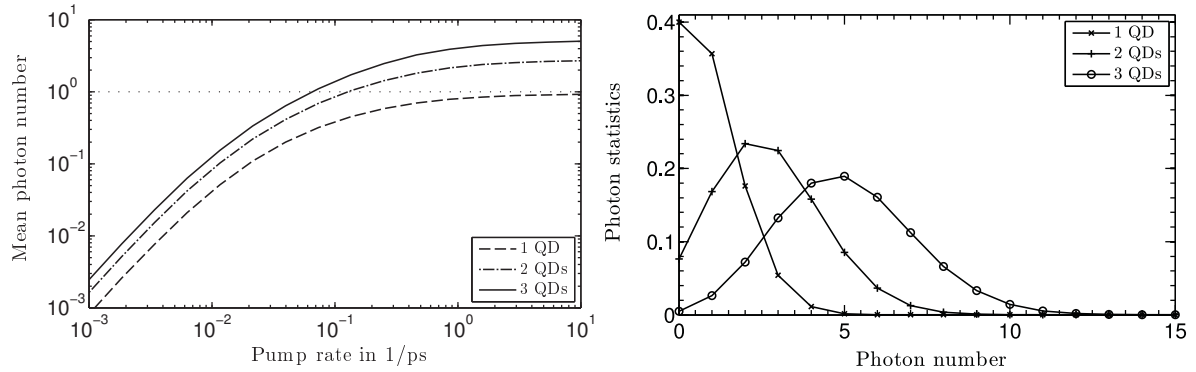
Kopplung [116, 147], welche durch die Spektraldichte

$$J(\omega) = \alpha \omega^3 \exp\left(-\frac{\omega^2}{2\omega_0^2}\right) \quad (4.33)$$

beschrieben werden kann [177, 228, 299], wobei die Kopplungskonstante  $\alpha$  und die cutoff-Frequenz  $\omega_0$  vom Material und von den Quantenpunkt-Parametern abhängen<sup>2</sup>. Für die nachfolgenden Rechnungen wurden die Parameter  $\alpha = 0.06 \text{ ps}^2$ ,  $\omega_0 = 1.5/\text{ps}$  verwendet, welche typisch für InAs/GaAs Quantenpunkte sind [228].

In Abb. (4.3) ist die Rate des Phonon-assistierten Prozesses (4.26) als Funktion der Verstimmung  $\Delta$  gezeigt, welche insbesondere bei tiefen Temperaturen ein asymmetrisches Verhalten aufweist. Ist der Quantenpunkt-Übergang in Bezug auf die Kavitätsmode zu höheren Energien verstimmt, so wird bei der Rekombination der Energieüberschuss durch die Emission eines Phonons kompensiert, wobei eine spontane Emission stets erlaubt ist (s. Gl. (4.28)). Entsprechend ist die Rekombination bei einer Verstimmung zu niedrigeren Energien mit einer Phonon-Absorption verbunden, welche allerdings eine thermische Besetzung der Phonon-Moden erfordert. Diese Prozesse tragen bei höheren Temperaturen zunehmend bei, sodass es zu effizienten Phonon-assistierten Prozessen auch bei negativer Verstimmung kommt und die Rate als Funktion der Verstimmung symmetrischer wird.

<sup>2</sup>Hierbei ist  $\alpha = (D_2 - D_3)^2 / (4\pi^2 \varrho (c_{\text{LA}})^5)$  und  $\omega_0 = 2\beta c_{\text{LA}}$ , worin neben der Schallgeschwindigkeit  $c_{\text{LA}}$ , der Massendichte  $\varrho$  und der Lokalisierungslänge des Exzitons  $1/\beta$  auch die Differenz zwischen den Deformationspotentialen von Elektron und Loch  $D_2 - D_3$  eingeht.

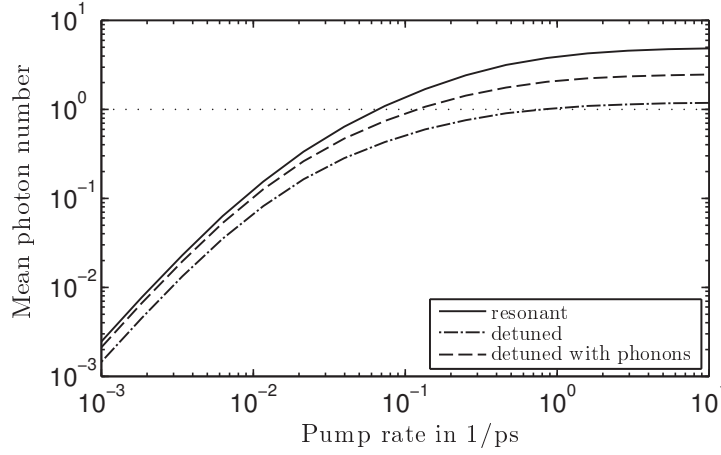


**Abbildung 4.4.: Links:** Mittlere Photonenzahl als Funktion der Pumprate für ein, zwei und drei identische Quantenpunkte. Für alle Quantenpunkte ist der höchste Multi-Exziton-Übergang resonant mit der Kavitätsmode, was die Photonenproduktion bei hoher Anregung maximiert. Zu sehen ist, dass der einzelne Quantenpunktemitter (gestrichelte Linie) das Regime der stimulierten Emission nicht erreicht, bevor die Sättigung einsetzt. Signifikant wird die Photonenzahl durch zwei (gestrichelpunktete Linie) und drei (durchgezogene Linie) resonante Emittoren erhöht. Es wurde in diesen Rechnungen keine Kopplung an Phononen berücksichtigt. **Rechts:** Verteilung der Photonenzahl für eine Pumprate von  $10/\text{ps}$ .

#### 4.2.3. Stimulierte Emission in Anwesenheit eines nichtresonanten Hintergrundes

Zur Illustration der Signifikanz Phonon-assistierter Prozesse werden die folgenden verschiedenen Szenarien verglichen, in denen das System mehrerer an die Kavitätsmode gekoppelter Quantenpunkte in das Regime der stimulierten Emission getrieben wird: (i) Zunächst wird das Laserregime erreicht, in dem sich die betrachteten Emittoren in Resonanz mit der Kavitätsmode befinden. (ii) Durch Verstimmen aller Quantenpunkte bis auf einen wird dieses Regime wieder verlassen. (iii) Schließlich werden Phonon-assistierte Prozesse berücksichtigt, wodurch die verstimmtten Hintergrundemitter wieder effizient werden und das Laserregime erneut erreicht werden kann. Ob sich das System im Regime der stimulierten Emission befindet, wird anhand der gesamten Photonenzahl beurteilt, indem diese mit einer Poissonverteilung verglichen wird. Dies hat den Vorteil, dass nicht nur die niedrigsten Momente, z.B. die mittlere Photonenzahl und die Autokorrelationsfunktion  $g^{(2)}(0)$ , als Kriterium verwendet werden, sondern die gesamte Statistik untersucht wird.

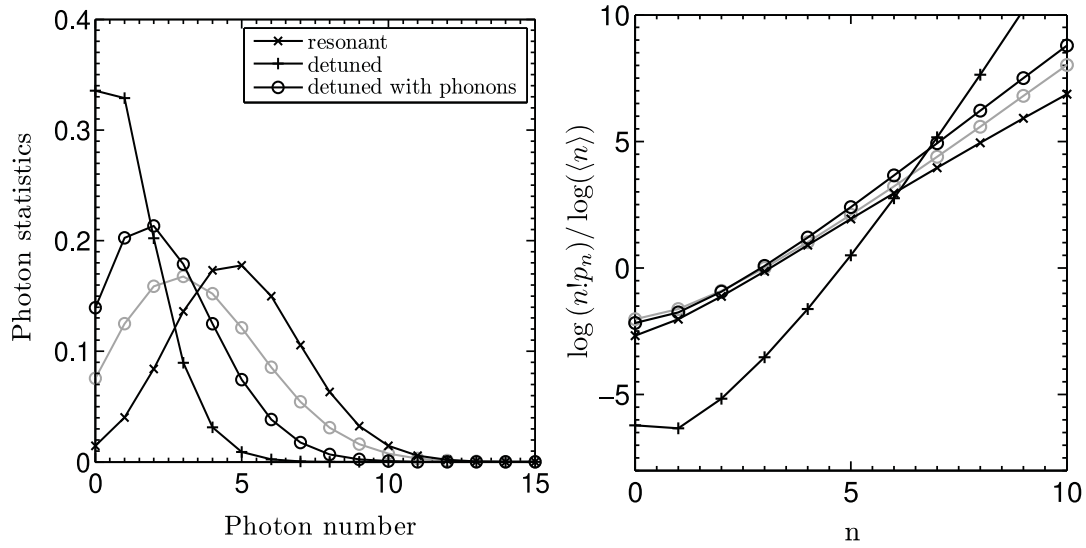
In Abschnitt 3.3 wurde gezeigt, dass die Multi-Exziton-Konfiguration des voll besetzten Quantenpunktes  $2X_{sp}$  bei hoher Anregung präferiert ist und die größtmögliche Photonenzahl liefert, falls sich diese Konfiguration in Resonanz mit der Kavität befindet: Einerseits wird durch das schnelle Nachfüllen die  $2X_{sp}$  Konfiguration am wahrscheinlichsten realisiert; andererseits ist der  $2X_{sp} \rightarrow 1X_p$  Übergang nicht Gegenstand der anregungsabhängigen Dephasierung, was zum Quenching und einer drastischen Reduktion der Photonenzahl führt [191]. Aus diesem Grund nehmen wir an, dass sich die Rekombination dieser Konfiguration in Resonanz mit der



**Abbildung 4.5.:** Mittlere Photonenzahl als eine Funktion der Pumprate für drei Quantenpunktemitter. Der resonante Fall (durchgezogene Linie) entspricht der durchgezogenen Linie in Abb. 4.4, wobei der Biexziton-Übergang von allen Quantenpunkten resonant mit der Kavitätsmode ist. Die zusätzlichen Kurven zeigen den Fall, in welchem die zwei Emitter um 1.5 meV zu höheren Energien verstimmt sind, wobei ein Emitter resonant mit der Kavitätsmode bleibt (gestrichpunktete Linie). Zu sehen ist, dass durch Hinzunahme der Elektron-Phonon-Wechselwirkung für eine Temperatur von 20 K die Kopplung der verstimmten Emitter an die Kavitätsmode deutlich erhöht wird (gestrichelte Linie).

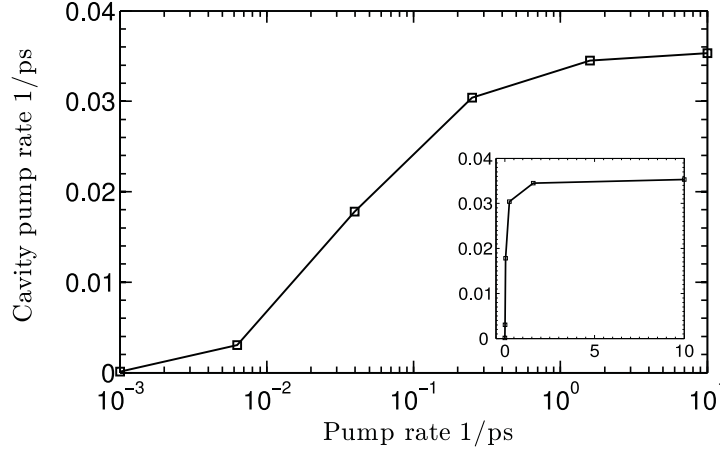
Kavitätsmode befindet. Konkret wurden die Parameter so gewählt, dass ein einzelner Emitter das Regime der stimulierten Emission nicht erreicht, auch wenn dieser Übergang resonant mit der Kavitätsmode ist: Für die Licht-Materie-Kopplung verwenden wir  $g = 0.16/\text{ps}$ , was einer Vakuumfeld-Rabi-Aufspaltung von  $100\mu\text{eV}$  entspricht. Zudem wird eine Kavitätsgüte von  $Q = 20000$  im roten Spektralbereich der InGaAs Quantenpunkt-Emission angenommen, verbunden mit einer Kavitätsverlustrate von  $\gamma_b =: \kappa = 0.1/\text{ps}$ . Für die  $p \rightarrow s$  Intraband-Relaxationsraten  $\gamma_{12} = \gamma_{34}$  wird  $0.5/\text{ps}$  verwendet. Radiative Verluste in nicht-lasende Moden sind in Mikrokavitätssystemen typischerweise stark unterdrückt, sodass  $\gamma_{23} = 0.01/\text{ps}$  angenommen wird.

In Abb. 4.4 ist die mittlere Photonenzahl als Funktion der Pumprate für ein, zwei und drei identische Quantenpunkt-Emitter gezeigt, welche resonant an die Kavitätsmode koppeln. Zu sehen ist, dass im letzten Fall die mittlere Photonenzahl im Vergleich zum Ergebnis für einen einzelnen Emitter um den Faktor fünf erhöht ist. Dieses überlineare Anwachsen der Photonenzahl ist zurückzuführen auf das Einsetzen der stimulierten Emission. Die zugehörige Photonenzahlstatistik in Abb. 4.4 zeigt eine Poissonverteilung und weist auf kohärente Emission hin. Die bisherigen Resultate beruhen ausschließlich auf der Jaynes-Cummings-Kopplung zwischen den Emittern und der Kavität. In Abb. 4.5 ist nun der Einfluss der Verstimmung und der nichtresonanten Kopplung gezeigt. Hierbei ist ein Emitter resonant mit der Kavitätsmode und der Übergang des Biexzitons der beiden anderen um 1.5 meV zu höheren Energien verscho-



**Abbildung 4.6.:** Links: Photonenstatistik  $p_n$  zugehörig zu Abb. 4.5 für eine Pumprate von 10/ps. Die **rechte Seite** zeigt die logarithmische Darstellung von  $n!p_n$ , normiert auf den Logarithmus der mittleren Photonenzahl  $\langle n \rangle$ . In dieser Darstellung entspricht eine Poissonverteilung einer Geraden mit Anstieg eins. Zusätzlich ist in grau das Ergebnis für vier Quantenpunkte (einer resonant und drei verstimmt) analog zum Fall für drei Emitter dargestellt.

ben, was die Kopplungseffizienz deutlich reduziert. Bei der gestrichpunkteten Linie wird die Kopplung zwischen den verstimmten Übergängen und der Kavitätsmode durch die Jaynes-Cummings-Wechselwirkung vermittelt und führt lediglich zu einem kleinen Überlapp zweier Lorentz-Funktionen [47]. Die gestrichelte Linie zeigt die gleiche Situation, wobei zusätzlich die Effekte der Elektron-Phonon-Wechselwirkung berücksichtigt werden. Auf Grund des asymmetrischen Verhaltens der Phonon-assistierten Rekombination in Bezug auf die Verstimmung zur Kavitätsmode (s. Abb. 4.3), wurden die nichtresonanten Emitter zu höheren Energien verstimmt, um eine effiziente Kopplung durch Phonon-Emission zu erzielen. Bei einer Gittertemperatur von 20 K ist die Rate der Phonon-assistierten Emission von Photonen von der Größenordnung  $10^{-2}$ /ps. Für die effektive Licht-Materie-Kopplung  $g\langle B \rangle$  wurde der gleiche Wert wie für den Fall ohne Phononen ( $\langle B \rangle = 1$ ) verwendet, um eine Vergleichbarkeit der Ergebnisse zu gewährleisten. Die Jaynes-Cummings-Kopplungskonstante wird stets bei endlichen Temperaturen gemessen, sodass der experimentell ermittelte Wert mit der renormierten Größe zu identifizieren ist. Obwohl die Rate der nichtresonanten Emission klein ist, erzeugt der zusätzliche Kopplungsmechanismus eine mittlere Photonenzahl von 2.5 und treibt das System merklich ins Regime der kohärenten Emission. Dies kann aus der Photonenstatistik geschlossen werden, welche in Abb. 4.6 für die gleichen drei Fälle wie zuvor gezeigt ist. Befinden sich alle Emitter in Resonanz, so weist die zugehörige logarithmische Darstellung einen linearen Zusammenhang mit einer Steigung nahe eins auf. Dies deutet auf eine Poissonverteilung hin, für die



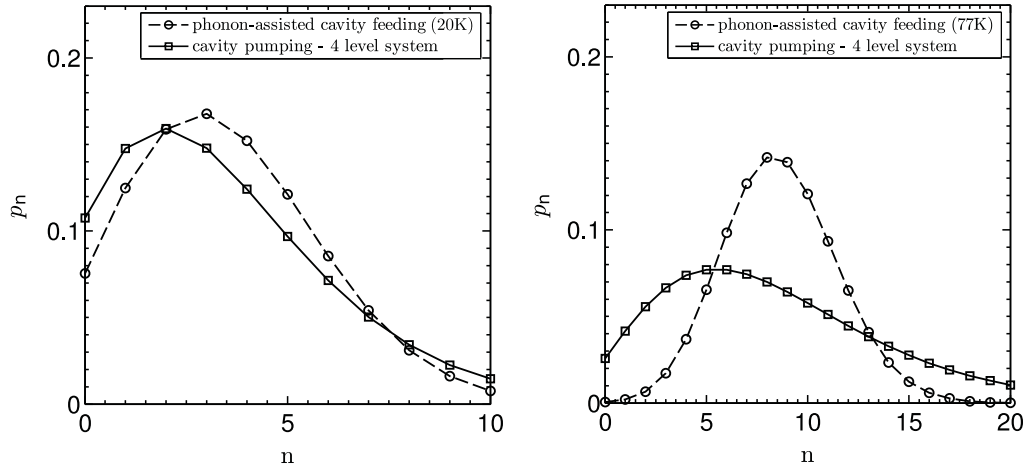
**Abbildung 4.7.:** Rate der nichtresonanten Emission als Funktion der Pumprate für eine Rechnung mit einem einzelnen Emitter. Die Rate wurde so gewählt, dass die mittlere Photonenzahl der Rechnung für drei Emitter mit Phonon-assistierten Prozessen (gestrichelte Linie in Abb. 4.5) reproduziert wird. Die eingebettete Figur zeigt das Ergebnis mit linearer Skala.

$$\frac{\log(n!p_n)}{\log \langle n \rangle} = n - \frac{\langle n \rangle}{\log \langle n \rangle} \quad (4.34)$$

gilt. Für den Fall, dass sich lediglich ein Quantenpunkt in Resonanz befindet und die anderen zwei verstimmt sind, führt die zusätzliche Phonon-assistierte Kopplung zu einer signifikanten Änderung in der Photonenzahl. Die zugehörige Statistik entfernt sich ohne Phonon-Kopplung deutlich von einer Poissonverteilung. Falls die Wechselwirkung mit den Phononen berücksichtigt wird, beginnt sich das Maximum der Verteilung von  $n = 0$  zu entfernen und die logarithmische Darstellung der Photonenzahl nähert sich einem linearen Verhalten an.

Obwohl in vielen Fällen die tatsächliche Anzahl an Hintergrundemittern deutlich größer ist als die hier betrachteten zwei nichtresonanten Quantenpunkte, sind die gezeigten Ergebnisse ein Indiz für den diskutierten Trend und demonstrieren, dass kohärente Emission mit Unterstützung von verstimmten Emitttern erreicht werden kann. Um dies zu unterstreichen, ist zusätzlich das Ergebnis einer Rechnung mit einem weiteren Emitter (vier Emitter insgesamt, bei gleicher Verstimmung) in Abb. 4.6 als graue Linie gezeigt. Zu sehen ist, dass die Kohärenz im Vergleich zu der Rechnung mit nur drei Emitttern weiter zunimmt.

Abschließend soll der Bezug zur phänomenologischen Beschreibung der Hintergrundemission hergestellt werden. Hierzu wird das Ergebnis für einen einzelnen Quantenpunkt unter Hinzunahme des inversen Verlustterms (4.1) betrachtet. Die zugehörige Rate  $\Gamma$  wird so gewählt, dass die mittlere Photonenzahl einer Rechnung mit drei Emitttern und berücksichtigter Phononen-Kopplung reproduziert wird. Die resultierende Rate ist in Abb. 4.7 dargestellt und zeigt ein deutlich nichtlineares Verhalten. Konkret befinden sich alle Emitter als eine Konsequenz der schnellen Einstreuprozesse bei hoher Anregungsleistung in Sättigung, sodass auch die Photo-



**Abbildung 4.8.:** Photonenstatistik für eine Pumprate von 10/ps bei 20 K (links) und 77 K (rechts) für die gleiche effektive Licht-Materie-Kopplungskonstante  $g = 0.16/\text{ps}$ . Verglichen sind die Ergebnisse für einen einzelnen Quantenpunkt-Emitter zuzüglich inversem Verlustterm und einer Rechnung mit vier Emitttern unter Berücksichtigung Phonon-assistierter Prozesse. Die inverse Verlustrate  $\Gamma$  wurde so gewählt ( $4.76 \times 10^{-2}/\text{ps}$  bei 20 K und  $7.11 \times 10^{-2}/\text{ps}$  bei 77 K), dass die mittlere Photonenzahl 3.6 (8.6 bei 77 K) in der Rechnung reproduziert wird. Die Ergebnisse zeigen eine thermische Komponente bei Verwendung des inversen Verlustterms und ein Fehlen dieser in der mikroskopischen Rechnung. Der Unterschied ist bei 77 K durch den stärkeren Beitrag der Hintergrundemission deutlicher ausgeprägt.

nenproduktion durch den nichtresonanten Kopplungsmechanismus begrenzt ist. Dies entspricht dem erwarteten Verhalten eines Gewinnmaterials für wenige Emittter. Im Gegensatz hierzu ergibt die Wahl einer Rate proportional zur Pumprate des Systems eine lineare Abhängigkeit. Dieser Ansatz ist folglich nur gültig, falls das Gewinnmaterial aus vielen Emitttern, wie z.B. in einem Gaslaser, besteht und sich die einzelnen Emittter nicht im Regime der Sättigung befinden, siehe eingebettete Figur in Abb. 4.7. Die Photonenstatistik in Abb. 4.8 spiegelt hingegen die durch den inversen Verlustterm hinzugefügte thermische Komponente wieder. Für eine höhere Temperatur (77 K, rechte Figur) beträgt der Unterschied der Rate der nichtresonanten Emission im Vergleich zum 20 K Ergebnis etwa eine Größenordnung. Dies verstärkt die Diskrepanz zwischen dem kohärenten Beitrag der verstimmten Emittter durch Phonon-assistierte Kopplung und der thermischen Komponente, welche durch den effektiven Lindblad-Term erzeugt wird. Mit höherer Anzahl an Photonen, die durch den Hintergrund erzeugt werden, wird auch der Unterschied, der für zwei verstimmte Emittter zwar merklich, jedoch klein ist, für viele Emittter zunehmen. Während folglich der inverse Verlustterm zu einer rein thermischen Verteilung führt, resultiert aus einer mikroskopischen Beschreibung, unter Berücksichtigung des Gewinnmaterials, eine rein kohärente Photonenveteilung.



### 4.3. Coulomb-assistierte nichtresonante Kopplung

In diesem Abschnitt quantifizieren wir die Rolle der Coulomb-Wechselwirkung mit den Ladungsträgern der Benetzungsschicht für die nichtresonante Kopplung eines Quantenpunkt-Übergangs an die Kavitätsmode. Konkret agiert das Kontinuum der delokalisierten Zustände als ein thermisches Reservoir, wobei es sich im Gegensatz zum bosonischen Bad der Phononen nun um ein fermionisches handelt. Statt der Emission oder Absorption eines Phonons ist hierbei ein Auger-artiger Streuprozess eines Ladungsträgers von einem delokalisierten Zustand zu einem anderen als elementare Anregung über dem thermischen Gleichgewicht zu sehen und sorgt für die Kompensation der energetischen Verstimmung [274]. Aktuell konnten Settnes et al. zeigen [252], dass durch diese Wechselwirkung, trotz wesentlicher Verstimmung, die Rekombination der Quantenpunktanregung von einem signifikanten, spektralen Signal an der Frequenz der Kavitätsmode begleitet ist. Im Folgenden liegt der Fokus nicht auf den spektralen Eigenschaften der Photolumineszenz, sondern auf der Photonenproduktion, welche einen wesentlichen Aspekt für Quantenpunkt-Mikrokavitätslaser darstellt.

Um das System zu beschreiben, beginnen wir mit dem Hamiltonoperator, welcher neben dem Jaynes-Cummings-Term auch die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Quantenpunkt- und Benetzungsschicht-Zuständen enthält. Ziel ist es, analog zum vorigen Abschnitt, durch geeignete Transformation eine effektive Licht-Materie-Wechselwirkung zu erzeugen, welche zusätzlich Reservoir-Operatoren enthält und auf neue Lindblad-Operatoren führt. Hierzu werden zwei verschiedene Techniken verwendet, um formal den Beitrag (i) der Exziton-Photon- oder (ii) der Coulomb-Wechselwirkung aus dem Hamiltonoperator zu eliminieren. Im ersten Fall wird die Schrieffer-Wolff-Transformation [116, 169] verwendet (s. Abschnitt 4.3.1), die auf eine perturbative Diagonalisierung der Jaynes-Cummings-Wechselwirkung führt. Auf diese Weise bleibt das Bad unverändert und die Coulomb-Wechselwirkung interagiert mit dem photonischen Subsystem durch die Hybridisierung der Quantenpunkt-Ladungsträger mit den Kavitätsphotonen. Der zweite Zugang betrachtet ein anderes Szenario, in welchem die Wechselwirkung zwischen den Quantenpunkt-Ladungsträgern und dem Reservoir teilweise diagonalisiert ist. Dies entspricht dem Vorgehen im vorigen Abschnitt und ermöglicht durch Verwendung des exakt lösbaren Independent-Boson-Modells eine Beschreibung im Sinne eines Polarons anstatt freier Ladungsträger. Diese Methode wird in Abschnitt 4.3.2 auf den Fall eines fermionischen Bades von Ladungsträgern in der Benetzungsschicht erweitert. Hierdurch ist das Modell nicht mehr exakt lösbar, erlaubt aber eine diagrammatische Behandlung und wird im Folgenden als Streupotential-Methode bezeichnet. Im Unterschied zum ersten Verfahren reagiert das Bad auf die An- bzw. Abwesenheit des Exzitons.

Die Rolle der Coulomb-Wechselwirkung mit den Ladungsträgern der Benetzungsschicht wird nicht im Multi-Exziton-Spektrum, sondern in der Rekombinationsdynamik betrachtet, sodass dieser kinetische Kanal auch in Quantenpunkten mit sehr wenigen gebundenen Zuständen



vorhanden ist. Um dies zu demonstrieren, betrachten wir im Folgenden einen Quantenpunkt mit jeweils einem einzelnen Elektron- und Loch-Zustand.

Das gekoppelte System des Quantenpunktes und der Mikrokavität mit dem zugehörigen System-Hamiltonoperator

$$H_S = H_0 + H_{\text{e-pt}} = \varepsilon_X X^\dagger X + \omega_c b^\dagger b + g(b^\dagger X + b X^\dagger) \quad (4.35)$$

wird in Anwesenheit des Kontinuums von Zuständen in der Benetzungsschicht durch

$$H = H_S + (1 - X^\dagger X)h_0 + X^\dagger X h_X \quad (4.36)$$

beschrieben, worin die Operatoren  $X$  und  $X^\dagger$  ein Exziton mit der Energie  $\varepsilon_X$  vernichten und erzeugen. Entsprechend des vorigen Abschnittes werden Elektron und Loch paarweise angeregt, sodass  $X^\dagger X = e^\dagger e = h^\dagger h$ , mit  $X = he$ , wobei  $e, e^\dagger$  und  $h, h^\dagger$  Operatoren des gebundenen Elektron- und Loch-  $s$ -Zustandes sind. In Anwesenheit des Exzitons wird der freie Hamiltonoperator der Benetzungsschicht

$$h_0 = \sum_{\lambda, \mathbf{k}} \varepsilon_{\mathbf{k}}^\lambda \lambda_{\mathbf{k}}^\dagger \lambda_{\mathbf{k}} \quad (4.37)$$

durch die Wechselwirkung des Elektron-Loch-Paares mit den Ladungsträgern in den delokalisierten Zuständen modifiziert

$$h_X = h_0 + W. \quad (4.38)$$

Die Störung ist durch den Einteilchenoperator

$$W = \sum_{\lambda, \mathbf{k}, \mathbf{k}'} W_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^\lambda \lambda_{\mathbf{k}}^\dagger \lambda_{\mathbf{k}'} \quad (4.39)$$

mit

$$W_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^e = W_{\mathbf{s}\mathbf{k}, \mathbf{k}'\mathbf{s}}^{ee} - W_{\mathbf{s}\mathbf{k}, \mathbf{k}'\mathbf{s}}^{he} - W_{\mathbf{s}\mathbf{k}, \mathbf{s}\mathbf{k}'}^{ee}, \quad (4.40)$$

$$W_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^h = W_{\mathbf{s}\mathbf{k}, \mathbf{k}'\mathbf{s}}^{hh} - W_{\mathbf{s}\mathbf{k}, \mathbf{k}'\mathbf{s}}^{eh} - W_{\mathbf{s}\mathbf{k}, \mathbf{s}\mathbf{k}'}^{hh} \quad (4.41)$$

gegeben und beschreibt Intraband-Streuprozesse von einem Benetzungsschichtzustand  $|\varphi_{\mathbf{k}}^\lambda\rangle$  in einen anderen  $|\varphi_{\mathbf{k}'}^\lambda\rangle$ . Hierbei sind  $\lambda_{\mathbf{k}}, \lambda_{\mathbf{k}}^\dagger$  die fermionischen Operatoren der Elektronen und Löcher ( $\lambda = e, h$ ) des Benetzungsschichtzustandes  $|\varphi_{\mathbf{k}}^\lambda\rangle$  mit den Energien  $\varepsilon_{\mathbf{k}}^\lambda$ . Der Spin-Freiheitsgrad ist hierbei im Zustand  $|\varphi_{\mathbf{k}}^\lambda\rangle$  implizit enthalten. Die Stärke der Wechselwirkung

ist durch das Matricelement

$$W_{ij,kl}^{\lambda\lambda'} = \frac{1}{A} \sum_{\mathbf{q}} w_{\mathbf{q}} \langle \varphi_i^\lambda | e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} | \varphi_l^\lambda \rangle \langle \varphi_j^{\lambda'} | e^{-i\mathbf{q}\mathbf{r}} | \varphi_k^{\lambda'} \rangle \quad (4.42)$$

des Coulomb-Potentials  $w_{\mathbf{q}}$  gegeben und enthält die Einteilchenzustände  $|\varphi_i^\lambda\rangle$  der Elektronen und Löcher im Quantenpunkt und in der Benetzungsschicht. Durch die Ladungsträger in den delokalisierten Zuständen wird das Potential abgeschirmt, wodurch die Wechselwirkungsstärke bei höheren Anregungsdichten abnimmt [200]. Die ersten beiden Terme in den Gln. (4.40) und (4.41) repräsentieren die elektrostatische (Hartree-)Wechselwirkung der Ladungsträger der Benetzungsschicht mit dem Elektron und Loch des Exzitons. Der letzte Beitrag in beiden Gleichungen ist das Austausch-(Fock-)Integral. Die Quantenpunkt-Wellenfunktionen der energetisch niedrigsten gebundenen Zustände  $\varphi_s^\lambda(\mathbf{r})$  werden entsprechend Kapitel 2 durch Gauß-Funktionen mit der Standardabweichung  $\alpha^\lambda$  für die Bewegung in der Ebene und durch die Lösungen des endlich hohen Potentialtopfes in Wachstumsrichtung beschrieben. Für die Zustände der Benetzungsschicht  $\varphi_{\mathbf{k}}^\lambda(\mathbf{r})$  werden ebene Wellen verwendet und auf die Quantenpunktzustände orthogonalisiert [31, 200]. Ohne die Orthogonalisierung würden Integrale der Form  $\langle \varphi_{\mathbf{k}}^\lambda | e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} | \varphi_s^\lambda \rangle$ , wie sie im Austauschterm enthalten sind, um  $q = 0$  deutlich überschätzt werden. Tatsächlich verbleibt ein nichtverschwindendes Überlappintegral im Grenzfall  $q \rightarrow 0$ , dessen korrekter Wert Null ist. Die direkten Hartree-Beiträge sind hingegen nicht sensitiv auf die Orthogonalisierung, da  $\langle \varphi_{\mathbf{k}}^\lambda | e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} | \varphi_{\mathbf{k}'}^\lambda \rangle = \delta_{\mathbf{k},\mathbf{k}'+\mathbf{q}}$  ist [200].

#### 4.3.1. Schrieffer-Wolff-Transformation

Die Idee des Schrieffer-Wolff-Verfahrens [169] ist es, eine unitäre Transformation

$$\tilde{H} = e^S H e^{-S} = H + [S, H] + \frac{1}{2} [S, [S, H]] \dots \quad (4.43)$$

zu verwenden, wobei  $S$  derart gewählt wird, dass der Kommutator  $[S, H_0]$  den Jaynes-Cummings-Hamiltonoperator  $H_{\text{e-pt}}$  formal eliminiert, d.h.  $[S, H_0] = -H_{\text{e-pt}}$ .

Dies kann durch die Wahl

$$S = -\frac{g}{\Delta} [b^\dagger X - b X^\dagger] \quad (4.44)$$

erreicht werden und zeigt, dass der Erzeuger der unitären Transformation  $S$  von erster Ordnung im Parameter  $g/\Delta$  in der Reihenentwicklung von Gl. (4.43) ist, worin  $\Delta = \varepsilon_X - \omega_c$  die Verstimmung zwischen Exziton und Kavität darstellt. Für typische Werte der Licht-Materie-Kopplung  $g$  von der Größenordnung 0.1 meV und hinreichend große Verstimmungen ( $\Delta \sim 1 - 10$  meV) ist ferner ein perturbativer Ansatz gerechtfertigt. Vernachlässigt man Terme von einer Ordnung

höher als  $(g/\Delta)^2$  und  $(g/\Delta)W$ , so erhält man

$$\begin{aligned}\tilde{H} &\approx H + [S, H] + \frac{1}{2} [S, [S, H_0]] \\ &= H_0 + \frac{1}{2} [S, H_{\text{e-pt}}] + h_0 + WX^\dagger X + [S, WX^\dagger X],\end{aligned}\quad (4.45)$$

worin der zweite Term die Energien der Ladungsträger in Abhängigkeit von der Photonenzahl  $n = b^\dagger b$  renormiert. Konkret entspricht

$$H_0 + \frac{1}{2} [S, H_{\text{e-pt}}] = \left[ \varepsilon_X + \frac{g^2}{\Delta} (n + 1) \right] X^\dagger X - \frac{g^2}{\Delta} n (1 - X^\dagger X) + \omega_c n \quad (4.46)$$

einer Näherung der Eigenenergien von  $H_0 + H_{\text{e-pt}}$  in zweiter Ordnung bzgl.  $g/\Delta$ .

Von zentraler Bedeutung ist der letzte Beitrag in Gl. (4.45), welcher auf einen effektiven Jaynes-Cummings-Hamiltonoperator

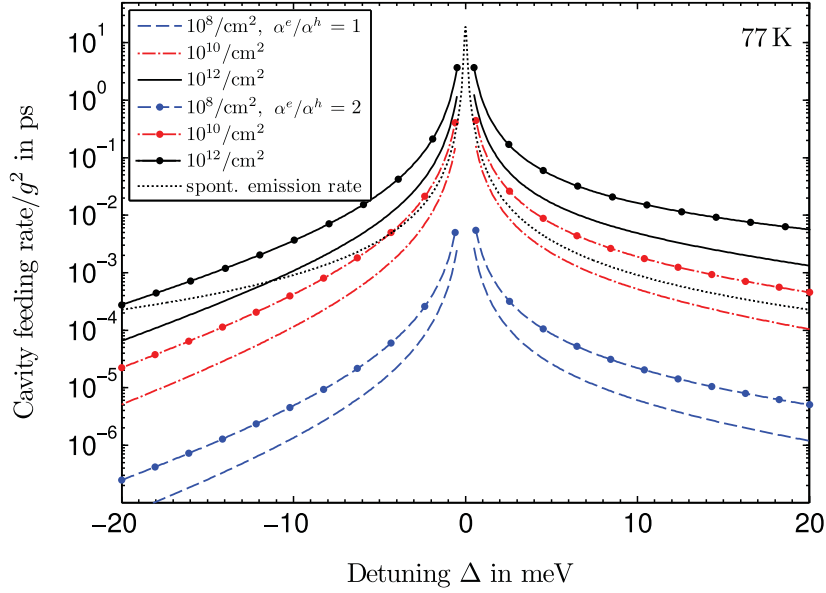
$$H'_{\text{e-pt}} = [S, WX^\dagger X] = -\frac{g}{\Delta} W (b^\dagger X + b X^\dagger) \quad (4.47)$$

führt und Coulomb-assistierte Übergänge zwischen dem Quantenpunkt Exziton und den Kavitätsphotonen beschreibt. Hierbei erlaubt die quasi-kontinuierliche Natur der delokalisierten Zustände der Benetzungsschicht, diese als Reservoir zu behandeln, welches als stationär und im thermischen Gleichgewicht angenommen wird. Analog zur Vorgehensweise im Abschnitt 4.2.2 führt die Behandlung der durch (4.47) vermittelten System-Bad-Wechselwirkung auf (i) einen Jaynes-Cummings-Beitrag mit einer um den Faktor  $g/\Delta \langle W \rangle_R$  renormierten Wechselwirkungsstärke und (ii) die Lindblad-Terme  $\mathcal{L}_{b^\dagger X}$  und  $\mathcal{L}_{b X^\dagger}$ . Die zugehörigen Raten sind durch Gl. (4.9) und (4.10) gegeben und mit den Fluktuationen des Reservoirs  $\Gamma = \Gamma^\dagger = W - \langle W \rangle_R$  folgt

$$\gamma_{b^\dagger X} = 2\pi \frac{g^2}{\Delta^2} \sum_{\lambda, \mathbf{k}, \mathbf{k}'} |W_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}^\lambda|^2 f_{\mathbf{k}}^\lambda (1 - f_{\mathbf{k}'}^\lambda) \delta(\Delta + \varepsilon_{\mathbf{k}}^\lambda - \varepsilon_{\mathbf{k}'}^\lambda), \quad (4.48)$$

worin die Besetzungen der Benetzungsschichtzustände  $f_{\mathbf{k}}^\lambda = \langle \lambda_{\mathbf{k}}^\dagger \lambda_{\mathbf{k}} \rangle$  durch Fermi-Funktionen, in Abhängigkeit von der Ladungsträgerdichte  $n_{\text{WL}}$  und der Temperatur der Benetzungsschicht, beschrieben werden. Entsprechend kann  $\gamma_{b X^\dagger}$  aus dem obigen Ergebnis erhalten werden, indem  $\Delta$  durch  $-\Delta$  ersetzt wird.

Neben den durch  $H'_{\text{e-pt}}$  vermittelten Coulomb-assistierten Rekombinationsprozessen ist auch der Operator  $WX^\dagger X$  in Gl. (4.45) Bestandteil der System-Reservoir-Wechselwirkung. Eine analoge Vorgehensweise im obigen Sinne führt hierbei auf (i) eine von der Anregungsdichte abhängige Renormierung der Energie des Exzitons [175]  $\tilde{\varepsilon}_X = \varepsilon_X + \langle W \rangle_R$ , welche in der Verstimmung  $\Delta$  berücksichtigt wird, und (ii) einen inkohärenten Beitrag in Form eines Lindblad-Terms der reinen Dephasierung. Der zur Renormierung beitragende thermische Erwartungswert



**Abbildung 4.9.:** Rate der Coulomb-assistierten nichtresonanten Emission eines Quantenpunktes in Kontakt mit dem Kontinuum von Benetzungsschichtzuständen für eine Temperatur von 77 K, als Resultat der Schrieffer-Wolff-Transformation. Die Ladungsträgerdichte in der Benetzungsschicht  $n_{\text{WL}}$  wird von  $10^8 - 10^{12}/\text{cm}^2$  variiert und wir betrachten Elektron- und Loch-Wellenfunktion, deren Einhüllenden identisch (Linien ohne Punkte) sind oder sich um einen Faktor zwei unterscheiden (Linien mit Punkten). In allen Rechnungen ist  $\alpha^h = 0.15/\text{nm}$ . Zum Vergleich ist die Rate der spontanen Emission (gepunktete Linie) für typische Parameter ( $\kappa = 0.1/\text{ps}$ ,  $\Gamma = 0.01/\text{ps}$ ,  $P = 0.1/\text{ps}$ ) gezeigt. Zu beachten ist, dass die Raten auf das Quadrat der Licht-Materie-Kopplungsstärke normiert sind.

des Reservoir-Operators ist hierbei

$$\langle W \rangle = \sum_{\lambda, \mathbf{k}} W_{\mathbf{k}, \mathbf{k}}^{\lambda} f_{\mathbf{k}}^{\lambda}. \quad (4.49)$$

Tatsächlich tragen in  $W_{\mathbf{k}, \mathbf{k}}^{\lambda}$  nur Terme des Austauschintegrals bei, da die Hartree-Beiträge, welche die Fourierkomponente des Coulomb-Potentials für  $q = 0$  enthalten, auf Grund der globalen Ladungsneutralität verschwinden. Für weitere Details sei an dieser Stelle auf Ref. [200] verwiesen.

**Numerische Ergebnisse** In Abb. 4.9 ist die Abhängigkeit der Rate der Coulomb-assistierten nichtresonanten Kopplung  $\gamma_{b \dagger X}$  von der Verstimmung  $\Delta$  zwischen dem Übergang des Exzitons und der Kavitätsmode für verschiedene Ladungsträgerdichten  $n_{\text{WL}}$  in den delokalisierten Zuständen der Benetzungsschicht und eine Temperatur von 77 K gezeigt. Mit zunehmender Ladungsträgerdichte ergeben sich zusätzliche Streukanäle, welche die energetische Diskrepanz  $\Delta$  zwischen Exziton und Kavität kompensieren und zu einer zunehmenden nichtresonanten

Emissionsrate führen. Zum Vergleich ist die Rate der spontanen Emission

$$R = 2\pi g^2 \rho_X \quad (4.50)$$

gezeigt, welche durch die Jaynes-Cummings-Kopplung alleine vermittelt wird und proportional zur Zustandsdichte  $\rho_X$  am Exziton-Übergang ist. Diese nimmt für eine einzelne Kavitätsmode eine Lorentzverteilung

$$\rho_X = \frac{2}{\pi} \frac{\Gamma}{\Gamma^2 + (2\Delta)^2} \quad (4.51)$$

an, deren Breite  $\Gamma = P + \Gamma + \kappa$  durch die dissipativen Prozesse im System bestimmt ist: Kavitätsverluste haben eine endliche Güte der Kavitätsmode zur Folge und der nichtradiative Zerfall des Quantenpunkt-Exzitons und dessen inkohärente Anregung führen auf eine homogene Linienbreite des Exziton-Übergangs. Die zugehörigen Raten sind hierbei durch  $\gamma_b =: \kappa$ ,  $\gamma_X =: \Gamma$  und  $\gamma_{X^\dagger} =: P$  gegeben. Für niedrige Ladungsträgerdichten ist die Coulomb-assistierte Kopplung im Vergleich zur spontanen Emissionsrate vernachlässigbar, wobei typische Parameter eines Quantenpunkt-Mikrokavitätssystems angenommen wurden. Dies ist in Übereinstimmung mit früheren Experimenten, welche bei niedrigen Anregungsbedingungen lediglich Signaturen von Phononen gefunden haben [7, 217]. Für eine hinreichend hohe Ladungsträgerdichte ( $n_{\text{WL}} > 10^{10}/\text{cm}^2$ ) überwiegen jedoch die Coulomb-assistierten Prozesse selbst für große Verstimmungen ( $\sim 10 \text{ meV}$ ) und führen zu einer signifikanten nichtresonanten Kopplung. Diese ist im Vergleich zur Jaynes-Cummings Kopplung um etwa eine Größenordnung stärker.

Zudem existiert eine ausgeprägte Asymmetrie zwischen positiver und negativer Verstimmung, insbesondere für niedrige Temperaturen, analog zum Verhalten der Phonon-assistierten Kopplung (vgl. Abb. 4.3). Dies ist zu erwarten, da jedes thermische Bad Prozesse favorisiert, welche die Systemenergie reduzieren, und zwar umso ausgeprägter, je niedriger die Temperatur ist.

Letztlich ist eine signifikante Reduktion der nichtresonanten Kopplung zu erkennen, falls die Wellenfunktionen für Elektronen und Löcher ähnlich sind (Linien ohne Punkte in Abb. 4.3). Die Ursache liegt in einer erheblichen Kompensation zwischen den elektrostatischen (Hartree-) Coulomb-Integralen in Gl. (4.48). Für identische Elektron- und Loch-Wellenfunktionen ( $\alpha^e = \alpha^h$ ) ist das Exziton nicht nur global, sondern auch *lokal* ladungsneutral, sodass keine elektrostatische Wechselwirkung zwischen dem Exziton und den Ladungsträgern der Benetzungsschicht stattfindet. Klassisch entkoppeln System und Bad und es verbleibt die Austauschwechselwirkung. Tatsächlich werden in diesem Fall die Integrale in Gl. (4.40) und (4.41) unabhängig vom Bandindex, sodass sich die direkten Terme  $W_{s,\mathbf{k},\mathbf{k}',s}^{ee}$  und  $W_{s,\mathbf{k},\mathbf{k}',s}^{he}$  kompensieren. Das gleiche gilt für  $W_{s,\mathbf{k},\mathbf{k}',s}^{hh}$  und  $W_{s,\mathbf{k},\mathbf{k}',s}^{eh}$ . Folglich tragen nur die typischerweise viel kleineren Austausch- (Fock-)Integrale bei. Dies weist auf einen intrinsischen Unterschied zwischen einem Interband-Prozess in Form Coulomb-assistierter nichtresonanter Emission und einem Intraband-Streuprozess hin: In letzterem Fall können Elektronen und Löcher unabhängig von-

einander streuen, wobei die Wechselwirkung mit den Ladungsträgern der Benetzungsschicht entsprechend durch die Bad-Operatoren

$$W^e = \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} \left( W_{s\mathbf{k}, \mathbf{k}'s}^{ee} - W_{s\mathbf{k}, s\mathbf{k}'}^{ee} \right) e_{\mathbf{k}}^\dagger e_{\mathbf{k}'} - \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} W_{s\mathbf{k}, \mathbf{k}'s}^{eh} h_{\mathbf{k}}^\dagger h_{\mathbf{k}'}, \quad (4.52)$$

$$W^h = \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} \left( W_{s\mathbf{k}, \mathbf{k}'s}^{hh} - W_{s\mathbf{k}, s\mathbf{k}'}^{hh} \right) h_{\mathbf{k}}^\dagger h_{\mathbf{k}'} - \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} W_{s\mathbf{k}, \mathbf{k}'s}^{he} e_{\mathbf{k}}^\dagger e_{\mathbf{k}'} \quad (4.53)$$

vermittelt wird. Betrachtet man beide Terme separat, so ergibt sich auch im Grenzfall identischer Quantenpunkt-Elektron- und Loch-Wellenfunktionen jeweils ein nichtverschwindender Beitrag zur System-Reservoir-Wechselwirkung. Hingegen erfordert die Photonen-Emission die Anwesenheit eines Exzitons, d.h. eines voll korrelierten Elektron-Loch-Paares, sodass die System-Reservoir-Wechselwirkung durch  $W = W^e e^\dagger e + W^h h^\dagger h$  bzw. Gl. (4.39) gegeben ist. Im Gegensatz zu einem Intraband-Prozess zeigt sich hierin eine Kompensation für identische Wellenfunktionen, da die Rekombination zwei *neutrale* Zustände ineinander überführt. Als Konsequenz muss jeder Formalismus, der eine Beschreibung nichtresonanter Kopplung zum Gegenstand hat und auf einer Coulomb-artigen Wechselwirkung basiert (z.B. Auger-artige Wechselwirkung zwischen Quantenpunkt und Benetzungsschicht oder Fröhlich-Wechselwirkung der Quantenpunkt-Ladungsträger mit LO-Phononen), die lokale Neutralitätsbedingung erfüllen: *Für ein lokal neutrales Exziton und für verschwindend kleine Austauschbeiträge müssen nicht-resonante Kopplungsprozesse verschwinden.*

Tatsächlich kommt es auch bei der Wechselwirkung mit LA-Phononen zu einem Kompensationseffekt. Wie in Abschnitt 4.2.2 gezeigt wurde, erzeugt die Anwesenheit eines Elektron-Loch-Paares eine Verschiebung des Phononenfeldes durch beide Ladungsträger, jedoch mit entgegengesetztem Effekt. Dies führt auf eine Exziton-Phonon-Kopplungsstärke, welche gerade die Differenz der Elektron- und Loch-Phonon-Kopplungskonstanten ist (s. Gl. (4.20)). Als Konsequenz verschwindet auch die Wirkung des Phononen-Bades im Falle exakter Kompensation. Die Deformationspotentiale für Elektronen und Löcher sind jedoch materialspezifisch und im Allgemeinen unterschiedlich.

### 4.3.2. Streupotential-Methode

Bisher basieren die gezeigten Resultate auf einer approximativen Diagonalisierung des Jaynes-Cummings-Hamiltonoperators. Als alternativer Zugang wird im Folgenden eine nicht-perturbative Behandlung der Coulomb-Wechselwirkung zwischen dem Quantenpunkt-Exziton und den Ladungsträgern der Benetzungsschicht diskutiert. Hierzu wird eine geeignete unitäre Transformation verwendet, wobei die Idee ähnlich der Polaron-Transformation des Independent-Boson-Modells ist: Die Anwesenheit eines Exzitons erzeugt ein externes Feld, auf das die Ionen des Gitters durch Verschiebung des Phononenfeldes reagieren. Die Polaron-Transformation ver-

bindet nun das gestörte Gitter mit dem ungestörten. Auf ähnliche Weise modifiziert das Exziton das System der Benetzungsschicht-Ladungsträger durch ein externes Feld, welches hier durch den Einteilchenoperator  $W$  gegeben ist. Die Quelle des Feldes ist um den Quantenpunkt lokalisiert und agiert hierbei als Streuzentrum für das Kontinuum der ausgedehnten Benetzungsschichtzustände. Die zugehörige Streumatrix ( $\mathcal{S}$ -Matrix) ist dabei die unitäre Transformation, welche  $h_X$  und  $h_0$  verbindet. Konkret gilt die unitäre Äquivalenz

$$h_0 = \mathcal{S}(-\infty, 0) h \mathcal{S}(0, -\infty) \quad (4.54)$$

mit der  $\mathcal{S}$ -Matrix

$$\begin{aligned} \mathcal{S}(t_1, t_2) &= \mathcal{S}(t_1 - t_2) = \mathcal{S}^\dagger(t_2, t_1) \\ &= \mathcal{T} \exp \left[ -i \int_{t_2}^{t_1} W(t) dt \right], \quad t_1 > t_2, \end{aligned} \quad (4.55)$$

welche durch das Streupotential  $W$  erzeugt wird, unter der Annahme, dass die Bedingungen der Streutheorie an das Potential erfüllt sind (s. Ref. [198, 259]). Hierbei sind  $\mathcal{T}$  der Zeitordnungsoperator und  $W(t)$  die Störung im Wechselwirkungsbild in Bezug auf  $h_0$ .

Ziel ist es, die Coulomb-Wechselwirkung zwischen Quantenpunkt und Benetzungsschicht formal aus dem Hamiltonoperator (4.36) zu eliminieren. Hierzu verwenden wir den unitären Operator

$$U = 1 - X^\dagger X + X^\dagger X \mathcal{S}(0, -\infty) \quad (4.56)$$

mit einer Wirkung der  $\mathcal{S}$ -Matrix nur in Anwesenheit des Exzitons. Die zugehörige unitäre Transformation hat die folgenden Eigenschaften:

$$\tilde{X} = U^\dagger X U = X \mathcal{S}(0, -\infty) \quad \text{und} \quad \tilde{X}^\dagger = \mathcal{S}(-\infty, 0) X^\dagger, \quad (4.57)$$

wohingegen  $X^\dagger X$  invariant bleibt. Die wichtigste Änderung betrifft den Beitrag der Benetzungsschicht zum Hamiltonoperator

$$\begin{aligned} &U^\dagger \left[ (1 - X^\dagger X) h_0 + X^\dagger X h_X \right] U \\ &= (1 - X^\dagger X) h_0 + X^\dagger X \mathcal{S}(-\infty, 0) h_X \mathcal{S}(0, -\infty) = h_0, \end{aligned} \quad (4.58)$$

aus dem die Wechselwirkung eliminiert ist. Diese ist stattdessen Teil der transformierten Licht-Materie-Wechselwirkung in Form der  $\mathcal{S}$ -Matrix

$$\tilde{H}_{\text{e-pt}} = g \left[ b^\dagger X \mathcal{S}(0, -\infty) + b X^\dagger \mathcal{S}(-\infty, 0) \right]; \quad (4.59)$$

dies ähnelt der Transformation des Independent-Boson-Modells im Falle der Ladungsträger-Phonon-Wechselwirkung (s. Gl. (4.18)). Eine Behandlung der System-Reservoir-Wechselwirkung  $\tilde{H}_{\text{e-pt}}$  in Born-Markov-Näherung führt erneut auf Lindblad-Terme der Form  $\mathcal{L}_{b^\dagger X}$  und  $\mathcal{L}_{b X^\dagger}$

mit den zugehörigen Raten

$$\gamma_{b^\dagger X} = g^2 \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\Delta t} \left[ \langle e^{ih_0 t} \mathcal{S}(-\infty, 0) e^{-ih_0 t} \mathcal{S}(0, -\infty) \rangle_{\text{R}} - \langle \mathcal{S}(0, -\infty) \rangle_{\text{R}} \right] dt, \quad (4.60)$$

$$\gamma_{bX^\dagger} = g^2 \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i\Delta t} \left[ \langle e^{ih_0 t} \mathcal{S}(0, -\infty) e^{-ih_0 t} \mathcal{S}(-\infty, 0) \rangle_{\text{R}} - \langle \mathcal{S}(-\infty, 0) \rangle_{\text{R}} \right] dt, \quad (4.61)$$

worin die Erwartungswerte  $\langle \cdot \rangle_{\text{R}}$  im thermischen Gleichgewicht mit Bezug auf  $h_0$  auszuwerten sind. Die thermischen Erwartungswerte der  $\mathcal{S}$ -Matrix  $\langle \mathcal{S}(0, -\infty) \rangle_{\text{R}} = \langle \mathcal{S}(-\infty, 0) \rangle_{\text{R}}$  ergeben lediglich einen konstanten Beitrag zur Fouriertransformation und ändern folglich nicht die Rate für  $\Delta \neq 0$ . Jedoch spielen sie eine Rolle in der Renormierung der Wechselwirkungsstärke des Jaynes-Cummings-Beitrags  $g \langle \mathcal{S}(0, -\infty) \rangle_{\text{R}}$  und werden zu einem späteren Zeitpunkt noch einmal diskutiert. Die Raten erfüllen die Kubo-Martin-Schwinger Relation (s. Anhang B)

$$\gamma_{b^\dagger X} = e^{\Delta/k_{\text{B}}T} \gamma_{bX^\dagger}, \quad (4.62)$$

sodass lediglich die Berechnung einer Rate erforderlich ist. Die Auswertung von  $\gamma_{bX^\dagger}$  ist vorteilhaft, da die Zeitordnung des zugehörigen Korrelators die folgende Vereinfachung erlaubt:

$$e^{ih_0 t} \mathcal{S}(0, -\infty) e^{-ih_0 t} = e^{ih_0 t} e^{-ih_X t} \mathcal{S}(0, -\infty) = \mathcal{S}(t, 0) \mathcal{S}(0, -\infty). \quad (4.63)$$

Hierbei ist  $\mathcal{S}(0, -\infty) e^{-ih_0 t} = e^{-ih_X t} \mathcal{S}(0, -\infty)$ , in Übereinstimmung mit der unitären Äquivalenz von  $h_0$  und  $h_X$  (s. Gl. (4.54)) und  $e^{ih_0 t} e^{-ih_X t} = \mathcal{S}(t, 0)$ . Mit der Halbgruppeneigenschaft der  $\mathcal{S}$ -Matrix

$$\mathcal{S}(t_1, t_2) = \mathcal{S}(t_1, t_3) \mathcal{S}(t_3, t_2) \quad (4.64)$$

folgt schließlich

$$\gamma_{bX^\dagger} = g^2 \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i\Delta t} \langle \mathcal{S}(t, 0) \rangle_{\text{R}} dt, \quad (4.65)$$

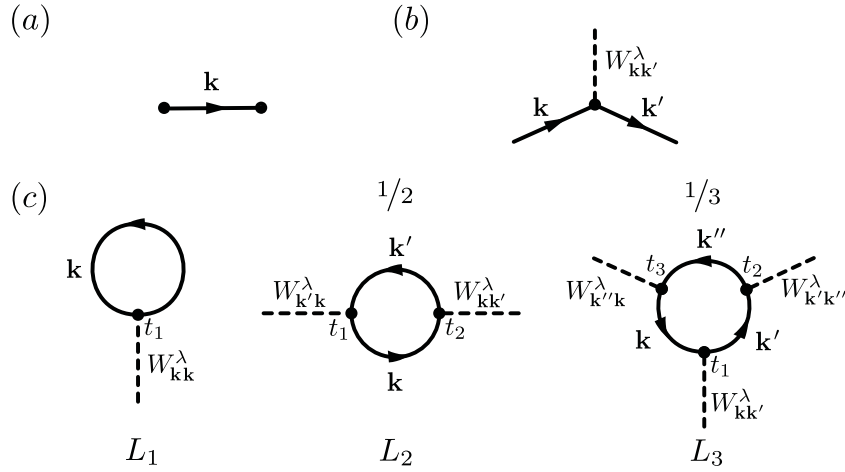
mit

$$\langle \mathcal{S}(t, 0) \rangle_{\text{R}} = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-i)^n}{n!} \int_0^t dt_1 \dots dt_n \langle \mathcal{T} W(t_1) \dots W(t_n) \rangle_{\text{R}}. \quad (4.66)$$

Eine Auswertung von  $\langle \mathcal{S}(t, 0) \rangle$  ist nicht mehr exakt möglich, kann jedoch im Rahmen der Linked-Cluster- (Kumulanten-)Entwicklung [1, 169] diagrammatisch erfolgen. Diese beinhaltet eine Resummation in Gl. (4.66) und führt auf

$$\langle \mathcal{S}(t, 0) \rangle_{\text{R}} = \exp(L_1(t) + L_2(t) + \dots), \quad (4.67)$$





**Abbildung 4.10.:** (a) Diagrammatische Darstellung der freien Greenschen Funktion. (b) Elementarer Wechselwirkungsvertex. (c) Die ersten drei verbundenen Diagramme  $L_1$ ,  $L_2$  und  $L_3$  der Linked-Cluster-Entwicklung in der Auswertung des thermischen Erwartungswertes der  $\mathcal{S}$ -Matrix. Zu beachten ist, dass durch das Zusammenfassen äquivalenter Diagramme der  $n$ -te Term mit einem Faktor  $1/n$  assoziiert ist.

wobei

$$L_n(t) = \frac{(-i)^n}{n!} \int_0^t dt_1 \dots dt_n \langle \mathcal{T} W(t_1) \dots W(t_n) \rangle_{\text{verb}} \quad (4.68)$$

die Summe aller *verbundenen* Diagramme mit  $n$  internen und keinen externen Punkten ist. Tatsächlich existieren  $(n-1)!$  topologisch äquivalente Diagramme<sup>3</sup>, sodass sich in Gl. (4.68) die Fakultät zu  $1/n$  reduziert. Es gelten alle Regeln zur Auswertung von Feynman-Diagrammen, mit einem zusätzlichen Faktor  $1/n$  für ein Diagramm  $n$ -ter Ordnung. Die ersten Beiträge der Linked-Cluster-Entwicklung sind in Abb. 4.10(c) dargestellt. Die internen Punkte repräsentieren sämtliche Quantenzahlen und laufen in der Zeit von 0 bis  $t$ . Negative Zeiten  $t < 0$  müssen nicht separat betrachtet werden, da  $\langle S(-t, 0) \rangle_R = \langle S(0, t) \rangle_R = \langle S(t, 0) \rangle_R^*$  ist. Eine durchgezogene Linie zwischen zwei Punkten (s. Abb. 4.10(a)) entspricht der freien, zeitgeordneten Greenschen Funktion

$$G_{\lambda\mathbf{k}}^0(t, t') = -i \langle \mathcal{T} \lambda_{\mathbf{k}}(t) \lambda_{\mathbf{k}}^\dagger(t') \rangle_R = -i \left[ \Theta(t - t')(1 - f_{\mathbf{k}}^\lambda) - \Theta(t' - t)f_{\mathbf{k}}^\lambda \right] e^{-i\varepsilon_{\mathbf{k}}^\lambda(t - t')} \quad (4.69)$$

für den Benetzungsschichtzustand  $|\phi_{\mathbf{k}}^\lambda\rangle$ . Die Wechselwirkung ist durch ein externes Potential und nicht durch eine Vielteilchen-Wechselwirkung gegeben, wobei der elementare Wechselwirkungsvertex  $W_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}^\lambda$  in Abb. 4.10(b) dargestellt ist. Im Folgenden beschränken wir uns auf die

<sup>3</sup>Die äquivalenten Diagramme ergeben sich, indem man in Gl. (4.68) für einen festgehaltenen  $W$ -Operator alle möglichen Permutationen der verbleibenden  $n-1$  Operatoren betrachtet.

ersten beiden Diagramme, d.h.

$$\langle S(t, 0) \rangle_R \approx \exp(L_1(t) + L_2(t)) \quad (4.70)$$

mit

$$\begin{aligned} L_1(t) &= - \sum_{\lambda, \mathbf{k}} \int_0^t dt_1 W_{\mathbf{k}, \mathbf{k}}^\lambda G_{\lambda \mathbf{k}}^0(t_1, t_1^+), \\ L_2(t) &= - \frac{1}{2} \sum_{\lambda, \mathbf{k}, \mathbf{k}'} \left| W_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}^\lambda \right|^2 \int_0^t dt_1 \int_0^t dt_2 G_{\lambda \mathbf{k}}^0(t_1, t_2) G_{\lambda \mathbf{k}'}^0(t_2, t_1), \end{aligned} \quad (4.71)$$

wobei  $t_1^+$  infinitesimal später als  $t_1$  ist, um die Zeitordnung sicherzustellen.

Zu beachten ist, dass im Fall der Wechselwirkung mit Phononen dieses Resultat für das Independent-Boson-Modell bereits exakt ist [169, 192]: Tatsächlich ist das zugehörige Potential durch  $\sum_{\mathbf{q}} M_{\mathbf{q}}(b_{-\mathbf{q}}^\dagger - b_{\mathbf{q}})$  gegeben (s. Gl. (4.13)) und die Anwendung des Wick-Theorems zur Auswertung des thermischen Erwartungswertes in (4.66) lässt die Phononoperatoren stets paarweise kontrahieren. Somit entsteht als elementares Diagramm die freie Phonon Greensche Funktion

$$\begin{aligned} D_{\mathbf{q}}(t, t') &= -i \left\langle \mathcal{T} \left[ b_{-\mathbf{q}}^\dagger(t) - b_{\mathbf{q}}(t) \right] \left[ b_{-\mathbf{q}}^\dagger(t') - b_{\mathbf{q}}(t') \right]^\dagger \right\rangle_R \\ &= -i \sum_{\mathbf{q}} \left[ (N_{\mathbf{q}} + 1) e^{-i\omega_{\mathbf{q}}|t-t'|} + N_{\mathbf{q}} e^{i\omega_{\mathbf{q}}|t-t'|} \right], \end{aligned} \quad (4.72)$$

welche das einzige verbundene Diagramm in der Kumulanten Entwicklung ( $L_2$  in Gl. (4.67)) ist, und mit

$$L_2(t) = -\frac{i}{2} \int_0^t dt_1 \int_0^t dt_2 |M_{\mathbf{q}}|^2 D_{\mathbf{q}}(t, t') \quad (4.73)$$

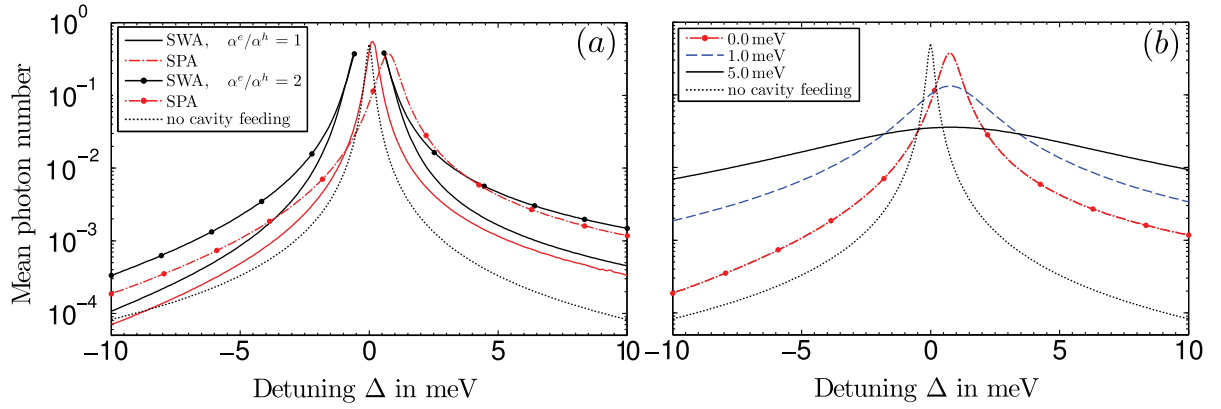
direkt auf das Ergebnis des Independent-Boson-Modells (4.28) führt.

Eine Auswertung der Integration in Gl. (4.71) ergibt letztlich

$$L_1(t) = -i \sum_{\lambda, \mathbf{k}} W_{\mathbf{k}, \mathbf{k}}^\lambda f_{\mathbf{k}}^\lambda t, \quad (4.74)$$

$$L_2(t) = \sum_{\lambda, \mathbf{k}, \mathbf{k}'} \left| W_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}^\lambda \right|^2 (1 - f_{\mathbf{k}}^\lambda) f_{\mathbf{k}'}^\lambda \left( e^{-i\varepsilon_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^\lambda t} - 1 + i\varepsilon_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^\lambda t \right) \left( \varepsilon_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^\lambda \right)^{-2}, \quad (4.75)$$

mit  $\varepsilon_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^\lambda = \varepsilon_{\mathbf{k}}^\lambda - \varepsilon_{\mathbf{k}'}^\lambda$ . Der Beitrag von Gl. (4.74) ist rein imaginär und führt in Gl. (4.65), analog zum Resultat der Schrieffer-Wolff-Transformation, auf eine Verschiebung der Exziton-Energie, welche wir in der Verstimmung  $\Delta$  berücksichtigen. Zusätzliche Energierenormierungen entstehen durch den Imaginärteil des  $L_2$ -Terms. Zuvor haben wir gezeigt, dass die unitäre Transformation auf einen Jaynes-Cummings-Beitrag mit einer renormierten Kopplungskon-



**Abbildung 4.11.:** Stationärer Wert der mittleren Photonenzahl bei Berücksichtigung Coulomb-assistierter nichtresonanter Emission eines Quantenpunktes. Es wird eine Ladungsträgerdichte in der Benetzungsschicht von  $10^{12}/\text{cm}^2$  und eine Temperatur von 77 K angenommen. **(a)** Ergebnis des Schrieffer-Wolff-Verfahrens (SWA, durchgezogene Linie) und der Streupotential-Methode (SPA, gestrichpunktete Linie) für identische (Linien ohne Punkte) und unterschiedliche (Linien mit Punkten) Einhüllenden der Elektron- und Loch-Wellenfunktion. In allen Rechnungen ist  $\alpha^h = 0.15/\text{nm}$ . Zum Vergleich ist die Rate der spontanen Emission (gepunktete Linie) für typische Parameter ( $g = 0.1/\text{ps}$ ,  $\kappa = 0.1/\text{ps}$ ,  $\Gamma = 0.01/\text{ps}$ ,  $P = 0.1/\text{ps}$ ) gezeigt. **(b)** Einfluss künstlicher Renormierung/Verbreiterung  $\gamma$  auf das Ergebnis der Streupotential-Methode für unterschiedliche Einhüllenden  $\alpha^e/\alpha^h = 2$ , als Konsequenz unkorrelierter Elektronen und Löcher. Ohne Verbreiterung entspricht die gestrichpunktete Linie dem Ergebnis in (a).

stanten  $g \langle S(-\infty, 0) \rangle$  führt, welche folglich durch das Langzeitverhalten von Gl. (4.75) bestimmt ist. Der zugehörige Realteil zeigt eine lineare Asymptotik, da sich  $[\cos(\varepsilon t) - 1]/\varepsilon^2 = -t \sin^2(\varepsilon t/2)/(\varepsilon^2 t/2)$  für lange Zeiten wie  $-\pi \delta(\varepsilon)t$  verhält. Dies führt auf einen exponentiellen Zerfall von  $\langle S(t, 0) \rangle$  für  $t \rightarrow \infty$  und impliziert, dass der Jaynes-Cummings-Hamiltonoperator verschwindet und der kohärente Energietransfer zwischen Exziton und Kavität ausschließlich durch die Lindblad-Terme  $\mathcal{L}_{b^\dagger X}$  und  $\mathcal{L}_{b X^\dagger}$  erfolgt. Paradox erscheint zunächst, dass dies offenbar unabhängig von der Ladungsträgerdichte in der Benetzungsschicht ist. Allerdings muss man hierbei bedenken, dass die Reservoir-Annahme eine relativ große Anzahl an Ladungsträgern erfordert. Ein exponentielles Verhalten von  $\langle S(t, 0) \rangle$  weist zudem auf einen langsamen (Lorentz-förmigen) Zerfall der Fouriertransformierten hin und würde, entsprechend der Kubo-Martin-Schwinger Bedingung (4.62), im Grenzfall großer Verstimmung  $\Delta$  auf eine divergente Rate  $\gamma_{b^\dagger X}$  führen. Für kurze Zeiten zeigt Gl. (4.75) jedoch ein quadratisches Verhalten, was mit einer Gaußschen Form von  $\langle S(t, 0) \rangle$  verbunden ist.

**Numerische Ergebnisse** In Abb. 4.11(a) ist der stationäre Wert der mittleren Photonenzahl für ein typisches Quantenpunkt-Mikrokavitätssystem gezeigt und es werden die Resultate des Schrieffer-Wolff-Verfahrens (SWA, schwarze Linie) mit denen der Streupotential-Methode

(SPA, gestrichpunktete rote Linie) verglichen. Die Zeitentwicklung des System-Dichteoperators wird mithilfe der von-Neumann-Lindblad-Gleichung gelöst und enthält neben den Kavitätsverlusten, der nicht-radiativen Rekombination des Exzitons und der inkohärenten Anregung auch die effektiven Lindblad-Terme  $\mathcal{L}_{b^\dagger X}$  und  $\mathcal{L}_{b X^\dagger}$ . Wir betrachten eine hohe Ladungsträgerdichte in der Benetzungsschicht von  $n_{\text{WL}} = 10^{12}/\text{cm}^2$ , wo entsprechend Abschnitt 4.3.1 eine ausgeprägte nichtresonante Coulomb-assistierte Kopplung zu erwarten ist. Die Ergebnisse zeigen eine qualitative Übereinstimmung beider Methoden für große Verstimmung. Ein Vorteil der nicht-perturbativen Streupotential-Methode ist jedoch, dass sie eine Ausdehnung der Resultate auch auf kleine Verstimmungen erlaubt, wo das Schrieffer-Wolff-Verfahren divergiert. Zudem werden zusätzliche Benetzungsschicht-induzierte Renormierungen berücksichtigt, was sich in einer Verschiebung der maximalen mittleren Photonenzahl zeigt. Im Vergleich zum Ergebnis einer Rechnung ohne Coulomb-assistierte Prozesse (gepunktete schwarze Linie) weisen die Resultate beider Methoden eine effiziente Kopplung auch für Verstimmungen von bis zu 10 meV auf.

Der Kompensationseffekt zwischen dem Elektron- und Loch-Potential, welcher für das Schrieffer-Wolff-Verfahren bereits diskutiert wurde (s. Abschnitt 4.3.1), gilt ebenso für die Streupotential-Methode, da die Störung der Benetzungsschicht durch den gleichen Einteilchenoperator  $W$  verursacht wird. Folglich tragen Elektronen und Löcher nicht unabhängig bei, sodass sich eine reduzierte mittlere Photonenzahl für einen lokal ladungsneutralen Quantenpunkt (Linien ohne Punkte) ergibt. Eine Rechnung, die über eine Born-Markov Näherung für die System-Bad-Wechselwirkung hinausgeht, z.B. durch Verwendung quantenkinetischer Methoden, würde Quasi-Teilchen-Eigenschaften mit komplexen spektralen Strukturen anstatt der Frei-Teilchen-Energien in Gl. (4.65) beinhalten [262]. In einfachster Näherung führt das auf Lorentz-verbreiterte Energiespektren für Elektron und Loch. Jedoch sollte die Renormierung der Exziton-Energie auch Korrelationen zwischen den beiden konstituierenden Teilchen enthalten, und die reduzierte Wechselwirkung zwischen Quantenpunkt und Benetzungsschicht für lokal ladungsneutrale Exzitonen widerspiegeln. In diesem Fall sollte die Exziton-Renormierung, im Vergleich zur Summe unabhängig verbreiteter Elektron- und Loch-Energien, deutlich kleiner sein. In Abb. 4.11 (b) ist gezeigt, wie sich künstlich unkorrelierte Elektronen und Löcher auf die nichtresonante Kopplung auswirken. Zu diesem Zweck sind zusätzliche Renormierungen der Quantenpunkt-Exziton-Energie in Gl. (4.65) berücksichtigt, indem diese entsprechend  $\varepsilon_X \rightarrow \varepsilon_X + i\gamma$  ersetzt wurden. Hierbei ist  $\gamma = \gamma_e + \gamma_h$  die Summe der unabhängig verbreiteten Elektron- und Loch-Energien. Zu sehen ist, dass eine zunehmende Gesamtverbreiterung  $\gamma$  die nichtresonante Photonen-Emission deutlich erhöht. Obgleich dieser Effekt künstlich ist, so unterstreicht er die Notwendigkeit einer korrekten Verwendung von Korrelationen zwischen Elektron und Loch, mit der Konsequenz einer reduzierten Effizienz des assistierten Interband-Übergangs.

## Kapitel 5

# Erzeugung nichtklassischen Lichtes mit Halbleiter-Quantenpunkten

In den letzten Jahrzehnten wurden in Hinblick auf technologische Anwendungen große Fortschritte erzielt, quantenmechanische Effekte zur Verarbeitung, Übertragung und Speicherung von Informationen zu verwenden [91, 199, 203]. Die fundamentale Einheit der Quanteninformation ist das Quantenbit (Qubit), welches in Analogie zum klassischen Bit durch zwei unabhängige Zustände  $|0\rangle$  und  $|1\rangle$  repräsentiert ist und dessen Realisierbarkeit in unterschiedlichen physikalischen Systemen demonstriert wurde [54, 68, 166, 186, 236]. Dem Quantensystem ist dabei inhärent, dass der zugehörige Zustandsraum alle kohärenten Superpositionen  $|\Psi\rangle = \alpha|0\rangle + \beta|1\rangle$  mit  $|\alpha|^2 + |\beta|^2 = 1$  enthält. Ein Quantencomputer, dessen Algorithmen hierauf basieren, kann daher bestimmte Aufgaben wesentlich effizienter lösen als es klassisch möglich wäre. Beispiele hierfür sind die Faktorisierung großer Zahlen [168, 174, 257], das Durchsuchen von Datenbanken [99, 151] sowie die Simulation komplexer quantenmechanischer Systeme [161].

Daneben kann durch die Übertragung von Quantenzuständen zwischen entfernten Orten eine intrinsisch sichere Kommunikation realisiert werden [91]. Das von Bennett und Brassard vorgeschlagene Protokoll [22] basiert dabei auf dem fundamentalen physikalischen Prinzip, dass Quanteninformation im Allgemeinen nicht kopiert werden kann, ohne das zur Kodierung verwendete Quantensystem zu stören. Dies ermöglicht es, einen geheimen Schlüssel auf sichere Weise auszutauschen, da bereits der Versuch, diesen abzuhören, zuverlässig detektiert wird. Zentraler Bestandteil der Quantenkryptographie sind einzelne Photonen, die auf Grund der hohen Übertragungsgeschwindigkeit, der geringen Dekohärenz sowie der einfachen Manipulierbarkeit als Träger der Quanteninformation verwendet werden. Die Kodierung des Qubits kann hierbei in unterschiedlichen Freiheitsgraden, wie z.B. den Photonenmoden und der Zeit, erfolgen [37, 90, 203]. Zudem ist die Verwendung einzelner Photonen und linearer Optik ein

vielversprechender Ansatz in Hinblick auf die Implementierung effizienter Quantengatter [142], die zur Durchführung logischer Operationen in Quantencomputern benötigt werden [199]. Eine technologische Herausforderung stellt jedoch die Realisierung von Quellen einzelner Photonen dar, die diese zuverlässig und mit hoher Repetitionsrate erzeugen. Klassische Quellen, wie z.B. stark abgeschwächte Laser, besitzen eine endliche Wahrscheinlichkeit, kein oder mehr als ein Photon zu emittieren, was den Wirkungsgrad und die Zuverlässigkeit in Bezug auf Anwendungen in der Quanteninformationsverarbeitung einschränkt. Alternativ kann die spontane Emission einzelner Quantenemitter verwendet werden, um einzelne Photonen mit hoher Effizienz zu erzeugen, was mit unterschiedlichen Systemen demonstriert wurde [98].

Halbleiter-Quantenpunkte besitzen eine Vielzahl von Qualitäten, die sie zu ausgezeichneten Quellen einzelner Photonen machen [183, 211], wie z.B. niedrigen Jitter, hohe Temperaturstabilität und Emissionsfrequenzen, die über einen großen Bereich eingestellt werden können. In Hinblick auf Bauteilanwendungen können Quantenpunkte in Heterostrukturen integriert und elektrisch kontaktiert werden [220, 305]. Eine deterministische Erzeugung einzelner Photonen lässt sich zudem durch gepulste Anregung erreichen [183] und wurde für elektrisch betriebene Quantenpunkte mit einer Emission im nahinfraroten [21, 110, 162], roten [221] und Telekom-Spektralbereich [292] realisiert. Zudem ermöglichen diese Quellen eine effiziente Implementierung komplexer Quantenalgorithmien; aktuell wurde die prinzipielle Realisierbarkeit eines Quantenschlüsselaustauschs unter Verwendung einer integrierten und elektrisch betriebenen Einzel-Photonen-Quelle auf Basis von Quantenpunkten demonstriert [111].

In Abschnitt 5.1 untersuchen wir den Einfluss gepulster Anregung auf die Einzel-Photonen-Emission einzelner Quantenpunkte. Unter Verwendung einer mikroskopischen Theorie [80] geben wir eine quantitative Beschreibung der zugrunde liegenden Physik und schlagen vor, elektrisch betriebene Quellen im Regime starker Anregung zu betreiben. Als Konsequenz ist die Güte der Einzel-Photonen-Emission nicht mehr durch die Pulslänge limitiert, was in Kooperation mit der experimentellen Gruppe von Prof. Peter Michler in Stuttgart für ein elektrisch betriebenes Bauteil nachgewiesen wurde [137].

Deterministische Quellen polarisationsverschränkter Photonen sind zentraler Bestandteil vieler Protokolle der Quanteninformationsverarbeitung [203, 231]. Halbleiter-Quantenpunkte sind für diesen Zweck hervorragend geeignet, da in der kaskadierten Emission des Biexzitons die Weginformation des Zerfalls nicht enthalten ist, sodass die beiden emittierten Photonen verschränkt sind [3, 23, 265], d.h. einen nichtseparablen Zustand bilden, der nichtlokale Quantenkorrelationen zeigt [19, 119]. Jedoch erweist sich die Feinstrukturaufspaltung des Exzitons als limitierender Faktor für den erreichbaren Verschränkungsgrad in diesen Systemen [43, 44, 103, 279]. Diese wird durch räumliche Anisotropien der Exzitonen-Wellenfunktion hervorgerufen, welche u.a. durch die Geometrie des Quantenpunktes, Unordnungseffekte in der Legierung des Quantenpunktmaterials sowie durch lokale Verspannungsfelder verursacht sind [94, 250, 258]. Große Anstrengungen wurden daher unternommen, um diese Feinstrukturaufspaltung des Exzitons

zu reduzieren, indem die strukturellen Eigenschaften [185] und Wachstumsbedingungen [267] verbessert, alternative Materialien für Quantenpunkte untersucht [109], oder indem externe elektrische [85], magnetische [265] oder Spannungsfelder [251] angelegt wurden.

In Abschnitt 5.3 verwenden wir einen alternativen Prozess zur Erzeugung polarisationsverschränkter Photonenpaare mit Halbleiter-Quantenpunkten [245] und vermeiden so die Einschränkungen oben genannter Ansätze.

## **5.1. Erzeugung einzelner Photonen mit elektrisch betriebenen Quantenpunkten unter gepulster Anregung**

Zentraler Bestandteil von Anwendungen der Quanteninformation sind Einzel-Photonen-Quellen mit hoher Auskoppelleffizienz und hoher Repetitionsrate. Dies kann durch eine gerichtete und infolge des Purcell-Effektes verstärkte spontane Emission in Anwesenheit optischer Mikrokavitäten erreicht werden [55, 115, 217]. Die Erzeugung einzelner Photonen erfolgt dabei stets nach dem gleichen Prinzip: Nach der Anregung von Ladungsträgern durch optische oder elektrische Pulse können Elektronen und Löcher anschließend auf einer ps-Zeitskala durch Coulomb- oder Phonon-Wechselwirkung in den Quantenpunkt relaxieren (s. Abschnitt 2.4). Die Anregungen des Quantenpunktes können mehr als einen Ladungsträger beinhalten, sodass sich Multi-Exziton-Konfigurationen bilden. Im Gegensatz zu Atomen ist der energetische Abstand der Konfigurationen infolge der Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Quantenpunkt-Ladungsträgern klein und als Konsequenz tragen mehrere Konfigurationen zur Rekombinationsdynamik bei [87, 227]. Durch eine spektral gefilterte Messung, z.B. des Exziton-Überganges ( $1X_s$ ), kann die Emission eines einzelnen Photons erhalten werden [276], da es ein Schritt in einer Kaskade von zerfallenden Multi-Exziton-Zuständen [188] mit Übergängen unterschiedlicher Energie ist [87].

Die deterministische Erzeugung einzelner Photonen basiert jedoch auf Anregungspulsen, die im Vergleich zur Rekombinationszeit kurz sind. Andernfalls wird das System während des Pulses erneut angeregt und das Photonen-Antibunching geht verloren [63, 196, 213, 255]. Um entsprechend hohe Repetitionsraten zu erzielen, werden überwiegend kurze und schwache optische Pumpimpulse verwendet [255], was jedoch keine praktikable Lösung für Anwendungen in integrierten Bauteilen ist.

Tatsächlich ist die Präsenz zusätzlicher Ladungsträger in den unterschiedlichen lokalisierten Zuständen entscheidend für die korrekte Beschreibung eingebetteter Quantenpunkt-Systeme. Hierbei spielen die Streu- und Zerfalldynamik, zusammen mit den zugehörigen Coulomb-Effekten, sowie der Einfluss der kontinuierlichen Zustände der Benetzungsschicht und des Barrierenmaterials eine wesentliche Rolle.



Im Folgenden gehen wir daher einen alternativen Weg und schlagen vor, den Quantenpunkt im Regime starker Anregung zu betreiben. Wie wir im Rahmen eines Halbleitermodells zeigen werden, stellt dies sicher, dass während des Pulses mehr als ein Elektron-Loch Paar im Quantenpunkt vorhanden ist. Als Resultat der Coulomb-Wechselwirkung ist die Exziton-Rekombination während des Pumpimpulses vollständig unterdrückt. Die Einzel-Photonen-Emission durch die Exziton-Rekombination erfolgt dann zum Ende des Pumpimpulses und das Antibunching ist praktisch unabhängig von der Pulsdauer.

Wir werden im Folgenden die Güte der Einzel-Photonen-Emission eines einzelnen Quantenpunktes nach gepulster Anregung quantifizieren und insbesondere die Abhängigkeit von der Anregungsintensität innerhalb des vorgeschlagenen Modells untersuchen, das mehrere diskrete Einteilchen-Zustände mit einem energetischen Abstand im meV Bereich berücksichtigt. Diese ist typischerweise durch ein Photonen-Antibunching charakterisiert und spiegelt sich in der Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung wieder. Hierbei handelt es sich um eine zwei-zeitige Größe und in Kombination mit einer gepulsten Anregung muss eine geeignete Mittelung über beide Zeitargumente erfolgen, was wir im Detail beschreiben werden.

Dieser Abschnitt basiert im Wesentlichen auf den Ergebnissen aus [80].

### 5.1.1. Theoretisches Modell

Wir betrachten im Folgenden einen einzelnen selbstorganisiert gewachsenen Quantenpunkt mit zwei (spin-entarteten) gebundenen Zuständen für Elektronen ( $|3\rangle, |4\rangle$ ) und Löcher ( $|1\rangle, |2\rangle$ ), siehe Abb. 2.1. Ferner beschränken wir uns auf Interband-Übergänge, die zwischen gleichen Schalen stattfinden, was für linsenförmige Quantenpunkte eine adäquate Annahme ist.

In Hinblick auf Bauteilanwendungen ist das Injizieren von Ladungsträgern durch elektrische Anregung praktikabel. Durch die Limitierung aktuell verfügbarer Pulsgeneratoren ist die Anregungspulsbreite allerdings auf eine Größenordnung von 100 ps beschränkt. Zudem enthält eine Kavität typischerweise mehr als einen Quantenpunkt, der zur Emission einer einzelnen Mode beitragen kann, selbst wenn die optischen Übergänge spektral um mehrere meV verstimmt sind, siehe Kapitel 4. Daher werden wir eine Kavität mit einem unteren Bragg-Spiegel hoher Reflektivität annehmen, um eine gerichtete Emission zu erhalten. Andererseits ist die Güte aber klein genug, sodass eine Emission in den freien Raum angenommen werden kann. In einem Regime, in dem die Linienbreite infolge der Dephasierung klein genug ist, sodass die Übergangsenergien der verschiedenen Konfigurationen wohl separiert sind, kann die Emission eines Photons durch die Abregung eines Exziton ausgedrückt werden [279].

Der Hilbertraum ist durch die endliche Anzahl lokalisierter Zustände, die durch Ladungsträger besetzt werden, auf natürliche Weise beschränkt. Für den betrachteten Quantenpunkt erlaubt



dies eine direkte Lösung der von-Neumann-Lindblad-Gleichung

$$\begin{aligned}
\frac{d}{dt}\rho = & -i \left[ H_{\text{e-e}}^{\text{QD}}, \rho \right] \\
& + \sum_{\substack{(i,j) \\ \xi}} \frac{\gamma_{ij}}{2} \left( 2a_{i,\xi}^\dagger a_{j,\xi} \rho a_{j,\xi}^\dagger a_{i,\xi} - a_{j,\xi}^\dagger a_{i,\xi} a_{i,\xi}^\dagger a_{j,\xi} \rho - \rho a_{j,\xi}^\dagger a_{i,\xi} a_{i,\xi}^\dagger a_{j,\xi} \right) \\
& + \sum_{\xi} \frac{\Gamma(t)}{2} \left( 2a_{4,\xi}^\dagger \rho a_{4,\xi} - a_{4,\xi} a_{4,\xi}^\dagger \rho - \rho a_{4,\xi} a_{4,\xi}^\dagger \right) \\
& + \sum_{\xi} \frac{\Gamma(t)}{2} \left( 2a_{1,\xi}^\dagger \rho a_{1,\xi} - a_{1,\xi}^\dagger a_{1,\xi} \rho - \rho a_{1,\xi}^\dagger a_{1,\xi} \right)
\end{aligned} \tag{5.1}$$

für die Dichtematrix  $\rho(t)$  im Wechselwirkungsbild. Die fermionischen Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren sind durch  $a_{i,\xi}^\dagger$  und  $a_{i,\xi}$  bezeichnet und entsprechen den vier Zuständen  $i = |1\rangle \dots |4\rangle$  sowie dem Spin  $\xi$ , vgl. Abb. 2.1. Die erste Zeile in Gl. 5.1 ist der von-Neumann Anteil mit Bezug auf den Hamiltonoperator der Coulomb-Wechselwirkung. Dieser wird als diagonal in der Konfigurationsbasis angenommen und enthält direkte (Hartree-)Terme und Austausch-Beiträge, die zu einer energetischen Separation der verschiedenen exzitonischen Übergänge führen (s. Abschnitt 2.2).

Das Zustandekommen der oben genannten Lindblad-Terme soll kurz erläutert werden. Wie wir in Abschnitt 2.4 illustriert haben, sind Quantenpunkte eingebettete Systeme, wodurch deren Dynamik stark von der Kopplung der lokalisierten Quantenpunkt-Zustände und dem (Quasi-)Kontinuum an Benetzungsschicht-Zuständen und Photonenmoden beeinflusst wird. Während erstere eine effiziente Ladungsträgerstreuung in den Quantenpunkt durch die Coulomb- und Elektron-Phonon-Wechselwirkung ermöglichen, führt letztere zu einer Rekombination der Ladungsträger durch spontane Emission. Die Reservoir-basierte Behandlung der spontanen Emission verhindert dabei ein Feedback der emittierten Photonen auf das System, was durch die Kavität niedriger Güte gerechtfertigt ist. Die zweite Zeile in Gl. 5.1 beschreibt die Relaxation für die Indexpaare  $(i, j) = (1, 2), (3, 4)$  und die Rekombination für  $(i, j) = (2, 3), (1, 4)$ , mit den Raten  $\gamma_{ij}$ , entsprechend eines Prozesses  $|j\rangle \rightarrow |i\rangle$ . Diese Beiträge folgen aus einer Born-Markov-Beschreibung der verschiedenen Reservoirs. Auf ähnliche Art und Weise modellieren die letzten beiden Zeilen in Gl. 5.1 den Pumpprozess nach einer gepulsten Anregung durch Injektion von Elektronen (Löchern) aus der Benetzungsschicht in den energetisch höchsten (niedrigsten) Quantenpunkt-Zustand. Der Einfangprozess wird für Elektronen und Löcher als unabhängig voneinander und mit einer zeitabhängigen Rate  $\Gamma(t)$  angenommen.

### 5.1.2. Charakterisierung der Einzel-Photonen-Emission

In der zu beschreibenden experimentellen Situation wird das System von einer Folge von rechteckförmigen Pulsen der Breite  $\Delta$ , Höhe  $P_{\text{max}}$  und einer hinreichend langen Repetitionszeit  $T$

angeregt. Hierdurch relaxiert der Quantenpunkt zwischen den Pulsen in seinen Grundzustand, bevor ein neuer Anregungszyklus beginnt, sodass eine deterministische Erzeugung einzelner Photonen ermöglicht wird. Dabei ist die Pulsbreite (typischerweise kleiner als 1 ns) zuzüglich der Zerfallszeit (einige hundert ps) viel kürzer als die Repetitionszeit (mehrere 10 ns), sodass die Entwicklung des Systems periodisch in jedem Anregungszyklus ist.

Im Experiment wird zur Charakterisierung der statistischen Eigenschaften der Photonen-Emission die normierte Korrelationsfunktion zweiter Ordnung  $g^{(2)}(\tau)$  verwendet, wobei  $\tau$  die Verzögerungszeit zwischen zwei Emissionsereignissen ist [182]. Unter gepulster Anregung weist diese Funktion eine Serie von Korrelationspeaks mit der Periode  $T$  auf (s. Abb 5.4). Für eine kohärente Lichtquelle ist die Anzahl an Koinzidenzen pro Puls identisch, da die Emission einer Poissonstatistik folgt und die Photonen vollständig unkorreliert sind. Hingegen ist eine Einzel-Photonen-Quelle mit Antibunching assoziiert, was darauf hindeutet, dass, nachdem das erste Photon detektiert wurde, die Wahrscheinlichkeit, ein zweites im gleichen Zyklus zu messen, unterdrückt ist. In diesem Fall sind die Koinzidenzen für  $|\tau| < T$  im Vergleich zum Fall unkorrelierter Emission reduziert und verschwinden vollständig im idealen Fall, wenn genau ein Photon pro Puls emittiert wird. Um dies theoretisch zu quantifizieren, verwenden wir die Autokorrelation zweier Emissionsereignisse und vergleichen die Situationen beider Zeiten im selben oder in unterschiedlichen Anregungszyklen.

**Berechnung der Autokorrelationsfunktion** Für eine verlustreiche Kavität kann die Autokorrelationsfunktion in Termen elektronischer Operatoren formuliert werden:

$$G^{(2)}(t, \tau) = \langle \sigma^\dagger(t) \sigma^\dagger(t + \tau) \sigma(t + \tau) \sigma(t) \rangle, \quad (5.2)$$

wobei das  $1X_s$ -Exziton entweder erzeugt ( $\sigma^\dagger = |1X_{s\uparrow}\rangle \langle 0X| + |1X_{s\downarrow}\rangle \langle 0X|$ ) oder vernichtet wird ( $\sigma$ ). Zur Berechnung dieses zwei-zeitigen Erwartungswertes verwenden wir das Quanten-Regressionstheorem [83], dessen Anwendung die nachfolgenden Schritte beinhaltet: Um die Größe  $G^{(2)}(t, \tau)$  zu erhalten, wird die von-Neumann-Lindblad-Gleichung (5.1) bis zum Zeitpunkt  $t$  gelöst, wobei sich das System anfangs in seinem Grundzustand befindet  $\rho(t = 0) = |0X\rangle \langle 0X|$ . Die Anwendung des Quanten-Regressionstheorems liefert eine modifizierte Anfangsdichtematrix für die zweite Zeitentwicklung mit der Verzögerungszeit  $\tau$

$$\tilde{\rho}(\tau = 0) = \sigma \rho(t) \sigma^\dagger = n_0(t) |0X\rangle \langle 0X|, \quad (5.3)$$

worin  $n_0(t)$  die Realisierungswahrscheinlichkeit der Konfiguration des Exzitons zur Zeit  $t$  ist, unabhängig von seinem Spin. Der Index bezeichnet dabei die Startzeit der Entwicklung, welche in diesem Fall  $t = 0$  ist.

Die Anfangsbedingung für die  $\tau$ -Entwicklung ist bis auf einen Vorfaktor erneut durch den Grundzustand gegeben, wobei jedoch zu beachten ist, dass es sich bei der Startzeit um  $t$

handelt. Folglich wird das System während der  $\tau$ -Entwicklung nur von einem um diesen Betrag verkürzten Puls angeregt. Die Resultate für die  $t$ - und  $\tau$ -Entwicklung sind im Allgemeinen verschieden, obgleich die Anfangsbedingung (bis auf einen Skalierungsfaktor) identisch ist. Die zwei-zeitige Korrelationsfunktion folgt dann aus

$$G^{(2)}(t, \tau) = \langle \sigma^\dagger(\tau) \sigma(\tau) \rangle_{\tilde{\rho}} = \text{Sp} \left\{ \sigma^\dagger \sigma \tilde{\rho}(\tau) \right\} = n_0(t) n_t(t + \tau) . \quad (5.4)$$

Die charakteristischen Eigenschaften der Lichtquelle sind hierbei in der Verzögerungszeit  $\tau$  enthalten. Über den Emissionszeitpunkt des ersten Photons, der lediglich den Start der Messung definiert, führen wir eine Mittelung durch, indem wir über einen vollständigen Anregungszyklus integrieren:

$$G^{(2)}(\tau) = \int_0^T dt G^{(2)}(t, \tau) . \quad (5.5)$$

Offensichtlich existiert ein essentieller Unterschied, ob die Zeit  $t + \tau$  des zweiten Ereignisses zu einem Zyklus des ersten oder zweiten (oder jedes weiteren) Anregungspulses gehört. Um diesen Unterschied zu verdeutlichen, bezeichnen wir das obige Ergebnis für den ersten Fall mit  $G_I^{(2)}(\tau)$  und im zweiten Fall mit  $G_{II}^{(2)}(\tau)$ .

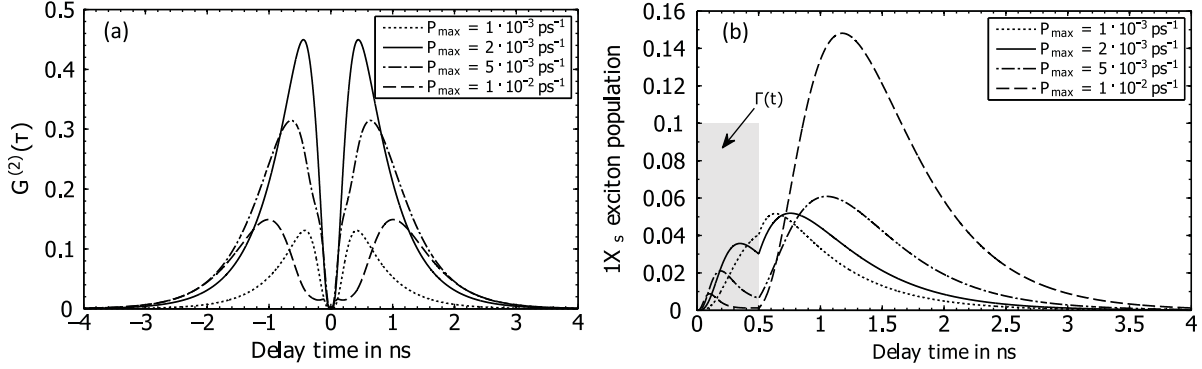
Falls die Zeit  $t$  des ersten Ereignisses größer ist als die Pulsbreite  $\Delta$  und das zweite Ereignis noch im ersten Anregungszyklus liegt, so verschwindet die Autokorrelationsfunktion, da das System nicht erneut angeregt werden kann, um ein zweites Photon zu emittieren. Genauer ist  $n_t(t + \tau) = 0$  für  $t > \Delta$  und  $t + \tau < T$ . Folglich reduziert sich  $G_I^{(2)}(\tau)$  auf

$$G_I^{(2)}(\tau) = \int_0^\Delta dt n_0(t) n_t(t + \tau), \quad (5.6)$$

wodurch deutlich wird, dass diese Größe nur auf die Exziton-Besetzung  $n_0(t)$  während des Pulses sensitiv ist. Wie wir im Folgenden zeigen werden, spielt dies eine besondere Rolle in Bezug auf die Bedingung für die Existenz von Photonen-Antibunching.

Wenn das zweite Ereignis in einem darauf folgenden Anregungszyklus stattfindet, so ist dieses Ereignis zum ersten vollständig unkorreliert. Während des neuen Pumpulses wiederholt das System die Zeitentwicklung des ersten Zyklus' und die zweite Emission ist ein perfektes Replikat der ersten, die jedoch zu einem späteren Zeitpunkt stattfindet:  $n_t(t + \tau) = n_0(t + \tau - T)$ . Daher folgt

$$G_{II}^{(2)}(\tau) = \int_0^T dt n_0(t) n_0(t + \tau - T) , \quad (5.7)$$



**Abbildung 5.1.:** (a) Unnormierte Autokorelationsfunktion  $G_I^{(2)}(\tau)$  in Abhängigkeit von der Verzögerungszeit  $\tau$  und für verschiedene Anregungsleistungen. (b) Zeitentwicklung der  $1X_s$  Exziton-Besetzung für verschiedene Pumpstärken  $P_{\max}$  und eine feste Pulsbreite  $\Delta$  von 500 ps. Die Pulsform ist schematisch als schattierte Fläche gezeigt und illustriert die zeitabhängige Pumprate  $\Gamma(t)$ , eingeführt in Gl. (5.1).

worin die Exziton-Besetzung  $n_0(t)$  auch dann zu dem Resultat beiträgt, *nachdem* der Puls vorüber ist.

Entsprechend der obigen Diskussion vergleichen wir die Autokorrelationsfunktion  $G_I^{(2)}(\tau)$  für zwei aufeinander folgende Anregungspulse: Das Verhältnis der Koinzidenzen des ersten Pulses mit denen des zweiten (oder jedes späteren) ergibt den Wert einer „effektiven“ Autokorrelationsfunktion  $g_0^{(2)}$ :

$$g_0^{(2)} = \frac{\int d\tau G_I^{(2)}(\tau)}{\int d\tau G_{II}^{(2)}(\tau)}. \quad (5.8)$$

Die  $\tau$ -Integration ist auf natürliche Weise beschränkt, da sich der Quantenpunkt nach dem Ende des Pulses nur eine endliche Zeit im angeregten Zustand befindet. Der Wert von  $g_0^{(2)}$  ermöglicht hierbei eine quantitative Beurteilung und gibt an, wie wahrscheinlich es ist, zwei Emissionsereignisse im gleichen Zyklus vorzufinden, normiert auf die Wahrscheinlichkeit, beide Ereignisse in verschiedenen Zyklen zu beobachten.

### 5.1.3. Diskussion der Autokorrelationsfunktion

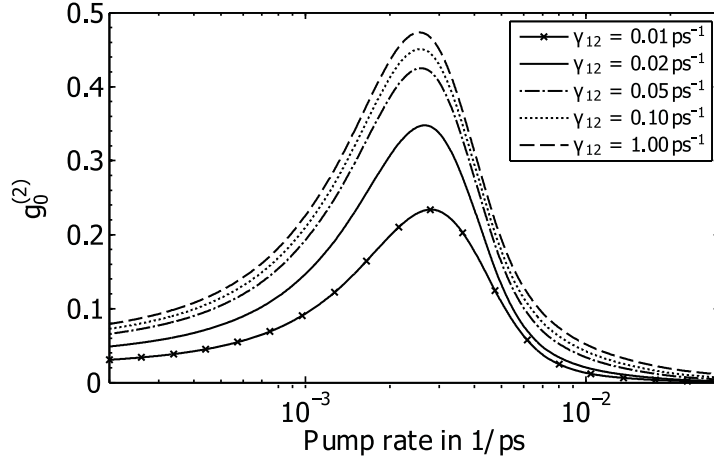
Mit den Ergebnissen des vorigen Abschnitts soll nun die Autokorrelationsfunktion  $G^{(2)}(\tau)$  für die Rekombination am Exziton-Übergang in Abhängigkeit von der Anregungsstärke untersucht werden. In Abb. 5.1 sind die Resultate für eine Anregungspulsbreite von  $\Delta = 500$  ps und verschiedene Anregungsstärken gezeigt, wobei wir für die  $s$ - und  $p$ -Rekombinationsraten  $\gamma_{14} = \gamma_{23} = 1/500$  ps und für die Intraband-Relaxationsraten  $\gamma_{12} = \gamma_{34} = 1/100$  ps angenommen haben.

Als erstes diskutieren wir die Ergebnisse für schwache Anregungspulse (durchgezogene Linie in Abb. 5.1 (a)), wo die Ladungsträgerdynamik innerhalb des Quantenpunktes viel schneller als der Pumpprozess ist. Ladungsträger werden während des Anregungspulses in die Quantenpunkt- $p$ -Zustände eingefangen, von wo aus eine Relaxation in die  $s$ -Zustände stattfindet. Die Zeit, bevor ein Photon an der Exziton-Resonanz emittiert wird, ist durch den *langsamsten* Prozess auf dem Weg dorthin bestimmt. Dies zeigt sich in der Anstiegszeit der Autokorrelationsfunktion, hier im Intervall von 0 bis 500 ps. Nachdem der Puls vorüber ist, kehrt das System auf der Zeitskala der Rekombinationszeit in seinen Grundzustand zurück.

Mit zunehmender Anregungsleistung ergibt sich eine signifikante Änderung des Anstiegverhaltens. Die Ursache hierfür liegt in der Erzeugung von Multi-Exziton-Konfigurationen; diese wird wahrscheinlicher, wenn der Ladungsträger-Einfang im Vergleich zu anderen Prozessen im Quantenpunkt dominiert. Als Konsequenz ist die Wahrscheinlichkeit reduziert, dass die Exziton-Konfiguration während des Pulses realisiert ist, und damit auch die Photonen-Emission auf dem zugehörigen optischen Übergang. Dieses Verhalten ist in Abb. 5.1 (b) demonstriert, wo die Realisierungswahrscheinlichkeit der Exziton-Konfiguration als Funktion der Anregungsleistung für eine feste Pulsbreite dargestellt ist. Mit der Zeitentwicklung steigt die Wahrscheinlichkeit zunächst an, da Ladungsträger in das anfänglich leere System eingefangen werden und die  $s$ -Schale zunehmend besetzt wird. Da das Exziton jedoch nicht schneller rekombinieren kann als zusätzliche Ladungsträger in weiteren lokalisierten Zuständen akkumuliert werden, sinkt die Wahrscheinlichkeit anschließend wieder. Für höhere Pumpraten erfolgt dies bereits zu früheren Zeiten und führt bei Pumpraten über  $10^{-2}/\text{ps}$  zu einer vollständigen Unterdrückung der Exziton-Konfiguration. Lediglich *nachdem* der Anregungspuls vorbei ist, zerfallen die Multi-Exziton-Konfigurationen und es kann eine Emission am Exziton-Übergang als letzter Schritt in dieser Kaskade stattfinden.

Unter der Annahme, dass die Photonen auf der Emissionsfrequenz des Exzitons detektiert werden, kann das Verhalten der Autokorrelationsfunktion  $G^{(2)}(\tau)$  vollständig in Hinblick auf die obigen Diskussion verstanden werden, da die Korrelation zwischen den Emissionsereignissen in engem Zusammenhang mit der Realisierungswahrscheinlichkeit der Exziton-Konfiguration steht, wie wir im vorigen Abschnitt gezeigt haben. Insgesamt ergibt sich eine Reduktion der Koinzidenzen in  $G_I^{(2)}(\tau)$ , infolge des verzögerten Anstiegs während des Anregungspulses. Bedenkt man, dass das Photonen-Antibunching durch  $g^{(2)}(0)$  in Gl. (5.8) charakterisiert ist, so führt dieser Effekt zu einer verbesserten Einzel-Photonen-Emission, wie nachfolgend erklärt wird.

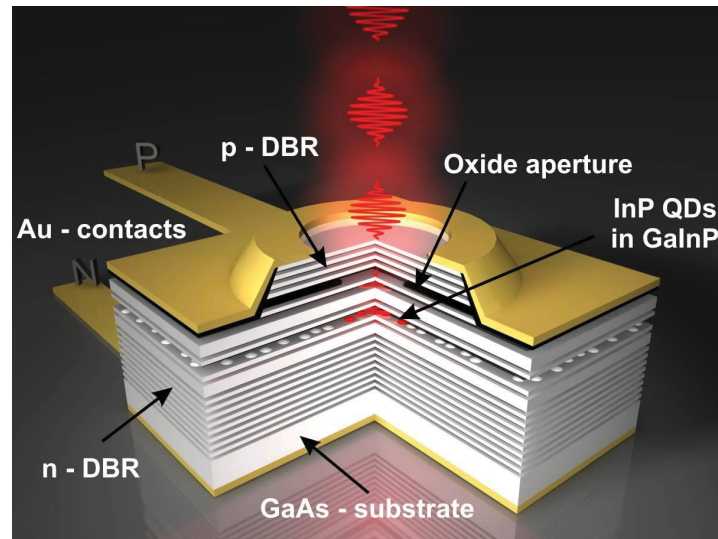
Die Abhängigkeit des Photonen-Antibunchings von der Pumpstärke besitzt ein nicht-monotones Verhalten, wie in Abb. 5.2 gezeigt ist. Die niedrigste Kurve entspricht der Situation, die in Abschnitt 5.1.3 diskutiert wurde. Zu sehen ist, dass die Wahrscheinlichkeit, mehr als ein Photon zu emittieren, mit der Anregungsleistung zunächst zunimmt. Dies ist zu erwarten, da die Pulsbreite in diesem Fall nicht deutlich kleiner als die Rekombinationszeit ist, sodass das Sys-



**Abbildung 5.2.:** Normierte Autokorrelationsfunktion für verschwindende Verzögerungszeit als Funktion der Pumprate für verschiedene Relaxationsraten ( $\gamma_{12} = \gamma_{34}$ ). Die niedrigste Kurve entspricht den Parametern, die in Abb. 5.1 verwendet wurden.

tem während des Pulses erneut angeregt werden kann, vorausgesetzt, Ladungsträger werden hierfür bereitgestellt. Aus diesem Grund basieren die meisten Experimente zu Einzel-Photonen-Quellen mit gepulster Anregung auf kurzen und schwachen Pulsen.

Weniger erwartet ist hingegen die Reduktion bei hohen Pumpraten. Diese ist bedingt durch die Realisierung von Multi-Exziton-Konfigurationen auf Kosten des einzelnen Exziton-Zustands. Der Einfluss der Multi-Exzitonen-Zustände auf das Photonen-Antibunching kann im Rahmen der Diskussion in Abschnitt 5.1.2 und der Resultate aus Abb. 5.1 erklärt werden: Die Unterdrückung der Besetzung des einzelnen Exzitons *während* des Pulses bei starker Anregung (vgl. Abb. 5.1 (b)) reduziert den Zähler in Gl. (5.8). Auf der anderen Seite ist der Nenner durch die stärkere Emission *nach* dem Puls erhöht, was letztlich auf einen verminderten  $g_0^{(2)}$ -Wert führt. Der Peak in Abb. 5.2 separiert hierbei zwei Regime: Auf der linken Seite des Peaks befindet sich das Regime niedriger Anregung, wo die Einfangrate langsamer als die Relaxationsrate im System ist. Die rechte Seite des Peaks definiert ein Regime, in dem durch starkes Pumpen mehr Anregungen während des Pulses in das System gebracht werden. Die Realisierungswahrscheinlichkeit der Exziton-Konfiguration ist hierbei unterdrückt durch den Anregungspuls, sodass die Güte der Einzel-Photonen-Emission dadurch verbessert werden kann, dass die Anregungsleistung weiter *erhöht* wird. Der diskutierte Effekt ist hauptsächlich durch die Balance der Raten von Ladungsträger-Erzeugung und Intraband Ladungsträger-Relaxation bestimmt. Eine Erhöhung der Relaxationsrate verschiebt die Kurve effektiv zu höheren Werten von  $g_0^{(2)}$ .



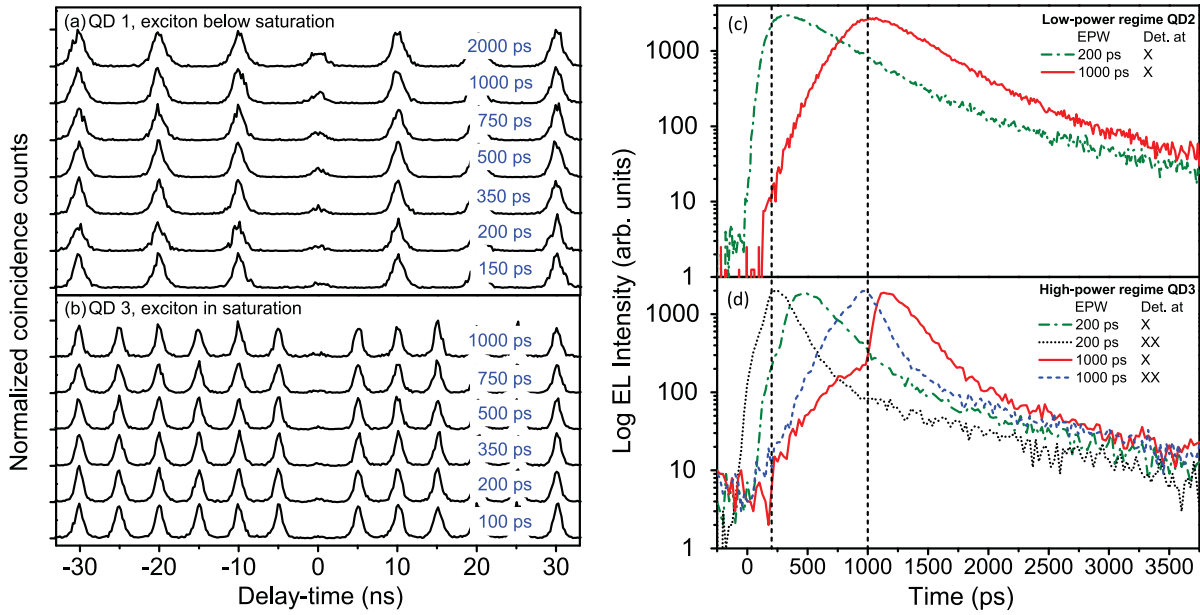
**Abbildung 5.3.:** Schematische Darstellung der elektrisch betriebenen Einzel-Photonen-Quelle. Die Verwendung der Abbildung erfolgt mit freundlicher Genehmigung von Fabian Hargart.

## 5.2. Vergleich mit Experimenten

Die folgenden Ergebnisse basieren auf [137] und sind in Kooperation mit der Universität Stuttgart entstanden, wobei die Herstellung und Charakterisierung der Proben in den Gruppen von Prof. Peter Michler und Michael Jetter erfolgt ist.

Es wurden InP Quantenpunkte untersucht, die mittels Metallorganischer Gasphasenepitaxie auf einem GaAs Substrat gewachsen wurden. Um die Sammeleffizienz zu erhöhen, wurde ein n-dotierter Bragg-Spiegel mit 45 (50, Probe 3)  $\lambda/4$  Paaren unterhalb der aktiven Region platziert. Die Quantenpunkte wurden in intrinsische  $\text{Ga}_{0.51}\text{In}_{0.49}\text{P}$  Barrieren eingebettet, die von teilweise dotierten  $(\text{Al}_{0.55}\text{Ga}_{0.45})_{0.51}\text{In}_{0.49}\text{P}$  Schichten umgeben sind. Im Falle der Proben 1 und 2 vervollständigt ein p-dotierter oberer Bragg-Spiegel, bestehend aus 8  $\lambda/4$  Paaren, die Kavität niedriger Güte  $Q$ . Für eine detailliertere Beschreibung siehe Ref. [244]. Nach dem Wachstum wurden Mesas mit einem Durchmesser von  $100\text{ }\mu\text{m}$  prozessiert und durch Aufdampfen ohmscher Kontakte ist es möglich, einen Strom in die aktive Region zu injizieren. Die Probe 2 enthält zudem eine Oxidapertur, die den Strompfad und das emittierte Licht einschließt. Eine schematische Darstellung ist in Abb. 5.3 gegeben. Die Proben wurden auf ca. 20 K abgekühlt und die Quantenpunkte mit elektrischen Pulsen angeregt. Mit einem Hanbury-Brown und Twiss Aufbau [104], bestehend aus einem 50/50 Strahlteiler und zwei Avalanche-Photodioden mit hoher Zeitauflösung (40 ps bei 20% Detektoreffizienz), wurde anschließend die Photonen-Autokorrelation gemessen und der Einfluss der Breite des Anregungspulses auf die Reinheit der Einzel-Photonen-Emission untersucht.





**Abbildung 5.4.: Links:** Gemessene Autokorrelation eines einzelnen Quantenpunktes als Funktion der Breite des Anregungspulses für zwei verschiedene Proben bei einer Repetitionsrate von 100 und 200 MHz. Die Höhe der Maxima wurde auf eins normiert. Im Falle von (a) Quantenpunkt 1 ist die Exziton-Besetzung deutlich unterhalb der Sättigung und (b) Quantenpunkt 3 wurde die Messung in Sättigung durchgeführt. **Rechts:** Zeitaufgelöste Messung der Emission für zwei verschiedene Pulsbreiten (200 ps und 1000 ps) auf (c) dem Exziton-Übergang (X) eines einzelnen Quantenpunktes für schwache Anregung und (d) dem Exziton- (X) und Biexziton-Übergang (XX) eines anderen Quantenpunktes bei hoher Anregungsleistung. Die vertikalen Linien markieren das Ende des jeweiligen Anregungspulses.

Zunächst wurden Messungen für Anregungsleistungen unterhalb der Sättigung ( $\leq 0.1 \cdot P_{sat}$ ) durchgeführt, siehe Abb. 5.4 (a). Ist die Pulsbreite im Vergleich zur Rekombinationszeit kurz, so sind die Koinzidenzen bei verschwindender Verzögerungszeit deutlich unterdrückt ( $g^{(2)}(0) < 0.5$ ), was auf die Emission einzelner Photonen hinweist. Eine größere Pulsbreite führt hingegen zu einer Zunahme der Koinzidenzen.

Lange Anregungspulse ermöglichen es, dass der Quantenpunkt erneut angeregt wird, sodass die Rekombination des Exzitons und die zugehörige Photonen-Emission bereits *während* des Pulses stattfindet. Dies ermöglicht es dem Quantenpunkt, ein weiteres Elektron-Loch-Paar einzufangen und ein sukzessives Photon zu emittieren. Die Wahrscheinlichkeit einer erneuten Anregung des Quantenpunktes nimmt mit längeren Anregungspulsen zu, sodass auch das Maximum der Autokorrelation für verschwindende Verzögerungszeit zunimmt.

Wird die Messung in Sättigung durchgeführt, so nehmen die Koinzidenzen zu verschwindender Verzögerungszeit nicht sichtbar zu, siehe Abb. 5.4 (b). Entsprechend der Diskussion in Abschnitt 5.1.3 werden in diesem Regime die Quantenpunkte während des Pumpulses mit

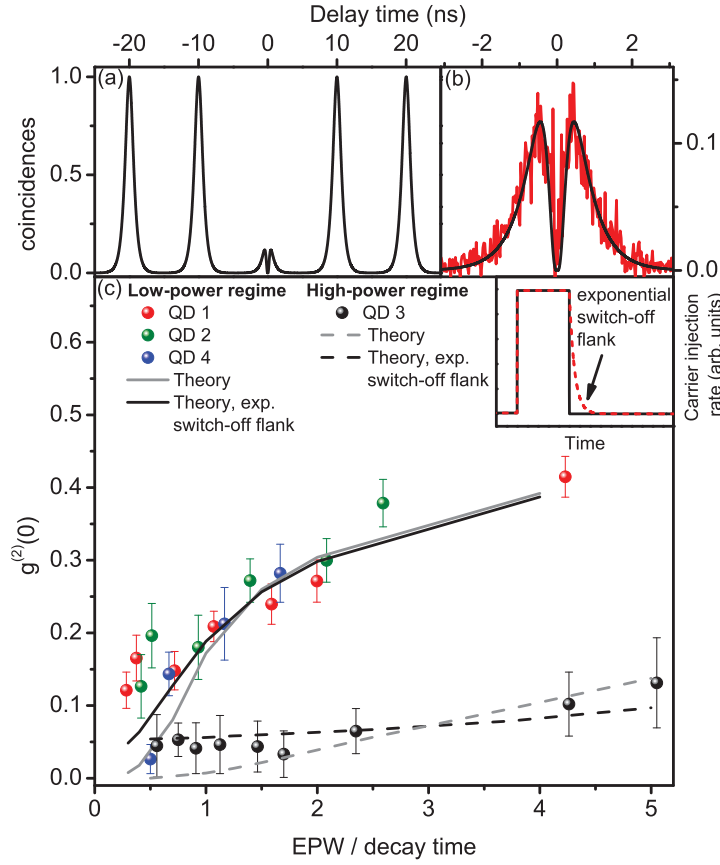


mehr als einem Elektron-Loch-Paar besetzt, was die Exziton-Rekombination zugunsten einer Photonen-Emission höherer Multi-Exziton-Zustände unterdrückt. Die zugehörige Emission findet nun in Anwesenheit zusätzlicher Ladungsträger im Quantenpunkt statt und ist durch die Coulomb-Wechselwirkung energetisch von der Exziton-Resonanz verstimmt. In diesem Fall hängt die Stärke der Verstimmung von der Biexziton-Bindungsenergie ab, die für das InP/GaInP Materialsystem im Bereich von mehreren meV liegt. Photonen, die während des Anregungspulses emittiert werden, tragen daher nicht zur Photonenkorrelation bei, die auf der Exziton-Wellenlänge registriert wird. Lediglich nachdem der Anregungspuls vorüber ist, kann die Photonen-Emission durch Rekombination eines einzelnen Exzitons stattfinden.

Dieses Szenario wird durch die zeitaufgelöste Messung der Emission des Exzitons und Biexzitons bestätigt, wobei das Regime schwacher und starker Anregung verglichen wird. Im Falle schwacher Anregung (Abb. 5.4 (c)) steigt die Emission auf der Exziton-Resonanz während des Anregungspulses mit einem Maximum direkt nach dem Ende des Anregungspulses, gefolgt von dem typischen exponentiellen Zerfall des Exzitons. Im Gegensatz dazu zeigen die Messungen in Sättigung (Abb. 5.4 (d)) eine Emission des Biexzitons während des Anregungspulses, begleitet von einer stark unterdrückten Exziton-Emission. Nach Ende des Pulses folgt auf die zerfallende Emission des Biexzitons ein Anstieg und ein verzögertes Maximum der Exziton-Emission. Diese kaskadierte Emission unter der Bedingung hoher Anregung unterstützt die Ergebnisse des theoretischen Modells aus Abschnitt 5.1.3.

Um die Güte der Einzel-Photonen-Emission zu quantifizieren, verwenden wir das Modell aus Abschnitt 5.1.1 und wählen die Parameter in Übereinstimmung mit den experimentellen Daten: Die gemessene Zerfallszeit der Photonen-Emission definiert die in der Rechnung verwendete spontane Lebensdauer  $\tau_{sp} = 1/\gamma_{23} = 1/\gamma_{14}$  des Elektron-Loch-Paares. In unserem Modell ist die  $p$ - nach  $s$ -Schalen Relaxationszeit  $\tau_{rel} = 1/\gamma_{12} = 1/\gamma_{34}$  als eine effektive Größe zu sehen und fasst die gesamte Kaskade der Ladungsträgerrelaxation zusammen. Der Wert wurde so gewählt, dass er mit der Anstiegszeit der verzögerungsabhängigen Autokorrelationsfunktion  $G^{(2)}(\tau)$  übereinstimmt, siehe Abb. 5.5 (b).

In Abb. 5.5 (c) ist die Güte der Einzel-Photonen-Emission in Abhängigkeit von der Breite des Anregungspulses im Vergleich zu den experimentellen Ergebnissen gezeigt. Diese wurden aus den Messungen der Autokorrelation gewonnen, die teilweise in Abb. 5.4 gezeigt sind. Wir betrachten erneut die zwei zuvor diskutierten Regime: Bei niedriger Anregung (10% der Sättigung) resultiert die Rekombination vom Exziton, während bei starker Anregung in die Sättigung die Exziton-Konfiguration zugunsten der Multi-Exziton-Zustände unterdrückt ist. Erforderlich ist hierbei, dass die Anregungsrate zusammen mit der Pulsbreite verändert wird, sodass der Emittor stets im gleichen Anregungsregime bleibt. Im Experiment wurde sichergestellt, dass die integrierten Spektren der Elektrolumineszenz für alle Kombinationen aus Pulsbreite und Pulsamplitude gleich sind. Mit Änderung der Anregungspulsbreite wurde auch die Amplitude des Anregungspulses in Übereinstimmung mit der experimentellen Situation



**Abbildung 5.5.:** (a) Berechnete Autokorrelationsfunktion. (b) Vergleich zwischen der berechneten (schwarz) und hintergrundkorrigierten Messung (rot) der von der Verzögerungszeit abhängigen Autokorrelationsfunktion  $G^{(2)}(\tau)$ . (c) Hintergrundkorrigiertes Ergebnis für  $g^{(2)}(0)$  für verschiedene Quantenpunkte als Funktion der Breite des Anregungspulses, normiert auf die radiative Zerfallszeit der Quantenpunkte. Die durchgezogenen (gestrichelten) Linien zeigen das berechnete Ergebnis für  $g^{(2)}(0)$  für verschiedenen Quantenpunkte unterhalb (in) Sättigung. Die schwarze Linie zeigt die Resultate für eine Rechnung, die zusätzlich einen exponentiellen Abfall des Anregungspulses beim Ausschalten berücksichtigt, wie in der eingebetteten Figur illustriert ist. Für alle Pulsbreiten wurde die gleiche Zeitkonstante von 100 ps verwendet.

reduziert, sodass die gesamte (Zeit-integrierte) Photonenzahl konstant bleibt. Die verwendeten Werte für die durchgezogene (gestrichelte) Linie in Abb. 5.5 (c) sind  $\tau_{sp} = 500$  ps (200 ps) und  $\tau_{rel} = 100$  ps (67 ps).

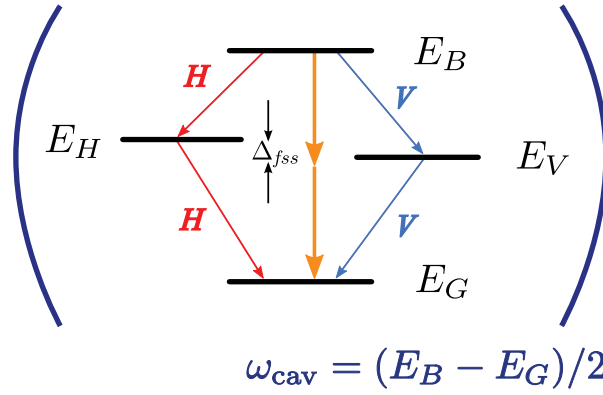
Für die Quantenpunkte 1,2 (Probe 2) und 4 (Probe 1) wurden die Messungen unterhalb der Sättigung durchgeführt. Es zeigt sich in allen Fällen ein klarer Trend zunehmender Multi-Photon-Ereignisse für längere Anregungspulse. Die theoretischen Ergebnisse (durchgezogene graue Linie) reproduzieren den Trend der experimentellen Daten. Kleine Abweichungen existieren für kurze Anregungspulse, die hauptsächlich durch eine nicht perfekt rechteckige Pulsform verursacht werden. Ferner können weitere Ladungsträger auch nach dem Ende des An-

regungspulses durch die Umgebung bereitgestellt werden. Um dies zu modellieren, wurde ein exponentieller Abfall des Anregungspulses, gemäß der Illustration in der eingebetteten Figur in Abb. 5.5 (c), in der Rechnung berücksichtigt. Die experimentellen Untersuchungen legen zudem nahe, dass die Zeitkonstante des Abfalls nahezu unabhängig von der Pulslänge ist. Mit der modifizierten Pulsform ergibt sich eine signifikante Verbesserung der Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie (durchgezogene Linie in Abb. 5.5 (c)). Die Messung an Quantenpunkt 3 (Probe 3) wurde in Sättigung durchgeführt und ergibt einen deutlich langsameren Anstieg von  $g^{(2)}(0)$  mit zunehmender Pulsbreite. Selbst wenn diese fünfmal länger als die spontane Rekombinationszeit ist, zeigt sich ein starkes Antibunching. In der zugehörigen Rechnung für höhere Pumpanregung (gestrichelte Linie) ist der Quantenpunkt während des Pumpimpulses mit mehr als einem Elektron-Loch-Paar besetzt. Ausgehend von der Diskussion in Abschnitt 5.1.3 ist in diesem Regime zu erwarten, dass ein besseres Antibunching auch für Pumpimpulse besteht, die deutlich länger als die Zerfallszeit des Exzitons sind, siehe Abb. 5.2. Auch in diesem Fall führt ein weicherer Abfall der Flanke am Ende des Anregungspulses zu einer besseren Übereinstimmung mit den experimentellen Daten.

### 5.3. Erzeugung polarisationsverschränkter Photonen durch direkte Zwei-Photonen-Emission des Quantenpunkt-Biexzitons

Eine Notwendigkeit für Anwendungen der Quanteninformationsverarbeitung ist die Identifikation effizienter Quellen verschränkter Photonen [71]. Prototypisch in diesem Bereich sind Quellen auf Basis nichtlinearer Medien, wie z.B. Lithium Niobat [304], die vielfältig Anwendung in quantenoptischen Experimenten finden [35]. Über spontane parametrische Fluoreszenz kann ein Photon des anregenden Laserfeldes, unter Erhaltung von Energie und Impuls, in zwei Photonen niedrigerer Energie konvertiert werden. Unter geeigneten Bedingungen ergeben sich polarisationsverschränkte Photonen hoher Reinheit. Charakteristisch für diese Quellen ist eine geringe Konvertierungseffizienz und eine Poisson-Statistik [71, 256]. Von zentraler Bedeutung für technologische Anwendungen ist jedoch die deterministische Emission mit großer Intensität und die Möglichkeit elektrischer Anregung. Vor wenigen Jahren wurde die Realisierung von Quellen verschränkter Photonen durch direkte Zwei-Photonen-Emission über die Bandkante demonstriert [108] und Halbleiter-Quantenpunkte können als deterministische Quantenemitter für einzelne Photonen [179, 271] und stimulierte Emission auf dem Einzel-Photonen-Niveau [270, 294] verwendet werden. Betrachtet man die Emission des Quantenpunkt-Biexzitons, so liegt es nahe, einzelne Quantenpunkte auch als deterministische Quellen verschränkter Photonenpaare zu verwenden [3, 23, 64, 265].

Für einen Quantenpunkt in einer Kavität hoher Güte werden wir zeigen, dass der direkte Zwei-Photonen-Emissionsprozess des Biexzitons verwendet werden kann, um die Polarisationsverschränkung der emittierten Photonen nahezu unabhängig von der Feinstrukturaufspaltung zu machen. Dies erlaubt es, aktuell verfügbare und qualitativ hochwertige Quantenpunkt-Strukturen als deterministische Quellen polarisationsverschränkter Photonenpaare zu verwenden. Hierzu wird das gekoppelte System aus Quantenpunkt und zwei entarteten Kavitätsmoden in der Biexziton-Konfiguration präpariert und relaxiert dann unter Emission von zwei Photonen in den Grundzustand. Im Allgemeinen kann das Biexziton über zwei unterschiedliche konkurrierende Kanäle zerfallen: (i) Die Biexziton-Exziton-Kaskade emittiert nacheinander zwei Photonen mit  $H$ - oder  $V$ -Polarisation (vgl. Ref. [181, 256]), oder (ii) durch simultane Emission von zwei Photonen in einem direkten Zwei-Photonen-Emissionsprozess, siehe Abb. 5.6. Erfolgt der Zerfall über die Biexziton-Exziton Kaskade und ist die Feinstrukturaufspaltung groß genug, um spektral aufgelöst zu werden, so ist es möglich, Informationen über den Weg des Zerfalls zu erhalten, wodurch die Polarisationsverschränkung der emittierten Photonenpaare verloren geht [103, 279]. Die Zwei-Photonen-Emission des Quantenpunkt-Biexzitons in den Grundzustand ist ein resonanter höherer Ordnungsprozess über einen virtuellen Zwischenzustand, der nicht mit den Systemzuständen übereinstimmen muss. Wird die Kavitätsmode auf die halbe Biexziton-Energie gestimmt, kann die Zwei-Photonen-Emission verstärkt werden, da sie nun resonant ist, während die kaskadierte Emission dann verstimmt ist. Für hinrei-



**Abbildung 5.6.:** Skizze des Systems mit Quantenpunkt und Kavität. Die optischen Übergänge in einem einzelnen Quantenpunkt sind an zwei orthogonale Moden einer optischen Kavität hoher Güte mit den Frequenzen  $\omega_{H,V}$  gekoppelt. Die berücksichtigten elektronischen Quantenpunkt Konfigurationen sind der Grundzustand mit der Energie  $E_G$ , die zwei niedrigsten Exziton-Zustände mit einer möglichen Feinstrukturaufspaltung  $\Delta_{fss}$  und Energien  $E_H$  und  $E_V$  sowie das Biexziton mit der Energie  $E_B$ . Die Kavitätsmoden werden nahe der halben Biexziton-Energie  $\omega_H = \omega_V \approx (E_B - E_G)/2$  gestimmt. Die Effekte der reinen Dephasierung auf die elektronischen Kohärenzen und die endliche Lebensdauer der Photonen innerhalb der Kavität werden berücksichtigt.

chend hohe Kavitätsgüten kann der resonante Übergang durch den Purcell-Effekt verstärkt und die Präferenz für die Zwei-Photonen-Emission erhöht werden [208, 284], sodass dies der dominante Prozess bei der Lichtemission des Quantenpunkt-Biexitons ist. Für eine endlich Biexziton-Bindungsenergie ist der kaskadierte Zerfall in Bezug auf die Kavitätsmoden stark nichtresonant und daher unterdrückt.

Die im Folgenden gezeigten Ergebnisse sind in direkter Zusammenarbeit mit Stefan Schumacher, Jens Förstner und Artur Zrenner von der Universität Paderborn sowie Christopher Gies und Paul Gartner entstanden, aus der eine gemeinsame Publikationen hervorgegangen ist [245]. Die Entwicklung der theoretischen Beschreibung ist dabei gemeinsam erfolgt und die numerische Umsetzung wurde in Paderborn durchgeführt.

### 5.3.1. Theoretisches Modell

Wir betrachten einen einzelnen Quantenpunkt, gekoppelt an eine optische Kavität hoher Güte, wie in Abb. 5.6 illustriert ist. Die relevanten elektronischen Quantenpunkt-Konfigurationen sind der Grundzustand  $|G\rangle$ , die energetisch niedrigsten Exzitonen  $|X_H\rangle$ ,  $|X_V\rangle$ , aufgespalten durch die Feinstruktur  $\Delta_{fss}$ , und das Biexziton  $|B\rangle$ . Es werden zwei entartete Kavitätsmoden angenommen, die auf die Hälfte der Biexziton-Energie gestimmt sind.

Der Hamiltonoperator des Quantenpunkt Biexziton-Exziton-Systems in Wechselwirkung mit

dem quantisierten Lichtfeld der Kavität ist durch

$$H = E_G |G\rangle \langle G| + E_B |B\rangle \langle B| + E_H |X_H\rangle \langle X_H| + E_V |X_V\rangle \langle X_V| + \sum_{i=H,V} \left\{ \omega b_i^\dagger b_i - \left[ g(|G\rangle \langle X_i| + |X_i\rangle \langle B|) b_i^\dagger + \text{h.c.} \right] \right\} \quad (5.9)$$

gegeben. Die erste Zeile beschreibt das elektronische System mit den freien Energien des elektronischen Grundzustandes  $E_G$ , der Exzitonen  $E_H$ ,  $E_V$  und des Biexzitons  $E_B$ . Die zweite Zeile repräsentiert den freien Anteil des Photonenfeldes der zwei orthogonalen Kavitätsmoden mit der Frequenz  $\omega_i$  und den Photonen Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren  $b_i^\dagger$  und  $b_i$ . Die Anregung oder Rekombination des elektronischen Systems durch Absorption oder Emission von Photonen findet mit der Kopplungsstärke  $g$  statt. Die Dynamik des gekoppelten Systems aus Biexziton, Exziton und den Photonen ist durch die Bewegungsgleichung des System-Dichteoperators  $\rho$  in Lindblad-Form (2.31) gegeben:

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho = -i[H, \rho] + \mathcal{L}_{\text{cav}}(\rho) + \mathcal{L}_{\text{pure}}(\rho). \quad (5.10)$$

Zusätzlich zum Beitrag des Systems, der durch den Hamiltonoperator explizit beschrieben wird, enthält Gl. (5.9) die endliche Lebensdauer  $1/\kappa$  der Photonen innerhalb der Kavität, vermittelt durch

$$\mathcal{L}_{\text{cav}}(\rho) = \frac{\kappa}{2} \sum_{i=H,V} (2b_i \rho b_i^\dagger - b_i^\dagger b_i \rho - \rho b_i^\dagger b_i) \quad (5.11)$$

sowie eine phänomenologische Dephasierung von Kohärenzen (reine Dephasierung) zwischen den elektronischen Konfigurationen

$$\mathcal{L}_{\text{pure}}(\rho) = -\frac{1}{2} \sum_{\chi, \chi': \chi \neq \chi'} \gamma_{\chi\chi'}^{\text{pure}} |\chi\rangle \langle \chi| \rho |\chi'\rangle \langle \chi'| \quad (5.12)$$

mit  $\chi, \chi' \in \{G; X_H; X_V; B\}$  [279]. Die Systemdynamik folgt durch Lösung der von-Neumann-Lindblad-Gleichung (5.10), wobei wir annehmen, dass das elektronische System zu Beginn in der Biexziton-Konfiguration präpariert ist und beide Kavitätsmoden unbesetzt sind. Realisieren lässt sich diese Situation z.B. über den Prozess der Zwei-Photonen-Absorption [194], sowie mittels gechirpter Pulse [92].

Um die Dynamik der Emission der zwei Photonen des Quantenpunkt-Biexzitons in der Kavität zu untersuchen und die Quanten- sowie statistischen Eigenschaften des emittierten Lichtes zu charakterisieren, berechnen wir die Photonen-Korrelationsfunktion zweiter Ordnung

$$G_{ij,kl}^{(2)}(t, \tau) = \langle b_i^\dagger(t) b_j^\dagger(t + \tau) b_k^\dagger(t + \tau) b_l^\dagger(t) \rangle = \text{Sp} \left\{ \rho b_i^\dagger(t) b_j^\dagger(t + \tau) b_k^\dagger(t + \tau) b_l^\dagger(t) \right\} \quad (5.13)$$

für die Photonen in den zwei orthogonalen und entarteten Kavitätsmoden  $H$  und  $V$ . Unter Verwendung des Quanten-Regressionstheorems kann die volle zwei-zeitige Abhängigkeit von  $G_{ij,kl}^{(2)}(t, \tau)$  ausgewertet werden. Die einzigen nicht-verschwindenden Beiträge sind die diagonalen Elemente  $G_{ii,ii}^{(2)}(t, \tau)$  und die nicht-diagonalen Elemente  $G_{ii,jj}^{(2)}(t, \tau)$  mit  $i \neq j$  [279]. Die diagonalen Beiträge enthalten dabei Informationen über die Statistik des emittierten Lichtes [294], während die nicht-diagonalen Elemente die Polarisationsverschränkung der emittierten Photonen charakterisieren [119]. Durch Mittelung über beide Zeiten von  $G_{ii,jj}^{(2)}(t, \tau)$  erhalten wir die Zwei-Photonen-Dichtematrix

$$\rho_{\text{ph}} := \begin{pmatrix} \rho_{H,H} & 0 & 0 & \rho_{H,V} \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ \rho_{V,H} & 0 & 0 & \rho_{V,V} \end{pmatrix} \quad (5.14)$$

im Unterraum  $\{|H, H\rangle, |H, V\rangle, |V, H\rangle, |V, V\rangle\}$ , die für eine Tomographie des Quantenzustandes des emittierten Photonenpaares benötigt wird [127]. Hierin ist

$$\rho_{i,j} = \mathcal{N} \int_0^\infty dt \int_0^\infty d\tau G_{ii,jj}^{(2)}(t, \tau), \quad (5.15)$$

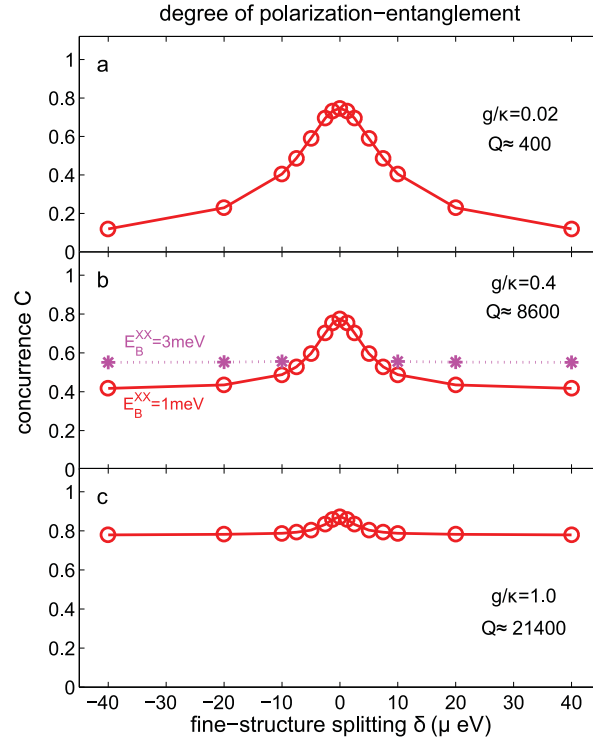
wobei die Konstante  $\mathcal{N}$  über die Normierung der Dichtematrix  $\text{Sp}\{\rho_{\text{ph}}\} = 1$  bestimmt ist.

### 5.3.2. Ergebnisse

Für alle nachfolgenden Rechnungen wurden typische Parameter aktueller Quantenpunkt-Mikrokavitätsysteme verwendet. Für die Biexziton-Bindungsenergie verwenden wir  $E_B^{XX} = 1 \text{ meV}$  und die Kopplungsstärke der elektronischen Übergänge an die Photonenmoden ist  $g = 1/10 \text{ ps}^{-1} \approx 66 \text{ } \mu\text{eV}$ . Die Kavitätsmode ist auf die Hälfte der Konfigurationsenergie des Biexzitons  $\omega_i \approx (E_B - E_G)/2$  gestimmt und eine endliche Feinstrukturaufspaltung  $\delta$  der Exziton-Zustände wird berücksichtigt. Es sei bemerkt, dass sich selbst für die höchste betrachtete Kavitätsgüte zwischen dem Übergang vom Grundzustand zu den Exzitonen sowie zwischen dem Übergang zwischen den Exzitonen und dem Biexziton keine ausgeprägten Rabi-Oszillationen zeigen, da diese in Bezug auf die Kavitätsmode stark nichtresonant sind. Für die Dephasierung der exzitoni-schen Kohärenzen verwenden wir  $\gamma_{\chi\chi'}^{\text{pure}} = \gamma = 1/200 \text{ ps}^{-1} \approx 3 \text{ } \mu\text{eV}$ , was für tiefe Temperaturen ein realistischer Wert für die reine Dephasierung ist [152].

Als direktes Maß für den Grad der Verschränkung des Zwei-Parteien  $HV$ -Systems verwenden wir die Concurrence

$$C(\rho_{\text{ph}}) = \max\{0, \sqrt{\lambda_1} - \sqrt{\lambda_2} - \sqrt{\lambda_3} - \sqrt{\lambda_4}\}, \quad (5.16)$$



**Abbildung 5.7.:** Abhängigkeit der Polarisationsverschränkung von der Feinstrukturaufspaltung  $\delta$  für Kavitäten unterschiedlicher Güte. Gezeigt ist die Concurrence  $C$  ( $\circ$ ), die für das untersuchte System durch  $C = 2|\rho_{H,V}|$  gegeben ist. Die Kavitätsmoden sind auf die Hälfte der Biexziton-Energie  $\omega_i = (E_B - E_G)/2$  gestimmt. Ergebnisse sind für (a)  $\kappa = 5 \text{ ps}^{-1}$ , (b)  $\kappa = 0.25 \text{ ps}^{-1}$  und (c)  $\kappa = 0.1 \text{ ps}^{-1}$  für  $E_B^{XX} = 1 \text{ meV}$  gezeigt. Die Figur (b) enthält zudem die Concurrence für eine höhere Biexziton-Bindungsenergie von  $E_B^{XX} = 3 \text{ meV}$  (\*). Es ist zu sehen, dass mit höherer Kavitätsgüte  $Q$  und größerer Bindungsenergie die Concurrence (und damit auch die Polarisationsverschränkung) in Bezug auf die Feinstrukturaufspaltung weniger sensitiv ist.

die für einen reinen Produktzustand stets null ist und für einen vollständig verschränkten Zustand ihren maximalen Wert eins annimmt [298]. Hierbei sind  $\lambda_i$  die Eigenwerte der Matrix  $\rho_{\text{ph}} A \rho_{\text{ph}}^* A$  in absteigender Reihenfolge und  $A$  ist die antidiagonale Matrix mit den Elementen  $\{-1, 1, 1, -1\}$ , siehe Ref. [298]. Mit Gl. 5.14 kann die Concurrence direkt berechnet werden und man erhält

$$C(\rho_{\text{ph}}) = 2|\rho_{H,V}|. \quad (5.17)$$

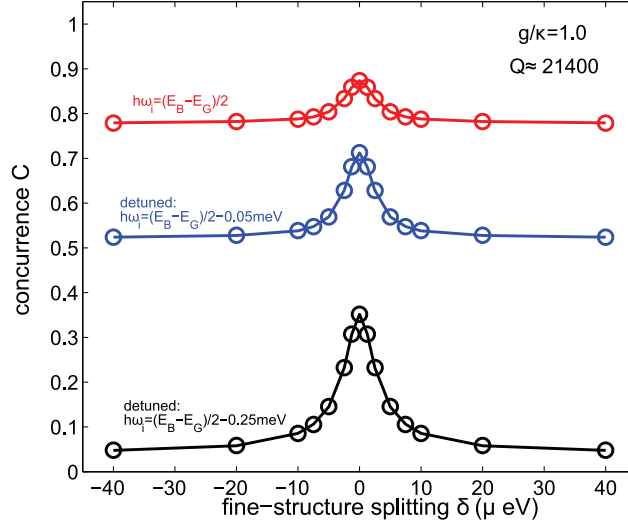
In Abb. 5.7 ist der Grad der Polarisationsverschränkung der emittierten Photonen für Kavitäten unterschiedlicher Güte gezeigt, wobei das  $g/\kappa$  Verhältnis der Emissions- und Verluste von Photonen der Kavität variiert wurde. Die Güte  $Q$  bezieht sich dabei auf die Wellenlänge  $\lambda = 880 \text{ nm}$  des InGaAs-Systems. Zu beachten ist, dass die Kavität, wenn nicht anders



bemerkt, auf die Zwei-Photonen-Resonanz des Biexziton-Überganges gestimmt und daher in Bezug auf den Einzel-Photonen-Übergang des Exzitons und Biexzitons verstimmt ist. Verwendet man eine Kavität niedriger Güte, so kann sowohl die Emission des Überganges vom Biexziton zum Exziton als auch des Übergangs vom Exziton in den Grundzustand effektiv an die spektral verbreiterte Kavitätsmode koppeln. Die Folge ist, dass die zwei kaskadierten Prozesse erster Ordnung stärker als der Prozess zweiter Ordnung der direkten Zwei-Photonen-Emission des Biexzitons sind. In diesem Fall zeigen die Ergebnisse in Abb. 5.7 (a), wie schon in früheren Untersuchungen, dass die Concurrence mit zunehmender Feinstrukturaufspaltung rapide abnimmt. Hierbei erfolgt der Zerfall des Biexzitons zumeist über die Biexziton-Exziton-Kaskade, da der Prozess höherer Ordnung durch direkte Emission von zwei Photonen nicht hinreichend begünstigt ist. Der maximale Wert von  $C = 1$  kann dabei für verschwindende Feinstrukturaufspaltung nicht erreicht werden, da das Modell eine endliche Lebensdauer der Kohärenzen zwischen den verschiedenen exzitonischen Konfigurationen  $|X_H\rangle$  und  $|X_V\rangle$  berücksichtigt (Cross Dephasing, siehe Ref. [215, 279]). Für eine Kavität höherer Güte ist die Abhängigkeit der Concurrence von der Feinstrukturaufspaltung weniger stark ausgeprägt, siehe Abb. 5.7 (b). In diesem Fall reduziert die schmalere Kavitätslinie die Kopplung an die verstimmte Biexziton-Exziton-Kaskade und favorisiert den direkten Zwei-Photonen-Übergang durch die Verstärkung der Emission durch den Purcell-Effekt. Die Relevanz der verschiedenen konkurrierenden Prozesse relativ zueinander kann daher aus der Abhängigkeit der Concurrence von der Feinstrukturaufspaltung abgeleitet werden.

In Abb. 5.7 (c) betrachten wir eine Kavität hoher Güte mit einem für die aktuelle Technologie typischen Q-Faktor. Die Ergebnisse zeigen, dass die Zwei-Photonen-Emission zu einer Concurrence führt, die praktisch unabhängig von der Feinstrukturaufspaltung ist und einen nahezu konstanten Wert von 80% annimmt. Dieses Resultat demonstriert, dass die Polarisationsverschränkung auch in Systemen mit einer endlichen (und sogar großen) Feinstrukturaufspaltung durch einen alternativen Prozess erhalten werden kann, indem die Modenstruktur einer Kavität hoher Güte entsprechend konzipiert wird. In Abb. 5.7 (b) ist zudem das Resultat eines Quantenpunktes mit einer größeren Biexziton-Bindungsenergie von 3 meV (gepunktete Linie) gezeigt. In diesem Fall ist der Einzel-Photonen-Übergang des Exzitons und Biexzitons zusätzlich von der Kavität verstimmt, sodass selbst für eine Kavität mittlerer Güte die Degradierung der Verschränkung mit zunehmender Feinstrukturaufspaltung weiter reduziert wird. Dies unterstreicht das Potential von Systemen mit höherer Biexziton-Bindungsenergie, wie z.B. die in Ref. [77] untersuchten CdSe-Systeme.

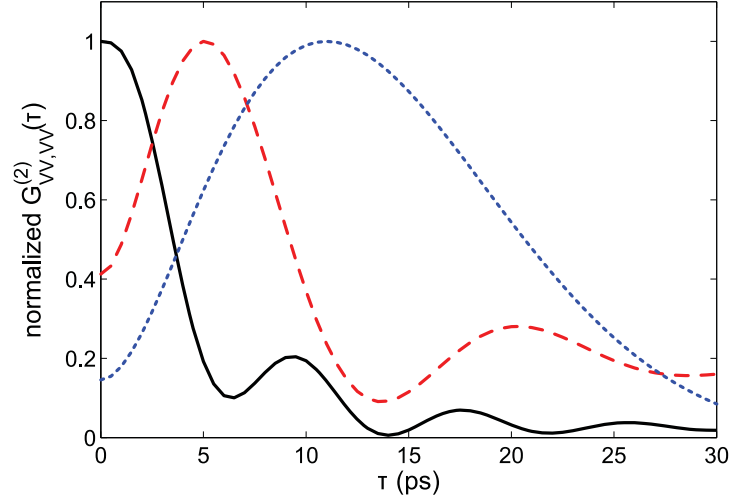
Der Einfluss einer endlichen Verstimmung zwischen der Kavitätsmode und der Zwei-Photonen-Resonanz ist in Abb. 5.8 für den Fall einer Kavität hoher Güte  $Q$  aus Abb. 5.7 (c) gezeigt. Mit zunehmender Verstimmung wird der Zwei-Photonen-Übergang weniger effizient zugunsten des kaskadierten Zerfalls, sodass der erreichbare Verschränkungsgrad für eine endliche Feinstrukturaufspaltung reduziert ist. Wie für eine Kavität hoher Güte zu erwarten ist, erfordert



**Abbildung 5.8.:** Sensitivität auf die Verstimmung von der Zwei-Photonen-Resonanz. Die Concurrence  $C$  ist für eine Kavität hoher Güte und verschiedene Verstimmungen  $\omega_i = (E_B - E_G)/2$  (rot, entspricht Abb. 5.7 (c)),  $\omega_i = (E_B - E_G)/2 - 0.05 \text{ meV}$  (blau) und  $\omega_i = (E_B - E_G)/2 - 0.25 \text{ meV}$  (schwarz) der Kavitätsmode von der Zwei-Photonen-Resonanz gezeigt.

ein hoher Grad an Polarisationsverschränkung eine präzise Abstimmung der schmalen Kavitätslinie auf den Zwei-Photonen-Übergang. Dies ist experimentell jedoch zugänglicher als frühere Ansätze [85, 251, 265] mit dem Ziel, die Feinstrukturaufspaltung des Exzitons direkt zu beeinflussen. Die notwendige Entartung der  $H$ - und  $V$ -polarisierten Moden sowie eine hinreichend hohe Güte sollten mit aktuellen Mikropillar-Resonatoren erreichbar sein. Zudem ist in Abb. 5.8 das Maximum der Concurrence für die Kavität hoher Güte viel schmäler als im Fall einer verlustreichen Kavität (siehe Abb. 5.7 (a)), da für letztere die kurze Lebensdauer der Photonen die Resonanz signifikant verbreitert. Folglich kann eine kleine Feinstrukturaufspaltung nicht aufgelöst werden, sodass die Photonen keinen Aufschluss darüber geben, über welchen Weg der Zerfall in der Kaskade stattgefunden hat. Dies erhält teilweise die Verschränkung auch für kleine von Null verschiedene Aufspaltungen. Im Speziellen hängt die Degradation der Verschränkung mit zunehmender Verstimmung von der Resonanzbedingung des Zwei-Photonen-Prozesses von der Dephasierung exzitonischer Kohärenzen des Quantenpunktes ab. Im Allgemeinen ist die Stärke der Dephasierungsrate von den Quantenpunkt-Parametern, der Temperatur sowie der Anregungsbedingung abhängig. Zwei Modelle zur Beschreibung der Dephasierung wurden in diesem Zusammenhang vorgeschlagen [215, 279] und wir haben überprüft, dass die spezifische Wahl die Resultate nicht qualitativ ändert. Dies zeigt insbesondere, dass der hohe Verschränkungsgrad der über den Zwei-Photonen-Prozess emittierten Photonen vergleichsweise unempfindlich auf die spezifische Wahl der reinen Dephasierung ist.

Die statistischen Eigenschaften der emittierten Photonen sind in Abb. 5.9 für eine Kavität



**Abbildung 5.9.:** Statistik der emittierten Photonen. Die über alle Emissionszeiten  $t$  gemittelte Photonen-Korrelationsfunktion zweiter Ordnung  $G_{VV,VV}^{(2)}(t, \tau)$  ist gezeigt für  $g/\kappa = 0.4$  (Kavität mittlerer Güte) und  $\delta = 0.0$ ; jeder Datensatz ist auf das Maximum normiert. Starkes Photonen-Bunching ist zu sehen, wenn die Kavitätsmoden auf die Hälfte der Biexziton-Energie  $\omega_i = (E_B - E_G)/2$ , (schwarz, durchgezogene Linie) gestimmt ist. Die Photonen zeigen Anti-bunching, wenn die Kavitätsmoden weiter von der Zwei-Photonen-Resonanz verstimmt werden:  $\omega_i = (E_B - E_G)/2 - 0.25 \text{ meV}$  (rot, gestrichelte Linie) und  $\omega_i = (E_B - E_G)/2 - 0.5 \text{ meV}$  (blau, gepunktete Linie).

mittlerer Güte  $g/\kappa = 0.4$  und verschiedene Verstimmungen der Kavitätsresonanz von der halben Biexziton-Energie gezeigt. Für  $\omega_i = (E_B - E_G)/2$  ist die Wahrscheinlichkeit, beide Photonen bei  $t \approx 0$  simultan zu emittieren, stark erhöht (Photon-Bunching), während es für  $\omega_i = (E_B - E_G)/2 - 0.25 \text{ meV}$  und  $\omega_i = (E_B - E_G)/2 - 0.5 \text{ meV}$  wahrscheinlicher ist, beide Photonen mit einer gewissen Zeitverzögerung zu emittieren. Dies ist ein Anzeichen für einen schrittweisen Zerfall über die Biexziton-Exziton-Kaskade. Die spektralen Eigenschaften der emittierten Photonen sind unter ähnlichen Bedingungen im Detail in Ref. [284] diskutiert.



## Kapitel 6

# Bewegungsgleichungsmethode zur Beschreibung von Korrelationseffekten in endlichen Quantenpunkt-Systemen

Halbleiter-Quantenpunkte spielen eine wichtige Rolle als aktives Material, z.B. in Halbleiterlasern und Quantenlichtemittern [27, 52, 112, 214, 223, 269, 270]. Um im Rahmen einer mikroskopischen Beschreibung Korrelationseffekte durch verschiedene Vielteilchenwechselwirkungen zu untersuchen, wurde die Methode der Clusterentwicklung [17, 82, 239] erfolgreich verwendet [11, 75, 89, 139, 146]. In Halbleitern werden Vielteilcheneffekte insbesondere durch die Wechselwirkung der Ladungsträger mit den Photonen und Phononen sowie die Coulomb-Wechselwirkung der Ladungsträger untereinander hervorgerufen. Die Idee der Clusterentwicklungstechnik ist es, Bewegungsgleichungen für Korrelationsfunktionen bis zu einer vorgegebenen Ordnung  $N$  zu formulieren und alle relevanten Erwartungswerte durch diese auszudrücken. Ist der Hilbertraum der Vielteilchenanregungen hinreichend groß, so werden Korrelationen mit höherer Ordnung infolge der Konfigurationsmittelung zunehmend unwichtig, sodass diese vernachlässigt werden können. Ursprünglich wurde die Clusterentwicklung daher auf Systeme mit vielen Freiheitsgraden angewandt, wobei die Anzahl möglicher elektronischer Konfigurationen die größte betrachtete  $N$ -Teilchenkorrelation (typischerweise  $N = 2, 3, 4$ ) bei weitem übersteigt. Dies beinhaltet zum Beispiel die Beschreibung der Photolumineszenz [140], der Resonanzfluoreszenz [139], der Dynamik der Exzitonenbildung in Quantenfilm-Systemen [120], der Quantendynamik in kondensierten Bosegasen [143] und der Spindynamik ferromagnetischer Systeme [134].

In den letzten Jahren wurden Anwendungen auch auf Quantenpunkt-basierte Systeme erweitert und die Clusterentwicklung erfolgreich verwendet, um quantenoptische Phänomene und Vielteilcheneffekte zu studieren, wie z.B. das Photonen-Antibunching und die Kohärenzeigen-

schaften der Lichtemission [45, 89, 226, 280], die kohärente Emission von Phononen in eine akustische Nanokavität [130], den zeitlichen Aufbau von Korrelationen [187] sowie den Einfluss Coulomb-induzierter Ladungsträgerkorrelationen [11, 75, 246]. Zudem wurden Methoden zur Spektroskopie von Quantenzuständen entwickelt [141]. Im Gegensatz zur Situation in Systemen mit einer quasikontinuierlichen Zustandsdichte, wie z.B. Quantenfilmen, führt der Ladungsträgereinschluss in selbstorganisierten Quantenpunkten zu einer kleinen Anzahl lokalisierter Zustände und sowohl in der Theorie als auch im Experiment wurden Quantenpunkte mit wenigen oder sogar einem einzelnen Elektronenzustand betrachtet [18]. Ein Ziel dieses Kapitels ist es daher, die Konsequenzen der beschränkten Systemgröße in Bezug auf die Anwendung der Clusterentwicklung zu diskutieren.

Der Fall des einzelnen Quantenpunktes wird häufig mit Methoden der atomaren Quantenoptik behandelt, wobei der Emitter durch ein System mit wenigen Zuständen repräsentiert ist. Die Beschreibung erfolgt hierbei durch direkte Lösung der von-Neumann-Lindblad-Gleichung für die Dichtematrix des elektronischen Systems und der Kavitätsmode [191]. Dies erfordert jedoch, dass der entsprechende Hilbertraum klein genug ist, und beschränkt die Methode auf einzelne oder wenige Emitter. In Kapitel 3 haben wir ein Halbleitermodell zur Beschreibung des einzelnen Quantenpunktes vorgestellt, wobei die von-Neumann-Dynamik sowohl den Hamiltonoperator der Jaynes-Cummings- als auch den der Coulomb-Wechselwirkung enthält, um das Zusammenspiel verschiedener Multi-Exziton-Konfigurationen und der nicht-perturbativen Licht-Materie-Wechselwirkung zu berücksichtigen. Zudem wurde in Kapitel 2 der Einfluss von Multi-Exziton-Effekten auf die Effizienz der Ladungsträgerstreuung studiert. Bei einer expliziten Berücksichtigung vieler einzelner Emitter oder einer Emission in viele Photonenmoden verhindert jedoch die Größe des Hilbertraumes eine direkte Berechnung der Dichtematrix und man ist auf approximative Vielteilchenmethoden, wie z.B. die der Clusterentwicklung, angewiesen.

In diesem Kapitel stellen wir daher eine Bewegungsgleichungsmethode für die Beschreibung der Lichtemission eines Ensembles aus vielen Halbleiter-Quantenpunkten vor. Hierbei berücksichtigen wir verschiedene elektronische Anregungszustände der Quantenpunkte in Gegenwart der Coulomb-Wechselwirkung sowie deren Kopplung an das quantisierte elektromagnetische Feld. In der Vergangenheit wurde darauf hingewiesen, dass Ladungsträgerkorrelationen durch den endlichen Zustandsraum und die starke Coulomb-Konfigurationswechselwirkung von zentraler Bedeutung sind [100]. Wir adressieren daher die Fragestellung, wie eine Korrelationsentwicklung durchgeführt werden kann, wenn die Quantenpunkte des Ensembles nur wenige oder sogar nur einen einzelnen gebundenen Zustand für Elektronen und Löcher aufweisen. Hierzu reformulieren wir die Clusterentwicklung und kombinieren eine exakte Darstellung der elektronischen Freiheitsgrade der von-Neumann-Methode mit einer approximativen Behandlung der Hierarchie in den photonischen Freiheitsgraden. Zudem verwenden wir eine Lindblad-Beschreibung, um Streu- und Dephasierungsprozesse in den Bewegungsgleichungen

konsistent zu berücksichtigen. Unterschiede zu früheren Methoden werden diskutiert und Ergebnisse für die Emission in den freien Raum gezeigt. Zudem werden wir demonstrieren, wie Ladungsträgerkorrelationen zu Multi-Exziton-Effekten in den Emissionsspektren führen und präsentieren Resultate für die Emission eines einzelnen Quantenpunktes in einer Mikrokavität. In diesem Fall kann die exakte Lösung der von-Neumann-Gleichung dazu verwendet werden, die Praktikabilität der vorgeschlagenen Methode zu demonstrieren.

Die Ergebnisse dieses Kapitels basieren hauptsächlich auf [81].

## 6.1. Vielteilchenbeschreibung eingebetteter Quantenpunkt-Systeme

Quantenpunkte sind eingebettete Systeme und ihre elektronischen Einteilchenzustände sind durch die Coulomb- und Phonon-Wechselwirkung an die Umgebung gekoppelt. Zu betonen ist, dass die Korrelationen zwischen den Quantenpunkt-Ladungsträgern durch die Wechselwirkung innerhalb des Quantenpunktes sowie mit den Photonen (z.B. bei Anwesenheit eines Resonators) dominiert werden. Basierend hierauf behandeln wir die lokalisierten elektronischen Freiheitsgrade explizit und berücksichtigen die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Quantenpunkt-Ladungsträgern und deren Licht-Materie Wechselwirkung vollständig. Die Kopplung der Systemdynamik an die Zustände der Umgebung erfolgt im Rahmen einer Lindblad-Beschreibung.

Die Dynamik des Quantenpunkt-Dichteoperators ist dabei bestimmt durch die von-Neumann-Lindblad-Gleichung

$$\frac{d}{dt} \rho = -i[H_S, \rho] + \sum_X \frac{\gamma_X}{2} [2s_X \rho s_X^\dagger - s_X^\dagger s_X \rho - \rho s_X^\dagger s_X]. \quad (6.1)$$

Die quantenmechanische Zeitentwicklung des Systems ist hierbei durch den Kommutator mit dem Hamiltonoperator

$$H_S = H_e^0 + H_{e-e} + H_{pt}^0 + H_{e-pt} \quad (6.2)$$

repräsentiert. Die Beiträge wechselwirkenden Ladungsträgersystems  $H_e^0 + H_{e-e}$  sowie der Wechselwirkung mit dem quantisierten elektromagnetischen Feld  $H_{e-pt}$  haben wir bereits in Kapitel 2 im Elektron-Loch-Bild formuliert. In diesem Kapitel verwenden wir das Valenzband-Leitungsband-Bild und geben die Beiträge hierfür der Vollständigkeit halber noch einmal an:

$$H_e^0 = \sum_i \varepsilon_i^c c_i^\dagger c_i + \sum_i \varepsilon_i^v v_i^\dagger v_i, \quad (6.3)$$

$$\begin{aligned} H_{e-e} = & \frac{1}{2} \sum_{ijkl} V_{ijkl} c_i^\dagger c_j^\dagger c_k c_l + \frac{1}{2} \sum_{ijkl} V_{ijkl} v_i^\dagger v_j^\dagger v_k v_l + \sum_{ijkl} V_{ijkl} c_i^\dagger v_j^\dagger v_k c_l \\ & + \frac{1}{2} \sum_{ijkl} V_{ijkl} (v_i^\dagger v_k \delta_{jl} + v_j^\dagger v_l \delta_{ik} - v_i^\dagger v_l \delta_{jk} - v_j^\dagger v_k \delta_{il} - 2c_i^\dagger c_l \delta_{jk}), \end{aligned} \quad (6.4)$$

$$H_{\text{e-pt}} = -i \sum_{\xi, i} \left( g_{\xi} b_{\xi} c_i^{\dagger} v_i - g_{\xi}^* b_{\xi}^{\dagger} v_i^{\dagger} c_i \right). \quad (6.5)$$

Zu beachten ist, dass die Beiträge des vollen Valenzbandes bereits in der Bandstruktur enthalten sind.

Inkohärente, dissipative Effekte resultieren aus der System-Reservoir-Wechselwirkung, die auf eine Summe von Lindblad-Operatoren führt, vgl. Abschnitt 2.4. Der Operator  $s_X$  beschreibt hierbei Übergänge zwischen zwei Eigenzuständen des System-Hamiltonoperators, die durch ein fermionisches oder bosonisches Reservoir assistiert werden. Die relevanten Informationen über das Reservoir und seine Wechselwirkung mit dem System sind in den zugehörigen Übergangsraten  $\gamma_X$  entsprechend Gl. (2.35) enthalten.

Betrachtet man die Zeitentwicklung des Operator-Erwartungswertes  $\langle A \rangle = \text{Sp} \{ \rho A \}$ , so kann die Gl. (6.1) in Bewegungsgleichungen von Erwartungswerten überführt werden:

$$\frac{d}{dt} \langle A \rangle = \text{Sp} \left\{ \frac{d}{dt} \rho A \right\} = i \langle [H_S, A] \rangle + \sum_X \frac{\gamma_X}{2} \left( \langle [s_X^{\dagger}, A] s_X \rangle + \langle s_X^{\dagger} [A, s_X] \rangle \right). \quad (6.6)$$

Hierbei haben wir von der zyklischen Vertauschbarkeit der Operatoren unter der Spur Gebrauch gemacht und angenommen, dass der Operator  $A$  nicht explizit zeitabhängig ist. Infolge der Vielteilchenwechselwirkung entsteht im Allgemeinen eine unendliche Hierarchie gekoppelter Gleichungen. Ist der Hilbertraum jedoch beschränkt, so bricht diese Hierarchie auf natürliche Weise ab, wie wir später diskutieren werden.

Im Folgenden geben wir eine schematische Darstellung der Clusterentwicklung an, wobei wir die Systemdynamik durch Bewegungsgleichungen für Korrelationsfunktionen anstelle von Operatorerwartungswerten beschreiben werden, und gehen auf die Konsequenzen der endlichen Systemgröße ein.

### 6.1.1. Korrelationsentwicklung für elektronische Freiheitsgrade

Wir betrachten zunächst das elektronische Subsystem der einzelnen Quantenpunkte und nehmen an, dass dieses bis zu  $N_{\text{max}}^v$  ( $N_{\text{max}}^c$ ) Ladungsträger im Valenzband (Leitungsband) pro Spinrichtung enthält. Dies impliziert formal einen automatischen Abbruch der Hierarchie der Bewegungsgleichungen, wie durch sukzessive Anwendung von  $N_{\text{max}}^v + 1$  bzw.  $N_{\text{max}}^c + 1$  elektronischen Vernichtungsoperatoren auf einen Systemzustand ersichtlich ist. Um die nachfolgende Diskussion zu vereinfachen, nehmen wir eine gleiche Anzahl gebundener Zustände für Elektronen und Löcher an, sodass der höchste von null verschiedene Operatorerwartungswert  $2(N_{\text{max}}^c + N_{\text{max}}^v) \equiv 4N_{\text{max}}$  Ladungsträgeroperatoren pro Spinrichtung enthält.



Eine Korrelationsfunktion der Ordnung  $N$  ist durch

$$\delta\langle N \rangle = \langle N \rangle - \delta\langle N \rangle_F \quad (6.7)$$

definiert, worin  $\delta\langle N \rangle_F$  Produkte aller möglichen Faktorisierungen des Operatorerwartungswertes  $\langle N \rangle$  in Korrelationsfunktionen von der Ordnung kleiner  $N$  repräsentiert. Im Falle fermionischer Operatoren beinhaltet dies einen Vorzeichenwechsel, wenn eine ungerade Anzahl an Permutationen notwendig ist, um Normalordnung herzustellen. Mit der Ordnung  $N$  werden dabei Erwartungswerte bzw. Korrelationsfunktionen mit  $2N$  Ladungsträgeroperatoren bezeichnet. Zum Beispiel sind Besetzungswahrscheinlichkeiten der Einteilchenzustände  $\langle c_i^\dagger c_i \rangle$  und  $\langle v_i^\dagger v_i \rangle$  von erster Ordnung (Singlet) und repräsentieren unkorrelierte Objekte, d.h.

$$\delta\langle 1 \rangle \equiv \langle 1 \rangle, \quad (6.8)$$

während die Korrelationsfunktion  $\delta\langle c_i^\dagger c_j^\dagger c_k c_l \rangle$  von der Ordnung  $N = 2$  (Doublet) ist. Diese beschreibt den Unterschied zwischen dem Zwei-Teilchen-Erwartungswert  $\langle c_i^\dagger c_j^\dagger c_k c_l \rangle$  und dessen Faktorisierung in (unkorrelierte) Ein-Teilchen-Erwartungswerte:

$$\delta\langle c_i^\dagger v_j^\dagger c_k v_l \rangle = \langle c_i^\dagger v_j^\dagger c_k v_l \rangle - \langle c_i^\dagger v_l \rangle \langle v_j^\dagger c_k \rangle + \langle c_i^\dagger c_k \rangle \langle v_j^\dagger v_l \rangle. \quad (6.9)$$

Bei verschwindender Korrelation entspricht dies dem Ergebnis des Wick'schen Theorems [293].

Die durch die Gln. (6.7)–(6.8) definierte Hierarchie bricht durch die Beschränkung in den Operatorerwartungswerten auf  $2N_{\max}$  Ladungsträgeroperatoren ab, was durch die Randbedingung

$$\delta\langle N \rangle = -\delta\langle N \rangle_F \quad \text{für } N > N_{\max} \quad (6.10)$$

repräsentiert ist. Dies stellt die korrekte Behandlung des endlichen Ladungsträgersystems sicher, da für  $N = N_{\max} + 1$  keine Kopplung an höhere Erwartungswerte erfolgt. Auf diese Weise ist für einen endlichen Satz von Basiszuständen die Formulierung von dynamischen Gleichungen für Korrelationsfunktionen äquivalent zur Lösung von Gl. (6.1).

Sind der elektronische Hilbertraum und die zugehörige Anzahl elektronischer Freiheitsgrade groß, so ist die Berücksichtigung aller Korrelationsfunktionen weder möglich noch notwendig. Dies definiert den Anwendungsbereich der Clusterentwicklungsmethode, wobei eine geeignete Näherung auf dem Abbruch der Hierarchie basiert. Hierbei ist die maximale Ordnung, die explizit in der Rechnung berücksichtigt wird, viel kleiner als  $N_{\max}$ . Dies wird realisiert, indem alle Korrelationsfunktionen ab einer Ordnung  $N_{\text{trunc}}$  identisch null gewählt werden [82]:

$$\delta\langle N \rangle = 0 \quad \text{für } N > N_{\text{trunc}}, \quad (6.11)$$

was eine konsistente Beschreibung *aller* relevanten Erwartungswerte durch Korrelationsfunk-

tionen bis zur Ordnung  $N_{\text{trunc}}$  erlaubt.

Für die nachfolgende Diskussion sei betont, dass dieses Vorgehen zwei getrennte Näherungen beinhaltet: Einerseits wird der Einfluss korrelierter Prozesse mit mehr als  $2N_{\text{trunc}}$  Ladungsträgern vernachlässigt, andererseits ergibt sich für  $N > N_{\text{max}}$  ein Widerspruch zwischen Gl. (6.10) und Gl. (6.11), da letztere formal die Randbedingung durch die endliche Systemgröße verletzt. Die Konsequenzen beider Näherungen werden im Folgenden diskutiert.

Für eine approximative Behandlung der Ladungsträgerkorrelationen in großen Systemen hängt die Ordnung, bis zu der  $N$ -Teilchen Korrelationen berechnet werden müssen, (i) von der Stärke der Dephasierungsprozesse und (ii) von den betrachteten Größen ab: Die Wechselwirkung mit den quasi-kontinuierlichen Zuständen, z.B. durch die Coulomb- und Phonon-Wechselwirkung, ist verantwortlich für die Dämpfung von Korrelationseffekten, wobei Korrelationen höherer Ordnung typischerweise stärker dephasiert werden, sodass deren Einfluss auf die Dynamik von Größen niedrigerer Ordnung mit zunehmendem  $N$  abnimmt. Sind jedoch die Korrelationseffekte selbst von Interesse, so müssen die zugehörigen Korrelationsfunktionen berücksichtigt werden. Dabei können Korrelationen der nächst höheren Ordnung relevant sein, selbst wenn der Einfluss auf Größen kleiner Ordnung gering ist. So ist z.B. die Exziton-Bildung durch die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung  $\delta\langle c_i^\dagger v_j^\dagger c_k v_l \rangle$  charakterisiert [120]. Eine Untersuchung dieser Größe erfordert daher die Berücksichtigung von Korrelationen jenseits des Singlet-Levels.

Der Fehler, der durch die Verletzung der Randbedingung (6.10) bedingt ist, hängt dabei ab sowohl (i) von der Systemgröße in Relation zur Ordnung  $N_{\text{trunc}}$  bei der die Hierarchie abgeschnitten wird, als auch (ii) von der Stärke der Dephasierungsprozesse im System. In großen Systemen, wo die mögliche Anzahl an Ladungsträgern die Ordnung  $N_{\text{trunc}}$  um Größenordnungen übersteigt, ist der Effekt durch die Verletzung der Randbedingung bei der höchsten Ordnung vernachlässigbar. Die Situation unterscheidet sich jedoch in Quantenpunkten mit nur wenigen lokalisierten Zuständen: Ist bei einer approximativen Behandlung die Ordnung  $N_{\text{trunc}}$  dicht am intrinsischen Abbruch der Hierarchie  $N_{\text{max}}$ , so ist es wahrscheinlicher, dass der Fehler, der durch die Ersetzung von Gl. (6.10) durch Gl. (6.11) entsteht, sich auf die explizit berücksichtigten Korrelationen auswirkt und signifikant wird. Tatsächlich führt die Beschränkung auf ein System mit wenigen Teilchen zu stärkeren Ladungsträgerkorrelationen höherer Ordnung. In Abschnitt 6.2 werden wir konkret einen Quantenpunkt mit zwei gebundenen Zuständen für Elektronen und Löcher betrachten. Hierbei werden wir zeigen, dass die Methode der Clusterentwicklung tatsächlich nicht für die Beschreibung des elektronischen Subsystems geeignet ist und stattdessen die exakte Beschreibung unter Berücksichtigung von Gl. (6.10) verwendet werden muss.

### 6.1.2. Vielteilchenbeschreibung für gemischte Erwartungswerte

Wir betrachten nun den Fall, dass die Hierarchie von Bewegungsgleichungen nicht nur durch die elektronischen Freiheitsgrade entsteht, sondern auch durch die Wechselwirkung mit einem weiteren Subsystem, das expliziter Bestandteil des System-Hamiltonoperators ist, z.B. durch die Kopplung von Ladungsträgern an die Photonen. Im Folgenden werden wir diskutieren, wie sich die Ordnung von Korrelationsfunktionen mit gemischten Operatoren zu verschiedenen Subsystemen klassifizieren lässt, und wie eine systematische Näherung im Sinne der Clusterentwicklung erfolgen kann.

Als Beispiel betrachten wir die Zeitentwicklung des Vernichtungsoperators eines Ladungsträgers im Leitungsband und eines Photons in Bezug auf den Hamiltonoperator der Licht-Materie-Wechselwirkung

$$\left. \frac{d}{dt} c_i \right|_{H_{e-pt}} = - \sum_{\xi} g_{\xi} b_{\xi} v_i, \quad (6.12)$$

$$\left. \frac{d}{dt} b_{\xi} \right|_{H_{e-pt}} = \sum_i g_{\xi}^* v_i^{\dagger} c_i, \quad (6.13)$$

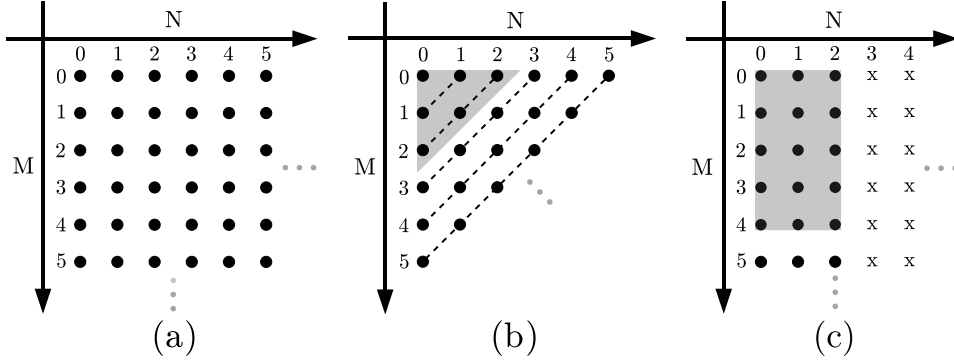
wobei jeweils eine Hierarchie in den Photonen- und in den Ladungsträgeroperatoren entsteht: In der Bewegungsgleichung für die Ladungsträgeroperatoren (6.12) wird ein zusätzlicher Photonoperator hinzugefügt, während in Gl. (6.13) ein Ladungsträgerübergang  $v_i^{\dagger} c_i$  mit der zeitlichen Änderung des Photonoperators assoziiert ist.

Entsprechend führen wir eine Klassifikation gemischter Korrelationsfunktionen  $\delta\langle M, N \rangle$ , die  $M$  Photon- und  $2N$  Ladungsträgeroperatoren enthalten, durch das Tupel  $(M, N)$  ein. Die Gl. (6.7) wird dann durch

$$\delta\langle M, N \rangle = \langle M, N \rangle - \delta\langle M, N \rangle_F \quad (6.14)$$

verallgemeinert, worin die Faktorisierung  $\delta\langle M, N \rangle_F$  alle möglichen Produkte von Korrelationsfunktionen der Ordnung  $(M', N')$  enthält, welche die drei Kriterien  $N' \leq N$ ,  $M' \leq M$ , und  $N' + M' < N + M$  erfüllen. Die Klassifikation ist in Abb. 6.1 (a) illustriert, wobei jeder Satz von Korrelationsfunktionen der Ordnung  $(M, N)$  durch einen Punkt repräsentiert ist. Ziel des vorgeschlagenen Klassifikationsschemas ist es, einerseits eine klare Definition der Korrelationseffekte zu ermöglichen, die bei jeder Ordnung berücksichtigt werden, und zwar solche, die  $N$  Ladungsträger und  $M$  Photonen involvieren. Andererseits erlaubt diese Vorgehensweise, beide Hierarchien auf unterschiedliche Weise zu behandeln, was wir später im Detail diskutieren werden.

Ein hiervon abweichendes Schema wurde in der Vergangenheit verwendet und ist typischerweise mit der Methode der Clusterentwicklung assoziiert [82, 139]. Hierbei werden gemischte



**Abbildung 6.1.:** (a) Illustration der Klassifikation gemischter Korrelationsfunktionen  $\delta\langle N, M \rangle$  entsprechend der Anzahl an Ladungsträger- ( $2N$ ) und Photonoperatoren ( $M$ ) (repräsentiert durch Punkte). (b) Klassifikation und Trunkierung gemäß der konventionellen Methode der Clusterentwicklung. Gemischte Korrelationsfunktionen werden durch eine einzelne Hierarchie der Ordnung  $N + M$  charakterisiert. Der schattierte Bereich umfasst alle Korrelationen bis zum Doublet-Level  $(N + M)_{\text{trunc}} = 2$ . (c) Situation in Systemen, deren Zahl von Elektronen und Löchern auf zwei limitiert ist. Hierdurch schließt die Hierarchie der Ladungsträgeroperatoren auf natürliche Weise bei der Ordnung  $N_{\max} = 2$  und ist im Prinzip nicht durch die Anzahl an Photonoperatoren  $M$  beschränkt. Ein Abbruch muss daher manuell erfolgen. Als ein Beispiel zeigt der schattierte Bereich die notwendigen Korrelationsfunktionen für  $M_{\text{trunc}} = 4$ .

Korrelationsfunktionen  $\delta\langle M, N \rangle$  durch eine einzelne Zahl  $M + N$  klassifiziert, was schematisch in Abb. 6.1 (b) gezeigt ist. Dieses Schema basiert auf der Beobachtung, dass die Kopplung von Ladungsträgern und Photonen über den Jaynes-Cummings-Hamiltonoperator auf eine formale Äquivalenz zwischen dem Vernichtungsoperator eines Photons und dem Erzeugungsoperator eines Elektron-Loch-Paares führt. Korrelationsfunktionen mit  $N + M = 1, 2, 3, 4, \dots$  wurden dabei analog zum rein elektronischen Fall als Singlets, Doublets, Triplets, Quadruplets usw. bezeichnet. Wie für das elektronische System in Abschnitt 6.1.1 beschrieben, erfolgt der Abbruch der Hierarchie bei  $(N + M)_{\text{trunc}}$  und alle Korrelationsfunktionen höherer Ordnung werden zu null approximiert. Analog zu Gl. (6.11) ist dann

$$\delta\langle M, N \rangle = 0 \quad \text{für } N + M > (N + M)_{\text{trunc}} . \quad (6.15)$$

Eine Illustration ist in Abb. 6.1 (b) gegeben, wo der schattierte Bereich den Korrelationen entspricht, die bis zum Doublet-Level berücksichtigt werden. Eine auf diesem Schema basierende Clusterentwicklung wurde für Systeme verwendet, wo ein Abbruch der Hierarchie bei einer Ordnung durchgeführt wurde, die viel kleiner als die implizit angenommene Größe des elektronischen Subsystems<sup>1</sup> ist [120, 139].

Dies bringt uns zu der Frage, wie das Hierarchieproblem in einem System formuliert werden

<sup>1</sup>Das photonische Subsystem ist von Natur aus unbeschränkt.

kann, wenn das elektronische Subsystem durch eine kleine Anzahl an Ladungsträgern beschränkt ist, und führt auf die Definition der FSH<sup>2</sup>-Methode: Wie wir in Abschnitt. 6.1.1 für das elektronische Subsystem in Abwesenheit zusätzlicher Wechselwirkungen diskutiert haben, ergeben sich aus der approximativen Behandlung der Methode der Clusterentwicklung Fehler in der Randbedingung; dies macht unter Umständen eine exakte Behandlung der elektronischen Freiheitsgrade in Analogie zur von-Neumann Gleichung erforderlich. In einem System mit Korrelationsfunktionen für gemischte Operatoren  $\delta\langle M, N \rangle$  kann die Randbedingung (6.10) folgendermaßen verallgemeinert werden:

$$\delta\langle M, N \rangle = -\delta\langle M, N \rangle_F \quad \forall N > N_{\max} . \quad (6.16)$$

Um die elektronischen Korrelationen exakt zu beschreiben, müssen alle Korrelationsfunktionen  $\delta\langle M, N \rangle$  bis zur Ordnung  $N = N_{\max}$  berücksichtigt und Gl. (6.16) muss bis zu dieser Ordnung erfüllt werden. Die Hierarchie in den photonischen Operatoren ist nicht begrenzt, kann jedoch bei der Ordnung  $M_{\text{trunc}}$  trunziert werden. Die Ordnung, bei der diese Näherung durchgeführt wird, hängt von den betrachteten Größen sowie von der Beziehung zwischen Korrelationsaufbau und Dephasierung ab. Eine schematische Darstellung der FSH-Methode ist in Abb. 6.1 (c) gegeben, wo exemplarisch die Anzahl an Elektronen und Löchern auf  $N_{\max} = 2$  beschränkt ist und die Hierarchie bei  $M_{\text{trunc}} = 4$  Photonen abgebrochen wird.

Zusammenfassend kann die Behandlung eines elektronischen Systems in einem endlichen Hilbertraum, ausgehend von der allgemeinen Form der von-Neumann-Gleichung, als ein geschlossener Satz von Bewegungsgleichungen für Korrelationsfunktionen formuliert werden, der die elektronischen Freiheitsgrade vollständig repräsentiert. Eine weitere Hierarchie in den Photonoperatoren verhindert eine exakte Darstellung, da alle elektronischen Operatorerwartungswerte zusätzliche Photonoperatoren enthalten können. Die Hierarchie in Bezug auf die Photonoperatoren erfordert daher eine approximative Behandlung im Sinne der Methode der Clusterentwicklung. In der Praxis ist dies jedoch unkritisch, wie wir in Abschnitt 6.4 demonstrieren werden. Ein Diskussion der Unterschiede zwischen der Clusterentwicklung, die eine zusätzliche Approximation in Bezug auf die elektronischen Freiheitsgrade beinhaltet, und der FSH-Methode wird in den Abschnitten 6.3 und 6.4 gegeben.

## 6.2. Formulierung der Bewegungsgleichungen

Im Folgenden wird die FSH-Methode an einem konkreten Beispiel illustriert, indem dynamische Gleichungen für das Quantenpunkt-Mikrokavitätssystem aus Kapitel 3 entwickelt werden. Hierzu betrachten wir einen Quantenpunkt mit zwei gebundenen Zuständen für Elektronen und Löcher, die wir mit  $s$ - und  $p$ -Schale bezeichnen. Entsprechend der Diskussion in Abschnitt 3.3.1

---

<sup>2</sup>engl.: finite-size hierarchy

werden nur Ladungsträger einer Spinrichtung berücksichtigt, was für selbstorganisierte Quantenpunkte im Regime starker nicht-resonanter Anregung eine sinnvolle Näherung darstellt, da Streuprozesse mit Ladungsträgern in den quasi-kontinuierlichen Zuständen die spektralen Linien verbreitern. Für Anwendungen wie z.B. Spektroskopie bei schwacher Anregung müssen zur Beschreibung des Systems auch Spin-Freiheitsgrade explizit berücksichtigt werden. Auf dem Niveau von zwei-Teilchen-Korrelationen wurde diese Situation z.B. von Hohenester *et al.* studiert [118].

In den Abschnitten 6.2–6.4 werden wir eine weitere Näherung verwenden, wodurch die Hierarchie der Bewegungsgleichungen deutlich vereinfacht wird: Die Gesamtzahl möglicher elektronischer Konfigurationen in dem beschriebenen Quantenpunkt ist 16, da null bis vier Elektronen auf die lokalisierten Einteilchenzustände verteilt werden können. Die FSH-Methode, in der die elektronischen Freiheitsgrade exakt behandelt werden, erfordert es, alle Operatorerwartungswerte bis zu  $2(N_{\max}^c + N_{\max}^v) = 8$  Ladungsträgeroperatoren zu berücksichtigen. Der höchste von null verschiedene Ladungsträger-Operatorerwartungswert ist die Vier-Teilchen-Größe

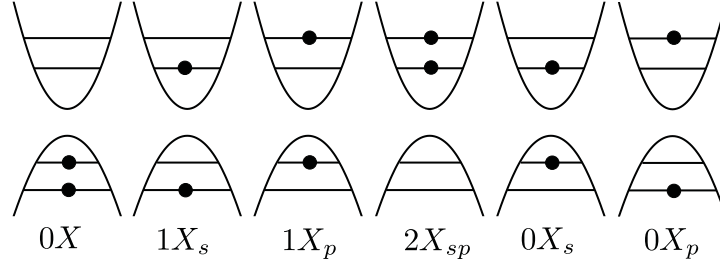
$$\langle c_s^\dagger c_p^\dagger v_s^\dagger v_p^\dagger v_s v_p c_s \rangle . \quad (6.17)$$

Eine Herleitung der Bewegungsgleichungen für die entsprechenden Korrelationsfunktionen ist anspruchsvoll und nur unter Verwendung einer automatisierten Erzeugung der Gleichungen empfohlen. Für diese Aufgabe wurde daher in Zusammenarbeit mit der Gruppe von Prof. Jan Wiersig in Magdeburg ein separates Programm in FORM [286] entwickelt, das dies effizient ermöglicht. Zur Vereinfachung beschränken wir die Anzahl der möglichen Konfigurationen durch die folgenden Annahmen:

1. Ein effektiver paarweiser Einfang von Ladungsträgern wird angenommen, wobei die Einstreueung eines Elektrons in die Quantenpunkt  $p$ -Schale stets von dem Einfang eines Loches begleitet ist. Entsprechend wird im  $cv$ -Bild ein im  $p$ -Zustand des Valenzbandes befindlicher Ladungsträger in den Leitungsband  $p$ -Zustand angeregt.
2. Nur Intraband-Streuprozesse, welche die Ladungsträgerzahl innerhalb des Quantenpunktes erhalten, werden berücksichtigt.

Da die optische Rekombination ebenfalls Teilchenzahl-erhaltend ist, können sich unter dieser Annahme lediglich die in Abb. 6.2 gezeigten Konfigurationen bilden, wobei alle genau zwei Ladungsträger beinhalten. Daher sind die größten Operatorerwartungswerte, die für dieses System mit der Randbedingung  $N_{\max}^c = N_{\max}^v = 2$  ausgewertet werden müssen, solche mit bis zu vier Ladungsträgeroperatoren, zuzüglich weiterer Photonoperatoren. Im Zusammenhang mit der Biexziton-Rekombination wird ein Beispiel zu Beginn von Abschnitt 6.3 diskutiert werden.

Mehrere Streuprozesse werden gemäß Abschnitt 2.4 über Lindblad-Terme berücksichtigt: der



**Abbildung 6.2.:** Mögliche Konfigurationen für einen Quantenpunkt mit vier Zuständen und insgesamt zwei Elektronen im Valenz- und Leitungsband. Die Darstellung ist im Valenzband-Leitungsband-Bild gegeben.

diskutierte paarweise Einfang von Ladungsträgern aus dem Kontinuum in die lokalisierten  $p$ -Zustände mit einer Rate  $P$  sowie Ladungsträgerstreuung im Leitungsband ( $p$  nach  $s$ ) und Valenzband ( $s$  nach  $p$ ) mit den Raten  $\gamma_{sp}^{cc}$  und  $\gamma_{ps}^{vv}$ . Die Raten  $\gamma_{ps}^{cc}$  und  $\gamma_{sp}^{vv}$  entsprechen dabei dem entgegengesetzten Prozess.

Der nachfolgende Abschnitt, in dem die FSH-Hierarchie hergeleitet wird, ist zweigeteilt: Zunächst behandeln wir die Dynamik durch die Beiträge des Hamiltonoperators und verwenden exemplarisch die Licht-Materie-Wechselwirkung. Anschließend werden die Beiträge der System-Bad-Wechselwirkung diskutiert. Ein Schwerpunkt wird auf den Unterschied zwischen der FSH-Methode und der Clusterentwicklung gelegt und Abweichungen in den Bewegungsgleichungen werden aufgezeigt.

### 6.2.1. Hamilton-Dynamik

Die Ladungsträgerbesetzung sowie die mittlere Photonenzahl in der Kavität sind Observablen von niedrigster Ordnung und koppeln über die Heisenbergsche Bewegungsgleichung an Operatorerwartungswerte höherer Ordnung. Die entstehende Hierarchie ist in den Ladungsträger-Freiheitsgraden beschränkt, während die photonische Hierarchie bei  $M_{\text{trunc}} = 2$  trunziert wird, siehe Abschnitt 6.1.2.

Die Beiträge der Licht-Materie-Wechselwirkung  $H_{\text{e-pt}}$  zur Heisenbergschen Bewegungsgleichung für die Ladungsträgerbesetzung im Leitungsband  $f_i^c = \langle c_i^\dagger c_i \rangle$  sind durch

$$\left. \frac{d}{dt} f_i^c \right|_{H_{\text{e-pt}}} = -2 \operatorname{Re} \sum_{\xi} g_{\xi}^* \Pi_{\xi,i} \quad (6.18)$$

gegeben. Der Realteil der Photon-assistierten Polarisation  $\Pi_{\xi,i} = \delta \langle b_{\xi}^{\dagger} v_i^{\dagger} c_i \rangle$  beschreibt die Übergangsamplitude zwischen den Quantenpunktzuständen und ist proportional zur Kopplungsstärke  $g_{\xi}$  der Licht-Materie-Wechselwirkung. Um Gl. (6.18) lösen zu können, werden



zusätzlich die dynamischen Gleichungen für die Photon-assistierte Polarisation

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \Pi_{\xi,i} \Big|_{H_{e-pt}} = & g_{\xi} f_i^c (1 - f_i^v) + g_{\xi} \sum_{\alpha} C_{\alpha ii \alpha}^x \\ & + g_{\xi} \mathcal{N}_{\xi}^c (f_i^c - f_i^v) + g_{\xi} \mathcal{N}_{\xi,i}^c - g_{\xi} \mathcal{N}_{\xi,i}^v \end{aligned} \quad (6.19)$$

benötigt, die eine Ordnung höher in der Hierarchie in Bezug auf die Photonenoperatoren sind. Die Rekombination einer Quantenpunkt-Anregung, beschrieben durch  $\Pi_{\xi,i}$ , erfordert nicht nur die Anwesenheit eines Ladungsträgers im Leitungsband, sondern auch die Nichtbesetzung eines Valenzbandzustandes, was auf eine Emissionsrate proportional zu  $\langle c_i^{\dagger} v_i v_j^{\dagger} c_j \rangle$  führt (vgl. Ref. [139]). In Gl. (6.19) geht die Faktorisierung dieser Erwartungswerte durch die Beiträge zweier unkorrelierter Ladungsträger im Leitungs- und Valenzband  $\propto f_i^c (1 - f_i^v)$  und Interband-Ladungsträgerkorrelationen  $\propto C_{ijji}^x := \delta \langle c_i^{\dagger} v_j^{\dagger} c_j v_i \rangle$  entsprechend Gl. (6.7) ein. Daher kann die erste Zeile in Gl. (6.19) als Quellterm der spontanen Emission identifiziert werden, der in diesem Formalismus als Folge der Quantisierung des Lichtfeldes automatisch enthalten ist. Die zweite Zeile in Gl. (6.19) entsteht aus den gemischten Erwartungswerten  $\langle b_{\xi}^{\dagger} b_{\xi} c_i^{\dagger} c_i \rangle$  und  $\langle b_{\xi}^{\dagger} b_{\xi} v_i^{\dagger} v_i \rangle$ . Deren unkorrelierter Beitrag ist proportional zur Photonenzahl  $\mathcal{N}_{\xi} := \langle b_{\xi}^{\dagger} b_{\xi} \rangle$  und kann der stimulierten Emission und Absorption zugeordnet werden, während  $\mathcal{N}_{\xi,i}^c := \delta \langle b_{\xi}^{\dagger} b_{\xi} c_i^{\dagger} c_i \rangle$  und  $\mathcal{N}_{\xi,i}^v := \delta \langle b_{\xi}^{\dagger} b_{\xi} v_i^{\dagger} v_i \rangle$  Korrelationen zwischen Ladungsträgern und Photonen repräsentieren.

Im Folgenden nehmen wir eine inkohärente Besetzung von Ladungsträgern an, die entweder elektrisch injiziert oder optisch in den delokalisierten Zuständen erzeugt wird, wobei schnelle Relaxationsprozesse zu einer Dephasierung kohärenter Polarisationen führen. Ohne die Anwesenheit eines kohärenten externen Feldes verschwinden der Erwartungswert der Feldoperatoren  $\langle b_{\xi}^{\dagger} \rangle$  sowie die kohärenten Polarisationen  $\langle v_i^{\dagger} c_j \rangle$ , siehe Ref. [139]. Zudem werden wir keine Korrelationen zwischen verschiedenen optischen Moden betrachten, was in Gegenwart eines Mikroresonators gerechtfertigt ist, wo eine einzelne Kavitätsmode über alle anderen verstimmt Moden oder Verlustmoden<sup>3</sup> dominiert.

Signifikante Beiträge von Korrelationen höherer Ordnung in Bezug auf die Photonen können erwartet werden, wenn z.B. einer der betrachteten Quantenpunktübergänge resonant mit der Kavitätsmode ist und hierdurch ein Feedback der emittierten Photonen ermöglicht. Jedoch für die Emission eines Quantenpunktes in das Modenkontinuum des freien Raumes sind Korrekturen zur dynamischen Entwicklung der Photon-assistierten Polarisation durch *Photonenkorrelationen* höherer Ordnung vernachlässigbar, da ein Photon direkt nach der Emission in das Kontinuum dissipiert. Dennoch können *Ladungsträgerkorrelationen* weiterhin eine wichtige Rolle spielen, wie in Ref. [11] gezeigt wurde. Insbesondere im Regime weniger Emittoren diktieren diese Korrelationen stark die Ladungsträger-Photon-Dynamik und sind unverzichtbar für die Beschreibung der Lumineszenz eines einzelnen Quantenpunktes.

<sup>3</sup>engl.: leaky modes



		$N$		
		0	1	2
$M$	0	/	$\langle c^\dagger c \rangle, \langle v^\dagger v \rangle$	$\delta \langle c^\dagger v^\dagger c v \rangle, \delta \langle c^\dagger c^\dagger c c \rangle, \delta \langle v^\dagger v^\dagger v v \rangle$
	1	/	$\delta \langle b^\dagger v^\dagger c \rangle$	$\delta \langle b^\dagger c^\dagger v^\dagger c c \rangle, \delta \langle b^\dagger v^\dagger v^\dagger c v \rangle$
	2	$\langle b^\dagger b \rangle$	$\delta \langle b^\dagger b c^\dagger c \rangle, \delta \langle b^\dagger b v^\dagger v \rangle$	$\delta \langle b^\dagger b c^\dagger v^\dagger c v \rangle, \delta \langle b^\dagger b v^\dagger v^\dagger v v \rangle, \delta \langle b^\dagger b c^\dagger c^\dagger c c \rangle, \delta \langle b^\dagger b^\dagger v^\dagger v^\dagger c c \rangle$
	$\vdots$	$\vdots$	$\vdots$	$\vdots$

**Tabelle 6.1.:** Übersicht der relevanten Korrelationsfunktionen für das in Abschnitt 6.2 diskutierte Halbleiter-Lumineszenz-Modell.

Der Beitrag der Licht-Materie-Wechselwirkung des Hamiltonoperators (6.3) führt auf die Zeitentwicklung

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} C_{ijkl}^x \Big|_{H_{\text{e-pt}}} &= - \sum_{\xi} \delta_{il} \delta_{jk} [g_{\xi}^* (f_i^v - f_i^c) \Pi_{\xi,j} + g_{\xi} (f_j^v - f_j^c) \Pi_{\xi,i}^*] \\ &\quad + \sum_{\xi} [g_{\xi} \Pi_{\xi,lkji}^{c,*} + g_{\xi}^* \Pi_{\xi,ijkl}^c - g_{\xi} \Pi_{\xi,lkji}^{v,*} - g_{\xi}^* \Pi_{\xi,ijkl}^v]. \end{aligned} \quad (6.20)$$

Die erste Zeile enthält die faktorisierten Beiträge der Erwartungswerte  $\langle b_{\xi}^{\dagger} c_i^{\dagger} v_j^{\dagger} c_k c_l \rangle$  und  $\langle b_{\xi}^{\dagger} v_i^{\dagger} v_j^{\dagger} c_k v_l \rangle$ . Die verbleibenden Korrelationsbeiträge  $\Pi_{\xi,ijkl}^c := \delta \langle b_{\xi}^{\dagger} c_i^{\dagger} v_j^{\dagger} c_k c_l \rangle$  und  $\Pi_{\xi,ijkl}^v := \delta \langle b_{\xi}^{\dagger} v_i^{\dagger} v_j^{\dagger} c_k v_l \rangle$  sind Bestandteil der zweiten Zeile. Speziell beschreibt  $\Pi_{\xi,ijij}^{c/v} = -\Pi_{\xi,ijji}^{c/v}$  korrelierte Prozesse einer Photon-assistierten Polarisierung in Anwesenheit weiterer Ladungsträger im Leitungs- oder Valenzband. Auf gleiche Weise können Gleichungen für die Intraband-Ladungsträgerkorrelationen  $C_{ijkl}^c := \delta \langle c_i^{\dagger} c_j^{\dagger} c_k c_l \rangle$  und  $C_{ijkl}^v := \delta \langle v_i^{\dagger} v_j^{\dagger} v_k v_l \rangle$  erhalten werden, siehe Anhang D.

In der Zeitentwicklung der gemischten Korrelationsfunktionen  $\Pi_{\xi,ijkl}^c$  und  $\Pi_{\xi,ijkl}^v$  wird der in Abschnitt 6.1.2 diskutierte natürliche Abbruch der Hierarchie ersichtlich. Zum Verständnis geben wir eine schematische Erklärung mit der in Abschnitt 6.1 eingeführten Notation. Die Größen  $\Pi_{\xi,ijkl}^c$  und  $\Pi_{\xi,ijkl}^v$  sind Korrelationsfunktionen  $\delta \langle M, N \rangle$  der Ordnung  $M = 1$  und  $N = 2$ . Die Zeitentwicklung in Bezug auf den Beitrag der Licht-Materie-Wechselwirkung zum Hamiltonoperator ist durch

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \delta \langle 1, 2 \rangle \Big|_{H_{\text{e-pt}}} &= \langle 0, 3 \rangle + \langle 2, 2 \rangle \\ &\quad - \frac{d}{dt} (\delta \langle 1, 1 \rangle) \langle 0, 1 \rangle - \delta \langle 1, 1 \rangle \frac{d}{dt} \langle 0, 1 \rangle \end{aligned} \quad (6.21)$$

gegeben und jeder Term dieser schematischen Darstellung kann mehreren Beiträgen entsprechen. Die zeitliche Ableitung der Faktorisierung ist in der letzten Zeile subtrahiert worden, um

eine Korrelationsfunktion zu erhalten, siehe Gl. (6.7). Durch die Beschränkung auf zwei Ladungsträger in den Quantenpunktzuständen entfällt der erste Term, da er Prozesse beschreibt, in denen drei Ladungsträger erzeugt oder vernichtet werden. Um diese Eigenschaft des Systems sicherzustellen muss die zusätzliche Bedingung

$$\delta\langle 0, 3 \rangle = -\delta\langle 0, 2 \rangle \langle 0, 1 \rangle - \langle 0, 1 \rangle \langle 0, 1 \rangle \langle 0, 1 \rangle \quad (6.22)$$

erfüllt werden, was bedeutet, dass in der Tat *alle* Korrelationsfunktionen bis zu  $N_{\max} = 2$  berücksichtigt werden müssen. Dies ist der Ausdruck dessen, was wir zuvor als eine Erhöhung der Korrelationen durch eine Beschränkung der Systemgröße bezeichnet haben. Die verbleibende Hierarchie in den Photonoperatoren ist auf dem gewünschten Level  $M_{\max}$  trunkiert und alle Terme, die in der Clusterentwicklung bis zu  $M_{\max} = 2$  enthalten sind, werden in Tabelle 6.1 zusammengefasst.

Wendet man die Clusterentwicklung auf den verbleibenden zweiten Term in Gl. (6.21) an, so erhält man

$$\begin{aligned} \left. \frac{d}{dt} \delta\langle 1, 2 \rangle \right|_{H_{\text{e-pt}}} &= +\delta\langle 2, 2 \rangle + \delta\langle 2, 0 \rangle \delta\langle 0, 2 \rangle + \delta\langle 1, 1 \rangle \delta\langle 1, 1 \rangle + \delta\langle 2, 1 \rangle \langle 0, 1 \rangle \\ &\quad - \frac{d}{dt} (\delta\langle 1, 1 \rangle) \langle 0, 1 \rangle - \delta\langle 1, 1 \rangle \frac{d}{dt} \langle 0, 1 \rangle . \end{aligned} \quad (6.23)$$

Eine explizite Rechnung, die hinter der schematischen Darstellung steht, ergibt die folgende Bewegungsgleichung

$$\begin{aligned} \left. \frac{d}{dt} \Pi_{\xi,ijkl}^c \right|_{H_{\text{e-pt}}} &= \left[ g_{\xi} f_i^c f_j^c f_j^v - g_{\xi}^* \Pi_{\xi,i} \Pi_{\xi,j} \right. \\ &\quad \left. + g_{\xi} \mathcal{N}_{\xi,i}^c (f_j^c - f_j^v) - g_{\xi} f_i^c \sum_{\alpha} C_{\alpha jj \alpha}^x \right] (\delta_{il} \delta_{jk} - \delta_{ik} \delta_{jl}) \\ &\quad + g_{\xi} (1 + \mathcal{N}_{\xi}) C_{ijkl}^c + g_{\xi} \mathcal{N}_{\xi} (C_{ijlk}^x - C_{ijkl}^x) \\ &\quad + g_{\xi} \delta \langle b_{\xi}^{\dagger} b_{\xi} c_i^{\dagger} c_j^{\dagger} c_k c_l \rangle + g_{\xi} \delta \langle b_{\xi}^{\dagger} b_{\xi} c_i^{\dagger} v_j^{\dagger} c_l v_k \rangle \\ &\quad - g_{\xi} \delta \langle b_{\xi}^{\dagger} b_{\xi} c_i^{\dagger} v_j^{\dagger} c_k v_l \rangle - g_{\xi}^* \delta \langle b_{\xi}^{\dagger} b_{\xi}^{\dagger} v_i^{\dagger} v_j^{\dagger} c_k c_l \rangle . \end{aligned} \quad (6.24)$$

Analog können Gleichungen für  $\Pi_{\xi,ijkl}^v$  erhalten werden.

Es ist bemerkenswert, dass die Beschränkung auf eine bestimmte Systemgröße die Struktur der zugrunde liegenden Bewegungsgleichungen fundamental ändert. So enthält Gl. (6.24) in der ersten Zeile ein für die Clusterentwicklung untypisches Produkt aus drei Besetzungsfaktoren, die durch Subtraktion der Faktorisierung in der letzten Zeile von Gl. (6.23) entstehen (Gl. (6.19) enthält einen Beitrag  $\frac{d}{dt} \delta\langle 1, 1 \rangle \propto \langle 0, 1 \rangle \langle 0, 1 \rangle$ ). In einem System ohne die Beschränkung auf zwei Ladungsträger würden diese Terme durch die Faktorisierung der Dreiteilchen-Erwartungswerte  $\langle 0, 3 \rangle$  kompensiert werden, was Ausdruck des Linked-Cluster-Theorems [82] ist. Abschließend kann die Korrelationsfunktion  $\delta \langle b_{\xi}^{\dagger} b_{\xi}^{\dagger} v_i^{\dagger} v_j^{\dagger} c_k c_l \rangle$  in der letzten Zeile

von Gl. (6.24) der spontanen Zwei-Photonen-Emission zugeordnet werden, die für einen einzelnen Quantenpunkt in einer Nanokavität hoher Güte in Form eines photonischen Kristalls nachgewiesen wurde [208].

Die Gln. (6.18)–(6.24) zusammen mit denen in Anhang D bilden einen geschlossenen Satz gekoppelter nichtlinearer Gleichungen für die Hamilton-Dynamik. Bevor wir uns den numerischen Ergebnissen zuwenden, werden wir noch die Beiträge durch Streuung und Dephasierung zu diesen Gleichungen diskutieren.

### 6.2.2. System-Reservoir-Wechselwirkung

In Abschnitt 2.4 haben wir Streuungs- und Dephasierungsprozesse über eine System-Reservoir-Wechselwirkung beschrieben. In den Bewegungsgleichungen können diese Beiträge entsprechend Gl. (6.6) über Lindblad-Terme berücksichtigt werden.

Eine mikroskopische Beschreibung dieser Prozesse ist im Rahmen der Bewegungsgleichungsmethode möglich und kann in einer gemischten Basis aus lokalisierten und delokalisierten Zuständen formuliert werden. In Ref. [45, 120] wurde die Ladungsträger-Phonon-Wechselwirkung für einen Quantenfilm explizit im Hamiltonoperator berücksichtigt. Allerdings geht diese Vorgehensweise mit einer zusätzlichen Hierarchie in Bezug auf die Phonon-Operatoren einher, was die Klassifikation gemischter Korrelationsfunktionen erschwert, da diese neben den Ladungsträger- und Photon-Operatoren auch Phonon-Operatoren enthalten können. Berücksichtigt man ferner die delokalisierten Zustände des Quasi-Kontinuums der zweidimensionalen Benetzungsschicht auf dem gleichen Niveau wie die Gleichungen in Abschnitt 6.2.1, so würde dies gekoppelte nichtlineare Integro-Differentialgleichungen für Korrelationsfunktionen beinhalten, die etliche Indizes von Kontinuumszuständen tragen. Eine numerische Lösung ist hierfür aktuell nur in bestimmten Grenzfällen möglich. Aus diesem Grund werden wir Streu- und Dephasierungsprozesse im Rahmen der Clusterentwicklungsmethode über den Lindblad-Formalismus beschreiben. Der Vorteil besteht darin, dass die delokalisierten Zustände in Bezug auf die Systemdynamik nur in die Berechnung der Lindblad-Raten eingehen, wobei diese entweder phänomenologisch oder durch eine quantenkinetische Rechnung erhalten werden können, vgl. Abschnitt 2.4. Durch Auswertung der zweiten Zeile von Gl. (6.6) können nun die Beiträge der Streuung, Pumpanregung und Kavitätsverluste zur Bewegungsgleichung berechnet werden.

**Intraband-Streuprozesse** Für Ladungsträgerstreuung zwischen den gebundenen Quantenzuständen  $\mu$  und  $\nu$  im Leitungsband erhalten wir

$$\frac{d}{dt} \langle A \rangle|_{\text{scatt}} = \sum_{\substack{\mu \neq \nu \\ \mu, \nu \in \{s, p\}}} \frac{\gamma_{\mu\nu}^{cc}}{2} \left[ \langle [c_\nu^\dagger c_\mu, A] c_\mu^\dagger c_\nu \rangle + \langle c_\nu^\dagger c_\mu [A, c_\mu^\dagger c_\nu] \rangle \right], \quad (6.25)$$

worin wir  $s_X$  durch  $c_\mu^\dagger c_\nu$  und die Lindblad-Raten  $\gamma_X$  durch die Intraband-Streuratens  $\gamma_{\mu\nu}^{cc}$  identifiziert haben. Die resultierende Änderung der Einteilchenbesetzung  $f_\nu^c = \langle c_\nu^\dagger c_\nu \rangle$  durch die Intraband-Streuung folgt

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} f_\nu^c|_{\text{scatt}} &= S_\nu^{\text{in}}(1 - f_\nu^c) - S_\nu^{\text{out}} f_\nu^c \\ &+ \sum_{\mu \neq \nu} (\gamma_{\nu\mu}^{cc} - \gamma_{\mu\nu}^{cc}) C_{\nu\mu\nu\mu}^c \end{aligned} \quad (6.26)$$

und nimmt die Form des Boltzmannschen Stoßtermes (erste Zeile) an und enthält Ein- und Ausstreubeiträge mit den entsprechenden Raten  $S_\nu^{\text{in}} = \sum_{\mu \neq \nu} \gamma_{\nu\mu}^{cc} f_\mu^c$  und  $S_\nu^{\text{out}} = \sum_{\mu \neq \nu} \gamma_{\mu\nu}^{cc} (1 - f_\mu^c)$  sowie Korrelationsbeiträge jenseits der Einteilchenbeschreibung (zweite Zeile). Es ist offensichtlich, dass die Gesamtladungsträgerzahl erhalten ist, d.h.  $\frac{d}{dt} \sum_\nu f_\nu^c = 0$ , was die Spur-Erhaltung durch die Lindblad-Terme reflektiert.

Vernachlässigt man die Ladungsträgerkorrelationen  $C_{\nu\mu\nu\mu}^c$  in Gl. (6.26), so werden nur die Besetzungen  $f_\nu^c$  der Einteilchenzustände berücksichtigt, die durch Mittelung über alle Konfigurationen folgen, welche einen Ladungsträger im Zustand  $\nu$  enthalten. Hierdurch kann die Einteilchenbeschreibung nicht zwischen verschiedenen Konfigurationen mit einer Besetzung des Zustandes  $\nu$  unterscheiden und sie trägt dem Pauli-Prinzip nur im gemittelten Sinne Rechnung. Betrachtet wird das Beispiel der Ladungsträgerrelaxation im Leitungsband: Die Konfigurationen  $|1X_p\rangle$ ,  $|0X_p\rangle$  und  $|2X_{sp}\rangle$  sind gültige Anfangskonfigurationen für einen Streuprozess eines Elektrons von  $p$  nach  $s$ , obgleich das Pauli-Prinzip den Ladungsträgerübergang für letzten verbietet, da die  $s$ -Schale bereits einen Ladungsträger enthält. In diesem Fall erlaubt die Einteilchenbeschreibung eine Relaxation und damit verbundene Dephasierung, während dieser Prozess in einer exakten Beschreibung auf Basis der Konfigurationen verboten ist. Insbesondere bei schwacher Anregung und tiefen Temperaturen sollten die Ladungsträgerkorrelationen in Gl. (6.26) berücksichtigt werden, siehe Abschnitt 2.4.

Die Berücksichtigung der Streuprozesse führt zu einer natürlichen Dephasierung der Korrelationsfunktionen. Die Streubeiträge der Bewegungsgleichungen für die Photon-assistierte Polarisation

$$\frac{d}{dt} \Pi_{\xi,\nu}|_{\text{scatt}} = -\Gamma_\nu \Pi_{\xi,\nu} - \frac{1}{2} \sum_{\mu \neq \nu} (\gamma_{\nu\mu}^{cc} - \gamma_{\mu\nu}^{cc}) \Pi_{\xi,\mu\nu\nu\mu}^c$$

enthält eine besetzungsabhängige Dephasierungsrate  $\Gamma_\nu = \frac{1}{2}(S_\nu^{\text{in}} + S_\nu^{\text{out}})$ , anstelle einer konstanten Rate  $\Gamma$ , die häufig in der Literatur verwendet wird. Um den Einfluss der Korrelationen zu studieren, ist es entscheidend, die Dephasierung adäquat zu beschreiben, da hierdurch die Zeitskala bestimmt wird, auf der die Korrelationen ausgedämpft werden. Wie in Ref. [11] gezeigt wurde, kann der Einfluss der Ladungsträgerkorrelationen auf die Dynamik der Lumineszenz stark sein, wenn die Dephasierung vernachlässigt wird. Hingegen führt eine konstante Depha-

sierung der Interband-Korrelationen im  $\mu\text{eV}$  Bereich bereits zu einer vollständigen Dämpfung der Korrelationen auf einer Zeitskala von mehreren 100 ps. Für eine quantitative Vorhersage ist daher eine konsistente Behandlung der Dephasierung für verschiedene Korrelationsfunktionen notwendig. Die Dynamik der Interband-Ladungsträgerkorrelationen infolge einer Intraband-Streuung durch den Lindblad-Term (6.25) ist durch

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} C_{ijkl}^x|_{\text{scatt}} = & - \sum_{\substack{\mu \neq \nu \\ \mu, \nu \in \{s, p\}}} \frac{\gamma_{\mu\nu}^{cc}}{2} \left\{ C_{ijkl}^x (\delta_{i\mu} + \delta_{k\mu}) \right. \\ & - 2 \left[ f_{\mu}^c f_j^v (\delta_{i\mu} \delta_{k\mu} - \delta_{i\nu} \delta_{k\nu}) \delta_{jl} + C_{\mu j \mu l}^x \delta_{i\nu} \delta_{k\nu} \right] \\ & \left. - 2 \left[ (f_{\mu}^c (1 - f_i^c) - C_{\mu i i \mu}^c) \delta_{i\nu} - (f_i^c (1 - f_{\nu}^c) - C_{i \nu \nu i}^c) \delta_{i\mu} \right] f_j^v \delta_{ik} \delta_{jl} \right\} \end{aligned} \quad (6.27)$$

gegeben. Hieraus folgt zusammen mit den Symmetrie-Eigenschaften<sup>4</sup>

$$C_{spsp}^c = C_{psps}^c = -C_{spps}^c = -C_{pspp}^c \quad (6.28)$$

die folgende Summenregel

$$\frac{d}{dt} (C_{ssss}^x + 2C_{psps}^x)|_{\text{scatt}} = 0. \quad (6.29)$$

Hieraus ist ersichtlich, dass beide Korrelationsfunktionen  $C_{ssss}^x$  und  $C_{psps}^x$  nicht unabhängig, sondern durch die Streuprozesse verknüpft sind, die sie repräsentieren. Offensichtlich lässt sich diese Eigenschaft nicht durch einen einfacheren Ansatz erfüllen, indem gleiche und konstante Raten  $\Gamma$  verwendet werden, um die Dephasierung beider Korrelationsfunktionen zu beschreiben.

**Kavitätsverluste** Mikrokavitäten ermöglichen einen dreidimensionalen Einschluss des elektromagnetischen Feldes, verbunden mit einem Spektrum wohl separierter Kavitätsmoden. Dies erlaubt eine Situation, in der nur eine einzelne Mode  $\bar{\xi}$  resonant mit dem  $s$ -Exziton Übergang des Quantenpunktes ist. Trotzdem sind nichtresonante Moden  $\xi \neq \bar{\xi}$  noch schwach an den Quantenpunkt-Übergang gekoppelt und führen zu Dissipation auf einer Nanosekunden-Zeitskala.

Um die endliche Lebensdauer der resonanten Mode zu berücksichtigen, verwenden wir die folgenden Lindblad-Beiträge

$$\frac{d}{dt} \langle A \rangle|_{\text{cav}} = \frac{\kappa_{\bar{\xi}}}{2} \left( \langle [b_{\bar{\xi}}^{\dagger}, A] b_{\bar{\xi}} \rangle + \langle b_{\bar{\xi}}^{\dagger} [A, b_{\bar{\xi}}] \rangle \right), \quad (6.30)$$

worin die Photonenverlustrate  $\kappa_{\bar{\xi}}$  direkt mit dem Gütefaktor  $Q = \omega_{\bar{\xi}}/\kappa_{\bar{\xi}}$  der Kavitätsmode  $\bar{\xi}$

<sup>4</sup>Diese Symmetrien sind durch Verwendung der Anti-Vertauschungsrelation der Ladungsträgeroperatoren sofort ersichtlich.

bei der Energie  $\omega_{\bar{\xi}}$  verbunden ist.

Zu beachten ist, dass diese Beiträge eine im Vergleich zur Ladungsträgerstreuung (6.25) ähnliche Struktur besitzen, jedoch nun Systemoperatoren enthalten, die nur auf die photonischen Freiheitsgrade wirken und zu einem Übergang zwischen Zuständen führen, die  $n$  und  $n-1$  Photonen in der Mode  $\bar{\xi}$  beinhalten. Die Beiträge zur Bewegungsgleichung führen zu einer Dämpfung der Korrelationen mit einer Rate  $M\kappa_{\bar{\xi}}/2$ ,

$$\frac{d}{dt} \delta \langle (b_{\bar{\xi}}^\dagger)^p (b_{\bar{\xi}})^q \mathcal{Q} \rangle|_{\text{cav}} = -M \frac{\kappa_{\bar{\xi}}}{2} \delta \langle (b_{\bar{\xi}}^\dagger)^p (b_{\bar{\xi}})^q \mathcal{Q} \rangle, \quad (6.31)$$

worin  $M = p + q$  die Ordnung der entsprechenden Korrelationsfunktion in Bezug auf die Photonenoperatoren ist, unabhängig von weiteren Ladungsträgeroperatoren  $\mathcal{Q}$ , die in der Korrelationsfunktion enthalten sind. Daher werden Photonenkorrelationen in Anwesenheit einer verlustreichen Kavität stärker gedämpft und zwar umso mehr, je höher die Ordnung ist. Dies spielt eine wichtige Rolle beim Abschneiden der Hierarchie in der Methode der Clusterentwicklung und ist in Abschnitt 6.4 demonstriert.

**Pumpanregung** Typischerweise werden Ladungsträger in den delokalisierten Zuständen der Benetzungsschicht oder des Barrierenmaterials angeregt und anschließend in die Quantenpunktzustände eingefangen. Dies kann durch die simultane Erzeugung (Vernichtung) von Elektronen im  $p$ -Zustand des Leitungsbandes (Valenzbandes) beschrieben werden. Es wird dabei angenommen, dass dieser Prozess während des Pumpimpulses besteht und speziell betrachten wir eine zeitabhängige Einfangrate  $P(t)$ , die dem gaußförmigen Pumpimpuls folgt. Der entsprechende Lindblad-Beitrag zur Bewegungsgleichung ist durch

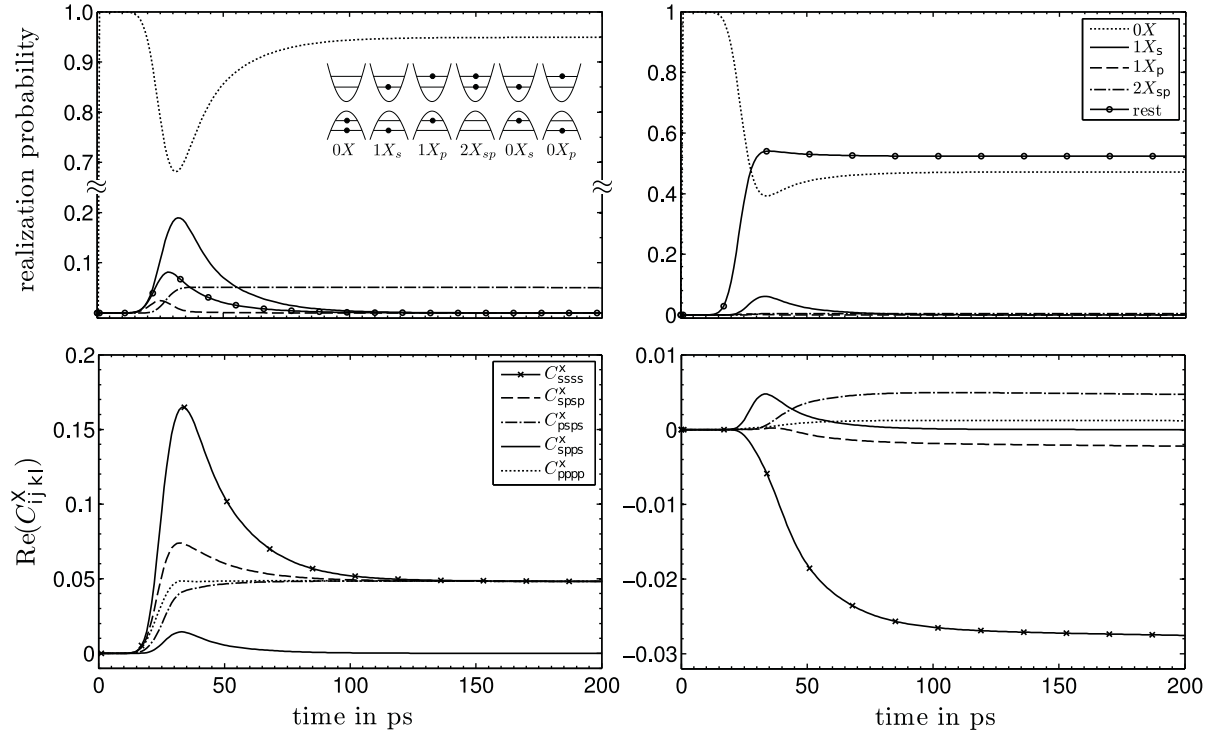
$$\frac{d}{dt} \langle A \rangle|_{\text{pump}} = \frac{P(t)}{2} \left( \langle [v_p^\dagger c_p, A] c_p^\dagger v_p \rangle + \langle v_p^\dagger c_p [A, c_p^\dagger v_p] \rangle \right) \quad (6.32)$$

gegeben. Diese Behandlung des Pumpprozesses führt zu einem automatischen Aufbau von Korrelationen, z.B. zwischen den Leitungs- und Valenzbandladungsträgern in der  $p$ -Schale

$$\frac{d}{dt} C_{pppp}^x|_{\text{pump}} = P(t)(f_p^v - f_p^c)(C_{pppp}^x + (1 - f_p^c)f_p^v). \quad (6.33)$$

Auf diese Weise muss die Anfangsbedingung für die Korrelationen nicht separat berechnet werden, was bisher unter der Annahme einer Quasi-Gleichgewichtsverteilung für die Anfangsbesetzung der Zustände bei gegebener Gesamt-Ladungsträgerdichte und Temperatur [11, 11, 75] erforderlich war.

**Korrelierte und unkorrelierte Erzeugung von Ladungsträgern** Bis jetzt haben wir einen paarweisen Einfang von Ladungsträgern aus den Kontinuumszuständen in die lokalisierten  $p$ -Zustände des Quantenpunktes betrachtet und eine vollständige Korrelation der erzeugten Elektronen und Löchern impliziert. Ausgehend von einer mikroskopischen Beschreibung der



**Abbildung 6.3.:** Vergleich der Systemdynamik nach korrelierter (paarweiser) Anregung (**links**) und unkorreliertem (unabhängigem) Einfang von Ladungsträgern (**rechts**). Oben: Realisierungswahrscheinlichkeit ausgewählter Konfigurationen. Im Falle eines unkorrelierten Einfangs von Ladungsträgern sind 16 Konfigurationen anstatt sechs möglich. Daher repräsentiert „rest“ verschiedene Konfigurationen in der linken und rechten Figur. Unten: Realteil der Interband-Ladungsträger-Korrelationsfunktion. Als Parameter wurde eine Licht-Materie-Kopplungsstärke von  $g = 0.1/\text{ps}$  und eine Kavitätsverlustrate von  $\kappa = 0.2/\text{ps}$  ( $Q \approx 10,000$ ) verwendet. Die Kavitätsmode ist resonant mit dem  $1X_s$  Exziton-Übergang.

optischen Anregung in die Kontinuumszustände und der sukzessiven Relaxation ist zu erwarten, dass diese nur teilweise korreliert sind. Hinweise hierauf finden sich in Ref. [263], wo wir gezeigt haben, dass der unabhängige Einfang von Elektronen und Löchern, der zu einer Aufladung des Quantenpunktes führt, durch Coulomb-Renormierungen kompensiert wird, sodass der Einfang eines weiteren Ladungsträgers mit entgegengesetzter Ladung favorisiert ist.

Im Folgenden illustrieren wir die Unterschiede zwischen korreliertem und unkorreliertem Einfang von Elektronen und Löchern in den Quantenpunkt, sowie deren Konsequenz für die Ladungsträgerkorrelationen. Hierzu betrachten wir das Modell eines einzelnen Quantenpunktes, der an eine einzelne Photonenmode gekoppelt ist, da wir hierfür Zugang zur vollen Lösung der von-Neumann-Lindblad-Gleichung haben.

In Abb. 6.3 ist die Systemdynamik nach einer gepulsten Anregung für eine korrelierte (links) und unkorrelierte (rechts) Erzeugung von Ladungsträgern gezeigt. Der erste Fall ist durch Verwendung von Gl. (6.32) realisiert, während der unabhängige Einfang von Elektronen und



Löchern in die Quantenpunkt  $p$ -Schale durch die Lindblad-Terme in Gl. (2.4) erreicht wird. Der Gauß-Puls ist um 25 ps zentriert, hat eine Breite von 10 ps (FWHM) und eine dimensionslose Pulsfläche von  $P_{\text{total}} = 0.5$ . Die Kombination der Erzeugung von Ladungsträgern in der  $p$ -Schale und der Relaxation im Quantenpunkt führt zum Aufbau mehrerer Konfigurationen. Das dynamische Verhalten der Realisierungswahrscheinlichkeiten dieser Konfigurationen ist in der oberen Zeile von Abb. 6.3 dargestellt. Die unkorrelierte Anregung ermöglicht eine größere Anzahl optisch inaktiver Konfigurationen, die nicht zur Photonenproduktion beitragen (in Abb. 6.3 mit „rest“ bezeichnet). Aus den Realisierungswahrscheinlichkeiten der Konfigurationen kann geschlossen werden, dass die Bildung des Biexzitons im Falle unkorrelierter Anregung zugunsten zusätzlicher Konfigurationen reduziert ist, die bei einer paarweisen Anregung nicht realisiert werden, wie z.B. geladene Exzitonen oder Konfigurationen mit einem oder drei Elektronen in beliebigen Einteilchenzuständen.

Neben der Erzeugung unterschiedlicher Konfigurationen haben beide Anregungsmethoden einen starken Einfluss auf die Interband-Ladungsträgerkorrelationen. Um diese zu diskutieren, ist in der unteren Zeile in Abb. 6.3 der Realteil gezeigt, welcher indirekt Informationen über die Bedeutung der verschiedenen Konfigurationen enthält. Betrachten wir z.B. die Interband-Korrelationsfunktion

$$C_{ssss}^x = f_s^c f_s^v - \langle c_s^\dagger c_s v_s^\dagger v_s \rangle , \quad (6.34)$$

deren Beiträge auf der rechten Seite Werte zwischen null und eins annehmen können, sodass  $C_{ssss}^x \in [-1, 1]$  ist. Die Positivität der Korrelationsfunktion ist hierbei ein Indikator für Konfigurationen, die einen optischen Rekombinationsprozess an der  $s$ -Schale erlauben, was folgendermaßen verstanden werden kann: Die Auswertung der Konfigurationsmittelung  $\langle \cdot \rangle$  für den korrelierten Anteil  $\langle c_s^\dagger c_s v_s^\dagger v_s \rangle$  ergibt Beiträge für alle Konfigurationen, die ein Elektron im  $s$ -Zustand des Valenz- und Leitungsbandes besitzen. Durch die Besetzung des Valenzbandes tragen diese Konfigurationen nicht zur optischen Rekombination bei. In der Berechnung des faktorisierten Anteils  $f_s^c f_s^v$  wird die Konfigurationsmittelung separat durchgeführt, sodass zu  $f_s^c$  ( $f_s^v$ ) alle Konfigurationen beitragen, die ein Elektron in der  $s$ -Schale des Leitungs- (Valenz-) Bandes enthalten, unabhängig von der Besetzung der  $s$ -Schale des Valenz- (Leitungs-) Bandes. Die Stärke beider Beiträge in Gl.(6.34) hängt von der relativen Realisierungswahrscheinlichkeit der Konfigurationen mit Elektronen im Quantenpunkt  $s$ -Zustand ab. Ein insgesamt positiver Wert impliziert  $f_s^c f_s^v > \langle c_s^\dagger c_s v_s^\dagger v_s \rangle$ , wodurch die Realisierungswahrscheinlichkeit der  $1X_s$  und  $2X_{sp}$  Konfigurationen die der dunklen  $0X_s$  Konfiguration übersteigt. In Bezug auf die beiden unterschiedlichen Anregungsmechanismen führt die größere Anzahl möglicher Konfigurationen, die zwei Ladungsträger in den zwei  $s$ -Zuständen enthalten, zu einem größeren Gewicht des korrelierten Beitrags, was insgesamt eine negative Korrelation  $C_{ssss}^x$  zur Folge hat, wie aus der unteren rechten Figur in Abb. 6.3 zu sehen ist. Ein ähnliches Argument ist gültig für die  $C_{spsp}^x$  Beiträge, die zur Vollständigkeit zusammen mit den anderen möglichen Indexkombinationen von  $C_{ijkl}^x$  gezeigt sind.



### 6.3. Photolumineszenz in den freien Raum

Als erstes diskutieren wir die Lumineszenz eines einzelnen Quantenpunktes durch Emission in den freien Raum. Hier zeigen sich die Vorteile der Bewegungsgleichungsmethode, da der große Hilbertraum des Modenkontinuums eine direkte Lösung der von-Neumann-Gleichung verhindert. Das Lumineszenzspektrum sowie der Zerfall der zeitaufgelösten Lumineszenz geben dabei direkten Einblick in das physikalische System und den zugrunde liegenden Mechanismus der FSH-Methode. Ferner wird der Vergleich mit den Resultaten der konventionellen Clusterentwicklungsmethode zeigen, wie die näherungsweise Behandlung der Ladungsträger-Freiheitsgrade auf eine effektive Beschreibung des Systems führt.

Die Lumineszenzdynamik ist unter Annahme eines idealen Detektors entsprechend Ref. [70, 139] durch die Änderung der mittleren Photonenzahl  $\mathcal{N}_\xi$  bestimmt. Die zugehörige Bewegungsgleichung

$$\left(\frac{d}{dt} + \kappa_\xi\right) \mathcal{N}_\xi = 2 \operatorname{Re} \sum_\nu g_\xi^* \Pi_{\xi,\nu} \quad (6.35)$$

enthält Beiträge durch die Licht-Materie-Wechselwirkung sowie durch Kavitätsverluste gemäß Gl. (6.30). Es ist ersichtlich, dass letztere die mittlere Photonenzahl reduzieren, während die spontane und stimulierte Emission sowie die stimulierte Absorption des Emitters durch die Summe über die Photon-assistierten Polarisationen aller gebundenen Quantenpunktzustände ausgedrückt sind. Ohne die Kavität erfolgt die Emission in das Kontinuum von Moden des freien Raumes und das zugehörige zeitabhängige Lumineszenzspektrum  $I(\omega, t)$  ist durch

$$I(\omega, t) = 2 \operatorname{Re} \sum_{\nu, \xi} |g_\xi|^2 \Pi_{\xi,\nu} \big|_{|q|=\frac{\omega}{c}} \quad (6.36)$$

gegeben. Zu beachten ist, dass im Folgenden alle polarisationsartigen Größen mit der Kopplungsstärke der Licht-Materie-Wechselwirkung  $g_\xi$  reskaliert sind, sodass das Matrixelement entsprechend der Wigner-Weißkopf-Theorie der spontanen Emission [180] ausgewertet werden kann, wobei man  $|g_\xi|^2 = \frac{|\mathbf{d}_{cv}|^2 \omega^3}{6\pi^2 \varepsilon_0 \varepsilon_r c^3}$  erhält. Für weitere Details verweisen wir an dieser Stelle auf Ref. [11].

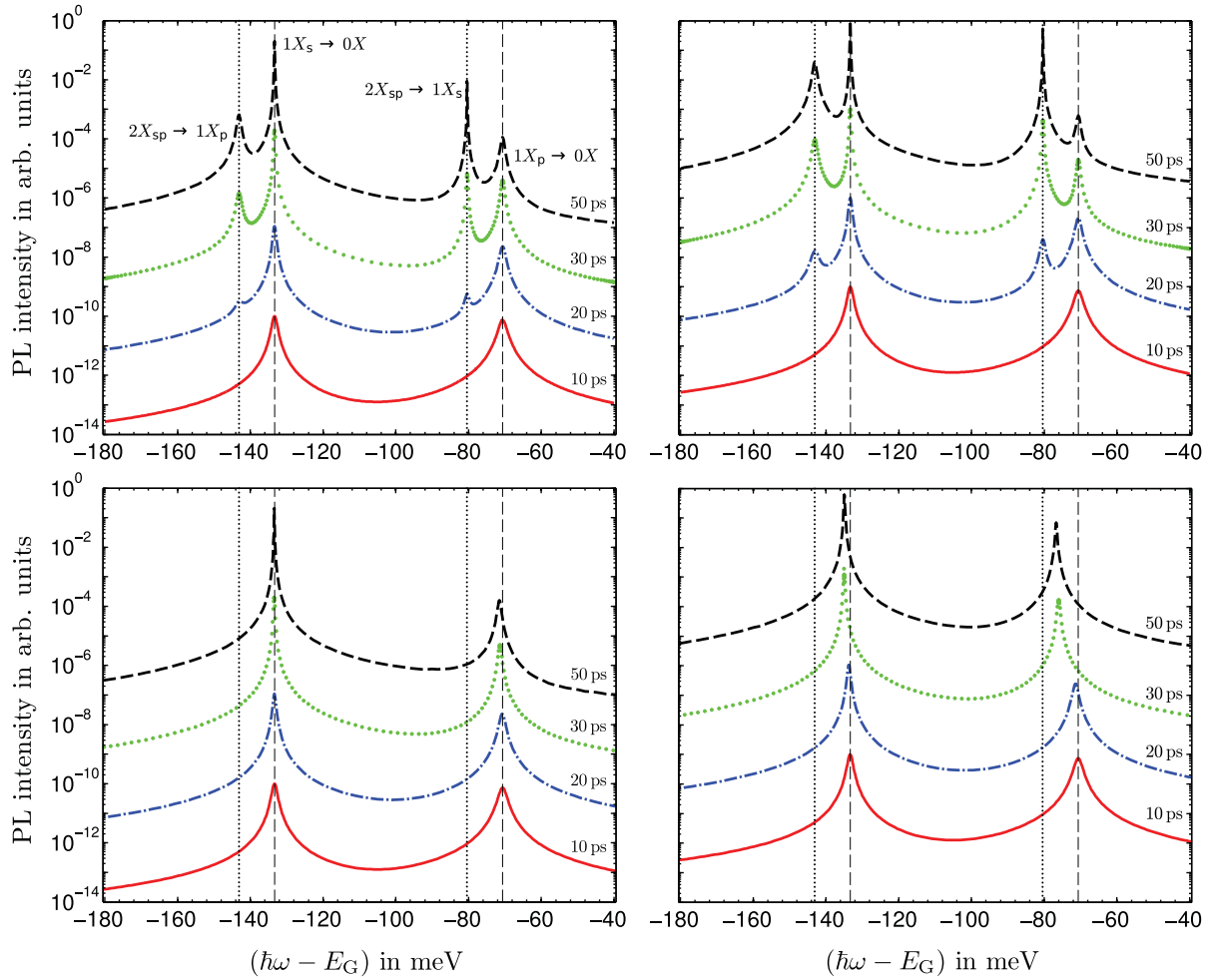
Die Summe läuft hierbei über alle Wellenvektoren mit der gleichen Photonenenergie, unabhängig von deren Richtung. Die zeitaufgelöste Lumineszenz folgt dann durch Integration über alle Frequenzen

$$I(t) = \int d\omega I(\omega, t) . \quad (6.37)$$

In Abb. 6.4 ist eine Serie von vier Lumineszenzspektren der Emission nach 10, 20, 30 und 50 ps gezeigt. Ladungsträger in den Kontinuumszuständen werden durch optische Anregung

erzeugt und anschließend paarweise in die Quantenpunkt  $p$ -Zustände eingefangen, siehe Abschnitt 6.2.2. Der gaußförmige Puls ist um 25 ps zentriert, besitzt eine Breite von 10 ps (FWHM) und eine dimensionslose Pulsfläche  $P_{\text{total}}$ . Die Spektren auf der linken Seite entsprechen einer schwachen Anregung mit  $P_{\text{total}} = 0.1$ , während die rechte Seite die Resultate nach starker Anregung mit  $P_{\text{total}} = 1$  zeigt. Verglichen sind die Resultate der FSH-Methode (oben) für  $M_{\text{trunc}} = 1$  und der Clusterentwicklung auf dem Doublet-Level (unten) mit  $(N + M)_{\text{trunc}} = 2$ . Da die FSH-Methode die Freiheitsgrade der Ladungsträger exakt behandelt, sind mehrere (Multi-)Exziton-Übergänge an renormierten Energien zu erkennen, welche den Übergangsenergien der Konfigurationen entsprechen, die durch Diagonalisierung von  $H_e^0 + H_{e-e}$  erhalten werden können. Dies führt auf eine Vielteilchenbeschreibung der Quantenpunkt-Anregungen, in der die volle Coulomb-Konfigurationswechselwirkung enthalten ist. Die Intensität der Übergänge im Spektrum ist dabei bestimmt durch die Wahrscheinlichkeit, dass diese stattfinden können. Es sind vier Übergänge zu erkennen, die den vier möglichen Rekombinationskanälen des angeregten Quantenpunkt-Systems entsprechen, und zwar dem Zerfall des  $s$ - und  $p$ -Exzitons in den Grundzustand, sowie die  $s$ - und  $p$ -Rekombination der  $sp$ -Biexziton-Konfiguration. Dabei ist die  $s$ - und  $p$ -Rekombination im Spektrum ca. 63 meV separiert, was dem energetischen Abstand der Einteilchenzustände und der direkten (Hartree) Wechselwirkung entspricht. Der Coulomb Hamiltonoperator führt zu einer weiteren Aufspaltung, wenn die Rekombination in Anwesenheit eines weiteren Elektron-Loch-Paares in der anderen Schale stattfindet. Die Aufspaltung zwischen dem  $2X_{sp} \rightarrow 1X_{s/p}$  und dem  $1X_{s/p} \rightarrow 0X$  Übergang ist dabei hauptsächlich durch die Coulomb-Austauschwechselwirkung zwischen  $s$ - und  $p$ -Schale gegeben, die zu einer Verstimmung von  $2V_{spsp}$  führt und in dem hier betrachteten System etwa 9.8 meV beträgt.

Da alle Rekombinationskanäle spektral wohl separiert sind, ist es möglich, aus den zeitaufgelösten Spektren in Abb. 6.4 Informationen über die Ladungsträgerdynamik zu gewinnen. Die folgende Diskussion ist dabei sowohl für schwache als auch starke Anregung gültig, da die Situation ähnlich ist. Das unterste Spektrum jeder Figur entspricht dem Beginn des Anregungspulses, wobei nur Signaturen der Emission des  $s$ - und  $p$ -Exzitons sichtbar sind. Die Anregung ist noch schwach und Relaxation sowie Rekombination sind die schnellsten Prozesse im System, sodass die Exzitonen zerfallen, bevor sich ein Biexziton bilden kann. Die zweiten Spektren (gepunktete Linien) stellen die Situation vor dem Maximum des Anregungspulses dar. Durch den schnelleren Einfang von Ladungsträgern in die  $p$ -Zustände ist eine schwache Signatur der Biexziton-Emission erkennbar. Ferner dominiert insbesondere bei späteren Zeiten die Emission des  $s$ -Exzitons über die des  $p$ -Exzitons, was durch die Streuprozesse zwischen der  $s$ - und  $p$ -Schale erklärbar ist: Für die betrachtete Temperatur von 120 K ist die Streuung von der  $p$ - zur  $s$ -Schale viel schneller als der umgekehrte Prozess und bietet zusätzlich zur direkten Rekombination einen zweiten Kanal, durch den das  $p$ -Exziton zerfallen kann.



**Abbildung 6.4.:** Frequenz aufgelöste Photolumineszenzspektren der Emission in ein Kontinuum von Moden des freien Raumes. Verglichen sind die Resultate der FSH-Methode (**oben**) und der konventionellen Clusterentwicklung auf dem Doublet-Level (**unten**) nach einem schwachen (**links**,  $P_{\text{total}} = 0.1$ ) und starken (**rechts**,  $P_{\text{total}} = 1.0$ ) Anregungspuls. Die Spektren sind für 10 ps (durchgezogene Linie), 20 ps (gestrichpunktete Linie), 30 ps (gepunktete Linie) und 50 ps (gestrichelte Linie) der Zeitentwicklung gezeigt. Der gaußförmige Anregungspuls ist um 25 ps zentriert und besitzt eine Breite von 10 ps (FWHM). In der oberen rechten Figur wurde die maximale Emission des Spektrums nach 50 ps auf eins gesetzt. Relativ dazu wurde in allen Figuren das Spektrum nach 40, 30, 20 und 10 ps zur besseren Illustration mit  $0.76$ ,  $0.31$ ,  $0.02$  und  $1.4 \cdot 10^{-5}$  skaliert. Typische Relaxationszeiten wurden für die Elektronen im Valenz- und Leitungsband verwendet:  $\gamma_{sp}^{cc} = 1.07/\text{ps}$ ,  $\gamma_{ps}^{cc} = 0.02/\text{ps}$ ,  $\gamma_{sp}^{vv} = 0.13/\text{ps}$  und  $\gamma_{ps}^{vv} = 0.59/\text{ps}$ .

Bevor die Ergebnisse der Clusterentwicklung diskutieren werden, soll noch auf den Ursprung der spektralen Aufspaltung zwischen der Emission des Exzitons und des Biexzitons im Formalismus eingegangen werden. Der Rekombinationsprozess des Biexzitons ist durch den Erwartungswert  $\langle b_\xi^\dagger X_s X_p^\dagger X_p \rangle$  beschrieben. Hierbei wurden die Exziton-Operatoren  $X_i^\dagger = c_i^\dagger v_i$  verwendet, um den Rekombinationsprozess eines Exzitons in der  $s$ -Schale in Anwesenheit eines zweiten Exzitons in der  $p$ -Schale darzustellen. In Normalordnung erhält man

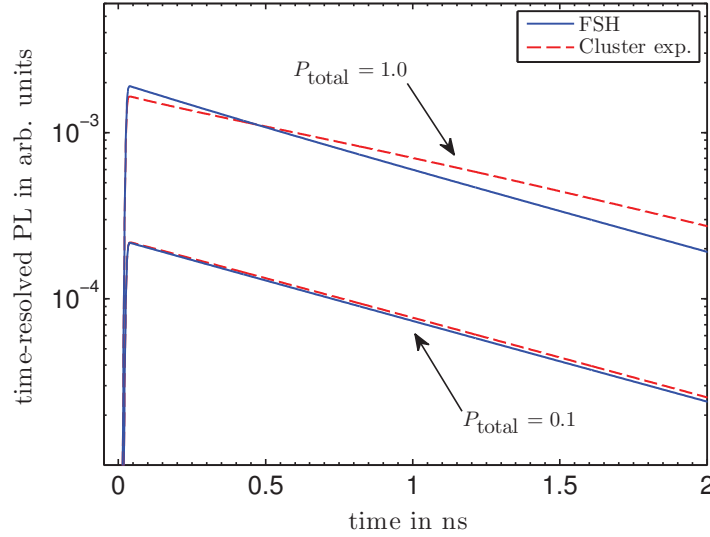
$$\begin{aligned} \langle b_\xi^\dagger X_s X_p^\dagger X_p \rangle &= \langle b_\xi^\dagger v_s^\dagger c_s^\dagger c_p^\dagger v_p v_p^\dagger c_p \rangle \\ &= \langle b_\xi^\dagger v_s^\dagger c_s^\dagger c_p^\dagger c_p \rangle - \langle b_\xi^\dagger v_s^\dagger c_p^\dagger v_p^\dagger v_p c_p c_s \rangle . \end{aligned} \quad (6.38)$$

Die Annahme einer paarweisen Erzeugung von Ladungsträgern und die resultierende Beschränkung auf sechs mögliche Konfigurationen (siehe Abb. 6.2) impliziert, dass der zweite Term null sein muss (eine Vernichtung von drei Ladungsträgern ist unter den beschriebenen Umständen nicht möglich), sodass der Rekombinationsprozess des Biexzitons durch  $\langle b_\xi^\dagger v_s^\dagger c_s^\dagger c_p^\dagger c_p \rangle$  gegeben ist. Tatsächlich folgt aus der Anwesenheit von zwei Ladungsträgern im Leitungsband  $s$ - und  $p$ -Zustand automatisch ein Fehlen von Ladungsträgern in den Valenzbandzuständen.

Betrachten wir nun die Resultate der Methode der Clusterentwicklung (untere zwei Figuren), wobei die Hierarchie bei der Ordnung  $(N + M)_{\text{trunc}} = 2$  trunziert wird. Dies impliziert, dass Korrelationsfunktionen, die mehr als vier Ladungsträgeroperatoren enthalten, vernachlässigt werden. In der Clusterentwicklung auf dem Doublet-Level sind die Korrelationsfunktionen  $\Pi_{\xi,ijkl}^{c/v}$ , die für die Biexziton-Emission in der FSH-Methode verantwortlich sind, nicht enthalten, sodass diese Beiträge nur effektiv eingehen<sup>5</sup>: Die Übergangsenergien des  $s$ - und  $p$ -Exzitons werden hierbei proportional zu den Einteilchen-Besetzungen von Elektronen und Löchern in den Quantenpunkt-Zuständen renormiert. Mit zunehmender Anregung verschieben sich die Resonanzen daher *kontinuierlich* zu den Energien der Multi-Exziton-Konfigurationen. Die Stärke der Verschiebung resultiert aus den Singlet-Beiträgen  $\sum_\mu V_{i\mu i\mu} (1 + f_\mu^c - f_\mu^v)$  in den dynamischen Gleichungen der Photon-assistierten Polarisation  $\Pi_{\xi,s/p}$ , die für die Rekombination an der  $s$ - ( $p$ -)Schale verantwortlich ist. Die exakten Coulomb-renormierten Energien der vier Rekombinationskanäle sind als vertikale Linien eingezeichnet, um den Shift besser zu visualisieren.

Komplementäre Informationen werden durch die zeitaufgelöste Photolumineszenz bereitgestellt, die durch Integration des Spektrums in Bezug auf die Energie an jedem Zeitpunkt erhalten werden kann. Es zeigt sich, dass diese weniger sensitiv auf eine approximative Behandlung der Ladungsträgerkorrelationen ist. Das Ergebnis für die vier diskutierten Situationen ist in Abb. 6.5 gezeigt, wobei wir die FSH-Methode und die Clusterentwicklung vergleichen. Für schwache Anregung ( $P_{\text{total}} = 0.1$ ) sind beide Resultate in guter Übereinstimmung, was demonstriert, dass die effektive Beschreibung der Vielteilchen-Konfigurationen durch die Clus-

<sup>5</sup>Diese Diskussion ist streng nur in Singlet-Näherung gültig, wo alle Beiträge der Ladungsträger in Termen der Besetzung formuliert sind. Tatsächlich sind auf dem Doublet-Level zusätzliche Korrelationen enthalten.



**Abbildung 6.5.:** Zeitaufgelöste Photolumineszenz für die Resultate in Abb. 6.4.

terentwicklung auf dem Doublet-Level eine gute Näherung für die Gesamt-Photonen-Emission darstellt. Bei hoher Anregung ( $P_{\text{total}} = 1.0$ ) werden weitere Konfigurationen zunehmend wichtig, sodass die Ergebnisse voneinander abweichen. In den zugehörigen Spektren zeigen sich starke Shifts der Emissionslinien, um die dominante Emission an der Resonanz der  $p$ -Schale durch die Konfiguration des gefüllten Quantenpunktes effektiv zu beschreiben. In diesem Regime bricht die Clusterentwicklung auf dem Doublet-Level zusammen und unphysikalische Ergebnisse wie negative Besetzungen können die Folge sein.

Die künstliche Verschiebung der Übergangsenergie in der Clusterentwicklung auf dem Doublet-Level führt zu einem Artefakt in Anwesenheit eines Resonators hoher Güte. Durch die mit der Kavitätsmode assoziierte schmale Linienbreite wird die Lichtemission sensitiv auf eine Verschiebung der Emissionslinie, was einen von der Besetzung abhängigen Überlapp zwischen dem Quantenpunkt-Übergang und der Photonenmode zur Folge hat. Diese Situation ist Gegenstand der Diskussion in Abschnitt 6.4.

Als letzter Punkt in Bezug auf die Lumineszenzspektren soll die Linienbreite der verschiedenen Übergänge diskutiert werden. In Abschnitt 3.3 haben wir erläutert, dass Streuprozesse zu einer Dephasierung optischer Polarisationen führen, die entweder deren Anfangs- oder Endzustand ändern. Die Stärke der Dephasierung manifestiert sich dabei in der Linienbreite des Emissionsspektrums. Zum Beispiel ist der Übergang des  $s$ -Exzitons in den Grundzustand Gegenstand des Anregungsprozesses von Ladungsträgern in der  $p$ -Schale sowie der Streuung von Elektronen und Löchern aus den  $s$ - in die  $p$ -Zustände. Während die letzten Prozesse bei der betrachteten Temperatur schwach sind, ist der Pumpprozess verantwortlich für die Linienverbreiterung des entsprechenden optischen Übergangs. Die Situation ist ähnlich für den Übergang

des  $p$ -Exzitons in den Grundzustand und wird durch den Pumpprozess auf die gleiche Weise beeinflusst, zusätzlich jedoch durch die schnelle Ladungsträger-Relaxation von den  $p$ - in die  $s$ -Zustände dephasiert. Im Gegensatz zu dem zuvor diskutierten Übergang wird die Emissionslinie nicht schmaler, nachdem der Anregungspuls vorüber ist.

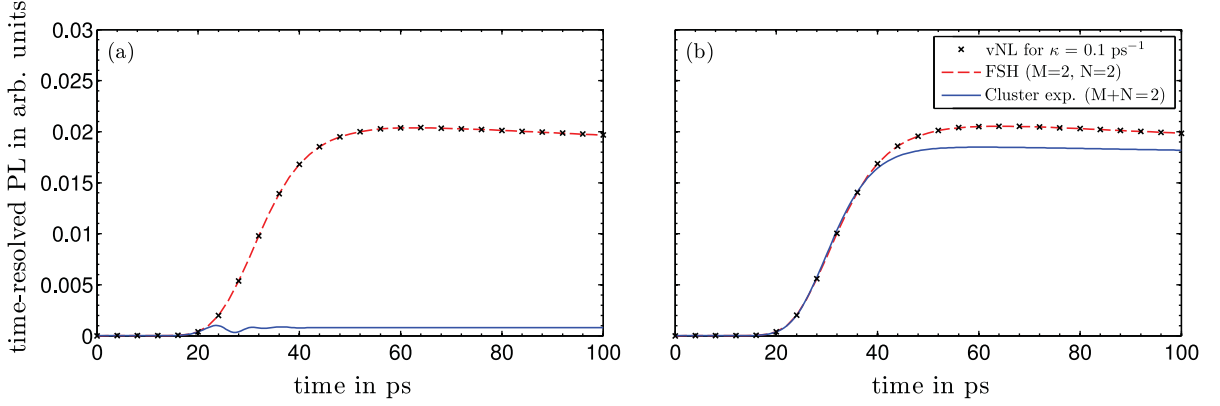
Für die Emissionslinien des Biexzitons ist der Effekt durch die Ladungsträger-Relaxation gerade umgekehrt. Da für den betrachteten Quantenpunkt der Anfangszustand des Rekombinationsprozesses durch die Konfiguration des vollständig gefüllten Quantenpunktes gegeben ist, kann nur der Endzustand (entweder ein  $s$ - oder  $p$ -Exziton) durch die Streuprozesse dephasiert werden. Im Falle des  $p$ -Exzitons ist dies durch die schnelle  $p$ -nach- $s$  Relaxation bedingt, während das  $s$ -Exziton durch die langsamere Streuung von Ladungsträgern aus den  $s$ - in die  $p$ -Zustände dephasiert wird. Entsprechend ist die Linienbreite des  $2X_{sp} \rightarrow 1X_s$  Übergangs signifikant kleiner als die der  $2X_{sp} \rightarrow 1X_p$  Rekombination.

Der Einfluss der Dephasierung zeigt sich nicht nur in den Linienbreiten der einzelnen Übergänge, sondern auch in den relativen Intensitäten der beiden Emissionskanäle des Biexzitons: Durch die Rekombination an der  $s$ -Schale verbleibt ein  $p$ -Exziton, das, wie zuvor diskutiert, Gegenstand starker Dephasierung durch die Ladungsträger-Relaxation ist. Hingegen wird das  $s$ -Exziton nach einer Rekombination an der  $p$ -Schale in Abwesenheit der Pumpanregung nur schwach dephasiert. Folglich wird die den Übergangsprozess treibende Photon-assistierte Polarisation im ersten Fall stärker gedämpft, was sich im Spektrum durch eine stärkere Emission nach 50 ps zeigt, nachdem der Puls vorüber ist.

## 6.4. Numerische Ergebnisse für einen einzelnen Quantenpunkt in einer Mikrokavität

Wir betrachten nun die Situation, dass ein einzelner Quantenpunkt in eine Resonatorstruktur eingebettet und an eine einzelne Kavitätsmode hoher Güte  $Q$  gekoppelt ist. Im Gegensatz zu der im vorigen Abschnitt diskutierten Emission in den freien Raum verstärkt die Kavität die resonante Emission des Quantenpunktes und wir werden zeigen, dass diese Resonanzbedingung verstärkt zu Artefakten bei einer Trunkierung der Hierarchie von Bewegungsgleichungen führen kann.

Die begrenzte Größe des Hilbertraumes ermöglicht eine direkte Lösung der von-Neumann-Lindblad-Gleichung (6.1), sodass diese verwendet werden kann, um die Gültigkeit der FSH-Methode und der konventionellen Clusterentwicklung zu überprüfen. Während wir im ersten Fall die Freiheitsgrade der Ladungsträger durch einen geschlossenen Satz von Ladungsträger-Korrelationsfunktionen repräsentieren und die entsprechenden Korrelationen mit zusätzlichen Photon-Operatoren bis zur Ordnung  $M_{\text{trunc}}$  berücksichtigen, erfolgt im zweiten Fall die appro-



**Abbildung 6.6.:** (a) Zeitaufgelöste Photolumineszenz auf der Frequenz der Kavitätsmode. Verglichen werden die Resultate der FSH-Methode (gestrichelte Linie) mit der konventionellen Clusterentwicklung auf dem Doublet-Level (durchgezogene Linie) sowie der exakten Lösung der von-Neumann-Lindblad-Gleichung (Symbole). (b) Resultate unter Vernachlässigung der Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Ladungsträgern des Quantenpunktes.

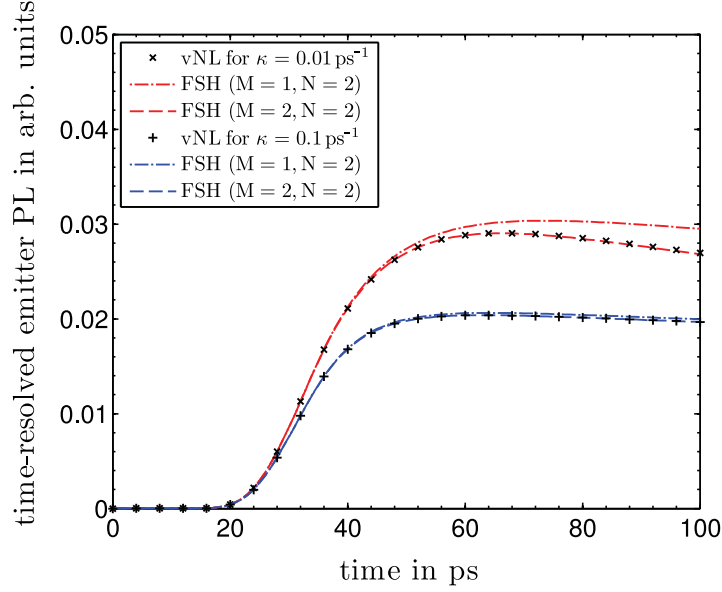
ximative Behandlung der elektronischen und photonischen Freiheitsgrade auf dem Doublet-Level  $(N + M)_{\text{trunc}} = 2$ . Der optische Übergang des  $s$ -Exzitons sei resonant mit der einzelnen Kavitätsmode und mit der zugehörigen Kopplungsstärke der Licht-Materie-Wechselwirkung  $g = 0.01/\text{ps}$ . Der Pumpprozess ist wie schon in Abschnitt 6.3 mit einem Gauß-Puls [zentriert um 25 ps, mit einer Breite von 10 ps (FWHM)] modelliert, der eine dimensionslose Fläche von  $P_{\text{total}} = 0.5$  besitzt.

In Analogie zur Diskussion des vorigen Abschnittes 6.3 kann die Dynamik der Lumineszenz mit Gl. (6.36) erhalten werden, wenn nur eine einzelne Mode  $\bar{\xi}$  betrachtet wird. Im Folgenden lassen wir daher den Modenindex fort. Dies führt auf den Ausdruck

$$I(t) = 2|g|^2 \text{Re} \sum_{\nu} \Pi_{\nu} . \quad (6.39)$$

Für eine Verlustrate der Photonen in der Kavitätsmode von  $\kappa = 0.1/\text{ps}$  (entspricht einer Güte  $Q \approx 20,000$  für eine Wellenlänge der Kavitätsmode von 915 nm) ist die zeitaufgelöste Photolumineszenz an der Kavitätsresonanz in Abb. 6.6 (a) gezeigt. Die FSH-Methode ist in exzellenter Übereinstimmung mit der exakten Lösung der von-Neumann-Lindblad-Gleichung (Symbole). Die durchgezogene Linie repräsentiert die Clusterentwicklung auf dem Doublet-Level  $(N + M)_{\text{trunc}} = 2$  und zeigt ein oszillierendes Verhalten, das stark vom exakten Resultat abweicht. Auf diesem Level der Approximation ist die Übergangsenergie nicht fixiert, sondern wird als Funktion der Ladungsträgerbesetzung renormiert, wie wir in Abschnitt 6.3 demonstriert haben. Ist die Kavität auf die korrekt renormierte Energie des Exziton-Übergangs gestimmt, wird dieser resonant, wenn die *mittlere* Ladungsträgerbesetzung des Quantenpunktes zunimmt. Mit dem Einsetzen der Emission wird die Besetzung im Quantenpunkt abgebaut und





**Abbildung 6.7.:** Vergleich zwischen der Lösung der von-Neumann-Lindblad-Gleichung (Symbole) und der FSH-Methode für die Zeitentwicklung der Photolumineszenz eines einzelnen Quantenpunktes. Für alle Ergebnisse wurde eine Kopplungsstärke der Licht-Materie-Wechselwirkung von  $g = 0.01/\text{ps}$  verwendet. Die roten Linien und Kreuze entsprechen den Resultaten für Kavitätsverluste mit der Rate  $\kappa = 0.01/\text{ps}$ . Zum Vergleich wurde  $\kappa = 0.1/\text{ps}$  für die Berechnung der blauen Linien und der Plus-Symbole verwendet. Gezeigt sind die Resultate der FSH-Methode (Linien) für verschiedene Ordnungen, bei denen die Hierarchie in den Photonoperatoren abgebrochen wurde.

im Gegenzug die Renormierung reduziert, was den Exziton-Übergang erneut aus der Resonanz herauschiebt. Dies führt zu dem oszillatorischen Verhalten zu Beginn der Zeitentwicklung und unterdrückt letztlich stark die Emission, da der spektrale Überlapp zwischen Emitter und Kavität reduziert ist. Dieses Bild wird durch eine Vergleichsrechnung unterstützt, wo der Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung vernachlässigt ist, wie in Abb. 6.6 (b) gezeigt wird. In diesem Fall besitzen die Exziton- und Biexziton-Rekombination die gleiche Übergangsenergie, sodass ein Schieben der Resonanz künstlich in der Methode der Clusterentwicklung unterdrückt ist.

In Abb. 6.7 diskutieren wir unter Verwendung der FSH-Methode den Einfluss der Ordnung, bei der die Hierarchie abgebrochen wird. Die blauen Kurven entsprechen den Parametern, die in Abb. 6.6 verwendet wurden, während die roten Kurven den Fall einer Kavität mit übermäßig hoher Lebensdauer der Photonen ( $\kappa = 0.01/\text{ps}$ ,  $Q \approx 200,000$ ) beschreibt. Die Symbole kennzeichnen die zugehörigen Ergebnisse der von-Neumann-Lindblad-Gleichung. Für eine Kavität mit  $\kappa = 0.1/\text{ps}$  ( $Q \approx 20,000$ ) können die Ergebnisse für ein Abschneiden der Hierarchie bei  $M_{\text{trunc}} = 1$  (gestrichelpunktete Linie) nur schwer von denen einer Rechnung nächst höherer Ordnung  $M_{\text{trunc}} = 2$  (gestrichelte Linie) unterschieden werden. Die Ursache liegt in der Dephasierung von Korrelationen durch die Dissipation von Photonen aus der Kavität gemäß



Gl. (6.31), die in einer Kavität höherer Güte signifikant schwächer ist. Daher führt in diesem Fall eine Rechnung mit  $M_{\text{trunc}} = 1$  zu einer weniger akkuraten Beschreibung der zeitaufgelösten Lumineszenz als für  $M_{\text{trunc}} = 2$ . Folglich hängt die Ordnung, bei der die Hierarchie abgebrochen werden kann, von der Stärke der Korrelationen (bzw. den betrachteten Größen) ab.



# Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurden theoretische Modelle zur Beschreibung der optischen Eigenschaften angeregter, selbstorganisiert gewachsener Halbleiter-Quantenpunkte entwickelt und angewandt, wobei Korrelationseffekte eine zentrale Rolle spielen. Hierbei wurden die Ladungsträgersdynamik, die Charakteristik des Einzel-Quantenpunkt-Lasers, Effekte nichtresonanter Emission in eine Mikrokavitätsmode sowie Quellen einzelner und verschränkter Photonen mikroskopisch untersucht. Zudem wurde eine approximative Bewegungsgleichungsmethode unter Verwendung der Cluster-Entwicklungstechnik formuliert und hiermit die Lumineszenzeigenschaften eines Quantenpunktes studiert. Im Folgenden fassen wir die Ergebnisse dieser Dissertation noch einmal zusammen und geben im Anschluss einen Ausblick auf mögliche weiterführende Arbeiten.

In Kapitel 2 wurde der Einfluss der Coulomb-Streuung und der Wechselwirkung mit den LO-Phononen auf die Quantenpunkt-Ladungsträgersdynamik in einem Theorie-Experiment-Vergleich untersucht. Nach optischer Anregung in die Barrierenzustände konnte ein schneller Aufbau der Besetzung in den Zuständen des Quantenpunktes auf einer ps-Zeitskala nachgewiesen werden. Für schwache Anregung zeigt die Relaxationszeit eine starke Änderung mit der Temperatur, während diese für starke Anregung nahezu temperaturunabhängig ist. In dem verwendeten mikroskopischen Modell bilden die LO-Phononen und die Ladungsträger der Benetzungsschicht ein Reservoir, wodurch Dissipation und die Besetzungsumverteilung der Quantenpunkt-Ladungsträger hin zum Gleichgewicht sichergestellt wird. Ergebnisse der von-Neumann-Lindblad-Gleichung für den Quantenpunkt-Dichteoperator und kinetischer Gleichungen für die Einteilchen-Besetzungswahrscheinlichkeiten wurden verglichen. Eine Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen konnte nur erreicht werden, wenn in beiden Fällen nicht-perturbative Streuraten verwendet wurden. Dies beinhaltet polaronische Renormierungseffekte der elektronischen Zustände und zusätzliche spektrale Verbreiterungen durch Coulomb-Streuprozesse. Für die betrachteten Einfangprozesse von Ladungsträgern aus den delokalisierten Zuständen und anschließenden Relaxationsprozesse innerhalb des Quantenpunktes liefern beide Methoden identische Ergebnisse, mit Ausnahme tiefer Temperaturen und niedriger Ladungsträgerdichte. In dieser Situation sind nur wenige Quantenpunkt-Konfigurationen an der Dynamik beteiligt, sodass die approximative Berücksichtigung der Ladungsträger-

Korrelationen im Falle der Boltzmann-Gleichung zu signifikanten Abweichungen führt und eine Beschreibung im Konfigurationsbild erforderlich macht.

Eine Lasertheorie für einen einzelnen isolierten Quantenpunkt, der an eine Mikrokavitätsmode hoher Güte gekoppelt ist, wurde in Kapitel 3 entwickelt. Die statistischen und spektralen Eigenschaften des quantisierten Lichtfeldes wurden untersucht. Die Beschreibung basiert auf einer direkten Lösung der von-Neumann-Gleichung für den Dichteoperator des wechselwirkenden Systems aus Quantenpunkt-Ladungsträgern und Resonator-Photonen. Ausgehend von den Einteilchen-Zuständen wurden alle möglichen Multi-Exziton-Konfigurationen berücksichtigt, die durch Besetzung der Zustände mit Ladungsträgern und deren Coulomb-Wechselwirkung entstehen. Dissipative Prozesse wurden über Lindblad-Terme beschrieben und führen neben der Ladungsträgerstreuung zu einer Dephasierung optischer Übergänge, verbunden mit einer spektralen Linienbreite. Die Emissionscharakteristik des gesamten Systems ist ein Wechselspiel von verschiedenen Konfigurationen und wurde für Parameter untersucht, die aktuell oder in naher Zukunft experimentell realisiert werden können. Es wurde gezeigt, dass die Photonen-Emission maximal wird, wenn die höchste Multi-Exziton-Konfiguration resonant mit der Kavitätsmode ist. Bei hoher Anregungsdichte ist dies die dominante Konfiguration, da Einfang- und Relaxationsprozesse typischerweise schneller als die radiative Interband-Rekombination sind, sodass der Quantenpunkt voll besetzt wird, bevor eine Emission stattfindet. Gleichzeitig sind die höheren Multi-Exziton-Konfigurationen durch die schnelle Ladungsträger-Relaxation Gegenstand starker Dephasierung, was eine Beobachtung starker Kopplung auf dieser Resonanz verhindert. Trotzdem kann stimulierte und kohärente Laser-Emission im Regime schwacher Kopplung erreicht werden, charakterisiert durch eine Poisson-Statistik der Photonen und eine mittlere Photonenzahl, die eins übersteigt. Hingegen wird der Übergang des Grundzustandsexzitons nur durch den Einfangprozess dephasiert. Ist dieser Übergang resonant mit der Kavitätsmode, so wird bei einer niedrigen Anregungsdichte starke Kopplung im Emissionsspektrum sichtbar. Die erreichbare Photonen-Emission ist allerdings durch Quenching-Effekte des Übergangs signifikant reduziert. Bei hoher Anregung trägt nur der nichtresonante höchste Multi-Exziton-Zustand bei, sodass die Emissionscharakteristik stark von der Verstimmung abhängt. Starke Kopplung und Lasing wurden für beide Resonanzbedingungen diskutiert, wobei das Zusammenspiel von Streuung, Dephasierung und Rekombination bestimmt, ob eine starke Kopplung aufrechterhalten werden kann.

Im nachfolgenden Kapitel 4 wurde der Einfluss residualer Emitter auf die Emissionseigenschaften eines einzelnen resonanten Quantenpunktes untersucht. Hierzu wurde das Modell des Einzel-Quantenpunkt-Lasers um Beiträge der Hintergrundemission erweitert. Zunächst erfolgte eine phänomenologische Beschreibung durch Ankopplung eines Reservoirs, verbunden mit einer direkten Erzeugung von Photonen in der Kavitätsmode. Es wurde gezeigt, dass dieser Ansatz auf eine rein thermische Photonenstatistik und Artefakte in Abhängigkeit der gewählten Parameter führt. Tatsächlich muss die Photonen-Emission der Hintergrundemitter die Eigenschaf-

ten des Gewinn-Materials widerspiegeln. Als alternative Methode wurde das Random-Injection-Modell vorgeschlagen, was die Freiheitsgrade der zusätzlichen Emitter effektiv berücksichtigt. Demonstriert wurde, dass die Hintergrundemission infolgedessen zur kohärenten Emission beiträgt. Dieses Ergebnis wurde unterstützt durch eine mikroskopische Beschreibung, wobei bis zu vier an die Kavitätsmode gekoppelte Quantenpunkte in der von-Neumann-Lindblad-Gleichung berücksichtigt werden konnten. Nichtresonante Kopplung zwischen den Emitterresonanzen und der Kavitätsmode wurde durch Phononen ermöglicht. Im Polaron-Bild konnten effektive Lindblad-Beiträge formuliert werden, die Phonon-assistierte Rekombinationsprozesse beschreiben und eine spektrale Verstimmung von wenigen meV überbrücken können. Dies führte zu einer erhöhten Emission nichtresonant gekoppelter Quantenpunkte, die den Unterschied zwischen einer thermischen und kohärenten Photonenstatistik ausmacht. Zusätzlich wurde als ein alternativer Mechanismus der nichtresonanten Emission die Coulomb-assistierte Rekombination identifiziert, wobei Auger-artige Streuprozesse der Ladungsträger der Benetzungsschicht die energetische Verstimmung kompensieren. Der beschriebene Mechanismus existiert neben anderen Prozessen, wie der Phonon-assistierten Rekombination, die nur für kleine Verstimmungen effektiv ist, oder Multi-Exziton-Effekten, die Quantenpunkte mit mehreren Schalen erfordern. Für einen Quantenpunkt mit einem einzelnen gebundenen Zustand für Elektronen und Löchern und einer hohen Ladungsträgerdichte in den delokalisierten Zuständen, wurde eine effiziente Kopplung für Verstimmungen bis zu 10 meV demonstriert. Wir haben zudem gezeigt, dass der beschriebene assistierte Interband-Streuprozess, trotz Signifikanz, im Vergleich zu den Intraband-Streuprozessen viel schwächer ist. Die Ursache liegt in den Korrelationen zwischen Elektron und Loch, die für eine Interband-Rekombination erforderlich ist, nicht jedoch für den Intraband-Streuprozess.

Ein weiterer Schwerpunkt dieser Arbeit ist die Erzeugung einzelner und verschränkter Photonen auf Basis einzelner Halbleiter-Quantenpunkte; dies ist Gegenstand von Kapitel 5. Der Einfluss gepulster Anregung auf die Güte der Einzel-Photonen-Emission wurde untersucht und hierzu die zeitintegrierte Photonen-Autokorrelationsfunktion  $g^{(2)}(0)$  verwendet. Für Pumpleistungen unterhalb der Sättigung des Quantenpunktes zeigt sich eine charakteristische Degradierung mit zunehmender Pulsbreite. Ist die Länge des Anregungspulses vergleichbar mit der Rekombinationszeit des Exzitons, so können weitere Elektronen und Löcher während des Pulses in die Quantenpunkt-Zustände eingefangen werden, was zu einer sukzessiven Emission von Photonen führt. Als Konsequenz sind nahezu alle früheren Experimente auf kurze und schwache Anregungspulse angewiesen. In einer Kooperation zwischen Theorie und Experiment wurde ein neues Schema vorgestellt, das auf starken und langen Pulsen basiert. Dies stellt sicher, dass während des Pumpimpulses mehr als ein Elektron-Loch-Paar im Quantenpunkt vorhanden ist. Als Resultat der Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Quantenpunkt-Ladungsträgern ist die Exziton-Rekombination während der Anregung vollständig unterdrückt und die Einzel-Photonen-Emission durch die Exziton-Rekombination findet erst zum Ende des Pulses statt, sodass das Photonen-Antibunching praktisch unabhängig von der Pulsdauer

er ist. Die Ergebnisse der mikroskopischen Theorie auf Basis der von-Neumann-Lindblad-Gleichung sind in exzellenter Übereinstimmung mit den experimentellen Resultaten und der vorgeschlagene Mechanismus konnte für ein elektrisch betriebenes Bauteil demonstriert werden. Hierdurch vereinfacht sich die elektrische Anregungssituation Quantenpunkt-basierter Einzel-Photonen-Quellen erheblich. Für einen Quantenpunkt in einer Mikrokavität hoher Güte wurde zudem die Erzeugung polarisationsverschränkter Photonenpaare unter Verwendung der direkten Zwei-Photonen-Emission des Quantenpunkt-Biexzitons untersucht. Es wurde gezeigt, dass die simultane Emission von zwei identischen Photonen dominant über den kaskadierten Biexziton-Exziton-Zerfall sein kann, wenn zwei Kavitätsmoden mit orthogonaler Polarisation auf die halbe Biexziton-Energie gestimmt werden. Anhand der berechneten Photonen-Korrelationsfunktion haben wir demonstriert, dass in diesem Fall die Polarisationsverschränkung zwischen den emittierten Photonen eine drastisch reduzierte Sensitivität in Bezug auf die Feinstrukturaufspaltung des Exzitons zeigt, was bisher einen limitierenden Faktor für diese Systeme darstellte.

In Kapitel 6 wurde eine mikroskopische Theorie zur Beschreibung der Lichtemission eines Ensembles von Halbleiter-Quantenpunkten vorgestellt, das mehrere elektronische Anregungszustände in Anwesenheit der Coulomb-Wechselwirkung sowie deren Kopplung an das quantisierte elektromagnetische Feld berücksichtigt. Während eine direkte (exakte) Lösung der zuvor verwendeten von-Neumann-Lindblad-Gleichung nur für kleine Hilberträume praktikabel ist, ermöglicht die Methode der Cluster-Entwicklung einen approximativen Zugang, um Korrelationseffekte systematisch zu beschreiben. Wir konnten demonstrieren, dass die endliche Zahl elektronischer Freiheitsgrade in Quantenpunkten zu stärkeren Korrelationen führt. Hierfür wurde ein Formalismus entwickelt, der die exakte Darstellung der elektronischen Freiheitsgrade des von-Neumann-Verfahrens mit einer Korrelationsentwicklung für die photonischen Freiheitsgrade kombiniert, was in der „finite-size hierarchy“ (FSH)-Methode resultiert. Durch Verwendung des Lindblad-Formalismus konnten zudem Streu- und Dephasierungsprozesse konsistent in den Bewegungsgleichungen berücksichtigt werden. Ergebnisse der FSH-Methode wurden für die Emission eines Quantenpunktes in den freien Raum gezeigt, wobei Ladungsträger-Korrelationen zu Multi-Exziton-Signaturen in den Lumineszenzspektren führen sowie für die zeitaufgelöste Photolumineszenz eines einzelnen Quantenpunktes, gekoppelt an eine Mikrokavitätsmode. Im letzten Fall war ein direkter Vergleich mit der von-Neumann-Lindblad-Gleichung möglich, der die Praktikabilität der FSH-Methode bestätigt.

## Ausblick

Für eine Fortsetzung der in dieser Arbeit vorgestellten Theorien gibt es mehrere Anknüpfungspunkte: Die nicht-störungstheoretische Beschreibung der Ladungsträgerstreuung in Quantenpunkten kann insbesondere dazu verwendet werden, eine realistische Modellierung der Relaxations- und Dissipationsdynamik für den einzelnen Quantenpunkt zu erhalten. Im Rahmen der Erzeugung einzelner Photonen kann die gepulste Anregung mikroskopisch beschrieben werden, um so eine Aussage über die maximale Repetitionsrate in Abhängigkeit von der Temperatur zu erhalten. Eine mögliche Erweiterung besteht in der Verwendung von Tight-Binding-Wellenfunktionen, um einen Zusammenhang zwischen den berechneten Streuraten und der konkreten Geometrie und Materialkomposition der Quantenpunkte herzustellen [165].

In Bezug auf den Einzel-Quantenpunkt-Laser haben schnelle Streu- und Dephasierungsprozesse einen maßgeblichen Einfluss auf das Erreichen des Regimes starker Kopplung. Signifikante Unterschiede ergaben sich zwischen den optisch aktiven Konfigurationen, wenn diese resonant mit der Kavitätsmode waren. Eine mikroskopische Beschreibung der Streuprozesse im Konfigurationsbild wäre daher erstrebenswert. Alternativ zur nichtresonanten Anregung von Ladungsträgern in der Barriere oder Benetzungsschicht können die lokalisierten Zustände auch resonant optisch gepumpt werden. Hierbei ist keine anregungsinduzierte Dephasierung zu erwarten [191], sodass die Rabi-Aufspaltung im Spektrum evtl. auch bei höherer Anregung erhalten bleibt. Zudem können Beiträge von Hintergrundemittern effizient unterdrückt werden. Um diesen Anregungsprozess zu beschreiben, kann der Beitrag des kohärenten optischen Feldes direkt im Hamiltonoperator berücksichtigt werden.

Außerdem wäre die Entwicklung eines Halbleitermodells wünschenswert, das eine größere Anzahl an Hintergrundemittern (typischerweise mehrere 100) explizit berücksichtigt und die verschiedenen nichtresonanten Kopplungsmechanismen (Multi-Exziton-Zustände, Phonon-assistierte- und Auger-assistierte Rekombinationsprozesse) enthält. Eine mögliche Problemstellung besteht in der Klärung der Diskrepanz zwischen der theoretisch vorhergesagten Emitterzahl zum Erreichen der stimulierten Emission und der experimentell abgeschätzten Anzahl an resonanten Quantenpunkt-Emittern [269, 280]. Ausgangspunkt ist hierbei die FSH-Methode, die um Beiträge der Lindblad-Terme für die nichtresonante Kopplung erweitert werden muss.

In Hinblick auf die bauteilrelevante Miniaturisierung und die Emissionsrate sind dielektrischen Systemen durch das Beugungslimit und die lange Lebensdauer der Photonen in einer Kavität hoher Güte Grenzen gesetzt. Einen Ausweg versprechen plasmonische Strukturen, in denen die Lichtausbreitung auf der Oberfläche eines Metalls als Polariton stattfindet [2, 273]. Bei einer Größe im Nanometerbereich bieten sie einen starken Einschluss des elektrischen Feldes, was zu einer weitaus stärkeren Ankopplung an den Emitter führt, als es mit optischen Kavitäten möglich ist. Durch das kleine Modenvolumen  $V$  konnten riesige Purcell-Verstärkungen  $> 100$  der Emissionsrate demonstriert werden [157, 229]. Kürzlich gelang zudem die expe-

rimentelle Umsetzung der Kopplung eines selbstorganisiert gewachsenen Quantenpunktes an eine plasmonische Nanostruktur [216]. Die Untersuchung der Wechselwirkung einer plasmonischen Anregung mit einem Quantenpunkt ist daher insbesondere in Bezug auf die Realisierung von Einzel-Photonen-Quellen mit hoher Repetitionsrate erstrebenswert [49]. Ausgangspunkt ist die Quantisierung des Lichtfeldes in Anwesenheit der plasmonischen Struktur, was durch die Verluste im Metall verkompliziert wird [67, 69]. Zwei Situationen könnten untersucht werden: Für ausgedehnte metallische Systeme wie z.B. plasmonische Wellenleiter ist die spektrale Dichte des elektromagnetischen Feldes kontinuierlich; entsprechend kann die Lösung der klassischen Maxwell-Gleichungen für eine Wellenleitergeometrie bestimmt werden. Durch Abspüren der Freiheitsgrade des elektromagnetischen Feldes ist es möglich, den Einfluss des plasmonischen Systems auf einen kohärenten hamiltonischen und einen dissipativen Beitrag mit entsprechenden Raten abzubilden [96]. Die Dynamik des gekoppelten Systems beschränkt sich dann auf die elektronischen Freiheitsgrade des Quantenpunktes mit mehreren Elektronen, die mit der von-Neumann-Lindblad-Gleichung berechnet werden kann. Alternativ kann die Kopplung eines Quantenpunktes an sogenannte Nanopartikel oder Nanoantennen untersucht werden, die in jeder Ausdehnungsrichtung auf eine Größenordnung von 10 – 100 nm eingeschränkt sind. In solchen Strukturen bilden sich aufgrund der Größenquantisierung lokalisierte Moden aus. Dies ermöglicht eine dominante Kopplung des Quantenpunktes an eine einzelne Plasmon-Mode [210], die in Analogie zur Jaynes-Cummings-Wechselwirkung beschrieben werden kann. Auf dieser Grundlage könnte z.B. die Realisierbarkeit starker Kopplung zwischen Emitter- und Plasmonanregung untersucht werden, was einen hoch aktuellen Forschungsgegenstand darstellt [95, 121].



## Anhang A

# Hintergrundemission im Random-Injection-Modell

In Abschnitt 4.1 haben wir das Random-Injection-Modell von Scully und Lamb [248, 264, 288] verwendet, um im Rahmen einer phänomenologischen Beschreibung der Emission nichtresonanter Emitter Sättigungseffekte zu berücksichtigen. Im Folgenden soll daher kurz skizziert werden, wie sich im Rahmen dieses Modells ein Beitrag zur Zeitentwicklung der Photonendichtematrix  $\rho_f^{n,m}$  ableiten lässt.

Angenommen, ein zwei-Niveau-System, beschrieben durch den Dichteoperator

$$\rho_{at} = |\alpha\rangle \rho_\alpha \langle\alpha| + |\beta\rangle \rho_\beta \langle\beta| , \quad (\text{A.1})$$

mit dem Grundzustand  $|\beta\rangle$  und dem angeregten Zustand  $|\alpha\rangle$ , tritt zum Zeitpunkt  $t = 0$  in Kontakt mit der Kavitätsmode, so ist der Gesamt-Dichteoperator des Systems aus Emitter und Feld gegeben durch

$$\rho(0) = \rho_{at} \otimes \rho_f(0) = \sum_{n,m} |\alpha, n\rangle \rho_\alpha \rho_f^{n,m} \langle\alpha, m| + \sum_{n,m} |\beta, n\rangle \rho_\beta \rho_f^{n,m} \langle\beta, m| . \quad (\text{A.2})$$

Während der Zeit  $\tau$  besteht ein Energieaustausch, vermittelt durch den Jaynes-Cummings-Hamiltonoperator

$$H_{e-pt} = gb^\dagger |\beta\rangle \langle\alpha| + gb |\alpha\rangle \langle\beta| , \quad (\text{A.3})$$

sodass die Dichtematrix zur Zeit  $t$  durch

$$\rho(t) = \Lambda_t[\rho(0)] := e^{-iH_{e-pt}t} \rho(0) e^{iH_{e-pt}t} \quad (\text{A.4})$$

gegeben ist. Mit Ausnahme des Grundzustandes  $|\beta, 0\rangle$  wechselwirken alle Zustände paarweise miteinander ( $|\alpha, n\rangle$  und  $|\beta, n+1\rangle$ ), sodass der Hamiltonoperator (A.3) eine  $2 \times 2$  Blockdiagonalgestalt besitzt. Somit folgt für den Zeitentwicklungsoperator bzgl. des  $n$ -ten Blockes:

$$e^{-iH_{e-pt}^n} = \begin{pmatrix} \cos(g\sqrt{n+1}t) & -i \sin(g\sqrt{n+1}t) \\ -i \sin(g\sqrt{n+1}t) & \cos(g\sqrt{n+1}t) \end{pmatrix}. \quad (\text{A.5})$$

Befinden sich alle Emitter zu Beginn der Zeitentwicklung im angeregten Zustand, so ist  $\rho_\alpha = 1$ ,  $\rho_\beta = 0$  und nach dem Abspüren der Emitter-Freiheitsgrade zum Ende des Wechselwirkungszeitraumes  $\tau$  folgt für die Photonendichtematrix:

$$\begin{aligned} \rho_f^{n,m}(\tau) &= \cos(g\sqrt{n+1}\tau) \cos(g\sqrt{m+1}\tau) \rho_f^{n,m}(0), \\ &+ \sin(g\sqrt{n+1}\tau) \sin(g\sqrt{m+1}\tau) \rho_f^{n-1,m-1}(0). \end{aligned} \quad (\text{A.6})$$

Werden die Emitter mit einer Rate  $\Gamma$  in das System eingebracht, so ist die Wahrscheinlichkeit, dass im Zeitraum  $[t, t+dt]$  genau ein Emitter injiziert wird, durch  $\Gamma dt$  gegeben. Entsprechend ist diese für genau  $k$  Emitter  $\sim (dt)^k$ , weshalb wir im Folgenden annehmen wollen, dass maximal ein Emitter gleichzeitig in die Kavität eingebracht wird. Ferner ist die Wahrscheinlichkeit, dass kein Emitter in die Kavität injiziert wird,  $1 - \Gamma dt$ . Hieraus folgt für die Zeitentwicklung des Photonendichteoperators:

$$\rho_f(t+dt) = (1 - \Gamma dt) \rho_f(t) + \Gamma dt \Lambda_\tau [\rho_f(t)] \quad (\text{A.7})$$

$$\text{bzw. } \frac{\partial}{\partial t} \rho_f(t) = \Gamma (\Lambda_\tau - 1) \rho_f(t). \quad (\text{A.8})$$

Das angeregte zwei-Niveau-System zerfällt exponentiell mit der Rate  $\gamma$ , sodass der Wechselwirkungszeitraum  $\tau$  mit einer Wahrscheinlichkeit  $P(\tau) = \gamma e^{-\gamma\tau}$  realisiert ist. Eine Mittelung der Gl. (A.8) über  $P(\tau)$  liefert schließlich einen Beitrag zur Zeitentwicklung der Photonendichtematrix:

$$\begin{aligned} \left. \frac{\partial}{\partial t} \rho_f^{n,m} \right|_{\text{cf}} &= -\Gamma \left[ \frac{\Delta_{n+1,m+1}}{1 + S\Delta_{n+1,m+1}} + \frac{\Sigma_{n+1,m+1}}{1 + S\Sigma_{n+1,m+1}} \right] \rho_f^{n,m} \\ &+ \Gamma \left[ \frac{\sqrt{nm}}{(1 + S\Delta_{n,m})(1 + S\Sigma_{n,m})} \right] \rho_f^{n-1,m-1}, \end{aligned} \quad (\text{A.9})$$

wobei die Notation  $\Delta_{n,m} = (\frac{\sqrt{n}-\sqrt{m}}{2})^2$  und  $\Sigma_{n,m} = (\frac{\sqrt{n}+\sqrt{m}}{2})^2$  verwendet und  $S$  als Sättigungskoeffizient bezeichnet wird.

## Anhang B

# Kubo-Martin-Schwinger-Bedingung

In dieser Arbeit haben wir häufig Gebrauch davon gemacht, dass die Lindblad-Raten  $\gamma_X$  und  $\gamma_{X^\dagger}$ , mit dem zugehörigen Systemoperator  $X$ , nicht unabhängig voneinander, sondern über den Boltzmann-Faktor verknüpft sind:

$$\gamma_{X^\dagger} = e^{-\beta\omega} \gamma_X, \quad (\text{B.1})$$

worin  $\beta = 1/(k_B T)$  die inverse Reservoir-Temperatur ist. Dieser Zusammenhang ist eine Konsequenz der Kubo-Martin-Schwinger- (KMS-) Bedingung [149, 173] für Korrelatoren im thermodynamischen Gleichgewicht

$$\langle A(t) B \rangle = \langle A B(t + i\beta) \rangle, \quad (\text{B.2})$$

wobei  $A$  und  $B$  beliebige Operatoren sind. Der Beweis folgt direkt aus der Invarianz der Spur unter zyklischer Vertauschung

$$\langle A(t) B \rangle = \frac{1}{Z} \text{Sp} \left[ e^{-\beta H} e^{iHt} A e^{-iHt} B \right] = \frac{1}{Z} \text{Sp} \left[ e^{iH(t+i\beta)} A e^{-iH(t+i\beta)} e^{-\beta H} B \right] \quad (\text{B.3})$$

$$= \frac{1}{Z} \text{Sp} \left[ B A(t + i\beta) e^{-\beta H} \right] = \langle A B(t + i\beta) \rangle, \quad (\text{B.4})$$

wobei  $Z =: \text{Sp} \left\{ e^{-\beta H} \right\}$  die kanonische Zustandssumme ist. Um nun den Bezug zur Gl. (B.1) herzustellen, gehen wir in den Frequenzraum über und zusammen mit der Definition

$$\varphi_{AB}(\omega) =: \int \langle A(t) B \rangle e^{i\omega t} dt \quad (\text{B.5})$$

und der KMS Relation (B.2) folgt

$$\varphi_{AB}(\omega) = e^{\beta\omega} \int \langle A B(t + i\beta) \rangle e^{i\omega(t+i\beta)} dt = e^{\beta\omega} \int \langle B A(t) \rangle e^{i\omega t} dt. \quad (\text{B.6})$$

Der letzte Schritt erfordert eine Deformation des Integrationsweges in der komplexen Ebene, wobei Analytizität angenommen wird (siehe auch [62]). Geht man nun im letzten Integral von  $t$  nach  $-t$  und verwendet, dass  $\langle B A(-t) \rangle = \langle B(t) A \rangle$  ist, so erhält man

$$\varphi_{AB}(\omega) = e^{\beta\omega} \varphi_{BA}(-\omega), \quad (\text{B.7})$$

was zusammen mit den Gln. (4.9) und (4.10) auf die Relation (B.1) zwischen Lindblad-Raten entgegengesetzter Streuprozesse führt.

## Anhang C

# Materialparameter für InGaAs Quantenpunkt-Systeme

In diesem Anhang sollen die für die numerischen Ergebnisse dieser Arbeit verwendeten Materialparameter angegeben werden. Soweit nicht anders bemerkt betrachten wir ein InGaAs-System mit flachen, linsenförmigen Quantenpunkten auf einer Benetzungsschicht. Wir nehmen für die effektive Elektron- und Lochmasse entsprechend einen Wert von  $m_e = 0.067 m_0$  und  $m_h = 0.15 m_0$  an sowie für die dielektrische Konstante  $\varepsilon = 12.5$  und für das Matrixelement optischer Dipolübergänge  $d_{cv} = 0.5 \text{ nm} \cdot e$ . Eine Dicke der Benetzungsschicht von 2.2 nm sowie eine zusätzliche Höhe des Quantenpunktes von 2.1 nm wird verwendet; dies führt zu einer großen energetischen Aufspaltung der Subbänder in z-Richtung, sodass nur der energetisch niedrigste gebundene Zustand in dieser Richtung betrachtet wird. Für die endliche Höhe des Einschlusspotentials für Elektronen und Löcher werden entsprechend 350 und 170 meV verwendet, sodass ein gleicher Einschluss der Wellenfunktion für Elektronen und Löcher in z-Richtung angenommen werden kann. Ferner verwenden wir gleiche Einhüllenden der Quantenpunkt-Wellenfunktion für Elektronen und Löcher in der Ebene, wobei das zugehörige Einschlusspotential durch das eines zwei-dimensionalen harmonischen Oszillators modelliert wird, wobei wir für die Oszillatorlänge von  $\alpha = 5.4 \text{ nm}$  ausgehen. Die Einteilchenenergien der  $s$ -Zustände für Elektronen und Löcher sind dann 80 meV und 30 meV sowie für die angeregten  $p$ -Zustände 40 meV und 15 meV, jeweils unterhalb der Kontinuumszustände der Benetzungsschicht. Für eine detaillierte Beschreibung der Wellenfunktionen des gekoppelten Quantenpunkt-Benetzungsschicht-Systems und der Konstruktion der Coulomb-Matrixelemente verweisen wir auf [10, 200].



## Anhang D

# Bewegungsgleichungen der FSH Methode

Im Kapitel 6 haben wir die „finite-size hierarchy“ (FSH) Bewegungsgleichungsmethode formuliert. Eine konsistente Beschreibung der Licht-Materie-, Coulomb- und System-Reservoir-Wechselwirkung konnte erreicht werden, indem wir eine exakte Beschreibung der Ladungsträger-Freiheitsgrade mit einer approximativen Behandlung der Hierarchie bzgl. der Photonenoperatoren im Rahmen der Cluster-Entwicklung kombiniert haben. Um die Diskussion in Abschnitt 6.2 transparent zu gestalten, haben wir nur Bezug auf ausgewählte Beiträge genommen. Der Vollständigkeit wegen formulieren wir im Folgenden die Bewegungsgleichungen bis zur Ordnung  $M_{\text{trunc}} = 1$ ,  $N_{\text{max}} = 2$ , die in den Rechnungen in Abschnitt 6.4 und 6.3 verwendet wurden. Die Herleitung der Gleichungen folgt dabei dem gleichen Schema, das wir in Abschnitt 6.2 vorgestellt haben.

### D.1. Licht-Materie-Wechselwirkung

Betrachtet man die Beiträge der Licht-Materie-Wechselwirkung zur Bewegungsgleichung der Besetzungen, so erhält man

$$\frac{d}{dt} f_i^c|_{H_{\text{LM}}} = -\frac{d}{dt} f_i^v|_{H_{\text{LM}}} = -2\text{Re} \sum_{\xi} g_{\xi}^* \Pi_{\xi,i}, \quad (\text{D.1})$$

was an die Photon-assistierte Polarisierung  $\Pi_{\xi,i}$  gekoppelt ist. Die zugehörigen dynamischen Gleichungen lauten

$$\frac{d}{dt} \Pi_{\xi,i}|_{H_{\text{LM}}} = g_{\xi} f_i^c (1 - f_i^v) + \sum_{\mu} g_{\xi} C_{\mu i i \mu}^x \quad (\text{D.2})$$

und enthalten die Interband-Korrelationen der Quantenpunkt-Ladungsträger  $C_{ijkl}^x$ . Im Gegensatz zu Gl. (6.19) wurden die Photonenbesetzung  $\mathcal{N}_\xi$  und die Ladungsträger-Photon-Korrelationen  $\mathcal{N}_{\xi,i}^c$  und  $\mathcal{N}_{\xi,i}^v$  vernachlässigt, da hier die maximale Ordnung bzgl. der Photonen auf die Ordnung  $M_{\text{trunc}} = 1$  beschränkt ist.

Die Bewegungsgleichungen für die Interband-Korrelationen der Ladungsträger

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} C_{ijkl}^x|_{H_{\text{LM}}} &= \sum_{\xi} \left[ g_{\xi} (f_j^c - f_j^v) \Pi_{\xi,i}^* + g_{\xi}^* (f_i^c - f_i^v) \Pi_{\xi,j} \right] \delta_{il} \delta_{jk} \\ &+ \sum_{\xi} \left( g_{\xi} \Pi_{\xi,ijkl}^{c*} + g_{\xi}^* \Pi_{\xi,ijkl}^c - g_{\xi} \Pi_{\xi,ijkl}^{v*} - g_{\xi}^* \Pi_{\xi,ijkl}^v \right) \end{aligned} \quad (\text{D.3})$$

sowie der Ladungsträgerkorrelationen im Leitungsband

$$\frac{d}{dt} C_{ijkl}^c|_{H_{\text{LM}}} = \sum_{\xi} \left( g_{\xi} \Pi_{\xi,ijlk}^{c*} - g_{\xi} \Pi_{\xi,ijkl}^{c*} + g_{\xi}^* \Pi_{\xi,jikl}^c - g_{\xi}^* \Pi_{\xi,ijkl}^c \right)$$

enthalten Beiträge höherer Ordnung  $\Pi_{\xi,ijkl}^c$  und  $\Pi_{\xi,ijkl}^v$ , die selbst einer dynamischen Gleichung genügen. Ein ähnlicher Ausdruck für die Ladungsträgerkorrelationen im Valenzband kann unter Verwendung der Symmetrieeigenschaften des Hamilton-Operators gefunden werden.

Durch die begrenzte Anzahl an Einteilchenzuständen (siehe Abschnitt 6.2) in Verbindung mit Streuprozessen, die im elektronischen System die Gesamtzahl an Anregungen erhalten, bricht die elektronische Hierarchie bei der Ordnung  $N_{\text{max}} = 2$  automatisch ab. Daher erhalten wir zusammen mit den Bewegungsgleichungen

$$\frac{d}{dt} \Pi_{\xi,ijkl}^c|_{H_{\text{LM}}} = g_{\xi} C_{ijkl}^c + (g_{\xi}^* \Pi_{\xi,i} \Pi_{\xi,j} - g_{\xi} f_i^c f_j^c f_j^v + f_i^c \sum_{\mu} g_{\xi} C_{\mu jj\mu}^x) (\delta_{ik} \delta_{jl} - \delta_{il} \delta_{jk}) \quad (\text{D.4})$$

und

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \Pi_{\xi,ijkl}^v|_{H_{\text{LM}}} &= g_{\xi} C_{ijkl}^x - g_{\xi} C_{jikl}^x \\ &+ (g_{\xi}^* \Pi_{\xi,l} \Pi_{\xi,k} + g_{\xi} f_k^c f_k^v f_l^v - f_l^v \sum_{\mu} g_{\xi} C_{\mu kk\mu}^x) (\delta_{il} \delta_{jk} - \delta_{ik} \delta_{jl}) \end{aligned} \quad (\text{D.5})$$

einen geschlossenen Satz Gleichungen bis zur Ordnung  $M_{\text{trunc}} = 1$ ,  $N_{\text{max}} = 2$ , indem wir Beiträge durch die Korrelationsfunktionen  $\delta \langle b_{\xi}^{\dagger} b_{\xi} c_i^{\dagger} c_j^{\dagger} c_k c_l \rangle$ ,  $\delta \langle b_{\xi}^{\dagger} b_{\xi} v_i^{\dagger} v_j^{\dagger} v_k v_l \rangle$ ,  $\delta \langle b_{\xi}^{\dagger} b_{\xi} c_i^{\dagger} v_j^{\dagger} c_k v_l \rangle$  und  $\delta \langle b_{\xi}^{\dagger} b_{\xi} v_i^{\dagger} v_j^{\dagger} c_k c_l \rangle$  vernachlässigen, die zweiter Ordnung in der Hierarchie der Photonenoperatoren sind.

An diesem Punkt haben wir Bewegungsgleichungen für alle relevanten Korrelationsfunktionen formuliert. Die Beiträge der Coulomb- und System-Reservoir-Wechselwirkung werden nachfolgend angegeben und führen lediglich auf bereits bekannte Größen.



## D.2. Coulomb-Wechselwirkung

Die Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung ist von zentraler Bedeutung für das physikalische Verhalten von Halbleiter-Nanostrukturen. Anders als in atomaren Systemen können Coulomb-Effekte hier von der gleichen Größenordnung wie der energetische Abstand zwischen den lokalisierten elektronischen Zuständen sein und die Renormierungen der Konfigurationsenergien der Multi-Exziton-Zustände können einen starken Einfluss auf die dynamischen und spektralen Eigenschaften des Systems haben.

Betrachten wir erneut die Bewegungsgleichungen der Ladungsträgerbesetzungen, so erhalten wir für die Beiträge des Hamiltonoperators der Coulomb-Wechselwirkung (6.3)

$$\frac{d}{dt} f_i^c \Big|_{H_{e-e}} = -2\text{Im} \sum_{\mu\nu\alpha} V_{i\mu\nu\alpha} C_{i\mu\alpha\nu}^{x+c}, \quad (\text{D.6})$$

wobei die Abkürzung  $C_{ijkl}^{x+c} = C_{ijkl}^x + C_{ijkl}^c$  verwendet wurde. Ferner finden wir für die Korrelationsfunktionen höherer Ordnung

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \Pi_{\xi,i} \Big|_{H_{e-e}} &= i \sum_{\mu} \left\{ V_{i\mu i\mu} \left[ (1 + f_{\mu}^c - f_{\mu}^v) \Pi_{\xi,i} - (f_i^c - f_i^v) \Pi_{\xi,\mu} \right] \right. \\ &\quad \left. + \sum_{\nu\alpha} V_{i\mu\nu\alpha} (\Pi_{\xi,\mu i\nu\alpha}^c + \Pi_{\xi,i\mu\alpha\nu}^v) + \sum_{\nu\alpha} V_{i\mu\nu\alpha}^* (\Pi_{\xi,\nu\alpha i\mu}^c + \Pi_{\xi,\nu\alpha i\mu}^v) \right\}, \end{aligned} \quad (\text{D.7})$$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} C_{ijkl}^x \Big|_{H_{e-e}} &= i V_{ijlk}^* (f_i^c f_j^v - f_k^c f_l^v) \\ &\quad + i \sum_{\mu\nu} (V_{ij\mu\nu}^* C_{\nu\mu kl}^x - V_{kl\mu\nu} C_{ij\nu\mu}^x + V_{k\mu\mu\nu} C_{ij\nu l}^x - V_{i\mu\mu\nu}^* C_{\nu jkl}^x) \\ &\quad + i \sum_{\mu\nu} [(V_{i\mu\mu\nu} - V_{\mu\nu\mu}) C_{ijk\nu}^x + (V_{j\mu\nu\mu}^* - V_{j\mu\mu\nu}^*) C_{i\nu kl}^x] \\ &\quad - i \sum_{\mu} [V_{i\mu\mu k}^* (f_i^c - f_k^c) f_j^v \delta_{jl} + (V_{j\mu l\mu}^* - V_{j\mu\mu l}^*) f_i^c (f_l^v - f_j^v) \delta_{ik}] \\ &\quad - 2\text{Im} \left\{ \sum_{\mu\nu\alpha} (f_j^v V_{i\mu\nu\alpha} C_{i\mu\alpha\nu}^{x+c} + f_i^c V_{j\mu\nu\alpha} C_{\mu j\nu\alpha}^{x+v}) \right\} \delta_{ik} \delta_{jl}, \end{aligned} \quad (\text{D.8})$$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} C_{ijkl}^c \Big|_{H_{e-e}} &= i (V_{ijkl}^* - V_{ijlk}^*) (f_k^c f_l^c - f_i^c f_j^c) \\ &\quad + i \sum_{\mu\nu} [V_{i\mu\mu\nu} C_{ij k\nu}^c - V_{k\mu\mu\nu} C_{ij l\nu}^c + V_{kl\mu\nu} C_{ij\mu\nu}^c \\ &\quad + V_{i\mu\mu\nu}^* C_{j\nu kl}^c - V_{j\mu\mu\nu}^* C_{i\nu kl}^c - V_{ij\mu\nu}^* C_{\mu\nu kl}^c] \\ &\quad + i \sum_{\mu} [V_{i\mu\mu k}^* f_j^c (f_k^c - f_i^c) \delta_{jl} - V_{i\mu\mu l}^* f_j^c (f_l^c - f_i^c) \delta_{jk}] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& -i \sum_{\mu} \left[ V_{j\mu\mu k}^* f_i^c (f_k^c - f_j^c) \delta_{il} - V_{j\mu\mu l}^* f_i^c (f_l^c - f_j^c) \delta_{ik} \right] \\
& - 2\text{Im} \left\{ \sum_{\mu\nu\alpha} \left[ f_j^c (V_{i\mu\nu\alpha} C_{i\mu\alpha\nu}^{x+c}) + f_i^c (V_{j\mu\nu\alpha} C_{j\mu\alpha\nu}^{x+c}) \right] \right\} (\delta_{ik}\delta_{jl} - \delta_{il}\delta_{jk}) , \quad (\text{D.9})
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{d}{dt} \Pi_{\xi,ijkl}^c \Big|_{H_{e-e}} &= i \sum_{\mu\nu} \left[ V_{l\mu\nu} \Pi_{\xi,ijk\nu}^c - V_{k\mu\nu} \Pi_{\xi,ijl\nu}^c + V_{kl\mu\nu} \Pi_{\xi,ij\mu\nu}^c \right. \\
& - V_{i\mu\mu\nu}^* \Pi_{\xi,\nu jkl}^c + V_{ij\mu\nu}^* \Pi_{\xi,\nu\mu kl}^c + (V_{j\mu\nu\mu}^* - V_{j\mu\mu\nu}^*) \Pi_{\xi,i\nu kl}^c \\
& + i \left[ V_{ijkl}^* (f_l^c \Pi_{\xi,k} - f_i^c \Pi_{\xi,j}) - V_{ijlk}^* (f_k^c \Pi_{\xi,l} - f_i^c \Pi_{\xi,j}) \right] \\
& + i f_i^c \sum_{\mu} \left\{ \left[ V_{j\mu\mu k}^* (\Pi_{\xi,j} - \Pi_{\xi,k}) + V_{j\mu k\mu}^* \Pi_{\xi,k} \right] \delta_{il} \right. \\
& \quad \left. - \left[ V_{j\mu\mu l}^* (\Pi_{\xi,j} - \Pi_{\xi,l}) + V_{j\mu l\mu}^* \Pi_{\xi,l} \right] \delta_{ik} \right\} \\
& + i \Pi_{\xi,j} \sum_{\mu} \left[ V_{i\mu\mu k}^* (f_k^c - f_i^c) \delta_{jl} - V_{i\mu\mu l}^* (f_l^c - f_i^c) \delta_{jk} \right] \\
& - 2\Pi_{\xi,j} \text{Im} \left( \sum_{\mu\nu\alpha} V_{i\mu\nu\alpha} C_{i\mu\alpha\nu}^{x+c} \right) (\delta_{ik}\delta_{jl} - \delta_{il}\delta_{jk}) \\
& + i f_i^c \sum_{\mu\nu\alpha} \left[ V_{j\mu\nu\alpha} (\Pi_{\xi,\mu j\nu\alpha}^c + \Pi_{\xi,j\mu\alpha\nu}^v) + V_{j\mu\nu\alpha}^* (\Pi_{\xi,\nu\alpha j\mu}^c + \Pi_{\xi,\nu\alpha j\mu}^v) \right] (\delta_{ik}\delta_{jl} - \delta_{il}\delta_{jk}) \\
& + i f_i^c \sum_{\mu} V_{j\mu j\mu} \left[ \Pi_{\xi,j} (1 - f_{\mu}^v + f_{\mu}^c) - \Pi_{\xi,\mu} (f_j^c - f_j^v) \right] (\delta_{ik}\delta_{jl} - \delta_{il}\delta_{jk}) , \quad (\text{D.10})
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{d}{dt} \Pi_{\xi,ijkl}^v \Big|_{H_{e-e}} &= -i V_{ijkl}^* [\Pi_{\xi,j} f_i^v - \Pi_{\xi,k} f_l^v] + i V_{ijlk}^* [\Pi_{\xi,i} f_j^v - \Pi_{\xi,k} f_l^v] \\
& - i \sum_{\mu} \left\{ V_{k\mu k\mu} [\Pi_{\xi,\mu} (f_k^c - f_{\mu}^v) - \Pi_{\xi,k} (f_{\mu}^c + f_{\mu}^h)] \right\} f_l^v (\delta_{ik}\delta_{jl} - \delta_{il}\delta_{jk}) \\
& + i \sum_{\mu\nu\alpha} \left[ V_{k\mu\nu\alpha} (\Pi_{\xi,\mu k\nu\alpha}^c + \Pi_{\xi,k\mu\alpha\nu}^v) + V_{k\mu\nu\alpha}^* (\Pi_{\xi,\nu\alpha k\mu}^c + \Pi_{\xi,\nu\alpha k\mu}^v) \right] f_l^v (\delta_{ik}\delta_{jl} - \delta_{il}\delta_{jk}) \\
& - 2\Pi_{\xi,k} \text{Im} \left( \sum_{\mu\nu\alpha} V_{l\mu\nu\alpha} C_{\mu l\nu\alpha}^{x+v} \right) (\delta_{ik}\delta_{jl} - \delta_{il}\delta_{jk}) \\
& + i \sum_{\mu\nu} \left[ V_{k\mu\mu\nu} \Pi_{\xi,ij\nu l}^v - V_{kl\mu\nu} \Pi_{\xi,ij\nu\mu}^v + (V_{l\mu\mu\nu} - V_{l\mu\nu\mu}) \Pi_{\xi,ijk\nu}^v \right] \\
& + i \sum_{\mu\nu} \left[ (V_{i\mu\mu\nu}^* - V_{i\mu\nu\mu}^*) \Pi_{\xi,j\nu kl}^v - V_{ij\mu\nu}^* \Pi_{\xi,\mu\nu kl}^v + (V_{j\mu\nu\mu}^* - V_{j\mu\mu\nu}^*) \Pi_{\xi,i\nu kl}^v \right] \\
& - i \Pi_{\xi,k} \sum_{\mu} \left[ (V_{i\mu k\mu}^* - V_{i\mu\mu k}^*) \delta_{jl} - (V_{j\mu k\mu}^* - V_{j\mu\mu k}^*) \delta_{il} \right] f_l^v \\
& - i \Pi_{\xi,k} \sum_{\mu} \left[ (V_{i\mu l\mu}^* - V_{i\mu\mu l}^*) (f_i^v - f_l^v) \delta_{jk} - (V_{j\mu l\mu}^* - V_{j\mu\mu l}^*) (f_j^v - f_l^v) \delta_{ik} \right] \\
& - i f_l^v \sum_{\mu} \left[ V_{i\mu\mu k}^* \Pi_{\xi,i} \delta_{jl} - V_{j\mu\mu k}^* \Pi_{\xi,j} \delta_{il} \right] . \quad (\text{D.11})
\end{aligned}$$

### D.3. System-Reservoir-Wechselwirkung

Die Beiträge der System-Reservoir-Wechselwirkung folgen durch Auswertung der Lindblad-Terme in Gl. (6.6). Für die Kavitätsverluste erfolgte dies bereits in der Diskussion von Abschnitt 6.2.2.

#### D.3.1. Streuprozesse

Die Intraband-Streuprozesse führen zu einer Umverteilung von Ladungsträgern und einer Dephasierung optischer Polarisationen sowie zu Korrelationseffekten. Zu beachten ist, dass zur Auswertung der Summe in Gl. (6.25)  $\gamma_{\mu\mu}^{cc} = 0$  zu setzen ist. Für die Streuprozesse im Leitungsband erhalten wir die folgenden Beiträge zu den Bewegungsgleichungen

$$\left. \frac{d}{dt} f_i^c \right|_{\text{scatt}} = \sum_{\mu} \gamma_{i\mu}^{cc} [f_{\mu}^c (1 - f_i^c) + C_{i\mu i\mu}^c] - \sum_{\mu} \gamma_{\mu i}^{cc} [f_i^c (1 - f_{\mu}^c) + C_{i\mu i\mu}^c] , \quad (\text{D.12})$$

$$\left. \frac{d}{dt} \Pi_{\xi,i} \right|_{\text{scatt}} = -\frac{1}{2} \sum_{\mu} \gamma_{\mu i}^{cc} \Pi_{\xi,i} + \frac{1}{2} \sum_{\mu} (\gamma_{\mu i}^{cc} - \gamma_{i\mu}^{cc}) f_{\mu}^c \Pi_{\xi,i} \Pi_{\xi,\mu i\mu}^c , \quad (\text{D.13})$$

$$\begin{aligned} \left. \frac{d}{dt} C_{ijkl}^x \right|_{\text{scatt}} &= \sum_{\mu} [\gamma_{i\mu}^{cc} C_{\mu j\mu l}^x \delta_{ik} - \frac{1}{2} (\gamma_{\mu i}^{cc} + \gamma_{\mu k}^{cc}) C_{ij\mu l}^x] \\ &\quad - \sum_{\mu} (\gamma_{i\mu}^{cc} - \gamma_{\mu i}^{cc}) (f_i^c f_{\mu}^c - C_{i\mu i\mu}^c) f_j^c \delta_{ik} \delta_{jl} , \end{aligned} \quad (\text{D.14})$$

$$\begin{aligned} \left. \frac{d}{dt} C_{ijkl}^c \right|_{\text{scatt}} &= \frac{1}{2} (\gamma_{ij}^{cc} + \gamma_{ji}^{cc} + \gamma_{kl}^{cc} + \gamma_{lk}^{cc}) C_{ijkl}^c \\ &\quad + [\gamma_{ij}^{cc} f_j^c (f_j^c - f_i^c) - \gamma_{ji}^{cc} f_i^c (f_j^c - f_i^c)] (\delta_{ik} \delta_{jl} - \delta_{il} \delta_{jk}) \\ &\quad - \frac{1}{2} \sum_{\mu} (\gamma_{\mu i}^{cc} + \gamma_{\mu j}^{cc} + \gamma_{\mu k}^{cc} + \gamma_{\mu l}^{cc}) C_{ij\mu l}^c \\ &\quad + \sum_{\mu} (\gamma_{\mu i}^{cc} - \gamma_{i\mu}^{cc} + \gamma_{\mu j}^{cc} - \gamma_{j\mu}^{cc}) f_i^c f_j^c f_{\mu}^c (\delta_{ik} \delta_{jl} - \delta_{il} \delta_{jk}) \\ &\quad + \sum_{\mu} \gamma_{i\mu}^{cc} (C_{j\mu l\mu}^c \delta_{ik} - C_{j\mu k\mu}^c \delta_{il}) \\ &\quad + \sum_{\mu} \gamma_{j\mu}^{cc} (C_{i\mu k\mu}^c \delta_{jl} - C_{i\mu l\mu}^c \delta_{jk}) \\ &\quad + \sum_{\mu} [(\gamma_{i\mu}^{cc} - \gamma_{\mu i}^{cc}) f_j^c C_{i\mu i\mu}^c \\ &\quad + (\gamma_{j\mu}^{cc} - \gamma_{\mu j}^{cc}) f_i^c C_{j\mu j\mu}^c] (\delta_{ik} \delta_{jl} - \delta_{il} \delta_{jk}) , \end{aligned} \quad (\text{D.15})$$

$$\begin{aligned}
\left. \frac{d}{dt} \Pi_{\xi,ijkl}^v \right|_{\text{scatt}} &= -\frac{1}{2} \sum_{\mu} \gamma_{\mu k}^{cc} \Pi_{\xi,ijkl}^v \\
&\quad - \frac{1}{2} \sum_{\mu} \left( \gamma_{k\mu}^{cc} - \gamma_{\mu k}^{cc} \right) f_l^v \left( f_{\mu}^c \Pi_{\xi,k} + \Pi_{\xi,\mu k k \mu}^c \right) (\delta_{ik} \delta_{jl} - \delta_{il} \delta_{jk}) , \\
\left. \frac{d}{dt} \Pi_{\xi,ijkl}^c \right|_{\text{scatt}} &= \frac{1}{2} (\gamma_{kl}^{cc} + \gamma_{lk}^{cc}) \Pi_{\xi,ijkl}^c \\
&\quad + \left[ \gamma_{ij}^{cc} (f_j^c - \frac{1}{2} f_i^c) - \frac{1}{2} \gamma_{ji}^{cc} f_i^c \right] \Pi_{\xi,j} (\delta_{ik} \delta_{jl} - \delta_{il} \delta_{jk}) \\
&\quad - \frac{1}{2} \sum_{\mu} \left( \gamma_{\mu i}^{cc} + \gamma_{\mu k}^{cc} + \gamma_{\mu l}^{cc} \right) \Pi_{\xi,ijkl}^c \\
&\quad + \sum_{\mu} \gamma_{i\mu}^{cc} \left( \Pi_{\xi,\mu j k \mu}^c \delta_{il} - \Pi_{\xi,\mu j l \mu}^c \delta_{ik} \right) \\
&\quad + \sum_{\mu} \left[ \left( \gamma_{\mu i}^{cc} - \gamma_{i\mu}^{cc} \right) \left( f_i^c f_{\mu}^c - C_{i\mu i \mu}^c \right) \Pi_{\xi,j} \right. \\
&\quad \left. + \frac{1}{2} \left( \gamma_{\mu j}^{cc} - \gamma_{j\mu}^{cc} \right) \left( f_{\mu}^c \Pi_{\xi,j} + \Pi_{\xi,\mu j j \mu}^c \right) f_i^c \right] (\delta_{ik} \delta_{jl} - \delta_{il} \delta_{jk}) .
\end{aligned} \tag{D.16}$$

Ein ähnlicher Satz Gleichungen kann für die Intraband-Streuung im Valenzband gefunden werden.

### D.3.2. Pumpanregung

In Gl. (6.32) haben wir die Lindblad-Beiträge für den paarweisen Einfang von Ladungsträgern in den Quantenpunkt  $p$ -Zustand formuliert. Allgemeiner ist für den Einfang in den Zustand  $|\mu\rangle$  der entsprechende Lindblad-Term durch

$$\left. \frac{d}{dt} \langle A \rangle \right|_{\text{pump}} = \frac{P_{\mu}(t)}{2} \left( \langle [v_{\mu}^{\dagger} c_{\mu}, A] c_{\mu}^{\dagger} v_{\mu} \rangle + \langle v_{\mu}^{\dagger} c_{\mu} [A, c_{\mu}^{\dagger} v_{\mu}] \rangle \right) \tag{D.17}$$

gegeben, mit der zugehörigen Rate  $P_{\mu}(t)$ . Dies führt auf die folgenden Beiträge zum betrachteten Satz von Bewegungsgleichungen:

$$\left. \frac{d}{dt} f_i^c \right|_{\text{pump}} = P_i(t) [(1 - f_i^c) f_i^v + C_{iii}^x] , \tag{D.18}$$

$$\left. \frac{d}{dt} \Pi_{\xi,i} \right|_{\text{pump}} = -\frac{1}{2} P_i(t) \Pi_{\xi,i} , \tag{D.19}$$

$$\begin{aligned}
\left. \frac{d}{dt} C_{ijkl}^x \right|_{\text{pump}} &= -\frac{1}{2} (P_j(t) + P_l(t)) C_{ijkl}^x + P_i(t) C_{ijil}^v \delta_{ik} \\
&\quad + \frac{1}{2} \left( P_i(t) C_{iikl}^x \delta_{ij} + P_k(t) C_{ijkk}^x \delta_{kl} \right) + P_i(t) (C_{iii}^x - f_i^c f_i^v) f_j^v \delta_{ik} \delta_{jl} \\
&\quad + P_j(t) \left( f_j^c f_j^v - C_{jjjj}^x \right) f_i^c \delta_{ik} \delta_{jl} + P_i(t) (f_i^v f_i^v - f_i^c f_i^v) \delta_{ij} \delta_{ik} \delta_{il} ,
\end{aligned} \tag{D.20}$$

$$\begin{aligned}
\frac{d}{dt} C_{ijkl}^c|_{\text{pump}} = & P_i(t) \left( C_{jili}^x \delta_{ik} - C_{jiki}^x \delta_{il} \right) + P_j(t) \left( C_{ijkj}^x \delta_{jl} - C_{ijlj}^x \delta_{jk} \right) \\
& + P_i(t) f_j^c \left( C_{iiii}^x - f_i^v f_i^c \right) (\delta_{ik} \delta_{jl} - \delta_{il} \delta_{jk}) \\
& + P_j(t) f_i^c \left( C_{jjjj}^x - f_j^v f_j^c \right) (\delta_{ik} \delta_{jl} - \delta_{il} \delta_{jk}) ,
\end{aligned} \tag{D.21}$$

$$\begin{aligned}
\frac{d}{dt} \Pi_{\xi,ijkl}^c|_{\text{pump}} = & -\frac{1}{2} P_j(t) \Pi_{\xi,ijkl}^c \\
& + \frac{1}{2} P_i(t) (\Pi_{\xi,iikl}^c \delta_{ij} + 2 \Pi_{\xi,ijk i}^v \delta_{il} - 2 \Pi_{\xi,ijli}^v \delta_{ik}) \\
& + P_i(t) \Pi_{\xi,j} (C_{iiii}^x - f_i^v f_i^c) (\delta_{ik} \delta_{jl} - \delta_{il} \delta_{jk}) ,
\end{aligned} \tag{D.22}$$

$$\begin{aligned}
\frac{d}{dt} \Pi_{\xi,ijkl}^v|_{\text{pump}} = & -\frac{1}{2} (P_i(t) + P_j(t) + P_l(t)) \Pi_{\xi,ijkl}^v + \frac{1}{2} P_k(t) \Pi_{\xi,ijkk}^v \delta_{kl} \\
& + P_l(t) \Pi_{\xi,k} (f_l^v f_l^c - C_{llll}^x) (\delta_{ik} \delta_{jl} - \delta_{il} \delta_{jk}) .
\end{aligned} \tag{D.23}$$



# Literaturverzeichnis

- [1] ABRIKOSOV, A. A. ; GORKOV, L. P. ; DZIALOSHINSKI, I. E. ...: *Methods of Quantum Field Theory in Statistical Physics*. Revised. Dover Publications, 1975
- [2] AKIMOV, A. V. ; MUKHERJEE, A. ; YU, C. L. ; CHANG, D. E. ; ZIBROV, A. S. ; HEMMER, P. R. ; PARK, H. ; LUKIN, M. D.: Generation of single optical plasmons in metallic nanowires coupled to quantum dots. In: *Nature* **450** (2007), 402–406
- [3] AKOPIAN, N. ; LINDNER, N. H. ; POEM, E. ; BERLATZKY, Y. ; AVRON, J. ; GERSHONI, D. ; GERARDOT, B. D. ; PETROFF, P. M.: Entangled photon pairs from semiconductor quantum dots. In: *Physical Review Letters* **96** (2006)
- [4] ANDERS, S. ; KIM, C. S. ; KLEIN, B. ; KELLER, M. W. ; MIRIN, R. P. ; NORMAN, A. G.: Bimodal size distribution of self-assembled  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  quantum dots. In: *Physical Review B* **66** (2002), 125309
- [5] ARAKAWA, Y. ; SAKAKI, H. : Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current. In: *Appl. Phys. Lett.* **40** (1982), 939
- [6] ASADA, M. ; MIYAMOTO, Y. ; SUEMATSU, Y. : Gain and the threshold of three-dimensional quantum-box lasers. In: *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-22** (1986), 1915
- [7] ATEs, S. ; M., S. Ulrich ; ULHAQ, A. ; REITZENSTEIN, S. ; LOFFLER, A. ; HOFLING, S. ; FORCHEL, A. ; MICHLER, P. : Non-resonant dot-cavity coupling and its potential for resonant single-quantum-dot spectroscopy. In: *Nat Photon* **3** (2009), 724–728
- [8] AUFFÈVES, A. ; GERACE, D. ; GÉRARD, J.-M. ; SANTOS, M. F. ; ANDREANI, L. C. ; POIZAT, J.-P. : Controlling the dynamics of a coupled atom-cavity system by pure dephasing. In: *Phys. Rev. B* **81** (2010), 245419
- [9] AUFFÈVES, A. ; GÉRARD, J.-M. ; POIZAT, J.-P. : Pure emitter dephasing: A resource for advanced solid-state single-photon sources. In: *Physical Review A* **79** (2009), 053838
- [10] BAER, N. ; GARTNER, P. ; JAHNKE, F. : Coulomb effects in semiconductor quantum dots. In: *Eur. Phys. J. B* **42** (2004), 231–237

- [11] BAER, N. ; GIES, C. ; WIERSIG, J. ; JAHNKE, F. : Luminescence of a Semiconductor Quantum Dot System. In: *Eur. Phys. J. B* **50** (2006), 411
- [12] BAER, N. ; SCHULZ, S. ; GARTNER, P. ; SCHUMACHER, S. ; CZYCHOLL, G. ; JAHNKE, F. : Influence of symmetry and Coulomb correlation effects on the optical properties of nitride quantum dots. In: *Phys. Rev. B* **76** (2007), 075310
- [13] BAER, N. ; SCHULZ, S. ; SCHUMACHER, S. ; GARTNER, P. ; CZYCHOLL, G. ; JAHNKE, F. : Optical properties of self-organized wurtzite InN/GaN quantum dots A combined atomistic tight-binding and full configuration interaction calculation. In: *Appl. Phys. Lett.* **87** (2005), 231114
- [14] BAER, N. : *Optical and Electronic Properties of InGaAs and Nitride Quantum Dots*, Universität Bremen, Diss., 2006
- [15] BÁNYAI, L. ; GARTNER, P. ; HAUG, H. : Self-consistent RPA retarded polaron Green function for quantum kinetics. In: *Eur. Phys. J. B* **1** (1998), 209
- [16] BARENCO, A. ; DUPERTUIS, M. A.: Quantum many-body states of excitons in a small quantum dot. In: *Physical Review B* **52** (1995), 2766–2778
- [17] BAUMANN, K. ; HEGERFELDT, G. C.: A Noncommutative Marcinkiewicz Theorem. In: *Publ. RIMS Kyoto Univ.* **21** (1985), 191
- [18] BEIRNE, G. J. ; REISCHLE, M. ; ROSSBACH, R. ; SCHULZ, W.-M. ; JETTER, M. ; SEEBECK, J. ; GARTNER, P. ; GIES, C. ; JAHNKE, F. ; MICHLER, P. : Electronic shell structure and carrier dynamics of high aspect ratio InP single quantum dots. In: *Physical Review B* **75** (2007), 195302
- [19] BELL, J. S.: On the Einstein Podolsky Rosen Paradox. In: *Physics* **1** (1964), 195–200
- [20] BENISTY, H. ; SOTOMAYOR-TORRES, C. M. ; WEISBUCH, C. : Intrinsic mechanism for the poor luminescence properties of quantum-box systems. In: *Phys. Rev. B* **44** (1991), 10945
- [21] BENNETT, A. J. ; UNITT, D. C. ; SEE, P. ; SHIELDS, A. J. ; ATKINSON, P. ; COOPER, K. ; RITCHIE, D. A.: Microcavity single-photon-emitting diode. In: *Applied Physics Letters* **86** (2005), 181102
- [22] BENNETT, C. H. ; BRASSARD, G. : Quantum cryptography: Public key distribution and coin tossing. In: *Proceedings of IEEE International Conference on Computers, Systems, and Signal Processing*. Bangalore, 1984, 175
- [23] BENSON, O. ; SANTORI, C. ; PELTON, M. ; YAMAMOTO, Y. : Regulated and entangled photons from a single quantum dot. In: *Physical Review Letters* **84** (2000), 2513–2516



- [24] BESOMBES, L. ; KHENG, K. ; MARSAL, L. ; MARIETTE, H. : Acoustic phonon broadening mechanism in single quantum dot emission. In: *Phys. Rev. B* **63** (2001), 155307
- [25] BESTER, G. ; NAIR, S. ; ZUNGER, A. : Pseudopotential calculation of the excitonic fine structure of million-atom self-assembled  $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$ /GaAs quantum dots. In: *Physical Review B* **67** (2003), 161306
- [26] BESTER, G. ; ZUNGER, A. : Cylindrically shaped zinc-blende semiconductor quantum dots do not have cylindrical symmetry: Atomistic symmetry, atomic relaxation, and piezoelectric effects. In: *Physical Review B* **71** (2005), 045318
- [27] BIMBERG, D. ; GRUNDMANN, M. ; LEDENTSOV, N. N.: *Quantum Dot Heterostructures*. 1. Auflage. John Wiley & Sons, 1998
- [28] BINDER, R. ; KOCH, S. W.: Nonequilibrium Semiconductor Dynamics. In: *Progress in Quant. Electron.* **19** (1995)
- [29] BINDER, R. ; SCOTT, D. ; PAUL, A. E. ; LINDBERG, M. ; HENNEBERGER, K. ; KOCH, S. W.: Carrier-carrier scattering and optical dephasing in highly excited semiconductors. In: *Physical Review B* **45** (1992), 1107–1115
- [30] BOCKELMANN, U. ; BASTARD, G. : Phonon scattering and energy relaxation in two-, one-, and zero-dimensional electron gases. In: *Phys. Rev. B* **42** (1990), 8947
- [31] BOCKELMANN, U. ; EGELER, T. : Electron relaxation in quantum dots by means of Auger processes. In: *Phys. Rev. B* **46** (1992), 15574
- [32] BOOZER, A. D. ; BOCA, A. ; BUCK, J. R. ; MCKEEVER, J. ; KIMBLE, H. J.: Comparison of theory and experiment for a one-atom laser in a regime of strong coupling. In: *Phys. Rev. A* **70** (2004), 023814
- [33] BORRI, P. ; LANGBEIN, W. ; SCHNEIDER, S. ; WOGGON, U. ; SELLIN, R. L. ; OUYANG, D. ; BIMBERG, D. : Ultralong Dephasing Time in InGaAs Quantum Dots. In: *Physical Review Letters* **87** (2001), 157401
- [34] BORRI, P. ; CESARI, V. ; LANGBEIN, W. : Measurement of the ultrafast gain recovery in InGaAs/GaAs quantum dots: Beyond a mean-field description. In: *Phys. Rev. B* **82** (2010), 115326
- [35] BOUWMEESTER, D. ; EKERT, A. K. ; ZEILINGER, A. : *The Physics of Quantum Information: Quantum Cryptography, Quantum Teleportation, Quantum Computation*. Auflage: 2000. Berlin ; New York : Springer, 2000

- [36] BRASKEN, M. ; LINDBERG, M. ; SOPANEN, M. ; LIPSANEN, H. ; TULKKI, J. : Temperature dependence of carrier relaxation in strain-induced quantum dots. In: *Phys. Rev. B* **58** (1998), 15993
- [37] BRENDDEL, J. ; GISIN, N. ; TITTEL, W. ; ZBINDEN, H. : Pulsed Energy-Time Entangled Twin-Photon Source for Quantum Communication. In: *Physical Review Letters* **82** (1999), 2594–2597
- [38] BREUER, H.-P. : *The Theory of Open Quantum Systems*. Oxford University Press, USA, 2007
- [39] BURAK, D. ; BINDER, R. : Cold-cavity vectorial eigenmodes of VCSELs. In: *IEEE J. Quantum Electron.* **33** (1997), 1205
- [40] BURT, M. G.: An exact formulation of the envelope function method for the determination of electronic states in semiconductor microstructures. In: *Semiconductor Science and Technology* **2** (1987), 460
- [41] BURT, M. G.: The justification for applying the effective-mass approximation to microstructures. In: *Journal of Physics: Condensed Matter* **4** (1992), 6651
- [42] CALIC, M. ; GALLO, P. ; FELICI, M. ; ATLASOV, K. A. ; DWIR, B. ; RUDRA, A. ; BIASIOL, G. ; SORBA, L. ; TAREL, G. ; SAVONA, V. ; KAPON, E. : Phonon-Mediated Coupling of InGaAs/GaAs Quantum-Dot Excitons to Photonic Crystal Cavities. In: *Phys. Rev. Lett.* **106** (2011), 227402
- [43] CARMELE, A. ; KNORR, A. : Analytical solution of the quantum-state tomography of the biexciton cascade in semiconductor quantum dots: Pure dephasing does not affect entanglement. In: *Phys. Rev. B* **84** (2011), 075328
- [44] CARMELE, A. ; MILDE, F. ; DACHNER, M.-R. ; HAROUNI, M. B. ; ROKNIZADEH, R. ; RICHTER, M. ; KNORR, A. : Formation dynamics of an entangled photon pair: A temperature-dependent analysis. In: *Phys. Rev. B* **81** (2010), 195319
- [45] CARMELE, A. ; RICHTER, M. ; CHOW, W. W. ; KNORR, A. : Antibunching of Thermal Radiation by a Room-Temperature Phonon Bath: A Numerically Solvable Model for a Strongly Interacting Light-Matter-Reservoir System. In: *Physical Review Letters* **104** (2010), 156801
- [46] CARMICHAEL, H. J.: *Statistical Methods in Quantum Optics 1*. Berlin : Springer, 1998
- [47] CARMICHAEL, H. J. ; BRECHA, R. J. ; RAIZEN, M. G. ; KIMBLE, H. J. ; RICE, P. R.: Sub-natural linewidth averaging for coupled atomic and cavity-mode oscillators. In: *Physical Review A* **40** (1989), 5516–5519

- [48] CARMICHAEL, H. ; OROZCO, L. A.: Quantum optics: Single atom lases orderly light. In: *Nature* **425** (2003), 246–247
- [49] CHANG, D. E. ; SØRENSEN, A. S. ; HEMMER, P. R. ; LUKIN, M. D.: Quantum Optics with Surface Plasmons. In: *Physical Review Letters* **97** (2006), 053002
- [50] CHAUVIN, N. ; ZINONI, C. ; FRANCARDI, M. ; GERARDINO, A. ; BALET, L. ; ALLOING, B. ; LI, L. H. ; FIORE, A. : Controlling the charge environment of single quantum dots in a photonic-crystal cavity. In: *Physical Review B* **80** (2009), 241306
- [51] CHOW, W. W. ; KOCH, S. W.: *Semiconductor-Laser Fundamentals*. Springer, 1999
- [52] CHOW, W. W. ; LORKE, M. ; JAHNKE, F. : Will Quantum Dots Replace Quantum Wells As the Active Medium of Choice in Future Semiconductor Lasers? In: *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* **17** (2011), 1349–1355
- [53] CHOW, W. W. ; JAHNKE, F. : On the physics of semiconductor quantum dots for applications in lasers and quantum optics. In: *Progress in Quantum Electronics* **37** (2013), 109–184
- [54] CIRAC, J. I. ; ZOLLER, P. : Quantum Computations with Cold Trapped Ions. In: *Physical Review Letters* **74** (1995), 4091–4094
- [55] CLAUDON, J. ; BLEUSE, J. ; MALIK, N. S. ; BAZIN, M. ; JAFFRENNOU, P. ; GREGERSEN, N. ; SAUVAN, C. ; LALANNE, P. ; GÉRARD, J.-M. : A highly efficient single-photon source based on a quantum dot in a photonic nanowire. In: *Nature Photonics* **4** (2010), 174–177
- [56] COHEN-TANNOUDJI, C. ; DUPONT-ROC, J. ; GRYNBERG, G. : *Photons and Atoms*. Wiley, New York, 1989
- [57] CUI, G. ; RAYMER, M. G.: Emission spectra and quantum efficiency of single-photon sources in the cavity-QED strong-coupling regime. In: *Phys. Rev. A* **73** (2006), 053807
- [58] CZYCHOLL, G. : *Theoretische Festkörperphysik: Von Den Klassischen Modellen Zu Modernen Forschungsthemen*. Springer, 2004
- [59] DALACU, D. ; MNAYMNEH, K. ; SAZONOVA, V. ; POOLE, P. J. ; AERS, G. C. ; LAPOINTE, J. ; CHERITON, R. ; SPRINGTHORPE, A. J. ; WILLIAMS, R. : Deterministic emitter-cavity coupling using a single-site controlled quantum dot. In: *Phys. Rev. B* **82** (2010), 033301
- [60] DANIELEWICZ, P. : Quantum theory of nonequilibrium processes, I. In: *Annals of Physics* **152** (1984), 239–304
- [61] DEKEL, E. ; GERSHONI, D. ; EHRENFREUND, E. ; SPEKTOR, D. ; GARCIA, J. M. ; PETROFF, P. M.: Multiexciton spectroscopy of a single self-assembled quantum dot. In: *Physical Review Letters* **80** (1998), 4991–4994

- [62] DONIACH, S. ; SONDHEIMER, E. H.: *Green's functions for solid state physicists*. London; River Edge, NJ : Imperial College Press ; Distributed by World Scientific Pub., 1998
- [63] DOU, X. M. ; CHANG, X. Y. ; SUN, B. Q. ; XIONG, Y. H. ; NIU, Z. C. ; HUANG, S. S. ; NI, H. Q. ; DU, Y. ; XIA, J. B.: Single-photon-emitting diode at liquid nitrogen temperature. In: *Applied Physics Letters* **93** (2008), 101107
- [64] DOUSSE, A. ; SUFFCZYNSKI, J. ; BEVERATOS, A. ; KREBS, O. ; LEMAITRE, A. ; SAGNES, I. ; BLOCH, J. ; VOISIN, P. ; SENELLART, P. : Ultrabright source of entangled photon pairs. In: *Nature* **466** (2010), 217–220
- [65] DREXLER, H. ; LEONARD, D. ; HANSEN, W. ; KOTTHAUS, J. P. ; PETROFF, P. M.: Spectroscopy of Quantum Levels in Charge-Tunable InGaAs Quantum Dots. In: *Physical Review Letters* **73** (1994), 2252–2255
- [66] DUBOIS, D. F.: Nonequilibrium Quantum Statistical Mechanics of Plasmas and Radiation. In: BRITTIN, W. E. (Hrsg.) u. a.: *Lectures in Theoretical Physics* Bd. 9 C. Gordon and Breach, 1967, 469–620
- [67] DUNG, H. T. ; KNÖLL, L. ; WELSCH, D.-G. : Resonant dipole-dipole interaction in the presence of dispersing and absorbing surroundings. In: *Physical Review A* **66** (2002), 063810
- [68] DUTT, M. V. G. ; CHILDRESS, L. ; JIANG, L. ; TOGAN, E. ; MAZE, J. ; JELEZKO, F. ; ZIBROV, A. S. ; HEMMER, P. R. ; LUKIN, M. D.: Quantum Register Based on Individual Electronic and Nuclear Spin Qubits in Diamond. In: *Science* **316** (2007), 1312–1316
- [69] DZSOTJAN, D. ; SØRENSEN, A. S. ; FLEISCHHAUER, M. : Quantum emitters coupled to surface plasmons of a nanowire: A Green's function approach. In: *Physical Review B* **82** (2010), 075427
- [70] EBERLY, J. H. ; WÓDKIEWICZ, K. : The time-dependent physical spectrum of light. In: *Journal of the Optical Society of America* **67** (1977), 1252–1261
- [71] EDAMATSU, K. : Entangled Photons: Generation, Observation, and Characterization. In: *Japanese Journal of Applied Physics* **46** (2007), 7175
- [72] EFROS, A. L. ; KHARCHENKO, V. A. ; ROSEN, M. : Breaking of the phonon bottleneck in nanometer quantum dots role of Auger-like processes. In: *Solid State Commun.* **93** (1995), 281
- [73] FAFARD, S. ; WASILEWSKI, Z. R. ; ALLEN, C. N. ; PICARD, D. ; SPANNER, M. ; MCCAFFREY, J. P. ; PIVA, P. G.: Manipulating the energy levels of semiconductor quantum dots. In: *Phys. Rev. B* **59** (1999), 15368–15373

- 
- [74] FAVERO, I. ; CASSABOIS, G. ; FERREIRA, R. ; DARSON, D. ; VOISIN, C. ; TIGNON, J. ; DELALANDE, C. ; BASTARD, G. ; ROUSSIGNOL, P. ; GÉRARD, J. M.: Acoustic phonon sidebands in the emission line of single InAs/GaAs quantum dots. In: *Physical Review B* **68** (2003), 233301
- [75] FELDTMANN, T. ; SCHNEEBELI, L. ; KIRA, M. ; KOCH, S. W.: Quantum theory of light emission from a semiconductor quantum dot. In: *Phys. Rev. B* **73** (2006), 155319
- [76] FERREIRA, R. ; BASTARD, G. : Phonon-assisted capture and intradot Auger relaxation in quantum dots. In: *Appl. Phys. Lett.* **74** (1999), 2818
- [77] FLISSIKOWSKI, T. ; BETKE, A. ; AKIMOV, I. A. ; HENNEBERGER, F. : Two-Photon Coherent Control of a Single Quantum Dot. In: *Physical Review Letters* **92** (2004), 227401
- [78] FLORIAN, M. ; GARTNER, P. ; GIES, C. ; JAHNKE, F. : Phonon-mediated off-resonant coupling effects in semiconductor quantum-dot lasers. In: *New Journal of Physics* **15** (2013), 035019
- [79] FLORIAN, M. ; GARTNER, P. ; STEINHOFF, A. ; GIES, C. ; JAHNKE, F. : Coulomb-assisted cavity feeding in nonresonant optical emission from a quantum dot. In: *Physical Review B* **89** (2014), 161302(R)
- [80] FLORIAN, M. ; GIES, C. ; GARTNER, P. ; JAHNKE, F. : Improved antibunching by using high-excitation pulses from a single semiconductor quantum dot – A theoretical study. In: *Journal of the Optical Society of America B* **29** (2012), A31–A35
- [81] FLORIAN, M. ; GIES, C. ; JAHNKE, F. ; LEYMAN, H. A. M. ; WIERSIG, J. : Equation-of-motion technique for finite-size quantum-dot systems: Cluster expansion method. In: *Physical Review B* **87** (2013), 165306
- [82] FRICKE, J. : Transport equations including many-particle correlations for an arbitrary quantum system A general formalism. In: *Ann. Phys.* **252** (1996), 479–498
- [83] GARDINER, C. ; ZOLLER, P. : *Quantum Noise A Handbook of Markovian and Non-Markovian Quantum Stochastic Methods with Applications to Quantum Optics*. Springer-Verlag, 2004
- [84] GARTNER, P. ; SEEBECK, J. ; JAHNKE, F. : Relaxation properties of the quantum kinetics of carrier-LO-phonon interaction in quantum wells and quantum dots. In: *Phys. Rev. B* **73** (2006), 115307

- [85] GERARDOT, B. D. ; SEIDL, S. ; DALGARNO, P. A. ; WARBURTON, R. J. ; GRANADOS, D. ; GARCIA, J. M. ; KOWALIK, K. ; KREBS, O. ; KARRAI, K. ; BADOLATO, A. ; PETROFF, P. M.: Manipulating exciton fine structure in quantum dots with a lateral electric field. In: *Applied Physics Letters* **90** (2007), 041101
- [86] GIES, C. : *Theory for Light-Matter Interaction in Semiconductor Quantum Dots*, Universität Bremen, Diss., 2008
- [87] GIES, C. ; FLORIAN, M. ; GARTNER, P. ; JAHNKE, F. : The single quantum dot-laser: lasing and strong coupling in the high-excitation regime. In: *Opt. Express* **19** (2011), 14370–14388
- [88] GIES, C. ; FLORIAN, M. ; GARTNER, P. ; JAHNKE, F. : Modelling single quantum dots in microcavities. In: JAHNKE, F. (Hrsg.): *Quantum Optics With Semiconductor Nanostructures*. 1. Cambridge, UK : Woodhead Publishing Limited, 2012
- [89] GIES, C. ; WIERSIG, J. ; LORKE, M. ; JAHNKE, F. : Semiconductor model for quantum-dot-based microcavity lasers. In: *Phys. Rev. A* **75** (2007), 013803
- [90] GISIN, N. ; RIBORDY, G. ; TITTEL, W. ; ZBINDEN, H. : Quantum cryptography. In: *Reviews of Modern Physics* **74** (2002), 145–195
- [91] GISIN, N. ; THEW, R. : Quantum communication. In: *Nature Photonics* **1** (2007), 165–171
- [92] GLÄSSL, M. ; BARTH, A. M. ; AXT, V. M.: Proposed Robust and High-Fidelity Preparation of Excitons and Biexcitons in Semiconductor Quantum Dots Making Active Use of Phonons. In: *Physical Review Letters* **110** (2013), 147401
- [93] GLAUBER, R. J.: The Quantum Theory of Optical Coherence. In: *Physical Review* **130** (1963), 2529–2539
- [94] GOLDMANN, E. ; BARTHEL, S. ; FLORIAN, M. ; SCHUH, K. ; JAHNKE, F. : Excitonic fine-structure splitting in telecom-wavelength InAs/GaAs quantum dots: Statistical distribution and height-dependence. In: *Applied Physics Letters* **103** (2013), 242102
- [95] GONZÁLEZ-TUDELA, A. ; HUIDOBRO, P. A. ; MARTÍN-MORENO, L. ; TEJEDOR, C. ; GARCÍA-VIDAL, F. J.: Theory of Strong Coupling between Quantum Emitters and Propagating Surface Plasmons. In: *Physical Review Letters* **110** (2013), 126801
- [96] GONZALEZ-TUDELA, A. ; MARTIN-CANO, D. ; MORENO, E. ; MARTIN-MORENO, L. ; TEJEDOR, C. ; GARCIA-VIDAL, F. J.: Entanglement of Two Qubits Mediated by One-Dimensional Plasmonic Waveguides. In: *Physical Review Letters* **106** (2011), 020501
- [97] GORINI, V. ; KOSSAKOWSKI, A. ; SUDARSHAN, E. C. G.: Completely positive dynamical semigroups of N-level systems. In: *Journal of Mathematical Physics* **17** (1976), 821–825

- [98] GRANGIER, P. ; SANDERS, B. ; VUCKOVIC, J. : Focus on Single Photons on Demand. In: *New Journal of Physics* **6** (2004)
- [99] GROVER, L. K.: Quantum Mechanics Helps in Searching for a Needle in a Haystack. In: *Physical Review Letters* **79** (1997), 325–328
- [100] GRUNDMANN, M. ; BIMBERG, D. : Theory of random population for quantum dots. In: *Phys. Rev. B* **55** (1997), 9740–9745
- [101] GRUNDMANN, M. ; STIER, O. ; BIMBERG, D. : InAs/GaAs pyramidal quantum dots: Strain distribution, optical phonons, and electronic structure. In: *Physical Review B* **52** (1995), 11969–11981
- [102] GÜNTER, G. ; ANAPPARA, A. A. ; HEES, J. ; SELL, A. ; BIASIOL, G. ; SORBA, L. ; DE LIBERATO, S. ; CIUTI, C. ; TREDICUCCI, A. ; LEITENSTORFER, A. ; HUBER, R. : Sub-cycle switch-on of ultrastrong light–matter interaction. In: *Nature* **458** (2009), 178–181
- [103] HAFENBRAK, R. ; ULRICH, S. M. ; MICHLER, P. ; WANG, L. ; RASTELLI, A. ; SCHMIDT, O. G.: Triggered polarization-entangled photon pairs from a single quantum dot up to 30K. In: *New Journal of Physics* **9** (2007), 315
- [104] HANBURY BROWN, R. ; TWISS, R. Q.: Correlation between Photons in two Coherent Beams of Light. In: *Nature* **177** (1956), 27–29
- [105] HAUG, H. ; JAUHO, A.-P. : *Quantum Kinetics in Transport and Optics of Semiconductors*. Springer, Berlin, 1996
- [106] HAUG, H. ; KOCH, S. : *Quantum theory of the optical and electronic properties of semiconductors*. World Scientific, 2004
- [107] HAWRYLAK, P. : Excitonic artificial atoms Engineering optical properties of quantum dots. In: *Phys. Rev. B* **60** (1999), 5597
- [108] HAYAT, A. ; GINZBURG, P. ; ORENSTEIN, M. : Observation of two-photon emission from semiconductors. In: *Nature Photonics* **2** (2008), 238–241
- [109] HE, L. ; GONG, M. ; LI, C.-F. ; GUO, G.-C. ; ZUNGER, A. : Highly Reduced Fine-Structure Splitting in InAs/InP Quantum Dots Offering an Efficient On-Demand Entangled 1.55  $\mu\text{m}$  Photon Emitter. In: *Physical Review Letters* **101** (2008), 157405
- [110] HEINDEL, T. ; SCHNEIDER, C. ; LERMER, M. ; KWON, S. H. ; BRAUN, T. ; REITZENSTEIN, S. ; HÖFLING, S. ; KAMP, M. ; FORCHEL, A. : Electrically driven quantum dot-micropillar single photon source with 34In: *Applied Physics Letters* **96** (2010), 011107



- [111] HEINDEL, T. ; KESSLER, C. A. ; RAU, M. ; SCHNEIDER, C. ; FÜRST, M. ; HARGART, F. ; SCHULZ, W.-M. ; EICHFELDER, M. ; ROSSBACH, R. ; NAUERTH, S. ; LERMER, M. ; WEIER, H. ; JETTER, M. ; KAMP, M. ; REITZENSTEIN, S. ; HÖFLING, S. ; MICHLER, P. ; WEINFURTER, H. ; FORCHEL, A. : Quantum key distribution using quantum dot single-photon emitting diodes in the red and near infrared spectral range. In: *New Journal of Physics* **14** (2012), 083001
- [112] HENDRICKSON, J. ; RICHARDS, B. C. ; SWEET, J. ; MOSOR, S. ; CHRISTENSON, C. ; LAM, D. ; KHITROVA, G. ; GIBBS, H. M. ; YOSHIE, T. ; SCHERER, A. ; SHCHEKIN, O. B. ; DEPPE, D. G.: Quantum dot photonic-crystal-slab nanocavities Quality factors and lasing. In: *Phys. Rev. B* **72** (2005), 193303
- [113] HENNEBERGER, K. ; MANZKE, G. ; MAY, V. ; ZIMMERMANN, R. : Nonequilibrium green's functions and kinetic equations for highly excited semiconductors II. Application to the study of nonlinear optical and transport properties of the many-exciton system. In: *Physica A* **138** (1986), 557
- [114] HENNEBERGER, K. ; MAY, V. : Nonequilibrium green's functions and kinetic equations for highly excited semiconductors I. General considerations. In: *Physica A* **138** (1986), 537
- [115] HENNESSY, K. ; BADOLATO, A. ; WINGER, M. ; GERACE, D. ; ATATÜRE, M. ; GULDE, S. ; FÄLT, S. ; HU, E. L. ; IMAMOĞLU, A. : Quantum nature of a strongly coupled single quantum dot-cavity system. In: *Nature* **445** (2007), 896–899
- [116] HOHENESTER, U. : Cavity quantum electrodynamics with semiconductor quantum dots: Role of phonon-assisted cavity feeding. In: *Physical Review B* **81** (2010), 155303
- [117] HOHENESTER, U. ; LAUCHT, A. ; KANIBER, M. ; HAUKE, N. ; NEUMANN, A. ; MOHTASHAMI, A. ; SELIGER, M. ; BICHLER, M. ; FINLEY, J. J.: Phonon-assisted transitions from quantum dot excitons to cavity photons. In: *Physical Review B* **80** (2009), 201311
- [118] HOHENESTER, U. ; ROSSI, F. ; MOLINARI, E. : Few-particle effects in the optical spectra of semiconductor quantum dots. In: *Solid State Communications* (1999), 187–192
- [119] HORODECKI, R. ; HORODECKI, P. ; HORODECKI, M. ; HORODECKI, K. : Quantum entanglement. In: *Reviews of Modern Physics* **81** (2009), 865–942
- [120] HOYER, W. ; KIRA, M. ; KOCH, S. W.: Influence of Coulomb and phonon interaction on the exciton formation dynamics in semiconductor heterostructures. In: *Phys. Rev. B* **67** (2003), 155113
- [121] HÜMMER, T. ; GARCÍA-VIDAL, F. J. ; MARTÍN-MORENO, L. ; ZUECO, D. : Weak and strong coupling regimes in plasmonic QED. In: *Physical Review B* **87** (2013), 115419



- [122] INOSHITA, T. ; SAKAKI, H. : Electron relaxation in a quantum dot Significance of multiphonon processes. In: *Phys. Rev. B* **46** (1992), 7260
- [123] INOSHITA, T. ; SAKAKI, H. : Density of states and phonon-induced relaxation of electrons in semiconductor quantum dots. In: *Phys. Rev. B* **56** (1997), 4355
- [124] JACOBI, K. : Atomic structure of InAs quantum dots on GaAs. In: *Progress in Surface Science* **71** (2003), 185
- [125] JAHNKE, F. : *Quantum optics with semiconductor nanostructures*. Oxford : Woodhead, 2012
- [126] JAKUBCZYK, T. ; PACUSKI, W. ; SMOLEŃSKI, T. ; GOLNIK, A. ; FLORIAN, M. ; JAHNKE, F. ; KRUSE, C. ; HOMMEL, D. ; KOSSACKI, P. : Pronounced Purcell enhancement of spontaneous emission in CdTe/ZnTe quantum dots embedded in micropillar cavities. In: *Applied Physics Letters* **101** (2012), 132105
- [127] JAMES, D. F. V. ; KWIAT, P. G. ; MUNRO, W. J. ; WHITE, A. G.: Measurement of qubits. In: *Physical Review A* **64** (2001), 052312
- [128] JASKÓLSKI, W. ; ZIELIŃSKI, M. ; BRYANT, G. W. ; AIZPURUA, J. : Strain effects on the electronic structure of strongly coupled self-assembled InAs/GaAs quantum dots: Tight-binding approach. In: *Physical Review B* **74** (2006), 195339
- [129] JIANG, H. ; SINGH, J. : Self-assembled semiconductor structures Electronic and optoelectronic properties. In: *IEEE J. Quantum Electron.* **34** (1998), 1188
- [130] KABUSS, J. ; CARMELE, A. ; BRANDES, T. ; KNORR, A. : Optically Driven Quantum Dots as Source of Coherent Cavity Phonons: A Proposal for a Phonon Laser Scheme. In: *Physical Review Letters* **109** (2012), 054301
- [131] KADANOFF, L. P. ; BAYM, G. : *Quantum Statistical Mechanics*. W. A. Benjamin, 1962
- [132] KANE, E. O.: Energy band theory. In: PAUL, W. (Hrsg.) ; MOSS, T. S. (Hrsg.): *Handbook on Semiconductors: Band Theory and Transport Properties v. 1*. Amsterdam u.a. : Elsevier Science Ltd, 1982
- [133] KANIBER, M. ; LAUCHT, A. ; NEUMANN, A. ; VILLAS-BÔAS, J. M. ; BICHLER, M. ; AMANN, M.-C. ; FINLEY, J. J.: Investigation of the nonresonant dot-cavity coupling in two-dimensional photonic crystal nanocavities. In: *Phys. Rev. B* **77** (2008), 161303
- [134] KAPETANAKIS, M. D. ; PERAKIS, I. E.: Spin Dynamics in (III,Mn)V Ferromagnetic Semiconductors: The Role of Correlations. In: *Physical Review Letters* **101** (2008), 097201

- [135] KARRAI, K. ; WARBURTON, R. J. ; SCHULHAUSER, C. ; HÖGELE, A. ; URBASZEK, B. ; MCGHEE, E. J. ; GOVOROV, A. O. ; GARCIA, J. M. ; GERARDOT, B. D. ; PETROFF, P. M.: Hybridization of electronic states in quantum dots through photon emission. In: *Nature* **427** (2004), 135–138
- [136] KASPRZAK, J. ; REITZENSTEIN, S. ; MULJAROV, E. A. ; KISTNER, C. ; SCHNEIDER, C. ; STRAUSS, M. ; HÖFLING, S. ; FORCHEL, A. ; LANGBEIN, W. : Up on the Jaynes-Cummings ladder of a quantum-dot/microcavity system. In: *Nature Materials* **9** (2010), 304–308
- [137] KESSLER, C. A. ; REISCHLE, M. ; HARGART, F. ; SCHULZ, W.-M. ; EICHFELDER, M. ; ROSSBACH, R. ; JETTER, M. ; MICHLER, P. ; GARTNER, P. ; FLORIAN, M. ; GIES, C. ; JAHNKE, F. : Strong antibunching from electrically driven devices with long pulses: A regime for quantum-dot single-photon generation. In: *Phys. Rev. B* **86** (2012), 115326
- [138] KHITROVA, G. ; GIBBS, H. M. ; JAHNKE, F. ; KIRA, M. ; KOCH, S. W.: Nonlinear Optics of Normal-Mode-Coupling Semiconductor Microcavities. In: *Rev. Mod. Phys.* **71** (1999), 1591
- [139] KIRA, M. ; JAHNKE, F. ; HOYER, W. ; KOCH, S. W.: Quantum theory of spontaneous emission and coherent effects in semiconductor microstructures. In: *Progress in Quantum Electronics* **23** (1999), 189–279
- [140] KIRA, M. ; JAHNKE, F. ; KOCH, S. W.: Microscopic Theory of Excitonic Signatures in Semiconductor Photoluminescence. In: *Phys. Rev. Lett.* **81** (1998), 3263
- [141] KIRA, M. ; KOCH, S. W. ; SMITH, R. P. ; HUNTER, A. E. ; CUNDIFF, S. T.: Quantum spectroscopy with Schrodinger-cat states. In: *Nature Physics* **7** (2011), 799–804
- [142] KNILL, E. ; LAFLAMME, R. ; MILBURN, G. J.: A scheme for efficient quantum computation with linear optics. In: *Nature* **409** (2001), 46–52
- [143] KÖHLER, T. ; BURNETT, K. : Microscopic quantum dynamics approach to the dilute condensed Bose gas. In: *Physical Review A* **65** (2002), 033601
- [144] KORENMAN, V. : Nonequilibrium Quantum Statistics; Application to the Laser. In: *Annals of Physics* **39** (1966), 72–126
- [145] KRAL, K. ; KHAS, Z. : Electron self-energy in quantum dots. In: *Phys. Rev. B* **57** (1998), 2061
- [146] KRUGEL, A. ; AXT, V. M. ; KUHN, T. : Back action of nonequilibrium phonons on the optically induced dynamics in semiconductor quantum dots. In: *Physical Review B* **73** (2006)

- 
- [147] KRUMMEUER, B. ; AXT, V. M. ; KUHN, T. : Theory of pure dephasing and the resulting absorption line shape in semiconductor quantum dots. In: *Phys. Rev. B* **65** (2002), 195313
- [148] KRUSE, C. ; PACUSKI, W. ; JAKUBCZYK, T. ; KOBAK, J. ; GAJ, J. A. ; FRANK, K. ; SCHOWALTER, M. ; ROSENAUER, A. ; FLORIAN, M. ; JAHNKE, F. ; HOMMEL, D. : Monolithic ZnTe-based pillar microcavities containing CdTe quantum dots. In: *Nanotechnology* **22** (2011), 285204
- [149] KUBO, R. : Statistical-Mechanical Theory of Irreversible Processes. I. General Theory and Simple Applications to Magnetic and Conduction Problems. In: *Journal of the Physical Society of Japan* **12** (1957), 570–586
- [150] KURTZE, H. ; SEEBECK, J. ; GARTNER, P. ; YAKOVLEV, D. R. ; REUTER, D. ; WIECK, A. D. ; BAYER, M. ; JAHNKE, F. : Carrier relaxation dynamics in self-assembled semiconductor quantum dots. In: *Physical Review B* **80** (2009), 235319
- [151] KWIAT, P. G. ; MITCHELL, J. R. ; SCHWINDT, P. D. D. ; WHITE, A. G.: Grover's search algorithm: An optical approach. In: *Journal of Modern Optics* **47** (2000), 257–266
- [152] LAUCHT, A. ; HAUKE, N. ; VILLAS-BÔAS, J. M. ; HOFBAUER, F. ; BÖHM, G. ; KANIBER, M. ; FINLEY, J. J.: Dephasing of Exciton Polaritons in Photoexcited InGaAs Quantum Dots in GaAs Nanocavities. In: *Physical Review Letters* **103** (2009), 087405
- [153] LAUCHT, A. ; KANIBER, M. ; MOHTASHAMI, A. ; HAUKE, N. ; BICHLER, M. ; FINLEY, J. J.: Temporal monitoring of nonresonant feeding of semiconductor nanocavity modes by quantum dot multiexciton transitions. In: *Phys. Rev. B* **81** (2010), 241302
- [154] LAUCHT, A. ; VILLAS-BÔAS, J. M. ; STOBBE, S. ; HAUKE, N. ; HOFBAUER, F. ; BÖHM, G. ; LODAHL, P. ; AMANN, M.-C. ; KANIBER, M. ; FINLEY, J. J.: Mutual coupling of two semiconductor quantum dots via an optical nanocavity. In: *Phys. Rev. B* **82** (2010), 075305
- [155] LAUSSY, F. P. ; GLAZOV, M. M. ; KAVOKIN, A. ; WHITTAKER, D. M. ; MALPUECH, G. : Statistics of excitons in quantum dots and their effect on the optical emission spectra of microcavities. In: *Physical Review B* **73** (2006), 115343
- [156] LAUSSY, F. P. ; VALLE, E. del ; TEJEDOR, C. : Strong Coupling of Quantum Dots in Microcavities. In: *Phys. Rev. Lett.* **101** (2008), 083601
- [157] LEON, N. P. ; SHIELDS, B. J. ; YU, C. L. ; ENGLUND, D. E. ; AKIMOV, A. V. ; LUKIN, M. D. ; PARK, H. : Tailoring Light-Matter Interaction with a Nanoscale Plasmon Resonator. In: *Physical Review Letters* **108** (2012), 226803
- [158] LI, J. ; WANG, L.-W. : First principle study of core/shell structure quantum dots. In: *Applied Physics Letters* **84** (2004), 3648–3650

- [159] LIAO, X. Z. ; ZOU, J. ; DUAN, X. F. ; COCKAYNE, D. J. H. ; LEON, R. ; LOBO, C. : Transmission-electron microscopy study of the shape of buried  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  quantum dots. In: *Physical Review B* **58** (1998), 4235–4237
- [160] LINDBLAD, G. : On the generators of quantum dynamical semigroups. In: *Communications in Mathematical Physics* **48** (1976), 119–130
- [161] LLOYD, S. : Universal Quantum Simulators. In: *Science* **273** (1996), 1073–1078
- [162] LOCHMANN, A. ; STOCK, E. ; TÖFFLINGER, J. ; UNRAU, W. ; TOROPOV, A. ; BAKAROV, A. ; HAISLER, V. ; BIMBERG, D. : Electrically pumped, micro-cavity based single photon source driven at 1 GHz. In: *Electronics Letters* **45** (2009), 566
- [163] LOHMEYER, H. ; SEBALD, K. ; KRUSE, C. ; KRÖGER, R. ; GUTOWSKI, J. ; HOMMEL, D. ; WIERSIG, J. ; BAER, N. ; JAHNKE, F. : Confined optical modes in monolithic II-VI pillar microcavities. In: *Applied Physics Letters* **88** (2006), 051101
- [164] LORKE, M. ; NIELSEN, T. R. ; SEEBECK, J. ; GARTNER, P. ; JAHNKE, F. : Influence of carrier-carrier and electron-phonon correlations on optical absorption and gain in quantum-dot systems. In: *Phys. Rev. B* **73** (2006), 085324
- [165] LORKE, M. ; SEEBECK, J. ; GARTNER, P. ; JAHNKE, F. ; SCHULZ, S. : Excitation-induced energy shifts in the optical gain spectra of InN quantum dots. In: *Applied Physics Letters* **95** (2009), 081108
- [166] LOSS, D. ; DiVINCENZO, D. P.: Quantum computation with quantum dots. In: *Physical Review A* **57** (1998), 120–126
- [167] LOUDON, R. : *The Quantum Theory of Light*. Oxford University Press, 2000
- [168] LUCERO, E. ; BARENDT, R. ; CHEN, Y. ; KELLY, J. ; MARIANTONI, M. ; MEGRANT, A. ; O'MALLEY, P. ; SANK, D. ; VAINSENER, A. ; WENNER, J. ; WHITE, T. ; YIN, Y. ; CLELAND, A. N. ; MARTINIS, J. M.: Computing prime factors with a Josephson phase qubit quantum processor. In: *Nature Physics* **8** (2012), 719–723
- [169] MAHAN, G. D.: *Many Particle Physics*. 3rd. Springer, 2000
- [170] MAJUMDAR, A. ; FARAON, A. ; KIM, E. D. ; ENGLUND, D. ; KIM, H. ; PETROFF, P. ; VUČKOVIĆ, J. : Linewidth broadening of a quantum dot coupled to an off-resonant cavity. In: *Physical Review B* **82** (2010), 045306
- [171] MAJUMDAR, A. ; KIM, E. D. ; GONG, Y. ; BAJCSY, M. ; VUČKOVIĆ, J. : Phonon mediated off-resonant quantum dot–cavity coupling under resonant excitation of the quantum dot. In: *Phys. Rev. B* **84** (2011), 085309

- [172] MANDEL, L. ; WOLF, E. : *Optical coherence and quantum optics*. Cambridge University Press, 1995
- [173] MARTIN, P. C. ; SCHWINGER, J. : Theory of Many-Particle Systems. I. In: *Phys. Rev.* **115** (1959), 1342–1373
- [174] MARTÍN-LÓPEZ, E. ; LAING, A. ; LAWSON, T. ; ALVAREZ, R. ; ZHOU, X.-Q. ; O'BRIEN, J. L.: Experimental realization of Shor's quantum factoring algorithm using qubit recycling. In: *Nature Photonics* **6** (2012), 773–776
- [175] MATSUDA, K. ; IKEDA, K. ; SAIKI, T. ; SAITO, H. ; NISHI, K. : Carrier-carrier interaction in single  $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$  quantum dots at room temperature investigated by near-field scanning optical microscope. In: *Applied Physics Letters* **83** (2003), 2250–2252
- [176] MAY, V. ; KÜHN, O. : *Charge and Energy Transfer Dynamics in Molecular Systems*. Wiley-VCH, 2004
- [177] MCCUTCHEON, D. P. S. ; NAZIR, A. : Quantum dot Rabi rotations beyond the weak exciton–phonon coupling regime. In: *New Journal of Physics* **12** (2010), 113042
- [178] MCKEEVER, J. ; BOCA, A. ; BOOZER, A. D. ; BUCK, J. R. ; KIMBLE, H. J.: Experimental realization of a one-atom laser in the regime of strong coupling. In: *Nature* **425** (2003), 268
- [179] MEHTA, M. ; REUTER, D. ; WIECK, A. D. ; VASCONCELLOS, S. M. d. ; ZRENNER, A. ; MEIER, C. : An intentionally positioned (In,Ga)As quantum dot in a micron sized light emitting diode. In: *Applied Physics Letters* **97** (2010), 143101
- [180] MEYSTRE, P. ; SARGENT III, M. : *Elements of Quantum Optics*. Berlin : Springer, 1999
- [181] MICHLER, P. : *Single Quantum Dots - Fundamentals, Applications and New Concepts*. Springer-Verlag, 2003
- [182] MICHLER, P. : *Single Semiconductor Quantum Dots*. Springer, 2009
- [183] MICHLER, P. ; KIRAZ, A. ; BECHER, C. ; SCHOENFELD, W. V. ; PETROFF, P. M. ; ZHANG, L. ; HU, E. ; IMAMOĞLU, A. : A quantum dot single-photon turnstile device. In: *Science* **290** (2000), 2282
- [184] MINNAERT, A. W. E. ; SILOV, A. Y. ; VLEUTEN, W. van d. ; HAVERKORT, J. E. M. ; WOLTER, J. H.: Fröhlich interaction in InAs/GaAs self-assembled quantum dots. In: *Phys. Rev. B* **63** (2001), 075303
- [185] MOHAN, A. ; FELICI, M. ; GALLO, P. ; DWIR, B. ; RUDRA, A. ; FAIST, J. ; KAPON, E. : Polarization-entangled photons produced with high-symmetry site-controlled quantum dots. In: *Nature Photonics* **4** (2010), 302–306

- 
- [186] MOOIJ, J. E. ; ORLANDO, T. P. ; LEVITOV, L. ; TIAN, L. ; WAL, C. H. v. d. ; LLOYD, S. : Josephson Persistent-Current Qubit. In: *Science* **285** (1999), 1036–1039
- [187] MOOTZ, M. ; KIRA, M. ; KOCH, S. W.: Sequential build-up of quantum-optical correlations. In: *Journal of the Optical Society of America B* **29** (2012), A17–A24
- [188] MOREAU, E. ; ROBERT, I. ; MANIN, L. ; THIERRY-MIEG, V. ; GÉRARD, J. M. ; ABRAM, I. : Quantum Cascade of Photons in Semiconductor Quantum Dots. In: *Physical Review Letters* **87** (2001), 183601
- [189] MORRIS, D. ; PERRET, N. ; FAFARD, S. : Carrier energy relaxation by means of Auger processes in InAs/GaAs self-assembled quantum dots. In: *Appl. Phys. Lett.* **75** (1999), 3593
- [190] MOURAD, D. : *Empirische Tight-Binding-Modellierung geordneter und ungeordneter Halbleiterstrukturen*, Universität Bremen, Diss., 2010
- [191] MU, Y. ; SAVAGE, C. M.: One-atom lasers. In: *Phys. Rev. A* **46** (1992), 5944
- [192] MULJAROV, A. E. ; ZIMMERMANN, R. : Dephasing in Quantum Dots Quadratic Coupling to Acoustic Phonons. In: *Phys. Rev. Lett* **93** (2004), 237401
- [193] MULLER, A. ; FANG, W. ; LAWALL, J. ; SOLOMON, G. S.: Creating Polarization-Entangled Photon Pairs from a Semiconductor Quantum Dot Using the Optical Stark Effect. In: *Phys. Rev. Lett.* **103** (2009), 217402
- [194] MÜLLER, M. ; BOUNOUAR, S. ; JÖNS, K. D. ; GLÄSSL, M. ; MICHLER, P. : On-demand generation of indistinguishable polarization-entangled photon pairs. In: *Nature Photonics* **8** (2014), 224–228
- [195] NAESBY, A. ; SUHR, T. ; KRISTENSEN, P. T. ; MØRK, J. : Influence of pure dephasing on emission spectra from single photon sources. In: *Phys. Rev. A* **78** (2008), 045802
- [196] NAM-CHOL, K. ; JIAN-BO, L. ; SHAO-DING, L. ; MU-TIAN, C. ; ZHONG-HUA, H. : Influence of Excitation Pulse Width on the Second-Order Correlation Functions of the Exciton-Biexciton Emissions. In: *Chinese Physics Letters* **27** (2010), 034211
- [197] NAZIR, A. : Photon statistics from a resonantly driven quantum dot. In: *Physical Review B* **78** (2008), 153309
- [198] NEWTON, R. : *Scattering Theory of Waves and Particles*. Dover Publications, 1982
- [199] NIELSEN, M. A. ; CHUANG, I. L.: *Quantum Computation and Quantum Information*. Cambridge University Press, 2000

- [200] NIELSEN, T. R. ; GARTNER, P. ; JAHNKE, F. : Many-body theory of carrier capture and relaxation in semiconductor quantum-dot lasers. In: *Phys. Rev. B* **69** (2004), 235314
- [201] NOMURA, M. ; KUMAGAI, N. ; IWAMOTO, S. ; OTA, Y. ; ARAKAWA, Y. : Photonic crystal nanocavity laser with a single quantum dot gain. In: *Opt. Express* **17** (2009), 15975–15982
- [202] NOMURA, M. ; KUMAGAI, N. ; IWAMOTO, S. ; OTA, Y. ; ARAKAWA, Y. : Laser oscillation in a strongly coupled single-quantum-dot-nanocavity system. In: *Nature Physics* **6** (2010), 279–283
- [203] O'BRIEN, J. L. ; FURUSAWA, A. ; VUČKOVIĆ, J. : Photonic quantum technologies. In: *Nature Photonics* **3** (2009), 687–695
- [204] OHNESORGE, B. ; ALBRECHT, M. ; OSHINOWO, J. ; FORCHEL, A. ; ARAKAWA, Y. : Rapid carrier relaxation in self-assembled InGaAs/GaAs quantum dots. In: *Phys. Rev. B* **54** (1996), 11532
- [205] ORSZAG, M. : *Quantum optics: including noise reduction, trapped ions, quantum trajectories, and decoherence ; with 92 problems with hints for solutions*. Berlin [u.a.] : Springer, 2008
- [206] ORTNER, G. ; SCHWAB, M. ; BAYER, M. ; PÄSSLER, R. ; FAFARD, S. ; WASILEWSKI, Z. ; HAWRYLAK, P. ; FORCHEL, A. : Temperature dependence of the excitonic band gap in  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  self-assembled quantum dots. In: *Phys. Rev. B* **72** (2005), 085328
- [207] OTA, Y. ; IWAMOTO, S. ; KUMAGAI, N. ; ARAKAWA, Y. : Impact of electron-phonon interactions on quantum-dot cavity quantum electrodynamics. Version: Aug. 2009. <http://arxiv.org/abs/0908.0788> (0908.0788). – arXiv e-print
- [208] OTA, Y. ; IWAMOTO, S. ; KUMAGAI, N. ; ARAKAWA, Y. : Spontaneous Two-Photon Emission from a Single Quantum Dot. In: *Phys. Rev. Lett.* **107** (2011), 233602
- [209] PAILLARD, M. ; MARIE, X. ; RENUCCI, P. ; AMAND, T. ; JBELI, A. ; GÉRARD, J. M.: Spin Relaxation Quenching in Semiconductor Quantum Dots. In: *Physical Review Letters* **86** (2001), 1634–1637
- [210] PASSMORE, B. S. ; ADAMS, D. C. ; RIBAUDO, T. ; WASSERMAN, D. ; LYON, S. ; DAVIDS, P. ; CHOW, W. W. ; SHANER, E. A.: Observation of Rabi Splitting from Surface Plasmon Coupled Conduction State Transitions in Electrically Excited InAs Quantum Dots. In: *Nano Letters* **11** (2011), 338–342
- [211] PELTON, M. ; SANTORI, C. ; VUČKOVIĆ, J. ; ZHANG, B. ; SOLOMON, G. S. ; PLANT, J. ; YAMAMOTO, Y. : Efficient Source of Single Photons: A Single Quantum Dot in a Micropost Microcavity. In: *Physical Review Letters* **89** (2002), 233602



- [212] PETER, E. ; HOURS, J. ; SENELLART, P. ; VASANELLI, A. ; CAVANNA, A. ; BLOCH, J. ; GÉRARD, J. M.: Phonon sidebands in exciton and biexciton emission from single GaAs quantum dots. In: *Physical Review B* **69** (2004), 041307
- [213] PETER, E. ; LAURENT, S. ; BLOCH, J. ; HOURS, J. ; VAROUTSIS, S. ; ROBERT-PHILIP, I. ; BEVERATOS, A. ; LEMAÎTRE, A. ; CAVANNA, A. ; PATRIARCHE, G. ; SENELLART, P. ; MARTROU, D. : Fast radiative quantum dots: From single to multiple photon emission. In: *Applied Physics Letters* **90** (2007), 223118
- [214] PETER, E. ; SENELLART, P. ; MARTROU, D. ; LEMAITRE, A. ; HOURS, J. ; GERARD, J. M. ; BLOCH, J. : Exciton-photon strong-coupling regime for a single quantum dot embedded in a microcavity. In: *Physical Review Letters* **95** (2005)
- [215] PFANNER, G. ; SELIGER, M. ; HOHENESTER, U. : Entangled photon sources based on semiconductor quantum dots: The role of pure dephasing. In: *Phys. Rev. B* **78** (2008), 195410
- [216] PFEIFFER, M. ; LINDFORS, K. ; ZHANG, H. ; FENK, B. ; PHILLIPP, F. ; ATKINSON, P. ; RASTELLI, A. ; SCHMIDT, O. G. ; GIESSEN, H. ; LIPPITZ, M. : Eleven Nanometer Alignment Precision of a Plasmonic Nanoantenna with a Self-Assembled GaAs Quantum Dot. In: *Nano Letters* **14** (2014), 197–201
- [217] PRESS, D. ; GÖTZINGER, S. ; REITZENSTEIN, S. ; HOFMANN, C. ; LÖFFLER, A. ; KAMP, M. ; FORCHEL, A. ; YAMAMOTO, Y. : Photon Antibunching from a Single Quantum-Dot-Microcavity System in the Strong Coupling Regime. In: *Physical Review Letters* **98** (2007), 117402
- [218] PURCELL, E. M.: Spontaneous emission probability at radio frequencies. In: *Phys. Rev.* **69** (1946), 681
- [219] PUZDER, A. ; WILLIAMSON, A. J. ; GYGI, F. ; GALLI, G. : Self-Healing of CdSe Nanocrystals: First-Principles Calculations. In: *Physical Review Letters* **92** (2004), 217401
- [220] REISCHLE, M. ; BEIRNE, J. G. ; SCHULZ, W.-M. ; EICHFELDER, M. ; ROSSBACH, R. ; JETTER, M. ; MICHLER, P. : Electrically pumped single-photon emission in the visible spectral range up to 80 K. In: *Optics Express* **16** (2008), 12771–12776
- [221] REISCHLE, M. ; KESSLER, C. ; SCHULZ, W.-M. ; EICHFELDER, M. ; ROSSBACH, R. ; JETTER, M. ; MICHLER, P. : Triggered single-photon emission from electrically excited quantum dots in the red spectral range. In: *Applied Physics Letters* **97** (2010), 143513



- [222] REITHMAIER, J. P. ; SEK, G. ; LÖFFLER, A. ; HOFMANN, C. ; KUHN, S. ; REITZENSTEIN, S. ; KELDYSH, L. V. ; KULAKOVSKII, V. D. ; REINECKE, T. L. ; FORCHEL, A. : Strong coupling in a single quantum dot - semiconductor microcavity system. In: *Nature* **432** (2004), 197
- [223] REITZENSTEIN, S. ; BAZHENOV, A. ; GORBUNOV, A. ; HOFMANN, C. ; MÜNCH, S. ; LÖFFLER, A. ; KAMP, M. ; REITHMAIER, J. P. ; KULAKOVSKII, V. D. ; FORCHEL, A. : Lasing in high-Q quantum-dot micropillar cavities. In: *Appl. Phys. Lett.* **89** (2006), 051107
- [224] REITZENSTEIN, S. ; BÖCKLER, C. ; BAZHENOV, A. ; GORBUNOV, A. ; LÖFFLER, A. ; KAMP, M. ; KULAKOVSKII, V. D. ; FORCHEL, A. : Single quantum dot controlled lasing effects in high-Q micropillar cavities. In: *Opt. Express* **16** (2008), 4848–4857
- [225] RICE, P. R. ; CARMICHAEL, H. J.: Photon statistics of a cavity-QED laser: A comment on the laser–phase-transition analogy. In: *Phys. Rev. A* **50** (1994), 4318–4329
- [226] RICHTER, M. ; CARMELE, A. ; SITEK, A. ; KNORR, A. : Few-Photon Model of the Optical Emission of Semiconductor Quantum Dots. In: *Phys. Rev. Lett.* **103** (2009), 087407
- [227] RITTER, S. ; GARTNER, P. ; GIES, C. ; JAHNKE, F. : Emission properties and photon statistics of a single quantum dot laser. In: *Optics Express* **18** (2010), 9909–9921
- [228] ROY, C. ; HUGHES, S. : Influence of Electron–Acoustic-Phonon Scattering on Intensity Power Broadening in a Coherently Driven Quantum-Dot–Cavity System. In: *Physical Review X* **1** (2011), 021009
- [229] RUSSELL, K. J. ; LIU, T.-L. ; CUI, S. ; HU, E. L.: Large spontaneous emission enhancement in plasmonic nanocavities. In: *Nature Photonics* **6** (2012), 459–462
- [230] SALTER, C. L. ; STEVENSON, R. M. ; FARRER, I. ; NICOLL, C. A. ; RITCHI, D. A. ; SHIELDS, A. J.: An entangled-light-emitting diode. In: *Nature* **465** (2010), 594–597
- [231] SANGOUARD, N. ; SIMON, C. ; GISIN, N. ; LAURAT, J. ; TUALLE-BROURI, R. ; GRANGIER, P. : Quantum repeaters with entangled coherent states. In: *Journal of the Optical Society of America B* **27** (2010), A137–A145
- [232] SANTORI, C. ; SOLOMON, G. S. ; PELTON, M. ; YAMAMOTO, Y. : Time-resolved spectroscopy of multiexcitonic decay in an InAs quantum dot. In: *Phys. Rev. B* **65** (2002), 073310
- [233] SCHÄFER, W. ; WEGENER, M. : *Semiconductor Optics and Transport Phenomena*. 2002 edition. Berlin; New York : Springer, 2002

- [234] SCHIFF, L. I.: *Quantum Mechanics*. 3rd edition. New York; St. Louis : McGraw-Hill College, 1968
- [235] SCHLIWA, A. ; WINKELNKEMPER, M. ; BIMBERG, D. : Impact of size, shape, and composition on piezoelectric effects and electronic properties of In(Ga)As/GaAs quantum dots. In: *Phys. Rev. B* **76** (2007), 205324
- [236] SCHMIDT-KALER, F. ; HÄFFNER, H. ; RIEBE, M. ; GULDE, S. ; LANCASTER, G. P. T. ; DEUSCHLE, T. ; BECHER, C. ; ROOS, C. F. ; ESCHNER, J. ; BLATT, R. : Realization of the Cirac–Zoller controlled-NOT quantum gate. In: *Nature* **422** (2003), 408–411
- [237] SCHNEIDER, H. C. ; CHOW, W. W. ; KOCH, S. W.: Many-body effects in the gain spectra of highly excited quantum dot lasers. In: *Phys. Rev. B* **64** (2001), 115315
- [238] SCHNEIDER, H. C. ; CHOW, W. W. ; KOCH, S. W.: Excitation-induced dephasing in semiconductor quantum dots. In: *Physical Review B* **70** (2004), 235308
- [239] SCHOELLER, H. : A New Transport Equation for Single-Time Green’s Functions in an Arbitrary Quantum System. General Formalism. In: *Annals of Physics* **229** (1994), 273–319
- [240] SCHUH, K. ; BARTHEL, S. ; MARQUARDT, O. ; HICKEL, T. ; NEUGEBAUER, J. ; CZYCHOLL, G. ; JAHNKE, F. : Strong dipole coupling in nonpolar nitride quantum dots due to Coulomb effects. In: *Applied Physics Letters* **100** (2012), 092103–092103-4
- [241] SCHUH, K. ; GARTNER, P. ; JAHNKE, F. : Combined influence of carrier-phonon and Coulomb scattering on the quantum-dot population dynamics. In: *Physical Review B* **87** (2013), 035301
- [242] SCHULZ, S. ; CZYCHOLL, G. : Tight-binding model for semiconductor nanostructures. In: *Physical Review B* **72** (2005), 165317
- [243] SCHULZ, S. : *Electronic and Optical Properties of Quantum Dots: A Tight-Binding Approach*. Auflage: 1., Aufl. Göttingen : Sierke Verlag, 2007
- [244] SCHULZ, W.-M. ; EICHFELDER, M. ; REISCHLE, M. ; KESSLER, C. ; ROSSBACH, R. ; JETTER, M. ; MICHLER, P. : Pulsed single-photon resonant-cavity quantum dot LED. In: *15th International Conference on Metalorganic Vapor Phase Epitaxy* **315** (2011), 127–130
- [245] SCHUMACHER, S. ; FÖRSTNER, J. ; ZRENNER, A. ; FLORIAN, M. ; GIES, C. ; GARTNER, P. ; JAHNKE, F. : Cavity-assisted emission of polarization-entangled photons from biexcitons in quantum dots with fine-structure splitting. In: *Optics Express* **20** (2012), 5335–5342

- [246] SCHWAB, M. ; KURTZE, H. ; AUER, T. ; BERSTERMANN, T. ; BAYER, M. ; WIERSIG, J. ; BAER, N. ; GIES, C. ; JAHNKE, F. ; REITHMAIER, J. P. ; FORCHEL, A. ; BENYOUCEF, M. ; MICHLER, P. : Radiative emission dynamics of quantum dots in a single cavity micropillar. In: *Phys. Rev. B* **74** (2006), 045323
- [247] SCULLY, M. O. ; ZUBAIRY, M. S.: *Quantum Optics*. Cambridge : Cambridge University Press, 1997
- [248] SCULLY, M. O. ; LAMB, W. E.: Quantum Theory of an Optical Maser. I. General Theory. In: *Physical Review* **159** (1967), 208–226
- [249] SEEBECK, J. ; NIELSEN, T. R. ; GARTNER, P. ; JAHNKE, F. : Polarons in semiconductor quantum dots and their role in the quantum kinetics of carrier relaxation. In: *Phys. Rev. B* **71** (2005), 125327
- [250] SEGUIN, R. ; SCHLIWA, A. ; RODT, S. ; PÖTSCHKE, K. ; POHL, U. W. ; BIMBERG, D. : Size-Dependent Fine-Structure Splitting in Self-Organized InAs/GaAs Quantum Dots. In: *Physical Review Letters* **95** (2005), 257402
- [251] SEIDL, S. ; KRONER, M. ; HÖGELE, A. ; KARRAI, K. ; WARBURTON, R. J. ; BADOLATO, A. ; PETROFF, P. M.: Effect of uniaxial stress on excitons in a self-assembled quantum dot. In: *Applied Physics Letters* **88** (2006), 203113
- [252] SETTNER, M. ; KAER, P. ; MOELBJERG, A. ; MORK, J. : Auger Processes Mediating the Nonresonant Optical Emission from a Semiconductor Quantum Dot Embedded Inside an Optical Cavity. In: *Physical Review Letters* **111** (2013), 067403
- [253] SHENG, W. ; CHENG, S.-J. ; HAWRYLAK, P. : Multiband theory of multi-exciton complexes in self-assembled quantum dots. In: *Phys. Rev. B* **71** (2005), 035316
- [254] SHENG, W. ; HAWRYLAK, P. : Spin polarization in self-assembled quantum dots. In: *Physical Review B* **73** (2006), 125331
- [255] SHIELDS, A. J.: Semiconductor quantum light sources. In: *Nature Photonics* **1** (2007), 215–223
- [256] SHIELDS, A. J. ; STEVENSON, R. M. ; YOUNG, R. J.: Entangled Photon Generation by Quantum Dots. In: JAHNKE, F. (Hrsg.): *Quantum Optics With Semiconductor Nanostructures*. 1. Cambridge, UK : Woodhead Publishing Limited, 2012
- [257] SHOR, P. : Polynomial-Time Algorithms for Prime Factorization and Discrete Logarithms on a Quantum Computer. In: *SIAM Journal on Computing* **26** (1997), 1484–1509
- [258] SINGH, R. ; BESTER, G. : Lower Bound for the Excitonic Fine Structure Splitting in Self-Assembled Quantum Dots. In: *Physical Review Letters* **104** (2010), 196803

- [259] SITENKO, A. G.: *Scattering Theory*. Softcover reprint of the original 1st ed. 1991. Springer, 2012
- [260] SOSNOWSKI, T. S. ; NORRIS, T. B. ; JIANG, H. ; SINGH, J. ; KAMATH, K. ; BHATTACHARYA, P. : Rapid carrier relaxation in  $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}/\text{GaAs}$  quantum dots characterized by differential transmission spectroscopy. In: *Physical Review B* **57** (1998), 9423–9426
- [261] STANGL, J. ; HOLÝ, V. ; BAUER, G. : Structural properties of self-organized semiconductor nanostructures. In: *Reviews of Modern Physics* **76** (2004), 725–783
- [262] STEINHOFF, A. ; KURTZE, H. ; GARTNER, P. ; FLORIAN, M. ; REUTER, D. ; WIECK, A. D. ; BAYER, M. ; JAHNKE, F. : Combined influence of Coulomb interaction and polarons on the carrier dynamics in InGaAs quantum dots. In: *Physical Review B* **88** (2013), 205309
- [263] STEINHOFF, A. ; GARTNER, P. ; FLORIAN, M. ; JAHNKE, F. : Treatment of carrier scattering in quantum dots beyond the Boltzmann equation. In: *Physical Review B* **85** (2012), 205144
- [264] STENHOLM, S. : Quantum theory of electromagnetic fields interacting with atoms and molecules. In: *Phys. Rep.* **6** (1973), 1
- [265] STEVENSON, R. M. ; YOUNG, R. J. ; ATKINSON, P. ; COOPER, K. ; RITCHIE, D. A. ; SHIELDS, A. J.: A semiconductor source of triggered entangled photon pairs. In: *Nature* **439** (2006), 179–182
- [266] STIER, O. ; GRUNDMANN, M. ; BIMBERG, D. : Electronic and optical properties of strained quantum dots modeled by 8-band *kotp* theory. In: *Phys. Rev. B* **59** (1999), 5688–5701
- [267] STOCK, E. ; WARMING, T. ; OSTAPENKO, I. ; RODT, S. ; SCHLIWA, A. ; TÖFFLINGER, J. A. ; LOCHMANN, A. ; TOROPOV, A. I. ; MOSHCENKO, S. A. ; DMITRIEV, D. V. ; HAISLER, V. A. ; BIMBERG, D. : Single-photon emission from InGaAs quantum dots grown on (111) GaAs. In: *Applied Physics Letters* **96** (2010), 093112
- [268] STRANSKI, I. N. ; KRASTANOW, L. : Theory of orientation separation of ionic crystals. In: *Ber. Akad. Wiss. Wien, Math.-Naturwiss. Kl., Abt. IIb* **146** (1938), 797
- [269] STRAUF, S. ; HENNESSY, K. ; RAKHER, M. T. ; CHOI, Y.-S. ; BADOLATO, A. ; ANDREANI, L. C. ; HU, E. L. ; PETROFF, P. M. ; BROUWMEESTER, D. : Self-Tuned Quantum Dot Gain in Photonic Crystal Lasers. In: *Phys. Rev. Lett.* **96** (2006), 127404
- [270] STRAUF, S. ; JAHNKE, F. : Single quantum dot nanolaser. In: *Laser & Photonics Reviews* **5** (2011), 607–633

- [271] STRAUF, S. ; STOLTZ, N. G. ; RAKHER, M. T. ; COLDREN, L. A. ; PETROFF, P. M. ; BOUWMEESTER, D. : High-frequency single-photon source with polarization control. In: *Nat Photon* **1** (2007), 704–708
- [272] SUFFCZYŃSKI, J. ; DOUSSE, A. ; GAUTHRON, K. ; LEMAÎTRE, A. ; SAGNES, I. ; LANCO, L. ; BLOCH, J. ; VOISIN, P. ; SENELLART, P. : Origin of the Optical Emission within the Cavity Mode of Coupled Quantum Dot-Cavity Systems. In: *Physical Review Letters* **103** (2009), 027401
- [273] TAME, M. S. ; MCENERY, K. R. ; ÖZDEMİR, Ş. K. ; LEE, J. ; MAIER, S. A. ; KIM, M. S.: Quantum plasmonics. In: *Nature Physics* **9** (2013), 329–340
- [274] TAREL, G. ; SAVONA, V. : Photoluminescence from a quantum dot-cavity system. In: JAHNKE, F. (Hrsg.): *Quantum Optics With Semiconductor Nanostructures*. 1. Cambridge, UK : Woodhead Publishing Limited, 2012
- [275] TAREL, G. ; SAVONA, V. : Influence of phonons on the emission spectrum of a quantum dot embedded in a nanocavity. In: *Phys. Stat. Sol. C* **6** (2008)
- [276] THOMPSON, R. M. ; STEVENSON, R. M. ; SHIELDS, A. J. ; FARRER, I. ; LOBO, C. J. ; RITCHIE, D. A. ; LEADBEATER, M. L. ; PEPPER, M. : Single-photon emission from exciton complexes in individual quantum dots. In: *Physical Review B* **64** (2001), 201302
- [277] TIGNON, J. ; HASCHE, T. ; CHEMLA, D. S. ; SCHNEIDER, H. C. ; JAHNKE, F. ; KOCH, S. W.: Unified Picture of Polariton Propagation in Bulk GaAs Semiconductors. In: *Physical Review Letters* **84** (2000), 3382–3385
- [278] TRALLERO-GINER, C. : *Long wave polar modes in semiconductor heterostructures*. Oxford : Pergamon, 1998
- [279] TROIANI, F. ; PEREA, J. I. ; TEJEDOR, C. : Cavity-assisted generation of entangled photon pairs by a quantum-dot cascade decay. In: *Phys. Rev. B* **74** (2006), 235310
- [280] ULRICH, S. M. ; GIES, C. ; WIERSIG, J. ; REITZENSTEIN, S. ; HOFMANN, C. ; LÖFFLER, A. ; FORCHEL, A. ; JAHNKE, F. ; MICHLER, P. : Photon statistics of semiconductor microcavity lasers. In: *Phys. Rev. Lett.* **98** (2007), 043906
- [281] URAYAMA, J. ; NORRIS, T. B. ; SINGH, J. ; BHATTACHARYA, P. : Observation of Phonon Bottleneck in Quantum Dot Electronic Relaxation. In: *Phys. Rev. Lett.* **86** (2001), 4930
- [282] USKOV, A. V. ; ADLER, F. ; SCHWEIZER, H. ; PILKUHN, M. H.: Auger carrier relaxation in self-assembled quantum dots by collisions with two-dimensional carriers. In: *J. Appl. Phys.* **81** (1997), 7895
- [283] VAHALA, K. J.: Optical microcavities. In: *Nature* **424** (2003), 839–846

- [284] VALLE, E. d. ; GONZALEZ-TUDELA, A. ; CANCELLIERI, E. ; LAUSSY, F. P. ; TEJEDOR, C. : Generation of a two-photon state from a quantum dot in a microcavity. In: *New Journal of Physics* **13** (2011), 113014
- [285] VALLE, E. del ; LAUSSY, F. P. ; TEJEDOR, C. : Luminescence spectra of quantum dots in microcavities. II. Fermions. In: *Phys. Rev. B* **79** (2009), 235326
- [286] VERMASEREN, J. : New features of FORM. (2000)
- [287] VERZELEN, O. ; FERREIRA, R. ; BASTARD, G. ; INOSHITA, T. ; SAKAKI, H. : Polaron Effects in Quantum Dots. In: *phys. stat. sol. (a)* **190** (2002), 213
- [288] WALLS, D. F. ; MILBURN, G. J.: *Quantum Optics*. Springer, 1994
- [289] WANG, L.-W. ; LI, J. : First-principles thousand-atom quantum dot calculations. In: *Physical Review B* **69** (2004), 153302
- [290] WANG, L.-W. ; ZUNGER, A. : Linear combination of bulk bands method for large-scale electronic structure calculations on strained nanostructures. In: *Physical Review B* **59** (1999), 15806–15818
- [291] WANG, Z. M.: *Self-Assembled Quantum Dots*. Auflage: 2008. New York : Springer, 2007
- [292] WARD, M. B. ; FARROW, T. ; SEE, P. ; YUAN, Z. L. ; KARIMOV, O. Z. ; BENNETT, A. J. ; SHIELDS, A. J. ; ATKINSON, P. ; COOPER, K. ; RITCHIE, D. A.: Electrically driven telecommunication wavelength single-photon source. In: *Applied Physics Letters* **90** (2007), 063512
- [293] WICK, G. C.: The Evaluation of the Collision Matrix. In: *Physical Review* **80** (1950), 268–272
- [294] WIERSIG, J. ; GIES, C. ; JAHNKE, F. ; ASSMANN, M. ; BESTERMANN, T. ; BAYER, M. ; KISTNER, C. ; REITZENSTEIN, S. ; FORCHEL, S. H. A. ; KRUSE, C. ; KALDEN, J. ; HOMMEL, D. : Direct observation of correlations between individual photon emission events of a microcavity laser. In: *Nature* **460** (2009), 245
- [295] WILSON-RAE, I. ; IMAMOĞLU, A. : Quantum dot cavity-QED in the presence of strong electron-phonon interactions. In: *Phys. Rev. B* **65** (2002), 235311
- [296] WINGER, M. ; VOLZ, T. ; TAREL, G. ; PORTOLAN, S. ; BADOLATO, A. ; HENNESSY, K. J. ; HU, E. L. ; BEVERATOS, A. ; FINLEY, J. ; SAVONA, V. ; IMAMOĞLU, A. : Explanation of Photon Correlations in the Far-Off-Resonance Optical Emission from a Quantum-Dot-Cavity System. In: *Physical Review Letters* **103** (2009), 207403
- [297] WOJS, A. ; HAWRYLAK, P. ; FAFARD, S. ; JACAK, L. : Electronic structure and magneto-optics of self-assembled quantum dots. In: *Phys. Rev. B* **54** (1996), 5604

- 
- [298] WOOTTERS, W. K.: Entanglement of Formation of an Arbitrary State of Two Qubits. In: *Physical Review Letters* **80** (1998), 2245–2248
- [299] WÜRGER, A. : Strong-coupling theory for the spin-phonon model. In: *Phys. Rev. B* **57** (1998), 347–361
- [300] XIE, Z. G. ; GÖTZINGER, S. ; FANG, W. ; CAO, H. ; SOLOMON, G. S.: Influence of a Single Quantum Dot State on the Characteristics of a Microdisk Laser. In: *Phys. Rev. Lett.* **98** (2007), 117401
- [301] YAMAGUCHI, M. ; ASANO, T. ; NODA, S. : Photon emission by nanocavity-enhanced quantum anti-Zeno effect in solid-state cavity quantum-electrodynamics. In: *Optics Express* **16** (2008), 18067–18081
- [302] YOKOYAMA, H. ; NISHI, K. ; ANAN, T. ; NAMBU, Y. ; BRORSON, S. D. ; IPPEN, E. P. ; SUZUKI, M. : Controlling spontaneous emission and threshold-less laser oscillation with optical microcavities. In: *Optical and Quantum Electronics* **24** (1992), 245–272
- [303] YOSHIE, T. ; SCHERER, A. ; HENDRICKSON, J. ; KHITROVA, G. ; GIBBS, H. M. ; RUPPER, G. ; ELL, C. ; SHCHEKIN, O. B. ; DEPPE, D. G.: Vacuum Rabi splitting with a single quantum dot in a photonic crystal nanocavity. In: *Nature* **432** (2004), 200
- [304] YOSHINO, K.-i. ; AOKI, T. ; FURUSAWA, A. : Generation of continuous-wave broadband entangled beams using periodically poled lithium niobate waveguides. In: *Applied Physics Letters* **90** (2007), 041111
- [305] YUAN, Z. ; KARDYNAL, B. E. ; STEVENSON, R. M. ; SHIELDS, A. J. ; LOBO, C. J. ; COOPER, K. ; BEATTIE, N. S. ; RITCHIE, D. A. ; PEPPER, M. : Electrically Driven Single-Photon Source. In: *Science* **295** (2002), 102–105
- [306] ZIMMERMANN, R. ; RUNGE, E. : Dephasing in quantum dots via electron-phonon interaction. In: *Proc. 26th ICPS, Edinburgh* (2002)
- [307] ZORY, P. S.: *Quantum Well Lasers*. Academic Press, Boston, 1993





# Publikationsliste

## Publikationen in referierten Fachzeitschriften

1. RICHTER, F. ; FLORIAN, M. and HENNEBERGER, K. : Poynting's theorem and energy conservation in the propagation of light in bounded media. In: *Europhys. Lett.* **81** (2008), S. 67005
2. RICHTER, F. ; FLORIAN, M. and HENNEBERGER, K. : Generalized radiation law for excited media in a nonequilibrium steady state. In: *Phys. Rev. B* **78** (2008), S. 205114
3. RICHTER, F. ; FLORIAN, M. and HENNEBERGER, K. : Comment on „Poynting vector, heating rate, and stored energy in structured materials: A first-principles derivation“ In: *Phys. Rev. B* **82** (2010), S. 037103
4. SEBALD, K. ; SEYFRIED, M. ; KALDEN, J. ; GUTOWSKI, J. ; DARTSCH, H. ; TESSAREK, C. ; ASCHENBRENNER, T. ; FIGGE, S. ; KRUSE, C. ; HOMMEL, D. ; FLORIAN, M. and JAHNKE, F. : Optical properties of InGaN quantum dots in monolithic pillar microcavities. In: *Applied Physics Letters* **96** (2010), S. 251906
5. KRUSE, C. ; PACUSKI, W. ; JAKUBCZYK, T. ; KOBAC, J. ; GAJ, J. A. ; FRANK, K. ; SCHOWALTER, M. ; ROSENAUER, A. ; FLORIAN, M. ; JAHNKE, F. and HOMMEL, D. : Monolithic ZnTe-based pillar microcavities containing CdTe quantum dots. In: *Nanotechnology* **22** (2011), S. 285204
6. FLORIAN, M. ; JAHNKE, F. ; PRETORIUS, A. ; ROSENAUER, A. ; DARTSCH, H. KRUSE, C. and HOMMEL, D. : Influence of growth imperfections on optical properties of nitride pillar VCSEL microcavities. In: *physica status solidi (b)* **248** (2011), S. 1867
7. SEBALD, K. ; SEYFRIED, M. ; KALDEN, J. ; DARTSCH, H. ; TESSAREK, C. ; ASCHENBRENNER, T. ; FIGGE, S. ; KRUSE, C. ; HOMMEL, D. ; FLORIAN, M. ; JAHNKE, F. and GUTOWSKI J. : Properties of monolithic InGaN quantum dot pillar microcavities heterostructure. In: *physica status solidi (a)* **208** (2011), S. 1573

8. GIES, C. ; FLORIAN , M. ; GARTNER, P. and JAHNKE , F. : The single quantum dot-laser: lasing and strong coupling in the high-excitation regime. In: *Opt. Express* **19** (2011), S. 14370
9. GIES, C. ; FLORIAN , M. ; GARTNER, P. and JAHNKE , F. : A semiconductor model for the single quantum dot laser. In: *physica status solidi (b)* **248** (2011), S. 879
10. SCHUMACHER, S. ; FÖRSTNER, J. ; ZRENNER, A. ; FLORIAN , M. GIES, C. ; GARTNER, P. and JAHNKE , F. : Cavity-assisted emission of polarization-entangled photons from biexcitons in quantum dots with fine-structure splitting. In: *Opt. Express* **20** (2012), S. 5335
11. STEINHOFF, A. ; GARTNER, P. ; FLORIAN , M. and JAHNKE , F. : Treatment of carrier scattering in quantum dots beyond the Boltzmann equation. In: *Phys. Rev. B* **85** (2012), S. 205144
12. FLORIAN , M. ; GIES, C. ; GARTNER, P. and JAHNKE , F. : Improved antibunching by using high-excitation pulses from a single semiconductor quantum dot – a theoretical study. In: *JOSA B* **29** (2012), S. A31
13. KESSLER, C. A. ; REISCHLE, M. ; HARGART, F. ; SCHULZ, W.-M. ; EICHFELDER, M. ; ROSSBACH, R. ; JETTER, M. ; MICHLER, P. ; GARTNER, P. ; FLORIAN, M. ; GIES, C. and JAHNKE, F.: Strong antibunching from electrically driven devices with long pulses: A regime for quantum-dot single-photon generation. In: *Phys. Rev. B* **86** (2012), S. 115326
14. JAKUBCZYK, T. ; PACUSKI, W.; SMOLEŃSKI, T.; GOLNIK, A.; FLORIAN , M. ; JAHNKE , F., KRUSE, C. ; HOMMEL , D. and KOSSACKI , P.: Pronounced Purcell enhancement of spontaneous emission in CdTe/ZnTe quantum dots embedded in micropillar cavities. In: *Applied Physics Letters* **101** (2012), S. 132105
15. JAKUBCZYK, T. ; PACUSKI, W.; SMOLEŃSKI, T.; GOLNIK, A.; FLORIAN , M. ; JAHNKE , F., KRUSE, C. ; HOMMEL , D. and KOSSACKI , P.: Light-matter coupling in ZnTe-based micropillar cavities containing CdTe quantum dots. In: *Journal of Applied Physics* **113** (2013), S. 136504
16. FLORIAN , M. ; GARTNER, P.; GIES, C. and JAHNKE , F. : Phonon-mediated off-resonant coupling effects in semiconductor quantum-dot lasers. In: *New Journal of Physics* **15** (2013), S. 035019
17. FLORIAN , M. ; GIES, C. ; JAHNKE , F. ; LEYMAN, H. A. M. and WIERSIG, J. : Equation-of-motion technique for finite-size quantum-dot systems: Cluster expansion method. In: *Phys. Rev. B* **87** (2013), S. 165306

18. STEINHOFF, A. ; KURTZE , H. ; GARTNER , P. ; FLORIAN , M. ; REUTER, D. ; WIECK , A.D. ; BAYER , M. and JAHNKE , F. : Combined influence of Coulomb interaction and polarons on the carrier dynamics in InGaAs quantum dots . In: *Phys. Rev. B* **88** (2013), S. 205309
19. GOLDMANN , E. ; BARTHEL, S.; FLORIAN , M. ; SCHUH, K.; and JAHNKE , F. : Excitonic fine-structure splitting in telecom-wavelength InAs/GaAs quantum dots: Statistical distribution and height-dependence. In: *Applied Physics Letters* **103** (2013), S. 242102
20. FLORIAN , M. ; GARTNER, P.; STEINHOFF, A.; GIES, C. and JAHNKE , F. : Coulomb-assisted cavity feeding in nonresonant optical emission from a quantum dot In: *Phys. Rev. B* **89** (2014), S. 161302(R)

## Buchbeiträge

GIES, C. ; FLORIAN , M. ; GARTNER, P. and JAHNKE , F. : Modelling single quantum dots in microcavities. In: *Quantum Optics With Semiconductor Nanostructures*, Woodhead Publishing Limited (2012)

## Konferenzbeiträge

1. SEEMANN, M. ; KIESELING, F. ; STOLZ, H. ; FLORIAN, M. ; MANZKE, G. ; HENNEBERGER, K. and HOMMEL, D. : Absorption and emission of polariton modes in a ZnSe-ZnSSe heterostructure. In: *physica status solidi (b)* **245** (2008), S. 1093
2. SEYFRIED, M. ; KALDEN, J.; SEBALD, K.; KRUSE, C. ; FIGGE, S.; GUST , A. ; TESSAREK, C. ; DARTSCH, H. ; HOMMEL , D. ; FLORIAN , M. ; JAHNKE , F. and GUTOWSKI J. : Optical properties of wide-bandgap monolithic pillar microcavities with different geometries heterostructure. In: *physica status solidi (c)* **8** (2011), S. 1246



## Danksagung

Als Erstes möchte ich mich bei Prof. Dr. Frank Jahnke für die hervorragende Betreuung und Unterstützung in den letzten Jahren bedanken sowie dafür, dass er die Konferenzreisen in die USA ermöglicht hat.

Ein besonderer Dank gilt Christopher Gies, Alexander Steinhoff und Elias Goldmann für die freundschaftliche Zusammenarbeit, die vielen Ratschläge und so manche gemeinsame Freizeitaktivität.

Für viele wertvolle Diskussionen gebührt Paul Gartner ein herzlicher Dank.

Alexander Leymann und Stefan Schumacher danke ich für die produktive Zusammenarbeit.

Bei Prof. Dr. Tim Wehling bedanke ich mich für die Anfertigung des Zweitgutachtens.

Eine besondere Freude war die Zusammenarbeit mit den Kollegen aus den experimentellen Gruppen, von denen Christian Kessler, Tomasz Jakubczyk, Carsten Kruse, Kathrin Sebald und Moritz Seyfried genannt werden sollen.

Des Weiteren danke ich Kolja Schuh und Michael Lorke sowie den Mitgliedern der Arbeitsgruppen Czycholl und Wehling für die angenehme Arbeitsatmosphäre.

Zu guter Letzt bedanke ich mich bei meiner Freundin Sarah für ihre Unterstützung.