

Einflüsse von Quantenpunkt- Wetting-Layer-Übergängen auf die Absorptionsspektren von Halbleiter-Nanostrukturen

Bachelorarbeit

von

Marian Cepok

angefertigt in der

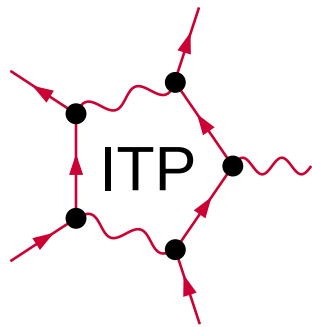
AG Jahnke

am

Institut für Theoretische Physik

der

Universität Bremen



18. September 2015

Erstgutachter: Dr. Michael Lorke
Zweitgutachter: Prof. Dr. Gerd Czycholl

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	5
2. Beschreibung des Systems	7
3. Theoretische Grundlagen	9
3.1. Behandlung von quantenmechanischen Vielteilchenproblemen	9
3.1.1. Zweite Quantisierung	9
3.1.2. Heisenbergsche Bewegungsgleichung	10
3.2. Beschreibung des Vier-Niveau-Systems	11
3.2.1. Beschreibung eines Systems bestehend aus beliebig vielen Energieniveaus	11
3.2.2. Transformation in rotierendes Bild	15
3.2.3. Anwendung der Rotation-Wave-Approximation und Vernachlässigung von Intrabandübergängen	17
3.2.4. Phänomenologische Dephasierung	18
3.2.5. Formalismus für vier Niveaus	19
3.3. Modell des Quantenpunkt-Wetting-Layer-Systems	21
3.3.1. Envelope-Näherung	22
3.4. Berechnung der optischen Absorption	23
4. Ergebnisse	25
4.1. Absorptionsspektren des Vier-Niveau-System	25
4.1.1. Abhängigkeit zwischen Amplitudenverhältnissen und Dipolmatrixelement	26
4.1.2. Auswirkung der Dephasierung auf die Absorptionspeaks	27
4.2. Absorptionsspektren des Quantenpunkt-Wetting-Layer-Systems für konstante Dipolmatrixelemente	28
4.3. Absorptionsspektren des Quantenpunkt-Wetting-Layer-Systems mit berechneten Dipolmatrixelementen	30
4.3.1. Untersuchung der Absorptionsspektren für berechnete nicht-diagonale Dipolmatrixelemente	30
5. Zusammenfassung	37
A. Anhang	39
A.1. Wellenfunktionen	39
A.1.1. Wellenfunktionen der Quantenpunkte	39
A.1.2. Wellenfunktion des Wetting-Layers	39

A.2. Berechnung der Dipolmatrixelemente und der Gesamtpolarisation . . .	40
A.2.1. Berechnung der Dipolmatrixelemente	40
A.2.2. Gesamtpolarisation	44

Literaturverzeichnis	47
-----------------------------	-----------

1. Einleitung

In den letzten Jahren hat das Interesse an optoelektronischen Bauelementen bestehend aus Halbleiter-Nanostrukturen stark zugenommen. Dieses Interesse resultiert aus den stetig besser werdenden Methoden zur Herstellung solcher Systeme und aus den breiten Anwendungsmöglichkeiten, die diese Strukturen besitzen. Bereits heute sind viele solcher Bauelemente in den Alltagsgebrauch übergegangen. Als Beispiel für solche Alltagsanwendungen seien LEDs, welche ihre Verbreitung als sehr energiesparende Methoden zur Beleuchtung finden, oder auch Laser erwähnt, welche zur Informationsübertragung eingesetzt werden (bspw. Einspeisen von Signalen in Glasfaserkabel oder Lesen und Schreiben von Informationen auf DVD). Auch Systeme, welche optische Anregung effizient in elektrische Energie umwandeln (Solarzellen) basieren auf solchen Halbleiter-Nanostrukturen.

Ganz besonders in den Fokus der Forschung geraten sind sogenannte Quantenpunkte. Hierbei handelt es sich um Halbleiterstrukturen mit einer Ausdehnung weniger Nanometer, in welchen Ladungsträger einen Einschluss verspüren. Dieser Einschluss führt dazu, dass in dem Quantenpunkt nur diskrete Energieniveaus von den Ladungsträgern besetzt werden können, wodurch ein Spektrum ähnlich dem eines Atoms entsteht, weshalb Quantenpunkte häufig auch als künstliche Atome bezeichnet werden. Die in dieser Arbeit untersuchten Quantenpunkte befinden sich auf einem sogenannten Wetting-Layer, einer in zwei Richtungen weit ausgebreiteten, aber in der dritten Richtung sehr schmalen Halbleiterstruktur. Um weitere Anwendungen zu finden bzw. die aktuellen Anwendungen optimieren zu können, ist ein theoretisches Verständnis von Prozessen in diesen Systemen unerlässlich.

Die optischen Eigenschaften von einem System bestehend aus Quantenpunkten und Wetting-Layer sind von Interesse, da diese unter anderem gezielt durch Wahl des Halbleitermaterials beeinflusst werden können. In dieser Arbeit werden die Absorptionseigenschaften von Quantenpunkt-Wetting-Layer-Systemen untersucht. Auf das Material treffendes Licht regt Übergänge zwischen verschiedenen Energieniveaus an. Ein Übergang von einem niedrigeren Niveau auf ein höheres geschieht unter Absorption von Licht. Ein großer Anteil der Absorption kommt durch Übergänge der Ladungsträger innerhalb der Quantenpunkte bzw. innerhalb des Wetting-Layers zustande und wurde häufig untersucht. Es können jedoch auch Übergänge zwischen Quantenpunkten und Wetting-Layer angeregt werden. Diese in dieser Arbeit als nicht-diagonal bezeichneten Übergänge liefern nicht die primären Anteile der Absorption und wurden daher häufig vernachlässigt [9, 5]. Die Wichtigkeit dieser nicht-diagonalen Übergänge ist jedoch beispielsweise in [13] dargestellt, wo diese als Effekte der Streuung von Ladungsträgern in Quantenpunkten genannt werden. Auch können in Kavitäten, die nicht resonant zum

1. Einleitung

Quantenpunkt-Quantenpunkt-Übergang sind, Emissionen durch die nicht-diagonalen Übergänge auftreten, wo ansonsten keine wären. In dieser Arbeit sollen daher gerade diese Übergänge zwischen Quantenpunkten und Wetting-Layer im Fokus stehen.

Diese Arbeit umfasst vier Abschnitte. Zunächst wird das Materialsystem beschrieben. Anschließend folgt eine kurze theoretische Einführung in die quantenmechanische Behandlung von Vielteilchenproblemen, eine ausführliche Herleitung eines Systems bestehend aus vier Energieniveaus, grundlegende Methoden zur theoretischen Beschreibung von Festkörpern sowie eine kurze Beschreibung optischer Absorption. Im dritten Teil der Arbeit werden die numerischen Ergebnisse dargestellt. Hierbei werden als Erstes grundlegende Absorptionsspektren eines System bestehend aus vier Energieniveaus beschrieben. Anschließend wird die Absorption eines Systems untersucht, welches anstelle von zwei dieser diskreten Niveaus kontinuierliche Bänder besitzt, wobei die Dipolmatrixelemente zwischen den Quantenpunkt-Wetting-Layer-Übergängen hier noch unabhängig von der Wellenzahl modelliert werden. Zuletzt werden explizite Wellenfunktionen zur Beschreibung des Systems angesetzt und mithilfe dieser Wellenfunktionen Dipolmatrixelemente berechnet. Diese berechneten Dipolmatrixelemente werden wiederum dazu verwendet, die Absorptionsspektren auszurechnen, welche dann interpretiert werden können. Zum Abschluss der Arbeit werden die Ergebnisse im wissenschaftlichen Kontext diskutiert sowie mögliche Erweiterungen der hier durchgeführten Untersuchungen dargestellt.

2. Beschreibung des Systems

Das in dieser Arbeit betrachtete System besteht aus einem Wetting-Layer¹, auf welchem Quantenpunkte gewachsen sind. Ein solches System kann beispielsweise entstehen, indem auf eine Halbleiterschicht eine weitere Halbleiterschicht mit einer anderen Materialzusammensetzung und damit anderen Gitterkonstanten aufgewachsen wird. Die verschiedenen Gitterkonstanten haben zur Folge, dass Verspannungen in dem aufgewachsenen Halbleiter entstehen. Auf mehreren Wachstumsebenen heben sich diese Verspannungen auf und bilden dabei Halbleiterinseln, die sogenannten Quantenpunkte.

Der Wetting-Layer hat in Wachstumsrichtung nur eine geringe Ausdehnung weniger Atomlagen, in der Wachstumsebene ist er jedoch stark ausgebreitet. Dies hat einen Einschluss von Ladungsträgern in Wachstumsrichtung zur Folge. Da die Wachstumsebene jedoch weit ausgebreitet ist, sind die Ladungsträger in dieser Richtung frei beweglich. Die Zustandsdichte der Ladungsträger unterscheidet sich hinsichtlich eines üblichen Festkörpers darin, dass das Potential in Wachstumsrichtung einem Potentialtopf ähnelt, weshalb sich nur in der Wachstumsebene ebene Wellen ausbreiten können. Der Wetting-Layer besitzt auch eine wichtige Rolle für integrierte Bauelemente. In solchen können elektrische Kontakte an den Wetting-Layer oder an die Halbleiterschichten, in welche dieser eingebettet ist, angebracht werden, wodurch es möglich ist, die Ladungsträger anzuregen. Hierdurch kann eine Streuung von den Ladungsträgern in die lokalisierten Quantenpunkt-Zustände erfolgen.

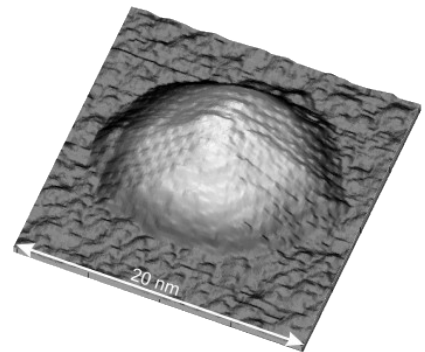


Abbildung 2.1.: Darstellung entnommen aus [12]. Rastertunnelmikroskopieaufnahme eines InAs Quantenpunkts auf einem GaAs Wetting-Layer.

In den Quantenpunkten erfahren die Ladungsträger einen Einschluss in allen drei Raumrichtungen. Quantenpunkte werden daher auch als null-dimensionale Strukturen bezeichnet (wogegen der Wetting-Layer eine zwei-dimensionale Struktur bildet). Die Größe des Einschlusses befindet sich in der Größenordnung der De-Broglie-Wellenlänge der Ladungsträger, weshalb diese nur diskrete Energieniveaus besetzen können. In dieser Arbeit werden für die theoretische Beschreibung der Quantenpunkte einige Annahmen gemacht. Diese Annahmen sind zum einen die Rotationssymmetrie der Quantenpunkte (diese kann in guter Näherung für Quantenpunkte wie in Abbildung 2.1 angenommen werden), sowie die Voraussetzung, dass die Quantenpunkte nur ein einzelnes Energi-

¹Anstatt Wetting-Layer wird in der Literatur auch der Begriff Benetzungsschicht verwendet.

2. Beschreibung des Systems

veau besitzen. Solche einzelnen Energieniveaus lassen sich sowohl dem Valenz- als auch dem Leitungsband zuordnen, so dass es ein Energieniveau leicht über dem Kontinuum des Valenzbandes und eines leicht unter dem Kontinuum des Leitungsbandes gibt.

Die Quantenpunkte entstehen zufällig auf dem Wetting-Layer und besitzen daher eine statistische Verteilung (vgl. Abbildung 2.2). Übergänge treten nicht zwischen verschiedenen Quantenpunkten auf, sondern sind auf Übergänge zwischen Valenz- und Leitungsband desselben Quantenpunktes bzw. auf Übergänge zwischen lokalisierten Quantenpunkt-Zuständen und kontinuierlichen Zuständen im Wetting-Layer beschränkt.

In dieser Arbeit werden Quantenpunkte modelliert, welche sich eingebettet in dem Quantenfilm befinden. Diese Modellierung lässt sich mathematisch einfach beschreiben. Sie ist ein Modell, welches sich in guter Näherung auch auf flache Quantenpunkte anwenden lässt, die auf der Oberfläche vom Wetting-Layer gewachsen sind.

Ein Materialsystem, welches die hier gemachten Forderungen erfüllen kann, wäre beispielsweise ein In-GaAs Halbleiter aufgewachsen auf GaAs. Die in der Auswertung gewählten Parameter werden daher an GaAs orientiert.

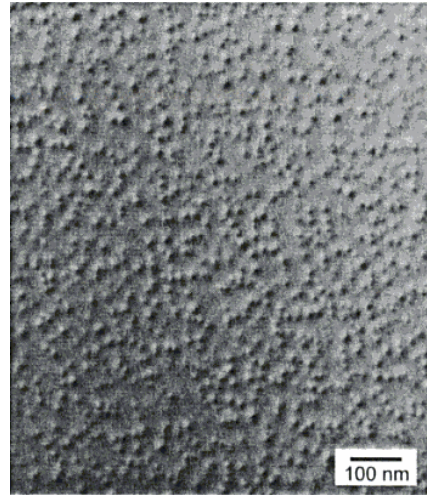


Abbildung 2.2.: Darstellung entnommen aus [2]. Zu sehen sind zufällig verteilte InAs Quantenpunkte gewachsen auf GaAs.

3. Theoretische Grundlagen

3.1. Behandlung von quantenmechanischen Vielteilchenproblemen

3.1.1. Zweite Quantisierung

Um Vielteilchenprobleme quantenmechanisch zu beschreiben, ist eine Möglichkeit, in den Formalismus der zweiten Quantisierung überzugehen [14]. Dieser besteht im Wesentlichen aus der Einführung von sogenannten Erzeuger- und Vernichterooperatoren. Angewendet fügt ein Erzeuger einem Zustand ein Teilchen hinzu, während ein Vernichter ein Teilchen aus einem Zustand entfernt. Hierbei treten leichte Unterschiede zwischen den Erzeugern und Vernichtern von Bosonen bzw. Fermionen auf. Als Teilchen werden in dieser Arbeit ausschließlich Fermionen betrachtet, weshalb nicht weiter auf den Formalismus für Bosonen eingegangen wird¹.

Betrachtet wird ein quantenmechanisches System mit dem Hamilton-Operator H und der dazugehörigen Eigenwertsgleichung $H|i\rangle = \varepsilon_i|i\rangle, i \in \mathbb{N} \setminus \{0\}$. Der Erzeugungsoperator (Vernichtungsoperator) a_i^\dagger (a_i) erzeugt (vernichtet) ein Teilchen im Zustand $|i\rangle$. Das † bezeichnet hierbei den adjungierten Operator. Ein Erzeuger ist also der adjungierte Operator zu dem entsprechenden Vernichter und vice versa. Für fermionische Erzeuger und Vernichter gelten die fundamentalen Kommutator-Relationen:

$$\{a_i^\dagger, a_j^\dagger\} = 0 \quad (3.1.1)$$

$$\{a_i, a_j\} = 0 \quad (3.1.2)$$

$$\{a_i^\dagger, a_j\} = \delta_{ij} \quad (3.1.3)$$

mit $\{A, B\} = AB + BA$. In diesen Relationen ist das Pauli-Prinzip enthalten, da

$$\begin{aligned} \{a_i^\dagger, a_i^\dagger\} &= 2a_i^\dagger a_i^\dagger = 0 \\ \Rightarrow a_i^\dagger a_i^\dagger &= 0. \end{aligned}$$

Ein Operator A wird in zweiter Quantisierung wie folgt dargestellt:

$$A = \sum_{ij} A_{ij} a_i^\dagger a_j \quad (3.1.4)$$

¹Dieser ist beispielsweise in [11] beschrieben.

3.1. Behandlung von quantenmechanischen Vielteilchenproblemen

mit $A_{ij} = \langle i|A|j\rangle$. Für Operatoren in Eigenbasis, wie zum Beispiel den Hamilton-Operator, ergibt sich:

$$H_{ij} = \langle i|H|j\rangle = \varepsilon_j \langle i|j\rangle = \varepsilon_j \delta_{ij}$$

woraus H durch (3.1.4) zu

$$H = \sum_{ij} \varepsilon_j \delta_{ij} a_i^\dagger a_j = \sum_i \varepsilon_i a_i^\dagger a_i \quad (3.1.5)$$

wird.

Das Operatorprodukt $a_i^\dagger a_i = n_i$ wird Besetzungszahloperator genannt und liefert als Eigenwert die Anzahl der im Zustand $|i\rangle$ befindlichen Teilchen. Im fermionischen Falle kann der Eigenwert gemäß des Pauli-Prinzips nur 0 und 1 annehmen. Der Erwartungswert $\langle a_i^\dagger a_i \rangle = \langle n_i \rangle = f_i$ liefert die Aufenthaltswahrscheinlichkeit eines Teilchens im Zustand $|i\rangle$.

Für $i \neq j$ beschreibt $a_i^\dagger a_j$ den Übergang von einem Zustand $|j\rangle$ auf einen Zustand $|i\rangle$. Der Erwartungswert $\langle a_i^\dagger a_j \rangle$ ist ein Maß für die Übergangswahrscheinlichkeit und wird mikroskopische Polarisierung genannt.

3.1.2. Heisenbergsche Bewegungsgleichung

Um die Dynamik des Systems untersuchen zu können, wird die Zeitentwicklung der Erzeuger und Vernichter benötigt. Die Zeitentwicklung von Operatoren allgemein folgt aus der Heisenbergschen Bewegungsgleichung [11].

Ausgangspunkt stellt die Schrödinger-Gleichung dar:

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\psi\rangle = H |\psi\rangle.$$

Durch adjungieren dieser Gleichung erhält man:

$$-i\hbar \frac{d}{dt} \langle\psi| = \langle\psi| H^\dagger = \langle\psi| H,$$

da H hermitesch ist. Fügt man diese Gleichungen links bzw. rechts an einen Operator A an, folgt:

$$\frac{d}{dt} \langle\psi|A|\psi\rangle = \frac{i}{\hbar} \langle\psi|(HA - AH)|\psi\rangle = \frac{i}{\hbar} \langle\psi|[H, A]|\psi\rangle.$$

Da Operatoren im Heisenberg-Bild nicht explizit zeitabhängig sind, entfällt $\frac{\partial}{\partial t} \langle\psi|A|\psi\rangle$. Diese Gleichung ist für alle $|\psi\rangle$ erfüllt und ist daher auch ohne den Erwartungswert gültig. Hieraus ergibt sich die Heisenbergsche Bewegungsgleichung:

$$\frac{d}{dt} A = \frac{i}{\hbar} [H, A]. \quad (3.1.6)$$

3.2. Beschreibung des Vier-Niveau-Systems

Als Vorstufe für ein Quantenpunkt-Wetting-Layer-System wird in dieser Arbeit ein System aus vier diskreten Niveaus betrachtet. Das oberste und unterste Niveau des Vier-Niveau-Systems lässt sich mit dem späteren Leitungs- und Valenzband des Wetting-Layers identifizieren und die beiden mittleren Niveaus mit den diskreten Quantenpunkt-Niveaus.

In Abbildung 3.1 ist ein solches System schematisch dargestellt. Die Übergänge zwischen den Niveaus $|1\rangle$ und $|4\rangle$ sind die analogen Übergänge zwischen zwei Wetting-Layer-Bänder und die Übergänge zwischen den Niveaus $|2\rangle$ und $|3\rangle$ sind analog zu den Übergängen zwischen zwei Quantenpunkt-Niveaus. Diese in der Abbildung blau dargestellten Übergänge werden im Folgenden als diagonale Übergänge bezeichnet. Die grün dargestellten Übergänge zwischen den Niveaus $|1\rangle$ und $|3\rangle$ sowie $|2\rangle$ und $|4\rangle$ sind Übergänge zwischen Wetting-Layer und Quantenpunkt-Zuständen und werden als nicht-diagonale Übergänge bezeichnet. Während beim Vier-Niveau-System keine Unterschiede zwischen den hier als diagonalen und nicht-diagonalen bezeichneten Übergängen vorliegen, nehmen diese beim Quantenpunkt-Wetting-Layer-System eine besondere Rolle ein.

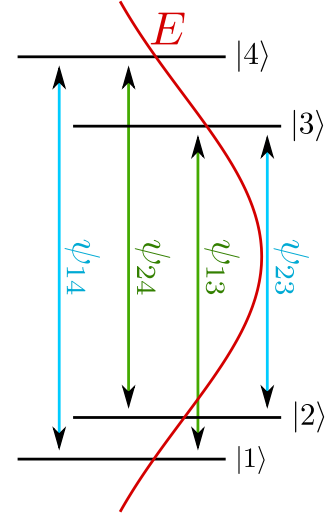


Abbildung 3.1.: Dargestellt ist ein Schema eines Vier-Niveau-Systems. Das äußere elektrische Feld E (rot) regt Übergänge zwischen den Niveaus $|1\rangle$, $|2\rangle$, $|3\rangle$ und $|4\rangle$ an, welche durch die mikroskopischen Polarisationen ψ_{ij} (grün und blau) zwischen den Niveaus i und j beschrieben werden.

3.2.1. Beschreibung eines Systems aus beliebig vielen Energieniveaus

Zur Beschreibung des Vier-Niveau-Systems wird zunächst die zeitliche Entwicklung eines Systems mit n Niveaus hergeleitet. Hieraus lässt sich später die zeitliche Entwicklung eines Systems mit 4 Energieniveaus erhalten.

Betrachtet wird das quantenmechanische System mit dem Einteilchen-Hamilton-Operator

$$H_0 = \frac{p^2}{2m} + U(\mathbf{r}).$$

Die genaue Form des Potentials $U(\mathbf{r})$ muss zunächst nicht bekannt sein. Die Lösung der Eigenwertgleichung $H_0 |i\rangle = \varepsilon_i |i\rangle$ wird als bekannt angenommen, wobei ε_i als Eigenwerte (Eigenenergien) zu den Eigenzuständen $|i\rangle$ aus dieser Lösung resultieren.

3.2. Beschreibung des Vier-Niveau-Systems

Zusätzlich wird ein Wechselwirkungs-Hamilton-Operator der Form

$$H_{\text{ww}} = -Ed$$

verwendet, wobei E ein externes elektrisches Feld und d den Dipoloperator des Systems bezeichnet [14]. Hierbei wurden die Annahmen gemacht, dass die Dipole sowie das elektrische Feld parallel zur Wachstumsebene des Wetting-Layers liegen. Dadurch lässt sich die eigentliche vektorielle Darstellung des Wechselwirkungs-Hamilton-Operators $H_{\text{ww}} = -\mathbf{E} \cdot \mathbf{d}$ durch die skalare Darstellung ersetzen. Die Annahme des parallelen elektrischen Feldes begründet sich dadurch, dass das anregende Licht senkrecht auf den Wetting-Layer eingestrahlt wird, wobei das elektrische Feld senkrecht zur Strahlrichtung steht. Die Annahme der parallelen Dipole lässt sich durch die geringe Ausdehnung des Wetting-Layers in Wachstumsrichtung begründen. Das externe elektrische Feld wird in dieser Arbeit nicht quantisiert, sondern als klassisches, kontinuierliches Feld mit einer Funktionsvorschrift $E = E(\mathbf{r}, t)$ angenommen. Der Gesamt-Hamilton-Operator ergibt sich zu

$$H = H_0 + H_{\text{ww}} = \frac{p^2}{2m} + U(\mathbf{r}) - E(\mathbf{r}, t)d.$$

Gemäß (3.1.4) und (3.1.5) lässt sich H in zweiter Quantisierung wie folgt darstellen:

$$H = \sum_i \varepsilon_i a_i^\dagger a_i - \sum_{i,j} (Ed)_{ij} a_i^\dagger a_j.$$

Im Folgenden soll die Zeitentwicklung der Erwartungswerte $\langle a_i^\dagger a_j \rangle$ sowie $\langle a_i^\dagger a_i \rangle$ hergeleitet werden. Es gilt:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \langle a_i^\dagger a_j \rangle &= \left\langle \frac{d}{dt} (a_i^\dagger a_j) \right\rangle \\ &= \left\langle \left(\frac{d}{dt} a_i^\dagger \right) a_j + a_i^\dagger \left(\frac{d}{dt} a_j \right) \right\rangle \\ &= \left\langle \left(\frac{d}{dt} a_i^\dagger \right) a_j \right\rangle + \left\langle a_i^\dagger \left(\frac{d}{dt} a_j \right) \right\rangle. \end{aligned} \quad (3.2.1)$$

Benötigt werden also die Zeitentwicklungen der Operatoren a_k^\dagger und a_k . Diese ergeben sich aus (3.1.6):

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} a_k^\dagger &= \frac{i}{\hbar} [H, a_k^\dagger] \\ &= \frac{i}{\hbar} \left[\sum_i \varepsilon_i a_i^\dagger a_i - \sum_{i,j} (Ed)_{ij} a_i^\dagger a_j, a_k^\dagger \right] \\ &= \frac{i}{\hbar} \left(\sum_i \varepsilon_i [a_i^\dagger a_i, a_k^\dagger] - \sum_{i,j} (Ed)_{ij} [a_i^\dagger a_j, a_k^\dagger] \right). \end{aligned}$$

Hier wird zunächst der Kommutator $[a_i^\dagger a_j, a_k^\dagger]$ ausgerechnet. Für diesen ergibt sich mit (3.1.3):

$$[a_i^\dagger a_j, a_k^\dagger] = \delta_{jk} a_i^\dagger.$$

Eingesetzt:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} a_k^\dagger &= \frac{i}{\hbar} \left(\sum_i \varepsilon_i \delta_{ik} a_i^\dagger - \sum_{i,j} (Ed)_{ij} \delta_{jk} a_i^\dagger \right) \\ &= \frac{i}{\hbar} \left(\varepsilon_k a_k^\dagger - \sum_i (Ed)_{ik} a_i^\dagger \right). \end{aligned}$$

Analog oder durch Adjungieren von $\frac{d}{dt} a_k^\dagger$ ergibt sich $\frac{d}{dt} a_k$:

$$\frac{d}{dt} a_k = \frac{i}{\hbar} \left(-\varepsilon_k a_k + \sum_i (Ed)_{ki} a_i \right).$$

Mit diesen Ergebnissen kann man mit (3.2.1) fortfahren:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \langle a_i^\dagger a_j \rangle &= \frac{i}{\hbar} \left\langle \left(\varepsilon_i a_i^\dagger - \sum_n (Ed)_{ni} a_n^\dagger \right) a_j \right\rangle + \frac{i}{\hbar} \langle a_i^\dagger \left(-\varepsilon_j a_j + \sum_n (Ed)_{jn} a_n \right) \rangle \\ &= \frac{i}{\hbar} \left((\varepsilon_i - \varepsilon_j) \langle a_i^\dagger a_j \rangle + \sum_n \left((Ed)_{jn} \langle a_i^\dagger a_n \rangle - (Ed)_{ni} \langle a_n^\dagger a_j \rangle \right) \right) \end{aligned}$$

An dieser Stelle werden die Bezeichnungen $\psi_{ij} = \langle a_i^\dagger a_j \rangle$, $i \neq j$, und $f_i = \langle a_i^\dagger a_i \rangle$ verwendet. Hierbei sei angemerkt, dass $(Ed)_{ij}$ hermitesch ist, da es sich um eine observable Größe handelt. Außerdem verschwindet $(Ed)_{ii}$, da sich dies durch ein Skalarprodukt $\langle i | \mathbf{r} | i \rangle$ beschreiben lässt, welches als Integral geschrieben

$$\int |\psi_i|^2 \mathbf{r} d^3 r$$

ergibt. Der Integrand ist hierbei eine ungerade Funktion, weshalb das Integral verschwindet. Physikalisch betrachtet, beschreibt $(Ed)_{ii}$ einen Übergang von einem Niveau auf sich selbst. Solche Übergänge finden demnach nicht statt. Zusammengefasst gilt $(Ed)_{ij} = (Ed)_{ji}^*$ und $(Ed)_{ii} = 0$. Es folgt hiermit:

$$\frac{d}{dt} \psi_{ij} = \frac{i}{\hbar} \left((\varepsilon_i - \varepsilon_j) \psi_{ij} + (Ed)_{ij} (f_i - f_j) + \sum_{n \neq i,j} ((Ed)_{jn} \psi_{in} - (Ed)_{ni} \psi_{nj}) \right). \quad (3.2.2)$$

Auf analoge Weise lässt sich $f_i = \langle a_i^\dagger a_i \rangle$ ermitteln:

$$\frac{d}{dt} f_i = \frac{i}{\hbar} \sum_{n \neq i} (Ed)_{in} \psi_{in} - \frac{i}{\hbar} \sum_{n \neq i} (Ed)_{ni} \psi_{ni}.$$

3.2. Beschreibung des Vier-Niveau-Systems

Hierbei ist der zweite Summand das komplex Konjugierte zum ersten Summanden, daher lässt sich dies kompakter schreiben:

$$\frac{d}{dt}f_i = \frac{2}{\hbar} \sum_{n \neq i} \text{Im} [(Ed)_{ni} \psi_{ni}]. \quad (3.2.3)$$

Die Gleichungen (3.2.2) und (3.2.3) sind die zentralen Gleichungen zur Beschreibung des Vier-Niveau-Systems und bilden außerdem die Grundlage für die Berechnung der Systeme mit Bändern anstatt einzelner Niveaus. Die Gestalt dieser Gleichungen wird im Folgenden noch durch einige Näherungen vereinfacht und in eine Form zur Beschreibung eines Systems bestehend aus vier Niveaus gebracht.

An dieser Stelle lässt sich an der mathematischen Form erkennen, dass die zeitliche Änderung $\frac{d}{dt}\psi_{ij}$ im Allgemeinen komplex sein kann und daher auch ψ_{ij} selbst. f_i hingegen entwickelt sich in der Zeit reell, bleibt also selbst ebenfalls stets reell. Dies ergibt physikalisch Sinn, da f_i die Besetzungswahrscheinlichkeit des Zustands $|i\rangle$ beschreibt, welche als Wahrscheinlichkeit nur reell interpretiert werden kann.

Da $\langle a_i^\dagger a_j \rangle = \langle a_j^\dagger a_i \rangle^*$ gilt, folgt ebenfalls $\psi_{ij} = \psi_{ji}^*$. Wenn ψ_{ij} für alle Kombinationen i, j berechnet wird, werden alle mikroskopischen Polarisierungen doppelt berechnet. Aus diesem Grund und um die Transformation in Abschnitt 3.2.3 leichter durchführen zu können, ist es sinnvoll, (3.2.2) so umzuschreiben, dass für alle ψ_{ij} stets $i < j$ gilt. Um dies zu erreichen, müssen die ψ_{ij} , für die $i > j$ ist, komplex konjugiert werden. Hierzu werden die Summen aufgeteilt, um diese beiden Fälle unterscheiden zu können:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\psi_{ij} = \frac{i}{\hbar} & \left((\varepsilon_i - \varepsilon_j)\psi_{ij} + (Ed)_{ij}(f_i - f_j) \right. \\ & + \sum_{n>i, n \neq j} (Ed)_{jn}\psi_{in} + \sum_{n<i} (Ed)_{jn}\psi_{ni}^* \\ & \left. - \sum_{n<j, n \neq i} (Ed)_{ni}\psi_{nj} - \sum_{n>j} (Ed)_{ni}\psi_{jn}^* \right). \end{aligned} \quad (3.2.4)$$

Dasselbe wird entsprechend für f_i durchgeführt:

$$\frac{d}{dt}f_i = \frac{2}{\hbar} \left(\sum_{n<i} \text{Im} [(Ed)_{ni}\psi_{ni}] - \sum_{n>i} \text{Im} [(Ed)_{in}\psi_{in}] \right). \quad (3.2.5)$$

Das Minuszeichen zwischen den beiden Summen rührt daher, dass der Imaginäranteil einer komplexen Zahl beim komplex Konjugieren negativ wird.

An (3.2.5) wird ersichtlich, dass

$$\sum_i \frac{d}{dt}f_i = \frac{d}{dt} \sum_i f_i = 0, \quad (3.2.6)$$

da in der Summe über alle f_i alle Summanden doppelt vorkommen, einmal mit positivem und einmal mit negativem Vorzeichen. Hieraus folgt:

$$\sum_i f_i = \text{const.},$$

was eine Konstanz der Teilchenzahl im System zu jedem Zeitpunkt beschreibt. Diese Aussage bleibt gültig, wenn im Folgenden Terme durch Näherung vernachlässigt werden, da es sich hierbei jeweils um Terme handelt, welche sich in (3.2.6) kompensieren.

3.2.2. Transformation in rotierendes Bild

Der erste Summand $\frac{i}{\hbar}(\varepsilon_i - \varepsilon_j)\psi_{ij}$ aus (3.2.4) beschreibt eine Rotation von ψ_{ij} . Um dies zu verdeutlichen kann eine Differentialgleichung der Form

$$\frac{d}{dt}y(t) = i\omega y(t)$$

betrachtet werden. Die allgemeine Lösung dieser Differentialgleichung ergibt sich zu:

$$y(t) = A \exp(i\omega t) = A(\cos(\omega t) + i \sin(\omega t)).$$

Ist ω groß, handelt es sich um eine schnelle Rotation und damit eine schnelle Änderung von $y(t)$, welche nur unter großem Rechenaufwand numerisch hinreichend genau aufgelöst werden kann. Dies ist auch bei ψ_{ij} der Fall, da die Frequenz $(\varepsilon_i - \varepsilon_j)/\hbar$ für die in dieser Arbeit betrachteten Systeme groß gegen die Zeitskala ist, in der sich das System entwickelt. Um den numerischen Aufwand zu verringern, lässt sich eine Transformation durchführen, welche die schnelle Rotation aus der Differentialgleichung entfernt. Für die Beispieldifferentialgleichung kann eine Transformation der Form

$$y(t) = \tilde{y}(t) \exp(i\omega_0 t) \tag{3.2.7}$$

angesetzt werden. Damit ergibt sich:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}y(t) &= \left(\left(\frac{d}{dt}\tilde{y}(t) \right) + i\omega_0\tilde{y}(t) \right) \exp(i\omega_0 t) \\ \Rightarrow \frac{d}{dt}\tilde{y}(t) &= i(\omega - \omega_0)\tilde{y}(t) \\ \Rightarrow \tilde{y}(t) &= A \exp(i(\omega - \omega_0)t). \end{aligned}$$

Für den Fall $\omega = \omega_0$ verschwindet die Rotation komplett, aber auch schon für $\omega \sim \omega_0$ ist die Rotation ausreichend langsam, dass sie mit nicht all zu hohem numerischen Aufwand aufgelöst werden kann.

Dasselbe Prinzip soll auf die mikroskopischen Polarisierungen ψ_{ij} angewendet werden. Da $(\varepsilon_i - \varepsilon_j)/\hbar$ für jedes Paar i, j verschieden sein kann, kann im Allgemeinen keine Transformation mit einer Frequenz gefunden werden, welche für alle ψ_{ij} die Rotation vollständig verschwinden lässt. Es wäre möglich für jedes ψ_{ij} eine unterschiedliche

3.2. Beschreibung des Vier-Niveau-Systems

Transformation anzusetzen, dies würde allerdings in späterer Rechnung zu erheblichem Aufwand führen, weshalb für alle ψ_{ij} eine gemeinsame Frequenz ω_0 heraus transformiert wird. Hierfür wird eine Transformation analog zu (3.2.7) angesetzt²:

$$\begin{aligned}\psi_{ij}(t) &= \tilde{\psi}_{ij}(t) \exp(-i\omega_0 t) \\ \Rightarrow \frac{d}{dt}\psi_{ij}(t) &= \left(\left(\frac{d}{dt}\tilde{\psi}_{ij}(t) \right) - i\omega_0 \tilde{\psi}_{ij}(t) \right) \exp(-i\omega_0 t).\end{aligned}\tag{3.2.8}$$

An dieser Stelle sei angemerkt, dass diese Transformation sich ausschließlich auf ψ_{ij} bezieht und nicht etwa auf f_i . Außerdem wird die Transformation, wie sie oben geschrieben wurde, nur auf ψ_{ij} mit $i < j$ angewendet. Für ψ_{ij} mit $i > j$ muss wegen $\psi_{ij} = \psi_{ji}^*$ entsprechend der Ansatz

$$\psi_{ij} = \tilde{\psi}_{ij} \exp(i\omega_0 t)$$

gemacht werden. Mit dieser Transformation erhält man mit $i > j$ für ψ_{ij} dieselben Ergebnisse wie für ψ_{ji}^* mit der in (3.2.8) verwendeten Transformation. Daher genügt es, im Folgenden nur die $\frac{d}{dt}\psi_{ij}$ mit $i < j$ zu berechnen. Außerdem werden die ψ_{ij} in den Differentialgleichungen ggf. komplex konjugiert, sollte $i > j$ sein.

Für das später betrachtete Vier-Niveau-System (und analog auch für andere Systeme mit drei oder mehr Niveaus) ergibt diese Transformation nur dann Sinn, wenn alle ψ_{ij} für $i < j$ mit ähnlichen Frequenzen $\omega \approx \varepsilon_1 - \varepsilon_4$ bzw. für $i > j$ mit $\omega \approx \varepsilon_4 - \varepsilon_1$ rotieren, denn kleine Rotationen würden in der Transformation in ein schnell rotierendes Bild wieder schnell rotierende Anteile ergeben. Langsam rotierende ψ_{ij} sind gerade solche, welche in der Betrachtung eines Vier-Niveau-Systems nicht über die Bandlücke hinaus gehen würden. Solche Übergänge werden als Intrabandübergänge bezeichnet. Diese Intrabandübergänge liefern ausschließlich Beiträge des Absorptionsspektrums im Infrarotbereich, welcher in dieser Arbeit nicht untersucht werden soll. Die Intrabandanteile werden daher im weiteren Verlauf dieser Arbeit vernachlässigt.

Die Transformation aus (3.2.8) eingesetzt in (3.2.4) ergibt:

$$\begin{aligned}\frac{d}{dt}\tilde{\psi}_{ij} &= \frac{i}{\hbar} \left((\varepsilon_i - \varepsilon_j + \hbar\omega_0)\tilde{\psi}_{ij} + (Ed)_{ij}(f_i - f_j) \exp(i\omega_0 t) \right. \\ &\quad + \sum_{n>i, n \neq i} (Ed)_{jn}\tilde{\psi}_{in} + \sum_{n<i} (Ed)_{jn}\tilde{\psi}_{ni}^* \exp(2i\omega_0 t) \\ &\quad \left. - \sum_{n<j, n \neq i} (Ed)_{ni}\tilde{\psi}_{nj} - \sum_{n>j} (Ed)_{ni}\tilde{\psi}_{jn}^* \exp(2i\omega_0 t) \right).\end{aligned}\tag{3.2.9}$$

Dies wird auch für die Besetzungen f_i durchgeführt:

$$\frac{d}{dt}f_i = \frac{2}{\hbar} \left(\sum_{n<i} \text{Im} \left[(Ed)_{ni}\tilde{\psi}_{ni} \exp(-i\omega_0 t) \right] - \sum_{n>i} \text{Im} \left[(Ed)_{in}\tilde{\psi}_{in} \exp(-i\omega_0 t) \right] \right)\tag{3.2.10}$$

²Dies erfolgt analog zu [14], wo die Transformation für ein Zwei-Niveau-System durchgeführt wurde.

Da das elektrische Feld E ebenfalls einen rotierenden Teil enthält, sollte dieser hier bereits eingesetzt werden. Der Ansatz für das elektrische Feld lautet:

$$\begin{aligned} E(t) &= E_0(t) \cos(\omega_p t) \\ &= \frac{1}{2} E_0(t) (\exp(i\omega_p t) + \exp(-i\omega_p t)) \end{aligned} \quad (3.2.11)$$

Die Einhüllende $E_0(t)$ ist ein nicht rotierender Term und wird im späteren Verlauf dieser Arbeit als Gauß-Kurve gewählt.

Einsetzen von $E(t)$ in (3.2.9) liefert:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \tilde{\psi}_{ij} &= \frac{i}{2\hbar} \left(2(\varepsilon_i - \varepsilon_j + \hbar\omega_0) \tilde{\psi}_{ij} \right. \\ &\quad + (E_0 d)_{ij} (f_i - f_j) (\exp(i(\omega_0 - \omega_p)t) + \exp(i(\omega_0 + \omega_p)t)) \\ &\quad + 2 \sum_{n>i, n \neq j} (E_0 d)_{jn} \tilde{\psi}_{in} \cos(\omega_p t) \\ &\quad + \sum_{n<i} (E_0 d)_{jn} \tilde{\psi}_{ni}^* (\exp(i(2\omega_0 - \omega_p)t) + \exp(i(2\omega_0 + \omega_p)t)) \\ &\quad - 2 \sum_{n<j, n \neq i} (E_0 d)_{ni} \tilde{\psi}_{nj} \cos(\omega_p t) \\ &\quad \left. - \sum_{n>j} (E_0 d)_{ni} \tilde{\psi}_{jn}^* (\exp(i(2\omega_0 - \omega_p)t) + \exp(i(2\omega_0 + \omega_p)t)) \right) \end{aligned} \quad (3.2.12)$$

und in (3.2.10):

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} f_i &= \frac{1}{\hbar} \left(\sum_{n<i} \text{Im} \left[(E d)_{ni} \tilde{\psi}_{ni} \exp(-i(\omega_0 - \omega_p)t) \right] \right. \\ &\quad + \sum_{n<i} \text{Im} \left[(E d)_{ni} \tilde{\psi}_{ni} \exp(-i(\omega_0 + \omega_p)t) \right] \\ &\quad - \sum_{n>i} \text{Im} \left[(E_0 d)_{in} \tilde{\psi}_{in} \exp(-i(\omega_0 - \omega_p)t) \right] \\ &\quad \left. - \sum_{n>i} \text{Im} \left[(E_0 d)_{in} \tilde{\psi}_{in} \exp(-i(\omega_0 + \omega_p)t) \right] \right). \end{aligned}$$

3.2.3. Anwendung der Rotation-Wave-Approximation und Vernachlässigung von Intrabandübergängen

Die Systeme welche in dieser Arbeit betrachtet werden enthalten alle jeweils eine große Energielücke. Diese wird für Systeme mit Bändern als Bandlücke bezeichnet, hier jedoch auch aufgrund der Analogie für Systeme bestehend aus diskreten Energieniveaus verwendet. In diesem Abschnitt soll diskutiert werden, dass Terme mit Rotationen in der Größenordnung der Bandlücke oder größer vernachlässigt werden können.

Da ω_0 und ω_p in der Nähe der Bandlücke des Systems gewählt werden, gilt $\omega_p \sim \omega_0$. Jegliche Terme in (3.2.12), die mit $(\omega_0 + \omega_p)$ oder $(2\omega_0 + \omega_p)$ rotieren, besitzen eine

3.2. Beschreibung des Vier-Niveau-Systems

wesentlich schnellere Zeitentwicklung als die $\tilde{\psi}_{ij}$, oder f_i und mitteln sich in der zeitlichen Entwicklung daher schnell heraus. Die Rotating-Wave-Approximation besteht darin, diese schnell rotierenden Terme zu vernachlässigen [14].

Die Terme in (3.2.12), welche mit einfacher Bandenergie rotieren ((ω_p) und $(2\omega_0 - \omega_p)$) enthalten mikroskopische Polarisierungen oder Dipolmatrixelemente zu Intrabandübergängen. Wie in Kapitel 3.2.2 bereits erwähnt, werden diese Übergänge hier nicht betrachtet.

Übrig bleiben lediglich Terme, die mit einer langsamen Frequenz rotieren:

$$\frac{d}{dt}\tilde{\psi}_{ij} = \frac{i}{\hbar} \left((\varepsilon_i - \varepsilon_j + \hbar\omega_0)\tilde{\psi}_{ij} + \frac{1}{2}(E_0d)_{ij}(f_i - f_j) \exp(i(\omega_0 - \omega_p)t) \right) \quad (3.2.13)$$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}f_i = \frac{1}{\hbar} & \left(\sum_{n<i} \text{Im} \left[(E_0d)_{ni}\tilde{\psi}_{ni} \exp(-i(\omega_0 - \omega_p)t) \right] \right. \\ & \left. - \sum_{n>i} \text{Im} \left[(E_0d)_{in}\tilde{\psi}_{in} \exp(-i(\omega_0 - \omega_p)t) \right] \right). \end{aligned} \quad (3.2.14)$$

Im Folgenden werden die $\tilde{\psi}_{ij}$ wieder mit ψ_{ij} bezeichnet, gemeint sind aber stets die transformierten Größen.

3.2.4. Phänomenologische Dephasierung

Die in Abschnitt 3.2.3 hergeleiteten Gleichungen, würden nach einmaliger und kurzzeitiger Anregung ewig anhaltende Rotationen in ψ_{ij} aufweisen. In einem Absorptionsspektrum würde sich ein solcher Effekt in einer verschwindenden Linienbreite widerspiegeln. Aus physikalischer Sicht tritt jedoch eine Dämpfung der Polarisationsamplituden ψ_{ij} ausgelöst durch Elektron-Elektron- bzw. Elektron-Phonon-Wechselwirkung auf, welche für eine endliche Linienbreite sorgt. Auf eine genaue Betrachtung der Dephasierungseffekte wird an dieser Stelle verzichtet, da es über den Rahmen dieser Arbeit hinausgehen würde. Um diesem Prozess Rechnung zu tragen, wird in Gleichung (3.2.13) ein phänomenologischer Term $-\frac{\gamma_{ij}}{\hbar}\psi_{ij}$ hinzugefügt, der ein exponentielles Abklingen bewirkt [14].

Die um den Dephasierungsterm erweiterte Gleichung (3.2.13) lautet:

$$\frac{d}{dt}\psi_{ij} = \frac{i}{\hbar} \left((\varepsilon_i - \varepsilon_j + \hbar\omega_0)\psi_{ij} + \frac{1}{2}(E_0d)_{ij}(f_i - f_j) \exp(i(\omega_0 - \omega_p)t) \right) - \frac{\gamma_{ij}}{\hbar}\psi_{ij}. \quad (3.2.15)$$

γ_{ij} bewirkt hierbei eine Dämpfung, die sich im Absorptionsspektrum direkt als Linienbreite widerspiegelt.

Angemerkt sei noch, dass sich diese Dephasierung ausschließlich auf die mikroskopischen Polarisierungen ψ_{ij} auswirkt und nicht auf die Besetzungen. Nachdem das äußere

elektrische Feld abgeklungen ist, bleiben alle Besetzungen konstant. Relaxationsprozesse, die Teilchen von energetisch höheren Niveaus zu niedrigeren streuen, werden im Rahmen dieser Arbeit nicht betrachtet.

3.2.5. Formalismus für vier Niveaus

Die Gleichungen (3.2.15) und (3.2.14) müssen nun für den Spezialfall des Vier-Niveau-Systems ausgewertet werden. Die Indizes und Summen laufen hierfür von 1 bis 4. Zur direkten Vereinfachung der Gleichungen lassen sich noch die physikalischen Gegebenheiten, wie sie in Abbildung 3.1 dargestellt sind, verwenden. Die Übergänge zwischen $|1\rangle$ und $|2\rangle$ sowie zwischen $|3\rangle$ und $|4\rangle$ sind nicht strahlend und daher für das Absorptionsspektrum irrelevant. Entsprechend wird $(E_0d)_{12} = 0$ und $(E_0d)_{34} = 0$ gewählt. Für ψ_{12} und ψ_{34} folgt daher aus (3.2.15):

$$\frac{d}{dt}\psi_{12} = \frac{i}{\hbar}(\varepsilon_1 - \varepsilon_2 + \hbar\omega_0)\psi_{12} - \frac{\gamma_{12}}{\hbar}\psi_{12}$$

$$\frac{d}{dt}\psi_{34} = \frac{i}{\hbar}(\varepsilon_3 - \varepsilon_4 + \hbar\omega_0)\psi_{34} - \frac{\gamma_{34}}{\hbar}\psi_{34}.$$

Da zum Zeitpunkt $t = 0$ für alle $\psi_{ij} = 0$ gewählt wird und $\frac{d}{dt}\psi_{12} \propto \psi_{12}$ sowie $\frac{d}{dt}\psi_{34} \propto \psi_{34}$ gilt, bleiben ψ_{12} und ψ_{34} für alle Zeiten 0. Diese Größen müssen also im Folgenden nicht weiter betrachtet werden.

Die restlichen ψ_{ij} folgen aus (3.2.15):

$$\frac{d}{dt}\psi_{13} = \frac{i}{\hbar} \left((\varepsilon_1 - \varepsilon_3 + \hbar\omega_0)\psi_{13} + \frac{1}{2}(E_0d)_{13}(f_1 - f_3) \exp(i(\omega_0 - \omega_p)t) \right) - \frac{\gamma_{13}}{\hbar}\psi_{13} \quad (3.2.16)$$

$$\frac{d}{dt}\psi_{14} = \frac{i}{\hbar} \left((\varepsilon_1 - \varepsilon_4 + \hbar\omega_0)\psi_{14} + \frac{1}{2}(E_0d)_{14}(f_1 - f_4) \exp(i(\omega_0 - \omega_p)t) \right) - \frac{\gamma_{14}}{\hbar}\psi_{14} \quad (3.2.17)$$

$$\frac{d}{dt}\psi_{23} = \frac{i}{\hbar} \left((\varepsilon_2 - \varepsilon_3 + \hbar\omega_0)\psi_{23} + \frac{1}{2}(E_0d)_{23}(f_2 - f_3) \exp(i(\omega_0 - \omega_p)t) \right) - \frac{\gamma_{23}}{\hbar}\psi_{23} \quad (3.2.18)$$

$$\frac{d}{dt}\psi_{24} = \frac{i}{\hbar} \left((\varepsilon_2 - \varepsilon_4 + \hbar\omega_0)\psi_{24} + \frac{1}{2}(E_0d)_{24}(f_2 - f_4) \exp(i(\omega_0 - \omega_p)t) \right) - \frac{\gamma_{24}}{\hbar}\psi_{24}. \quad (3.2.19)$$

3.2. Beschreibung des Vier-Niveau-Systems

Für f_i folgt aus (3.2.14):

$$\frac{d}{dt}f_1 = -\frac{1}{\hbar} \left(\operatorname{Im} [(E_0 d)_{31} \psi_{13} \exp(-i(\omega_0 - \omega_p)t)] \right. \\ \left. + \operatorname{Im} [(E_0 d)_{41} \psi_{14} \exp(-i(\omega_0 - \omega_p)t)] \right)$$

$$\frac{d}{dt}f_2 = -\frac{1}{\hbar} \left(\operatorname{Im} [(E_0 d)_{32} \psi_{23} \exp(-i(\omega_0 - \omega_p)t)] \right. \\ \left. + \operatorname{Im} [(E_0 d)_{42} \psi_{24} \exp(-i(\omega_0 - \omega_p)t)] \right)$$

$$\frac{d}{dt}f_3 = \frac{1}{\hbar} \left(\operatorname{Im} [(E_0 d)_{31} \psi_{13} \exp(-i(\omega_0 - \omega_p)t)] \right. \\ \left. + \operatorname{Im} [(E_0 d)_{32} \psi_{23} \exp(-i(\omega_0 - \omega_p)t)] \right)$$

$$\frac{d}{dt}f_4 = \frac{1}{\hbar} \left(\operatorname{Im} [(E_0 d)_{41} \psi_{14} \exp(-i(\omega_0 - \omega_p)t)] \right. \\ \left. + \operatorname{Im} [(E_0 d)_{42} \psi_{24} \exp(-i(\omega_0 - \omega_p)t)] \right).$$

Die Einhüllende des Pulses $E(t)$ wird als Gauß-Kurve gewählt, deren Maximum bei $t = 0$ liegt:

$$E_0(t) = E_{\text{start}} \exp\left(-\frac{t^2}{\tau^2}\right) \quad (3.2.20)$$

wobei E_{start} die Amplitude des elektrischen Feldes beschreibt und τ die Breite der Gauß-Kurve.

3.3. Modell des Quantenpunkt-Wetting-Layer-Systems

Das System, das in dieser Arbeit primär behandelt werden soll, besteht nicht nur aus diskreten Niveaus, sondern auch aus kontinuierlichen Bändern. Schematisch ist das zu untersuchende System in Abbildung 3.2 gezeigt. Das untere, mit $|1, k\rangle$ bezeichnete Band spiegelt das Valenzband des Halbleiters wieder, das obere mit $|4, k\rangle$ bezeichnete Band das Leitungsband. Die Energieniveaus der Bänder kommen durch den Wetting-Layer zustande, während die diskreten Energieniveaus durch die Quantenpunkte gebildet werden.

In dieser Betrachtung sind einige Vereinfachungen enthalten. Zum einen wird ein parabelförmiger Verlauf der Bänder dargestellt, welcher jedoch nur am Γ -Punkt ($\mathbf{k} = 0$) der ersten Brillouin-Zone vorliegt. Für GaAs befindet sich am Γ -Punkt ein direkter Übergang, an dem viele optische Effekte stattfinden. Ein parabelförmiger Verlauf wird von der Dispersion freier Teilchen beschrieben. Die hier betrachteten Ladungsträger sind also mit einer effektiven Masse quasifrei im Halbleiter. Diese Betrachtung ist allerdings aus zwei Gründen gerechtfertigt. Zum einen werden die \mathbf{k} Werte für optische Untersuchungen betragsmäßig nicht groß und verbleiben daher stets im parabelförmigen Bereich [6], andererseits ist der Bereich zwischen dem Quantenpunkt-Quantenpunkt-Absorptionspeak und dem Wetting-Layer-Wetting-Layer-Absorptionsband in dieser Arbeit von besonderem Interesse, da hier die nicht-diagonalen Übergänge ihre größten Absorptionsanteile liefern. Des Weiteren wurde angenommen, dass pro Band nur ein Quantenpunktniveau existiert, es gibt allerdings auch Quantenpunkte mit mehreren Energieniveaus [7].

Die bereits im Abschnitt Vier-Niveau-System beschriebenen diagonalen und nicht-diagonalen Übergänge werden in diesem Bild verständlicher. Diagonale Übergänge sind die, welche zwischen zwei Bändern oder zwischen zwei Quantenpunktniveaus stattfinden, während nicht-diagonale Übergänge zwischen Band und Quantenpunktniveau passieren. Die diagonalen Übergänge werden häufig in Arbeiten untersucht, die nicht-diagonalen Übergänge hingegen werden oft vernachlässigt. Aus diesem Grund wird im folgenden primär das Absorptionsverhalten der nicht-diagonalen Übergänge betrachtet.

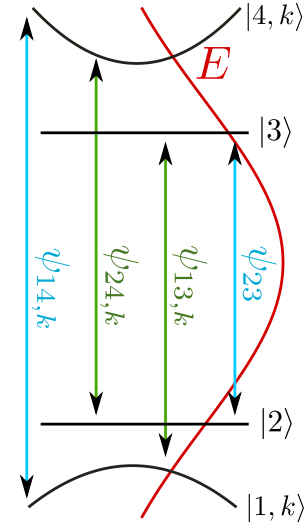


Abbildung 3.2.: Dargestellt ist ein Schema eines Quantenpunkt-Wetting-Layer-Systems analog zur Abbildung 3.1. Die Niveaus $|1, k\rangle$ und $|4, k\rangle$ bilden hierbei kontinuierliche Bänder und sind dem Wetting-Layer zuzuordnen. Die blauen Übergänge befinden sich zwischen Wetting-Layer-Niveaus ($\psi_{14,k}$) bzw. zwischen Quantenpunkt-Niveaus (ψ_{23}) und werden diagonale Übergänge bezeichnet. Die grünen Übergänge finden zwischen Wetting-Layer- und Quantenpunkt-Niveaus statt und werden nicht-diagonale Übergänge genannt.

3.3.1. Envelope-Näherung

Zur korrekten Beschreibung eines quantenmechanischen Vielteilchensystems müsste die Einteilchen-Schrödingergleichung mit einem Potential, welches alle wechselwirkenden Teilchen berücksichtigt, gelöst werden. Zu den wechselwirkenden Teilchen gehören unter anderem alle Atomkerne (bzw. sogar die sich dort aufhaltenden Protonen) sowie die in den Atomorbitalen befindlichen Elektronen. Die Lösung eines solchen Problems mit einer großen Anzahl an Teilchen ist im Allgemeinen nicht analytisch möglich und auch numerisch mit einem enorm hohen Aufwand verbunden. Vereinfachen lässt sich ein solches System, wenn eine Symmetrie in dem Potential vorliegt. Ein Beispiel für eine solche Symmetrie wäre eine Translationssymmetrie, wie sie in kristallinen Festkörpern vorherrscht. Das in dieser Arbeit zu untersuchende Halbleitersystem ist ein solcher kristalliner Festkörper. Für Potentiale mit einer Translationssymmetrie $V(\mathbf{r}) = V(\mathbf{r} + \mathbf{R})$ (im kristallinen Festkörper entspricht das \mathbf{R} einer Einheitszelle) kann das Bloch-Theorem angewendet werden. Dieses sagt aus, dass die Lösung ϕ einer Schrödingergleichung mit translationssymmetrischem Potential als Produkt einer ebenen Welle und einer gitterperiodischen Funktion $u(\mathbf{r}) = u(\mathbf{r} + \mathbf{R})$ angesetzt werden kann:

$$\phi(\mathbf{r}) = \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})u(\mathbf{r}). \quad (3.3.1)$$

Die Wellenvektoren \mathbf{k} sind klein gegenüber den reziproken Gitterkonstanten, weshalb sich die ebene Welle in (3.3.1) nur langsam über einer Gitterzelle ändert, während die gitterperiodische Funktion $u(\mathbf{r})$ einen sich schnell veränderlichen Anteil liefert. Der sich schnell verändernde Anteil wird von der ebene Welle eingehüllt und wird daher als Einhüllende (englisch *envelope*) bezeichnet.

Durch das Einfügen von Quantenpunkten in das System wird die Translationssymmetrie gebrochen und das Bloch-Theorem kann nicht mehr angewendet werden. In der Envelope-Näherung wird davon ausgegangen, dass sich die Lösung der Schrödingergleichung dennoch in einen langsam veränderlichen Anteil $\psi(\mathbf{r})$ und den Bloch-Funktionen $u(\mathbf{r})$ aus dem Bloch-Theorem in einem Produktansatz aufteilen lässt:

$$\phi(\mathbf{r}) = \psi(\mathbf{r})u(\mathbf{r}).$$

Die Einhüllende $\psi(\mathbf{r})$ genügt in dieser Betrachtung einer Einteilchen-Schrödingergleichung mit einer effektiven Masse und einem effektiven und sich nur langsam ändernden Potential $U(\mathbf{r})$. [1]

3.4. Berechnung der optischen Absorption

Um die Absorption des anliegenden elektrischen Feldes zu berechnen, wird die dielektrische Suszeptibilität $\chi(\omega)$ benötigt. Die dielektrische Suszeptibilität lässt sich berechnen aus dem Quotienten von Polarisierung $P(\omega)$ und dem anliegenden elektrischen Feld $E(\omega)$ [4]:

$$\chi(\omega) = \frac{P(\omega)}{E(\omega)}.$$

Die von der Frequenz abhängigen Größen folgen aus der Fourier-Transformation der Größen $E(t)$ und $P(t)$ nach der Zeit³:

$$E(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} E(t) \exp(i\omega t) dt$$
$$P(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} P(t) \exp(i\omega t) dt.$$

Das elektrische Feld in Zeitabhängigkeit ist in (3.2.11) und in (3.2.20) angegeben. Die Berechnung der Polarisierung erfolgt nach

$$P(t) = \sum_{\nu} d_{\nu}^* \psi_{\nu}(t), \quad (3.4.1)$$

wobei ν über alle Übergänge des betrachteten Systems läuft. d^* bezeichnet hierbei das komplex Konjugierte des Dipolmatrixelements des Übergangs ν und ψ_{ν} die mikroskopische Polarisierung des Übergangs⁴. Die optische Absorption lässt sich aus dem Imaginäranteil der dielektrischen Suszeptibilität bestimmen⁵. Für den Absorptionskoeffizienten gilt:

$$\alpha(\omega) = \frac{\omega}{n(\omega)c} \text{Im}[\chi(\omega)],$$

wobei $n(\omega)$ den Brechungsindex und c die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum bezeichnet. Unter der Annahme, dass der Brechungsindex für den betrachteten Bereich nahezu konstant ist (also von ω unabhängig), ist die Absorption näherungsweise proportional zum Imaginäranteil der dielektrischen Suszeptibilität

$$\text{Absorption} \propto \text{Im}[\chi(\omega)].$$

³Die Wahl des Vorfaktors der Fourier-Transformation ist hierbei unwichtig, da er sich zur Berechnung der Absorption stets kürzt.

⁴Details zur Berechnung der Gesamtpolarisation sind in Abschnitt A.2.2 beschrieben.

⁵Dies folgt aus [4], dort wird die Absorption als proportional zum Imaginärteil der Permittivität angegeben, wobei die Permittivität (in SI Einheiten) $\varepsilon(\omega) = 1 + \chi(\omega)$ ist.

4. Ergebnisse

4.1. Absorptionsspektren des Vier-Niveau-Systems

Um die grundlegenden Eigenschaften von Absorptionsspektren zu verstehen, werden zunächst Absorptionsspektren von einem System bestehend aus vier diskreten Energieniveaus untersucht. Dieses System wird im nächsten Abschnitt erweitert, indem zwei der diskreten Energieniveaus durch kontinuierliche Bänder des Wetting-Layers ersetzt werden, während die verbleibenden zwei Energieniveaus die Quantenpunktniveaus bilden.

In Hinblick auf Abschnitt 4.2, in welchem Absorptionsspektren von Quantenpunkt-Wetting-Layer-Systemen am Beispiel von GaAs untersucht werden, werden bereits an dieser Stelle Parameter gewählt, die an die von GaAs angelehnt sind. Für die Energien der vier Niveaus wurden folgende Werte gewählt:

$$\begin{aligned}\varepsilon_1 &= 0 \text{ meV} \\ \varepsilon_2 &= 20 \text{ meV} \\ \varepsilon_3 &= 1400 \text{ meV} \\ \varepsilon_4 &= 1450 \text{ meV}.\end{aligned}$$

Da d_{12} und d_{34} verschwinden, lassen sich hiermit als kleinste Energie für einen Absorptionspeak $(\varepsilon_3 - \varepsilon_2) = 1380 \text{ meV}$ und als größte Energie $(\varepsilon_4 - \varepsilon_1) = 1450 \text{ meV}$ erwarten. Da die Peaks eine gewisse Breite besitzen, wurde als Intervall, in welchem die Absorption betrachtet wird, eines von 1360 meV bis 1480 meV gewählt. Um eine gute Auflösung der Peakspitzen zu erhalten, wurde eine Abrasterung der Energien mit $0,25 \text{ meV}$ gewählt.

Um die größten vorkommenden Rotationsfrequenzen in dem Differentialgleichungssystem möglichst klein zu halten, wird die Transformationsfrequenz als Mittelwert der größten bzw. kleinsten vorkommenden Peakenergie in Frequenz umgerechnet gewählt. Diese beträgt in diesem Fall $\omega_0 = 1415 \text{ meV}/\hbar$. Die verbliebenen größten Rotationen betragen $35 \text{ meV}/\hbar$ und müssen zeitlich gut aufgelöst werden, damit auch die berechnete Fourier-Transformation eine hohe Genauigkeit besitzt. Hier wird die Auflösung so gewählt, dass auf einer vollen Periode ungefähr 100 Zeitschritte liegen. Dies ergibt eine Schrittweite von $0,001 \text{ ps} = 1 \text{ fs}$.

Für das anregende elektrische Feld wurde nach (3.2.20) eine Amplitude von $E_{\text{start}} =$

4.1. Absorptionsspektren des Vier-Niveau-Systems

$1 \cdot 10^{-12} \text{ meV/nmC}^1$, eine Dauer von $\tau = 0,03 \text{ ps}$ und eine Anregungsfrequenz nach (3.2.11) zu $\omega_p = 1415 \text{ meV}/\hbar$ gewählt.

Da bei Festkörpern das chemische Potential in etwa in der Mitte der Bandlücke liegt, ist es in dem betrachteten Fall bei $\mu = 725 \text{ meV}$ zu erwarten. Die Besetzung der Zustände ergibt sich aus der Fermi-Verteilung:

$$f = \frac{1}{\exp\left(\frac{\varepsilon - \mu}{k_B T}\right) + 1}.$$

Bei Raumtemperatur ($T = 300 \text{ K}$) folgen hiernach für die Besetzungen der oberen beiden Niveaus Werte in der Größenordnung von 10^{-12} und kleiner und für die Besetzungen der unteren beiden Niveaus Werte, die in selbiger Größenordnung von 1 abweichen. Da diese Abweichungen von 0 bzw. 1 vernachlässigbar klein sind, werden die Startbesetzungen

$$\begin{aligned} f_1 &= 1 \\ f_2 &= 1 \\ f_3 &= 0 \\ f_4 &= 0 \end{aligned}$$

gewählt. Die mikroskopischen Polarisationen werden zu Beginn alle $\psi_{ij} = 0$ gewählt.

Die restlichen Parameter d_{ij} und γ_{ij} werden im Folgenden variiert, um deren Auswirkung auf das Absorptionsspektrum zu studieren.

4.1.1. Abhängigkeit zwischen Amplitudenverhältnissen und Dipolmatrixelement

Für alle Übergänge gleicher und konstant gehaltener Dephasierung $\gamma_{ij} = \text{const.}$ werden die Dipolmatrixelemente d_{ij} variiert. Beispielhaft ist eine solche Untersuchung in Abbildung 4.1 zu sehen. Untersucht werden insbesondere die Verhältnisse der Peakhöhen zueinander unter Variation ihrer Dipolmatrixelemente. Wie auch in der Abbildung zu sehen, zeigt sich, dass ein Dipolmatrixelement, welches doppelt so hoch ist wie ein anderes, einen vierfach so hohen Absorptionspeak zur Folge hat. Dieses Verhalten lässt sich direkt anhand der Gleichungen, die das System beschreiben, erkennen. Das Dipolmatrixelement d_{ij} geht in die mikroskopische Polarisation ψ_{ij} (3.2.16) bis (3.2.19) sowie ein weiteres Mal in die Gesamtpolarisation (3.4.1) jeweils linear ein. Im Produkt zur Berechnung der Gesamtpolarisation folgt dementsprechend ein quadratischer Zusammenhang der Peakhöhe zum Dipolmatrixelement.

¹Die Feldamplitude wurde so klein gewählt, dass auch für größere Dipolmatrixelemente, wie sie in folgenden Abschnitten vorkommen, die Näherung des linearen Response [4] stets gut erfüllt ist.

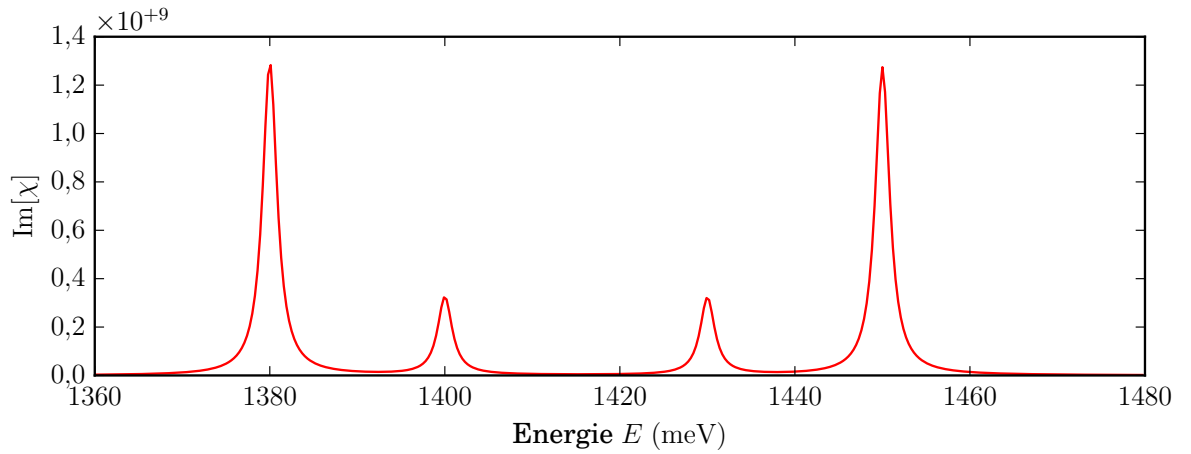


Abbildung 4.1.: Dargestellt ist ein Absorptionsspektrum, bei welchem die Dipolmatrixelemente nach $d_{14} = d_{23} = 2d_{13} = 2d_{24}$ gewählt wurden. Die Höhen der Absorptionspeaks, die zu den Dipolmatrixelementen d_{14} bzw. d_{23} gehören, sind vierfach so groß wie jene Höhen der Absorptionspeaks zu d_{13} bzw. d_{24} . Allgemein hängt die Peakhöhe quadratisch mit dem zugehörigen Dipolmatrixelement zusammen.

4.1.2. Auswirkung der Dephasierung auf die Absorptionspeaks

Für feste Verhältnisse der Dipolmatrixelemente $d_{14} = d_{23} = 2d_{13} = 2d_{24}$ wird die Dephasierung variiert. Als Ausgangssystem wird das in Abbildung 4.1 verwendet. Unter Verdopplung der Dephasierungsgrößen γ_{ij} für alle Peaks ergibt sich das in Abbildung 4.2 dargestellte Verhalten. Eine Verdopplung der Dephasierung hat eine Halbierung der Peakhöhe zur Folge, erhöht jedoch die Peakbreite.

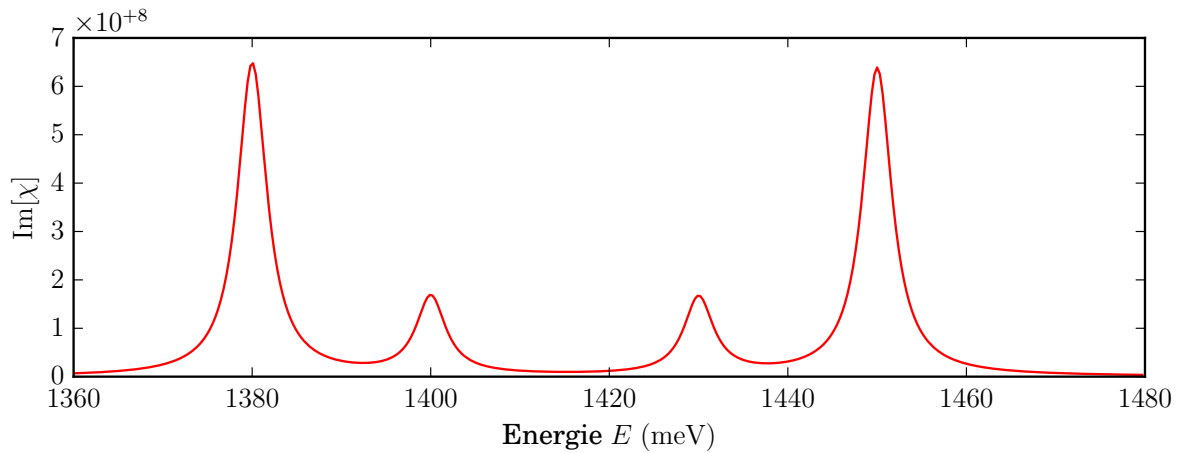


Abbildung 4.2.: Dargestellt ist ein Absorptionsspektrum eines Vier-Niveau-Systems mit denselben Dipolmatrixelementen wie in Abbildung 4.1 und verdoppelten Dephasierungsgrößen. Die Höhe der Peaks nimmt ab, ihre Breite jedoch zu.

4.2. Absorptionsspektren des Quantenpunkt-Wetting-Layer-Systems für konstante Dipolmatrixelemente

In diesem Kapitel wird ein System untersucht, welches neben den diskreten Quantenpunktniveaus auch kontinuierliche Bänder des Wetting-Layers besitzt. Die Dipolmatrixelemente für die Übergänge wurden hier noch konstant gesetzt. Die Betrachtung dieses Systems dient daher als vorbereitender Schritt für die Betrachtung realistischer Wellenfunktionen und Dipolmatrixelemente.

Die Parameter wurden, bis auf wenige Modifikationen, wie in Abschnitt 4.1 gewählt. Um die kontinuierlichen Bänder zu beschreiben, werden die effektiven Massen für Valenz- und Leitungsband benötigt. Diese wurden zu $m_{\text{VB}} = -0,15m_e$ bzw. $m_{\text{LB}} = 0,067m_e$ verwendet, wobei m_e die Ruhemasse von Elektronen ist. Die Wellenzahlen k wurden von 0 nm^{-1} bis $1,5 \text{ nm}^{-1}$ berücksichtigt. Diese Werte liegen für GaAs noch in dem Bereich parabolischer Bänder. Die Energien von Valenz- und Leitungsband wurden damit kontinuierlich und nach $\varepsilon_{1,k} = \varepsilon_1 + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_{\text{VB}}}$ für das Valenzband bzw.

$\varepsilon_{4,k} = \varepsilon_4 + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_{\text{LB}}}$ für Leitungsband ermittelt. Die Differenz zwischen niedrigstem und höchstem Energieniveau wird damit in etwa doppelt so groß, weshalb die Zeitauflösung im Vergleich zum System bestehend aus vier Niveaus auf $0,0004 \text{ ps}$ erhöht wurde. Die Transformationsfrequenz von $\omega_0 = 1415 \text{ meV}/\hbar$ bleibt gleich, da der Bereich um diese Frequenz herum von besonderen Interesse ist. Die Besetzung der diskreten Niveaus ändert sich insofern, dass das gesamte Valenzband gefüllt ist und das gesamte Leitungsband leer bleibt. Alle anderen Parameter bleiben im Vergleich zum Vier-Niveau-System gleich.

Die Dipolmatrixelemente der diagonalen Übergänge werden konstant und gleich gehalten sowie ähnlich den im nächsten Abschnitt vorkommenden gewählt. Die Dipolmatrixelemente der nicht-diagonalen Übergänge werden für $d_{13,k}$ bzw. $d_{24,k}$ für alle k gleich gewählt, jedoch variiert, um das Verhalten des Systems studieren zu können. Die Werte werden hierbei in Größenordnungen gewählt, wie sie ebenfalls im nächsten Abschnitt vorkommen. Die Dephasierungsgrößen werden alle k -unabhängig und gleich gewählt.

Ein Resultat eines solchen Systems ist in Abbildung 4.3 zu sehen. Wie bereits vorher erläutert, erzeugt ein Übergang zwischen zwei diskreten Niveaus einen scharfen Absorptionspeak. Beginnend bei 1450 meV bildet sich eine Absorptionsbande der Wetting-Layer-Bänder, wobei diese Energiedifferenz gerade der Bandlücke von dem GaAs System entspricht. Von besonderem Interesse sind die kleineren Absorptionsbänder zwischen den beiden vorher erwähnten Absorptionsstrukturen sowie die zusätzlichen Absorptionsbanden, die sich durch die in dieser Arbeit betrachteten Quantenpunkt-Wetting-Layer Absorption ergeben. Ab 1400 meV beginnt das Absorptionsband, verursacht durch den Übergang zwischen Valenzband und Quantenpunktniveau. Ab 1430 meV addiert sich hierzu das Absorptionsband durch den Übergang zwischen Leitungsband

und Quantenpunktniveau.

Die Höhe dieser Absorptionsbanden ist verhältnismäßig klein und bleibt auf einer konstanten Höhe (dies ist in der hier dargestellten Abbildung für das Absorptionsband beginnend bei 1430 meV nicht zu erkennen, stellte sich bei näheren Untersuchungen raus). Die Form der Absorption durch die nicht-diagonalen Übergänge folgt hier also der Form der Dipolmatrixelemente, welche gerade konstant gehalten wurden. Abgesehen von der Höhe unterscheiden sich hier Absorptionsbänder entstanden durch den Übergang zweier Bänder nicht von denen entstanden durch den Übergang von einem Quantenpunktniveau und einem Band.

Weitere hier nicht dargestellte Absorptionsspektren wurden untersucht, wobei sich herausstellte, dass auch hier ein quadratischer Zusammenhang zwischen Dipolmatrixelement und Absorption vorherrscht. Ebenso ist das Verhalten der Absorptionshöhe genau wie beim Vier-Niveau-System reziprok linear zur Dephasierung.

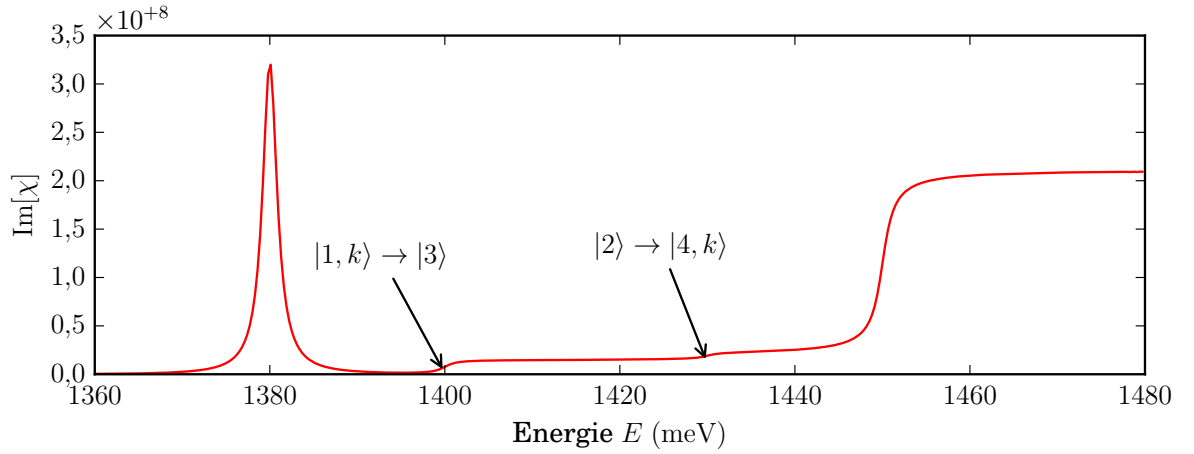


Abbildung 4.3.: Dargestellt ist ein Absorptionsspektrum für jeweils gleiche Dipolmatrixelemente zwischen den nicht-diagonalen Übergängen zwischen Quantenpunkten und Bändern. Bei 1380 meV ist der Peak, der durch den Quantenpunkt-Quantenpunkt-Übergang zustande kommt, ab etwa 1450 meV ist das Absorptionsband, welches durch den Übergang zwischen Valenz- und Leitungsband zustande kommt. Zwischen diesen beiden Absorptionen sind verhältnismäßig klein die Absorptionen verursacht durch nicht-diagonale Übergänge zu sehen. Diese beginnen bei 1400 meV und steigern sich ab 1430 meV.

4.3. Absorptionsspektren des Quantenpunkt-Wetting-Layer-Systems mit berechneten Dipolmatrixelementen

Um eine realistischere Beschreibung der Wechselwirkungen zu erhalten, werden harmonische Oszillator Wellenfunktionen für Quantenpunkte und dazu orthogonalisierte ebene Wellen für den Wetting-Layer verwendet (siehe Abschnitt A.1). Mit diesen Zuständen werden Dipolmatrixelemente explizit berechnet (siehe A.2), wodurch eine k -Abhängigkeit der Dipolmatrixelemente zustande gekommen ist. Als einzige wählbare Parameter für die Dipolmatrixelemente verbleiben mit β_{VB} und β_{LB} bezeichnete Größen, welche ein Maß für die Geometrie und Materialzusammensetzung der Quantenpunkte sind und als inverse Oszillatorlängen bezeichnet werden [1]. In das Absorptionsspektrum geht außerdem die Quantenpunktdichte n_{QP} ein (siehe A.2.2). Die Quantenpunktdichte wird auf $n_{QP} = 5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2} = 5 \cdot 10^{-4} \text{ nm}^{-2}$ gewählt, die inversen Oszillatorlängen werden im Folgenden variiert. Alle weiteren Parameter bleiben identisch zu denen aus dem vorigen Abschnitt.

4.3.1. Untersuchung der Absorptionsspektren für berechnete nicht-diagonale Dipolmatrixelemente

In diesem Abschnitt werden die Dipolmatrixelemente nicht wie vorher konstant gewählt, sondern mit modellierten Wellenfunktionen explizit berechnet. Es wird untersucht, wie sich die berechneten Dipolmatrixelemente auf die Absorptionsspektren auswirken. Hierzu wird an vielen Stellen der Verlauf der Dipolmatrixelemente gemeinsam mit den Absorptionsspektren dargestellt.

Für $\beta_{VB} = \beta_{LB}$ verschwinden die Dipolmatrixelemente der nicht-diagonalen Übergänge. Da aber gerade diese Übergänge in dieser Arbeit von besonderem Interesse sind, müssen die β_{VB} und β_{LB} verschieden gewählt werden. Als Ausgangswert wird zunächst $\beta_{VB} = 0,24 \text{ nm}^{-1}$ gewählt. Die grundlegende Form des Absorptionsspektrums ist in Abbildung 4.5 (oben) dargestellt.

Die Absorptionen der nicht-diagonalen Übergänge sind in Abbildung 4.4 (oben) im Vergleich zu den Absorptionen der diagonalen Übergänge sehr gering, werden aber größer, je verschiedener β_{VB} und β_{LB} sind, wie in Abbildung 4.5 (oben) zu sehen ist. Um die Form der Absorptionen der nicht-diagonalen Übergänge besser untersuchen zu können, werden die Absorptionen der diagonalen Übergänge im Folgenden unterdrückt, wie in den Abbildungen 4.5 (unten) und 4.4 (unten) dargestellt. Die diagonalen Absorptionsstrukturen sind von Form und Größenordnung weiterhin wie in Abbildung 4.3.

Ein Absorptionsspektrum mit unterdrückten diagonalen Übergängen ist in Abbildung 4.4 (unten) gezeigt. Die Absorption weist hierbei zwei Absorptionspeaks auf, welche

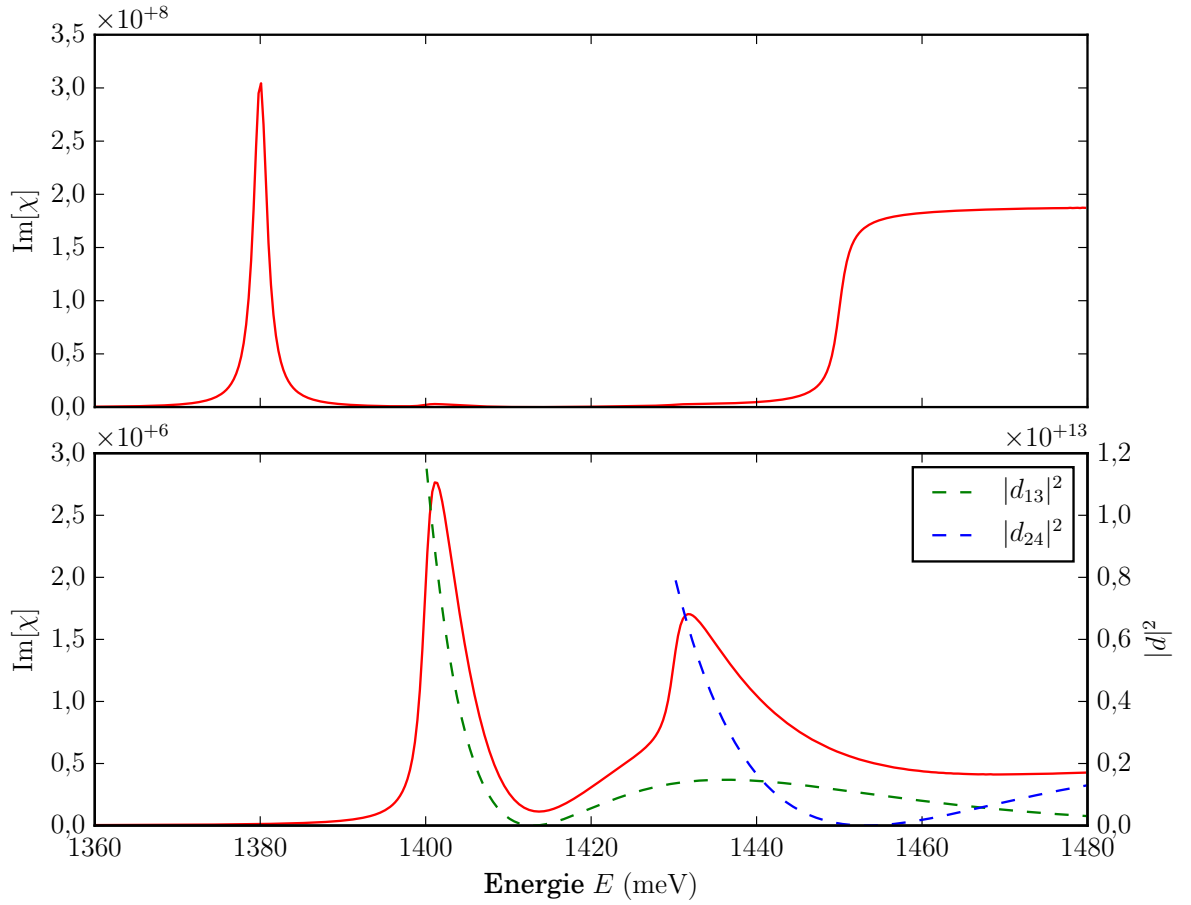


Abbildung 4.4.:

Oben: Dargestellt ist die Absorption für leicht verschiedene Quantenpunkt-Parameter $\beta_{LB} = 0,8\beta_{VB}$. Die Absorptionen durch die diagonalen Übergänge haben die selbe Form wie die in Abbildung 4.3 dargestellten. Die Beiträge zur Absorption durch die nicht-diagonalen Übergänge ist sehr gering.

Unten: Dargestellt ist dasselbe Absorptionsspektrum wie oben mit unterdrückten Absorptionen der diagonalen Übergänge sowie die Quadrate der Dipolmatrixelemente der nicht-diagonalen Übergänge. Die Form der Absorption folgt der Form der Quadrate der Dipolmatrixelemente. Die Quadrate der Dipolmatrixelemente beginnen mit ihrem größten Wert bei der kleinsten Absorptionsenergie und fallen dann schnell auf 0 ab. Nach diesem Abfall auf 0 steigen sie jedoch wieder und bilden ein breites aber kleineres Maximum, welches jedoch wieder auf 0 abfällt.

jeweils von einem kleineren Absorptionsbandes gefolgt werden. Die Peaks befinden sich bei den jeweils kleinsten Übergangsenergien 1400 meV und 1430 meV, jedoch leicht in Richtung größerer Energien verschoben. Nach dem Abfallen des ersten Peaks lässt sich bei etwa 1415 meV der Anfang eines Absorptionsband erkennen. Der Beginn des zweiten Absorptionsbandes lässt sich nicht genau ausmachen, da es einen fließenden Übergang mit dem zweiten Peak bildet. Es ist gut zu erkennen, dass die Form der Absorption der Summe über alle quadrierten Dipolmatrixelemente folgt. Hierbei handelt es sich bei dem Absorptionsspektrum um eine Gewichtung der Quadrate der Dipolmatrixelemente

4.3. Absorptionsspektren des Quantenpunkt-Wetting-Layer-Systems mit berechneten Dipolmatrixelementen

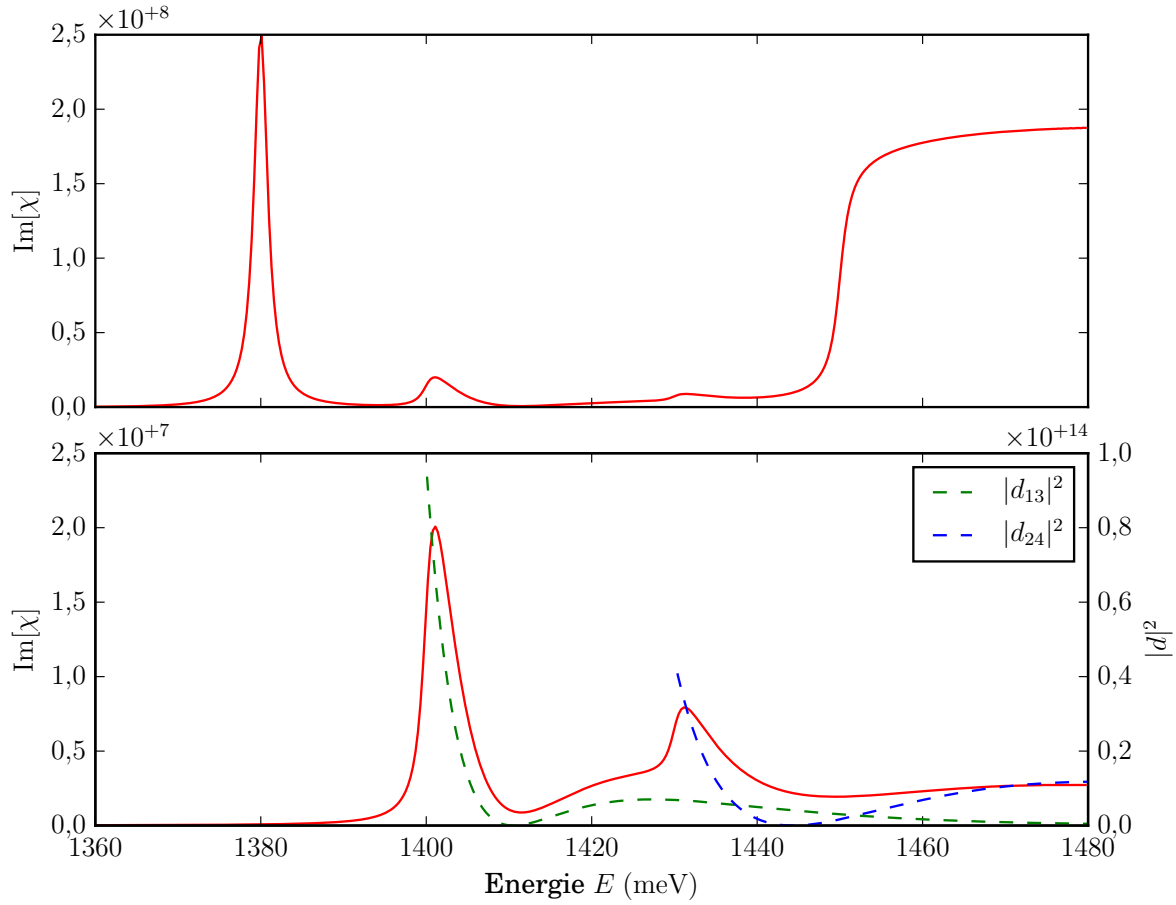


Abbildung 4.5.: Dargestellt ist die Absorption für $\beta_{\text{LB}} = 0,6\beta_{\text{VB}}$. Die nicht-diagonalen Übergänge bilden kleine, ein wenig breiter verschmierte Absorptionspeaks, wobei der höher energetische Übergang eine stärkere Verbreiterung aufweist. In der unteren Grafik sind die Absorptionen, die durch die diagonalen Übergänge entstehen, unterdrückt um die Form der Absorptionen der nicht-diagonalen Übergänge besser zu visualisieren.

mit Lorenz-Kurven, deren Höhe und Breite durch die Dephasierung bestimmt wird (siehe Abschnitt 4.1.2). Die Absorptionscharakteristiken sind also maßgeblich durch die Form der Wechselwirkungsmatrixelemente bestimmt.

Die Quadrate der Dipolmatrixelemente der beiden verschiedenen nicht-diagonalen Übergänge besitzen dieselbe Form, jedoch ist das Quadrat des Dipolmatrixelements $|d_{24}|^2$ im Vergleich zu $|d_{13}|^2$ gestreckt, skaliert und verschoben. Die Ursache für die Streckung und Skalierung der Form ist, dass das Valenzband eine weniger starke Krümmung aufweist als das Leitungsband. Für gleiche Differenzen in k sind die Differenzen in der Energie zwischen dem Niveau $|3\rangle$ und dem Band $|1, k\rangle$ kleiner als die Differenzen in der Energie zwischen dem Niveau $|2\rangle$ und dem Band $|4, k\rangle$. Die Verschiebung der Quadrate der Dipolmatrixelemente zueinander kommt durch die verschiedenen Energieabstände der Übergänge zwischen entsprechend beteiligtem Energieniveau und Band zustande.

Die oben beschriebene Form der Absorption lässt sich somit anhand der Quadrate der Dipolmatrixelemente erklären. Beide Quadrate der Dipolmatrixelemente beginnen bei

ihrem größten Wert gerade dort, wo die kleinste Übergangsenergie des jeweiligen Übergangs liegt. Von diesem Wert aus fallen sie bis auf 0 ab und steigen anschließend auf weniger hohe Werte, welche aber für einen vergleichsweise breiten Energiebereich von 0 abweichen. Der zunächst hohe Wert des Quadrats des Dipolmatrixelements resultiert in den Absorptionspeak, während die anschließende breite Struktur eine Absorptionsbande bildet.

Die Verläufe der Quadrate der Dipolmatrixelemente über den dargestellten Bereich hinaus sind von geringerer Bedeutung, da sie hier ohnehin hinter dem Wetting-Layer-Wetting-Layer Absorptionsband verschwinden (siehe Abbildung 4.5).

Betrachtung des hypothetischen Falls höherer Oszillatorlängen des Leitungsbandes als des Valenzbandes

Wird β_{LB} größer gewählt als β_{VB} , entsteht ein wie in Abbildung 4.6 dargestelltes Absorptionsspektrum. Die allgemeine Form des Absorptionsspektrums entspricht den bereits in den Abbildungen 4.4 und 4.5 beobachteten Formen. Aus dem Verhalten der Abbildungen im Vergleich lässt sich schließen, dass die Höhe der Absorptionspeaks zueinander von den Verhältnissen der $\beta_{VB/LB}$ abhängt. Die breite Verschmierung des Quadrats des Dipolmatrixelements $|d_{24}|^2$ jedoch unabhängig ist von diesen. Bei dem hierbei betrachteten Fall handelt es sich für das gewählte Materialsystem um einen hypothetischen Fall², da $\beta \propto \sqrt{|m|}$ [1] und $|m_{VB}| > |m_{LB}|$ gilt. Hieraus folgt $\beta_{VB} > \beta_{LB}$, was gerade im Widerspruch zu dem hier betrachteten Fall steht.

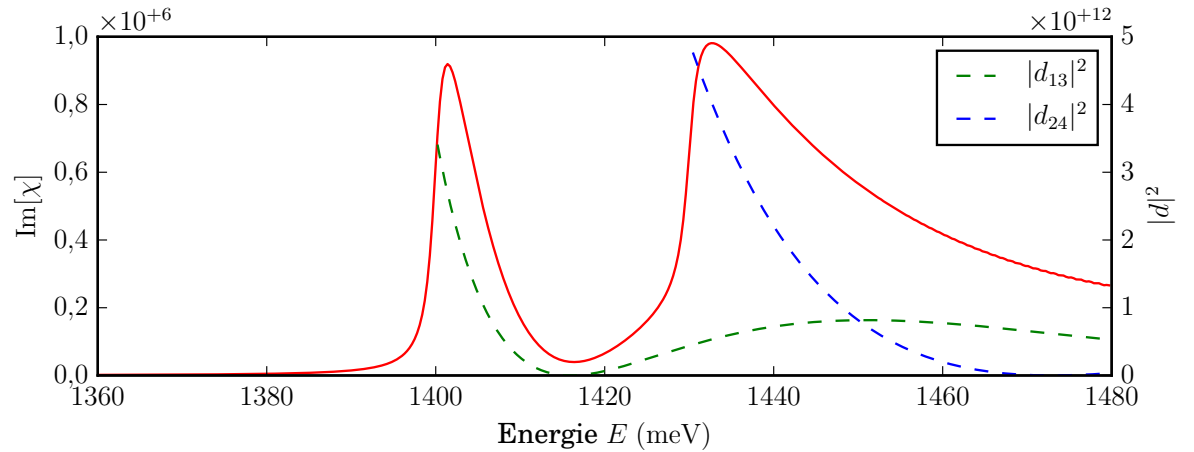


Abbildung 4.6.: Dargestellt ist ein Absorptionsspektrum für $\beta_{LB} = 1,2\beta_{VB}$ mit unterdrückten Absorptionen der diagonalen Übergänge sowie die Quadrate der Dipolmatrixelemente der nicht-diagonalen Übergänge. Im Gegensatz zu den bisherigen Abbildung hat der Fall $\beta_{LB} > \beta_{VB}$ zur Folge, dass das Quadrat des Dipolmatrixelements $|d_{24}|^2$ insgesamt größer wird als $|d_{13}|^2$ und ebenso die Absorption durch diese. Die breitere Form von $|d_{24}|^2$ gegenüber $|d_{13}|^2$ bleibt jedoch erhalten.

²Dies ist allgemein für typische III-IV oder II-VI Halbleiter der Fall.

4.3. Absorptionsspektren des Quantenpunkt-Wetting-Layer-Systems mit berechneten Dipolmatrixelementen

Betrachtung größerer Quantenpunkte

Für insgesamt kleinere inverse Oszillatorlängen³, speziell $\beta_{VB} = 0,20 \text{ nm}^{-1}$ und wie zuvor bereits in Abbildung 4.4 mit $\beta_{LB} = 0,8\beta_{VB}$ ist ein Absorptionsspektrum in Abbildung 4.7 dargestellt. Die Peaks stehen nicht im selben Verhältnis zueinander wie zuvor. Der Peak bei 1400 meV ist für $\beta_{VB} = 0,20 \text{ nm}^{-1}$ im Verhältnis zu dem Peak bei 1430 meV kleiner, als es bei $\beta_{VB} = 0,24 \text{ nm}^{-1}$ der Fall war. Außerdem sind die Absorptionen hier insgesamt höher. Wie bereits zuvor festgestellt, weisen die Quadrate der Dipolmatrixelemente ein ähnliches Verhalten auf wie die Absorptionsspektren. Auch hier sind die Verhältnisse zueinander verschieden und die Quadrate der Dipolmatrixelemente insgesamt größer. Eine Variation der Quantenpunktgröße hat also sowohl Einfluss auf die Stärke der Absorption insgesamt, als auch auf die Verhältnisse der Absorptionen der beiden nicht-diagonalen Übergänge zueinander.

Einfluss der phänomenologischen Dephasierung auf das Absorptionsspektrum

Ein Absorptionsspektrum für hohe Dephasierungen ist in Abbildung 4.8 gezeigt. Die Quadrate der Dipolmatrixelemente sind dieselben wie in Abbildung 4.4 und der Verlauf der Absorptionsspektren ist entsprechend ähnlich. Die nicht-diagonalen Übergänge bilden ein breites Absorptionsband, wodurch die Absorptionspeaks ineinander übergehen. Das Zustandekommen dieser Absorptionsspektren ist mit dem vorher erklärten Zusammenhang, dass die Absorption aus der Gewichtung der Quadrate der Dipolmatrixelemente mit Lorenz-Kurven folgt, erklärbar. Hohe Dephasierungen sorgen dafür, dass die Struktur der Quadrate der Dipolmatrixelemente aufweicht und überlappt, wodurch das zuvor beschriebene Verhalten resultiert. Hierbei muss beachtet werden, dass eine hohe Dephasierung schwächere Absorptionen zur Folge hat. Daher sind die Absorptionen hier im Vergleich zu den ohnehin schon geringen Absorptionen in Abbildung 4.4 eine Größenordnung kleiner.

³Dies entspricht gerade einem größeren Quantenpunkt.

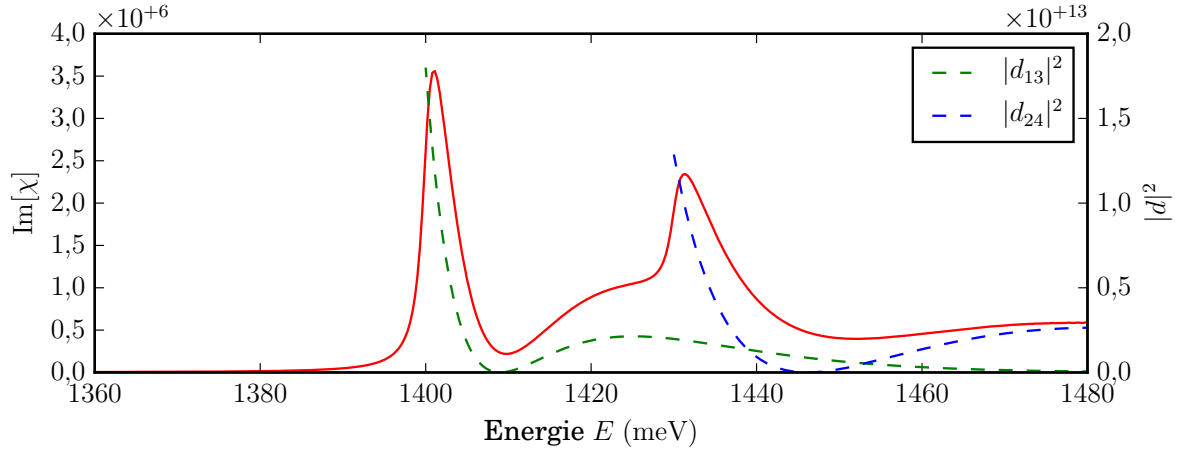


Abbildung 4.7.: Dargestellt ist ein Absorptionsspektrum für $\beta_{\text{LB}} = 0,8\beta_{\text{VB}}$ mit $\beta_{\text{VB}} = 0,20 \text{ nm}^{-1}$ mit unterdrückten Absorptionen der diagonalen Übergänge sowie die Quadrate der Dipolmatrixelemente der nicht-diagonalen Übergänge. Die Verhältnisse der β sind gleich zu denen in Abbildung 4.4. Insgesamt ist die Absorption hier größer als für den Fall $\beta_{\text{VB}} = 0,24 \text{ nm}^{-1}$.

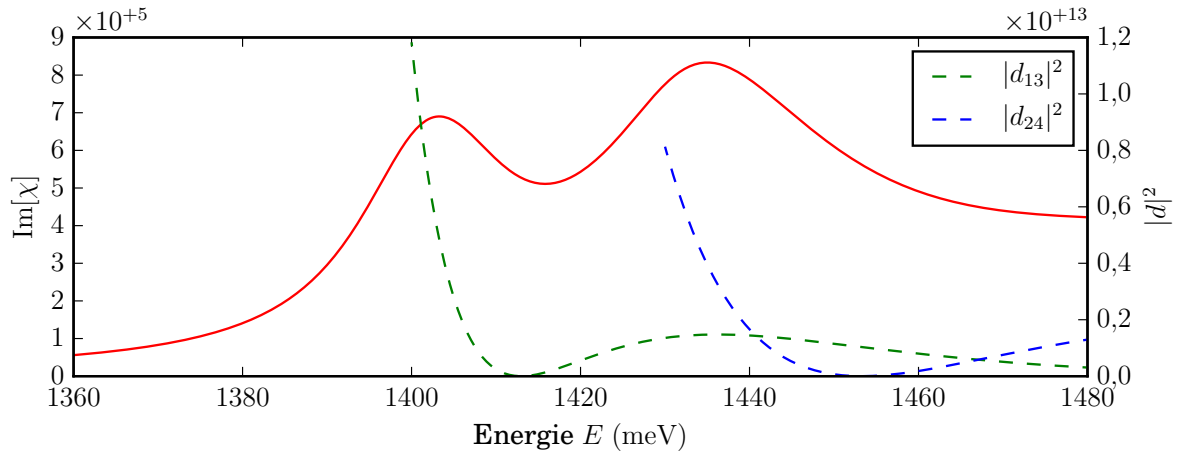


Abbildung 4.8.: Dargestellt ist ein Absorptionsspektrum für hohe Dephasierungen mit unterdrückten diagonalen Übergängen. Die Absorptionen der nicht-diagonalen Übergänge gehen ineinander über und bilden ein breites Absorptionsband.

5. Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden Absorptionsspektren von Systemen bestehend aus Quantenpunkten, welche selbstorganisiert auf einem Wetting-Layer gewachsen sind, untersucht. Im Fokus standen dabei Absorptionen, die durch optische Übergänge zwischen lokalisierten Quantenpunktzuständen und kontinuierlichen Wetting-Layer-Zuständen zustande kamen, wobei diese als nicht-diagonale Übergänge bezeichnet wurden. Als Modell für die Halbleiterstruktur wurde zunächst ein System bestehend aus vier diskreten Energieniveaus verwendet, welches anschließend durch Ersetzung zweier Niveaus durch kontinuierliche Bänder erweitert wurde. Die verwendeten Dipolmatrixelemente wurden zunächst konstant gewählt und in einem zweiten Schritt für passende Modellannahmen der Wellenfunktionen explizit bestimmt. Für die Wellenfunktion des Quantenpunkts wurde eine Gauß-Funktion angenommen und für den Wetting-Layer OPW-Zustände, welche durch ebene Wellen gebildet werden, die auf den Quantenpunktzuständen orthogonalisiert wurden. Das anregende Lichtfeld wurde nicht quantisiert, sondern als klassisches Feld angenommen.

Für das gekoppelte Quantenpunkt-Wetting-Layer-System wurden Absorptionsspektren für unterschiedliche Parameter der Quantenpunkt-Wellenfunktion untersucht. Hierbei stellte sich heraus, dass die nicht-diagonalen Beiträge zur Bildung von Absorptionsbanden führen, die energetisch zwischen der lorenzförmigen Absorption des Quantenpunkts und der breiten Absorptionsbande des Wetting-Layers liegen. Diese sind klein im Vergleich zu den diagonalen Absorptionen, werden jedoch größer, je verschiedener die inversen Oszillatorlängen für Valenz- und Leitungsbandzustände des Quantenpunkts sind. Von der Form her bilden beide nicht-diagonalen Übergänge zunächst einen Absorptionspeak gefolgt von einem breiten Absorptionsband. Das Verhalten kann durch die Form der Dipolmatrixelemente erklärt werden, wobei die Spektren als Gewichtung der Quadrate der Dipolmatrixelemente mit Lorenz-Kurven folgen, deren Form durch die Dephasierung vorgegeben ist. Im Vergleich dazu wurden Rechnungen für konstante Dipolmatrixelemente untersucht, die zu konstanten Absorptionsbanden durch nicht-diagonale Absorptionen führen.

Ausblick

Aufbauend auf dieser Arbeit sind diverse Verbesserungen und Erweiterungen möglich. Die wichtigste Verbesserung ist die Berücksichtigung von Coulomb-Wechselwirkungen zwischen den Ladungsträgern in Hartree-Fock-Näherung, wodurch ein grundsätzlicher Vergleich mit experimentellen Ergebnissen ermöglicht wird. Durch Berücksichtigung

5. Zusammenfassung

der Coulomb-Wechselwirkung, würde sich in Gleichung (3.2.2) ein weiterer Term ergeben, welcher die Austausch-Beiträge beschreibt. Des Weiteren wäre es möglich, das sehr einfach gehaltene Modell der Dephasierung genauer zu betrachten, indem die verursachenden Effekte der Elektron-Elektron- bzw. Elektron-Phonon-Wechselwirkung explizit mit einbezogen werden. Eine denkbare Erweiterung wäre auch die Annahmen über die Quantenpunkte fallen zu lassen. Hierfür ist es möglich, allgemeinere Geometrien für Quantenpunkte zuzulassen. Ebenso können Quantenpunkte betrachtet werden, welche ein weiteres Energieniveau besitzen [7].

A. Anhang

A.1. Wellenfunktionen

A.1.1. Wellenfunktionen der Quantenpunkte

Die in dieser Arbeit betrachteten Quantenpunkte sind, wie bereits an voriger Stelle erwähnt, dreidimensionale Einschlüsse von Ladungsträgern, wobei in der Wachstumsebene des Wetting-Layers eine Rotationssymmetrie vorliegt. Dieser Einschluss von Ladungsträgern kann gut durch ein parabolisches Potential in der Wachstumsebene des Wetting-Layers approximiert werden [1]. Aufgrund der Rotationssymmetrie wird eine Beschreibung des Quantenpunktes in Polarkoordinaten ϱ verwendet. Die Eigenfunktion des Grundzustands eines solchen parabolischen Potentials lautet [7]

$$\psi_{\text{QD},R}(\varrho) = \frac{\beta}{\sqrt{\pi}} \exp\left(-\frac{\beta^2 \varrho^2}{2}\right). \quad (\text{A.1.1})$$

Der Index R bezeichnet hier den Ort des jeweiligen Quantenpunktes. In dieser Arbeit werden nur solche Quantenpunkte betrachtet, die genau einen gebundenen Ladungsträgerzustand aufweisen, daher werden höher angeregte Niveaus des parabolischen Potentials nicht verwendet. Jedoch existiert jeweils ein Quantenpunktniveau, welches dem Valenzband zugeordnet werden kann und eines, welches zum Leitungsband gehört. Diese beiden Niveaus werden durch unterschiedliche β -Werte charakterisiert. β wird inverse Oszillatorlänge genannt und ist ein Maß für die Geometrie und Materialzusammensetzung der Quantenpunkte und kann für Valenz- und Leitungsband verschiedene Werte annehmen. Es wird angenommen, dass für alle Quantenpunkte die inversen Oszillatorlängen gleich sind, sowie, dass für alle Quantenpunkte Übergänge von einem Quantenpunktniveau auf ein anderes Quantenpunktniveau nur innerhalb eines Quantenpunkts stattfinden.

A.1.2. Wellenfunktion des Wetting-Layers

Wie bereits zuvor erwähnt, ist ein Wetting-Layer eine Halbleiterschicht, welche in zwei Raumrichtungen ausgedehnt ist, in der dritten jedoch nur eine geringe Ausdehnung besitzt. Außerhalb des Wetting-Layers liegt für die Ladungsträger ein höheres Potential vor, sodass die Ladungsträger einen Einschluss im Wetting-Layer verspüren. In der xy -Ebene (Wachstumsebene) sind die Elektronen zunächst quasifrei und können durch

A.2. Berechnung der Dipolmatrixelemente und der Gesamtpolarisation

zweidimensionale ebene Wellen quantenmechanisch beschrieben werden. An dieser Stelle wird zusätzlich noch die Annahme verwendet, dass der Halbleiterkristall isotrop ist und der Wetting-Layer somit eine Zylindersymmetrie aufweist. In diesem Fall können die ebenen Wellen in der xy -Ebene in Polarkoordinaten $\boldsymbol{\varrho}$ wie folgt beschrieben werden:

$$\psi_{\mathbf{k}}^0(\boldsymbol{\varrho}) = \frac{1}{\sqrt{A}} \exp(i\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\varrho}). \quad (\text{A.1.2})$$

Diese ebenen Wellen sind nicht orthogonal auf den Quantenpunktniveaus. Aus diesem Grund werden sogenannte OPW-Zustände [10] konstruiert, wodurch genau dies erreicht wird:

$$|\psi_{\mathbf{k}}\rangle = \frac{1}{N_{\mathbf{k}}} \left(|\psi_{\mathbf{k},0}\rangle - \sum_R |\phi_{\text{QD},R}\rangle \langle \phi_{\text{QD},R} | \psi_{\mathbf{k}}^0 \rangle \right). \quad (\text{A.1.3})$$

Die Zustände beziehen sich alle jeweils auf dasselbe Band (Valenzband oder Leitungsband), sodass OPW-Zustände vom Valenzband nicht orthogonal zu den Quantenpunktzuständen des Leitungsbands sind. Der Vorfaktor $N_{\mathbf{k}}$ ist ein Normierungsfaktor und wird an späterer Stelle ausgerechnet.

A.2. Berechnung der Dipolmatrixelemente und der Gesamtpolarisation

In diesem Abschnitt sollen die in Abschnitt 4.3 verwendeten Dipolmatrixelemente detailliert hergeleitet werden. Dazu werden zunächst die Dipolmatrixelemente berechnet, welche nach [1, S. 9] proportional zum Skalarprodukt der am Übergang beteiligten Zustände sind. Anschließend wird die Gesamtpolarisation betrachtet. Hierbei ist nicht die gesamte Form von Interesse, sondern lediglich die Vorfaktoren von den numerisch berechneten Termen.

A.2.1. Berechnung der Dipolmatrixelemente

Ausgegangen wird von den Zuständen, wie sie in (A.1.1) und (A.1.3) angegeben wurden. Zunächst werden die Skalarprodukte zwischen den ebenen Wellen und den Quantenpunktzuständen aufgestellt (die Berechnung der Dipolmatrixelemente erfolgt später jedoch mit den OPW-Zuständen). Die hierbei mit einer Tilde versehenen Größen sind solche, die zu einem anderen Band gehören als entsprechende Größen ohne Tilde. Eine Größe mit Tilde muss nicht explizit dem Leitungsband oder dem Valenzband zugeord-

net werden, die Formeln sind für beide Fälle gültig.

$$\begin{aligned} \langle \tilde{\varphi}_{\text{QD},R} | \varphi_{\text{QD},R} \rangle &= \langle \varphi_{\text{QD},R} | \tilde{\varphi}_{\text{QD},R} \rangle = g(\beta, \tilde{\beta}) = g(\tilde{\beta}, \beta) \\ \langle \tilde{\varphi}_{\text{QD},R} | \varphi_{\mathbf{k},0} \rangle &= \langle \varphi_{\mathbf{k},0} | \tilde{\varphi}_{\text{QD},R} \rangle = \frac{1}{\sqrt{A}} f(\mathbf{k}, \tilde{\beta}) \end{aligned} \quad (\text{A.2.1})$$

$$\langle \varphi_{\text{QD},R} | \tilde{\varphi}_{\mathbf{k},0} \rangle = \langle \tilde{\varphi}_{\mathbf{k},0} | \varphi_{\text{QD},R} \rangle = \frac{1}{\sqrt{A}} f(\mathbf{k}, \beta) \quad (\text{A.2.2})$$

$$\left(\langle \varphi_{\text{QD},R} | \varphi_{\mathbf{k},0} \rangle = \langle \varphi_{\mathbf{k},0} | \varphi_{\text{QD},R} \rangle = \frac{1}{\sqrt{A}} f(\mathbf{k}, \beta) \right) \quad (\text{A.2.3})$$

$$\left(\langle \tilde{\varphi}_{\text{QD},R} | \tilde{\varphi}_{\mathbf{k},0} \rangle = \langle \tilde{\varphi}_{\mathbf{k},0} | \tilde{\varphi}_{\text{QD},R} \rangle = \frac{1}{\sqrt{A}} f(\mathbf{k}, \tilde{\beta}) \right). \quad (\text{A.2.4})$$

Die eingeklammerten Terme sind jene, die ausschließlich dazu verwendet wurden, um die OPW-Zustände zu den Quantenpunkt-Zuständen zu orthogonalisieren. Da hierdurch die OPW-Zustände mit den Quantenpunktzuständen desselben Bandes orthogonal zueinander stehen, müssen diese zur Berechnung der Dipolmatrixelemente nicht mehr betrachtet werden. Trivial folgt, dass die Dipolmatrixelemente zwischen Kontinuum und Quantenpunkt desselben Bandes verschwinden.

Die Funktionen f und g lassen sich analytisch berechnen:

$$\begin{aligned} f(\mathbf{k}, \beta) &= \sqrt{A} \langle \varphi_{\text{QD},R} | \varphi_{\mathbf{k},0} \rangle \\ &= \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \frac{\beta}{\sqrt{\pi}} \exp\left(-\frac{\beta^2 \varrho^2}{2}\right) \exp(i\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\varrho}) \varrho d\varphi d\varrho \\ &= \frac{\beta}{\sqrt{\pi}} \int_0^\infty \exp\left(-\frac{\beta^2 \varrho^2}{2}\right) \varrho \int_0^{2\pi} \exp(ik\varrho \cos(\varphi)) d\varphi d\varrho \\ &= 2\sqrt{\pi}\beta \int_0^\infty \exp\left(-\frac{\beta^2 \varrho^2}{2}\right) \varrho J_0(k\varrho) d\varrho \\ &= 2\sqrt{\pi}\beta \int_0^\infty \exp\left(-\frac{\beta^2 \varrho^2}{2}\right) \varrho \sum_{n=0}^\infty \frac{(-1)^n}{n!^2} \left(\frac{k\varrho}{2}\right)^{2n} d\varrho \\ &= 2\sqrt{\pi}\beta \sum_{n=0}^\infty \frac{(-1)^n}{n!^2} \left(\frac{k^2}{4}\right)^n \int_0^\infty \exp\left(-\frac{\beta^2 \varrho^2}{2}\right) \varrho^{2n+1} d\varrho \\ &\stackrel{\text{A}}{=} 2\sqrt{\pi}\beta \sum_{n=0}^\infty \frac{(-1)^n}{n!^2} \left(\frac{k^2}{4}\right)^n \frac{n!}{2\left(\frac{\beta^2}{2}\right)^{n+1}} \\ &= \frac{2\sqrt{\pi}}{\beta} \sum_{n=0}^\infty \frac{(-1)^n k^{2n} 2^n}{4^n \beta^{2n} n!} \\ &= \frac{2\sqrt{\pi}}{\beta} \sum_{n=0}^\infty \left(-\frac{k^2}{2\beta^2}\right)^n \frac{1}{n!} \\ &= \frac{2\sqrt{\pi}}{\beta} \exp\left(-\frac{k^2}{2\beta^2}\right). \end{aligned} \quad (\text{A.2.5})$$

Hierbei wurden einige Annahmen gemacht bzw. Relationen verwendet, die kurz erläutert werden sollen. $\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\varrho} = k\varrho \cos(\varphi)$ ergibt sich aus der Annahme $\mathbf{k} \parallel \mathbf{e}_x$, welche

A.2. Berechnung der Dipolmatrixelemente und der Gesamtpolarisation

ohne Beschränkung der Allgemeinheit gemacht werden kann. J_0 bezeichnet eine Bessel-Funktion erster Gattung. Für diese wurde zu einem die Integraldarstellung [3, S. 577]

$$J_0(x) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \exp(ix \cos(\varphi)) d\varphi$$

sowie die Reihendarstellung [3, S. 575]

$$J_0(x) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n}{n!^2} \left(\frac{x}{2}\right)^{2n}$$

verwendet. Die Referenz A bezieht sich auf [3, S. 1116, 21.8.2.24] und gibt die Lösung des dort stehenden Integrals an.

Die Herleitung von g geschieht wie folgt:

$$\begin{aligned} g(\beta, \tilde{\beta}) &= \langle \varphi_{\text{QD},R} | \tilde{\varphi}_{\text{QD},R} \rangle \\ &= \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \frac{\beta \tilde{\beta}}{\pi} \exp\left(-\frac{\beta^2 \varrho^2}{2}\right) \exp\left(-\frac{\tilde{\beta}^2 \varrho^2}{2}\right) \varrho d\varphi d\varrho \\ &= 2\beta \tilde{\beta} \int_0^\infty \exp\left(-\frac{(\tilde{\beta}^2 + \beta^2) \varrho^2}{2}\right) \varrho d\varrho \\ &= \beta \tilde{\beta} \int_0^\infty \exp\left(-\frac{(\tilde{\beta}^2 + \beta^2) u}{2}\right) du \\ &= \frac{2\beta \tilde{\beta}}{\beta^2 + \tilde{\beta}^2}. \end{aligned} \tag{A.2.6}$$

Die Skalarprodukte, welche proportional zu den zu berechnenden Dipolmatrixelementen sind, werden im Folgenden berechnet.

Für das Dipolmatrixelement zwischen den beiden Quantenpunktzuständen folgt:

$$\langle \tilde{\varphi}_{\text{QD},R} | \varphi_{\text{QD},R'} \rangle = \delta_{R,R'} g(\beta, \tilde{\beta}).$$

Für die Dipolmatrixelement zwischen Quantenpunkt und Wetting-Layer folgt:

$$\begin{aligned} &\langle \tilde{\varphi}_{\text{QD},R'} | \varphi_{\mathbf{k}} \rangle \\ &= \frac{1}{N_{\mathbf{k}}} \langle \tilde{\varphi}_{\text{QD},R'} | \left(|\varphi_{\mathbf{k},0}\rangle - \sum_R |\varphi_{\text{QD},R}\rangle \langle \varphi_{\text{QD},R} | \varphi_{\mathbf{k},0}\rangle \right) \\ &= \frac{1}{N_{\mathbf{k}}} \left(\langle \tilde{\varphi}_{\text{QD},R'} | \varphi_{\mathbf{k},0}\rangle - \sum_R \langle \tilde{\varphi}_{\text{QD},R'} | \varphi_{\text{QD},R}\rangle \langle \varphi_{\text{QD},R} | \varphi_{\mathbf{k},0}\rangle \right) \\ &= \frac{1}{N_{\mathbf{k}}} \left(\frac{1}{\sqrt{A}} f(\mathbf{k}, \tilde{\beta}) - \sum_R \delta_{R,R'} g(\beta, \tilde{\beta}) \frac{1}{\sqrt{A}} f(\mathbf{k}, \beta) \right) \\ &= \frac{1}{\sqrt{A}} \frac{1}{N_{\mathbf{k}}} \left(f(\mathbf{k}, \tilde{\beta}) - g(\beta, \tilde{\beta}) f(\mathbf{k}, \beta) \right) \\ &\langle \varphi_{\text{QD},R'} | \tilde{\varphi}_{\mathbf{k}} \rangle \\ &= \frac{1}{\sqrt{A}} \frac{1}{\tilde{N}_{\mathbf{k}}} \left(f(\mathbf{k}, \beta) - g(\beta, \tilde{\beta}) f(\mathbf{k}, \tilde{\beta}) \right). \end{aligned}$$

Der jeweils umgekehrte Übergang ergibt sich durch komplexes konjugieren. Da die Ergebnisse der Skalarprodukte jedoch reell sind, sind die Dipolmatrixelemente für Übergänge von Wetting-Layer auf Quantenpunkte die gleichen wie von demselben Quantenpunkt auf denselben Wetting-Layer.

Für einen Übergang von Wetting-Layer auf Wetting-Layer ergibt sich¹:

$$\begin{aligned}
& \langle \tilde{\varphi}_{\mathbf{k}} | \varphi_{\mathbf{k}'} \rangle \\
&= \delta_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} \frac{1}{N_{\mathbf{k}} \widetilde{N}_{\mathbf{k}}} \left(\langle \tilde{\varphi}_{\mathbf{k},0} | - \sum_R \langle \tilde{\varphi}_{\text{QD},R} | \langle \tilde{\varphi}_{\text{QD},R} | \tilde{\varphi}_{\mathbf{k},0} \rangle \right) \left(| \varphi_{\mathbf{k},0} \rangle - \sum_{R'} | \varphi_{\text{QD},R'} \rangle \langle \varphi_{\text{QD},R'} | \varphi_{\mathbf{k},0} \rangle \right) \\
&= \delta_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} \frac{1}{N_{\mathbf{k}} \widetilde{N}_{\mathbf{k}}} \left(\langle \tilde{\phi}_{\mathbf{k},0} | \phi_{\mathbf{k},0} \rangle \right. \\
&\quad - \langle \tilde{\varphi}_{\mathbf{k},0} | \left(\sum_{R'} | \varphi_{\text{QD},R'} \rangle \langle \varphi_{\text{QD},R'} | \varphi_{\mathbf{k},0} \rangle \right) \\
&\quad - \left(\sum_R \langle \tilde{\varphi}_{\text{QD},R} | \langle \tilde{\varphi}_{\text{QD},R} | \tilde{\varphi}_{\mathbf{k},0} \rangle \right) | \varphi_{\mathbf{k},0} \rangle \\
&\quad \left. + \left(\sum_R \langle \tilde{\varphi}_{\text{QD},R} | \langle \tilde{\varphi}_{\text{QD},R} | \tilde{\varphi}_{\mathbf{k},0} \rangle \right) \left(\sum_{R'} | \varphi_{\text{QD},R'} \rangle \langle \varphi_{\text{QD},R'} | \varphi_{\mathbf{k},0} \rangle \right) \right) \\
&= \delta_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} \frac{1}{N_{\mathbf{k}} \widetilde{N}_{\mathbf{k}}} \left(\langle \tilde{\phi}_{\mathbf{k},0} | \phi_{\mathbf{k},0} \rangle \right. \\
&\quad - \left(\sum_{R'} \langle \tilde{\varphi}_{\mathbf{k},0} | \varphi_{\text{QD},R'} \rangle \langle \varphi_{\text{QD},R'} | \varphi_{\mathbf{k},0} \rangle \right) \\
&\quad - \left(\sum_R \langle \tilde{\varphi}_{\text{QD},R} | \varphi_{\mathbf{k},0} \rangle \langle \tilde{\varphi}_{\text{QD},R} | \tilde{\varphi}_{\mathbf{k},0} \rangle \right) \\
&\quad \left. + \left(\sum_{R,R'} \langle \tilde{\varphi}_{\text{QD},R} | \varphi_{\text{QD},R'} \rangle \langle \tilde{\varphi}_{\text{QD},R} | \tilde{\varphi}_{\mathbf{k},0} \rangle \langle \varphi_{\text{QD},R'} | \varphi_{\mathbf{k},0} \rangle \right) \right) \\
&= \delta_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} \frac{1}{N_{\mathbf{k}} \widetilde{N}_{\mathbf{k}}} \left(1 - \left(\sum_{R'} \frac{1}{A} f(\mathbf{k}, \beta)^2 \right) - \left(\sum_R \frac{1}{A} f(\mathbf{k}, \tilde{\beta})^2 \right) \right. \\
&\quad \left. + \left(\sum_{R,R'} \delta_{R,R'} g(\beta, \tilde{\beta}) \frac{1}{A} f(\mathbf{k}, \beta) f(\mathbf{k}, \tilde{\beta}) \right) \right) \\
&= \delta_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} \frac{1}{N_{\mathbf{k}} \widetilde{N}_{\mathbf{k}}} \left(1 - \frac{N_{\text{QD}}}{A} \left(f(\mathbf{k}, \beta)^2 + f(\mathbf{k}, \tilde{\beta})^2 - g(\beta, \tilde{\beta}) f(\mathbf{k}, \beta) f(\mathbf{k}, \tilde{\beta}) \right) \right) \\
&\langle \tilde{\varphi}_{\mathbf{k}} | \varphi_{\mathbf{k}'} \rangle = \delta_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} \frac{1}{N_{\mathbf{k}} \widetilde{N}_{\mathbf{k}}} \left(1 - n_{\text{QD}} \left(f(\mathbf{k}, \beta)^2 + f(\mathbf{k}, \tilde{\beta})^2 - g(\beta, \tilde{\beta}) f(\mathbf{k}, \beta) f(\mathbf{k}, \tilde{\beta}) \right) \right). \tag{A.2.7}
\end{aligned}$$

Unbestimmt bleiben an dieser Stelle nur noch die Normierungsfaktoren der OPW-

¹An dieser Stelle wurden einige Umformungsschritte gemacht, die hier nicht weiter erläutert werden. Eine detaillierte Rechnung ist in [10] zu finden.

A.2. Berechnung der Dipolmatrixelemente und der Gesamtpolarisation

Zustände $N_{\mathbf{k}}$. Die Normierung erfolgt analog zu (A.2.7):

$$\begin{aligned}\langle \varphi_{\mathbf{k}} | \varphi_{\mathbf{k}'} \rangle &= \frac{1}{N_{\mathbf{k}}^2} \left(1 - n_{\text{QD}} f(\mathbf{k}, \beta)^2 (2 - g(\beta, \beta)) \right) \stackrel{!}{=} 1 \\ \Rightarrow N_{\mathbf{k}} &= \sqrt{1 - n_{\text{QD}} f(\mathbf{k}, \beta)^2 (2 - g(\beta, \beta))} \\ \Rightarrow N_{\mathbf{k}} &= \sqrt{1 - n_{\text{QD}} f(\mathbf{k}, \beta)^2}.\end{aligned}$$

Der letzte Schritt folgt aus der Tatsache, dass $g(\beta, \beta) = 1$, wie direkt aus (A.2.6) folgt.

A.2.2. Gesamtpolarisation

Die zeitabhängige Gesamtpolarisation $P = P(t)$ ergibt sich wie folgt [8]

$$\begin{aligned}P &= \frac{1}{A} \left(\sum_{R, R'} d_{\text{QD}, \text{QD}} \psi_{\text{QD}, \text{QD}} + \sum_{R, \mathbf{k}} d_{\text{QD}, \text{WL}} \psi_{\text{QD}, \text{WL}} \right. \\ &\quad \left. + \sum_{R, \mathbf{k}} d_{\text{WL}, \text{QD}} \psi_{\text{WL}, \text{QD}} + \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} d_{\text{WL}, \text{WL}} \psi_{\text{WL}, \text{WL}} \right). \quad (\text{A.2.8})\end{aligned}$$

Die folgende Rechnung dient nicht dazu, die Gesamtpolarisation analytisch zu berechnen, sondern lediglich um die Wetting-Layer Fläche A und die Quantenpunktanzahl N_{QD} zu verrechnen und etwaig entstehende Vorfaktoren zu berücksichtigen. Die in der Gesamtpolarisation entstehenden Integrale müssen numerisch gelöst werden. Es wird verwendet:

$$\begin{aligned}\psi_{\text{QD}, \text{QD}} &\propto d_{\text{QD}, \text{QD}} \propto \langle \tilde{\varphi}_{\text{QD}, R} | \varphi_{\text{QD}, R'} \rangle \\ \psi_{\text{QD}, \text{WL}} &\propto d_{\text{QD}, \text{WL}} \propto \langle \varphi_{\text{QD}, R} | \tilde{\varphi}_{\mathbf{k}} \rangle \\ \psi_{\text{WL}, \text{QD}} &\propto d_{\text{WL}, \text{QD}} \propto \langle \tilde{\varphi}_{\text{QD}, R} | \varphi_{\mathbf{k}} \rangle \\ \psi_{\text{WL}, \text{WL}} &\propto d_{\text{WL}, \text{WL}} \propto \langle \tilde{\varphi}_{\mathbf{k}} | \varphi_{\mathbf{k}'} \rangle.\end{aligned}$$

Für den Grenzfall $A \rightarrow \infty$ (welcher hier vorliegt) wird eine Summe der Form $\frac{1}{A} \sum_{\mathbf{k}}$ durch ein Integral der Form $\frac{1}{(2\pi)^2} \int \dots d^2 \mathbf{k}$ ersetzt.

Die Summanden in (A.2.8) werden im Folgenden nach und nach diskutiert - zunächst der Anteil an der Gesamtpolarisation durch den Übergang zweier Quantenpunkte:

$$\begin{aligned}\sum_{R, R'} d_{\text{QD}, \text{QD}} \psi_{\text{QD}, \text{QD}} &\propto \sum_{R, R'} \langle \tilde{\varphi}_{\text{QD}, R} | \varphi_{\text{QD}, R'} \rangle^2 \\ &= \sum_{R, R'} \delta_{R, R'} g(\beta, \tilde{\beta})^2 = \sum_R g(\beta, \tilde{\beta})^2 \\ &= N_{\text{QD}} g(\beta, \tilde{\beta})^2 \propto N_{\text{QD}}.\end{aligned}$$

Als Nächstes der Anteil an der Gesamtpolarisation von Übergängen zwischen Quantenpunkt und Wetting-Layer.

$$\begin{aligned}
\sum_{R,\mathbf{k}} d_{\text{QD,WL}} \psi_{\text{QD,WL}} &\propto \sum_{R,\mathbf{k}} \langle \varphi_{\text{QD},R} | \tilde{\varphi}_{\mathbf{k}} \rangle^2 \\
&= \sum_{R,\mathbf{k}} \left(\frac{1}{\sqrt{A}} \frac{1}{\widetilde{N_{\mathbf{k}}}} \left(f(\mathbf{k}, \beta) - g(\beta, \tilde{\beta}) f(\mathbf{k}, \tilde{\beta}) \right) \right)^2 \\
&= N_{\text{QD}} \frac{1}{A} \sum_{\mathbf{k}} \left(\frac{1}{\widetilde{N_{\mathbf{k}}}} \left(f(\mathbf{k}, \beta) - g(\beta, \tilde{\beta}) f(\mathbf{k}, \tilde{\beta}) \right) \right)^2 \\
&= N_{\text{QD}} \frac{1}{(2\pi)^2} \int \left(\frac{1}{\widetilde{N_{\mathbf{k}}}} \left(f(\mathbf{k}, \beta) - g(\beta, \tilde{\beta}) f(\mathbf{k}, \tilde{\beta}) \right) \right)^2 d^2 \mathbf{k} \propto \frac{N_{\text{QD}}}{(2\pi)^2}
\end{aligned}$$

und vollständig analog dazu

$$\sum_{R,\mathbf{k}} d_{\text{WL,QD}} \psi_{\text{WL,QD}} \propto \frac{N_{\text{QD}}}{(2\pi)^2}.$$

Zuletzt die Beiträge an der Gesamtpolarisation durch den Übergang von einem Wetting-Layer auf einen anderen Wetting-Layer:

$$\begin{aligned}
\sum_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} d_{\text{WL,WL}} \psi_{\text{WL,WL}} &\propto \sum_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} \langle \tilde{\varphi}_{\mathbf{k}} | \varphi_{\mathbf{k}'} \rangle^2 \\
&= \sum_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} \delta_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} \left(\frac{1}{N_{\mathbf{k}} \widetilde{N_{\mathbf{k}}}} \left(1 - n_{\text{QD}} \left(f(\mathbf{k}, \beta)^2 + f(\mathbf{k}, \tilde{\beta})^2 - g(\beta, \tilde{\beta}) f(\mathbf{k}, \beta) f(\mathbf{k}, \tilde{\beta}) \right) \right) \right)^2 \\
&= A \frac{1}{A} \sum_{\mathbf{k}} \left(\frac{1}{N_{\mathbf{k}} \widetilde{N_{\mathbf{k}}}} \left(1 - n_{\text{QD}} \left(f(\mathbf{k}, \beta)^2 + f(\mathbf{k}, \tilde{\beta})^2 - g(\beta, \tilde{\beta}) f(\mathbf{k}, \beta) f(\mathbf{k}, \tilde{\beta}) \right) \right) \right)^2 \\
&= \frac{A}{(2\pi)^2} \int \left(\frac{1}{N_{\mathbf{k}} \widetilde{N_{\mathbf{k}}}} \left(1 - n_{\text{QD}} \left(f(\mathbf{k}, \beta)^2 + f(\mathbf{k}, \tilde{\beta})^2 - g(\beta, \tilde{\beta}) f(\mathbf{k}, \beta) f(\mathbf{k}, \tilde{\beta}) \right) \right) \right)^2 d^2 \mathbf{k} \\
&\propto \frac{A}{(2\pi)^2}.
\end{aligned}$$

Dies wird in (A.2.8) eingesetzt und die Wetting-Layer Flächen A aus den Skalarprodukten (A.2.1), (A.2.2), (A.2.3) sowie (A.2.4) herausgezogen und dafür in die Gesamtpolarisation geschrieben:

$$\begin{aligned}
P &= \frac{1}{A} \left(N_{\text{QD}} d_{\text{QD,QD}} \psi_{\text{QD,QD}} + \frac{N_{\text{QD}}}{(2\pi)^2} \int d_{\text{QD,WL}} \psi_{\text{QD,WL}} d^2 \mathbf{k} \right. \\
&\quad \left. + \frac{N_{\text{QD}}}{(2\pi)^2} \int d_{\text{WL,QD}} \psi_{\text{WL,QD}} d^2 \mathbf{k} + \frac{A}{(2\pi)^2} \int d_{\text{WL,WL}} \psi_{\text{WL,WL}} d^2 \mathbf{k} \right)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
P &= \left(n_{\text{QD}} d_{\text{QD,QD}} \psi_{\text{QD,QD}} + \frac{n_{\text{QD}}}{(2\pi)^2} \int d_{\text{QD,WL}} \psi_{\text{QD,WL}} d^2 \mathbf{k} \right. \\
&\quad \left. + \frac{n_{\text{QD}}}{(2\pi)^2} \int d_{\text{WL,QD}} \psi_{\text{WL,QD}} d^2 \mathbf{k} + \frac{1}{(2\pi)^2} \int d_{\text{WL,WL}} \psi_{\text{WL,WL}} d^2 \mathbf{k} \right)
\end{aligned}$$

Literaturverzeichnis

- [1] Norman Baer. “Optische Eigenschaften von Halbleiter-Quantenpunkten”. Diplomarbeit. Universität Bremen, 2003.
- [2] Dieter Bimberg, Marius Grundmann und Nikolai Ledentsov. *Quantum Dot Heterostructures*. Wiley, 2001.
- [3] Ilja Bronstein u. a. *Taschenbuch der Mathematik, 8. Auflage*. Verlag Harri Deutsch, 2012.
- [4] Torsten Fließbach. *Elektrodynamik: Lehrbuch zur theoretischen Physik II, 6. Auflage*. Springer Spektrum, 2012.
- [5] Christopher Gies u. a. “Semiconductor model for quantum-dot-based microcavity lasers”. In: *Physical review A* 75, 013803 (2007).
- [6] Harald Ibach und Hans Lüth. *Festkörperphysik: Einführung in die Grundlagen, 7. Auflage*. Springer Verlag, 2009.
- [7] Michael Lorke. “Vielteilchen-Coulomb-Effekte in den optischen Spektren von Halbleiter-Quantenpunktstrukturen”. Diplomarbeit. Universität Bremen, 2004.
- [8] Michael Lorke. “Optical gain and laser properties of semiconductor quantum-dot systems”. Dissertation. Universität Bremen, 2008.
- [9] Michael Lorke u. a. “Influence of carrier-carrier and carrier-phonon correlations on optical absorption and gain in quantum-dot systems”. In: *Physical review B* 73, 085324 (2006).
- [10] Torben Nielsen. “Carrier-Carrier and Carrier-Phonon Scattering in Self-Assembled Quantum Dots”. Dissertation. Universität Bremen, 2005.
- [11] Franz Schwabl. *Quantenmechanik: Eine Einführung, 7. Auflage*. Springer Verlag, 2007.
- [12] Holger Eisele u.a. “Change of InAs/GaAs Quantum Dot Structure during Capping”. In: *Journal of Applied Physics* 104:124301 (2008).
- [13] Mirco Kolarczik u.a. “Exciton dynamics probe the energy structure of a quantum dot-in-a-well system: The role of Coulomb attraction and dimensionality”. In: *Physical review B* 91, 235310 (2015).
- [14] Tim Wehling und Christopher Gies. *Skript zur Vorlesung: Höhere theoretische Physik, Quantenmechanik für Fortgeschrittene*. 2014.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich all denen danken, die mich beim anfertigen der vorliegenden Arbeit unterstützt haben.

Als Erstes möchte ich Dr. Michael Lorke danken, für die hervorragende Betreuung und die viele Zeit, die er sich genommen hat, wodurch es mir ermöglicht wurde, eine Arbeit über ein mir zunächst noch fremdes Thema zu erstellen. Außerdem möchte Prof. Dr. Frank Jahnke danken, für die Aufnahme in seine Arbeitsgruppe zur Anfertigung dieser Arbeit, für die Einführung in die Bearbeitung von Fragestellungen der theoretischen Physik sowie seine Bereitschaft, bei Problemen und Fragen zu helfen. Prof. Dr. Gerd Czycholl danke ich für seine Tätigkeit als Zweitgutachter dieser Arbeit. Auch danken möchte ich Dr. Christopher Gies für das Durchschauen meiner Arbeit, die vielen Tipps, die er mir gegeben hat und die Erklärungen, die mir geholfen haben, ein umfassenderes Verständnis des physikalischen Kontextes zu bekommen. Außerdem möchte ich meinen Büronachbarn Kevin Olschewsky und Arne Schobert danken, die nicht nur immer gute Diskussionspartner waren, sondern auch ab und an für notwendige Ablenkung gesorgt haben, um wieder einen klaren Kopf zu bekommen. Alexandra Klemme, Robert Zeyda sowie Kevin Olschewsky danke ich dafür, dass sie meine Arbeit gelesen und mich auf so manchen Fehler aufmerksam gemacht haben. Zuletzt möchte ich mich noch bei meiner Mutter Corinna Cepok, die mich auf meinem gesamten Bildungsweg stets so gut wie möglich unterstützt hat, sowie bei meiner Freundin Nancy Pilz, für den Ausgleich nicht nur während der Anfertigung dieser Arbeit, sondern während des gesamten Studiums, ganz herzlich bedanken.