

Tight-Binding-Beschreibung von GaAs/AlGaAs Quantenpunkten

Tight-Binding Description of GaAs/AlGaAs Quantum Dots

Masterarbeit

vorgelegt von Boris Melcher

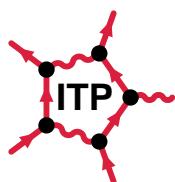
1. Gutachter: Prof. Dr. Frank Jahnke
2. Gutachter: Prof. Dr. Gerd Czycholl

Matrikelnummer: 2588809

E-Mail: boris.melcher@uni-bremen.de

Bremen, 14. Oktober 2016

Fachbereich 01, Institut für Theoretische Physik



Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung	1
2 Theoretischer Hintergrund	3
2.1 Tight-Binding-Methode für Bulk-Materialien	3
2.1.1 Atomorbitale	3
2.1.2 Periodisches Potential	4
2.1.3 Eigenwertproblem und Matrixelemente	5
2.1.4 Approximationen	6
2.1.5 Bandstrukturen für Festkörper mit Zinkblende-Kristallstruktur	10
2.2 Tight-Binding-Methode für Quantenpunkte	11
2.2.1 Matrixelemente	11
2.2.2 On-Site- und Hopping-Matrizen	12
2.3 Spin-Bahn-Wechselwirkung	13
2.4 Herstellung von GaAs/AlGaAs-Quantenpunkten	15
3 Modellierung von Quantenpunkten	17
3.1 Generelles Vorgehen	17
3.2 Aufbau der Superzelle	18
3.2.1 Atomkoordinaten, Sorten und Typ	19
3.2.2 Nächste-Nachbar-Kopplungen	22
3.3 Aufbau der Tight-Binding-Matrix	24
3.3.1 Speicherallokierung	25
3.3.2 On-Site-Matrixelemente	25
3.3.3 Hopping-Matrixelemente	27
3.4 Diagonalisierung und Auswertung	28
4 Ergebnisse und Diskussion	31
4.1 Bulk-Material: GaAs, AlAs und AlGaAs	31
4.1.1 Bandstrukturen: GaAs und AlAs	31
4.1.2 Konzentrationsabhängigkeit der Bandkanten und Bandlücken: AlGaAs	32
4.2 Quantenpunkte: GaAs in AlGaAs	34
4.2.1 Eigenschaften der untersuchten Systeme	34
4.2.2 Einteilchen-Aufenthaltswahrscheinlichkeiten	34
4.2.3 Variation der Größe	36
4.2.4 Variation der Konzentration	39
4.2.5 Variation der Höhe	44
4.2.6 Variation des Durchmessers	46
5 Zusammenfassung und Ausblick	49
A Anhang	51
Literatur	57

1 Einleitung

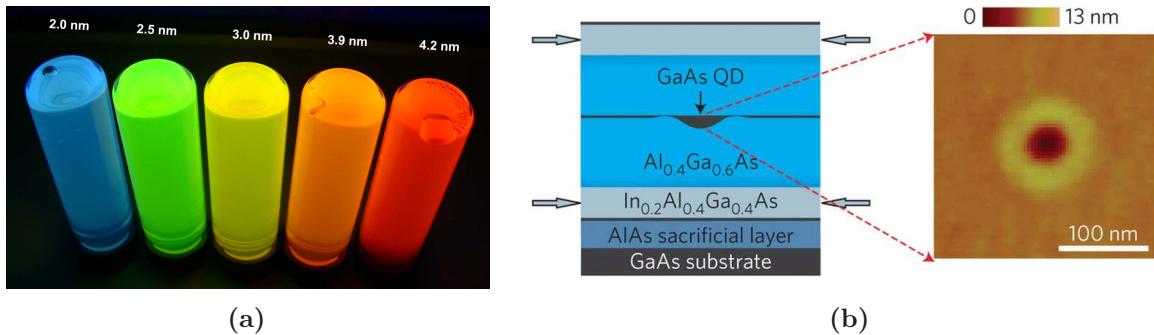


Abbildung 1.1: (a) Kommerziell erhältliche, nasschemisch hergestellte CdSe-Quantenpunkte in Lösung. Die Farbe des emittierten Lichts variiert mit der Größe der Nanopartikel. Kleinere Partikel emittieren blaues Licht, da die Exzitonen-Energie mit sinkender Nanopartikelgröße steigt. Abbildung aus [1]. (b) Schematische Darstellung (links) eines GaAs-Quantenpunktes in AlGaAs. Die Quantenpunktlage liegt zwischen zwei gespannten (In)AlGaAs Membranen, mithilfe derer Verspannungen im Quantenpunkt induziert werden können. Die rechte Abbildung zeigt eine rasterkraftmikroskopische Aufnahme von einem durch local droplet etching erzeugten Loch (*nanohole*) in einer AlGaAs-Oberfläche vor dem Befüllen mit GaAs. Abbildung aus [2].

Laut Allied Market Research erzielte der Quantenpunktmarkt allein im Jahr 2013 Gewinne in Höhe von 316 Millionen US-Dollar. Für das Jahr 2020 wird ein Anstieg auf 5,04 Milliarden US-Dollar prognostiziert [3]. So verwundert es nicht, dass das Interesse von immer mehr Menschen auf Quantenpunkte fällt. Durch Einsatz in Displays, Lasern, Photovoltaikanlagen, medizinischen Geräten, Computerchips, Sensoren sowie generell lichtemittierenden Geräten decken sie eine ganze Palette an Anwendungsbereichen ab. Von Quantenoptik über Optoelektronik bis hin zu Medizintechnik, erneuerbaren Energien und quantenpunktbasierter Überwachungs- und Sicherheitsgeräten finden sie weite Verbreitung [4]. Obwohl zurzeit auf Cadmium basierende Quantenpunkte (zum Beispiel CdSe oder CdS, Abbildung 1.1(a)) den größten Marktanteil haben, genießen inzwischen auch andere Materialsysteme steigende Aufmerksamkeit [4]. Sogar im Internet finden sich inzwischen immer mehr Artikel, die erklären, „weshalb Quantenpunkte genial sind“. So legt trustedreviews.com seinen Lesern nahe, beim Fernsehkauf einen LCD TV mit Quantenpunkten in Betracht zu ziehen [5]. Bei über 68,8 Millionen Menschen mit mindestens einem Fernseher alleine in Deutschland [6], dürfte der Begriff *Quantenpunkt* also in wenigen Jahren auch in den alltäglichen Sprachgebrauch Einzug finden.

Dementsprechend ist das Interesse am Forschungsgebiet Quantenpunkte enorm. Nicht nur die bisherigen Anwendungsbereiche fordern immer günstigere und massentauglichere Herstellungsmethoden [3], sondern es ergeben sich auch immer mehr Forschungen in Richtung Quanteninformationstechnik. Auch hier könnten Quantenpunkte, nicht zuletzt wegen ihrer Anpassbarkeit, eine zentrale Rolle spielen [2]. Gerade deswegen werden sie schließlich oft als *künstliche Atome* bezeichnet. Dies liegt daran, dass die sonst für Atome typischen diskreten Energieniveaus, auch bei Quantenpunkten vorliegen. Dadurch, dass die Längenskala der Quantenpunkte im Nanometerbereich und somit unter der De-Broglie-Wellenlänge der Ladungsträger liegt, erfährt

1 Einleitung

dieser ein in alle drei Raumrichtungen starkes Einschlusspotential, das zu einer deltaförmigen Zustandsdichte und diskreten Energieniveaus führt. Diese wiederum lassen sich, in bestimmten Grenzen, durch Ändern der Materialien aber auch der Größe und der Geometrie der Quantenpunkte manipulieren (siehe Abbildung 1.1(a)). Daher liegt eine große Anpassbarkeit von sowohl elektronischen als auch optischen Eigenschaften vor [7].

Besonders in den letzten Jahren gelang es mittels *local droplet etching* unter anderem GaAs Quantenpunkte in AlGaAs Barrierenmaterial herzustellen [2, 8, 9]. Dabei können inzwischen äußerst symmetrische, kegelförmige Quantenpunkte erzeugt werden [8]. Diese sind zudem in ihrem Volumen und ihrer Größe variabel herstellbar [9]. Darüber hinaus können zum Beispiel mithilfe einer Art Hebebühne, basierend auf dem Piezoelektrischen Effekt, gezielt Verspannungen in dem Quantenpunkt induziert und somit die Energieniveaus manipuliert werden [2]. Mithilfe einer ähnlichen Technik (Abbildung 1.1(b)) gelang es kürzlich sogar ein light-hole Exziton als Grundzustand in einem Quantenpunkt zu erzeugen [2]. Dies könnte für die Quanteninformations-technik von großer Bedeutung sein. Deshalb ist es von großem Interesse, auch ein grundlegendes theoretisches Verständnis für diese Art von Quantenpunkten zu gewinnen.

Diese Arbeit fokussiert sich auf die Untersuchung von grundlegenden Eigenschaften von GaAs-/AlGaAs-Quantenpunkten. Bei diesen liegt ein kegelförmiger Quantenpunkt aus reinem GaAs in Barrierenmaterial aus AlGaAs-Legierungen mit unterschiedlichen Aluminium- beziehungsweise Galliumkonzentrationen vor. Zur theoretischen Beschreibung von Quantenpunkten eignet sich die Tight-Binding Methode besonders gut. Zum einen, weil bei ihr bekannte Materialparameter direkt in das Modell einfließen [10] und zum anderen, weil mit ihr jedes einzelne Atom des Quantenpunktsystems Berücksichtigung findet. Die Zielstellung dieser Arbeit lässt sich in folgenden Fragen zusammenfassen:

- Wie hängen die Energieniveaus und Eigenzustände der GaAs/AlGaAs-Quantenpunkte mit der Zusammensetzung (also der Aluminium- beziehungsweise Galliumkonzentration) des Barrierenmaterials zusammen?
- Wie wirkt sich die Größe und die Geometrie des Quantenpunktes auf die Energieniveaus aus?

Hinzu kommt die Frage, in welcher Art und Weise sich eine Simulation von großen Quantenpunktsystemen (bis zu 60 nm Durchmesser) überhaupt rechentechnisch umsetzen lässt. Schließlich müssen bis zu $7 \cdot 10^6$ Atome Berücksichtigung finden.

In Kapitel 2 werden die Grundlagen der Tight-Binding-Methode vorgestellt und ihre Anwendbarkeit auf Bulk-Materialien (insbesondere mit Zinkblende-Kristallstruktur) und auf Quantenpunkte demonstriert. Anschließend folgt in Kapitel 3 die Beschreibung der Implementation und Simulation der Quantenpunkte mittels Tight-Binding. Schließlich werden in Kapitel 4 die gewonnenen Ergebnisse vorgestellt. Dabei werden zunächst die Bandstrukturen von GaAs sowie AlAs mit der in dieser Arbeit verwendeten Tight-Binding-Parametrisierung präsentiert und mit bekannten Bandstrukturwerten verglichen. Anschließend folgt die Untersuchung der Bandkanten und Bandlückenwerte für AlGaAs-Legierungen mit verschiedenen Ga/Al-Konzentrationen, bevor schließlich die Diskussion der Eigenenergien und -zustände für konkrete Quantenpunktsysteme folgt. Dabei werden die Auswirkungen von sowohl unterschiedlicher Ga/Al-Konzentrationen im Barrierenmaterial als auch Änderungen der Größe des Quantenpunktes insgesamt sowie nur der Höhe beziehungsweise des Durchmessers untersucht. Zuletzt folgt in Kapitel 5 eine Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse und ein Ausblick auf noch zu klärende Fragen und weiter mögliche Untersuchungsgebiete.

2 Theoretischer Hintergrund

Zunächst wird der für die durchgeführten Rechnungen benötigte theoretische Hintergrund dargelegt. Dabei wird in Kapitel 2.1 die Tight-Binding-Methode für translationsinvariante Systeme vorgestellt. In Kapitel 2.2 folgt die Beschreibung für Quantenpunkte. Dort liegt keine Translationsinvarianz mehr vor, weshalb Anpassungen am Vorgehen durchzuführen sind. Schließlich wird in Kapitel 2.3 aufgezeigt, wie die Spin-Bahn-Wechselwirkung im Tight-Binding-Modell Berücksichtigung findet.

2.1 Tight-Binding-Methode für Bulk-Materialien

Nachdem die Tight-Binding-Methode zum ersten Mal 1928 von Felix Bloch zur Berechnung elektronischer Zustände in Festkörpern verwendet wurde [11], wird sie auch heute noch häufig als Näherungsmethode zur Berechnung von Bandstrukturen eingesetzt [12]. Wie der Name *Tight-Binding* bereits nahelegt, wird hierbei von stark an den Atomröhnen gebundenen Elektronen und geringer Wechselwirkung mit anderen Atomen des Festkörpers ausgegangen. Die Wellenfunktionen haben daher große Ähnlichkeit mit denen eines einzelnen freien Atoms, weshalb zur Beschreibung des gesamten Festkörpers eine Linearkombination dieser Atomorbitale an jedem Atom des Kristalls angenommen wird. Bei der Berechnung kommen dann vor allem zwei Arten von Beiträgen vor. Zum einen die Energien, bei denen das Elektron in einem bestimmten Orbital gebunden ist (*On-Site*) und zum Anderen die Wahrscheinlichkeiten, mit denen ein Elektron von einem Orbital an einem Atom in ein Orbital an einem anderen Atom übergehen wird (*Hopping*). Diese On-Site- und Hopping-Terme sind nicht explizit berechnet, sondern an zum Beispiel experimentelle Daten angepasst [13].

Beginnend mit dem Begriff der Atomorbitale, die sich als anschauliche Lösung der Schrödinger-Gleichung für das Zentralpotential ergeben, werden die Grundlagen der Tight-Binding-Methode vorgestellt. Dabei wird, von dem Hamiltonoperator für ein isoliertes Atom ausgehend, das Problem des periodischen Potentials im Festkörper auf die Lösung eines Eigenwertproblems überführt. Zudem werden die auftretenden Matrixelemente diskutiert und Möglichkeiten, das Problem zu vereinfachen (insbesondere die Zweizentrennäherung), vorgestellt. Die folgenden Beschreibungen stellen im Wesentlichen eine Zusammenfassung von [10] dar. In [7, 13–15] sind ebenfalls Darstellungen zur Tight-Binding-Methode zu finden.

2.1.1 Atomorbitale

Als analytische Lösung der Schrödinger-Gleichung für einen Ladungsträger im Zentralpotential ergeben sich die Wellenfunktionen (Orbitale) Ψ_{nlm} , die sich durch die *Hauptquantenzahl* n , die *Drehimpulsquantenzahl* l und die *Magnetquantenzahl* m mit den folgenden Wertebereichen charakterisieren lassen [16, 17]:

$$\begin{aligned} n &= 1, 2, 3, \dots \\ l &= 0, 1, 2, \dots, n - 1 \\ m &= -l, -l + 1, \dots, l - 1, l. \end{aligned} \tag{2.1}$$

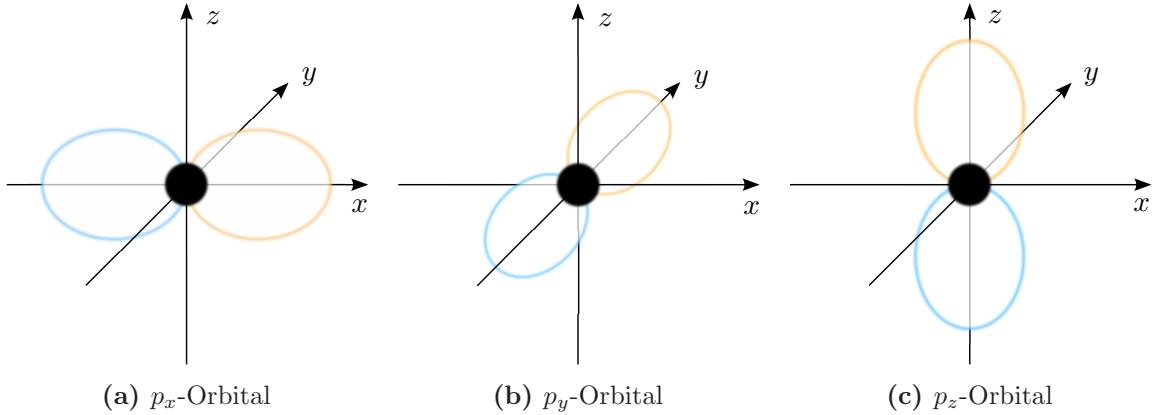


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung des winkelabhängigen Teils der reellwertigen p -Orbitale. Die gelben und blauen Umrandungen deuten ein positives beziehungsweise negatives Vorzeichen der Wellenfunktion an.

Jedes Orbital Ψ_{nlm} kann mit je zwei Elektronen mit unterschiedlichen *Spinquantenzahlen* s besetzt sein. Statt $m = 0$, $m = \pm 1$ und $m = \pm 2$ finden sich oft die Bezeichnungen σ , $\pm\pi$ beziehungsweise $\pm\delta$ [18].

Die Wellenfunktionen lassen sich in eine vom Radius abhängige Radialfunktion $R_{nl}(r)$ und in die winkelabhängigen Kugelflächenfunktionen $Y_{lm}(\theta, \phi)$ separieren. Dabei sind θ und ϕ der Polarkoordinaten. Die Nullstellen der Radialfunktionen definieren $n - l - 1$ *Knotenflächen*, auf denen sich das Elektron nicht befinden kann und $n - l$ Zwischenbereiche mit nicht-verschwindender Aufenthaltswahrscheinlichkeit, die sich klassisch als Kreisbahnen deuten lassen, auf denen das Elektron um den Atomkern kreist [16]. Aus den im Allgemeinen komplexen Kugelflächenfunktionen lassen sich durch Bilden von Linearkombinationen zu festem l aber unterschiedlichen m neue, reellwertige Wellenfunktionen konstruieren [17]. So lassen sich drei reelle (zueinander orthogonale) p -Orbitale konstruieren, die in der Literatur als p_x , p_y und p_z auftauchen. Abbildung 2.1 zeigt den winkelabhängigen Teil der p -Orbitale, wobei gelb und blau für positives beziehungsweise negatives Vorzeichen der Wellenfunktion steht. Für größere Drehimpulsquantenzahlen finden sich entsprechend mehr mögliche Linearkombinationen (siehe zum Beispiel [10]).

2.1.2 Periodisches Potential

Für ein Elektron am Ort \mathbf{r} im Potential eines einzelnen Atomrumpfes am Ort \mathbf{R} lautet die zeitunabhängige Schrödingergleichung

$$\hat{H}_{\text{at}} \varphi_n(\mathbf{r} - \mathbf{R}) = E_n \varphi_n(\mathbf{r} - \mathbf{R}) \quad (2.2)$$

$$\hat{H}_{\text{at}} = \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + V(\mathbf{r} - \mathbf{R}), \quad (2.3)$$

wobei \hat{H}_{at} der atomare Hamiltonoperator, E_n die Eigenenergien und $\varphi_n(\mathbf{r} - \mathbf{R})$ die als bekannt vorausgesetzten Eigenzustände (Atomorbitale, siehe Kapitel 2.1.1) sind. Der Index n ist kollektiv und enthält die Hauptquantenzahl, die Bahndrehimpulsquantenzahlen und die Spinquantenzahl [19]. In einem Festkörper liegen mehrere Atome vor, sodass der Hamiltonoperator nun zu

$$\hat{H} = \hat{H}_{\text{at}} + \sum_{\mathbf{R}' \neq \mathbf{R}} V(\mathbf{r} - \mathbf{R}') \quad (2.4)$$

2.1 Tight-Binding-Methode für Bulk-Materialien

wird. Die Summe $\sum_{\mathbf{R}' \neq \mathbf{R}} V(\mathbf{r} - \mathbf{R}')$ beschreibt die zusätzlichen, nicht im atomaren Hamiltonoperator auftauchenden Beiträge, der anderen Festkörperatome [19]. Bei einem Festkörper mit regelmäßiger Kristallstruktur ist das Potential translationsinvariant bei Verschiebung um beliebige Gittervektoren \mathbf{t} . Die noch zu bestimmenden Eigenfunktionen ϕ_n des periodischen Hamiltonoperators (2.4) müssen also dem Blochschen Theorem

$$\phi_n(\mathbf{r} + \mathbf{t}) = e^{i\mathbf{k}\mathbf{t}} \phi_n(\mathbf{r}) \quad (2.5)$$

genügen. Diese müssen dabei nicht zwangsläufig selbst gitterperiodisch sein, dürfen sich jedoch lediglich um einen Phasenfaktor $e^{i\mathbf{k}\mathbf{t}}$ unterscheiden. Dabei ist \mathbf{k} ein Wellenvektor im reziproken Raum. Die Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichte selbst wird wieder gitterperiodisch, da der Phasenfaktor beim Bilden des Betragsquadrates genau herausfällt [19]. Durch Bilden der Blochsumme

$$B_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{t}} e^{i\mathbf{k}\mathbf{t}} \varphi_n(\mathbf{r} - \mathbf{t}). \quad (2.6)$$

über alle N Atome des Festkörpers an den Orten \mathbf{t} lässt sich ein Blochzustand konstruieren, der die Periodizitätsbedingung erfüllt. Bei der Tight-Binding Methode werden diese Blochsummen als Basis der Ein-Teilchen Wellenfunktionen des gesamten Festkörpers angenommen, wobei aber nur eine endliche Anzahl an Atomorbitalen an jedem Atom der Einheitszelle gewählt wird. Für jeden Wellenvektor \mathbf{k} wird es eine Linearkombination

$$\Phi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \sum_m b_m(\mathbf{k}) B_{m,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \quad (2.7)$$

der so gewonnenen Blochsummen geben, die die Schrödingergleichung mit dem Hamiltonoperator des gesamten Kristalls

$$\hat{H}\Phi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \varepsilon_{\mathbf{k}}\Phi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \quad (2.8)$$

löst. Dabei sind $b_m(\mathbf{k})$ die Entwicklungskoeffizienten der Linearkombination und $\varepsilon_{\mathbf{k}}$ die Energiedichten des Ladungsträgers, die gerade die Energieänder, also die Bandstruktur ergeben [20, 21].

2.1.3 Eigenwertproblem und Matrixelemente

Die Schrödingergleichung 2.8 lässt sich durch Bilden des Skalarproduktes mit dem Zustand $B_{n,\mathbf{k}}^*$ von links und Integration über den gesamten Kristall in die Matrixgleichung

$$\sum_m b_m(\mathbf{k}) H_{nm} = \varepsilon_{\mathbf{k}} \sum_m b_m(\mathbf{k}) S_{nm} \quad (2.9)$$

überführen, wobei H_{nm} und S_{nm} die Matrixelemente der Hamiltonmatrix H beziehungsweise der Überlappungsmatrix S sind und sich als

$$H_{nm} = \int B_{n,\mathbf{k}}^*(\mathbf{r}) \hat{H} B_{m,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \quad (2.10)$$

$$S_{nm} = \int B_{n,\mathbf{k}}^*(\mathbf{r}) B_{m,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \quad (2.11)$$

2 Theoretischer Hintergrund

schreiben lassen. Es ergibt sich ein prinzipiell lösbares erweitertes Eigenwertproblem der Form

$$[H(\mathbf{k}) - \varepsilon_{\mathbf{k}} S(\mathbf{k})] b(\mathbf{k}) = 0, \quad (2.12)$$

mit der Hamiltonmatrix (oft auch *Tight-Binding-Matrix*) H und der meist als Einheitsmatrix angenommenen Überlappungsmatrix S (siehe Kapitel 2.1.4). Setzt man die entsprechenden Blochsummen 2.6 in 2.10 beziehungsweise 2.11 ein und beachtet, dass der Hamiltonoperator translationsinvariant ist, ergeben sich die Matrixelemente der Hamilton- und der Überlappungsmatrix zu

$$H_{nm} = \sum_{\mathbf{R}} e^{i\mathbf{k}\mathbf{R}} \int \varphi_n^*(\mathbf{r}) \hat{H} \varphi_m(\mathbf{r} - \mathbf{R}) d\mathbf{r} \quad (2.13)$$

$$S_{nm} = \sum_{\mathbf{R}} e^{i\mathbf{k}\mathbf{R}} \int \varphi_n^*(\mathbf{r}) \varphi_m(\mathbf{r} - \mathbf{R}) d\mathbf{r}. \quad (2.14)$$

Hierbei sind φ_n beziehungsweise φ_m atomare Zustände und die Matrixelemente hängen lediglich über den Faktor $e^{i\mathbf{k}\mathbf{R}}$ mit dem Wellenvektor \mathbf{k} zusammen. Das Integral im Hamiltonmatrixelement gibt anschaulich die Amplitude an, mit der ein Elektron im Orbital φ_m am Atom \mathbf{R} unter dem Einfluss des Hamiltonoperators in das Orbital φ_n am Atom im Ursprung hüpfen wird [21]. Für $n = m$ und $\mathbf{R} = \mathbf{0}$ gibt es den Energieerwartungswert des Orbitals φ_n an (On-Site-Energie). Die Integrale in 2.13 enthalten im Allgemeinen Produkte von Orbitalen φ_n im Ursprung, φ_m am Ort \mathbf{R} und vom Potential an einem dritten Ort \mathbf{R}_k , da der Hamiltonoperator 2.4 neben dem atomaren Anteil auch die Potentiale aller anderen Atome im Kristallgitter enthält [22]. Daher lassen sie sich, entsprechend nach den Orten der Orbitale und des Potentials, in drei Arten unterscheiden. Bei den *Einzentrumintegralen* liegen beide Orbitale und das Potential im Ursprung und das Integral entspricht dem eines einzelnen isolierten Atoms. Liegen die Orbitale an unterschiedlichen Atomen und das Potential an einem dieser beiden, handelt es sich um ein *Zweizentrenintegral*. Bei *Dreizentrenintegralen* liegen wiederum Orbitale und das Potential alle an drei unterschiedlichen Orten.

2.1.4 Approximationen

Die Berechnung der Matrixelemente ohne Näherungen ist aufgrund der großen Anzahl der Atome im Festkörper schwierig. Ein mögliches Näherungsverfahren wurde 1954 in [22] von Slater und Koster eingeführt. Dies beinhaltet insbesondere die Zweizentrennäherung, bei der die Dreizentrenintegrale in den Hamiltonmatrixelementen vernachlässigt werden und die sonstigen Integrale als Konstanten angenommen werden. Diese werden dann an experimentelle Daten oder Daten aus anderen theoretischen Modellen gefittet, um so eine einfache Beschreibung der Bandstruktur zu erhalten [23]. Die Vereinfachungen werden hier in den Grundzügen dargestellt und für die durchgeführten Rechnungen verwendet.

Annahme einer orthogonalen Basis

Die aus den atomaren Orbitalen gebildeten Blochsummen sind im Allgemeinen nicht orthogonal zueinander. Schließlich entsteht erst durch die Überlappung der Wellenfunktionen an unterschiedlichen Atomen eine chemische Bindung. Allerdings würde die Annahme von Orthogonalität der Blochsummen das erweiterte Eigenwertproblem 2.12 auf ein einfaches Eigenwertproblem reduzieren, da die Überlappungsmatrix gerade zur Einheitsmatrix werden würde. Oft wird daher von vornherein eine orthogonale Basis angenommen.

Nichtsdestotrotz gibt es nach Löwdin [24] immer eine Möglichkeit die Blochsummen durch Linearkombination der ursprünglichen Orbitale so zu orthogonalisieren, dass die Symmetrieeigenschaften der ursprünglichen Orbitale erhalten bleiben. Die so gewonnenen Blochsummen sind dann sowohl normiert, als auch orthogonal zueinander [22, S. 1501]. In den konkreten Rechnungen ist eine solche Transformation jedoch nie explizit durchzuführen, da die Information der Symmetrieeigenschaften der atomaren Orbitale ausreicht, um ein Tight-Binding-Modell aufzustellen.

Zweizentrennäherung

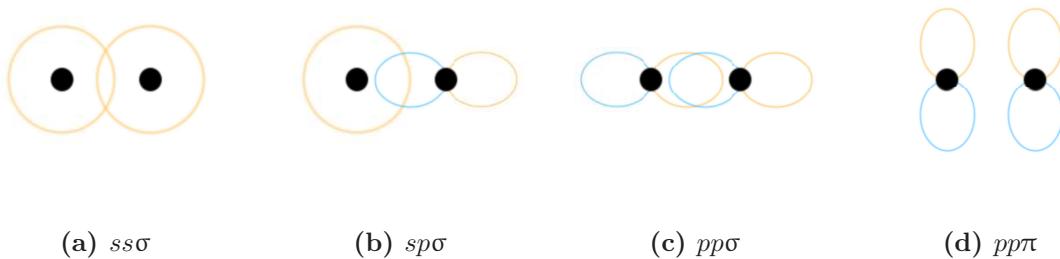


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung aller in Zweizentrennäherung möglichen Überlappungen zwischen s - und p -Orbitalen. Die gelben und blauen Umrandungen deuten ein positives beziehungsweise negatives Vorzeichen der Wellenfunktion an.

In der Zweizentrennäherung werden die Dreizentrenintegrale in den Matrixelementen, die zwar durchaus Beiträge liefern, vernachlässigt [22, S. 1502], wodurch nur noch solche Integrale übrig bleiben, wie sie auch zwischen zweiatomigen Molekülen im Abstand \mathbf{R} zueinander auftreten. Die Integrale lassen sich derart umschreiben, dass nur noch nicht-verschwindende Beiträge zwischen Orbitalen mit gleicher Magnetquantenzahl $m = m'$ übrig bleiben und diese gerade den aus der Chemie bekannten σ -, π - und δ -Bindungen entsprechen. Dies geschieht folgendermaßen.

Legt man zwei Koordinatensysteme so an die Atompositionen beider Atome, dass die z -Achsen parallel zum Verbindungsvektor \mathbf{d} zwischen den Atomen sind und die Azimutwinkel ϕ übereinstimmen, so lauten die Kugelflächenfunktionen der Atomorbitale $Y_{lm}(\theta, \phi)$ und $Y_{l'm'}(\theta', \phi)$ [25]. Aufgrund der Orthogonalität der Basis verschwinden alle Beiträge zu unterschiedlichen Magnetquantenzahlen. Alle in Zweizentrennäherung zwischen s - und p -Orbitalen möglichen Überlappungen sind schematisch in Abbildung 2.2 gezeigt. Die Überlappungen mit einschließlich den d -Orbitalen sind in [10] zu finden.

Im Festkörper ist das Koordinatensystem allerdings fest gewählt, sodass die Orbitale im Allgemeinen nicht mehr, wie eben beschrieben, zueinander orientiert sind. Jedoch können sie als Linearkombination derart zueinander orientierter Orbitale geschrieben werden. So zeigt Abbildung 2.3(a) die Überlappung zwischen einem s - und einem p_x -Orbital, die in einem beliebigen Winkel θ zueinander orientiert sind. Das p_x -Orbital lässt sich so auf den Verbindungsvektor \mathbf{d} projizieren, dass sich die Überlappung als eine Linearkombination von einem $sp\sigma$ und einem, wegen unterschiedlicher Magnetquantenzahlen σ und π , verschwindenden Anteils ergibt. Die Faktoren $\cos \theta$ beziehungsweise $\sin \theta$ kommen von der Projektion des p_x -Orbitals auf den Verbindungsvektor \mathbf{d} beziehungsweise senkrecht dazu. In Abbildung 2.3(b) ist die Überlappung zwischen zwei p_x -Orbitalen gezeigt.

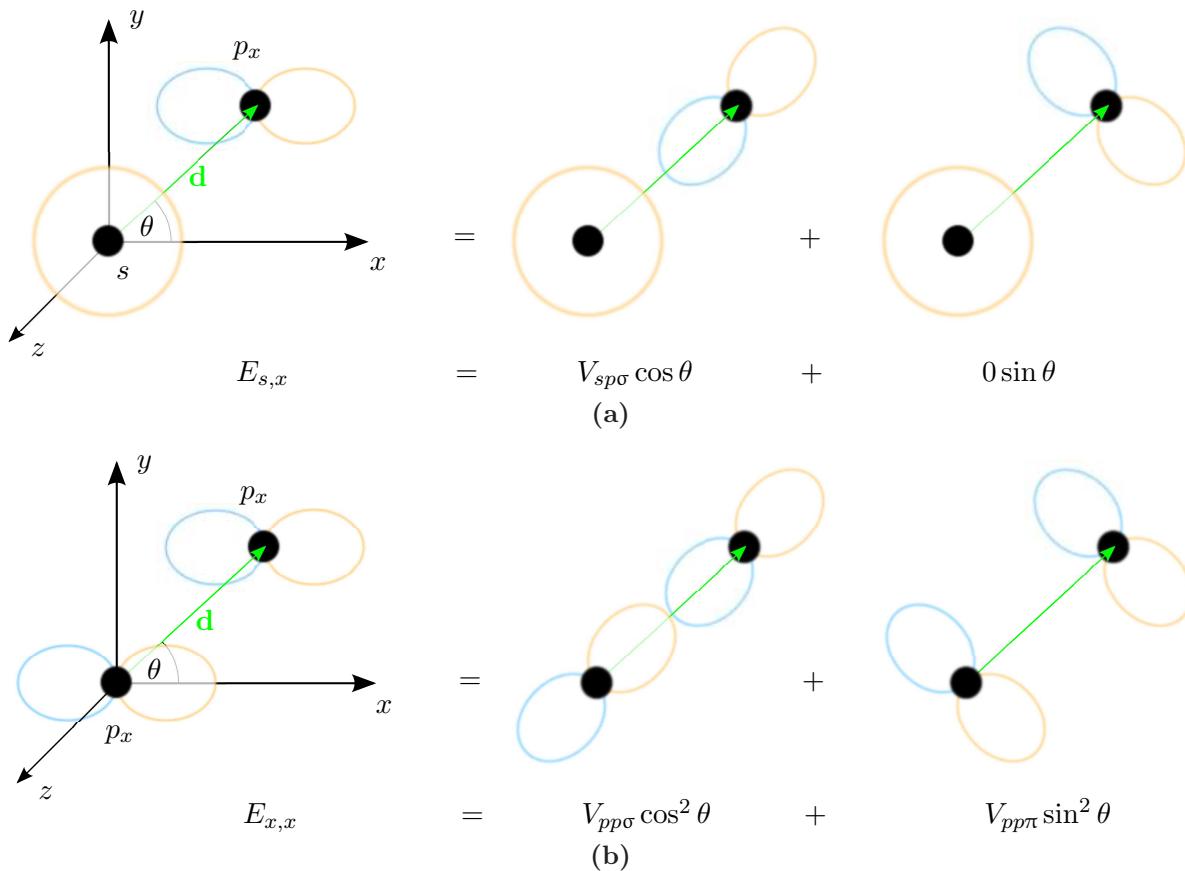


Abbildung 2.3: Zwei Beispiele für die Aufteilung einer Überlappung zwischen zwei beliebig zueinander orientierten Orbitalen auf zwei Überlappungen, bei denen die Orbitale parallel beziehungsweise senkrecht zum Verbindungsvektor \mathbf{d} orientiert sind. Die gelben und blauen Umrandungen deuten ein positives beziehungsweise negatives Vorzeichen der Wellenfunktion an. Die V entsprechen den Zweizentrenintegralen, die in Abbildung 2.2 gezeigt sind. Die $\cos \theta$ und $\sin \theta$ Terme ergeben sich aus der Projektion der Orbitale auf den Verbindungsvektor \mathbf{d} beziehungsweise senkrecht dazu. **(a)** Aufteilung einer Überlappung zwischen einem s - und einem p_x -Orbital, der sich als eine Linearkombination von einem $sp\sigma$ und einem, wegen unterschiedlicher Magnetquantenzahlen σ und π , verschwindenden Anteil ergibt. **(b)** Aufteilung einer Überlappung zwischen zwei p_x -Orbitalen in einen $pp\sigma$ - und einen $pp\pi$ -Anteil.

2.1 Tight-Binding-Methode für Bulk-Materialien

Mit Einführung der sogenannten *Richtungskosinusse* l , m und n (nicht zu verwechseln mit den Quantenzahlen) mit

$$\mathbf{d} = |\mathbf{d}| \begin{pmatrix} l \\ m \\ n \end{pmatrix} \quad (2.15)$$

lassen sich analog die Beziehungen in Tabelle 2.1 aufstellen. Dabei steht E für das Integral in Zweizentrennäherung zwischen den beiden im Index angegebenen Orbitalen. Der erste Index bezeichnet das Orbital im Ursprung und der zweite Index das Orbital, welches um den Vektor \mathbf{d} verschoben ist. Hierbei steht s für das s -Orbital und x, y, z bezeichnen die p_x -, p_y - und p_z -Orbitale. Die V geben die nicht-verschwindenden Zweizentrenintegrale zwischen den Orbitalen mit Magnetquantenzahlen σ und π an (siehe auch Abbildung 2.2). Eine vollständige Liste für alle s -, p - und d -Orbitale findet sich in [22, S. 1503].

$E_{s,s}$			$V_{ss\sigma}$		
$E_{s,x}$	$= -E_{x,s}$	l	$V_{sp\sigma}$		
$E_{s,y}$	$= -E_{y,s}$	m	$V_{sp\sigma}$		
$E_{s,z}$	$= -E_{z,s}$	n	$V_{sp\sigma}$		
$E_{x,x}$		l^2	$V_{pp\sigma}$	$+$	$(1 - l^2)$
$E_{y,y}$		m^2	$V_{pp\sigma}$	$+$	$(1 - m^2)$
$E_{z,z}$		n^2	$V_{pp\sigma}$	$+$	$(1 - n^2)$
$E_{x,y}$	$= E_{y,x}$	lm	$V_{pp\sigma}$	$-$	lm
$E_{x,z}$	$= E_{z,x}$	ln	$V_{pp\sigma}$	$-$	ln
$E_{y,z}$	$= E_{z,y}$	mn	$V_{pp\sigma}$	$-$	mn

Tabelle 2.1: Die in den Matrixelementen auftauchenden Integrale E ausgedrückt durch Zweizentrenintegrale V . Dabei steht s im Index von E für das s -Orbital und x, y und z bezeichnen die p_x -, p_y - und p_z -Orbitale. Der erste Index bezieht sich jeweils auf das Orbital im Ursprung und der zweite Index auf das um den Vektor $\mathbf{d} = |\mathbf{d}|(l, m, n)$ verschobene Orbital.

Abhängig von der Kristallgeometrie des Festkörpers reduziert sich so die Anzahl der nicht-verschwindenden Integrale nochmals. Diese Integrale V werden schließlich als konstante Fitparameter angenommen, die so gewählt werden, dass bekannte Eigenschaften der Bandstruktur, zum Beispiel Bandlücken und effektive Massen, reproduziert werden. Die Fitparameter V sind allerdings weiterhin vom Abstand $|\mathbf{d}|$ der betrachteten Atome abhängig, sodass für jeden neuen Abstand neue Parameter hinzukommen. Daher ist es gängig, sich auf nur nächste Nachbarn oder auch noch zweit- oder dritt næchste Nachbarn zu beschränken und weiter entfernte zu vernachlässigen.

Schließlich lässt sich zusätzlich durch Wahl eines passenden Satzes an Basisorbitalen das Modell weiter vereinfachen. Ist beispielsweise bekannt, dass bestimmte orbitale Energien nahe an den gesuchten Energiebändern liegen, bietet es sich an, andere zu vernachlässigen [22, S. 1502]. So tragen zum Beispiel bei Zinkblende-Halbleitern vor allem die s - und p -Orbitale zur Bindung bei, weshalb in dieser Arbeit durchgängig die Basisorbitale s , p_x , p_y und p_z sowie s^* , ein artifizielles Orbital mit s -artiger Symmetrie, das die Einflüsse höherer Orbitale zusammenfassend wiedergeben soll, verwendet werden (wie zum Beispiel auch in [7, 13, 26]).

2.1.5 Bandstrukturen für Festkörper mit Zinkblende-Kristallstruktur

Bei Materialien, die in der Zinkblende-Struktur (Abbildung 3.2) kristallisieren (zum Beispiel GaAs und AlAs), sind die vier nächsten Nachbarn jedes Anions vier Kationen und jedes Kations vier Anionen. Die Verbindungsvektoren lauten

$$\mathbf{R}_1 = \frac{a}{4} \begin{pmatrix} -1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix}, \quad \mathbf{R}_2 = \frac{a}{4} \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \\ 1 \end{pmatrix}, \quad \mathbf{R}_3 = \frac{a}{4} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ -1 \end{pmatrix}, \quad \mathbf{R}_4 = \frac{a}{4} \begin{pmatrix} -1 \\ -1 \\ 1 \end{pmatrix}, \quad (2.16)$$

wobei a die Gitterkonstante ist und auch andere Darstellungen der nächste Nachbarn Vektoren möglich sind [7, 13]. \mathbf{R}_1 und \mathbf{R}_2 sind in dieser Darstellung Anion-zu-Kation und \mathbf{R}_3 und \mathbf{R}_4 Kation-zu-Anion Vektoren. In der sp^3s^* -Basis werden an jedem Anion und jedem Kation je ein s -, p_x -, p_y -, p_z - und s^* - Orbital angenommen. Die zweiatomige Basis lautet also insgesamt

$$sA, \quad p_xA, \quad p_yA, \quad p_zA, \quad s^*A, \quad sC, \quad p_xC, \quad p_yC, \quad p_zC, \quad s^*C, \quad (2.17)$$

wobei sA ein s -Orbital am Anion, sC ein s -Orbital am Kation und so weiter meint. Zur Bestimmung der Bandstruktur muss also für jeden Wellenvektor \mathbf{k} eine Matrix vom Rang zehn diagonalisiert werden. Durch Einsetzen in Gleichung 2.13 können die einzelnen Matrixelemente bestimmt werden, sodass sich die folgende Hamiltonmatrix ergibt [26]

$$H = \begin{pmatrix} H_{AA} & H_{AC} \\ H_{CA} & H_{CC} \end{pmatrix}. \quad (2.18)$$

Dabei stehen in den Blöcken H_{AA} und H_{CC} die On-Site-Beiträge der Anionen beziehungsweise der Kationen und die Blöcke H_{AC} und H_{CA} beinhalten die Hopping-Terme für den Übergang vom Anion zum Kation und umgekehrt. Die Blöcke lauten im einzelnen

$$H_{AA} = \begin{pmatrix} E_{sA} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & E_{pA} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & E_{pA} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & E_{pA} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & E_{s^*A} \end{pmatrix}, H_{CC} = \begin{pmatrix} E_{sC} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & E_{pC} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & E_{pC} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & E_{pC} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & E_{s^*C} \end{pmatrix} \quad (2.19)$$

$$H_{AC} = \begin{pmatrix} V_{ss} \cdot g_0 & V_{sApC} \cdot g_1 & V_{sApC} \cdot g_2 & V_{sApC} \cdot g_3 & 0 \\ -V_{pAsC} \cdot g_1 & V_{xx} \cdot g_0 & V_{xy} \cdot g_3 & V_{xy} \cdot g_2 & -V_{pAs^*C} \cdot g_1 \\ -V_{pAsC} \cdot g_2 & V_{xy} \cdot g_3 & V_{xx} \cdot g_0 & V_{xy} \cdot g_1 & -V_{pAs^*C} \cdot g_2 \\ -V_{pAsC} \cdot g_3 & V_{xy} \cdot g_2 & V_{xy} \cdot g_1 & V_{xx} \cdot g_0 & -V_{pAs^*C} \cdot g_3 \\ 0 & V_{s^*ApC} \cdot g_1 & V_{s^*ApC} \cdot g_2 & V_{s^*ApC} \cdot g_3 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.20)$$

$$H_{CA} = \begin{pmatrix} V_{ss} \cdot g_0^* & -V_{pAsC} \cdot g_1^* & -V_{pAsC} \cdot g_2^* & -V_{pAsC} \cdot g_3^* & 0 \\ V_{sApC} \cdot g_1^* & V_{xx} \cdot g_0^* & V_{xy} \cdot g_3^* & V_{xy} \cdot g_2^* & V_{s^*ApC} \cdot g_1^* \\ V_{sApC} \cdot g_2^* & V_{xy} \cdot g_3^* & V_{xx} \cdot g_0^* & V_{xy} \cdot g_1^* & V_{s^*ApC} \cdot g_2^* \\ V_{sApC} \cdot g_3^* & V_{xy} \cdot g_2^* & V_{xy} \cdot g_1^* & V_{xx} \cdot g_0^* & V_{s^*ApC} \cdot g_3^* \\ 0 & -V_{pAs^*C} \cdot g_1^* & -V_{pAs^*C} \cdot g_2^* & -V_{pAs^*C} \cdot g_3^* & 0 \end{pmatrix}.$$

Eine sehr kleinschrittig durchgeföhrte beispielhafte Rechnung ist zum Beispiel in [10] zu finden. [7] zeigt ausführlich, wie welche Symmetrien genutzt wurden. E_{sA} gibt anschaulich den Energieerwartungswert des s -Orbitals am Anion an, V_{ss} die Übergangswahrscheinlichkeiten von einem s -Orbital am Anion zum s -Orbital am Kation und die anderen Ausdrücke die entsprechenden analogen Energieerwartungswerte und Übergangswahrscheinlichkeiten. Integrale zwischen s - und

s^* - beziehungsweise s^* - und s^* -Orbitalen sind als verschwindend angenommen. In der Literatur (zum Beispiel [26, 27]) finden sich meist Zahlenwerte für die hier auftauchenden Parameter. Ein Übergang zur den in Tabelle 2.1 gezeigte Parametern in Zweizentrennäherung erfolgt daher erst in Kapitel 2.2. Die gesamte \mathbf{k} -Abhängigkeit wird durch die Funktionen g_0, g_1, g_2 und g_3 beschrieben, die sich aus der Summation über die Exponentialfaktoren in Gleichung 2.10 ergeben. Sie lauten

$$\begin{aligned} g_0 &= \cos\left(k_x \frac{a}{4}\right) \cos\left(k_y \frac{a}{4}\right) \cos\left(k_z \frac{a}{4}\right) - i \cdot \sin\left(k_x \frac{a}{4}\right) \sin\left(k_y \frac{a}{4}\right) \sin\left(k_z \frac{a}{4}\right) \\ g_1 &= -\cos\left(k_x \frac{a}{4}\right) \sin\left(k_y \frac{a}{4}\right) \sin\left(k_z \frac{a}{4}\right) + i \cdot \sin\left(k_x \frac{a}{4}\right) \cos\left(k_y \frac{a}{4}\right) \cos\left(k_z \frac{a}{4}\right) \\ g_2 &= -\sin\left(k_x \frac{a}{4}\right) \cos\left(k_y \frac{a}{4}\right) \sin\left(k_z \frac{a}{4}\right) + i \cdot \cos\left(k_x \frac{a}{4}\right) \sin\left(k_y \frac{a}{4}\right) \cos\left(k_z \frac{a}{4}\right) \\ g_3 &= -\sin\left(k_x \frac{a}{4}\right) \sin\left(k_y \frac{a}{4}\right) \cos\left(k_z \frac{a}{4}\right) + i \cdot \cos\left(k_x \frac{a}{4}\right) \cos\left(k_y \frac{a}{4}\right) \sin\left(k_z \frac{a}{4}\right), \end{aligned} \quad (2.21)$$

wobei k_x, k_y und k_z die Komponenten des Wellenvektors \mathbf{k} sind. Bei Kenntnis der in den Matrixelementen auftauchenden Tight-Binding-Paramtern ergibt eine Bestimmung der Eigenwerte der Hamiltonmatrix 2.18 zehn Energieniveaus für jeden Wellenvektor \mathbf{k} und somit gerade die gesuchte Bandstruktur. Einige Hochsymmetriepunkte in der ersten Brillouin-Zone sind gegeben mit [28]

$$\Gamma: \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad L: \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix}, \quad X: \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad U: \begin{pmatrix} 1 \\ 1/4 \\ 1/4 \end{pmatrix}, \quad K: \begin{pmatrix} 0 \\ 3/4 \\ 3/4 \end{pmatrix}. \quad (2.22)$$

Die Berücksichtigung der Spin-Bahn-Wechselwirkung folgt in Kapitel 2.3.

2.2 Tight-Binding-Methode für Quantenpunkte

Bei einem Festkörperquantenpunkt kann keine uneingeschränkte Translationsinvarianz mehr gewährleistet werden. Gerade durch den gezielten Einschluss von andersartigen Atomen in einen Festkörper entsteht erst der Quantenpunkt. Die bereits beschriebene Vorgehensweise kann aber zu einem großen Teil übernommen werden. Lediglich die fehlende Translationsinvarianz muss zusätzlich berücksichtigt werden. Zunächst wird der Einfluss auf die Matrixelemente der Hamiltonmatrix beschrieben, bevor diskutiert wird, wie sich dies auf die On-Site- und Hopping-Matrizen im Konkreten auswirkt.

2.2.1 Matrixelemente

Beim Quantenpunkt liegt, zumindest global, keine Translationsinvarianz vor. Der Übergang in den reziproken Raum und auch die Verwendung des Wellenvektors \mathbf{k} ergibt keinen Sinn mehr. Das Tight-Binding-Modell lässt sich sinnvoller im Orts- beziehungsweise Realraum aufstellen. Dabei muss nun jedes einzelne Atom explizit berücksichtigt werden. Das erhöht den Rechenaufwand, im Vergleich zur Berechnung von Bulk-Materialien, deutlich.

Die Matrixelemente der Hamiltonmatrix im Ortsraum ergeben sich als Fourier-Rücktransformation der Matrixelemente 2.13 zu

$$H_{nm} = \int \varphi_n^*(\mathbf{r}) \hat{H} \varphi_m(\mathbf{r} - \mathbf{R}) d\mathbf{r}. \quad (2.23)$$

2 Theoretischer Hintergrund

Es kommen erneut zwei Arten von Einträgen vor, On-Site- und Hopping-Einträge [7]. Bei den On-Site-Einträgen liegen beide Orbitale am gleichen Atom und es gilt $\mathbf{R} = 0$, bei den Hopping-Beiträgen ist \mathbf{R} einer der vier nächsten Nachbarn Vektoren 2.16.

2.2.2 On-Site- und Hopping-Matrizen

Die Einträge in den On-Site-Matrizen ändern sich nicht. Die Hopping-Matrix, die einen Übergang vom Anion zum Kation beschreibt, lässt sich in der sp^3s^* -Basis jetzt allgemein als

$$H_{AC} = \frac{1}{4} \begin{pmatrix} V_{sAsC} & V_{sAp_xC} & V_{sAp_yC} & V_{sAp_zC} & V_{sAs^*C} \\ V_{p_xAsC} & V_{p_xAp_xC} & V_{p_xAp_yC} & V_{p_xAp_zC} & V_{p_xAs^*C} \\ V_{p_yAsC} & V_{p_yAp_xC} & V_{p_yAp_yC} & V_{p_yAp_zC} & V_{p_yAs^*C} \\ V_{p_zAsC} & V_{p_zAp_xC} & V_{p_zAp_yC} & V_{p_zAp_zC} & V_{p_zAs^*C} \\ V_{s^*AsC} & V_{s^*Ap_xC} & V_{s^*Ap_yC} & V_{s^*Ap_zC} & V_{s^*As^*C} \end{pmatrix} \quad (2.24)$$

schreiben, wobei der Faktor $1/4$ konventionsgemäß eingeführt wird und die Anzahl an nächsten Nachbarn widerspiegeln soll [7, 13, 26]. Der verbleibende Faktor 4 ist in den Tight-Binding-Parametern berücksichtigt. Die Matrixelemente sind abhängig vom Abstandsvektor \mathbf{R} und lauten hier

$$\frac{1}{4}V_{nAmC} = \int \varphi_n^*(\mathbf{0}) \hat{H} \varphi_m(\mathbf{R}) d\mathbf{r}, \quad (2.25)$$

wobei n beziehungsweise m das entsprechende Orbital am Anion beziehungsweise das Orbital am Kation im Abstand \mathbf{R} dazu bezeichnet. Im nächste-Nachbarn-Modell beschränkt sich \mathbf{R} auf die in Gleichung 2.16 gegebenen Anion-zu-Kation Vektoren \mathbf{R}_1 und \mathbf{R}_2 . In der sp^3s^* -Basis werden die Matrixelemente zwischen s - und s^* -Orbitalen und zwischen zwei s^* -Orbitalen als verschwindend angenommen [13, 26]. Nutzt man das Symmetrieverhalten der Orbitale, führt wie in Kapitel 2.1.4 Richtungskosinus ein und geht wie ebenda beschrieben zu Parametern in der σ - und π -Schreibweise in Zweizentrennäherung über (siehe Tabelle 2.1), lassen sich die Hopping Matrizen folgendermaßen schreiben

$$H_{AC} = \frac{1}{4} \begin{pmatrix} V_{ss\sigma} & lV_{sApC\sigma} & mV_{sApC\sigma} & nV_{sApC\sigma} & 0 \\ -lV_{pAsC\sigma} & l^2V_{pp\sigma} + (1-l^2)V_{pp\pi} & lmV_{pp\sigma} - lmV_{pp\pi} & lnV_{pp\sigma} - lnV_{pp\pi} & -lV_{pAs^*C\sigma} \\ -mV_{pAsC\sigma} & lmV_{pp\sigma} - lmV_{pp\pi} & m^2V_{pp\sigma} + (1-m^2)V_{pp\pi} & mnV_{pp\sigma} - mnV_{pp\pi} & -mV_{pAs^*C\sigma} \\ -nV_{pAsC\sigma} & lnV_{pp\sigma} - lnV_{pp\pi} & mnV_{pp\sigma} - mnV_{pp\pi} & n^2V_{pp\sigma} + (1-n^2)V_{pp\pi} & -nV_{pAs^*C\sigma} \\ 0 & lV_{s^*ApC\sigma} & mV_{s^*ApC\sigma} & nV_{s^*ApC\sigma} & 0 \end{pmatrix} \quad (2.26)$$

$$H_{CA} = \frac{1}{4} \begin{pmatrix} V_{ss\sigma} & lV_{pAsC\sigma} & mV_{pAsC\sigma} & nV_{pAsC\sigma} & 0 \\ -lV_{sApC\sigma} & l^2V_{pp\sigma} + (1-l^2)V_{pp\pi} & lmV_{pp\sigma} - lmV_{pp\pi} & lnV_{pp\sigma} - lnV_{pp\pi} & -lV_{sApC\sigma} \\ -mV_{sApC\sigma} & lmV_{pp\sigma} - lmV_{pp\pi} & m^2V_{pp\sigma} + (1-m^2)V_{pp\pi} & mnV_{pp\sigma} - mnV_{pp\pi} & -mV_{sApC\sigma} \\ -nV_{sApC\sigma} & lnV_{pp\sigma} - lnV_{pp\pi} & mnV_{pp\sigma} - mnV_{pp\pi} & m^2V_{pp\sigma} + (1-m^2)V_{pp\pi} & -nV_{sApC\sigma} \\ 0 & lV_{pAs^*C\sigma} & mV_{pAs^*C\sigma} & nV_{pAs^*C\sigma} & 0 \end{pmatrix}$$

$$\begin{pmatrix} nV_{pAsC\sigma} & 0 \\ lnV_{pp\sigma} - lnV_{pp\pi} & -lV_{s^*ApC\sigma} \\ mnV_{pp\sigma} - mnV_{pp\pi} & -mV_{s^*ApC\sigma} \\ n^2V_{pp\sigma} + (1-n^2)V_{pp\pi} & -nV_{s^*ApC\sigma} \\ nV_{pAs^*C\sigma} & 0 \end{pmatrix}.$$

Die Parameter in σ - und π -Schreibweise lassen sich, wie in Tabelle 2.1 angegeben, direkt aus den herkömmlichen Parametern bestimmen. Es gilt also

$$\begin{aligned} V_{ss\sigma} &= V_{ss} & V_{sApC\sigma} &= \sqrt{3}V_{sApC} \\ V_{pp\sigma} &= V_{xx} + 2V_{xy} & V_{s^*ApC\sigma} &= \sqrt{3}V_{s^*ApC} \\ V_{pp\pi} &= V_{xx} - V_{xy} & V_{pAsC\sigma} &= \sqrt{3}V_{pAsC} \\ & & V_{pAs^*C\sigma} &= \sqrt{3}V_{pAs^*C}. \end{aligned} \quad (2.27)$$

Eine genaue Darstellung der Rechenschritte findet sich in [7]. Bei N Atomen im Festkörper ergibt sich in der sp^3s^* -Basis also eine Matrix der Größe $5N \times 5N$. Auf der Diagonalen stehen jeweils die zum Atom gehörenden On-Site-Matrizen, die Nebendiagonalen tragen die Hopping-Blöcke H_{AC} beziehungsweise H_{CA} . Jedes Atom hat vier nächste Nachbaratome, weshalb es entsprechend vier Hopping-Blöcke pro Atom gibt. Die Matrix ist hermitesch und es gibt $5N$ reelle Eigenwerte. Eine bildliche Veranschaulichung findet sich in [7].

2.3 Spin-Bahn-Wechselwirkung

Um bestimmte Phänomene erfassen zu können, ist es erforderlich auch die Spin-Bahn-Wechselwirkung im Tight-Binding-Modell zu berücksichtigen. Wie dies praktisch möglich ist, wird im Folgenden beschrieben. Zunächst wird dabei der Einfluss der Spin-Bahn-Wechselwirkung auf die Bandstruktur aufgezeigt, bevor der erweiterte Hamiltonoperator eingeführt und der Einfluss auf die On-Site- und Hopping-Matrizen dargestellt wird. Dabei wird, wie in [7, 13–15], die von Chadi in [29] vorgestellte Möglichkeit verwendet. Der Vorteil besteht darin, dass sich die Basisgröße lediglich verdoppelt, da nun auch der Spin mit berücksichtigt werden muss.

Die Berücksichtigung der Spin-Bahn-Wechselwirkung führt zu einem veränderten Verlauf der Energiebänder in der Bandstruktur, insbesondere am Γ -Punkt [7]. Hier erfolgt eine Aufspaltung des energetisch höchsten Valenzbandes in *light-hole* und *heavy-hole* Band (benannt nach den effektiven Massen der Löcher) und eine energetische Verschiebung des darunter liegenden Bandes (*split-off band*) um ΔE_{SO} im Bereich einiger zehn bis hundert meV [13] (siehe Abbildung 2.4).

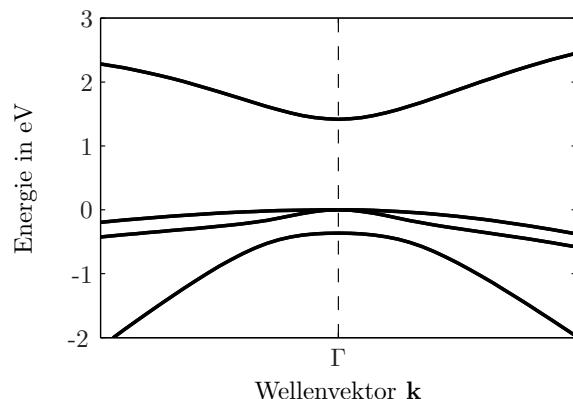


Abbildung 2.4: Energiebänder um die Bandlücke am Γ -Punkt für GaAs mit Berücksichtigung der Spin-Bahn-Wechselwirkung. Das oberste Band ist das energetisch niedrigste Leitungsband, dann folgen light-hole und heavy-hole Band, gefolgt vom um ΔE_{SO} niedriger liegenden split-off Band.

2 Theoretischer Hintergrund

Der zuvor eingeführte Hamiltonoperator 2.4 lässt sich nun um die Spin-Bahn-Wechselwirkung erweitern und lautet

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{\text{SO}}, \quad (2.28)$$

wobei mit \hat{H}_0 nun der Hamiltonoperator 2.4 bezeichnet ist und \hat{H}_{SO} den Einfluss der Spin-Bahn Wechselwirkung beschreibt:

$$\hat{H}_{\text{SO}} = \frac{1}{2m^2c^2} \frac{1}{r} \frac{\partial V_{\text{Atom}}}{\partial r} \mathbf{L} \cdot \mathbf{s}. \quad (2.29)$$

Hierbei sind \mathbf{L} und \mathbf{s} der Bahndrehimpuls- beziehungsweise Spinoperator, V_{Atom} das atomare Potential, m die Masse und r der Abstand des Elektrons vom Atom sowie c die Lichtgeschwindigkeit [13]. In den Matrixelementen der Hamiltonmatrix gilt es nun also einen zusätzlichen Beitrag zu berücksichtigen. Im vorliegenden Modell werden lediglich Wechselwirkungen zwischen p -Orbitalen am gleichen Atom berücksichtigt und alle anderen Matrixelemente verschwinden. Die Spin-Bahn-Wechselwirkung lässt sich somit auf einen einzigen Parameter λ mit

$$\lambda = \left\langle p_x \left| \frac{\hbar^2}{4m^2c^2} \frac{1}{r} \frac{\partial V_{\text{Atom}}}{\partial r} \right| p_x \right\rangle \quad (2.30)$$

zurückführen, der als zusätzlicher konstanter Fitparameter benutzt wird [13, 14]. Dabei kürzt die Bra-Ket-Schreibweise die Integrale bei den Matrixelementen im bisher verwendeten Sinne ab. Die einzigen nicht-verschwindenden Matrixelemente sind diejenigen zwischen p -Orbitalen an Atomen der gleichen Sorte (Anion oder Kation) und lauten

$$\begin{aligned} \left\langle \pm p_x \left| \hat{H}_{\text{SO}} \right| p_z \mp \right\rangle &= \pm \lambda \\ \left\langle \pm p_x \left| \hat{H}_{\text{SO}} \right| p_y \pm \right\rangle &= \mp i\lambda \\ \left\langle \pm p_y \left| \hat{H}_{\text{SO}} \right| p_z \mp \right\rangle &= -i\lambda \end{aligned} \quad (2.31)$$

sowie die komplex Konjugierten hiervon. Hier bezeichnet $+$ beziehungsweise $-$ Spin up (\uparrow) beziehungsweise Spin down (\downarrow) [7, 13, 14]. In der nun um den Spin erweiterten Basis

$$\begin{aligned} sA \uparrow, \quad p_x A \uparrow, \quad p_y A \uparrow, \quad p_z A \uparrow, \quad s^* A \uparrow, \quad sA \downarrow, \quad p_x A \downarrow, \quad p_y A \downarrow, \quad p_z A \downarrow, \quad s^* A \downarrow, \\ sC \uparrow, \quad p_x C \uparrow, \quad p_y C \uparrow, \quad p_z C \uparrow, \quad s^* C \uparrow, \quad sC \downarrow, \quad p_x C \downarrow, \quad p_y C \downarrow, \quad p_z C \downarrow, \quad s^* C \downarrow \end{aligned} \quad (2.32)$$

verdoppeln sich die Größen der On-Site- sowie Hopping-Matrizen. Die On-Site-Matrizen für Anionen und Kationen enthalten nun auch die zusätzlichen Terme durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung und lauten jeweils

$$H_{\text{AA(CC)}} = \begin{pmatrix} E_s & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & E_p & -i\lambda & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \lambda & 0 \\ 0 & i\lambda & E_p & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -i\lambda & 0 \\ 0 & 0 & 0 & E_p & 0 & 0 & -\lambda & i\lambda & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & E_{s^*} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & E_s & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -\lambda & 0 & 0 & E_p & i\lambda & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -i\lambda & 0 & 0 & -i\lambda & E_p & 0 & 0 \\ 0 & \lambda & i\lambda & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & E_p & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & E_{s^*} \end{pmatrix}, \quad (2.33)$$

wobei jeder Parameter noch einen Index A beziehungsweise C trägt (der nicht mitgeschrieben ist) je nach dem, ob es sich um die On-Site-Matrix für ein Anion H_{AA} oder Kation H_{CC} handelt. Die Spin-Bahn-Wechselwirkung lässt die Hopping-Matrizen unverändert, lediglich die größere Basis muss berücksichtigt werden, weshalb aus der 5×5 Matrix eine 10×10 Matrix wird

$$H_{\text{AC(CA)}}^{\text{SO}} = \begin{pmatrix} H_{\text{AC(CA)}} & \mathbf{0}_{5 \times 5} \\ \mathbf{0}_{5 \times 5} & H_{\text{AC(CA)}} \end{pmatrix}. \quad (2.34)$$

$H_{\text{AC(CA)}}$ ist dabei die Hopping-Matrix für einen Übergang von Anion zu Kation beziehungsweise von Kation zu Anion, wie in Gleichung 2.26 und $\mathbf{0}_{5 \times 5}$ eine 5×5 Nullmatrix. Analog verhalten sich auch die Matrizen 2.19 und 2.20 für Bulk-Materialien. Dort gibt es mit Berücksichtigung der Spin-Bahn Wechselwirkung nun 20 Energiebänder.

2.4 Herstellung von GaAs/AlGaAs-Quantenpunkten

Zuletzt wird erläutert, wie GaAs/AlGaAs-Quantenpunkte experimentell hergestellt werden können. Wie in der Einleitung bereits angedeutet, konnten in letzter Zeit immer bessere, das heißt in der Größe und Form genauer einstellbare GaAs-Quantenpunkte in AlGaAs-Barrierenmaterial hergestellt werden [8]. Dabei wird zunächst mittels Molekularstrahlepitaxie eine Schicht einer AlGaAs-Legierung, zum Beispiel $\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$, auf ein GaAs(001)-Substrat aufgetragen. Dann folgt das so genannte *local droplet etching*, bei dem mithilfe kleiner Tropfen von zum Beispiel Gallium oder Aluminium kegelförmige Löcher in die $\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$ -Oberfläche geätzt werden. Dieses Verfahren wurde 2007 von Wang et al. in [30] vorgestellt, eignet sich auch für andere Materialien und ist in Abbildung 2.5 anhand eines Ga-Tropfens auf einer GaAs-Oberfläche veranschaulicht. Dabei kann der Prozess in der gleichen Kammer stattfinden, in der auch die Molekularstrahlepitaxie durchgeführt wird [31]. Ein Ga-Tropfen auf einer GaAs-Oberfläche veranlasst As-Atome aus der GaAs-Oberfläche in den Ga-Tropfen zu wandern. Von dort diffundieren die As-Atome in das Vakuum der Kammer oder bilden am Rand des Ga-Tropfens GaAs ((a) und (b)). Der Ga-Tropfen bohrt sich so immer tiefer in das GaAs hinein, bis schließlich ein etwa kegelförmiges Loch (*nanohole*) zurückbleibt ((c)).

Dieses Verfahren kann auf unterschiedlichen Oberflächen zum Beispiel GaAs, AlAs, AlGaAs und mit verschiedenen Tropfen zum Beispiel Ga, Al, GaAl, In oder InGa durchgeführt werden (siehe [31]). Für die in dieser Arbeit interessanten GaAs in AlGaAs-Quantenpunkte findet das Ätzen mit Al-Tropfen statt. Das entstehende Loch wird schließlich mit einer variablen Men-

2 Theoretischer Hintergrund

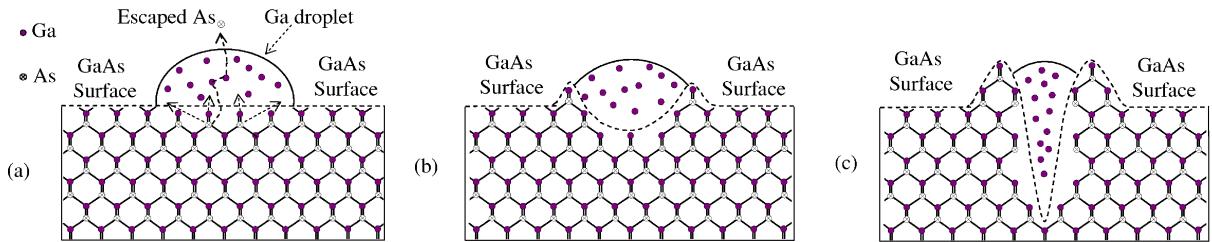


Abbildung 2.5: Generelles Funktionionsprinzip beim local droplet etching. Gezeigt ist eine GaAs-Oberfläche mit einem Ga-Tropfen. As-Atome gehen in den Ga-Tropfen über und verschwinden in das Vakuum der Kammer (a). Zudem können die As-Atome am Rand des Ga-Tropfens erneut zu GaAs werden (b). Schließlich bohrt sich der Ga-Tropfen in die GaAs-Oberfläche und hinterlässt ein etwa kegelförmiges Loch (c). Abbildung aus [30].

ge GaAs gefüllt, und mit einer weiteren Schicht AlGaAs überwachsen. Je nach Füllmenge und Geometrie des Lochs können so unterschiedliche Quantenpunktgeometrien realisiert werden. Abbildung 2.6 zeigt den Unterschied zwischen vollständig ((c)) und unvollständig ((d)) gefüllten Löchern. (a) und (b) zeigen rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen von AlGaAs-Oberflächen nach dem local droplet etching mit Al- beziehungsweise Ga-Tropfen. Der Pfeil in (a) markiert ein flaches Loch, das vollständig gefüllt werden kann. Größere Löcher bleiben unvollständig gefüllt ((d)). Abhängig davon, ob vollständig oder unvollständig gefüllt, liegt auch eine Art direkt am Quantenpunkt liegender Wetting-Layer vor, oder nicht. Dieser muss später bei der Simulation angemessen berücksichtigt werden. In dieser Arbeit wird von vollständig gefüllten Löchern ausgegangen.

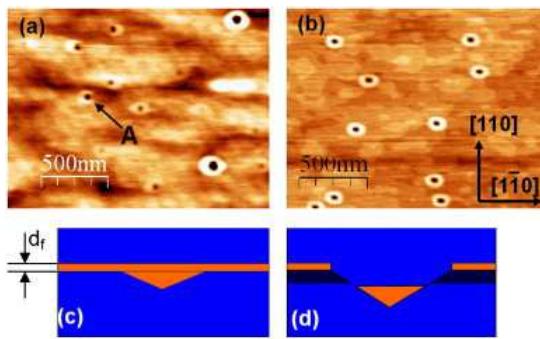


Abbildung 2.6: Rasterkraftmikroskopische Aufnahmen einer AlGaAs-Oberfläche nach local droplet etching mit Al-Tropfen (a) und Ga-Tropfen (b). Mit dem Pfeil A ist ein flaches Loch gekennzeichnet. (c) zeigt den schematischen Querschnitt durch ein vollständig gefülltes (flaches) Loch. Eine Wetting-Layer-artige Schicht der Dicke d_f schließt sich an den Quantenpunkt an. (d) zeigt ein nur unvollständig gefülltes (tiefes) Loch. Der Quantenpunkt grenzt nicht an die Wetting-Layer-artige Schicht. Abbildung aus [31].

Durch Änderung an den Systemparametern beim Wachstum können unterschiedliche Quantenpunkte, eher unregelmäßig bis fast perfekt kegelförmig, realisiert werden [8]. Durch die Menge an GaAs kann die Höhe und somit das Volumen des Quantenpunkts variiert werden [9]. Verhältnisse von Höhen h zu Durchmessern d des Quantenpunktes liegen im Bereich von etwa $h/d = 0,10 \dots 0,16$ [9]. Bei Lochhöhen von etwa $h = 2 \dots 9$ nm [8] sind zumindest prinzipiell Quantenpunkttdurchmesser im Bereich von etwa $d = 10 \dots 90$ nm möglich. Ein großer Vorteil bei den so gewachsenen GaAs/AlGaAs-Quantenpunkten ist, dass sie, im Vergleich zu selbstorganisierten Quantenpunkten, nahezu verspannungsfrei sind [2]. Entsprechend entfällt in dieser Arbeit eine Berücksichtigung von Verspannungseffekten.

3 Modellierung von Quantenpunkten

In den folgenden Kapiteln wird das konkrete Vorgehen zum Modellieren eines Quantenpunktes beschrieben, wie es für diese Arbeit geschehen ist. Dabei wird, im Stile eines *How-To's*, gezeigt, wie die programmiertechnische Umsetzung erfolgt ist, wo dabei die Grenzen sind und wie diese in Zukunft überwunden werden können. In Kapitel 3.1 wird zunächst das generelle Vorgehen beschrieben und ein detaillierter Überblick über die nachfolgenden Kapitel 3.2 bis 3.4 gegeben, in denen dann konkret dargelegt wird, wie der Aufbau der Superzelle und der Tight-Binding-Matrix erfolgte, wie die Eigenwerte und -vektoren bestimmt und die gewonnenen Daten weiterverarbeitet wurden.

Die Programmierung erfolgte in *Fortran*, wobei insbesondere die Programmmpakete *PETSc* (Portable, Extensible Toolkit for Scientific Computation) und zur Bestimmung der Eigenwerte *SLEPc* (Scalable Library for Eigenvalue Problem Computations) verwendet wurden. Die Berechnungen wurden auf Rechnern des *HLRN* (Norddeutscher Verbund für Hoch- und Höchstleistungsrechner) durchgeführt. Die Auswertung der Daten erfolgte in *Matlab*.

3.1 Generelles Vorgehen

Wie in Kapitel 2.2 beschrieben, muss beim Modellieren eines Festkörperquantenpunktes via Tight-Binding jedes einzelne Atom explizit in der Tight-Binding-Matrix berücksichtigt werden. Für die größten in dieser Arbeit untersuchten Systeme (siehe Kapitel 4.2) liegt die Zahl der Atome bei etwa $7 \cdot 10^6$. Die entsprechende Tight-Binding-Matrix ist vom Rang $7 \cdot 10^7$. Bei 198 zum Teil komplexwertigen, nicht-verschwindenden Matrixelementen pro Atom (22 On-Site und 176 Hopping) werden allein für die Speicherung der Werte über 22 GB an Arbeitsspeicher benötigt. Hinzu kommt, dass eine Diagonalisierung einer solch großen Matrix kaum in annehmbarer Zeit von einem einzelnen Rechner bewerkstelligt werden kann. Entsprechend ist eine Parallelisierung der Berechnungen zwingend erforderlich.

Das generelle Vorgehen zur Simulation eines Quantenpunktes ist in Abbildung 3.1 zusammengefasst. Aus den Eingabedateien werden die benötigten Informationen über die Geometrie und die Atomsorten der Superzelle, des Quantenpunktes und des Wetting-Layers (Näheres in Kapitel 3.2) sowie Parameter für die Lösung des Eigenwertproblems (siehe Kapitel 3.4) eingelesen. Im ersten Block **Superzelle** folgt die Erstellung der Superzelle. Nachdem jedem Atom ein eindeutiger Index zugeordnet wurde, folgt die Bestimmung der Koordinaten. Anschließend werden die Atomsorten, je nach gewünschter Quantenpunktgeometrie und nach gewünschtem Material festgelegt und die Kopplungen, also die Indizes der nächsten Nachbarn eines jeden Atoms, berechnet. Zudem erhält jedes Atom eine weitere Eigenschaft *Typ*. Gebündelt zur Informationseinheit *Atom* werden die gesamten Informationen über die Superzelle abgespeichert (um Rechnungen für die exakt gleiche Superzelle mehrfach durchführen zu können) und an den zweiten Block **TB-Matrix** zum Aufbau der Tight-Binding-Matrix weitergereicht. Dort erfolgt, auf Grundlage der Informationen in *Atom*, die Speicherallokierung der Tight-Binding-Matrix über mehrere Prozessoren und das Setzen der On-Site- sowie Hopping-Einträge. Die Tight-Binding-Parameter werden dabei, passend zu den Atomsorten, aus einer separaten Datei geladen. Dies ermöglicht die unkomplizierte Erweiterung des Programms um neue Atomsorten. Schließlich wird die par-

3 Modellierung von Quantenpunkten

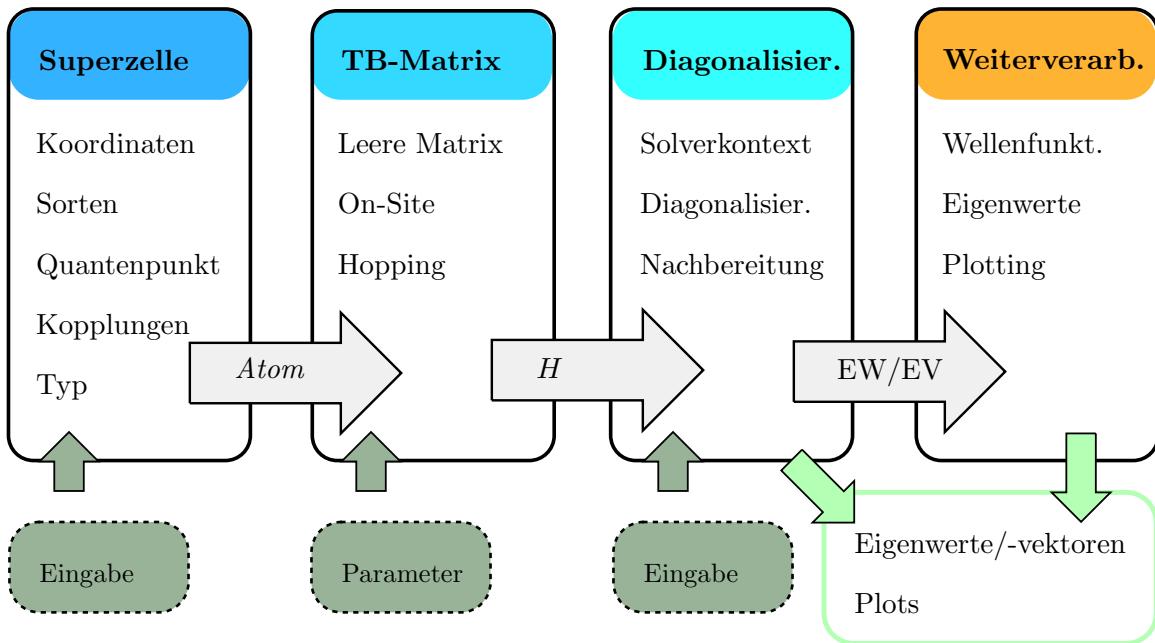


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung des generellen Ablaufs des Tight-Binding-Programms. Die großen Kästen zeigen die vom Programm durchzuführenden Schritte, geordnet in die vier Blöcke **Superzelle**, **TB-Matrix**, **Diagonalisierung** und **Weiterverarbeitung**. Die grau hinterlegten Pfeile zeigen, welche Informationen von einem Block zum nächsten übergeben werden. Die gestrichelten Kästen geben an, welche Informationen vom Programm aus externen Dateien geladen werden. Der Kasten unten rechts zeigt schließlich die gewünschten Endresultate, die in entsprechende Dateien geschrieben werden.

allel aufgebaute Tight-Binding-Matrix dem Solver übergeben und die Eigenwerte und -vektoren bestimmt (dritter Block **Diagonalisierung**). Nach einer Nachbereitung der Daten werden diese abgespeichert. Bei Bedarf können daraus schließlich Abbildungen erstellt oder weitere Analysen durchgeführt werden (vierter Block **Weiterverarbeitung**).

3.2 Aufbau der Superzelle

Auf Grundlage einer Eingabedatei, zum Beispiel `eingabe.inp`, werden grundlegenden Informationen über die Superzelle und Quantenpunktgeometrie eingelesen. Diese sind

- Größe der Superzelle `E_x`, `E_y`, `E_z` in der Einheit Elementarzelle,
- Atomsorten der Kationen in der Superzelle, zum Beispiel '`Ga`', '`In`', '`Al`', etc. samt prozentualen Anteil (für Legierungen),
- Quantenpunktgeometrie, zum Beispiel '`quader`', '`kegel`', etc.,
- Größe des Quantenpunktes `QD_x`, `QD_y`, `QD_z` in der Einheit Elementarzelle,
- Atomsorten der Kationen des Quantenpunktes, zum Beispiel '`Ga`', '`In`', '`Al`', etc. samt prozentualen Anteil,
- Atomsorte und Anzahl der Monolagen des Wetting-Layers.

Bereits aus diesen Informationen kann die Gesamtanzahl der Atome N in der Superzelle nach

$$N = 8E_x E_y E_z \quad (3.1)$$

bestimmt werden und eine Nummerierung der Atome erfolgen. Dies geschieht, wie in [7, 13], unten links vorne in der Superzelle beginnend mit $i = 1$ und dann größer werdend zunächst in Richtung x , dann y und schließlich z (siehe Abbildung 3.2). Die Indizes werden nicht explizit gespeichert, sondern dienen nur der eindeutigen Zuordnung der Atominformationen, wie Koordinaten oder Sorte, zu einem bestimmten Atom.

Der Aufbau der Superzelle erfolgt seriell, wird also nur von einem Prozessor durchgeführt und die Informationen anschließend an alle anderen Prozessoren verteilt. Hier liegt auch der „Flaschenhals“ der Berechnungen. Nur Superzellen, die vollständig in den Arbeitsspeicher eines Prozessors passen, können mit dem hier vorgestellten Programm simuliert werden. Das sind, bei Berechnungen auf Rechnern des HLRN, Quantenpunkte im Durchmesser von maximal etwa 60 nm. Eine Möglichkeit, das Programm auch für Quantenpunkte mit theoretisch unbegrenzter Größe lauffähig zu machen, wäre die Aufteilung der nachfolgenden Schritte auf alle beteiligten Prozessoren.

3.2.1 Atomkoordinaten, Sorten und Typ

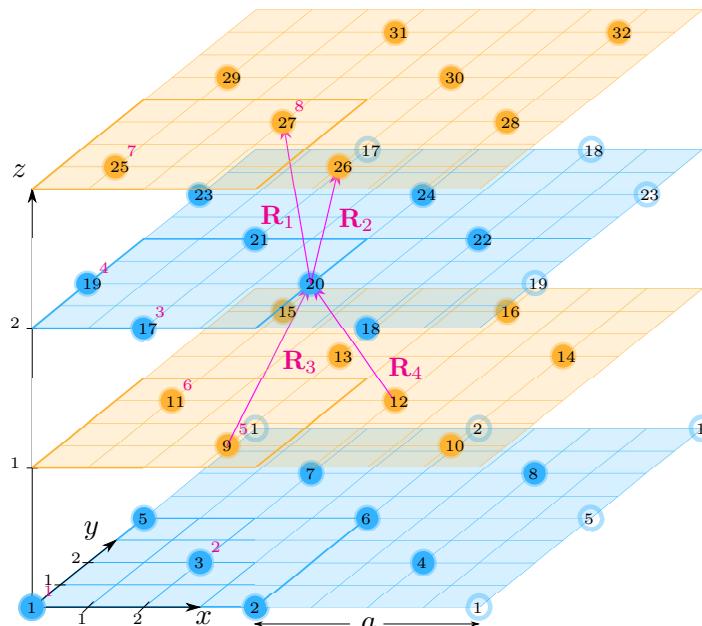


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung der ersten vier Ebenen einer $2 \times 2 \times 2$ Superzelle. Anionen (zum Beispiel As) sind blau und Kationen (zum Beispiel Ga oder Al) gelb dargestellt. Die nicht ausgefüllten Atome deuten an, dass hier die periodischen Randbedingungen zum Tragen kommen. Die Vektoren in magenta sind die Nächsten Nachbarn Vektoren (siehe Kapitel 2.1.5). Die Zahlen in den Atomen demonstrieren die Art der Nummerierung der Atome. Die Zahlen in magenta geben den Typ des Atoms an. Die etwas dicker gezeichneten Umrandungen in den einzelnen Ebenen zeigen die Grenze einer einzelnen Elementarzelle.

Aus den Koordinaten und Sorten der Atome in einer einzigen Elementarzelle können die Koordinaten und Sorten aller anderen Atome in der gesamten Superzelle generiert werden. Dazu reicht die Information über die Anzahl der Elementarzellen pro Raumrichtung E_x , E_y und E_z . Zudem erweist es sich als sinnvoll, jedem Atom ein weiteres Attribut *Typ* zuzuweisen, aus dem sich später die Indizes der nächsten Nachbarn sowie die Richtungskosinus direkt ergeben. Typ 1 bis Typ 4 beschreibt Anionen und Typ 5 bis Typ 8 Kationen. Die Zuordnung des Typs ist in Abbildung 3.2 veranschaulicht. Die Koordinaten x_{EZ} , y_{EZ} , z_{EZ} , Sorten s_{EZ} und Typen t_{EZ} der acht Atome in einer einzelnen Elementarzelle reinen GaAs lauten entsprechend der oben eingeführten Nummerierungsvorschrift

3 Modellierung von Quantenpunkten

```
x_EZ = [0 2 3 1 2 0 1 3]
y_EZ = [0 2 1 3 0 2 1 3]
z_EZ = [0 0 1 1 2 2 3 3]
s_EZ = [As As Ga Ga As As Ga Ga]
t_EZ = [1 2 5 6 3 4 7 8]
```

Die Koordinaten aller anderen Atome ergeben sich dann jeweils entsprechend der nachfolgenden dreischrittigen Vorschrift. Angegeben ist zusätzlich ein Beispiel für eine $2 \times 2 \times 2$ Superzelle.

- x -Koordinaten:

1. Dupliziere jeden Eintrag in x_{EZ} genau E_x mal. Addiere dabei bei jedem Duplikat elementweise Vielfache von Vier (weil Breite einer Elementarzelle in x -Richtung), also $0, 4, 8, \dots, 4(E_x - 1)$.
2. Dupliziere im Resultat jeden Block der Größe $2E_x$ genau E_y mal.
3. Dupliziere das Resultat genau E_z mal.

```
[0 2 3 1 2 0 1 3]
-> [0 4 2 6 3 7 1 5 2 6 0 4 1 5 3 7]
-> [0 4 2 6 0 4 2 6 3 7 1 5 3 7 1 5 2 6 0 4 2 6 0 4 1 5 3 7 1 5 3 7]
-> [0 4 2 6 0 4 2 6 3 7 1 5 3 7 1 5 2 6 0 4 2 6 0 4 1 5 3 7 1 5 3 7
    0 4 2 6 0 4 2 6 3 7 1 5 3 7 1 5 2 6 0 4 2 6 0 4 1 5 3 7 1 5 3 7]
```

- y -Koordinaten:

1. Dupliziere jeden Eintrag in y_{EZ} genau E_x mal.
2. Dupliziere jeden Block der Größe $2E_x$ genau E_y mal. Addiere dabei jedem $2E_x$ großen Duplikat blockweise jeweils Vielfache von Vier (weil Breite einer Elementarzelle in y -Richtung), also $0, 4, 8, \dots, 4 \cdot (E_y - 1)$.
3. Dupliziere das Resultat genau E_z mal.

```
[0 2 1 3 0 2 1 3]
-> [0 0 2 2 1 1 3 3 0 0 2 2 1 1 3 3]
-> [0 0 2 2 4 4 6 6 1 1 3 3 5 5 7 7 0 0 2 2 4 4 6 6 1 1 3 3 5 5 7 7]
-> [0 0 2 2 4 4 6 6 1 1 3 3 5 5 7 7 0 0 2 2 4 4 6 6 1 1 3 3 5 5 7 7
    0 0 2 2 4 4 6 6 1 1 3 3 5 5 7 7 0 0 2 2 4 4 6 6 1 1 3 3 5 5 7 7]
```

- z -Koordinaten:

1. Dupliziere jeden Eintrag in z_{EZ} genau E_x mal.
2. Dupliziere jeden Block der Größe $2E_x$ genau E_y mal.
3. Dupliziere das Resultat genau E_z mal. Addiere dabei jedem duplizierten Block blockweise jeweils Vielfache von Vier (weil Höhe einer Elementarzelle in z -Richtung), also $0, 4, 8, \dots, 4 \cdot (E_z - 1)$

```
[0 0 1 1 2 2 3 3]
-> [0 0 0 0 1 1 1 2 2 2 2 3 3 3 3]
-> [0 0 0 0 0 0 0 1 1 1 1 1 1 2 2 2 2 2 2 3 3 3 3 3 3]
```

```
-> [0 0 0 0 0 0 0 1 1 1 1 1 1 1 1 1 2 2 2 2 2 2 2 2 3 3 3 3 3 3 3 3 3
    4 4 4 4 4 4 4 4 5 5 5 5 5 5 5 6 6 6 6 6 6 6 6 6 7 7 7 7 7 7 7 7]
```

- Sorte und Typ: Wie x -Koordinaten, lediglich ohne Addition.

```
[As As Ga Ga As As Ga Ga]
-> [As As As As As As As Ga Ga Ga Ga Ga Ga Ga
      As As As As As As As Ga Ga Ga Ga Ga Ga Ga
      As As As As As As Ga Ga Ga Ga Ga Ga Ga
      As As As As As As Ga Ga Ga Ga Ga Ga Ga]

[1 2 5 6 3 4 7 8]
-> [1 1 1 1 2 2 2 2 5 5 5 5 6 6 6 6 3 3 3 3 4 4 4 4 7 7 7 7 8 8 8 8
    1 1 1 1 2 2 2 2 5 5 5 5 6 6 6 6 3 3 3 3 4 4 4 4 7 7 7 7 8 8 8 8]
```

Nach Durchführung der beschriebenen Schritte, liegen bereits alle benötigten Informationen zum Aufstellen der Tight-Binding-Matrix für eine $2 \times 2 \times 2$ Superzelle aus reinem GaAs beziehungsweise für entsprechend größere Superzellen vor.

Superzellen aus ternären Legierungen

Sollen Superzellen aus nicht nur reinem Material sondern auch aus Legierungen (zum Beispiel AlGaAs) realisiert werden, muss ein Austausch eines bestimmten prozentualen Anteils der Atomsorten erfolgen. Dies erfolgt nach folgendem Schema. Beispielsweise wird dies anhand einer $2 \times 2 \times 2$ Superzelle aus $\text{Al}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ dargestellt. Zufällig ausgewählte 50% der Ga-Atome werden durch Al-Atome ersetzt.

1. Finde Indizes aller Atome der potentiell zu ersetzenen Sorte (Indizes aller Ga-Atome).
2. Erzeuge genügend viele ganzzahlige Zufallszahlen, die im Bereich zwischen 1 und N liegen und den Indizes der potentiell zu ersetzenen Atomen entsprechen (Zufallszahlen in den Bereichen 9 bis 16, 25 bis 32, 41 bis 48 und 57 bis 64).
3. Wähle eine entsprechende Anzahl Zufallszahlen aus (16 nicht doppelte Zufallszahlen).
4. Ersetze Sorte der Atome mit den zufällig ausgewählten Indizes durch neue Sorte.

Das Vorgehen lässt sich prinzipiell auch erweitern, um auch quaternäre Materialien beschreiben zu können.

Einbindung des Quantenpunktes und des Wetting-Layers

Schließlich muss noch der Quantenpunkt selbst und der Wetting-Layer gesetzt werden. Dies geschieht wieder durch einen geeigneten Austausch der Atomsorten, der nun die Geometrie des Quantenpunktes widerspiegeln muss. Als Beispiel dient ein kegelförmiger GaAs-Quantenpunkt in AlGaAs-Barierenmaterial.

1. Finde Indizes aller Atome der potentiell zu ersetzenen Sorten (Indizes aller Ga- und Al-Atome).

3 Modellierung von Quantenpunkten

2. Finde Indizes aller Atome, die innerhalb des Quantenpunktes liegen (siehe unten).
3. Ersetze Sorte der Atome, die innerhalb des Quantenpunktes liegen und von der zu ersetzenen Sorte sind (Ersetze alle Ga- und Al-Atome im Quantenpunkt zu Ga).

Dabei müssen die Indizes der zum Quantenpunkt gehörigen Atome noch entsprechend der gewünschten Quantenpunktgeometrie bestimmt werden. Das Vorgehen wird anhand eines (auf der Spitze stehenden) kegelförmigen Quantenpunktes demonstriert. Es sind aber auch andere Geometrien implementierbar. Sei d der Durchmesser und h die Höhe des kegelförmigen Quantenpunktes in der Einheit $a/4$, dann sind alle Atome der Superzelle mit z -Koordinaten zwischen z_{\min} und z_{\max} zunächst potentielle Quantenpunktatome. Dabei ist

$$\begin{aligned} z_{\min} &= z_{\text{mitte}} - h/2 \\ z_{\max} &= z_{\text{mitte}} + h/2 \\ z_{\text{mitte}} &= (\max z - \min z)/2, \end{aligned} \quad (3.2)$$

wobei z_{mitte} die exakte Mitte der Superzelle angibt. $\min z$ und $\max z$ sind die kleinste beziehungsweise größte vorkommende z -Koordinate aller Atome in der Superzelle. Ferner muss der Abstand w eines Quantenpunktatoms zur Mitte der Superzelle in jeder Ebene mit $z = \text{const}$

$$w = \sqrt{(x - x_{\text{mitte}})^2 + (y - y_{\text{mitte}})^2} \quad (3.3)$$

kleiner sein, als der halbe von z abhängige Durchmesser $D(z)$ des Kegels in dieser $z = \text{const}$ Ebene

$$D(z) = (z - z_{\min}) \frac{d}{2h}. \quad (3.4)$$

Gilt also $w < D(z)/2$ für das entsprechende z des betrachteten Atoms, ist dieses ein potentielles Quantenpunktatom. Die Mitten x_{mitte} und y_{mitte} sind analog zu z_{mitte} die exakten Mitten der Superzelle. Eine Rundung (wie in [13]) auf ganze Zahlen entfällt hierbei. Atome, die beide oben genannten Bedingungen erfüllen und von einer zu ersetzenen Sorte sind, werden schließlich durch die Quantenpunktsorte ersetzt. Der Wetting-Layer wird eingebunden, indem, ausgehend von z_{\max} , die Atome in den Monolagen darüber betrachtet werden. Sind sie von einer zu ersetzenen Sorte, werden sie durch die neue Wetting-Layer Atomsorte ersetzt.

Prinzipiell können auch beim Quantenpunktmaterial ternäre und quaternäre Legierungen realisiert werden, indem das oben beschriebene Verfahren zum Ersetzen eines bestimmten Anteils der Sorten der Atome lediglich auf die Quantenpunktatome beschränkt, angewandt wird.

3.2.2 Nächste-Nachbar-Kopplungen

Wie in Kapitel 2.1.5 beschrieben, hat bei Berücksichtigung von nur nächsten Nachbarn jedes Atom in der Superzelle vier Nachbaratome. Diese können zum Beispiel durch Vergleich der Koordinaten zweier Atome herausgefunden werden (wie in [7, 13]). Bei der Vielzahl an Atomen für große Quantenpunktsysteme ist dieses Vorgehen jedoch kaum mit annehmbarer Rechenzeit umsetzbar. Dies ist aber auch nicht notwendig, da zu jedem Atom mit dem Index i die Indizes der Nachbaratome j , k , l und m analytisch bekannt sind. Sie ergeben sich lediglich aus der Kenntnis über die Abmessungen der Superzelle E_x , E_y und E_z und den Typ des Atoms. Die analytischen Ausdrücke für die Indizes der Nachbaratome zu jedem Atom mit entsprechendem Typ 1 bis 8 sind in Tabelle 3.1 gegeben. NN1 und NN2 bezeichnen die Nachbarn in der über dem Atom i liegenden z -Ebene, NN3 und NN4 die Nachbarn in der unteren z -Ebene. Analog

zur Nummerierungsvorschrift ist NN1 beziehungsweise NN3 immer derjenige Nachbar der weiter links vorne und NN2 beziehungsweise NN4 derjenige der weiter rechts hinten liegt.

Tabelle 3.1: Indizes j , k , l und m der vier nächsten Nachbaratome NN1 bis NN4 des Atoms i , je nach Typ des Atoms i ohne Berücksichtigung von Randbedingungen. NN1 und NN2 bezeichnen die Nachbarn in der über dem Atom i liegenden z -Ebene, NN3 und NN4 die Nachbarn in der unteren z -Ebene. E_x , E_y und E_z sind die Anzahl an Elementarzellen in x -, y - beziehungsweise z -Richtung.

Typ	NN1	NN2	NN3	NN4
1	$i - E_x + 2E_x E_y$	$i - 1 + 2E_x E_y$	$i - 1 - E_x - 2E_x E_y$	$i - 2E_x E_y$
2	$i - E_x + 2E_x E_y$	$i + 2E_x E_y$	$i - E_x - 2E_x E_y$	$i - 2E_x E_y$
3	$i - E_x + 2E_x E_y$	$i + 2E_x E_y$	$i - E_x - 2E_x E_y$	$i - 2E_x E_y$
4	$i - E_x + 2E_x E_y$	$i - 1 + 2E_x E_y$	$i - 1 - E_x - 2E_x E_y$	$i - 2E_x E_y$
5	$i + 2E_x E_y$	$i + 1 + E_x + 2E_x E_y$	$i + 1 - 2E_x E_y$	$i + E_x - 2E_x E_y$
6	$i + 2E_x E_y$	$i + E_x + 2E_x E_y$	$i - 2E_x E_y$	$i + E_x - 2E_x E_y$
7	$i + 2E_x E_y$	$i + E_x + 2E_x E_y$	$i - 2E_x E_y$	$i + E_x - 2E_x E_y$
8	$i + 2E_x E_y$	$i + 1 + E_x + 2E_x E_y$	$i + 1 - 2E_x E_y$	$i + E_x - 2E_x E_y$

Zusätzlich müssen noch die Randbedingungen realisiert werden. In dieser Arbeit werden periodische Randbedingungen angenommen. Liegt ein Nachbaratom also außerhalb der Superzelle, so wird stattdessen angenommen, dass das entsprechende Atom auf der entgegengesetzten Seite der Superzelle das Nachbaratom ist (siehe Abbildung 3.2). Daher gelten die Ausdrücke in Tabelle 3.1 lediglich für Atome, für die die Randbedingungen nicht von Relevanz sind. Für diejenigen Atome, für die die Randbedingungen relevant sind, müssen die Ausdrücke durch andere ersetzt werden. Allerdings sind sowohl die Indizes der relevanten Atome, als auch die entsprechenden Nachbarindizes wieder analytisch angebbar. Tabelle 3.2 zeigt, für welche Atome Randbedingungen relevant sind. Die Spalten NN1 bis NN4 geben an, welches der Nachbaratome in welche Richtung aus der Superzelle hinausragt. Die fünf Werte $[a; b; c; d; e]$ in der letzte Spalte geben an, wie sich die Indizes der betreffenden Atome generieren lassen. Sie liest sich folgendermaßen:

1. Der Index des ersten Atoms ist gegeben durch a .
2. Erstelle die nächsten $c - 1$ Atomindizes rekursiv durch Addition von b zum jeweils vorherigen Atomindex.
3. Dupliziere schließlich den gesamten c Einträge langen Block und addiere d zu jedem Eintrag in dem Block.
4. Dupliziere so lange den hinteren c Einträge langen Block und addiere d zu jedem Eintrag, bis es insgesamt e Blöcke gibt.

Fehlen die Einträge b , c , d oder e , müssen die entsprechenden Schritte nicht durchgeführt werden. Als Beispiel dient der Atomtyp 2 in der in Abbildung 3.2 gegebenen $2 \times 2 \times 2$ Superzelle. Die Indizes der Atome, für die die Randbedingungen relevant sind lauten nach dem oben genannten Schema

$$[3] \rightarrow [3 \ 4] \rightarrow [3 \ 4 \ 7 \ 8] \rightarrow [3 \ 4 \ 7 \ 8].$$

Für sie ragen die nächsten Nachbarn NN3 und NN4, also diejenigen in der niedrigeren z -Ebene, aus der Superzelle heraus und müssen gesondert betrachtet werden.

3 Modellierung von Quantenpunkten

Tabelle 3.2: Atomindizes i der Atome, für die die periodischen Randbedingungen relevant sind. Die Spalten NN1, NN2, NN3 und NN4 geben an für welchen nächsten Nachbarn des Atoms i die Randbedingungen in welche Richtung relevant sind. So bedeutet $-x$ in der Spalte NN2, dass der zweite nächste Nachbar k des Atoms i in negative x -Richtung aus der Superzelle herausragt. Die Spalte Atomindizes mit den Einträgen $[a; b; c; d; e]$ gibt an, wie alle benötigten Indizes i generiert werden können (siehe Kapitel 3.2.2). Für Atome vom Typ 1 und 8 muss eine Fallunterscheidung durchgeführt werden (siehe Tabelle 3.3).

Typ	NN1	NN2	NN3	NN4	Atomindizes
1	$-y$	$-x$	$-x, -y, -z$	$-z$	Fallunterscheidung
2			$-z$	$-z$	$[1 + E_x; 1; E_x; 2E_x; E_y]$
3	$-y$		$-y$		$[1 + 4E_x E_y; 1; E_x; 8E_x E_y; E_z]$
4		$-x$	$-x$		$[1 + E_x + 4E_x E_y; 2E_x; E_y; 8E_x E_y; E_z]$
5		x	x		$[E_x + 2E_x E_y; 2E_x; E_y; 8E_x E_y; E_z]$
6		y		y	$[1 - E_x + 4E_x E_y; 1; E_x; 2E_x; E_y]$
7	z	z			$[1 + 2E_x E_y (4E_z - 1); 1; E_x; 2E_x; E_y]$
8	z	x, y, z	x	y	Fallunterscheidung

Für Atome vom Typ 1 oder 8 muss noch eine Fallunterscheidung durchgeführt werden, je nach dem, in welche Richtung beziehungsweise Richtungen das Nachbaratom aus der Superzelle hinausragt. Tabelle 3.3 zeigt die Indizes i der betroffenen Atome. In Tabelle A.2 sind schließlich die Ausdrücke für die Indizes der Nachbaratome gegeben, für die Randbedingungen berücksichtigt werden müssen.

Tabelle 3.3: Atomindizes i der Atome mit Typ 1 und 8, für die die periodischen Randbedingungen relevant sind. Die Spalte Atomindizes mit den Einträgen $[a; b; c; d; e]$ gibt an, wie alle benötigten Indizes i generiert werden können (siehe Kapitel 3.2.2). Für die so generierten Atome i ragen die Nachbaratome in die angegebene(n) Richtung(en) aus der Superzelle heraus.

Typ 1	Atomindizes	Typ 8	Atomindizes
$-x$	$[1; 2E_x; E_y; 8E_x E_y; E_z]$	x	$[2E_x + 6E_x E_y; 2E_x; E_y; 8E_x E_y; E_z]$
$-y$	$[1; 1; E_x; 8E_x E_y; E_z]$	y	$[1 - E_x + 8E_x E_y; 1; E_x; 8E_x E_y; E_z]$
$-z$	$[1; 1; E_x; 2E_x; E_y]$	z	$[1 + E_x + 2E_x E_y (4E_z - 1); 1; E_x; 2E_x; E_y]$
$-x, -y$	$[1; 8E_x E_y; E_z]$	x, y	$[8E_x E_y; 8E_x E_y; E_z - 1]$
$-x, -z$	$[1; 1; E_x]$	x, z	$[2E_x + 2E_x E_y (4E_z - 1); 2E_x; E_y - 1]$
$-y, -z$	$[1; 2E_x; E_y]$	y, z	$[N - E_x + 1; 1; E_x - 1]$
$-x, -y, -z$	$[1]$	x, y, z	$[N]$

Die Implementation dieser Vorgehensweise erscheint zwar aufwändiger, als das einfache numerische Vergleichen der Atomkoordinaten, spart jedoch bei größeren Superzellen Rechenzeit im Bereich von einigen Minuten bis Stunden.

3.3 Aufbau der Tight-Binding-Matrix

Der gesamte Aufbau der Matrix erfolgt ausschließlich auf Grundlage der in der Informationseinheit *Atom* (siehe Kapitel 3.1 und Abbildung 3.1) gebündelten Informationen über die Koordinaten, Sorten, Typen und Kopplungen der einzelnen Atome der Superzelle. Informationen über zum Beispiel die Quantenpunktgeometrie werden nicht mehr benötigt. Hinzu kommt nur noch

eine externe Datei, die die Zahlenwerte der Parameter enthält. Der Aufbau der Tight-Binding-Matrix erfolgt parallel über mehrere Prozessoren verteilt mithilfe des Programmpakets *PETSc*. Nachdem in Kapitel 3.3.1 die Erstellung und Speicherallokierung der leeren Matrix beschrieben wird, folgt in Kapitel 3.3.2 und 3.3.3 die Beschreibung der praktischen Implementation des Setzens der On-Site- und Hopping-Matrixelemente in die leere Matrix. Eine bildliche Veranschaulichung der gesamten Tight-Binding-Matrix in der nochmals ersichtlich ist, wie sich die einzelnen Blöcke in die Gesamtmatrix fügen, findet sich in [7].

3.3.1 Speicherallokierung

Das Allokieren des Speichers für die Tight-Binding-Matrix muss von allen beteiligten Prozessoren erfolgen. Auf Grundlage der Kenntnis über die Gesamtzahl der Atome N der Superzelle und der Basisgröße (10 bei sp^3s^* Basis und Berücksichtigung der Spin-Bahn-Wechselwirkung) wird mithilfe der *PETSc* Anweisungen `MatCreate`, `MatSetType` und `MatSetSizes` eine Matrix vom Typ `mpiaij` (Matrixtyp für dünn besetzte parallele Matrizen) und der Basisgröße $10N$ erstellt [32]. Die Aufteilung über die beteiligten Prozessoren erfolgt dabei automatisch durch *PETSc*. Dabei wird die Tight-Binding-Matrix zeilenweise ungefähr gleichmäßig auf alle Prozessoren verteilt. Der Inhalt der Zeilen wird dabei jeweils als diagonaler und nebendiagonaler Block gespeichert. Der diagonale Block enthält die Einträge um die Hauptdiagonale der gesamten Matrix der dem einzelnen Prozessor zugeteilten Zeilen. Der nebendiagonale Block speichert die sonstigen Einträge. Die Größe der Blöcke hängt dann von der Zahl der beteiligten Prozessoren ab (siehe [33] für weitere Informationen).

Schließlich wird der Speicher pro Zeile über `MatMPIAIJSetPreallocation` allokiert. Hierbei werden je 23 Einträge für den diagonalen und 23 Einträge für den nebendiagonalen Block pro Zeile der Tight-Binding Matrix reserviert. Diese Aufteilung geht davon aus, dass der ungünstigste Fall eintritt und sich alle 23 maximal möglichen Einträge pro Zeile (3 On-Site, 20 Hopping) im diagonalen beziehungsweise im nebendiagonalen Block befinden. Dies ist allerdings nicht optimal, da so meist zu viel Speicher für die Matrix allokiert wird. Eine mögliche Verbesserung wäre, den Speicher für jede Zeile explizit anhand der Anzahl der dort auftauchenden Einträge zu allokiieren, die, zumindest prinzipiell, analytisch bekannt sind.

3.3.2 On-Site-Matrixelemente

Es folgt die Beschreibung des Einbaus der On-Site-Matrizen in die bereits allokierte leere Matrix. Dabei wird zunächst die Problematik der Parametermittlung aufgegriffen, bevor das konkrete Vorgehen und mögliche Verbesserungen beschrieben werden.

Parametermittlung

Auf den Diagonalen der On-Site-Matrizen stehen die On-Site-Parameter E_{sA} , E_{pA} und so weiter (siehe Kapitel 2.2), auf einigen Plätzen außerhalb der Diagonalen die Beiträge durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung (Kapitel 2.3). Die Zahlenwerte dieser Beiträge unterscheiden sich, je nach dem, welches Atom konkret betrachtet wird. Die GaAs-Parameter beispielsweise, können nur verwendet werden, wenn sich um ein Ga-Atom ausschließlich As-Atome und umgekehrt befinden. Entsprechendes gilt für die AlAs-Parameter. Für AlGaAs-Legierungen müssen daher, je nach Nachbaratomen, passende Einträge in die Tight-Binding-Matrix gesetzt werden. Dies geschieht wie in Abbildung 3.3 verdeutlicht.

Jedes Atom hat vier nächste Nachbarn (siehe Kapitel 2.1.5). Auf Grundlage der Sorte des betrachteten Atoms und der Sorten der Nachbaratome werden die gegebenen Parameter arithme-

3 Modellierung von Quantenpunkten

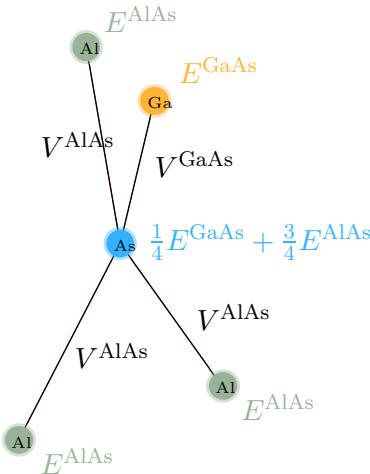


Abbildung 3.3: Darstellung zur Verdeutlichung der Wahl der Parameter und On-Site-Mittelung. Blau sind As-, gelb Ga- und grün Al-Atome dargestellt. E steht symbolisch für alle On-Site-Parameter des entsprechenden Atoms. V steht stellvertretend für alle Hopping-Parameter der entsprechenden Kopplung. Das Ga-Atom erhält die On-Site-Parameter für GaAs, da es vier As-Atome als Nachbarn hat (nicht alle dargestellt). Die Al-Atome erhalten die AlAs On-Site-Parameter, da sie lediglich As-Atome als nächste Nachbarn haben. Beim As-Atom wird arithmetisch gemittelt. Es hat drei Al- und einen Ga-Nachbarn und erhält die entsprechend gemittelten Parameter. Die Kopplung zwischen Ga- und As-Atom erhält die GaAs, die Kopplung zwischen Al- und As-Atom die AlAs Hopping-Parameter.

tisch gemittelt. Hat also zum Beispiel ein As-Atom vier Ga-Atome als nächste Nachbarn, so bekommt es die GaAs-Parameter. Sind zwei der Nachbarn Ga- und zwei Al-Atome, so werden GaAs- und AlAs-Parameter Hälften-Hälften gemittelt. Entsprechend wird bei drei Nachbaratomen der einen und einem Nachbaratom der anderen Sorte vorgegangen. Prinzipiell sind auch andere Mittelungen möglich (siehe zum Beispiel [13]). Eine Untersuchung der Auswirkungen der verschiedenen Mittelungen ist in [7] zu finden. Die hier verwendete Art der Mittelung entspricht der dort als *On-Site-Mittelung* bezeichneten Mittelung.

Umsetzung

Die am einfachsten denkbare Vorgehensweise, nämlich für jedes Atom in der Superzelle die Nachbarn zu prüfen, die entsprechende Matrix (mit Parametermittelung) zu bauen und in die allokierte leere Matrix zu setzen, ist aufgrund der Vielzahl der Atome nicht mit annehmbarer Rechenzeit praktisch umsetzbar. Daher folgt hier eine andere Herangehensweise, die vereinfacht folgendermaßen dargestellt werden kann:

1. Bestimme alle möglichen benötigten On-Site-Blöcke (auf Grundlage der Informationen der Superzelle).
2. Ordne jedem Atom den passenden On-Site-Block zu.
3. Schreibe die Matrixeinträge in die allokierte leere Matrix.

Für den ersten Schritt werden alle möglichen Kombinationen an Sorten in der Superzelle bestimmt. Für eine AlGaAs-Legierung sind das

- Al Atom mit 4 As Nachbarn
- Ga Atom mit 4 As Nachbarn
- As Atom mit 4 Al Nachbarn
- As Atom mit 4 Ga Nachbarn
- As Atom mit 3 Al und 1 Ga Nachbarn
- As Atom mit 2 Al und 2 Ga Nachbarn
- As Atom mit 1 Al und 3 Ga Nachbarn.

Anschließend findet die Berechnung und Speicherung der sieben überhaupt benötigten On-Site-Matrizen (mit Berücksichtigung der Parametermittelung) statt (wie in Kapitel 2.2 dargestellt). Im zweiten Schritt erfolgt die Zuordnung eines jeden Atoms der Superzelle zu einer der sieben Matrizen. Dies geschieht anhand der Informationen über die Sorte des Atoms sowie Indizes der Kopplungsatome und deren Sorten. Nachdem dies für alle Atome geschehen ist, erfolgt die Eintragung der Matrixelemente an die richtigen Stellen in die leere Matrix mittels *PETSc* Routine `MatSetValue`. Dafür werden je Eintrag zwei Indizes, die die Zeilen- und Spaltenposition angeben, und der einzutragende Wert selbst benötigt. Die Indizes für die Diagonaleinträge erhält man direkt aus dem Index des Atoms, die Indizes der Einträge durch Spin-Bahn-Wechselwirkung können durch Duplizieren von den Indizes

```
i1 = [2, 2, 3, 3, 4, 4, 7, 7, 8, 8, 9, 9]
i2 = [3, 9, 2, 9, 7, 8, 4, 8, 4, 7, 2, 3]
```

und Addieren von Vielfachen der Basisgröße zu den so gewonnenen Blöcken generiert werden. Die Durchführung der beschriebenen Schritte erfolgt dabei serielle durch nur einen Prozessor. Hier liegt erneut großes Verbesserungspotential vor, indem zum Beispiel die Aufgaben geeignet auf alle beteiligten Prozessoren aufgeteilt werden.

3.3.3 Hopping-Matrixelemente

Das Setzen der Hopping-Matrizen in die leere Matrix erfolgt ähnlich, wie das Setzen der On-Site-Blöcke. Hier muss allerdings keine Parametermittelung mehr stattfinden. Stattdessen findet die Auswahl des Parametersatzes je nach Sorten der an der Kopplung beteiligten Atome statt. Für eine Hopping-Matrix zwischen Ga- und As-Atom wird der GaAs-Parametersatz gewählt, für eine Kopplung zwischen Al- und As-Atom der AlAs-Parametersatz (siehe Abbildung 3.3). Die Matrixelemente der Hopping-Matrizen (Gleichung 2.34) hängen noch von den Verbindungsvektoren zwischen den beiden beteiligten Atomen beziehungsweise Richtungskosinussen ab (Gleichung 2.16). Die Richtungskosinusse zu jedem Atom folgen direkt aus dem Typ des Atoms. Dabei reicht es, lediglich Kopplungen zu zwei der vier nächsten Nachbarn, nämlich zu NN1 und NN2, also denen in der nächsthöheren Atomlage zu berücksichtigen. Die anderen beiden Kopplung ergeben sich durch Nutzen der Hermetizität der Tight-Binding Matrix (analog zu [7, 13]). Für Anionen (Typ 1 bis 4) sind die relevanten Vektoren \mathbf{R}_1 und \mathbf{R}_2 aus Gleichung 2.16 und für Kationen (Typ 5 bis 8) \mathbf{R}_3 und \mathbf{R}_4 .

Das generelle Vorgehen zum Einbau der Hopping Blöcke ist nachfolgend dargestellt.

1. Bestimme alle möglichen Hopping-Blöcke (auf Grundlage der möglichen Kopplungen und Richtungskosinusse).
2. Ordne jeder Kopplung den passenden Hopping-Block zu.
3. Schreibe die Matrixeinträge in die allokierte Matrix.

Die Anzahl der möglichen Hopping-Blöcke beträgt bei AlGaAs-Legierungen genau $4 \cdot 2 = 8$, da es für jeden der zwei Parametersätze (GaAs und AlAs) vier verschiedene Richtungskosinusse gibt. Würden beispielsweise quaternäre Legierungen betrachtet oder Verspannungseffekte berücksichtigt werden (siehe [13]), würde die Zahl an möglichen Hopping-Matrizen steigen, da es mehr Parametersätze beziehungsweise mehr Richtungskosinusse zu beachten gäbe.

Sind alle Hopping-Matrizen bekannt, folgt die gleichmäßige Aufteilung der Zuständigkeitsbereiche über alle an der Rechnung beteiligten Prozessoren. Dabei erhält jeder Prozessor einen Teil der Atome zugewiesen, für den die nachfolgenden Schritte durchgeführt werden. Jeder Prozessor

3 Modellierung von Quantenpunkten

sucht, durch Vergleich der Sorten und Richtungskosinusse der Kopplung, die passenden Hopping-Matrizen zu allen dem Prozessor zugeteilten Kopplungen, erstellt die benötigten Matrixindizes, und speichert die Matrix schließlich blockweise in die allokierte Matrix. Der erste Index steigt linear je um 1 zwischen den beiden Werten

```
i1_anf = von - 1 * 10 + 1  
i1_end = bis * 10
```

an. Dabei ist **von** das erste Atom und **bis** das letzte Atom, für das der Prozessor zuständig ist. Anschließend muss noch der gesamte Indexvektor dupliziert werden. Eine Möglichkeit den zweiten Index zu erstellen ist folgende

1. Erstelle einen Vektor mit den Einträgen $1 + (j - 1) * 10$ und $1 + (k - 1) * 10$, wobei j und k die Indizes der zwei nächsten Nachbarn aller betreffende Atome im Zuständigkeitsbereich des Prozessors sind.
2. Dupliziere jeden einzelnen Eintrag 10 mal (wegen Basisgröße 10).
3. Addiere zu jedem 10 Einträge langen Block die Zahlen [0, 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9].

Mit den so erstellten Vektoren von Indizes und Matrixelementen können die Matrixelemente blockweise (mittels **MatSetValues**) in die gesamte Tight-Binding Matrix geschrieben werden. Durch Vertauschen des ersten und zweiten Indexes wird die Hermetizität der Tight-Binding-Matrix genutzt und die Rückwärtskopplungen NN3 und NN4 (in die Ebene unterhalb des betrachteten Atoms) gesetzt. Ein komplexes Konjugieren der Einträge ist nicht nötig, da sie alle reell sind.

Schließlich folgt, nachdem alle Prozessoren ihren Teil bearbeitet haben, eine Zusammenfügung und Bekanntmachung der Matrix (*Assembly*) unter allen Prozessoren mittels **MatAssemblyBegin** und **MatAssemblyEnd** und eine Weitergabe an den Solver zur Diagonalisierung.

3.4 Diagonalisierung und Auswertung

Die Diagonalisierung, also das Berechnen (eines Teils) der Eigenwerte und -vektoren erfolgt mithilfe des Programmpakets *SLEPc* [34]. Nachdem der Solverkontext erstellt und die Lösungsparameter übermittelt wurden, folgt die Diagonalisierung der Tight-Binding-Matrix und somit die Bestimmung der gesuchten Eigenenergien sowie Eigenzustände des Quantenpunktsystems. Nach einer Aufbereitung der Daten, werden diese gespeichert und gegebenenfalls weiterverarbeitet.

Zunächst erfolgt das Erstellen des Solvers mittels *SLEPc* Routine **EPSCreate** und das Festlegen der zu lösenden Matrix mit **EPSSetOperators**. Die nachfolgende Liste gibt die hier benutzten Parameter des Solvers an.

- Hermitesches Problem – **EPSSetProblemType**, **type** = **EPS_HEP**
- Dimensionen – **EPSSetDimensions**, Anzahl Eigenwerte: **nev** = **anz_EW**, Größe Unterraum: **ncv** = 125
- Toleranzen – **EPSSetTolerances**, Genauigkeit: **tol** = **1e-6**, Iterationen: **maxits** = 20000000
- Krylov-Schur Solver – **EPSSetType**, **type** = **EPSKRYLOVSCHUR**

- Eigenwerte – `EPSSetWhichEigenpairs, which = EPS_TARGET_MAGNITUDE`
- Startwert – `EPSSetTarget, target = startwert`

Der Problemtyp ist ein hermitisches Problem und die Anzahl der zu bestimmenden Eigenwerte `anz_EW` wird vom Programm aus der Eingabedatei geladen und wie benötigt festgelegt. Für den verwendeten Krylov-Schur Solver kann die maximale Unterraumgröße `ncv` festgelegt werden. Ein Wert von `ncv = 125` erwies sich als sinnvoll. [13] schlägt hierzu `ncv = 100` vor, was die Rechenzeit für die Elektronenzustände zum Teil verringert, bei den Lochzuständen allerdings meist zu erhöhter Rechenzeit führt. Die Genauigkeit `tol` und die Anzahl der maximalen Iterationen wird ebenfalls aus der Eingabedatei gelesen, betrug allerdings für alle in dieser Arbeit verwendeten Rechnungen `tol = 1e-6` und `maxits = 20000000`. Die Eigenwerte werden um einen, ebenfalls aus der Eingabedatei geladenen, Startwert `startwert` herum gesucht. Sie werden insgesamt für zwei Startwerte durchgeführt, um so Elektronen- und Lochzustände bestimmen zu können. Für Elektronenzustände bietet sich `startwert = 1.4` und für Löcher `startwert = 0.0` an.

Schließlich folgt das parallele Berechnen der Eigenwerte und -vektoren mittels `EPSSolve`. Das Auslesen geschieht seriell durch einen Prozessor, welcher zunächst die Eigenwerte (und relativen Fehler) von allen an der Berechnung beteiligten Prozessoren einsammelt (`EPSGetEigenvalue`), diese dann der Größe nach sortiert und in eine externe Datei speichert. Dann folgt das Auslesen der Informationen zu den Eigenvektoren von allen Prozessoren (mit `EPSGetEigenvector` und `VecGetArrayReadF90`). Diese können dann prinzipiell in separate Dateien zur Weiterverarbeitung gespeichert werden. Tatsächlich werden in dieser Arbeit nie die Eigenvektoren selbst, sondern lediglich Summen über Betragsquadrate der Einträge benötigt. Die Summation und das Bilden der Betragsquadrate wird, um Rechenzeit und Datenmengen zu sparen, bereits vor dem Speichern der Eigenvektoren durchgeführt. Die Eigenvektoren (beziehungsweise Betragsquadrate) werden schließlich nacheinander in jeweils separate Dateien gespeichert. Hier liegt auch der zweite „Flaschenhals“ der Simulation. Für größere Quantenpunkte verbraucht bereits ein einzelner Eigenvektor mehrere Gigabyte Speicherplatz im Arbeitsspeicher. Um noch größere Systeme berechnen zu können, müsste eine Parallelisierung oder ein stückweises Speichern der Eigenvektoren implementiert werden. Die berechneten und gespeicherten Eigenwerte und -vektoren können schließlich zur Weiterverarbeitung auf einen Arbeitsplatzrechner kopiert werden. Dort findet die weitere Analyse der Daten und Anfertigung von Abbildungen statt.

Die Berechnung der Eigenwerte ist der rechenintensivste Schritt der gesamten Berechnungen. Die Rechenzeiten für einige ausgewählte Quantenpunktsysteme sind in Tabelle 3.4 gegeben. Die Berechnungen erfolgten auf 128 Knoten mit je 24 Prozessoren. Es wurden je 12 Eigenwerte für Löcher beziehungsweise Elektronen bestimmt.

3 Modellierung von Quantenpunkten

Tabelle 3.4: Rechenzeiten (in Minuten) für einige Quantenpunktsysteme bei Berechnung auf $128 \cdot 24$ Prozessoren. Gegeben sind die Größen der Superzellen sowie der Durchmesser d des Quantenpunktes (siehe Tabelle A.3 für vollständige Daten der Quantenpunkte). Die Rechenzeiten sind aufgeschlüsselt nach Dauer zum Erstellen der Superzelle, zum Aufbau der Tight-Binding-Matrix sowie zur Berechnung von je 12 Eigenwerten für Elektronen beziehungsweise Löcher und deren Speicherung in externen Dateien.

Größe in EZ	d	Superzelle	TB-Matrix	Elektr.	Löcher	Speichern	Gesamt
$48 \times 48 \times 37$	10 nm	0:02	0:01	0:38	0:44	0:15	1:41
$65 \times 65 \times 40$	20 nm	0:03	0:02	0:41	0:55	0:33	2:13
$83 \times 83 \times 42$	30 nm	0:06	0:04	0:58	1:53	0:49	3:51
$101 \times 101 \times 45$	40 nm	0:09	0:07	1:19	3:06	1:26	6:06
$118 \times 118 \times 47$	50 nm	0:13	0:09	2:02	5:37	1:43	9:45
$136 \times 136 \times 50$	60 nm	0:18	0:14	3:13	9:30	2:16	15:31

4 Ergebnisse und Diskussion

Zunächst werden in Kapitel 4.1 die Eigenschaften der Bulk-Materialien GaAs, AlAs sowie der Legierung AlGaAs mit unterschiedlichen Ga/Al-Konzentrationen untersucht. Dabei werden in Kapitel 4.1.1 die mittels Tight-Binding bestimmten Bandstrukturen präsentiert. Die Diskussion der AlGaAs-Legierung findet in Kapitel 4.1.2 statt, wobei insbesondere auf den Übergang von einem Material mit direkter zu einem Material mit indirekter Bandlücke eingegangen wird. In Kapitel 4.2 folgt die Diskussion der untersuchten Quantenpunkte, deren Eigenschaften im Kapitel 4.2.1 zusammengefasst sind. Dabei wird sowohl auf die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten der gebundenen Zustände eingegangen (Kapitel 4.2.2) als auch die Abhängigkeit der Eigenenergien der Systeme von der Ga/Al-Konzentration des Barrierenmaterials (Kapitel 4.2.4) und den geometrischen Eigenschaften der Quantenpunkte (Größe: Kapitel 4.2.3, Höhe: Kapitel 4.2.5 und Durchmesser: Kapitel 4.2.6) untersucht.

4.1 Bulk-Material: GaAs, AlAs und AlGaAs

Bevor Quantenpunkte sinnvoll modelliert werden können, muss ein geeigneter Parametersatz bestimmt werden, der die Bandstrukturen angemessen reproduziert. Deswegen werden in diesem Kapitel die Bandstrukturen für die reinen Materialien GaAs und AlAs untersucht sowie die Bandkanten und Bandlücken für AlGaAs-Legierungen mit verschiedenen Ga/Al-Konzentrationen betrachtet und mit bekannten Bandstrukturwerten verglichen.

4.1.1 Bandstrukturen: GaAs und AlAs

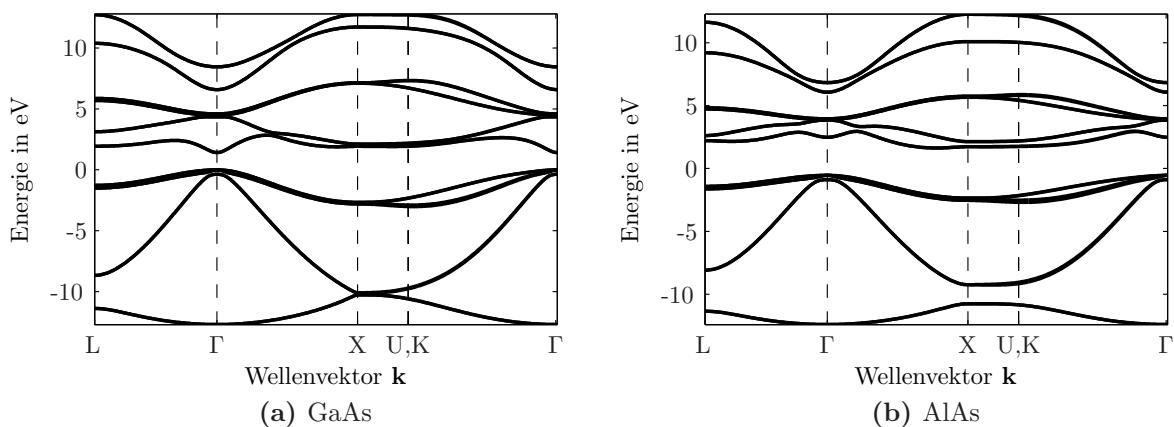


Abbildung 4.1: Bulk Bandstrukturen für reines GaAs (a) und reines AlAs (b) unter Berücksichtigung der Spin-Bahn-Wechselwirkung. Dargestellt sind die Energien entlang einiger Hochsymmetriepunkte.

Die Bandstrukturen wurden wie in Kapitel 2.1.5 beschrieben für reines GaAs und AlAs bestimmt und sind in Abbildung 4.1 dargestellt. Die Parameter stammen aus [27] und sind in Tabelle A.1 angegeben. Der Valenzbandversatz von AlAs zu GaAs wurde, wie in [27], mit $\Delta E_v = -0,545148 \text{ eV}$ gewählt. Die Bandlücken am Γ -, X- und L-Punkt sowie die durch die

4 Ergebnisse und Diskussion

Tabelle 4.1: Bandlücken am Γ -, X- und L-Punkt sowie die durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung bedingte Energieaufspaltung ΔE_{SO} für die in Abbildung 4.1 gezeigten GaAs- und AlAs-Bandstrukturen. Die Angaben sind in eV. Zusätzlich sind die Werte nach [35] für eine Temperatur von $T = 300\text{ K}$ sowie die prozentuale Abweichung der eigenen Werte angegeben.

	GaAs (eigene)	GaAs ([35])	Abw.	AlAs (eigene)	AlAs ([35])	Abw.
E_{gap}^{Γ}	1,417	1,422	0,4%	3,025	3,003	0,7%
E_{gap}^X	1,928	1,899	1,5%	2,176	2,164	0,6%
E_{gap}^L	1,936	1,707	13,4%	2,761	2,351	17,4%
ΔE_{SO}	0,364	0,341	6,7%	0,337	0,280	20,4%

Spin-Bahn-Wechselwirkung bedingte Energieaufspaltung ΔE_{SO} sind zusammen mit Literaturwerten (nach [35]) in Tabelle 4.1 dargestellt. Dabei ist das Leitungsbandminimum beim AlAs nicht genau am X-Punkt sondern liegt bei

$$\mathbf{k}^X = \frac{2\pi}{a} \begin{pmatrix} 0,775 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}.$$

Beim AlAs beziehen sich daher alle nachfolgenden Bezeichnungen nicht auf den exakten X-Punkt, sondern auf die Stelle kurz vor dem X-Punkt. Diese weicht etwas vom in [35] gegebenen Wert $\mathbf{k}^X = (0,903, 0, 0)2\pi/a$ ab. Die Werte für die Bandlücken am Γ - und X-Punkt stimmen gut, die Bandlücken am L-Punkt und die Energieaufspaltung ΔE_{SO} weniger gut mit den Literaturwerten überein. Besonders die hohen Abweichungen am L-Punkt sind bemerkenswert. Für GaAs wird die energetische Ordnung der Leitungsbandminima Γ -L-X [35] nicht reproduziert, sondern L- und X-Punkt sind in ihrer Reihenfolge vertauscht. Beim AlAs wird trotz hoher Abweichung des Bandlückenwertes am L-Punkt die Ordnung X-L- Γ reproduziert. Beim GaAs liegt eine direkte Bandlücke am Γ -Punkt vor. Beim AlAs wiederum ist die Bandlücke indirekt in der Nähe des X-Punktes. Das legt nahe, dass für AlGaAs-Legierungen das Materialsystem bei einer bestimmten Ga/Al-Konzentration von direkter zu indirekter Bandlücke übergeht. Die Tight-Binding-Parametrisierung [27] reproduziert die wichtigsten Eigenschaften der Bandstrukturen und scheint somit geeignet für weitere Rechnungen zu sein.

4.1.2 Konzentrationsabhängigkeit der Bandkanten und Bandlücken: AlGaAs

In Abbildung 4.2 sind die Bandlücken und Bandkanten am Γ -, X- und L-Punkt für AlGaAs mit verschiedenen Ga/Al-Konzentrationen dargestellt. Dabei ergaben sich die Bandlücken für die reinen Materialien GaAs und AlAs aus den in 4.1.1 angegebenen Bandstrukturen. Die Bandlückenwerte für AlGaAs-Legierungen verschiedener Konzentrationen wurden, wie in [35], nach

$$E_{gap}(Al_x Ga_{1-x} As) = (1 - x)E_{gap}(GaAs) + xE_{gap}(AlAs) - x(1 - x)C$$

bestimmt, wobei $E_{gap}(Al_x Ga_{1-x} As)$ die Bandlücke der Legierung, $E_{gap}(GaAs)$ und $E_{gap}(AlAs)$ die Bandlücke der reinen Materialien und x die Aluminiumkonzentration angibt. Die Bowing-Parameter C (entnommen aus [35]) unterscheiden sich jeweils für die Bandlücken am Γ -, X- und L-Punkt:

$$\Gamma : C = -0,127 + 1,310x$$

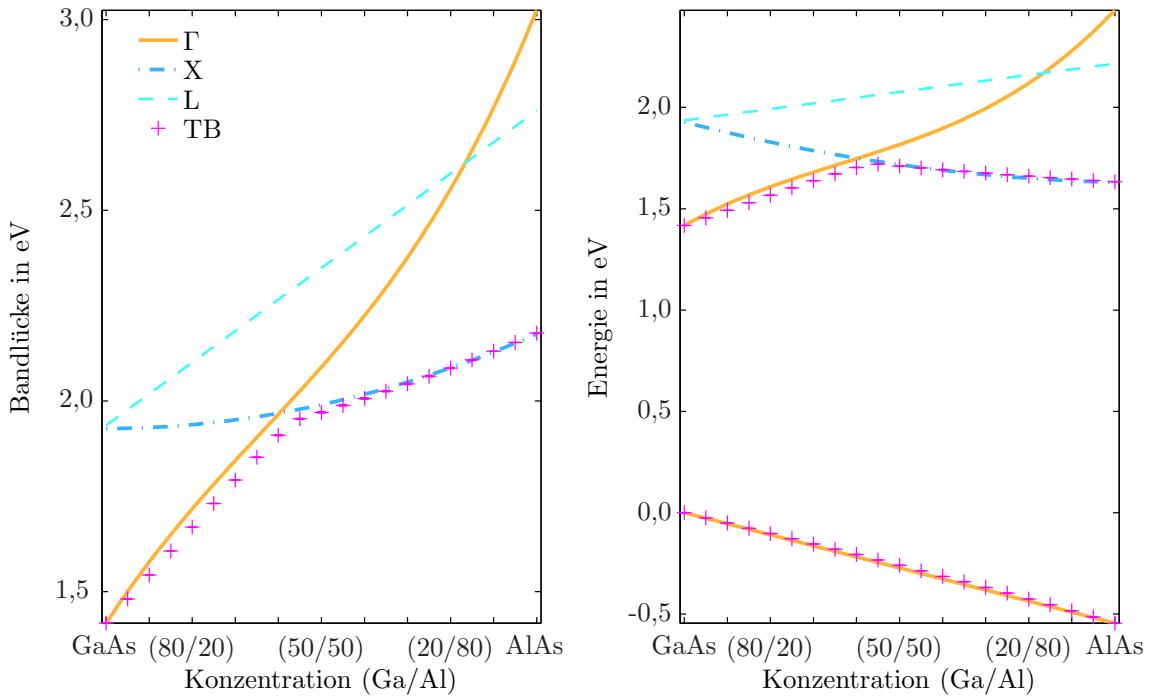


Abbildung 4.2: Bandlücken (links) und Bandkanten (rechts) am Γ -, X- und L-Punkt sowie die mittels Tight-Binding-Rechnung bestimmten Werte für AlGaAs-Legierungen mit verschiedenen Konzentrationen von Ga/Al.

$$X : C = 0,055$$

$$L : C = 0$$

Das Valenzbandmaximum am Γ -Punkt für unterschiedliche Ga/Al Konzentrationen wurde durch lineare Interpolation zwischen den für reines GaAs und AlAs aus den Bandstrukturen bekannten Werten gewonnen [36]. Obwohl dies die einfachst mögliche Näherung ist, scheint sie gerechtfertigt zu sein (siehe unten). Aus Valenzbandmaximum am Γ -Punkt und Bandlückenwerten wurden die Bandkanten der Leitungsbänder am Γ -, X- und L-Punkte bestimmt.

Die in magenta dargestellten Messpunkte geben den höchsten und niedrigsten Eigenwert (Bandkanten) beziehungsweise die Differenz (Bandlücke) zwischen ihnen an. Sie wurden durch Bestimmung vom energetisch niedrigsten Elektronen- beziehungsweise energetisch höchsten Lochzustand für eine $10 \times 10 \times 10$ Superzelle mit dem Material entsprechender Ga/Al-Konzentration mit dem in Kapitel 3 beschriebenen Tight-Binding-Programm ermittelt. Jeder Messpunkt ergab sich aus Mittelwertbildung von zehn zufälligen Realisierungen der Superzelle pro Konzentrationswert. Die Fehlerbalken geben die Standardabweichung an. Diese verschwindet für reine Materialien (da es nur eine Realisierungsmöglichkeit gibt) und steigt für höhere Mischungsgrade an.

Bei den Bandlücken schmiegen sich die Messpunkte für niedrige Aluminiumkonzentrationen an den Verlauf der Kurve am Γ -Punkt an. Für höhere Aluminiumkonzentrationen folgen die Messpunkte dem Verlauf der Bandlückenwerte am X-Punkt. Ein ähnliches Verhalten lässt sich auch bei den Bandkanten beobachten. Bei den Leitungsbändern stimmen die Messpunkte für geringere Aluminiumkonzentrationen wieder mit der Γ -Kurve überein, für höhere folgen sie dem Verlauf des Leitungsbandminimums am X-Punkt. Die Messpunkte stimmen auch mit dem Verlauf des Valenzbandmaximums am Γ -Punkt überein, was die lineare Näherung rechtfertigt.

4 Ergebnisse und Diskussion

Auffällig ist, dass, im Gegensatz zur Literatur [35, 36], beim Übergang von GaAs zu AlAs die Bandordnung von Γ -L-X zu X-L- Γ nicht reproduziert wird. Dies liegt an der großen Abweichung des Bandlückenwertes am L-Punkt für GaAs. Vermutlich hat das L-Band allerdings keinen großen Einfluss auf die später zu untersuchenden Quantenpunkteigenschaften, weshalb der Parametersatz als geeignet angesehen werden kann. In Übereinstimmung mit [35, 36] wechselt das Materialsystem im Konzentrationsbereich zwischen 40% und 50% Aluminium von einer direkten zu einer indirekten Bandlücke, was mit einer noch zu untersuchenden Änderung der Systemeigenschaften einhergeht.

4.2 Quantenpunkte: GaAs in AlGaAs

Nachdem in Kapitel 4.2.1 die Eigenschaften der untersuchten Quantenpunkte vorgestellt werden, folgt in den Kapiteln 4.2.3 bis 4.2.6 die Diskussion der Eigenenergien- und Zustände der Systeme in Abhängigkeit der Ga/Al-Konzentration des Barrierenmaterials und der Größe, der Höhe und des Durchmessers der Quantenpunkte.

4.2.1 Eigenschaften der untersuchten Systeme

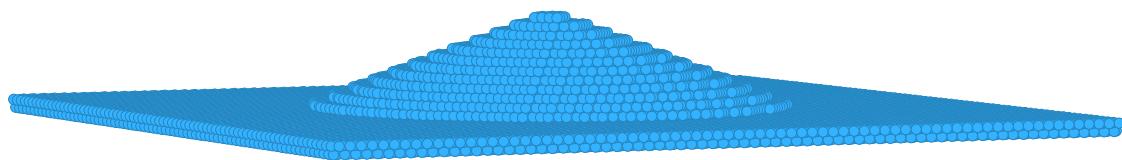


Abbildung 4.3: Beispielhafter kegelförmiger Quantenpunkt mit einem Durchmesser von $d = 25\text{ nm}$, einer Höhe von $h = 3,5\text{ nm}$ auf einem Wetting-Layer der Dicke WL = 4 Monolagen. Abgebildet sind lediglich die Ga Atome des Quantenpunktes und im Wetting-Layer der Superzelle.

In der vorliegenden Arbeit wurden kegelförmige Quantenpunkte (wie in Abbildung 4.3) aus reinem GaAs in AlGaAs-Barrierenmaterial mit unterschiedlichen Ga/Al-Konzentrationen untersucht. Die Durchmesser der untersuchten Quantenpunkte lagen im Bereich von $d = 10 \dots 60\text{ nm}$ und die Höhen im Bereich von $h = 1,4 \dots 8,4\text{ nm}$. Dabei wurden die Höhen beziehungsweise Durchmesser so gewählt, dass das Verhältnis von Höhe zu Durchmesser im Bereich von $h/d = 0,08 \dots 0,20$ blieb. Die Anzahl an Monolagen im Wetting-Layer wurde meist mit WL = 4 gewählt, also insgesamt zwei Lagen Ga Atome. Alle den Ergebnissen zugrundeliegenden untersuchten Quantenpunkte sind im Anhang aufgeführt. Als Basis wurde die sp^3s^* -Basis mit Berücksichtigung der Spin-Bahn-Wechselwirkung gewählt und eine On-Site-Mittelung durchgeführt. Verspannungseffekte wurden nicht berücksichtigt und ausschließlich die Gitterkonstante von reinem GaAs verwendet (siehe Tabelle A.1). Die Größe der Superzellen reichte von $48 \times 48 \times 37$ bis $136 \times 136 \times 50$ Elementarzellen und die Zahl der Atome somit von etwa $7 \cdot 10^5$ bis $7 \cdot 10^6$. Zur Bestimmung der Eigenenergien und -zustände wurden also Matrizen etwa vom Rang $7 \cdot 10^6$ bis $7 \cdot 10^7$ diagonalisiert.

4.2.2 Einteilchen-Aufenthaltswahrscheinlichkeiten

In Abbildung 4.4 sind exemplarisch die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten für die ersten sechs gebundenen Elektronen-, in Abbildung 4.5 für die ersten sechs gebundenen Lochzustände für einen Quantenpunkt der Größe $d = 40\text{ nm}$, $h = 5,6\text{ nm}$, WL = 4 aus reinem GaAs in $\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$

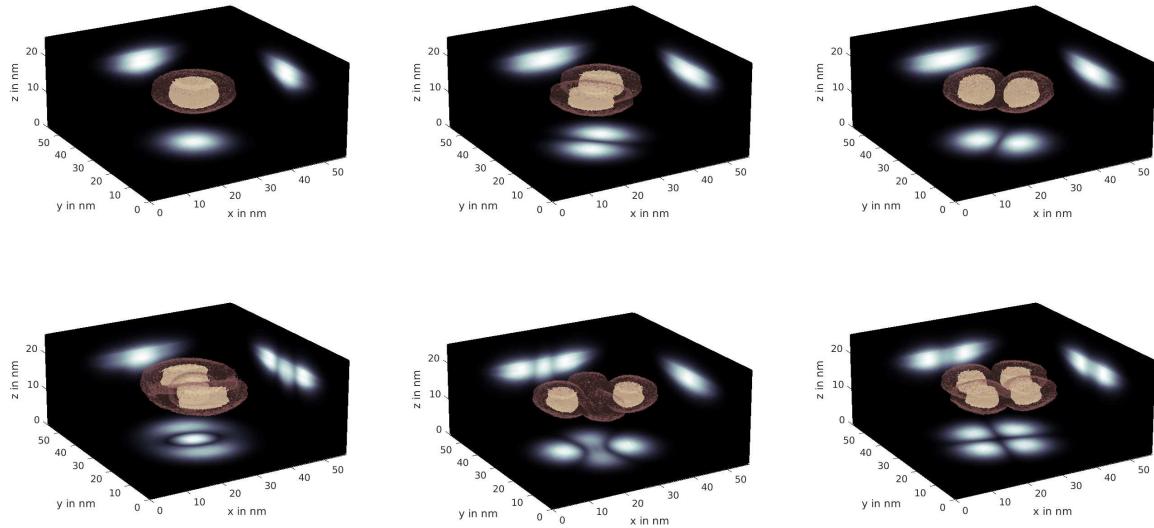


Abbildung 4.4: Aufenthaltswahrscheinlichkeiten der sechs energetisch am niedrigsten liegenden gebundenen Elektronenzustände für einen GaAs Quantenpunkt der Größe $d = 40 \text{ nm}$, $h = 5,6 \text{ nm}$, WL = 4 in $\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$. Die Seitenflächen zeigen jeweils die entlang x , y beziehungsweise z aufsummierten Aufenthaltswahrscheinlichkeiten. Hell sind hohe, dunkel niedrige Aufenthaltswahrscheinlichkeiten eingezeichnet. Die Isoflächen sind bei 20% beziehungsweise 60% der maximalen Aufenthaltswahrscheinlichkeit eingezeichnet. Die obere Reihe zeigt den s - und die zwei p -artigen Zustände, die untere Reihe die drei d -artigen.

gezeigt. Die Zustände sind jeweils zweifach Spin-entartet. Dabei ergaben sich die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten durch Bilden des Betragsquadrates des Eigenvektors und Summieren über jeweils alle Orbitale pro Atom (siehe zum Beispiel [7]). Gezeigt sind die Aufenthalts wahrscheinlichkeiten nur an den Anionen in der Superzelle. Werte zwischen den Atompositionen wurden durch lineare Interpolation gewonnen. Die Seitenflächen zeigen jeweils die entlang x , y beziehungsweise z aufsummierten Aufenthalts wahrscheinlichkeiten (hell: hohe Aufenthalts wahrscheinlichkeit, dunkel: niedrige). Die Isoflächen sind bei 20% beziehungsweise 60% der maximalen Aufenthalts wahrscheinlichkeit eingezeichnet.

Die Aufenthalts wahrscheinlichkeit ist sowohl bei den Elektronen-, als auch bei den Lochzuständen im Quantenpunkt am höchsten und sinkt im Barrierenmaterial stark ab, weshalb die Zustände als gebunden angesehen werden können. Bei den Elektronenzuständen ist ein Zustand mit s -artiger, zwei mit p -artiger und drei mit d -artiger Symmetrie erkennbar. Dies scheint plausibel, da der Verlauf des niedrigsten Leitungsbandes am Γ -Punkt (siehe Abbildung 4.1) beim GaAs etwa parabelförmig ist, die gebundenen Zustände also, analog zum quantenmechanischen harmonischen Oszillatoren, s -, p -, d - usw. artige Symmetrien aufweisen sollten. Bei den Lochzuständen kann der erste Zustand als s -artig angesehen werden. Die weiteren Zustände haben nur noch schwer erkennbare Symmetrien. Dies kann vermutlich auf Bandmischungseffekte an den Valenzbändern am Γ -Punkt zurückgeführt werden. Im Gegensatz zum Leitungsband liegen hier nämlich mehrere Bänder in einem ähnlichen Energiebereich, sodass das Modell des quantenmechanischen harmonischen Oszillators hier nicht mehr wirklich anwendbar ist. Nichtsdestotrotz werden die Zustände im weiteren Verlauf als p - beziehungsweise d -artig benannt.

4 Ergebnisse und Diskussion

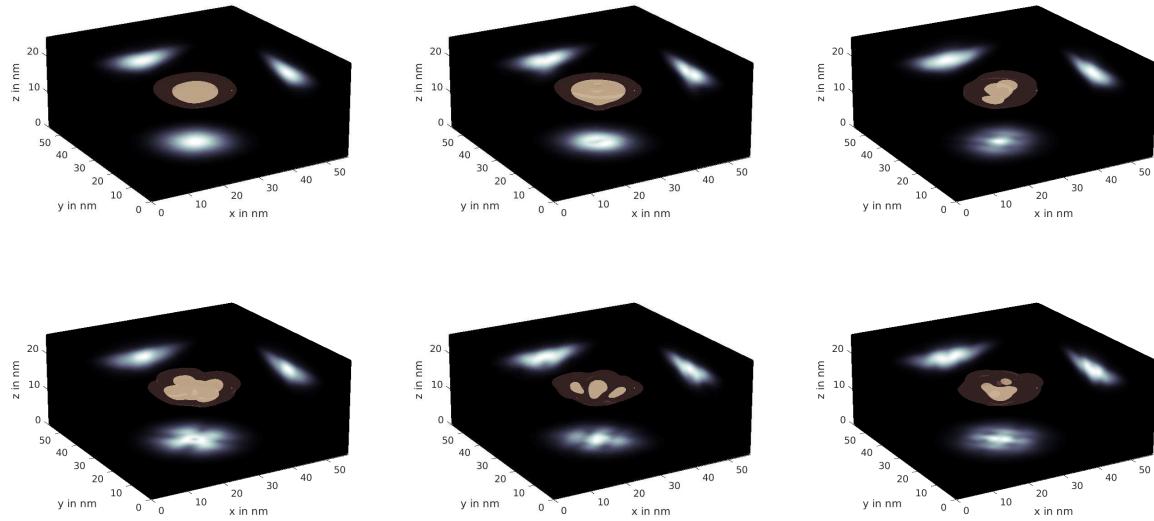


Abbildung 4.5: Aufenthaltswahrscheinlichkeiten der sechs energetisch am höchsten liegenden gebundenen Lochzustände für einen GaAs Quantenpunkt der Größe $d = 40 \text{ nm}$, $h = 5,6 \text{ nm}$, WL = 4 in $\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$. Die Seitenflächen zeigen jeweils die entlang x , y beziehungsweise z aufsummierten Aufenthaltswahrscheinlichkeiten. Hell sind hohe, dunkel niedrige Aufenthaltswahrscheinlichkeiten eingezeichnet. Die Isoflächen sind bei 20% beziehungsweise 60% der maximalen Aufenthaltswahrscheinlichkeit eingezeichnet. Die Zustände sind von hoher Energie (oben links) zu niedriger Energie (unten rechts) geordnet. Die obere Reihe zeigt den als s - und die zwei als p -artig bezeichneten Zustände, die untere Reihe die drei als d -artigen.

4.2.3 Variation der Größe

Für feste Ga/Al-Konzentration im Barriermaterial ($\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$), feste Anzahl an Wetting-Layer Monolagen (WL = 4) und festem Verhältnis $h/d = 0,14$ wurden die Eigenenergien und Eigenzustände für Quantenpunkte unterschiedlicher Größe ($d = 10 \dots 60 \text{ nm}$, $h = 1,4 \dots 8,4 \text{ nm}$) bestimmt. Die untersuchten Quantenpunkte sind in Tabelle A.3 aufgeführt. In Abbildung 4.6 sind die Energien der ersten sechs gebundenen Elektronen- bzw. Lochzustände gezeigt. Jeder Zustand ist jeweils zweifach Spin-entartet. Gestrichelt ist der niedrigste Elektronen- beziehungsweise höchste Lochzustand für ein System ohne Quantenpunkt und nur mit Wetting-Layer im Barriermaterial dargestellt (Wetting-Layer Zustand). Die Energie dieser Zustände variiert lediglich mit der Ga/Al-Konzentration (siehe Kapitel 4.2.4). Zustände mit Energien, die niedriger (Elektronen) beziehungsweise höher (Löcher) liegen, wurden als gebunden angenommen. Entsprechend sind dort auch die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten im Quantenpunkt am höchsten (siehe Kapitel 4.2.2).

Für größere Quantenpunkte steigen die Bindungsenergien, die Elektronenzustände liegen energetisch niedriger und die Lochzustände höher. Die Zahl der gebundenen Zustände nimmt für größere Quantenpunkte zu und die Anzahl an gebundenen Lochzuständen übersteigt die der Elektronenzustände. s - und p -artige Lochzustände traten bei allen untersuchten Quantenpunkten auf, d -artige erst ab einem Durchmesser von $d = 15 \text{ nm}$. Im Gegensatz dazu gab es bei den Elektronen erst ab einem Durchmesser von $d = 15 \text{ nm}$ überhaupt gebundene Zustände. Zunächst lediglich s -artige, ab $d = 20 \text{ nm}$ und $d = 25 \text{ nm}$ auch p -artige beziehungsweise d -artige. Für größere Quantenpunkte rückten die s - und p -artigen beziehungsweise p - und d -artigen Zustände energetisch näher aneinander (siehe Abbildung 4.7). Lediglich bei den p - und d -artigen Loch-

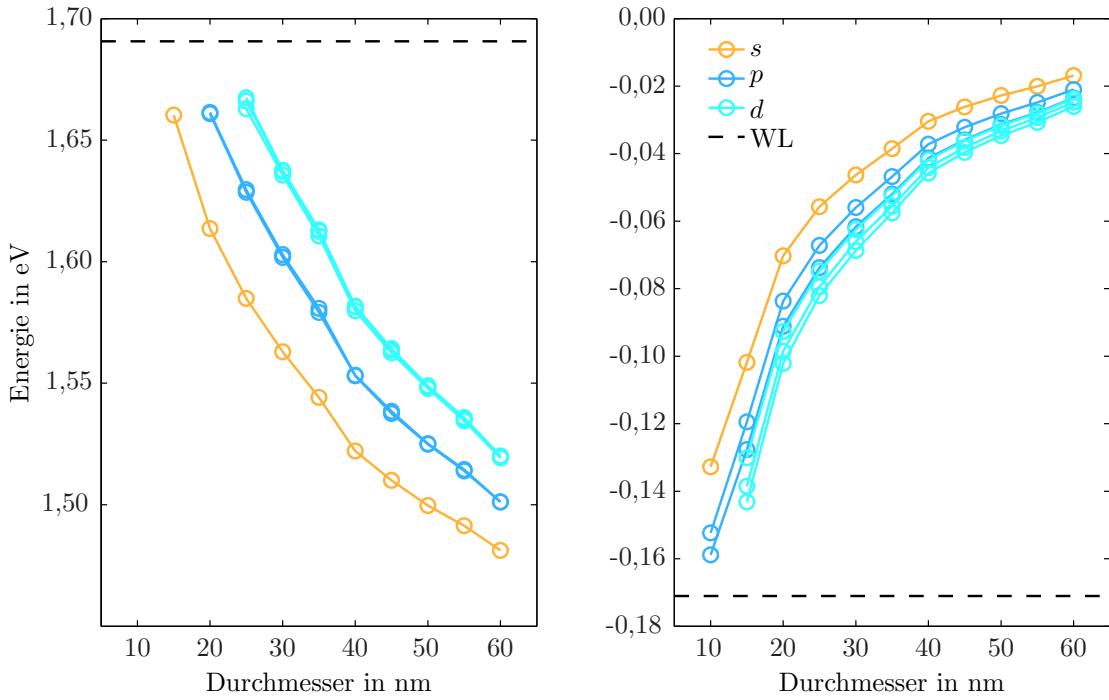


Abbildung 4.6: Eigenenergien der ersten sechs Elektronen- (links) und Lochzustände (rechts) für einen reinen GaAs-Quantenpunkt ($d = 10 \dots 60$ nm, $h = 1,4 \dots 8,4$ nm, WL = 4) in $\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$ mit unterschiedlicher Größen aber gleichbleibendem Verhältnis $h/d = 0,14$. Die Energien sind jeweils zweifach entartet. Gestrichelt ist die Energie des energetisch am niedrigsten (Elektronen) bzw. am höchsten (Löcher) gelegenen Wetting-Layer Zustandes eingezeichnet. Die Zustände sind nach s -, p -, beziehungsweise d -artiger Symmetrie farblich sortiert.

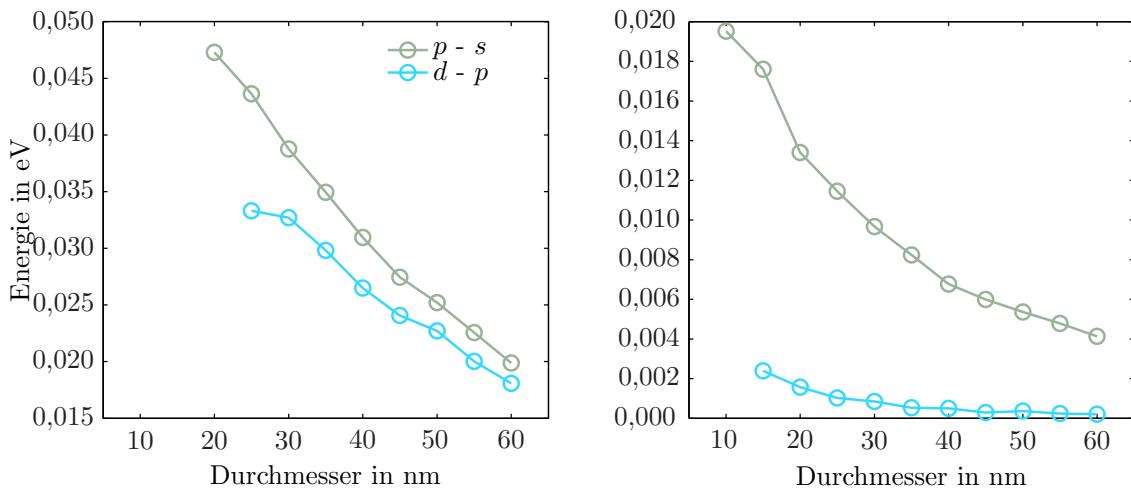


Abbildung 4.7: Energieabstände zwischen benachbarten s - und p -, beziehungsweise p - und d -Zuständen für Elektronen (links) und Löcher (rechts) für reine GaAs-Quantenpunkte ($d = 10 \dots 60$ nm, $h = 1,4 \dots 8,4$ nm, WL = 4) in $\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$ mit unterschiedlichen Größen aber gleichbleibendem Verhältnis $h/d = 0,14$.

4 Ergebnisse und Diskussion

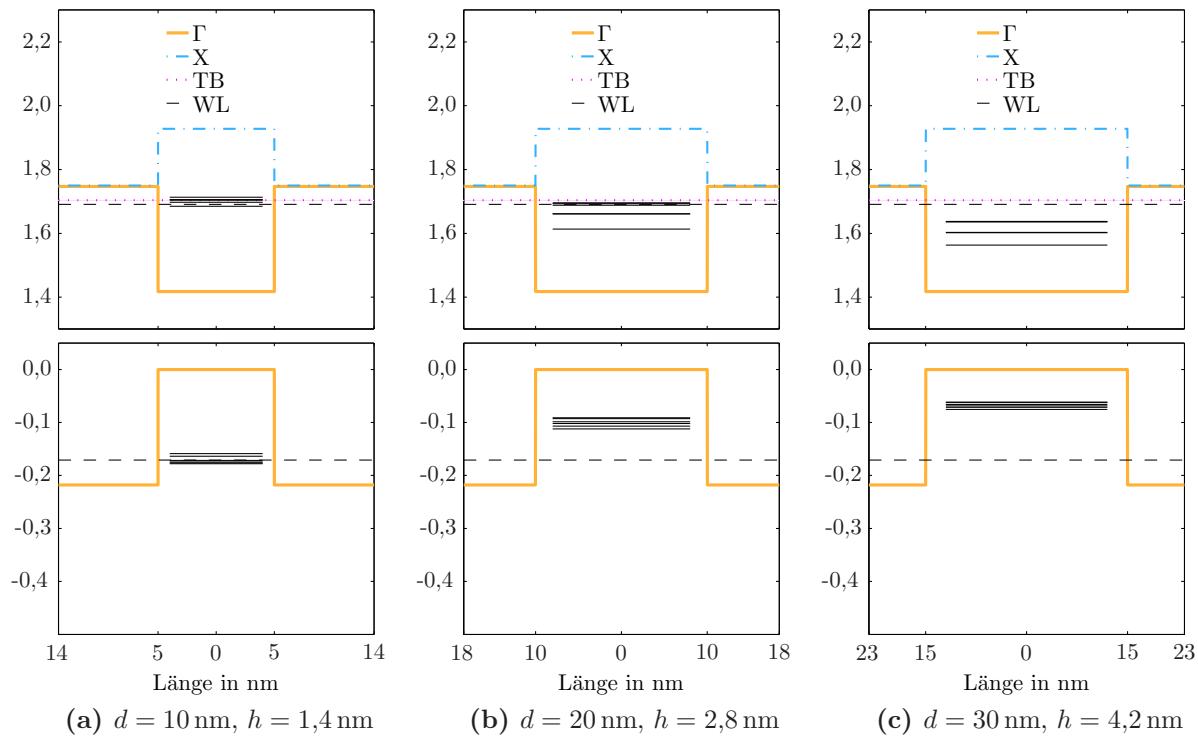


Abbildung 4.8: Potentialverläufe für Quantenpunkte unterschiedlicher Größe aus reinem GaAs in $\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$. Die oberen Teile zeigen die Potentialböpfe für den Γ - und X -Punkt, sowie die in Kapitel 4.1.2 bestimmten Werte für die obere Bandkante und den energetisch niedrigsten Elektronen Wetting-Layer Zustand sowie die ersten sechs Energieniveaus (zweifach Spin-entartet) der Elektronen. Die unteren Abbildungen zeigen den Verlauf des Γ -Topfes sowie die ersten sechs Loch-Niveaus und den energetisch niedrigsten Wetting-Layer Zustand. Die vertikale Achse gibt Energien in eV an. Horizontal sind Längen durch die Mitte der Superzelle angegeben.

zuständen konnte kein aussagekräftiger Trend erkannt werden. Dies lässt sich allerdings durch die nicht eindeutig zuordenbare Symmetrie erklären.

Wie in Kapitel 4.1.2 dargestellt, unterscheiden sich die energetischen Lagen des Valenzbandmaximums und Leitungsbandminimums am Γ -Punkt je nach Material. So liegt das Leitungsbandminimum für das Quantenpunktmaterial GaAs niedriger, als für das Barrierenmaterial $\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$. Das Valenzbandmaximum wiederum liegt für das Barrierenmaterial $\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$ höher, als für das Quantenpunktmaterial GaAs (Abbildung 4.8). Je nach Materialien und Eigenschaften der Quantenpunkte liegen also Einschlusspotentiale (*Potentialböpfe*) vor, in denen es gebundene Elektronen- beziehungsweise Lochzustände mit diskreten Energiewerten geben kann. Die Tiefe der Potentialböpfe hängt dabei lediglich vom Material des Quantenpunktes und der Barriere ab. Die Breite wiederum nimmt für größere Quantenpunkte zu. Dies ist in Abbildung 4.8 anhand von drei der untersuchten Quantenpunkten veranschaulicht. Da die Materialien jeweils gleich sind, unterscheiden sich die Potentialböpfe lediglich in ihrer Breite. Für größere Quantenpunkte (also breitere Potentialböpfe) liegen die Zustände energetisch tiefer im Topf (analog zum endlich hohen eindimensionalen Potentialtopf), es gibt also mehr gebundene Zustände und die Bindungsenergien steigen. Im kleinsten Quantenpunkt gibt es daher keine gebundenen Elektronenzustände und bei den Lochzuständen lediglich s - und p -artige Zustände (wie auch in Abbildung 4.6 dargestellt). Für den mittelgroßen Quantenpunkt liegen die Energieniveaus der Elektronen niedriger, weshalb es jetzt gebundene s - und p -artige, aber keine d -artigen Zustände gibt. Bei den Loch-

zuständen gibt es nun s -, p - und d -artige gebundene Zustände. Für den größten Quantenpunkt liegen die Energien abermals tiefer im Potentialtopf. Dort gibt es gebundene s -, p - und d -artige Elektronen- und Loch-Zustände.

Auch am Leitungsbandminimum am X-Punkt unterscheiden sich die Energiewerte je nach Quantenpunkt- beziehungsweise Barrierenmaterial. Der Energiewert liegt hierbei (im Gegensatz zum Γ -Topf) im Barrierenmaterial niedriger, als im Quantenpunktmaterial. Dies wird in Kapitel 4.2.4 noch von Bedeutung sein. Die Wetting-Layer Zustände liegen energetisch knapp unter (Elektronen) beziehungsweise über (Löcher) dem Wert des Barrierenmaterials. Sobald die Energieniveaus diesen Wert überschreiten, können sie nicht mehr als im Quantenpunkt gebunden angesehen werden.

4.2.4 Variation der Konzentration

Für drei jeweils feste Quantenpunktgeometrien (1. $d = 25 \text{ nm}$, $h = 3,5 \text{ nm}$, WL = 4, 2. $d = 35 \text{ nm}$, $h = 4,9 \text{ nm}$, WL = 4 und 3. $d = 45 \text{ nm}$, $h = 6,3 \text{ nm}$, WL = 4) wurde die Konzentration des Aluminiums und Galliums im Barrierenmaterial variiert und die Eigenenergien und -zustände bestimmt. Die untersuchten Quantenpunkte sind in den Tabellen A.4, A.5 und A.6 ausführlich angegebenen. Abbildung 4.10 zeigt die Ergebnisse für den kleinsten Quantenpunkt. Für höhere Aluminiumkonzentrationen steigen die Energien der Elektronenzustände an und fallen die der Lochzustände ab. Die Bindungsenergien steigen also auch mit höherer Aluminiumkonzentration im Barrierenmaterial. Die s - und p -artigen Zustände rücken für steigende Aluminiumkonzentration im Barrierenmaterial sowohl bei den Elektronen als auch bei den Löchern energetisch weiter auseinander (siehe Abbildung 4.11). Gleiches gilt für p - und d -artige Zustände bei den Elektronen. Bei den Löchern hingegen bleiben die Abstände etwa gleich, was sich erneut dadurch erklären lässt, dass p - beziehungsweise d -Artigkeit nicht wirklich eindeutig festlegbar ist.

Bei den Löchern sinkt die Energie des ersten Wetting-Layer Zustandes für höhere Aluminiumkonzentrationen im Barrierenmaterial. Bei den Elektronen gibt es ein bemerkenswerteres Verhalten. Für Aluminiumkonzentrationen im Bereich zwischen 10% und 40% steigt die Energie des Wetting-Layer Zustandes an, im Bereich zwischen 50% und 90% sinkt sie wieder. Dementsprechend gibt es lediglich im Bereich zwischen 30% und 60% gebundene p -artige und nur im Bereich zwischen 40% und 50% d -artige Zustände. Der Wechseln von zunehmender zu abnehmender Energie des Wetting-Layer Zustandes findet gerade in dem Konzentrationsbereich statt, in dem das AlGaAs-Materialsystem von einer direkten Bandlücke am Γ -Punkt zu einer indirekten Bandlücke am X-Punkt wechselt (siehe Abbildung 4.2). Das Leitungsbandminimum am X-Punkt schiebt sich mit zunehmender Aluminiumkonzentration unter das Leitungsbandminimum am Γ -Punkt. Für das Elektron ist es somit energetisch günstiger, nicht

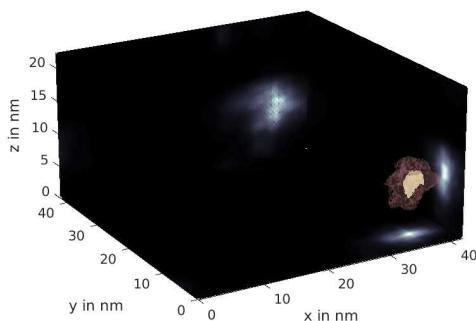


Abbildung 4.9: Aufenthaltswahrscheinlichkeit für einen im Barrierenmaterial lokalisierten Elektronenzustand ($d = 25 \text{ nm}$, $h = 3,5 \text{ nm}$, WL = 4 in $\text{Al}_{0,7}\text{Ga}_{0,3}\text{As}$). Die Seitenflächen zeigen jeweils die entlang x , y beziehungsweise z aufsummierten Aufenthaltswahrscheinlichkeiten. Hell sind hohe, dunkel niedrige Aufenthaltswahrscheinlichkeiten eingezeichnet. Die Isoflächen sind bei 20% beziehungsweise 60% der maximalen Aufenthaltswahrscheinlichkeit eingezeichnet. Die höchste Aufenthaltswahrscheinlichkeit ist nicht im Quantenpunkt, sondern im Barrierenmaterial.

4 Ergebnisse und Diskussion

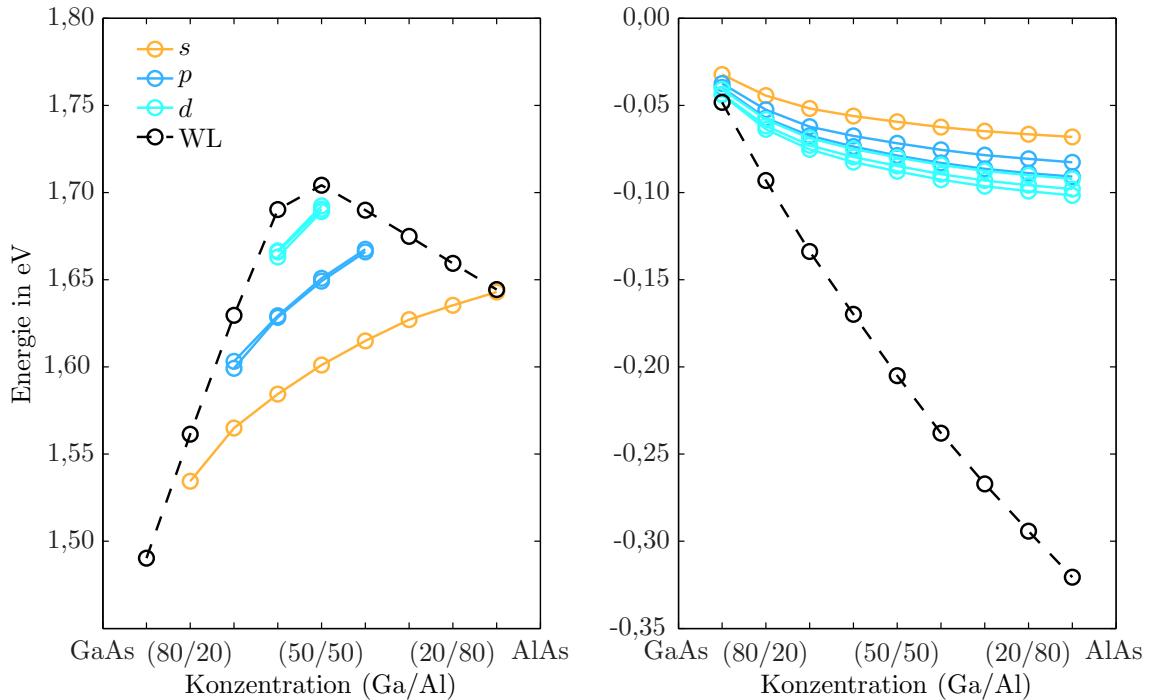


Abbildung 4.10: Eigenenergien der ersten sechs Elektronen- (links) und Lochzustände (rechts) für einen reinen GaAs-Quantenpunkt ($d = 25 \text{ nm}$, $h = 3,5 \text{ nm}$, $\text{WL} = 4$) für verschiedene Ga/Al Konzentrationen im Barrierenmaterial. Die Energien sind jeweils zweifach entartet. Gestrichelt ist die Energie des energetisch am niedrigsten (Elektronen) bzw. am höchsten (Löcher) gelegenen Wetting-Layer Zustandes eingezeichnet. Die Zustände sind nach s -, p -, beziehungsweise d -artiger Symmetrie farblich sortiert.

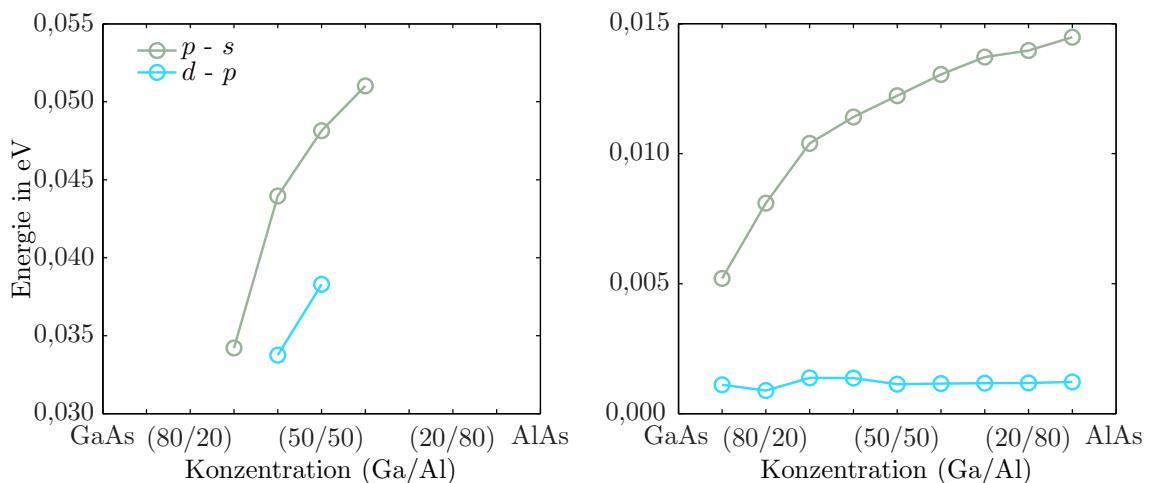


Abbildung 4.11: Energieabstände zwischen benachbarten s - und p -, beziehungsweise p - und d -Zuständen für Elektronen (links) und Löcher (rechts) für einen reinen GaAs-Quantenpunkt ($d = 25 \text{ nm}$, $h = 3,5 \text{ nm}$, $\text{WL} = 4$) für verschiedene Ga/Al-Konzentrationen im Barrierenmaterial.

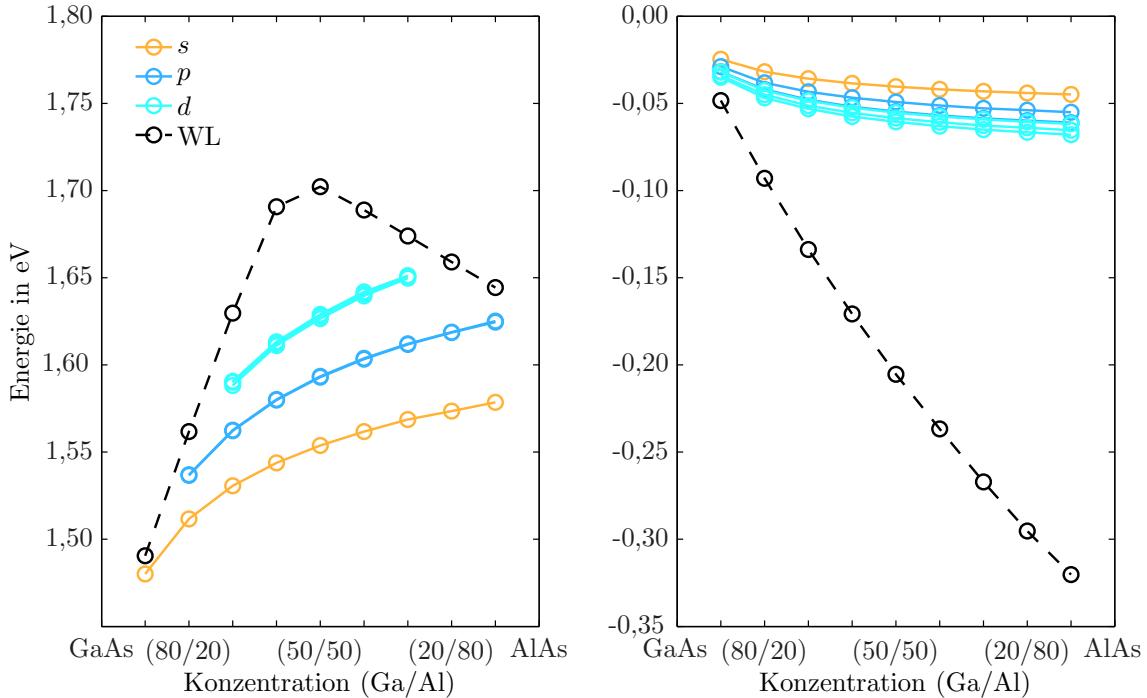


Abbildung 4.12: Eigenenergien der ersten sechs Elektronen- (links) und Lochzustände (rechts) für einen reinen GaAs-Quantenpunkt ($d = 35 \text{ nm}$, $h = 4,9 \text{ nm}$, WL = 4) für verschiedene Ga/Al Konzentrationen im Barrierenmaterial. Die Energien sind jeweils zweifach entartet. Gestrichelt ist die Energie des energetisch am niedrigsten (Elektronen) bzw. am höchsten (Löcher) gelegenen Wetting-Layer Zustandes eingezeichnet. Die Zustände sind nach s -, p -, beziehungsweise d -artiger Symmetrie farblich sortiert.

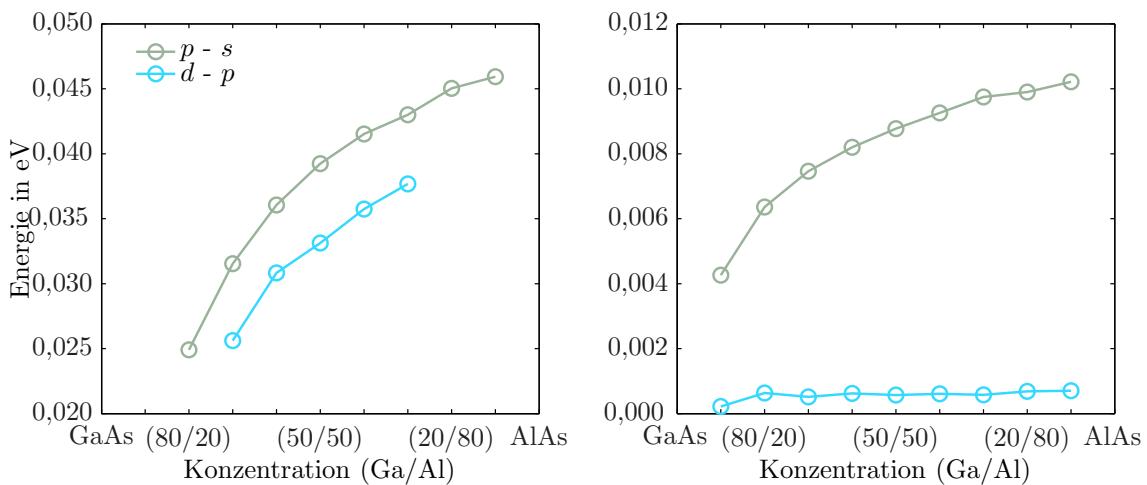


Abbildung 4.13: Energieabstände zwischen benachbarten s - und p -, beziehungsweise p - und d -Zuständen für Elektronen (links) und Löcher (rechts) für einen reinen GaAs-Quantenpunkt ($d = 35 \text{ nm}$, $h = 4,9 \text{ nm}$, WL = 4) für verschiedene Ga/Al-Konzentrationen im Barrierenmaterial.

4 Ergebnisse und Diskussion

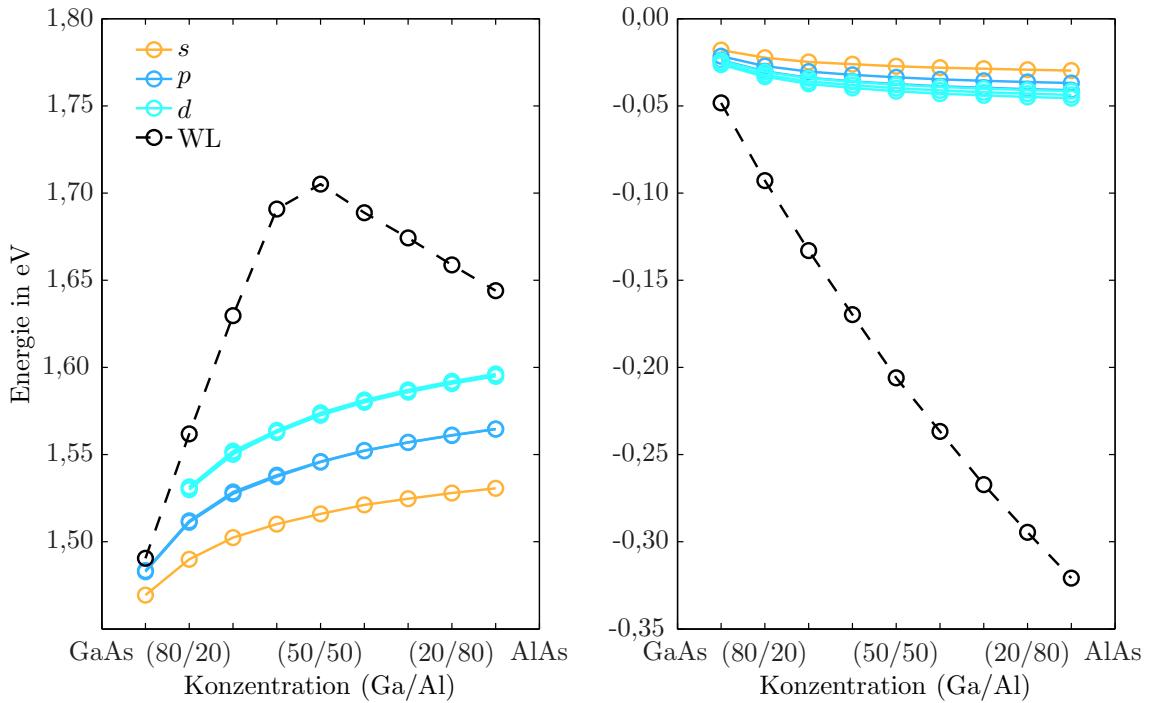


Abbildung 4.14: Eigenenergien der ersten sechs Elektronen- (links) und Lochzustände (rechts) für einen reinen GaAs-Quantenpunkt ($d = 45 \text{ nm}$, $h = 6,3 \text{ nm}$, WL = 4) für verschiedene Ga/Al Konzentrationen im Barrierenmaterial. Die Energien sind jeweils zweifach entartet. Gestrichelt ist die Energie des energetisch am niedrigsten (Elektronen) bzw. am höchsten (Löcher) gelegenen Wetting-Layer Zustandes eingezeichnet. Die Zustände sind nach s -, p -, beziehungsweise d -artiger Symmetrie farblich sortiert.

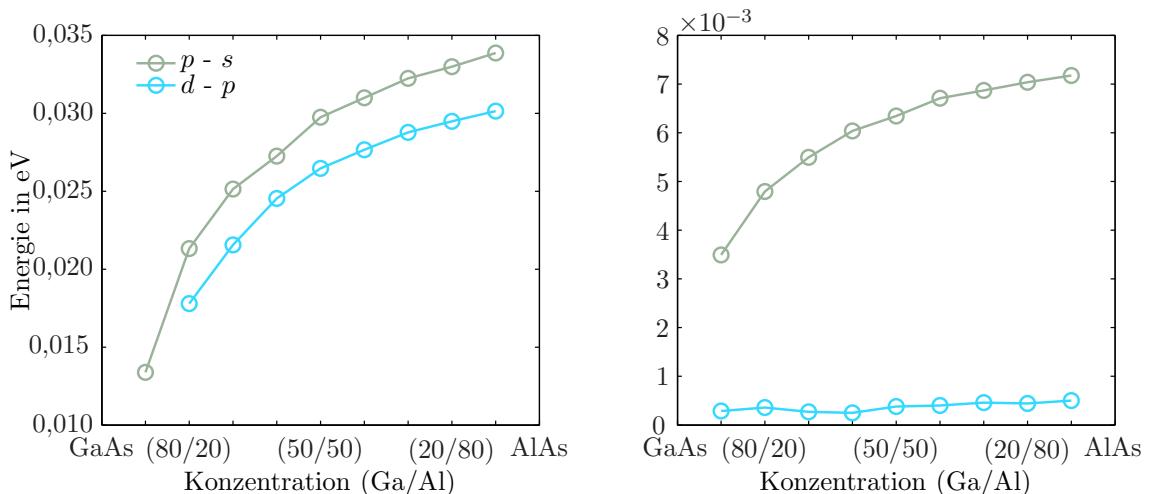


Abbildung 4.15: Energieabstände zwischen benachbarten s - und p -, beziehungsweise p - und d -Zuständen für Elektronen (links) und Löcher (rechts) für einen reinen GaAs-Quantenpunkt ($d = 45 \text{ nm}$, $h = 6,3 \text{ nm}$, WL = 4) für verschiedene Ga/Al-Konzentrationen im Barrierenmaterial.

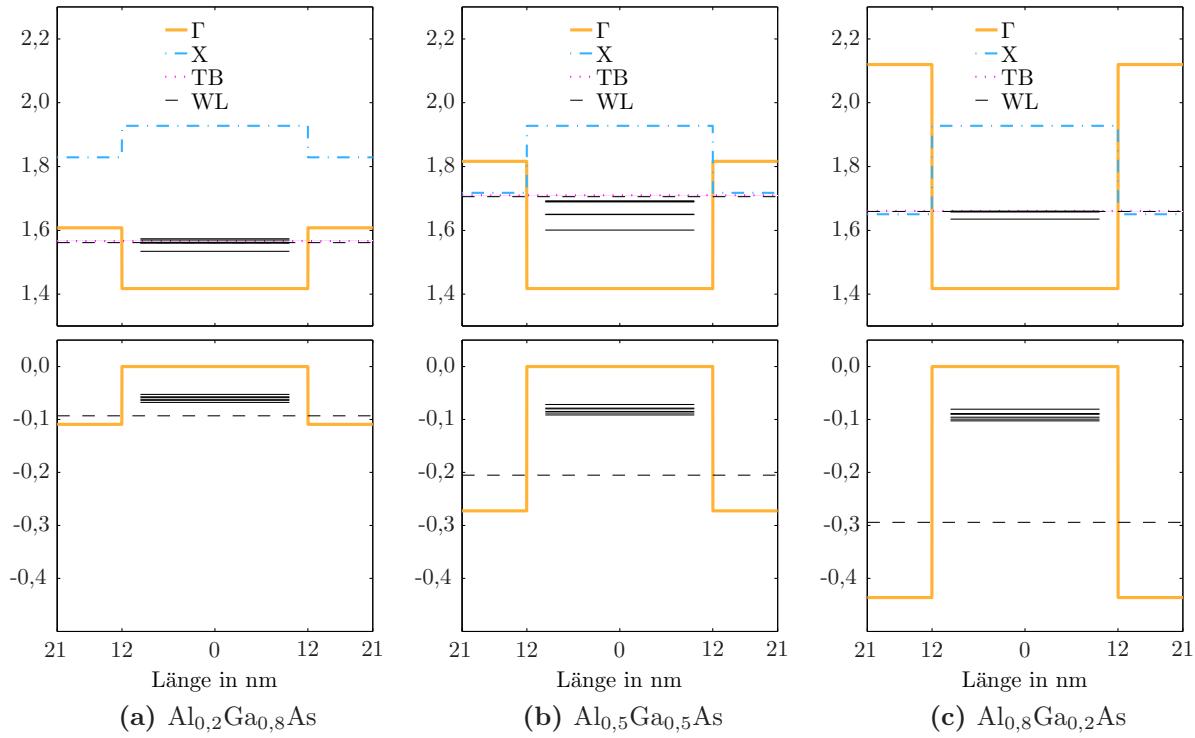


Abbildung 4.16: Potentialverläufe für Quantenpunkte gleicher Größe aus reinem GaAs in AlGaAs mit verschiedenen Ga/Al-Konzentrationen. Die oberen Teile zeigen die Potentialböpfe für den Γ - und X -Punkt, sowie die in Kapitel 4.1.2 bestimmten Werte für die obere Bandkante und den energetisch niedrigsten Elektronen Wetting-Layer Zustand sowie die ersten sechs Energieniveaus (zweifach Spin-entartet) der Elektronen. Die unteren Abbildungen zeigen den Verlauf des Γ -Topfes sowie die ersten sechs Loch-Niveaus und den energetisch niedrigsten Wetting-Layer Zustand. Die vertikale Achse gibt Energien in eV an. Horizontal sind Längen durch die Mitte der Superzelle angegeben.

mehr im Quantenpunkt, sondern im Barriermaterial lokalisiert zu sein. Das lässt sich auch an den Aufenthaltswahrscheinlichkeiten erkennen, die nun ihren höchsten Wert außerhalb des Quantenpunktes im Barriermaterial annehmen (Abbildung 4.9). Die Zustände sind also keine Wetting-Layer Zustände im eigentlichen Sinne mehr. Für niedrige Aluminiumkonzentrationen (10% bis 30%) hingegen sind die höheren, nicht im Quantenpunkt gebundenen Zustände Wetting-Layer Zustände. Durch Wahl der Konzentrationen im Barriermaterial wird also vorgegeben, wie viele gebundene Elektronenzustände es gibt. So können zum Beispiel bei entsprechender Konzentrationswahl trotz gleichbleibender Größe des Quantenpunktes sowohl lediglich s -artige, s - und p -artige als auch s -, p - und d -artige gebundene Elektronenzustände realisiert werden.

Bei Vergrößerung des Quantenpunktes ($d = 35 \text{ nm}$, $h = 4,9 \text{ nm}$, $\text{WL} = 4$) liegen die Energien der Elektronenzustände insgesamt niedriger (Abbildung 4.12). Dort gibt es für Aluminiumkonzentrationen höher als 20% gebundene p -artige Zustände. Gebundene d -artige Zustände kommen ebenfalls in einem größeren Konzentrationsbereich zwischen 30% und 70% vor. Für den noch größeren Quantenpunkt ($d = 45 \text{ nm}$, $h = 6,3 \text{ nm}$, $\text{WL} = 4$) liegen die Energien erneut niedriger (siehe Abbildung 4.14) und für alle untersuchten Aluminiumkonzentrationen gibt es gebundene s - und p -artige Zustände, d -artige Zustände im Bereich zwischen 20% und 90% Aluminium. Im Bereich zwischen 40% und 50% Aluminium im Barriermaterial liegt also unabhängig von der Größe des Quantenpunktes immer die größte Anzahl an gebundenen Elektronenzuständen vor. Bei größeren Quantenpunkten ergeben sich mehr gebundene Zustände als bei kleinen und

4 Ergebnisse und Diskussion

der nutzbare Konzentrationsbereich weitet sich aus. Ist man daran interessiert, viele gebundene Zustände zu erhalten, bietet es sich somit an, möglichst große Quantenpunkte in einem Konzentrationsbereich von 40% bis 50% Aluminium im Barriermaterial zu verwenden. Möchte man wiederum weniger gebundene Zustände realisieren, sind kleinere Quantenpunkte zu verwenden oder die Aluminiumkonzentration im Barriermaterial entsprechend zu wählen.

Abbildung 4.16 zeigt die Potentialtöpfe für Quantenpunkte der gleichen Größe, aber Barriermaterial mit unterschiedlichen Ga/Al-Konzentrationen. Für geringere Aluminiumkonzentrationen im Barriermaterial sind die Energien am Γ -Punkt sowohl für das Quantenpunkt- als auch das Barriermaterial sehr nahe beieinander, die Γ -Töpfe sind also weniger tief. Für höhere Aluminiumkonzentrationen werden die Potentialtöpfe tiefer. Das Leitungsbandminimum am X-Punkt liegt beim GaAs energetisch höher als bei den AlGaAs-Legierungen (siehe Abbildung 4.2), der X-Topf ist also verkehrt herum. Für höhere Aluminiumkonzentrationen im Barriermaterial senkt sich der X-Punkt energetisch nach unten.

Bei den Lochzuständen liegen für alle gezeigten Barriermaterialien gebundene s -, p - und d -artige Zustände vor. Der Potentialtopf wird mit geringerer Aluminiumkonzentration zwar flacher, reicht aber aus, dass die genannten gebundenen Zustände vorliegen. Bei den Elektronen ist für geringe Aluminiumkonzentrationen im Barriermaterial der Γ -Topf sehr flach. Es liegen lediglich gebundene s -artige Zustände vor. Höhere Zustände sind Wetting-Layer Zustände. Für mittlere Aluminiumkonzentrationen wird der Potentialtopf tiefer und es gibt gebundene s -, p - und d -artige Zustände. Der X-Topf schiebt sich weiter nach unten und das Barriermaterial wechselt von direkter zu indirekter Bandlücke (X liegt niedriger als Γ). Für höhere Aluminiumkonzentrationen ist der Γ -Potentialtopf noch tiefer, allerdings schiebt sich der X-Topf nun so weit nach unten, dass es energetisch günstigere Elektronenzustände im Barriermaterial gibt. Zwar gibt es noch einen gebundenen s -artigen Zustand, energetisch höher liegende Zustände sind aber (räumlich) nicht mehr im Quantenpunkt, sondern im Barriermaterial (Abbildung 4.9). Sowohl Größe des Quantenpunktes, als auch die Aluminiumkonzentration im Barriermaterial müssen also sinnvoll gewählt werden, damit überhaupt gebundene Zustände im Quantenpunkt vorliegen.

4.2.5 Variation der Höhe

Für feste Ga/Al-Konzentration im Barriermaterial ($\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$), feste Anzahl an Wetting-Layer Monolagen ($\text{WL} = 4$) und festen Durchmesser $d = 30\text{ nm}$ wurden die Eigenzustände für Quantenpunkte unterschiedlicher Höhe ($h = 2,4 \dots 6,0\text{ nm}$) bestimmt (Abbildung 4.17). Die Höhen wurden so gewählt, dass verschiedene Verhältnisse $d/h = 0,08 \dots 0,20$ realisiert werden konnten. Die untersuchten Quantenpunkte sind in Tabelle A.7 aufgeführt. Für größere Höhen liegen wie schon in Kapitel 4.2.3 die Energien der Elektronenzustände niedriger, die der Lochzustände höher. Die Bindungsenergien steigen auch mit zunehmender Höhe, aber konstantem Durchmesser des Quantenpunktes an. Die Zahl gebundenen Zuständen nimmt vermutlich für größere Quantenpunkte zu, wobei allerdings nur die ersten zwölf Eigenzustände bestimmt wurden. Für alle untersuchten Quantenpunkte gab es gebundene s -, p - und d -artige Zustände sowohl bei den Elektronen als auch bei den Löchern. Für größere Höhen, aber konstanten Durchmesser des Quantenpunktes rücken die s - und p -artigen beziehungsweise p - und d -artigen Energieniveaus der Elektronenzustände auseinander (Abbildung 4.18). Bei den s - und p -artigen Lochzuständen wiederum rücken die Energien näher aneinander. Für die p - und d -artigen Lochzustände kann keine Aussage getroffen werden.

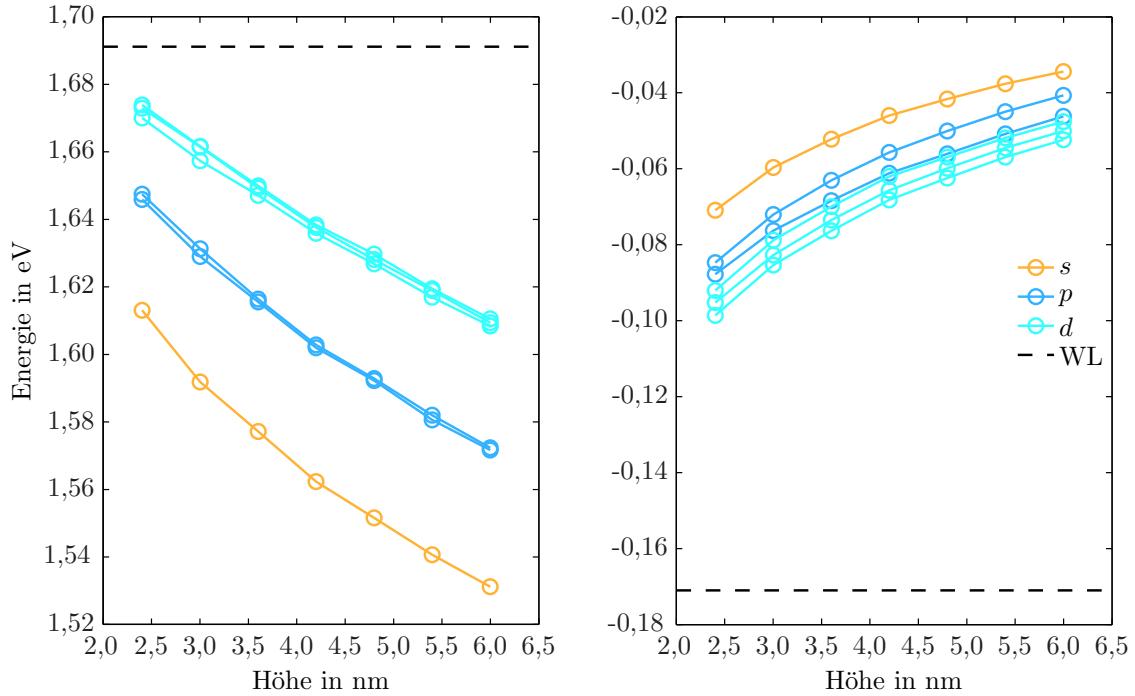


Abbildung 4.17: Eigenenergien der ersten sechs Elektronen- (links) und Lochzustände (rechts) für einen reinen GaAs-Quantenpunkt mit festem Durchmesser und variabler Höhe ($d = 30 \text{ nm}$, $h = 2,4 \dots 6,0 \text{ nm}$, WL = 4) in $\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$. Die Energien sind jeweils zweifach entartet. Gestrichelt ist die Energie des energetisch am niedrigsten (Elektronen) bzw. am höchsten (Löcher) gelegenen Wetting-Layer Zustandes eingezeichnet. Die Zustände sind nach s -, p -, beziehungsweise d -artiger Symmetrie farblich sortiert.

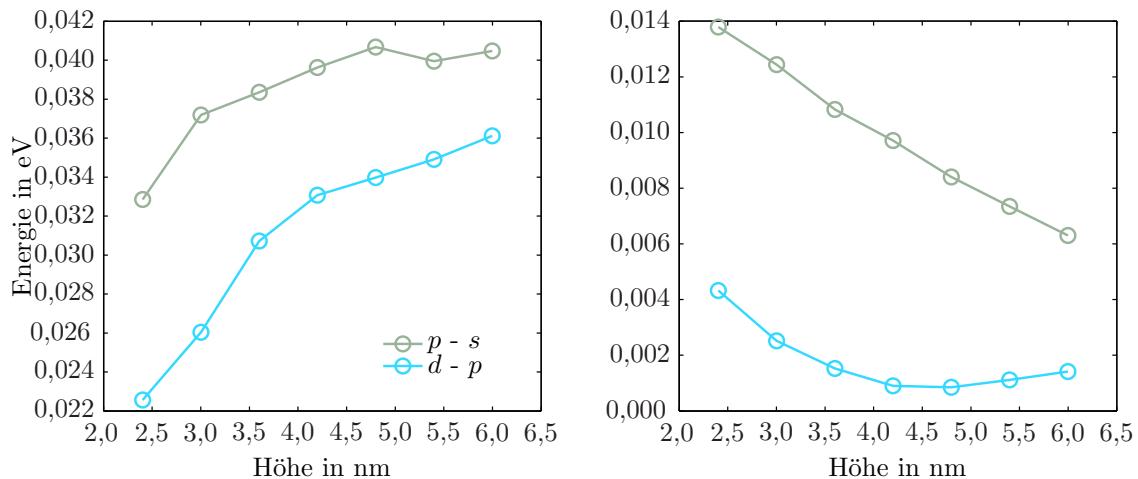


Abbildung 4.18: Energieabstände zwischen benachbarten s - und p - (links) und p - und d -Zuständen für Elektronen (links) und Löcher (rechts) für einen reinen GaAs-Quantenpunkt mit festem Durchmesser und variabler Höhe ($d = 30 \text{ nm}$, $h = 2,4 \dots 6,0 \text{ nm}$, WL = 4) in $\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$.

4 Ergebnisse und Diskussion

4.2.6 Variation des Durchmessers

Für $\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$ als Barrierenmaterial, feste Anzahl an Wetting-Layer Monolagen (WL = 4) und feste Höhe $d = 4,8 \text{ nm}$ wurden die Eigenzustände für Quantenpunkte mit unterschiedlichem Durchmesser ($d = 24 \dots 60 \text{ nm}$) bestimmt (Abbildung 4.19). Der Durchmesser wurde so gewählt, dass verschiedene Verhältnisse $d/h = 0,08 \dots 0,20$ realisiert werden konnten. Die untersuchten Quantenpunkte sind in Tabelle A.8 aufgeführt. Für größere Durchmesser liegen erneut die Energien der Elektronenzustände niedriger, die der Lochzustände höher. Die Bindungsenergien steigen auch mit zunehmendem Durchmesser, aber konstanter Höhe des Quantenpunktes an. Auch hier gab es für alle untersuchten Quantenpunkte gebundene s -, p - und d -artige Zustände sowohl bei den Elektronen als auch bei den Löchern. Für feste Höhe, aber variablen Durchmesser rücken die Energieniveaus der Elektronen für größere Durchmesser näher zusammen (siehe Abbildung 4.20). Für die Energieniveaus der Lochzustände kann keine eindeutige Aussage getroffen werden. Auffällig ist, dass ein Erhöhen des Durchmessers bei den Energieniveaus der Elektronen gerade einen gegenteiligen Effekt hat als ein Vergrößern der Höhe. Für größere Durchmesser rücken die Niveaus näher zusammen, wohingegen sie für größere Höhen auseinander rücken. Vergrößert man den Quantenpunkt als Ganzes und behält das Verhältnis von Höhe zu Durchmesser bei, dominiert der Effekt des größer werdenden Durchmessers und die Energieniveaus rücken näher zusammen.

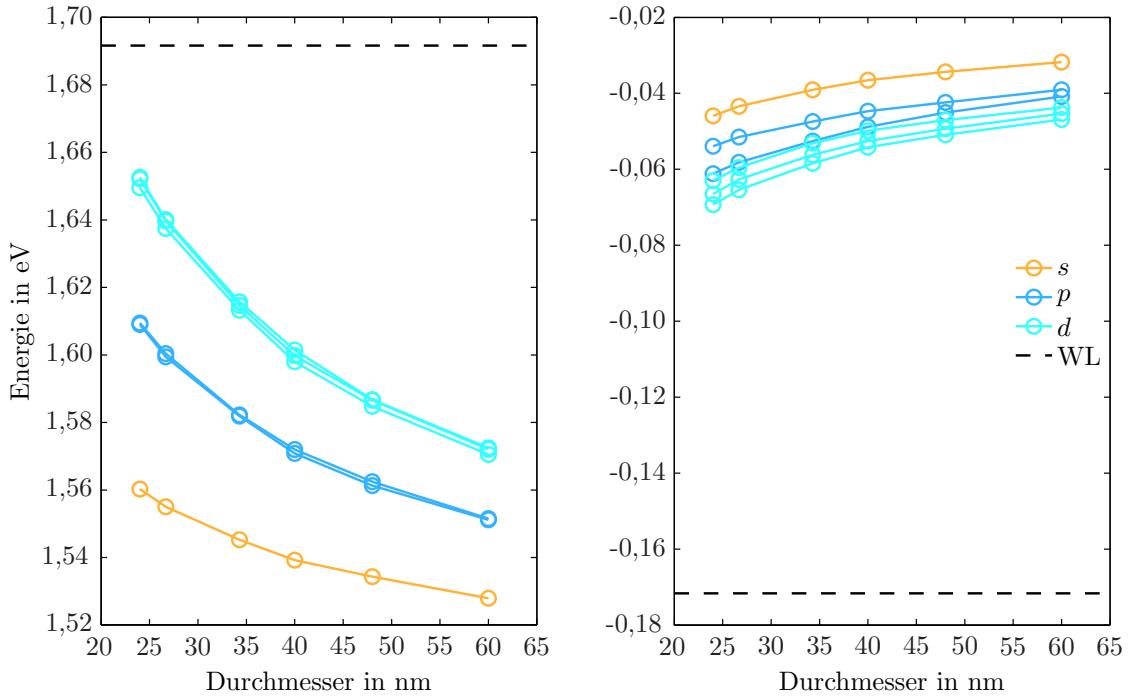


Abbildung 4.19: Eigenenergien der ersten sechs Elektronen- (links) und Lochzustände (rechts) für einen reinen GaAs-Quantenpunkt mit fester Höhe und variablem Durchmesser ($d = 24 \dots 60$ nm, $h = 4,8$ nm, WL = 4) in $\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$. Die Energien sind jeweils zweifach entartet. Gestrichelt ist die Energie des energetisch am niedrigsten (Elektronen) bzw. am höchsten (Löcher) gelegenen Wetting-Layer Zustandes eingezeichnet. Die Zustände sind nach s -, p -, beziehungsweise d -artiger Symmetrie farblich sortiert.

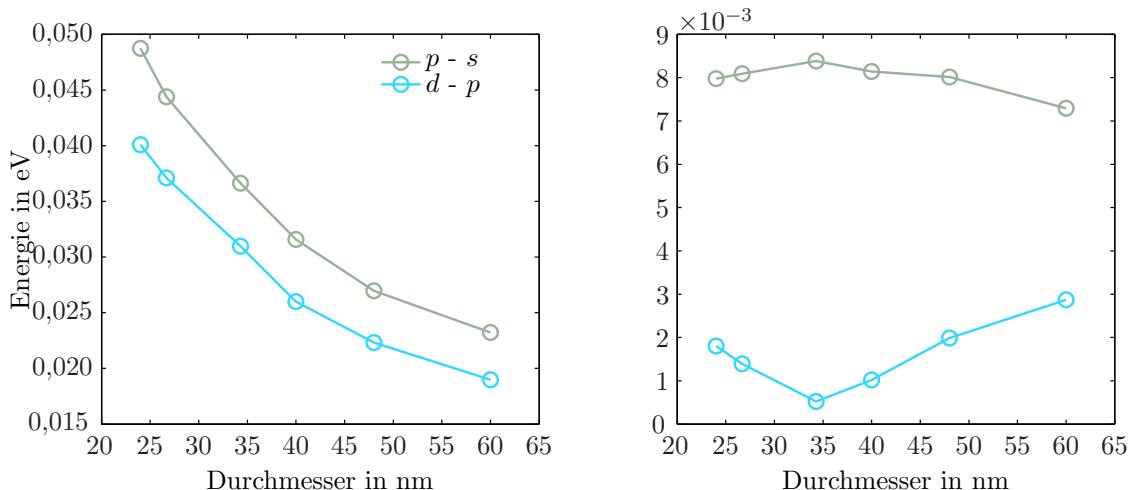


Abbildung 4.20: Energieabstände zwischen benachbarten s - und p -, beziehungsweise p - und d -Zuständen für Elektronen (links) und Löcher (rechts) für einen reinen GaAs-Quantenpunkt mit fester Höhe und variablem Durchmesser ($d = 24 \dots 60$ nm, $h = 4,8$ nm, WL = 4) in $\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$.

4 Ergebnisse und Diskussion

5 Zusammenfassung und Ausblick

Die in Kapitel 2 beschriebenen Tight-Binding-Methode konnte erfolgreich auf GaAs/AlGaAs-Quantenpunkte angewandt werden. Dabei wurde zunächst ein geeigneter Satz von Parametern (Tabelle A.1) gefunden, der die Bandlückenwerte am Γ - und X-Punkt mit unter 1,5% Abweichung von den empfohlenen Werten [35] für die Bulk Materialien GaAs und AlAs reproduziert. Das X-Minimum lag bei Aluminium nicht exakt am X-Punkt, sondern lediglich in der Nähe. Die Bandlückenwerte am L-Punkt wichen mit 13% beziehungsweise 17% beim GaAs beziehungsweise AlAs stärker vom empfohlenen Wert ab, weshalb die energetische Ordnung der Leitungsbandminima beim GaAs Γ -L-X nicht korrekt wiedergegeben werden konnte (Kapitel 4.1.1). Aus den Bandlückenwerten der reinen Materialien konnten die Bandlücken und Bandkanten für AlGaAs-Legierungen mit verschiedenen Ga/Al-Konzentrationen bestimmt werden (Abbildung 4.2). Dies geschah übereinstimmend mittels Bowing-Kurven und Berechnungen mit dem Tight-Binding-Programm. Im Konzentrationsbereich von 40% bis 50% Aluminium ging das Materialsystem von einer direkten Bandlücke am Γ -Punkt zu einer indirekten Bandlücke am X-Punkt über (Kapitel 4.1.2).

Schließlich gelang die technische Umsetzung der Tight-Binding-Methode auf Großrechnern des *HLRN* für Quantenpunkte bis zu einem Durchmesser von etwa 60 nm. Dabei wurde in Kapitel 3 zum einen aufgezeigt, wie eine mögliche konkrete Vorgehensweise zur Programmierung einer Tight-Binding-Simulation ist, wo die Grenzen liegen und wie sie in Zukunft auf prinzipiell nicht mehr großenbeschränkte Quantenpunkte übertragen werden kann. Die Simulation erfolgte in sp^3s^* -Basis mit Berücksichtigung der Spin-Bahn-Wechselwirkung mit On-Site-Mittelung und ohne Berücksichtigung einer Verspannungsrechnung für Quantenpunkte im Größenbereich zwischen $d = 10$ nm bis $d = 60$ nm im Durchmesser und, die Herstellungsmethoden wider spiegelnd, Verhältnissen von Höhe zu Durchmesser im Bereich von $h/d = 0,8$ bis $h/d = 2,0$. Dabei wurden ausschließlich kegelförmige Quantenpunkte aus reinem GaAs auf einem GaAs Wetting-Layer, eingebettet in AlGaAs-Barrierenmaterial variabler Ga/Al-Konzentration untersucht (Kapitel 4.2.1). Die Abhängigkeiten der Einteilchenzustände sowie Einteilchenenergien von der Ga/Al-Konzentration des Barrierenmaterials sowie von der Größe, der Höhe und des Durchmessers der Quantenpunkte wurden untersucht. Es konnten gebundene Elektronenzustände, je einer mit s -, zwei mit p - und drei mit d -artige Symmetrien (jeweils zweifach Spin-entartet) gefunden werden. Bei den gebundenen Lochzuständen waren nur schwer eindeutige Symmetrien erkennbar (Kapitel 4.2.2). In den Kapiteln 4.2.3, 4.2.5 und 4.2.6 wurden die Auswirkungen der Größe des Quantenpunktes auf die Energien der gebundenen Zustände untersucht. Für größere Größen liegen die Elektronenzustände energetisch niedriger, die Lochzustände höher (Abbildungen 4.6, 4.17 und 4.19) und die Bindungsenergien steigen. Dabei rückten die Energieniveaus bei gleichbleibendem Durchmesser, aber größerer Höhe des Quantenpunktes tendenziell weiter auseinander (Abbildung 4.18). Bei gleichbleibender Höhe aber größer werdendem Durchmesser konnte eine gegenteiliger Effekt festgestellt werden (Abbildung 4.20). Variiert man die Größe des Quantenpunktes bei gleichbleibendem Verhältnis h/d dominiert die Auswirkung der Durchmesseränderung und die Zustände rücken näher aneinander (Abbildung 4.7). Dabei beziehen sich die eben erwähnten Tendenzen meist lediglich auf die Elektronenzustände. Bei den Lochzuständen konnte dies nicht deutlich genug festgestellt werden.

5 Zusammenfassung und Ausblick

Für drei verschiedene aber feste Quantenpunktgeometrien wurde zudem der Ga/Al-Konzentrationsgehalt im Barrierenmaterial variiert (Kapitel 4.2.4). Für höhere Aluminiumkonzentrationen stiegen die Energien der Elektronenzustände, wohingegen sie für die Lochzustände sanken (Abbildungen 4.10, 4.12 und 4.14). Die Energieniveaus lagen dann tendenziell weiter auseinander (Abbildungen 4.11, 4.13 und 4.15). Bei den Elektronenzuständen stiegen im Konzentrationsbereich bis 40% Aluminium die Energien der Wetting-Layer Zustände. Für Aluminiumkonzentrationen über 50% ging das AlGaAs-Materialsystem von einer direkten zu einer indirekten Bandlücke über, sodass es dann im Barrierenmaterial lokalisierte Zustände gab, die energetisch günstiger waren, als Zustände im Quantenpunkt oder Wetting-Layer. Dies konnte darauf zurückgeführt werden, dass sich das X-Minimum mit zunehmender Aluminiumkonzentration energetisch immer weiter nach unten und schließlich unter das Γ -Minimum schob. Es gab also einen von der Größe des Quantenpunktes, sowie von der Aluminiumkonzentration des Barrierenmaterials abhängigen Bereich, in dem überhaupt gebundene Elektronenzustände im Quantenpunkt vorlagen. Je größer der Quantenpunkt war, desto geringer war die Rolle, die die Aluminiumkonzentration spielte. Für kleine Quantenpunkte schnürte sich der Bereich der passenden Aluminiumkonzentration immer weiter in Richtung 40% bis 50% zusammen.

Für zukünftige Arbeiten bleiben, neben der Erweiterung des Simulationsprogramms auf Quantenpunkte unbegrenzter Größe, folgende Fragen offen:

- Wie wirken sich andere Quantenpunktgeometrien aus?
- Wie wirkt sich der Wetting-Layer aus, beziehungsweise wie kann ein Wetting-Layer betrachtet werden, der die experimentellen Herstellungsweisen der Quantenpunkte besser widerspiegelt?
- Wie wirken sich Brüche in der Symmetrie der Quantenpunktes aus?
- Ist die Vernachlässigung von Verspannungseffekten gerechtfertigt?
- Wie viel Unterschied bringt es, weitere Nachbarn zu berücksichtigen?
- Gibt es eine kleinere Basis, die dennoch angemessene Ergebnisse liefert (um eventuell Rechenzeit zu sparen)?
- Ist zum Beispiel ein EBOM-Modell (*effective bond-orbital model*) eine mögliche Rechenzeit sparende, aber dennoch angemessene Alternative?

Darüberhinaus schließt sich entsprechend noch die Untersuchung von Vielteilcheneffekten, wie in [13] an. Aus den Einteilcheneigenschaften können Coulombmatrixelemente, Dipolmatrixelemente und so weiter bestimmt werden, die die Grundlagen zu zum Beispiel Configuration Interaction Rechnungen und Bestimmungen der Spektren und der Feinstrukturaufspaltung bilden. Vor allem letztgenannte können dann in direkten Bezug zu den in der Einleitung vorgestellten neueren experimentellen Ergebnissen gesetzt werden.

A Anhang

Es folgen die aus dem Text ausgelagerten Tabellen. Tabelle A.1 zeigt die verwendeten Tight-Binding-Parameter (nach [27]). In Tabelle A.2 sind die nächste-Nachbar-Indizes für Atome, für die die periodischen Randbedingungen relevant sind, aufgeführt. Anschließend folgen in den Tabellen A.4 bis A.8 ausführliche Informationen über alle in dieser Arbeit untersuchten Quantenpunkte samt geometrischen Abmessungen (Höhe, Durchmesser), Anzahl der Wetting-Layer und Größe der Superzelle sowie der Ga/Al-Konzentrationen im Barrierenmaterial.

Tabelle A.1: Die für die Rechnungen verwendeten Tight-Binding Parameter nach [27] und Gitterkonstanten nach [37]. ΔE_v gibt den Valenzbandversatz an. Angaben in eV.

Parameter	GaAs	AlAs
E_{sA}	-8,510704	-7,738226
E_{pA}	0,954046	0,872374
E_{sC}	-2,774754	-1,101736
E_{pC}	3,434046	3,475774
E_{s^*A}	8,454046	7,373508
E_{s^*C}	6,584046	6,615774
V_{ss}	-6,451300	-6,664200
V_{xx}	1,954600	1,878000
V_{xy}	4,770000	3,860000
V_{sApC}	4,680000	5,600000
V_{sCpA}	7,700000	6,800000
V_{s^*ApC}	4,850000	4,220000
V_{s^*CpA}	7,010000	7,300000
$\Delta_a = 3\lambda_A$	0,420000	0,420000
$\Delta_c = 3\lambda_C$	0,174000	0,024000
ΔE_v	0,000000	-0,545148
a in nm	0,56533	wie GaAs

Tabelle A.2: Indizes j , k , l und m der vier nächsten Nachbaratome des Atoms i , je nach Typ des Atoms i für diejenigen Atome, für die eine Berücksichtigung der periodischen Randbedingungen notwendig ist. Mit \otimes sind die Nachbarn markiert, für die die Randbedingungen nicht relevant sind. E_x , E_y und E_z sind die Anzahl an Elementarzellen in x -, y - beziehungsweise z -Richtung. N ist die Gesamtzahl der Atome in der Superzelle und berechnet sich nach Gleichung 3.1.

Typ		NN1	NN2	NN3	NN4
1	$-x$	\otimes	$i - 1 + E_x + 2E_xE_y$	$i - 1 - 2E_xE_y$	\otimes
	$-y$	$i - E_x + 4E_xE_y$	\otimes	$i - 1 - E_x$	\otimes
	$-z$	\otimes	\otimes	$i - 1 - E_x - 2E_xE_y + N$	$i - 2E_xE_y + N$
	$-x, -y$	\otimes	\otimes	$i - 1$	\otimes
	$-x, -z$	\otimes	\otimes	$i - 1 - E_x + N$	\otimes
	$-y, -z$	\otimes	\otimes	$i - 1 - 2E_xE_y + N$	\otimes
	$-x, -y, -z$	\otimes	\otimes	N	\otimes
2	$-z$	\otimes	\otimes	$i - E_x - 2E_xE_y + N$	$i - 2E_x + N$
3	$-y$	$i - E_x + 4E_xE_y$	\otimes	$i - E_x$	\otimes
4	$-x$	\otimes	$i - 1 + E_x + 2E_xE_y$	$i - 1 - 2E_xE_y$	\otimes
5	x	\otimes	$i + 1 + 2E_xE_y$	$i + 1 - E_x - 2E_xE_y$	\otimes
6	y	\otimes	$i + E_x$	\otimes	$i - E_x - 4E_xE_y$
7	z	$i + 2E_xE_y - N$	$i + E_x + 2E_xE_y - N$	\otimes	\otimes
8	x	\otimes	$i + 1 + 2E_xE_y$	$i + 1 - E_x - 2E_xE_y$	\otimes
	y	\otimes	$i + 1 + E_x$	\otimes	$i + E_x - 4E_xE_y$
	z	$i + 2E_xE_y - N$	$i + 1 + E_x + 2E_xE_y - N$	\otimes	\otimes
	x, y	\otimes	$i + 1$	$i + 1 - E_x - 2E_xE_y$	$i + E_x - 4E_xE_y$
	x, z	\otimes	$i + 1 + 2E_xE_y - N$	\otimes	\otimes
	y, z	\otimes	$i + 1 + E_x - N$	\otimes	\otimes
	x, y, z	\otimes	1	\otimes	\otimes

Variation der Größe

Tabelle A.3: Die Abbildung 4.6 zugrunde liegenden untersuchten Quantenpunkte. Angegeben sind Durchmesser d und Höhe h des kegelförmigen reinen GaAs-Quantenpunktes sowie das Verhältnis h/d , die Anzahl der Wetting-Layer Monolagen, die Größe der Superzelle in Elementarzellen und das Barrierenmaterial.

d in nm	h in nm	h/d	WL	Zellengröße (EZ)	Material
10	1,4	0,14	4	$48 \times 48 \times 37$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
15	2,1	0,14	4	$57 \times 57 \times 39$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
20	2,8	0,14	4	$65 \times 65 \times 40$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
25	3,5	0,14	4	$75 \times 75 \times 40$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
30	4,2	0,14	4	$83 \times 83 \times 42$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
35	4,9	0,14	4	$92 \times 92 \times 44$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
40	5,6	0,14	4	$101 \times 101 \times 45$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
45	6,3	0,14	4	$110 \times 110 \times 46$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
50	7,0	0,14	4	$118 \times 118 \times 47$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
55	7,7	0,14	4	$127 \times 127 \times 49$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
60	8,4	0,14	4	$136 \times 136 \times 50$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$

Variation der Konzentration

Tabelle A.4: Die Abbildung 4.10 zugrunde liegenden untersuchten Quantenpunkte. Angegeben sind Durchmesser d und Höhe h des kegelförmigen reinen GaAs-Quantenpunktes sowie das Verhältnis h/d , die Anzahl der Wetting-Layer Monolagen, die Größe der Superzelle in Elementarzellen und das Barrierenmaterial.

d in nm	h in nm	h/d	WL	Zellengröße (EZ)	Material
25	3,5	0,14	4	$75 \times 75 \times 40$	$\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{As}$
25	3,5	0,14	4	$75 \times 75 \times 40$	$\text{Al}_{0,2}\text{Ga}_{0,8}\text{As}$
25	3,5	0,14	4	$75 \times 75 \times 40$	$\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$
25	3,5	0,14	4	$75 \times 75 \times 40$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
25	3,5	0,14	4	$75 \times 75 \times 40$	$\text{Al}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$
25	3,5	0,14	4	$75 \times 75 \times 40$	$\text{Al}_{0,6}\text{Ga}_{0,4}\text{As}$
25	3,5	0,14	4	$75 \times 75 \times 40$	$\text{Al}_{0,7}\text{Ga}_{0,3}\text{As}$
25	3,5	0,14	4	$75 \times 75 \times 40$	$\text{Al}_{0,8}\text{Ga}_{0,2}\text{As}$
25	3,5	0,14	4	$75 \times 75 \times 40$	$\text{Al}_{0,9}\text{Ga}_{0,1}\text{As}$

A Anhang

Tabelle A.5: Die Abbildung 4.12 zugrunde liegenden untersuchten Quantenpunkte. Angegeben sind Durchmesser d und Höhe h des kegelförmigen reinen GaAs-Quantenpunktes sowie das Verhältnis h/d , die Anzahl der Wetting-Layer Monolagen, die Größe der Superzelle in Elementarzellen und das Barrierenmaterial.

d in nm	h in nm	h/d	WL	Zellengröße (EZ)	Material
35	4,9	0,14	4	$92 \times 92 \times 44$	$\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{As}$
35	4,9	0,14	4	$92 \times 92 \times 44$	$\text{Al}_{0,2}\text{Ga}_{0,8}\text{As}$
35	4,9	0,14	4	$92 \times 92 \times 44$	$\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$
35	4,9	0,14	4	$92 \times 92 \times 44$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
35	4,9	0,14	4	$92 \times 92 \times 44$	$\text{Al}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$
35	4,9	0,14	4	$92 \times 92 \times 44$	$\text{Al}_{0,6}\text{Ga}_{0,4}\text{As}$
35	4,9	0,14	4	$92 \times 92 \times 44$	$\text{Al}_{0,7}\text{Ga}_{0,3}\text{As}$
35	4,9	0,14	4	$92 \times 92 \times 44$	$\text{Al}_{0,8}\text{Ga}_{0,2}\text{As}$
35	4,9	0,14	4	$92 \times 92 \times 44$	$\text{Al}_{0,9}\text{Ga}_{0,1}\text{As}$

Tabelle A.6: Die Abbildung 4.14 zugrunde liegenden untersuchten Quantenpunkte. Angegeben sind Durchmesser d und Höhe h des kegelförmigen reinen GaAs-Quantenpunktes sowie das Verhältnis h/d , die Anzahl der Wetting-Layer Monolagen, die Größe der Superzelle in Elementarzellen und das Barrierenmaterial.

d in nm	h in nm	h/d	WL	Zellengröße (EZ)	Material
45	6,3	0,14	4	$110 \times 110 \times 46$	$\text{Al}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{As}$
45	6,3	0,14	4	$110 \times 110 \times 46$	$\text{Al}_{0,2}\text{Ga}_{0,8}\text{As}$
45	6,3	0,14	4	$110 \times 110 \times 46$	$\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$
45	6,3	0,14	4	$110 \times 110 \times 46$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
45	6,3	0,14	4	$110 \times 110 \times 46$	$\text{Al}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$
45	6,3	0,14	4	$110 \times 110 \times 46$	$\text{Al}_{0,6}\text{Ga}_{0,4}\text{As}$
45	6,3	0,14	4	$110 \times 110 \times 46$	$\text{Al}_{0,7}\text{Ga}_{0,3}\text{As}$
45	6,3	0,14	4	$110 \times 110 \times 46$	$\text{Al}_{0,8}\text{Ga}_{0,2}\text{As}$
45	6,3	0,14	4	$110 \times 110 \times 46$	$\text{Al}_{0,9}\text{Ga}_{0,1}\text{As}$

Variation der Höhe

Tabelle A.7: Die Abbildung 4.17 zugrunde liegenden untersuchten Quantenpunkte. Angegeben sind Durchmesser d und Höhe h des kegelförmigen reinen GaAs-Quantenpunktes sowie das Verhältnis h/d , die Anzahl der Wetting-Layer Monolagen, die Größe der Superzelle in Elementarzellen und das Barrierenmaterial.

d in nm	h in nm	h/d	WL	Zellengröße (EZ)	Material
30	2,4	0,08	4	$85 \times 85 \times 45$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
30	3,0	0,10	4	$85 \times 85 \times 45$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
30	3,6	0,12	4	$85 \times 85 \times 45$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
30	4,2	0,14	4	$85 \times 85 \times 45$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
30	4,8	0,16	4	$85 \times 85 \times 45$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
30	5,4	0,18	4	$85 \times 85 \times 45$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
30	6,0	0,20	4	$85 \times 85 \times 45$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$

Variation des Durchmessers

Tabelle A.8: Die Abbildung 4.19 zugrunde liegenden untersuchten Quantenpunkte. Angegeben sind Durchmesser d und Höhe h des kegelförmigen reinen GaAs-Quantenpunktes sowie das Verhältnis h/d , die Anzahl der Wetting-Layer Monolagen, die Größe der Superzelle in Elementarzellen und das Barrierenmaterial.

d in nm	h in nm	h/d	WL	Zellengröße (EZ)	Material
60,00	4,8	0,08	4	$136 \times 136 \times 44$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
48,00	4,8	0,10	4	$115 \times 115 \times 44$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
40,00	4,8	0,12	4	$101 \times 101 \times 44$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
34,29	4,8	0,14	4	$91 \times 91 \times 44$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
30,00	4,8	0,16	4	$83 \times 83 \times 44$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
26,67	4,8	0,18	4	$78 \times 78 \times 44$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$
24,00	4,8	0,20	4	$75 \times 75 \times 44$	$\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}$

Literatur

- [1] Michael Wong. *CdSe Quantum Dots*. (aufgerufen am 30.08.2016). 2013. URL: https://en.wikibooks.org/wiki/Introduction_to_Inorganic_Chemistry/Basic_Science_of_Nanomaterials#/media/File:CdSe_Quantum_Dots.jpg.
- [2] Y. H. Huo u.a. *A light-hole exciton in a quantum dot*. In: *Nat Phys* (2014). URL: <http://dx.doi.org/10.1038/nphys2799>.
- [3] Allied Market Research. *Quantum Dots (QD) Market Revenue Will Reach \$5.04 Billion, Globally, by 2020*. (aufgerufen am 30.08.2016). 2014. URL: <https://www.alliedmarketresearch.com/press-release/quantum-dots-qd-market-revenue-will-reach-5-04-billion-globally-by-2020.html>.
- [4] Lita Person. *Quantum Dots (QD) Market by Technology*. In: *Allied Market Research* (2014).
- [5] Andy Vandervell. *Quantum Dots Explained: What are quantum dots and why are they so awesome?* (aufgerufen am 30.08.2016). 2016. URL: <http://www.trustedreviews.com/opinions/quantum-dots-explained-what-they-are-and-why-they-re-awesome>.
- [6] VuMA (Arbeitsgemeinschaft Verbrauchs und Medienanalyse). *Bevölkerung in Deutschland nach Anzahl der Fernsehgeräte im Haushalt von 2010 bis 2015 (Personen in Millionen)*. In: *Statista* (2015). URL: <http://de.statista.com/statistik/daten/studie/171950/umfrage/anzahl-der-fernseher-im-haushalt/>.
- [7] Judith Schumann. “Semi-empirisches Tight-Binding für InGaAs-Quantenpunkte”. Masterarbeit. Universität Bremen, 2016.
- [8] Y. H. Huo, A. Rastelli und O. G. Schmidt. *Ultra-small excitonic fine structure splitting in highly symmetric quantum dots on GaAs (001) substrate*. In: *Applied Physics Letters* (2013). URL: <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/102/15/10.1063/1.4802088>.
- [9] Y. H. Huo u.a. *Volume dependence of excitonic fine structure splitting in geometrically similar quantum dots*. In: *Phys. Rev. B* (2014). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.90.041304>.
- [10] Boris Melcher. “Tight-Binding-Beschreibung von zweidimensionalen Materialien”. Bachelorarbeit. Universität Bremen, 2014.
- [11] F. Bloch. *Über die Quantenmechanik der Elektronen in Kristallgittern*. In: *Zeitschrift für Physik* (1929). URL: <http://dx.doi.org/10.1007/BF01339455>.
- [12] E. Kaxiras. *Atomic and Electronic Structure of Solids*. Cambridge University Press, 2003.
- [13] Elias Goldmann. “From Structure to Spectra: Tight-Binding Theory of InGaAs Quantum Dots”. Diss. Universität Bremen, 2014.
- [14] Stefan Schulz. “Electronic and Optical Properties of Quantum Dots: A Tight-Binding Approach”. Diss. Universität Bremen, 2007.
- [15] Daniel Mourad. “Empirische Tight-Binding-Modellierung geordneter und ungeordneter Halbleiterstrukturen”. Diss. Universität Bremen, 2010.

Literatur

- [16] W. Nolting. *Grundkurs Theoretische Physik 5/2, Quantenmechanik - Methoden und Anwendungen*. Springer, 2012.
- [17] A. P. Sutton. *Elektronische Struktur in Materialien*. VCH, 1996.
- [18] W. Demtröder. *Experimentalphysik 3, Atome, Moleküle und Festkörper*. Springer, 2010.
- [19] G. Czycholl. *Theoretische Festkörperphysik*. Springer, 2008.
- [20] G. Grossi und G. P. Parravicini. *Solid State Physics*. Academic Press, 2003.
- [21] W. E. Pickett. "Tight Binding" Method: Linear Combination of Atomic Orbitals (LCAO). 2006. URL: <http://yclept.ucdavis.edu/course/240C/Notes/tb.pdf>.
- [22] J. C. Slater und G. F. Koster. Simplified LCAO Method for the Periodic Potential Problem. In: *Phys. Rev.* (1954). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.94.1498>.
- [23] R. M. Martin. *Electronic Structure, Basic Theory and Practical Methods*. Cambridge University Press, 2011.
- [24] P.-O. Löwdin. On the Non-Orthogonality Problem Connected with the Use of Atomic Wave Functions in the Theory of Molecules and Crystals. In: *The Journal of Chemical Physics* (1950). URL: <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/jcp/18/3/10.1063/1.1747632>.
- [25] P. Y. Yu und M. Cardona. *Fundamentals of Semiconductors, Physics and Materials Properties*. Springer, 2010.
- [26] P. Vogl, H. P. Hjalmarson und J. D. Dow. A Semi-empirical tight-binding theory of the electronic structure of semiconductors†. In: *Journal of Physics and Chemistry of Solids* (1983). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0022369783900641>.
- [27] F. Oyafuso u. a. Atomistic Electronic Structure Calculations of Unstrained Alloyed Systems Consisting of a Million Atoms. In: *Journal of Computational Electronics* (2002). URL: <http://dx.doi.org/10.1023/A:1020774819509>.
- [28] Stephan-Enzo Ungersböck. "Advanced Modeling of Strained CMOS Technology". Diss. Technische Universität Wien, 2007.
- [29] D. J. Chadi. Spin-orbit splitting in crystalline and compositionally disordered semiconductors. In: *Phys. Rev. B* (1977). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.16.790>.
- [30] Zh. M. Wang u. a. Nanoholes fabricated by self-assembled gallium nanodrill on GaAs(100). In: *Applied Physics Letters* (2007). URL: <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/90/11/10.1063/1.2713745>.
- [31] Ch. Heyn u. a. Mechanism and applications of local droplet etching. In: *Journal of Crystal Growth* (2011). Proceedings of the 16th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (ICMBE). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0022024810008894>.
- [32] S. Balay u. a. PETSc Web page. <http://www.mcs.anl.gov/petsc>. 2016. URL: <http://www.mcs.anl.gov/petsc>.
- [33] S. Balay u. a. PETSc Users Manual. Techn. Ber. Argonne National Laboratory, 2016. URL: <http://www.mcs.anl.gov/petsc>.
- [34] V. Hernandez, J. E. Roman und V. Vidal. SLEPc: A scalable and flexible toolkit for the solution of eigenvalue problems. In: *ACM Trans. Math. Software* (2005).

- [35] I. Vurgaftman, J. R. Meyer und L. R. Ram-Mohan. *Band parameters for III–V compound semiconductors and their alloys*. In: *Journal of Applied Physics* (2001). URL: <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/jap/89/11/10.1063/1.1368156>.
- [36] J.-W. Luo, A. Franceschetti und A. Zunger. *Quantum-size-induced electronic transitions in quantum dots: Indirect band-gap GaAs*. In: *Phys. Rev. B* (2008). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.78.035306>.
- [37] S. Adachi. *GaAs, AlAs, and Al_xGa_{1-x}As: Material parameters for use in research and device applications*. In: *Journal of Applied Physics* (1985).