



Diplomarbeit
am Institut für Physik
der Universität Rostock

Polariton-Effekte in Halbleiter-Nanostrukturen

vorgelegt von
Matthias Florian

Rostock, November 2008

Gutachter: Prof. Dr. K. Henneberger
Prof. Dr. F. Jahnke

Adresse: Universität Rostock
Institut für Physik
18051 Rostock

Tel: +49 381 498-6926

Internet: <http://www.physik3.uni-rostock.de>

E-Mail: matthias.florian@uni-rostock.de

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	1
1 Polaritonen in begrenzten Medien	3
1.1 Einleitung	3
1.2 Theoretische Konzepte	4
1.2.1 Elektronische und optische Eigenschaften von III-V Halbleiter-Heterostrukturen	4
1.2.2 Grundlagen der Licht-Materie-Wechselwirkung	5
1.2.3 Interbandpolarisation	11
1.3 Exziton-Polaritonen	17
1.3.1 Wellenausbreitung mit räumlicher Dispersion	21
1.3.2 Das Poyntingsche Theorem und Energieerhaltung	25
1.3.3 Konstruktion einer konsistenten makroskopischen Näherung – <i>Dielektrische Näherung</i>	30
2 Polariton-Effekte in gekoppelten Halbleiter-Quantenpunkten	37
2.1 Einleitung	37
2.2 Quantenpunktmodell	39
2.2.1 Einteilchen-Spektrum	39
2.2.2 Dielektrische Suszeptibilität	43
2.3 Lösung des vollen Maxwell-Schrödinger-Problems	44
2.3.1 Diskussion zweier gekoppelter QDs	48
2.3.2 Diskussion eines Ensembles gekoppelter QDs	49
Zusammenfassung und Ausblick	53
A Anhang zu Kapitel 1	55
A.1 Goeppert-Mayer Transformation	55

A.2	Zum Beweis der Energieerhaltung bei Verwendung zusätzlicher Randbedingungen	56
A.3	Materialparameter - GaAs	58
B	Anhang zu Kapitel 2	59
B.1	Hinweise zur Berechnung der Kopplungsmatrix $G_{\alpha i, \beta j}$	59
B.2	Materialparameter - InGaAs/GaAs QDs	61
	Literaturverzeichnis	63

Einleitung

*“In der Wissenschaft beginnt alles Neue damit, dass jemand brummt:
‘Hmmm ... ist ja komisch.’”*

— Isaac Asimov

Innerhalb der letzten Jahre hat, durch stetige Verbesserung der Fertigungstechniken nanostrukturierter Materialien, das Interesse an Effekten der Halbleiter-Quantenoptik deutlich zugenommen, deren Anwendungen in der Quanteninformationsverarbeitung und Optoelektronik von Halbleiterlasern über lichtemittierenden Dioden (LED) und Photodetektoren bis hin zu nichtklassischen Lichtquellen reichen. Zu diesem Zweck ist eine zufriedenstellende Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung unerlässlich. Insbesondere nach Einführung des Polariton-Konzeptes zur Beschreibung der Wechselwirkung eines propagierenden Lichtfeldes mit der hierdurch im Halbleitermedium erzeugten Polarisation, erregte dieses Thema das Interesse sowohl auf experimenteller, als auch auf theoretischer Seite. Schon im Falle linearer Optik, oder nichtlinearer für niedrige Anregungsdichten, zeigen sich konzeptionelle Probleme bei Halbleiterstrukturen, deren Ladungsträger in einer oder mehreren Raumdimensionen, in der Größenordnung weniger Nanometer, eingeschlossen sind, aber auch eine Vielzahl interessanter Effekte, z.B. räumliche Dispersion und radiative Kopplung. Deren theoretische Beschreibung für Systeme im linearen optischen Regime ist Inhalt der vorliegenden Arbeit, welche zweigeteilt und folgendermaßen zusammengestellt wurde:

Das erste Kapitel wird sich nach Formulierung der theoretischen Grundlagen der Licht-Materie-Wechselwirkung unter Einfluss räumlichen Einschlusses und des Polariton-Effektes mit Fragen der Energieerhaltung und einer hiermit konsistenten makroskopischen Näherung in Bezug auf die Lichtausbreitung in räumlich dispersiven Medien beschäftigen. Während sich Ladungsträger in Quantenfilmen und Quantendrähten noch mindestens in zwei bzw. einer Raumdimension frei bewegen können, ist dieses bei den

sogenannten Quantenpunkten nicht mehr der Fall. Da sich innerhalb einer solchen quasi-nulldimensionalen Halbleiter-Nanostruktur, im Gegensatz zu den vorher genannten, keine propagierenden Polaritonmoden ausbilden können, stellt sich die Frage, ob nicht die Kopplung mehrerer solcher Systeme, über das äußere Maxwellfeld, analoge Eigenschaften zeigt. Kapitel Zwei beinhaltet daher ein Modell zur Beschreibung der benötigten Einteilchen-Zustände von linsenförmigen Quantenpunkten und einen Formalismus zur Lösung des vollen Maxwell-Schrödingerproblems. Zuvor werden die Resultate aus dem ersten Teil dieser Arbeit an die gegebene Situation angepasst; anschließend soll das Ergebnis numerischer Rechnungen vorgestellt und mit Zusammenfassung und Ausblick geschlossen werden.

Kapitel 1

Polaritonen in begrenzten Medien

1.1 Einleitung

Insbesondere bei direkten Halbleitern führt die starke Dipolkopplung im Bereich der Bandkante zu einem komplexen Wechselspiel zwischen dem propagierenden Lichtfeld und induzierter Mediumspolarisation, welches die Beschreibung der optischen Eigenschaften mittels störungstheoretischer Methoden unmöglich macht. Erst die Einführung eines Quasiteilchenkonzeptes, dem Polariton, durch Hopfield 1958 [22] als Mischzustand von Photon und Mediumsanregung in Form von Coulomb-gebundenen Elektron-Loch-Paaren (Exzitonen), lieferte einen Zugang zur Beschreibung experimenteller Resultate. Konzeptionelle Probleme treten allerdings bei der adäquaten Beschreibung räumlicher Nichtlokalität, durch Brechung der Translationsinvarianz bei Anwesenheit von Oberflächen oder Einschlusspotentialen in Halbleiter-Heterostrukturen, auf. In der Vergangenheit wurden eine Reihe von Versuchen unternommen, die nichtlokale, exzitonische Suszeptibilität auf die eines räumlich homogenen bzw. unendlich ausgedehnten Mediums (bulk) abzubilden [33, 47, 20, 50]. Dies hatte zur Folge, dass neben den Maxwellschen (MBC) zusätzliche, zum Teil phenomenologisch motivierte, Randbedingungen (ABC) gestellt werden mussten. Eine vollständige mikroskopische Beschreibung des Problems gelang wegen des enormen numerischen Aufwandes hingegen erst in den letzten Jahren. [30, 37, 38]. Deren Herangehensweise soll als Ausgangspunkt zum Verständniss der im Folgenden diskutierten makroskopischen Näherungen dienen. Neben einer allgemeinen Darstellung der linearen Interbandpolarisation in Dipol- und Einhüllenden-Näherung, bei schwacher, kohärenter Anregung und beliebigen Einschlusspotentialen, soll auf Fragen der Energieerhaltung, als eines der fundamentalen Prinzipien in der Physik, bei der

Verwendung bzw. Konstruktion von ABCs eingegangen werden. Hierbei wird die konsistente Beschreibung, ausgehend von der Suszeptibilität, eine zentrale Rolle spielen und zur Illustration die *dielektrische Näherung* [27] als ein analytisch lösbares Beispiel für eine dielektrische Schicht vorgestellt.

1.2 Theoretische Konzepte

1.2.1 Elektronische und optische Eigenschaften von III-V Halbleiter-Heterostrukturen

Zur Beschreibung der optischen Eigenschaften eines Halbleitermediums ist eine genaue Kenntnis der elektronischen Bandstruktur und der Grenzen der auf Grundlage dieser vorgenommenen Näherungen vonnöten. In den Darstellungen dieser Arbeit sollen typische III-V Halbleiter und im Speziellen GaAs betrachtet werden.

Diese Verbindungen kristallisieren in Zinkblendestruktur, wobei letztere aus zwei fcc¹ Gittern besteht, die um $1/4$ entlang einer kubischen Hauptdiagonale ineinander verschoben sind. Das zugehörige reziproke Gitter besitzt folglich bcc² Struktur und die erste Brillouin-Zone die in Abb. 1.1 dargestellte Form. Der Γ -Punkt (volle Symmetrie der Tetraedergruppe) befindet sich in dessen Zentrum und stellt den für optische Übergänge interessanten Bereich dar. Zur Bindung (tetraedrisch), elektrischen Transport und optischen Eigenschaften im Bereich der Bandkante, tragen die acht äußeren Elektronen bei. Die Orbitale (s- oder p-artig) benachbarter Atome bilden jeweils einen bindenden und einen antibindenden Zustand aus, welche auf Grund der großen Anzahl von Einheitszellen zu Bändern verbreitern (vgl. Abb. 1.1). Das aus dem bindenden Orbital resultierende s-Band (Γ_6 - Symmetrie) ist stark gebunden und stets mit zwei Elektronen pro Einheitszelle voll besetzt. Die übrigen sechs Elektronen besetzten das zugehörige p-Band, welches ohne Spin-Bahn-Wechselwirkung sechsfach entartet ist und das Valenzband bildet. Die Berücksichtigung letzterer führt zu einer Aufspaltung in ein Quartuplet (Γ_8 , $j = 3/2$) und ein Doublet (Γ_7 , $j = 1/2$), jeweils mit dem Gesamtdrehimpuls j . Die aus den antibindenden Orbitalen resultierenden Bänder sind leer, wobei das am niedrigsten liegende (zumeist das s-Band) das Leitungsband bildet [6].

Die theoretische Beschreibung soll sich auf ein Zweibandssystem (niedrigstes Leitungsband c und höchstes Valenzband v) beschränken, da alle andere Bänder spektral wohl se-

¹engl.: face centered cubic - kubisch flächenzentriert

²engl.: base centered cubic - kubisch raumzentriert

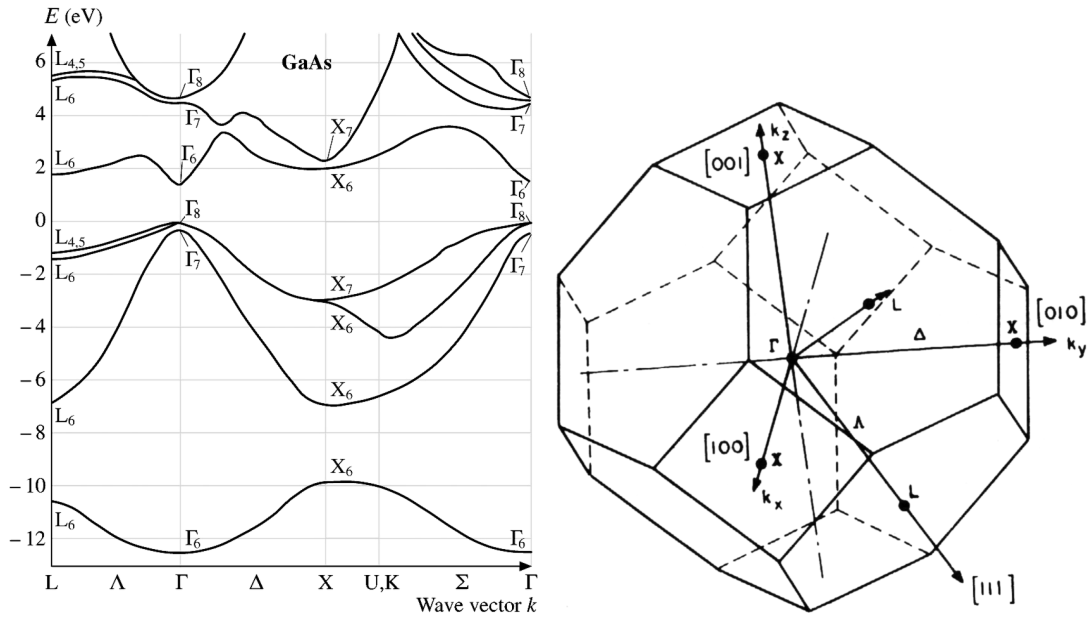


Abbildung 1.1: Bandstruktur von GaAs [28] und dessen erste Brillouinzone [6]

pariert und somit vernachlässigbar sind oder einen effektiven Beitrag zum Hintergrund-Brechungsindex liefern. Auf Grund der direkten Bandlücke dieser Materialien und der im sichtbaren Spektralbereich kleinen Photonimpulse ($Q \propto 2\pi/\lambda$, Wellenlänge $\lambda \propto 5000 \text{ \AA}$), verglichen mit typischen elektronischen Werten in der ersten Brillouinzone ($k \propto 2\pi/a$, Gitterkonstante $a \propto 5 \text{ \AA}$), erfolgen Übergänge näherungsweise direkt zwischen den beiden betrachteten Bändern. Ferner tragen nur kleine Impulse k zum Interbandübergang bei, so dass die Dispersionen um den Γ -Punkte und im Sinne der $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Theorie [18] parabolisch genährt werden können. Des Weiteren soll von Anisotropie abgesehen werden, so dass sich die Elektronen quasi-frei mit einer effektiven Masse im Kristallpotential bewegen. Jedem der zwei Bänder des aufgespaltenen Valenzbandes, welche im Folgenden als light-hole- (lh, $m_j^z = \pm 1/2$) und heavy-hole-Band (hh, $m_j^z = \pm 3/2$) bezeichnet werden sollen, kann jeweils eine Effektiv-Masse zugeordnet werden, wobei die Charakterisierung über die z-Komponente des Gesamtdrehimpulses m_j^z erfolgt.

1.2.2 Grundlagen der Licht-Materie-Wechselwirkung

Wir wollen uns nun der Wechselwirkung eines Halbleiters mit einem elektromagnetischen Feld zuwenden. Dabei soll die Behandlung semiklassisch erfolgen, d.h. es wird sich auf ein klassisches (kohärentes) Strahlungsfeld beschränkt, während die Dynamik

der Ladungsträger im Potential der Gitteratome bzw. die Wechselwirkung untereinander quantenmechanisch erfolgt. Es zeigt sich, dass sich im Rahmen dieser Näherung experimentelle Resultate sehr gut beschreiben lassen [41, 40].

Nachdem der Hamiltonoperator in zweiter Quantisierung formuliert wurde, soll der Übergang in eine der Translationssymmetrie des Gitters angepassten Basis, der sogenannten Bloch-Basis, vollzogen werden. Hierbei wird einem möglichen Einschlusspotential (Quantenconfinement), durch Verwendung der *Einhüllenden-Näherung* (envelope function approximation), Rechnung getragen.

Klassische Licht-Materie Wechselwirkung in Dipolnäherung

Zur Beschreibung der Wechselwirkung quasi-freier Ladungsträger ($j = 1 \dots N$) im ideal gitterperiodischen Potential $U(\mathbf{r})$ der ionischen Kerne und der stark gebundenen Elektronen mit dem Strahlungsfeld, beginnen wir in erster Quantisierung

$$\mathcal{H} = \sum_j \left(\frac{1}{2m_j} [\mathbf{p}_j - e\mathbf{A}(\mathbf{r}_j, t)]^2 + U(\mathbf{r}_j) \right) + \mathcal{H}_{\text{el-el}}, \quad (1.1)$$

wobei zu dem mechanischen Impuls in Ortsdarstellung $\mathbf{p}_j = \frac{\hbar}{i} \nabla_{\mathbf{r}_j}$ in *minimaler Kopplung* der Impuls des elektromagnetischen Feldes $e\mathbf{A}(\mathbf{r}_j, t)$ hinzutritt [11]. Die Ladung des Elektrons sei hierbei durch e und das klassische Vektorpotential in *Coulomb-Eichung* durch \mathbf{A} gegeben, so dass $\text{div } \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = 0$ und \mathbf{A} transversal ist. Der Anteil $\mathcal{H}_{\text{el-el}}$ beschreibe die Elektron-Elektron Wechselwirkung, auf die später näher eingegangen werden soll.

Insbesondere der quadratische Term des kinetischen Anteils in (1.1) erschwert das weitere Vorgehen und es soll eine unitäre Transformation $\mathcal{U}(t)$ derart gewählt werden, dass dieser verschwindet (*Goeppert-Mayer Transformation* [11]). Unter der Annahme, dass das Feld nur schwach veränderlich über der Ladungsverteilung ist, erhält man in Dipolnäherung

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{\text{carrier}} + \mathcal{H}_{\text{dipol}} + \mathcal{H}_{\text{el-el}} = \sum_j \left(\frac{p_j^2}{2m_j} + U(\mathbf{r}_j) \right) - \sum_j \mathbf{d}_j \cdot \mathbf{E}_T(\mathbf{r}_j, t) + \mathcal{H}_{\text{el-el}} \quad (1.2)$$

mit dem Dipolmoment $\mathbf{d}_j = e\mathbf{r}_j$ und dem transversalen elektrischen Feld $\mathbf{E}_T(\mathbf{r}, t) = -\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$. Eine ausführlichere Darstellung findet sich im Anhang A.1.

Hamiltonoperator in Bloch-Basis und Einhüllenden-Näherung

Wir wollen nun zur zweiten Quantisierung übergehen und führen hierzu Feldoperatoren $\Psi_s(\mathbf{r}, t)$ und $\Psi_s^\dagger(\mathbf{r}, t)$ ein, welche den Antivertauschungsrelationen

$$[\Psi_s(\mathbf{r}, t), \Psi_{s'}^\dagger(\mathbf{r}', t)]_+ = \delta_{ss'}\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), \quad [\Psi_s(\mathbf{r}, t), \Psi_{s'}(\mathbf{r}', t)]_+ = [\Psi_s^\dagger(\mathbf{r}, t), \Psi_{s'}^\dagger(\mathbf{r}', t)]_+ = 0 \quad (1.3)$$

genügen sollen; s berücksichtigt hierbei den Spin. Betrachten wir zunächst den Hamiltonoperator der Ladungsträger

$$\mathcal{H}_{\text{carrier}} = \int d^3\mathbf{r} \Psi_s^\dagger(\mathbf{r}, t) \left[-\frac{\hbar^2}{2m} \Delta + U(\mathbf{r}) \right] \Psi_s(\mathbf{r}, t), \quad (1.4)$$

wobei ein mögliches Quantenconfinement $U_{\text{conf}}(\mathbf{r})$ neben dem gitterperiodischen Potential explizit in $U(\mathbf{r})$ enthalten sein soll und entwickeln die Feldoperatoren nach Eigenfunktionen $\Phi_\mu(\mathbf{r})$ der Einteilchen-Schrödingergleichung

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \Delta + U(\mathbf{r}) \right] \Phi_\mu(\mathbf{r}) = \varepsilon_\mu \Phi_\mu(\mathbf{r}). \quad (1.5)$$

Um die Einteilchen-Eigenzustände zu berechnen, müsste diese Schrödingergleichung im vollen Kristallpotential, nebst Quantenconfinement, gelöst werden. Dies ist im Allgemeinen nicht exakt möglich, so dass zu diesem Zweck die Einhüllenden-Näherung als ein Zugang vorgestellt werden soll.

Im Falle vollständiger Translationssymmetrie des Gitters, d.h. bei Vernachlässigung des Quantenconfinements, vereinfacht sich das Problem durch Verwendung des Bloch-Theorems [18]. Die Wellenfunktion lässt sich dann als ein Produkt, bestehend aus einem ebene-Wellen-Anteil $\exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$ und einer gitterperiodischen Funktion $u_{\mathbf{k}\lambda}(\mathbf{r})$ (Blochfunktion), schreiben. Beschränken wir uns, im Sinne der Effektiv-Massen-Theorie, auf Prozesse in der Nähe der Bandkante, so können wir $\mathbf{k} \ll a^{-1}$ bzw. die Wellenlängen als groß gegenüber der Einheitszelle annehmen. Dies hat zur Konsequenz, dass die ebene Welle langsam veränderlich gegenüber der schnell oszillierenden gitterperiodischen Funktion ist und sich daher als Einhüllende interpretieren lässt.

Die Berücksichtigung eines Quantenconfinements bricht diese Symmetrie, so dass das Bloch-Theorem nicht mehr angewandt werden kann. In der Einhüllenden-Näherung geht man nun davon aus, dass an die Stelle der ebenen Welle eine über der Einheitszelle langsam veränderliche Funktion $\varphi_{\nu\lambda}(\mathbf{r})$ tritt, die einer Einteilchen-Schrödingergleichung in

Effektiv-Massen-Näherung im Einschlusspotential U_{conf} genügt und die gitterperiodische Funktion bei $\mathbf{k} = 0$ zu benutzen ist.

$$\Phi_{\nu\lambda}^s(\mathbf{r}) = \varphi_{\nu\lambda}^s(\mathbf{r})u_{\lambda 0}(\mathbf{r}) \quad (1.6a)$$

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_\lambda^*}\Delta + U_{\text{conf}}(\mathbf{r}) \right] \varphi_{\nu\lambda}^s(\mathbf{r}) = \varepsilon_{\nu\lambda}^s \varphi_{\nu\lambda}^s(\mathbf{r}) \quad (1.6b)$$

Das Einteilchen-Potential soll als spinunabhängig angenommen werden, so dass sich die (nun spinabhängige) Einhüllende $\varphi_{\nu\lambda}^s(\mathbf{r})$ mittels Produktansatz und Spinor χ_s schreiben lässt als $\varphi_{\nu\lambda}^s(\mathbf{r}) = \varphi_{\nu\lambda}(\mathbf{r})\chi_s$. Es sei bemerkt, dass Bandmischungseffekte hierbei vollständig vernachlässigt werden. Eine Darstellung dieser Näherung mittels $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ Theorie, findet sich z.B. in [9]. Die Feldoperatoren lassen sich nach den Einteilchen-Eigenfunktionen entwickeln

$$\Psi_s(\mathbf{r}, t) = \sum_{\nu, \lambda} a_{\nu\lambda}^s(t) \Phi_{\nu\lambda}^s(\mathbf{r}) \quad (1.7)$$

wobei die Erzeuger $a_{\nu\lambda}^{s\dagger}$ und Vernichter $a_{\nu\lambda}^s$ den Vertauschungsrelationen

$$\left[a_{\nu\lambda}^{s\dagger}, a_{\nu'\lambda'}^{s'\dagger} \right]_+ = 0, \quad \left[a_{\nu\lambda}^s, a_{\nu'\lambda'}^{s'} \right]_+ = 0, \quad \left[a_{\nu\lambda}^s, a_{\nu'\lambda'}^{s'\dagger} \right]_+ = \delta_{\nu, \nu'} \delta_{\lambda, \lambda'} \delta_{s, s'} \quad (1.8)$$

genügen, welche aus (1.3) folgen. Für ein Zwei-Band-Modell, bestehend aus höchstem Valenzband

$$v = (\lambda = v, s \in \{-3/2, -1/2, +1/2, +3/2, \}) \quad (1.9)$$

und niedrigstem Leitungsband

$$c = (\lambda = c, s \in \{-1/2, +1/2\}), \quad (1.10)$$

bekommt der kinetische Anteil des Hamiltonians dann die Gestalt

$$\mathcal{H}_{\text{carrier}} = \sum_{\substack{c, v \\ \nu}} \varepsilon_\nu^c c_\nu^\dagger c_\nu + \varepsilon_\nu^v v_\nu^\dagger v_\nu \quad (1.11)$$

mit den Vernichtern für Valenz- $v_\nu = a_{\nu v}^{s'}$ und Leitungsband $c_\nu = a_{\nu c}^s$, wobei eine Spin-Orbit-Aufspaltung des Valenzbandes in lh und hh explizit berücksichtigt wurde.

Um den Hamiltonoperator der Licht-Materie-Wechselwirkung zu erhalten, starten wir zunächst in zweiter Quantisierung; der Einteilchen-Operator besitzt in Dipolnäherung folglich die Gestalt

$$\mathcal{H}_{\text{dipol}} = - \sum_s \int d^3\mathbf{r} \Psi_s^\dagger(\mathbf{r}, t) e\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \Psi_s(\mathbf{r}, t). \quad (1.12)$$

Es soll wieder die Entwicklung (1.7) ausgenutzt

$$\mathcal{H}_{\text{dipol}} = - \sum_{\substack{\nu\nu', \lambda\lambda' \\ ss'}} \int d^3\mathbf{r} u_\lambda^*(\mathbf{r}) e\mathbf{r} u_{\lambda'}(\mathbf{r}) \cdot \varphi_{\nu\lambda}^{s*}(\mathbf{r}) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \varphi_{\nu'\lambda'}^{s'}(\mathbf{r}) a_{\nu\lambda}^{s\dagger}(t) a_{\nu'\lambda'}^{s'}(t)$$

und angenommen werden, dass der Kristall aus $i = 1 \dots N$ identischen Einheitszellen aufgebaut ist und sowohl das optische Feld, als auch die Einhüllenden jeweils über einer einzelnen Einheitszelle konstant sind. Ferner zerlegen wir das Integral in Anteile jeder Einheitszelle und berücksichtigen die Translationsinvarianz des Blochfaktors

$$\mathcal{H}_{\text{dipol}} = - \sum_{\substack{\nu\nu', \lambda\lambda' \\ ss', \mathbf{Q}}} \mathbf{E}_{\mathbf{Q}}(t) \sum_i \varphi_{\nu\lambda}^{s*}(\mathbf{R}_i) e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{R}_i} \varphi_{\nu'\lambda'}^{s'}(\mathbf{R}_i) \int_{\mathcal{V}_i} d^3\mathbf{r}_i u_\lambda^*(\mathbf{r}_i) e(\mathbf{r}_i + \mathbf{R}_i) u_{\lambda'}(\mathbf{r}_i),$$

wobei das verbleibende Integral über die i -te Einheitszelle mit dem Volumen \mathcal{V}_i läuft und \mathbf{R}_i ein Gittervektor ist. Da die Wellenfunktionen für das Valenz- und Leitungsband p- bzw. s-artige Symmetrie besitzt, tragen im Integral Terme $\propto \mathbf{R}_i$ auf Grund der Parität nicht zu den Interbandübergängen mit $\nu \neq \nu'$ bei. Beschränken wir unsere Betrachtung auf letztere, können folglich die Intrabandbeiträge vernachlässigt werden [29]. Das Integral ist somit identisch für jede Einheitszelle und wir erhalten im Kontinuumsimes ($N \rightarrow \infty$) für den Dipol-Hamiltonian

$$\mathcal{H}_{\text{dipol}} = - \sum_{\substack{\nu\nu', \lambda\lambda' \\ ss', \mathbf{Q}}} g_{\lambda\lambda'}^{ss'}(\mathbf{Q}) a_{\nu\lambda}^{s\dagger}(t) a_{\nu'\lambda'}^{s'}(t), \quad (1.13)$$

wobei die effektive Licht-Materie Wechselwirkung

$$g_{\lambda\lambda'}^{ss'}(\mathbf{Q}) = \mathbf{E}_{\mathbf{Q}}(t) \cdot \mathbf{d}_{\lambda\lambda'} \int d^3\mathbf{r} \varphi_{\nu\lambda}^{s*}(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}} \varphi_{\nu'\lambda'}^{s'}(\mathbf{r}) \quad (1.14)$$

und das Dipolmatrixelement

$$\mathbf{d}_{\lambda\lambda'} = \int_{V_i} d^3\mathbf{r} u_{\lambda}^*(\mathbf{r}) e \mathbf{r} u_{\lambda'}(\mathbf{r}) = \mathbf{d}_{\lambda'\lambda}^* \quad (1.15)$$

eingeführt wurde; oder entsprechend im Zwei-Band-Modell

$$\mathcal{H}_{\text{dipol}} = - \sum_{\substack{\nu, \nu', c, v \\ \mathbf{Q}}} [g_{\nu\nu'}^{cv}(\mathbf{Q}) c_{\nu}^{\dagger} v_{\nu'} + g_{\nu\nu'}^{vc}(\mathbf{Q}) v_{\nu}^{\dagger} c_{\nu'}] . \quad (1.16)$$

Der Hamiltonoperator der Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Ladungsträgern ist in zweiter Quantisierung und Coulomb-Eichung durch

$$\mathcal{H}_{\text{el-el}} = \frac{1}{2} \int d^3\mathbf{r} d^3\mathbf{r}' \Psi_s^{\dagger}(\mathbf{r}, t) \Psi_s^{\dagger}(\mathbf{r}', t) V(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|) \Psi_s(\mathbf{r}', t) \Psi_s(\mathbf{r}, t) \quad (1.17)$$

und dem Coulombpotential $V(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_b|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}$ gegeben. Nach Entwicklung der Feldoperatoren erhält man

$$\mathcal{H}_{\text{el-el}} = \frac{1}{2} \sum_{\substack{\nu_1 \dots \nu_4 \\ \lambda\lambda', ss'}} V_{\nu_1 \dots \nu_4}^{\lambda\lambda'} a_{\nu_1\lambda}^{s\dagger} a_{\nu_2\lambda'}^{s'\dagger} a_{\nu_3\lambda'}^{s'} a_{\nu_4\lambda}^s, \quad (1.18)$$

mit dem Coulomb-Matrixelement

$$V_{\nu_1 \dots \nu_4}^{\lambda\lambda'} = \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{q}} V_{\mathbf{q}} \int d^3\mathbf{r} \int d^3\mathbf{r}' \varphi_{\nu_1\lambda}^*(\mathbf{r}) \varphi_{\nu_2\lambda'}^*(\mathbf{r}') e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}')} \varphi_{\nu_3\lambda'}(\mathbf{r}') \varphi_{\nu_4\lambda}(\mathbf{r}). \quad (1.19)$$

Hierbei sei bemerkt, dass die Normalordnung der Feldoperatoren in (1.17) den Selbstenergiebeitrag durch Wechselwirkung zweier Teilchen am gleichen Ort kompensiert. Unter Beachtung der Eigenschaften $V_{\nu_1\nu_2\nu_3\nu_4}^{\lambda\lambda'} = V_{\nu_2\nu_1\nu_4\nu_3}^{\lambda'\lambda} = (V_{\nu_4\nu_3\nu_2\nu_1}^{\lambda\lambda'})^*$ folgt nach kurzer Rechnung³ für das Zwei-Band-Modell

$$\mathcal{H}_{\text{el-el}} = \frac{1}{2} \sum_{\substack{\nu_1 \dots \nu_4 \\ cc', vv'}} V_{\nu_1 \dots \nu_4} \left[c_{\nu_1}^{\dagger} c_{\nu_2}^{\dagger} c_{\nu_3}' c_{\nu_4} + v_{\nu_1}^{\dagger} v_{\nu_2}^{\dagger} v_{\nu_3}' v_{\nu_4} + 2c_{\nu_1}^{\dagger} v_{\nu_2}^{\dagger} v_{\nu_3}' c_{\nu_4} \right]. \quad (1.20)$$

³Man beachte, dass die Verwendung der Einhüllenden-Näherung eine Vernachlässigung des Interband-Austausches bedingt.

1.2.3 Interbandpolarisation

Im vorigen Abschnitt wurde ein Modell zur Beschreibung der Wechselwirkung zwischen den Elektronen im Halbleiter und dem kohärenten Strahlungsfeld vorgestellt. Auf dieser Grundlage sollen nun optische Eigenschaften, welche direkt mit der Interbanddynamik, d.h. Übergängen zwischen Valenz- und Leitungsband, verbunden sind, diskutiert werden. Zu diesem Zweck sei die durch das klassische Lichtfeld induzierte makroskopische Polarisation $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \int d^3\mathbf{r}' \chi(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t) E(\mathbf{r}', t)$, welche sich mikroskopisch als Erwartungswert des elektrischen Dipoloperators \mathbf{d}_{cv} ergibt, betrachtet. Die Berechnung der Operatorerwartungswerte erfolge über die Einteilchen-Dichtematrix

$$\rho_{ss'}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t) = \text{Tr} [\rho_0 \Psi_s^\dagger(\mathbf{r}, t) \Psi_{s'}(\mathbf{r}', t)] = \langle \Psi_s^\dagger(\mathbf{r}, t) \Psi_{s'}(\mathbf{r}', t) \rangle, \quad (1.21)$$

wobei ρ_0 der gleichgewichtsstatistische Operator vor dem Einschalten des äußeren elektrischen Feldes sei. Die zeitliche Entwicklung der makroskopischen Polarisation lässt sich mittels Bewegungsgleichungen für die Dichtematrix berechnen. Im Heisenberg-Bild sind diese für nicht explizit zeitabhängige Operatoren \mathcal{O} durch

$$\dot{\mathcal{O}}(t) := \frac{d}{dt} \mathcal{O}(t) = \frac{i}{\hbar} [\mathcal{H}, \mathcal{O}(t)]_- \quad (1.22)$$

gegeben. Die für das Zwei-Band-Modell interessante einzeitige, kohärente Übergangsamplitude $\langle v_\nu^\dagger(t) c_{\nu'}(t) \rangle$ besitzt auf Grund der Additivität der Kommutatoren bzw. der Zeitableitung die Bewegungsgleichung

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \langle v_\nu^\dagger(t) c_{\nu'}(t) \rangle &= \langle \dot{v}_\nu^\dagger(t) c_{\nu'}(t) \rangle + \langle v_\nu^\dagger(t) \dot{c}_{\nu'}(t) \rangle \\ &= \frac{i}{\hbar} \left\{ (\varepsilon_\nu^v - \varepsilon_{\nu'}^c) \langle v_\nu^\dagger c_{\nu'} \rangle - \sum_{c', \nu'', \mathbf{Q}} g_{\nu''\nu}^{c'v}(\mathbf{Q}) \langle c_{\nu''}^\dagger c_{\nu'} \rangle + \sum_{v', \nu'', \mathbf{Q}} g_{\nu'\nu''}^{cv}(\mathbf{Q}) \langle v_\nu^\dagger v_{\nu''} \rangle + \right. \\ &\quad + \sum_{\nu_2 \dots \nu_4} \left[V_{\nu_4 \nu_3 \nu_2 \nu} \left(\sum_{v'} \langle v_{\nu_4}^\dagger v_{\nu_3}^\dagger v_{\nu_2} v_{\nu'} c_{\nu'} \rangle + \sum_{c'} \langle v_{\nu_4}^\dagger c_{\nu_3}^\dagger c_{\nu_2} c_{\nu'} \rangle \right) + \right. \\ &\quad \left. \left. - V_{\nu' \nu_2 \nu_3 \nu_4} \left(\sum_{v'} \langle v_\nu^\dagger v_{\nu_2}^\dagger v_{\nu_3} v_{\nu_4} c_{\nu_4} \rangle + \sum_{c'} \langle v_\nu^\dagger c_{\nu_2}^\dagger c_{\nu_3} c_{\nu_4} \rangle \right) \right] \right\}, \quad (1.23) \end{aligned}$$

wobei

$$\dot{v}_\nu^\dagger = \frac{i}{\hbar} \left[\varepsilon_\nu^v v_\nu^\dagger - \sum_{c, \nu', \mathbf{Q}} g_{\nu'\nu}^{cv}(\mathbf{Q}) c_{\nu'}^\dagger + \sum_{\nu_2 \dots \nu_4} V_{\nu_4 \nu_3 \nu_2 \nu} v_{\nu_4}^\dagger \left(\sum_{v'} v_{\nu_3}^\dagger v_{\nu_2} + \sum_c c_{\nu_3}^\dagger c_{\nu_2} \right) \right]$$

und

$$\dot{c}_{\nu'} = \frac{i}{\hbar} \left[-\varepsilon_{\nu'}^c c_{\nu'} + \sum_{v, \nu'', \mathbf{Q}} g_{\nu' \nu''}^{cv}(\mathbf{Q}) v_{\nu''}^\dagger - \sum_{\nu_2 \dots \nu_4} V_{\nu' \nu_2 \nu_3 \nu_4} \left(\sum_v v_{\nu_2}^\dagger v_{\nu_3} + \sum_{c'} c_{\nu_2}^{\prime \dagger} c_{\nu_3}' \right) c_{\nu_4} \right]$$

aus (1.22) und unter Verwendung der Vertauschungsrelationen (1.8) folgt. Die Gleichung (1.23) besitzt keine geschlossene Form und verhindert daher die Bestimmung der Dichtematrixelemente, da die Bewegungsgleichung (1.22) zur Bestimmung der zeitlichen Entwicklung der Vierer-Korrelationen mit Erwartungswerten aus sechs Operatoren usw. verknüpft wäre, was eine direkte Folge des Coulombanteils im Hamiltonian ist. Dieses Hierarchieproblem soll nachfolgend durch eine geeignete Näherung, der Hartree-Fock-Faktorisierung, behoben werden. Hierbei wird die Operatorhierarchie in erster Ordnung abgebrochen, d.h. die Vierer-Erwartungswerte werden in Produkte von relevanten Erwartungswerten zweier Operatoren zerlegt

$$\langle a_1^\dagger a_2^\dagger a_3 a_4 \rangle = \langle a_1^\dagger a_4 \rangle \langle a_2^\dagger a_3 \rangle \delta_{14} \delta_{23} - \langle a_1^\dagger a_3 \rangle \langle a_2^\dagger a_4 \rangle \delta_{13} \delta_{24} \quad (1.24)$$

und ein geschlossenes Gleichungssystem hergestellt. Dies hat zur Folge, dass Vielteilcheneffekte, wie Streuung und Abschirmung, vernachlässigt werden. An dieser Stelle sei aber erwähnt, dass in linearer Ordnung im optischen Feld diese Faktorisierung bereits exakt ist [4]. Das Ergebnis für die Bewegungsgleichungen

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle v_\nu^\dagger c_{\nu'} \rangle &= (\varepsilon_\nu^v - \varepsilon_{\nu'}^c) \langle v_\nu^\dagger c_{\nu'} \rangle + \sum_{c', \nu'', \mathbf{Q}} g_{\nu' \nu''}^{c'v}(\mathbf{Q}) \langle c_{\nu''}^{\dagger} c_{\nu'} \rangle - \sum_{v', \nu'', \mathbf{Q}} g_{\nu' \nu''}^{cv'}(\mathbf{Q}) \langle v_\nu^\dagger v_{\nu''} \rangle + \\ &+ (\langle v_\nu^\dagger c_\nu \rangle - \langle v_{\nu'}^\dagger c_{\nu'} \rangle) \sum_{\nu''} V_{\nu' \nu'' \nu'' \nu} \left[\sum_{v'} \langle v_{\nu''}^\dagger v_{\nu''} \rangle + \sum_{c'} \langle c_{\nu''}^{\dagger} c_{\nu''}' \rangle \right] \\ &- \sum_{c'} \langle v_\nu^\dagger c_{\nu'} \rangle \sum_{\nu''} V_{\nu'' \nu' \nu'' \nu} \langle c_{\nu''}^{\dagger} c_{\nu''}' \rangle + \sum_{v'} \langle v_{\nu'}^\dagger c_{\nu'} \rangle \sum_{\nu''} V_{\nu'' \nu' \nu'' \nu} \langle v_{\nu''}^\dagger v_{\nu''} \rangle \\ &+ \sum_{c'} \langle c_{\nu'}^{\dagger} c_{\nu'} \rangle \sum_{\nu''} V_{\nu'' \nu' \nu'' \nu} \langle v_{\nu''}^\dagger c_{\nu''}' \rangle - \sum_{v'} \langle v_\nu^\dagger v_{\nu'} \rangle \sum_{\nu''} V_{\nu'' \nu' \nu'' \nu} \langle v_{\nu''}^\dagger c_{\nu''}' \rangle \end{aligned}$$

enthält aber noch nichtlineare Beiträge, welche für geringe Feldstärken, d.h. schwache Anregung, vernachlässigt werden können. Ferner entkoppeln die Bewegungsgleichungen für verschiedene Quantenzahlen und können unabhängig voneinander betrachtet bzw. angeregt werden. Die Polarisationsrichtung des Feldes \mathbf{e}_σ sei entsprechend gewählt, so dass $d_{cv} = \mathbf{d}_{cv} \cdot \mathbf{e}_\sigma$ gesetzt werden kann.

Unter Berücksichtigung der Tatsache, dass die zeitliche Änderung der Besetzungen bereits quadratisch im Feld ist, folgt eine lineare, inhomogene Exzitongleichung und speziell

im Grenzfall voll besetzten Valenz- und leeren Leitungsbandes⁴

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle v_{\nu}^{\dagger} c_{\nu'} \rangle = (\varepsilon_{\nu'}^c - \varepsilon_{\nu}^v) \langle v_{\nu}^{\dagger} c_{\nu'} \rangle - d_{cv} \sum_{\mathbf{Q}} E_{\mathbf{Q}}(t) u_{\nu'\nu}^{cv}(\mathbf{Q}) - \sum_{\nu''} V_{\nu''\nu'\nu''\nu} \langle v_{\nu''}^{\dagger} c_{\nu''} \rangle. \quad (1.25)$$

Nachfolgend soll dieses Ergebnis an mehreren Beispielen diskutiert werden.

Als erstes betrachten wir eine dünne dielektrische Schicht⁵, welche Rotations- und Translationssymmetrie in der (x, y) - Ebene, allerdings ein Quantenconfinement in z -Richtung aufweist. Das Propagationsproblem ist somit räumlich homogen in der Ebene und inhomogen senkrecht hierzu. In Einhüllenden-Näherung ist die Wellenfunktion folglich durch $\varphi_{\mathbf{k}_{\perp}, n}(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}_{\perp} \cdot \rho} \xi_n(z)$ gegeben, wobei $\mathbf{k}_{\perp} = (k_x, k_y)$ der Impuls senkrecht zur Ausbreitungsrichtung sei. Für die Gleichung (1.25) folgt in dieser Darstellung

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle v_n^{\dagger}(\mathbf{k}_{\perp}) c_{n'}(\mathbf{k}_{\perp}) \rangle = (\varepsilon_{\mathbf{k}_{\perp} n'}^c - \varepsilon_{\mathbf{k}_{\perp} n}^v) \langle v_n^{\dagger}(\mathbf{k}_{\perp}) c_{n'}(\mathbf{k}_{\perp}) \rangle - d_{cv} \int dz \xi_{n'}^*(z) E(z, t) \xi_n(z) - \sum_{\mathbf{k}'_{\perp} n''} \int dz dz' \xi_{n''}^*(z) \xi_n(z) V_{\mathbf{k}_{\perp} - \mathbf{k}'_{\perp}}(z - z') \xi_{n'}^*(z') \xi_{n''}(z') \langle v_{n''}^{\dagger}(\mathbf{k}'_{\perp}) c_{n''}(\mathbf{k}'_{\perp}) \rangle,$$

so dass die mikroskopische, nichtlokale Interbandpolarisation

$$p_{\mathbf{k}_{\perp}}(z, z') = \sum_{n, n'} \xi_n^*(z) \langle v_n^{\dagger}(\mathbf{k}_{\perp}) c_{n'}(\mathbf{k}_{\perp}) \rangle \xi_{n'}(z') \quad (1.26)$$

der Gleichung

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} p_{\mathbf{k}_{\perp}}(z, z') = (\varepsilon_{\mathbf{k}_{\perp}}^c(z') - \varepsilon_{\mathbf{k}_{\perp}}^v(z)) p_{\mathbf{k}_{\perp}}(z, z') - d_{cv} E(z, t) \delta(z - z') - \sum_{\mathbf{k}'_{\perp}} V_{\mathbf{k}_{\perp} - \mathbf{k}'_{\perp}}(z - z') p_{\mathbf{k}'_{\perp}}(z, z') \quad (1.27)$$

genügt, worin die Einteilchen-Operatoren in Effektiv-Massen-Näherung und das Coulombmatrixelement entsprechend durch

$$\varepsilon_{\mathbf{k}_{\perp}}^{(c/v)}(z) = \pm \frac{\hbar^2}{2m_{c/v}^*} \left[k_{\perp}^2 - \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right] \pm \frac{1}{2} E_{\text{gap}} + U_{\text{conf}}(z) \quad \text{und} \quad V_{\mathbf{k}_{\perp}}(z) = \frac{e^2}{2\varepsilon_0 \varepsilon_b} \frac{e^{-|\mathbf{k}_{\perp} + k_z \mathbf{e}_z| |z|}}{|\mathbf{k}_{\perp} + k_z \mathbf{e}_z|}$$

gegeben sind, in Übereinstimmung mit [38]. Die Lösung der Integrodifferentialgleichung (1.27) ist im Allgemeinen nur mittels aufwendiger numerischer Methoden möglich, so

⁴Verträglich mit der Linearität wäre selbstverständlich auch eine konstante, anregungsunabhängige Besetzung, vorgegeben per Anfangsbedingung.

⁵Diese wird entweder von Vakuum umgeben oder eingebettet in Medien höherer Bandkante sein.

dass wir im Folgenden den analytisch lösbaren Grenzfall eines unendlich ausgedehnten Halbleiters studieren wollen. Hierbei berücksichtigen wir explizit den Beitrag des Photonimpulses zur Schwerpunktsbewegung und die daraus resultierende räumliche Dispersion.

Zu diesem Zweck gehen wir bzgl. der z-Komponenten zu Relativ- $\bar{z} = z - z'$ und Schwerpunktskoordinaten $\mathcal{Z} = \frac{1}{M}(m_c^*z + m_v^*z')$ über, wobei wir die Gesamtmasse $M = m_c^* + m_v^*$ einführen und die zweite Ableitungen nach $\frac{1}{m_{c/v}^*} \frac{\partial^2}{\partial^2 z} = \frac{1}{m_{c/v}^*} \frac{\partial^2}{\partial^2 \bar{z}} \pm \frac{2}{M} \frac{\partial^2}{\partial \bar{z} \partial \mathcal{Z}} + \frac{m_{c/v}^*}{M^2} \frac{\partial^2}{\partial^2 \mathcal{Z}}$ transformieren. Die Beschreibung im Ortsraum erscheint zweckmäßig und wir erhalten letztlich für die mikroskopische Interbandpolarisation eines Volumenkristalls

$$\left(\hbar(\omega + i\gamma) + \frac{\hbar^2}{2\mu} \Delta_r + \frac{\hbar^2}{2M} \frac{\partial^2}{\partial \mathcal{Z}^2} - E_{\text{gap}} + V(r) \right) p_{cv}(r, \mathcal{Z}, \omega) = -d_{cv} E(\mathcal{Z}, \omega) \delta(r), \quad (1.28)$$

wobei der homogene Anteil der (x, y) - Ebene nach Fouriertransformation mit der Relativkoordinate \bar{z} zu $r = (x - x', y - y', \bar{z})$ zusammengefasst, und eine infinitesimale Dämpfung $i\hbar\gamma$ zur Erhaltung der Kausalität hinzugefügt wurde. Im Allgemeinen wird die Dämpfung allerdings, bedingt durch Vielteilcheneffekte, z.B. Streuprozesse mit Phononen oder Fehlstellen, endlich und frequenzabhängig [31] und nur für hinreichend tiefe Temperaturen und hochreine Materialien näherungsweise konstant sein, was an dieser Stelle jedoch vorausgesetzt sein soll.

Die homogene Gleichung besitzt die Struktur einer Zwei-Teilchen Schrödingergleichung und separiert per Produktansatz, da als Randbedingung lediglich die Normierbarkeit zu erfüllen ist

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\mu} \Delta_r - V(r) \right] \psi_\nu(r) = \varepsilon_\nu \psi_\nu(r) \quad (1.29a)$$

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2M} \frac{\partial^2}{\partial \mathcal{Z}^2} \right] \phi_{Q_z}(\mathcal{Z}) = \varepsilon_{Q_z} \phi_{k_z}(\mathcal{Z}). \quad (1.29b)$$

Hierbei ist die Gleichung für den Relativanteil (1.29a) als Wanniergleichung bekannt, deren Lösungen die eines Wasserstoffproblems mit effektiver Masse μ und konstanter dielektrischer Funktion des Hintergrundes⁶ ε_b sind. Das Spektrum enthält gebundene Zustände $\nu = \{n = 1, 2, \dots, \infty; l = 0, \dots, n-1; m = -l, \dots, l\}$ mit den zugehörigen Eigenenergien $\varepsilon_{nlm} = -R_{\text{ex}} \frac{1}{n^2}$ und dem exzitonischen Rydberg $R_{\text{ex}} = \frac{e^2 \mu}{2\varepsilon_0^2 \varepsilon_b^2 \hbar^2}$, sowie ein kontinuierliches Streuspektrum $\varepsilon_{klm} = \frac{\hbar^2 k^2}{2\mu}$ ($k \geq 0$).⁷ Betont man mehr den Teilchen-

⁶Etwas durch Wechselwirkung der Elektronen mit dem Gitter.

⁷Eine ausführliche Darstellung des Wasserstoffproblems findet sich z.B. in [18]

charakter der unbesetzten Zustände im Valenzband (Löcher⁸) und weist ihnen, im Sinne eines Quasiteilchens, Realität zu ($m_v^* \rightarrow -m_h^*$, für Impuls und Ladung entsprechend, $\varepsilon^v \rightarrow 1 - \varepsilon^h$), so lassen sich die gebundenen Zustände aus Elektron im Leitungs- und Löchern im Valenzband in einem effektiven Zwei-Teilchenbild, dem *Exzitonenbild*, verstehen. Die Bewegung des Schwerpunktes (1.29b) erfolgt in Ausbreitungsrichtung und ist die eines freien Teilchens $\phi_{Q_z}(\mathcal{Z}) = \frac{1}{\sqrt{V}} e^{iQ_z \mathcal{Z}}$ der Masse M und der kinetischen Energie $\varepsilon_{Q_z} = \frac{\hbar^2 Q_z^2}{2M}$. Die Lösung der inhomogenen Differentialgleichung kann dann nach diesem vollständigen Satz von Eigenfunktionen entwickelt werden

$$p_{cv}(r, \mathcal{Z}, \omega) = \sum_{\nu Q_z} p_{\nu Q_z}^{cv}(\omega) \psi_\nu(r) \phi_{Q_z}(\mathcal{Z}), \quad (1.30)$$

deren Koeffizienten durch

$$p_{\nu Q_z}^{cv}(\omega) = -d_{cv} \int d\mathcal{Z} \frac{\phi_{Q_z}^*(\mathcal{Z}) E(\mathcal{Z}, \omega) \psi_\nu^*(r=0)}{\hbar(\omega + i\gamma) - \varepsilon_{\nu Q_z}} \quad (1.31)$$

gegeben sind, mit der Gesamtenergie $\varepsilon_{\nu Q_z} = E_{\text{gap}} + \varepsilon_\nu + \frac{\hbar^2 Q_z^2}{2M}$. Wir vollziehen nun den Übergang zur makroskopischen Polarisation [37]

$$P(\mathcal{Z}, \omega) = \sum_{cv} \int dr d_{cv}^* p_{cv}(r, \mathcal{Z}, \omega) \delta(r) + c.c., \quad (1.32)$$

welche einen Zugang zur räumlich dispersiven, aber homogenen, optischen Suszeptibilität liefert

$$\chi(Q_z, \omega) = - \sum_\nu \sum_{cv} \frac{|d_{cv}|^2 |\psi_\nu(r=0)|^2}{\hbar(\omega + i\gamma) - \varepsilon_{\nu Q_z}} + c.c. \quad (1.33)$$

und die lineare Antwort des elektronischen Systems auf ein äußeres elektromagnetisches Feld beschreibt. Infolge der Dipolkopplung tragen lediglich s-artige Zustände bei, da nur Wellenfunktionen $\psi_\nu(r=0)$ mit voller Kugelsymmetrie endlich im Ursprung sind,

$$|\psi_\nu(r=0)|^2 \rightarrow \delta_{m,0} \delta_{l,0} \begin{cases} 1/\pi(na_{\text{ex}})^3 & \text{Bindungszustände} \\ \frac{k}{2\pi a_{\text{ex}}} \frac{e^{\pi/k} a_{\text{ex}}}{\sinh \pi/k a_{\text{ex}}} & \text{Streuzustände} \end{cases}$$

darin ist $a_{\text{ex}} = \frac{\hbar^2 \varepsilon_0 \varepsilon_b}{e^2 \mu}$ der exzitonenische Bohrradius.

⁸engl.: hole

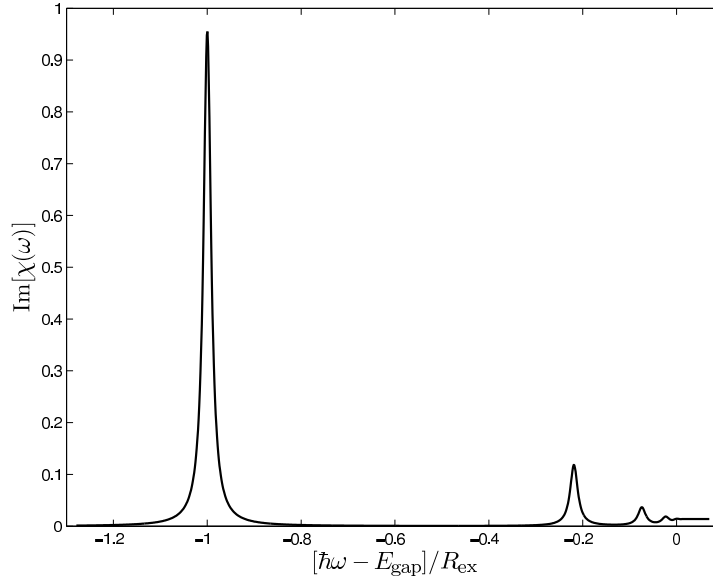


Abbildung 1.2: Schematische Darstellung des Imaginärteils der dielektrischen Suszeptibilität

Während der Realteil der dielektrischen Suszeptibilität (1.33) die elektronischen Beiträge zum Brechungsindex liefert, ist dessen Imaginärteil proportional zur Absorption. Als Konsequenz der Coulombwechselwirkung erwartet man unterhalb der Bandkante diskrete Absorptionslinien⁹ und oberhalb ein in Folge der Wechselwirkung stark erhöhtes Absorptionskontinuum (vgl. Abbildung 1.2). Der Einfluss der räumlichen Dispersion bedingt hierin lediglich eine Verschiebung der Resonanzen.

Als ein weiteres wichtiges Beispiel soll der Fall eines dreidimensionalen Einschlusses der Ladungsträger betrachtet werden. Diese Situation wird uns später bei der Beschreibung der Wechselwirkung zwischen Halbleiter-Quantenpunkten und dem Strahlungsfeld wieder begegnen, so dass wir schon an dieser Stelle einen Ausdruck für die Suszeptibilität angeben wollen. Wir starten wieder in Einhüllenden-Näherung und auf Grund der Beschränkung aller drei Raumrichtungen enthält die Wellenfunktion $\varphi_{\mu\nu\lambda}(\mathbf{r}) = \zeta_\mu(x)\chi_\nu(y)\xi_\lambda(z)$ keinen Anteil ebener Wellen mehr. Zur Berechnung der nun vollständig nichtlokalen Interbandpolarisation müssen wir die inhomogene, zeitabhängige Zwei-Teilchen Schrödingergleichung

$$(\hbar\omega + i\gamma - \mathcal{H}_{cv})p_{cv}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = -d_{cv}E(\mathbf{r})\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$$

$$\mathcal{H}_{cv} = -\frac{\hbar^2}{2m_c^*}\Delta_{\mathbf{r}} - \frac{\hbar^2}{2m_v^*}\Delta_{\mathbf{r}'} - V(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|) + U_{\text{conf}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') + E_{\text{gap}}$$

⁹Die Berücksichtigung endlicher Dämpfung führt zu einer Verbreiterung der ansonsten scharfen Absorptionslinien.

lösen. Wir entwickeln die Polarisierung wieder nach Eigenfunktionen der homogenen Gleichung $\mathcal{H}_{cv}\psi_n(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \varepsilon_n\psi_n(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$, folglich ist

$$p_{cv}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = - \sum_n \int d^3\mathbf{r}'' \frac{d_{cv}E(\mathbf{r}'', \omega)\psi_n^*(\mathbf{r}'', \mathbf{r}'')\psi_n(\mathbf{r}, \mathbf{r}')}{\hbar(\omega + i\gamma) - \varepsilon_n}$$

und erhalten aus der makroskopischen Interbandpolarisation

$$P(\mathbf{r}, \omega) = \sum_{cv} \int d^3\mathbf{r}' d_{cv}^* p_{cv}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') + c.c.$$

eine nichlokale Suszeptibilität

$$\chi(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = - \sum_{cv} \frac{|d_{cv}|^2}{\hbar} \sum_n \frac{\psi_n^*(\mathbf{r}', \mathbf{r}', \omega)\psi_n(\mathbf{r}, \mathbf{r}, \omega)}{\omega - \omega_n + i\gamma} + c.c., \quad (1.34)$$

welche das Ergebnis der linearen Response Theorie [2] reproduziert.

1.3 Exziton-Polaritonen

Wir wollen uns in diesem Kapitel nun ausführlicher mit der Beschreibung des Strahlungsfeldes beschäftigen. Dabei werden wir sehen, dass die Mediumsanregungen stark an das äußere elektromagnetische Feld koppeln können und einen neuen Mischzustand ausbilden. Die Ausbreitung der elektromagnetischen Wellen führt zu einer Polarisierung des Mediums, welche die propagierende Mode im Medium verändert und so zu einer gemeinsamen Dispersion führt. Hierfür prägte Hopfield 1958 den Begriff *Polariton*, im Sinne eines Quasiteilchens, welcher eine Kombination aus propagierendem elektromagnetischem Feld (Photonen) und Mediumspolarisation beinhaltet. Letztere lässt sich, wie wir im vorigen Kapitel diskutiert haben, insbesondere für direkte Halbleiter und im Bereich der Bandkante in einem effektiven Zwei-Teilchenbild, d.h. Exzitonbild, gut beschreiben. Um dieses Quasiteilchenkonzept zur Beschreibung optischer Eigenschaften eingehender zu untersuchen, starten wir zunächst mit Methoden der klassischen Elektrodynamik. Diese liefern insbesondere bei kohärenter Anregung und nichtrelativistischen Aspekten eine exakte Beschreibung und stellen daher keine Einschränkung dar.

Wir beginnen mit unseren Betrachtungen bei den mikroskopischen Maxwell-Lorentz

Gleichungen

$$\text{rot } \mathbf{E} = -\dot{\mathbf{B}}, \quad \text{rot } \mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{j} + \frac{1}{c^2} \dot{\mathbf{E}}, \quad (1.35a)$$

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\alpha} e_{\alpha} \dot{\mathbf{r}}_{\alpha} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_{\alpha}[t]), \quad (1.35b)$$

welche einen fundamentalen Zugang zur Kopplung der physikalischen Felder \mathbf{E} und \mathbf{B} an die Stromdichte $\mathbf{j}(\mathbf{r}, t)$ der geladenen Teilchen α liefert [11]. Den Übergang zu einer makroskopischen, effektiven Beschreibung der Elektrodynamik unter Anwesenheit eines Mediums vollziehen wir, indem wir die Ladungen und Ströme in einen dem Medium zugehörigen internen und einen von außen kontrollierten Anteil zerlegen, d.h. $\mathbf{j} = \mathbf{j}_{\text{ind}} + \mathbf{j}_{\text{ext}}$ (für die Ladungsdichte entsprechend) und eine Mittelung durchführen¹⁰. Da es sich bei den äußeren Ladungen und Strömen lediglich um c-Zahlen handelt, lassen wir diese im Folgenden fort und wählen $\mathbf{j} := \langle \mathbf{j}_{\text{ind}} \rangle = \dot{\mathbf{P}}$ mit der Materialgleichung [17]

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \int d^3\mathbf{r}' dt' \overleftrightarrow{\chi}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t, t') \mathbf{E}(\mathbf{r}', t'). \quad (1.36)$$

Die Suszeptibilität $\overleftrightarrow{\chi}$ wird im Allgemeinen sowohl dielektrische, als auch magnetische Beiträge enthalten. Da uns allerdings nur optische Eigenschaften interessieren, vernachlässigen wir letztere, welches in diesem Regime eine gängige Näherung ist. Eine eingehendere Diskussion zur Wahl der Materialgleichung erfolgt z.B. in [35].

In der im letzten Kapitel beschriebenen Geometrie für eine dielektrische Schicht folgt aus den entsprechenden Gleichungen (1.35a) für die gemittelten Felder die Wellengleichung für das transversale Feld \mathbf{E}_T als

$$\int dz' \left[\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} + q_0^2 \right) \delta(z - z') + \frac{\omega^2}{c^2} \chi(z, z', \omega) \right] \mathbf{E}_T(z', \omega) = 0 \quad (1.37)$$

unter Voraussetzung zeitlicher Homogenität und Isotropie des Mediums. Fordern wir des Weiteren räumliche Homogenität, so hängt die dielektrische Suszeptibilität in Bezug auf die Ortskoordinaten nur noch von deren Differenz ab, so dass fouriertransformiert werden kann und eine algebraische Gleichung

$$[Q_z^2 - q_0^2 \varepsilon(Q_z, \omega)] \mathbf{E}_T(Q_z, \omega) = 0$$

folgt. Darin ist die Größe q_0 die z-Komponente des Vakuum-Wellenvektors, welche hier

¹⁰Der Mittelungsprozess wird im Allgemeinen quantenstatistisch durchzuführen sein.

identisch ω/c_0 ist und $\varepsilon(Q_z, \omega) = 1 + \chi(Q_z, \omega)$ die dielektrische Funktion. Die Lösungsbedingung, welche gelegentlich auch als *Polaritongleichung* bezeichnet wird, ist für $\mathbf{E}_T \neq 0$ durch

$$q_0^2 \varepsilon(Q_z, \omega) = Q_z^2 \quad (1.38)$$

gegeben und ermöglicht die Berechnung der im Allgemeinen komplexwertigen Dispersionsbeziehung $\omega(Q_z)$. Wir wollen diese, ausgehend von (1.33), für den Fall resonanter Einstrahlung am Exzitongrundzustand betrachten und nähern daher im Folgenden

$$\chi(Q_z, \omega) \cong \chi_b - \frac{2\omega_{\text{ex}}(Q_z)\Delta}{\omega^2 - \omega_{\text{ex}}^2(Q_z)},$$

darin ist $\hbar\Delta = 2|d_{cv}|^2|\psi_{100}(r=0)|^2$ und $\hbar\omega_{\text{ex}}(Q_z) = E_{\text{gap}} - R_{\text{ex}} + \frac{\hbar^2 Q_z^2}{2M}$ die frei Exzitondispersion. Die nichtresonanten, frequenzunabhängigen Beiträge wurden hierbei zum konstanten Hintergrund χ_b zusammengefasst und der infinitesimale Imaginärteil der Suszeptibilität wegen $\text{Im } \chi(Q_z, \omega) = \pi\Delta[\delta(\omega - \omega_{\text{ex}}(Q_z)) - \delta(\omega + \omega_{\text{ex}}(Q_z))]$ und $\omega^2 \neq \omega_{\text{ex}}^2$ fortgelassen¹¹. Führen wir noch die Lichtgeschwindigkeit im Medium $c = c_0/\sqrt{\varepsilon_b}$ und eine effektive Kopplungskonstante $\Delta_{Q_z} = 2\omega_{\text{ex}}(Q_z)\Delta/\varepsilon_b$ ein, so ergibt sich eine biquadratische Gleichung zur Bestimmung der Dispersion der Form

$$(\omega - c^2 Q_z^2)[\omega^2 - \omega_{\text{ex}}^2(Q_z)] - \omega^2 \Delta_{Q_z} = 0.$$

Im ungekoppelten Fall, d.h. für $\Delta \rightarrow 0$, folgen die freie Photon- $\omega(Q_z) = cQ_z$ und Exzitondispersion $\omega_{\text{ex}}(Q_z)$. Die gekoppelten Moden ergeben sich aus

$$\omega_{\pm}^2(Q_z) = \frac{1}{2} \left[\omega_{\text{ex}}^2(Q_z) + \Delta_{Q_z} + c^2 Q_z^2 \pm \sqrt{(\omega_{\text{ex}}^2(Q_z) + \Delta_{Q_z} - c^2 Q_z^2)^2 + 4c^2 Q_z^2 \Delta_{Q_z}} \right]$$

und beschreiben die Dispersion der transversalen elektromagnetischen Wellen, den Polaritonen. Zur Diskussion dieser Gleichung sollen die nachfolgenden Grenzfälle betrachtet und hierbei angenommen werden, dass $\Delta_{Q_z} \ll \omega_{\text{ex}}^2(Q_z)$, welches im Allgemeinen der Fall ist.

$$(1) \quad Q_z = 0 \quad (1.39a)$$

$$\omega_+^2(0) = \omega_{\text{ex}}^2(Q_z) + \Delta_0$$

$$\omega_-^2(0) = 0$$

¹¹Für eine endliche Dämpfung wird dieses Vorgehen nicht mehr möglich sein.

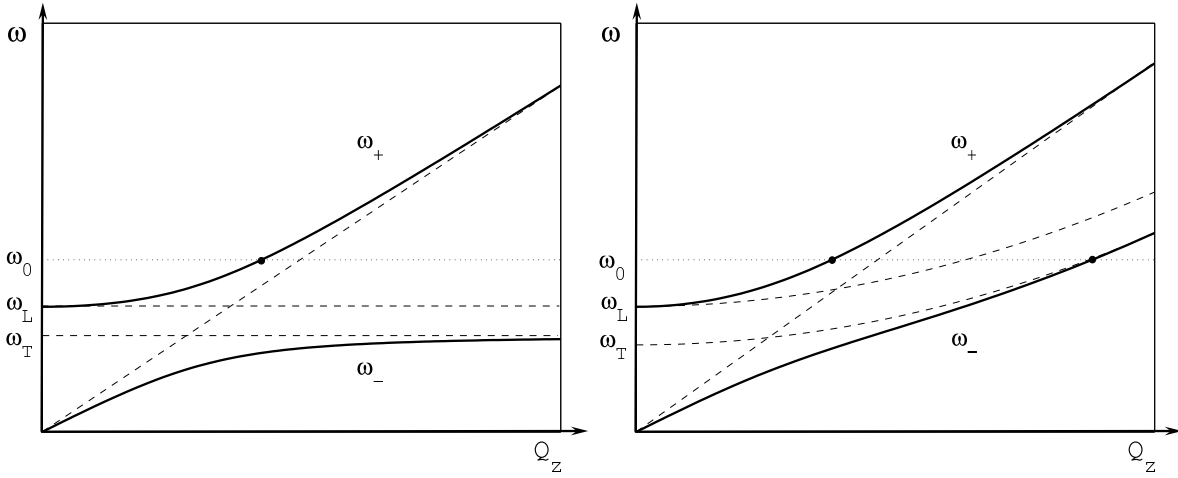


Abbildung 1.3: Polariton-Dispersion bei Vernachlässigung (links) und Berücksichtigung (rechts) räumlicher Dispersion

$$(2) \quad c^2 Q_z^2 < \omega_{\text{ex}}^2(Q_z) + \Delta_{Q_z} \quad (1.39b)$$

$$\omega_+(Q_z) = \omega_{\text{ex}}(Q_z) + \Delta/\varepsilon_b$$

$$\omega_-(Q_z) = cQ_z \left(1 - \frac{\Delta}{\varepsilon_b \omega_{\text{ex}}(Q_z)} \right) < cQ_z$$

$$(3) \quad c^2 Q_z^2 > \omega_{\text{ex}}^2(Q_z) + \Delta_{Q_z} \quad (1.39c)$$

$$\omega_+^2(Q_z) = c^2 Q_z^2 \left(1 + \frac{\Delta_{Q_z}}{c^2 Q_z^2 - \omega_{\text{ex}}^2(Q_z) - \Delta_{Q_z}} \right) > c^2 Q_z^2$$

$$\omega_-^2(Q_z) = \omega_{\text{ex}}^2(Q_z) - \Delta_{Q_z} \frac{\omega_{\text{ex}}^2(Q_z) + \Delta_{Q_z}}{c^2 Q_z^2} < \omega_{\text{ex}}^2(Q_z)$$

Der obere Polaritonenzweig ω_+ nähert sich für $Q_z \rightarrow 0$ der um Δ_0 verschobenen, freien Exzitondispersion an (1.39a) und geht für große Q_z asymptotisch in die Lichtgerade ($\omega = cQ_z$) über (1.39c). Hingegen beginnt der untere Zweig ω_- als Lichtgerade mit modifizierter Lichtgeschwindigkeit (1.39b) und folgt asymptotisch für große Wellenzahlen Q_z der nicht verschobenen, freien Exzitondispersion (1.39c). Im Bereich der Resonanz kann nicht mehr von reinen Photonen bzw. Exzitonen gesprochen werden; der Zustand besitzt gemischten Charakter in Form eines gekoppelten Exziton-Photon Zustandes. Im Intervall $[\omega_{\text{ex}}, \omega_{\text{ex}} + \Delta_{Q_z}]$ existieren bei infinitesimaler Dämpfung keine Moden, so dass ein stop-Band den oberen und unteren Zweig trennt. Die longitudinalen Eigenmoden sind durch $\varepsilon(Q_z, \omega) = 0$ mit den Eigenfrequenzen $\omega_{\text{ex}} + \Delta_{Q_z}$ gegeben und die Größe Δ_{Q_z} als longitudinal-transversal-Aufspaltung identifizieren werden kann. Schematisch ist die Dispersionrelation in Abb. 1.3 dargestellt. Wie hieraus zu sehen ist, bedingt der Einfluss der räumlichen Dispersion, dass für $\omega_0 > \omega_L$ nicht mehr nur eine Mode

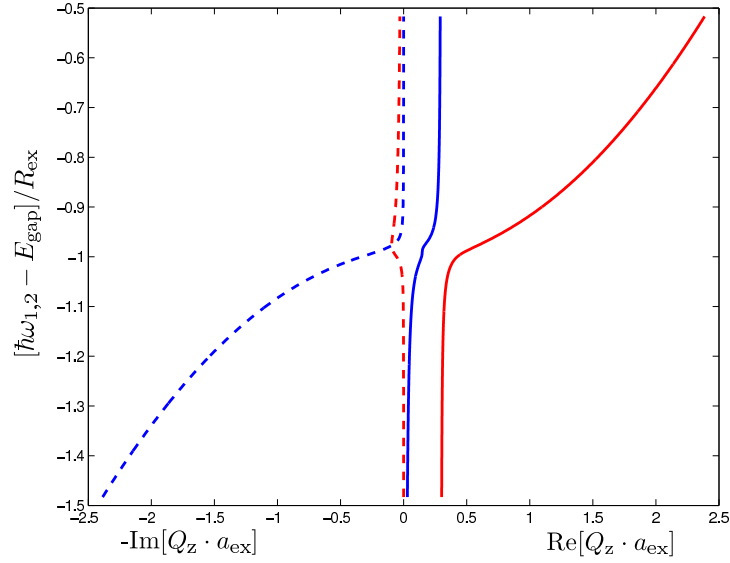


Abbildung 1.4: Exziton-Polariton Dispersion von GaAs in der Nähe der 1s hh-Resonanz mit räumlicher Dispersion

im Medium propagiert. Im Allgemeinen wird der Einfluss der Dämpfung nicht mehr als vernachlässigbar klein angesehen werden können, was dazu führt, dass dies für alle Frequenzen zutrifft, wie die reale Dispersion von GaAs im Bereich der 1s hh-Resonanz zeigt (Abb. 1.4). Dieser Effekt verursacht erhebliche Schwierigkeiten bei der Verwendung der Näherung eines unendlich ausgedehnten Mediums für räumlich inhomogene Systeme, wie im nächsten Abschnitt dargelegt werden soll und wird uns auf das Konzept der zusätzlichen Randbedingungen (ABCs) führen.

1.3.1 Wellenausbreitung mit räumlicher Dispersion

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

— Norman Mailer

In den vorangegangenen Kapiteln wurde sowohl eine mikroskopische Theorie der optischen Anregung eines Halbleiters, als auch die Kopplung an ein äußeres elektromagnetisches Feld behandelt und analytische Resultate für den Spezialfall eines unendlich ausgedehnten, räumlich dispersiven Mediums diskutiert.

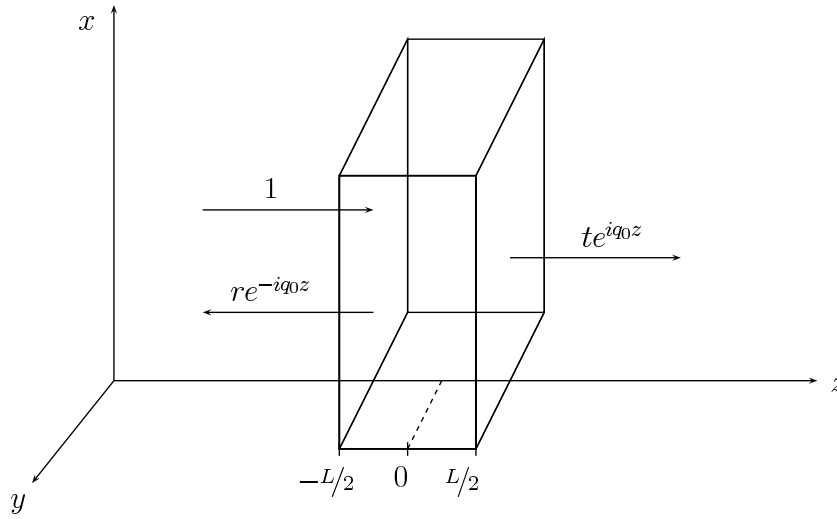


Abbildung 1.5: Geometrie der betrachteten dielektrischen Schicht

Die Mitnahme der räumlichen Abhängigkeit ist für viele konkrete Probleme¹² unverzichtbar und wie sich zeigte im Rahmen des Volumenkonzeptes besonders einfach zu handhaben. Tatsächlich sind aber alle Medien räumlich begrenzt und die Emission bzw. Reflexion und Transmission durch die Oberfläche des Mediums experimentell zugängliche, relevante Messgrößen [41, 40]. Die Berücksichtigung der räumlichen Dispersion führt nun aber auf Grund der gebrochenen Translationsinvarianz für das Gesamtsystem, bestehend aus dem Medium und umgebenen Vakuum, zu einer nichtlokalen Situation. Infolge derer hängt nun die Polarisationsfunktion im Allgemeinen von zwei Größen \mathbf{r} und \mathbf{r}' und nicht wie im Volumenfall nur von deren Differenz ab.

Zahlreiche Versuche sind unternommen worden, diese räumlich inhomogene Situation durch die Polarisierung eines räumlich homogenen Volumen-Mediums mit geeigneten, zumeist phenomenologischen, Zusatzannahmen [33, 47, 20, 27, 50] und Parametern (z.B. exzitonfreie Randschichten [23]) zu nähern und wurden mit numerisch wesentlich aufwendigeren mikroskopischen Rechnungen eingehend untersucht [37, 30, 38, 39]. Trotz der Erfolge [41], experimentelle Daten mit diesen makroskopischen Näherungen zu beschreiben, sind exakte Relationen, ausgehend von der dielektrischen Suszeptibilität, wünschenswert.

Vorbereitend soll zunächst ein Überblick zur Problematik der Nichtlokalität am Beispiel der Propagation elektromagnetischer Wellen durch eine dielektrische Schicht gegeben und die makroskopische Herangehensweise detaillierter dargestellt werden.

¹²Polariton-Effekt, Bose-Einstein-Kondensation von Exzitonen usw.

Wir betrachten wieder die gleiche Situation wie im vorigen Abschnitt, d.h. ein dielektrisches, lineares und isotropes Medium. Die Annahme einer unendlichen Ausdehnung in allen drei Raumrichtungen lassen wir fallen und nehmen jetzt eine Schicht endlicher Länge L in z - Richtung (Abb. 1.5) an, welche von Vakuum umgeben ist. Weiterhin sei das Dielektrikum unendlich ausgedehnt in $\mathbf{r}_\perp = (x, y)$ - Richtung, so dass mit der exakt definierten dielektrischen Suszeptibilität $\chi_{\mathbf{q}_\perp}(z, z', \omega)$ für die Wellengleichung des transversal elektrischen Feldes $\mathbf{E}_T = (E, 0, 0)$

$$\int dz' \left[\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} + q_0^2 \right) \delta(z - z') + \frac{\omega^2}{c^2} \chi_{\mathbf{q}_\perp}(z, z', \omega) \right] \mathbf{E}_T(z', \omega) = 0 \quad (1.40)$$

folgt. Hierin ist q_0 die z -Komponente des Vakuum-Wellenvektors $\mathbf{q} = \frac{\omega}{c} \mathbf{e}_q = q_0 \mathbf{e}_z + \mathbf{q}_\perp$ und nur für senkrechten Einfall ist $\mathbf{q}_\perp = 0$, so dass der Einfallswinkel α gegen die z -Achse entsprechend $q_0 = |\mathbf{q}| \sin \alpha$ gegeben ist. Da die Argumente \mathbf{q}_\perp und ω lediglich parametrisch in den Gleichungen erscheinen, werden diese im Folgenden zumeist weggelassen.

Die Integrodifferentialgleichung (1.40) besitzt bei vorgegebener Einstrahlung von links bzw. rechts zwei linear unabhängige Lösungen $E(z)$ und $E(-z)$ mit

$$E(z) = \begin{cases} e^{iq_0 z} + r e^{-iq_0 z} & z < -L/2 \\ t e^{iq_0 z} & z > L/2 \end{cases}, \quad (1.41)$$

welche im Inneren nicht bekannt sind, solange $\chi(z, z')$ nicht spezifiziert ist. Die Größen r und t seien hierbei die Reflexions- bzw. Transmissionskoeffizienten, welche wie üblich auf die Amplitude der einfallenden Welle normiert sind. Eine analytische Darstellung der nichtlokalen dielektrischen Suszeptibilität wird im Allgemeinen nicht möglich sein, so dass wir uns dem Problem schrittweise nähern wollen.

Bei Vernachlässigung räumlicher Dispersion, d.h. für $\chi(z, z') = \chi \delta(z - z')$ ist die Lösung im Inneren durch $E(z, \omega) = f(\omega) e^{iQ_z[\omega]z} + b(\omega) e^{-iQ_z[\omega]z}$ gegeben, mit der rein zeitlichen Dispersion $Q_z(\omega) = q_0 \sqrt{\varepsilon(\omega)}$ und den Amplituden f und b der im Medium vor- bzw. rücklaufenden ebenen Wellen. Der Anschluss der stückweise definierten Lösung (1.41) wird durch die Maxwell'schen Randbedingungen, d.h. die Stetigkeit der Transversalkomponenten von \mathbf{E} und \mathbf{B} , allein gewährleistet, welche für die eingangs angenommene TE-Polarisation¹³ des Feldes besonders einfach sind. Aus der Transversalität des elektrischen Feldes folgt, dass die Randbedingungen durch die Stetigkeit von $E(z)$

¹³Diese Annahme stellt selbstverständlich eine Beschränkung der Allgemeingültigkeit dar, vereinfacht die nachfolgenden Betrachtungen aber erheblich. Für eine weiterführende Diskussion sei an dieser Stelle auf [21] verwiesen.

nebst seiner ersten Ableitung $\partial_z E(z)$ an den Oberflächen gegeben sind¹⁴. Dies liefert ein System von vier algebraischen Gleichungen zur Bestimmung des Reflexions- bzw. Transmissionskoeffizienten r, t und den Amplituden f, b .

Ist die räumliche Abhängigkeit nicht vernachlässigbar, so wird es insbesondere für sehr dünne dielektrische Schichten notwendig sein, die Gleichung für die mikroskopische Interbandpolarisation (1.27) zusammen mit den Maxwellgleichungen zu lösen. Kann jedoch vorausgesetzt werden, dass die Relativbewegung des Exzitons durch die Randbedingungen unbeeinflusst bleibt und von der Schwerpunktsbewegung entkoppelt werden kann, was selbstverständlich nur für hinreichend dicke Schichten der Fall sein wird, so kann näherungsweise die dielektrische Suszeptibilität des Volumenfalles $\chi(z, z') \rightarrow \chi(z - z')$ benutzt werden. Dieses Vorgehen hat zur Konsequenz, dass, wie aus der Abbildung 1.3 bzw. 1.4 zu entnehmen ist, nicht mehr nur eine Mode innerhalb der Schicht propagiert, folglich die Polaritongleichung $Q^2 = q_0^2 \varepsilon(Q, \omega) = Q_z^2 + q_\perp^2$ mehrere Lösungszweige $Q_{z,j}$ mit $j = 1, 2, \dots$ besitzt. Für $|x| < L/2$ ist die Lösung daher als Linearkombination aller propagierenden Moden gegeben und besitzt die Form

$$E(z, \omega) = \sum_j E_j(z, \omega) = \sum_j f_j(\omega) e^{iQ_{z,j}[\omega]z} + b_j(\omega) e^{-iQ_{z,j}[\omega]z}. \quad (1.42)$$

Die Maxwellschen Randbedingungen sind folglich für $j > 1$ nicht mehr ausreichend. In der Originalarbeit Pekars [33] wurde dieses Problem dahingehend gelöst, dass mehr oder weniger intuitiv das Verschwinden der makroskopischen Polarisation $P(z, \omega)$ an der Oberfläche, in Form einer zusätzlichen Randbedingung, gefordert wurde¹⁵. Dies mag sinnvoll erscheinen, da die Exzitonen eine endliche Ausdehnung besitzen und sich der Oberfläche nur begrenzt nähern können¹⁶. Die Situation ist vergleichbar mit der eines unendlich hohen Potentialtopfes in z -Richtung und führt folglich zu einer Quantisierung der Schwerpunktsbewegung. In der Tat finden sich im Reflexions- bzw. Transmissionsspektrum energetisch oberhalb des freien Exzitons Strukturen, deren Ursache nicht auf Fabry-Perot Interferenzen zurückgeführt werden kann [49, 48] und daher eine Bestätigung für die Berücksichtigung der räumlichen Dispersion darstellt. Es muss an dieser Stelle aber darauf hingewiesen werden, dass eine adäquate Beschreibung der Position dieser Reso-

¹⁴Zu beachten ist hierbei, dass das magnetischen Feld $\mathbf{B} \propto \mathbf{q} \times \mathbf{E}$ und die Oberflächennormalen in z -Richtung liegen.

¹⁵Existiert mehr als eine Resonanz, z.B. durch lh- und hh - Exzitonen, so ist das Verschwinden der Polarisation für jeden Beitrag separat zu fordern.

¹⁶Mikroskopisch gesehen verschwindet die kohärente Übergangsamplitude, wenn sich entweder das Elektron oder das Loch außerhalb des Dielektrikums befindet. Hierbei ist selbstverständlich zu beachten, dass die mikroskopische Randbedingung unabhängig, hingegen die makroskopische abhängig von der Entkopplung der Relativ- und Schwerpunktskoordinaten ist.

nanzen für dünnere Schichten nur unter Einführung zusätzlicher Parameter (exzitonfreie Randschichten), welche durch mikroskopische Rechnungen gestützt sind [38], gelungen ist und daher den nicht unerheblichen Einfluss der Nichtlokalität widerspiegelt. Abschließend sei bemerkt, dass neben Pekars eine Vielzahl weiterer Vorschläge existieren, die sich größtenteils auf das Verschwinden einer Linearkombination aus Polarisation und deren erster Ableitung $\alpha \partial_z P(z)|_{\pm L/2} + \beta P(\pm L/2) = 0$ zurückführen lassen [50].

Wie jedoch eine Arbeit von Bishop und Maradudin zeigt [8], sind nicht alle Parameterkombinationen (α, β) mit der Kontinuität des Poyntingvektors, d.h. der Energieerhaltung, zu vereinbaren. Die Beweisführung wurde allerdings modellabhängig geführt. Eine allgemeine Betrachtung soll daher im folgenden Abschnitt gegeben werden und es wird sich zeigen, dass die Maxwell'schen Randbedingungen allein die Energieerhaltung sichern, unabhängig von den verwendeten zusätzlichen Randbedingungen.

1.3.2 Das Poyntingsche Theorem und Energieerhaltung

Das *Poyntingsche Theorem* ist das Äquivalent des Energieerhaltungssatzes in der Elektrodynamik und beschreibt die Balance zwischen der zeitlichen Änderung elektromagnetischer und mechanischer Energie $U_{e,m}$ und den zugehörigen Quellen energetischer Stromflüsse $\mathbf{S}_{e,m}$:

$$\frac{\partial}{\partial t}(U_e + U_m) + \text{div}(\mathbf{S}_e + \mathbf{S}_m) = 0 \quad (1.43)$$

Entscheidend ist, dass diese Kontinuitätsgleichung in allgemeiner Form gilt und keinerlei Rückgriff auf konkrete Materialgleichungen bzw. modellhafte Annahmen enthält. Ausgehend hiervon werden wir eine Relation ableiten, welche sich als Absorption = Reemission interpretieren lässt. Wir werden dabei ein klassisches Absorptionsexperiment betrachten, dessen Verallgemeinerung auf eine quantenmechanische, inkohärente Situation prinzipiell, unter Verwendung der bekannten Rezepte (Operatoren, Symmetrisierung, Vertauschungsrelationen) und der Keldysh-Technik (Nichtgleichgewichts - Greensfunktionen) möglich ist, aber nicht Bestandteil dieser Arbeit sein soll. Es sei aber soviel gesagt, dass die Resultate der quantenmechanischen Rechnung exakt die der klassischen sind [36] und die nachfolgenden Betrachtungen somit keine Einschränkung darstellen.

Wir beginnen mit den mikroskopischen Maxwell-Lorentz Gleichungen (1.35) und finden mit der Vektoridentität $\text{div}(\mathbf{X} \times \mathbf{Y}) = \mathbf{Y} \text{ rot } \mathbf{X} - \mathbf{X} \text{ rot } \mathbf{Y}$ den Zusammenhang:

$$\varepsilon_0 \mathbf{E} \cdot \dot{\mathbf{E}} + \frac{1}{\mu_0} \mathbf{B} \cdot \dot{\mathbf{B}} + \frac{1}{\mu_0} \text{div}(\mathbf{E} \times \mathbf{B}) = -\mathbf{j} \cdot \mathbf{E}, \quad (1.44)$$

worin die Energiedichte des elektromagnetischen Feldes U_e und der elektromagnetische Poyntingvektor \mathbf{S}_e als

$$U_e = \frac{1}{2}(\varepsilon_0 \mathbf{E}^2 + \frac{1}{\mu_0} \mathbf{B}^2) \quad \text{und} \quad \mathbf{S}_e = \frac{1}{\mu_0} (\mathbf{E} \times \mathbf{B}) \quad (1.45)$$

identifiziert werden können. Benötigt wird nun noch ein mikroskopischer Ausdruck für die Joulesche Wärme $-\mathbf{j} \cdot \mathbf{E}$. Dazu betrachten wir die kinetische Energiedichte U_m von α Teilchen, sowie die zugehörige Energieflussdichte \mathbf{S}_m entsprechend:

$$U_m(\mathbf{r}, t) = \sum_{\alpha} \frac{m_{\alpha}}{2} \dot{\mathbf{r}}_{\alpha}^2 \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_{\alpha}[t]) \quad \text{und} \quad \mathbf{S}_m(\mathbf{r}, t) = \sum_{\alpha} \frac{m_{\alpha}}{2} \dot{\mathbf{r}}_{\alpha}^2 \dot{\mathbf{r}}_{\alpha} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_{\alpha}[t]). \quad (1.46)$$

Die in der zeitlichen Ableitung der Energiedichte $\partial_t U_m$ auftauchende Kraft $\mathbf{F}_{\alpha} = m_{\alpha} \ddot{\mathbf{r}}_{\alpha}$ ist nun nichts anderes, als die auf das α -te Teilchen wirkende Lorentzkraft $\mathbf{F}_{\alpha} = e_{\alpha}(\mathbf{E} + \dot{\mathbf{r}}_{\alpha} \times \mathbf{B})$, so dass wir für die Joulesche Wärme, unter Beachtung von (1.35b), den Ausdruck

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{\partial}{\partial t} U_m(\mathbf{r}, t) - \text{div } \mathbf{S}_m(\mathbf{r}, t) \quad (1.47)$$

erhalten. Kombinieren wir nun dieses Resultat mit (1.44) und den Definitionen (1.45), so folgt direkt das *Poyntingsche Theorem* (1.43). Bevor wir mit den Betrachtungen fortfahren, soll zu diesem Ergebnis noch Folgendes bemerkt werden: Es wurden keinerlei Annahmen, mit Ausnahme nichtrelativistischer Geschwindigkeiten, bzgl. des Verhaltens bzw. der Eigenschaften der Teilchen oder Felder gemacht. Die mechanische Energie ist rein kinetischer Natur und daher werden alle potentiellen Energien den Feldern zugeordnet. Die physikalischen Felder sind \mathbf{E} und \mathbf{B} und nicht die abgeleiteten Größen \mathbf{D} und \mathbf{H} . Nur so lassen sich das Poyntingsche Theorem und eine Energiedichte angeben¹⁷. Ferner ist es bei Betrachtung der Energieerhaltung an Grenzflächen nicht notwendigerweise der elektromagnetische Poyntingvektor \mathbf{S}_e , der kontinuierlich ist (er kann folglich unstetig sein), sondern vielmehr die Kontinuitätsgleichung (1.43), die gilt. Dies setzt daher bei der Modellbildung eine konsistente Theorie sowohl für den elektromagnetischen, als auch für den mechanischen Poyntingvektor voraus. Ist dies nicht der Fall, so kann es (wie in [8]) zu einer Fehlinterpretation bzw. falschen Resultaten kommen.

¹⁷vgl. hierzu die Diskussion in [35]

Wir wollen nun das Poyntingsche Theorem auf die geometrischen Gegebenheiten der dielektrischen Schicht bei linearer Antwort des Mediums auf ein optisches Feld anwenden. Ausgehend von der integralen Formulierung des Poyntingschen Theorems

$$\oint \mathbf{S}_e \cdot d\mathbf{f} = - \int \mathbf{j} \cdot \mathbf{E} dV$$

erhalten wir für die hier untersuchte Geometrie und nach Division durch die Querschnittsflächen der Schicht

$$S_e(L/2, t) - S_e(-L/2, t) = - \int_{-L/2}^{L/2} dz j(z, t) E(z, t) =: - \int_{-L/2}^{L/2} dz W(z, t). \quad (1.48)$$

Drücken wir nun die Felder in unserer Geometrie und \mathbf{j} durch $\dot{\mathbf{P}}$ aus, so erhalten wir nach Fouriertransformation $t \rightarrow \omega$:

$$S_e(z, \omega) = \frac{i}{\mu_0} \int \frac{d\omega'}{2\pi} \frac{1}{\omega - \omega'} E(z, \omega') \partial_z E(z, \omega - \omega') \quad (1.49a)$$

$$W(z, \omega) = -i\varepsilon_0 \int \frac{d\omega'}{2\pi} \omega' E(z, \omega - \omega') \int dz' \chi(z, z', \omega') E(z', \omega') \quad (1.49b)$$

Hierin ist $P(z, \omega) = \varepsilon_0 \int dz' \chi(z, z', \omega) E(z', \omega)$ die makroskopische Polarisierung mit der exakten, aber im Allgemeinen unbekannten, dielektrischen Suszeptibilität χ . Für das Folgende nehmen wir formal monochromatische Einstrahlung an und beachten, dass E reell ist, d.h.

$$E(z, \omega) = \frac{1}{2} [E(z, \omega_0) \delta(\omega - \omega_0) + E^*(z, \omega_0) \delta(\omega + \omega_0)] \quad (1.50)$$

Die Frequenzintegrale (1.49) erhalten damit die Struktur $S(z, \omega) = S_0(z, \omega_0) \delta(\omega) + S_2(z, \omega_0) \delta(\omega - 2\omega_0) + S_2^*(z, \omega_0) \delta(\omega + 2\omega_0)$ und für $W(z, \omega)$ entsprechend. Wir betrachten nachfolgend nur den statischen¹⁸ Anteil $\propto \delta(\omega)$ und erhalten mit (1.41) nach Einsetzen in (1.49):

$$S_0(z, \omega_0) = -\frac{q_0}{4\pi\mu_0\omega_0} \begin{cases} 1 - |r|^2 & z < -L/2 \\ |t|^2 & z > L/2 \end{cases} \quad (1.51a)$$

$$\int_{-L/2}^{L/2} W_0(z, \omega_0) = -\frac{\varepsilon_0\omega_0}{4\pi} \text{Im} \int_{-L/2}^{L/2} dz E^*(z, \omega_0) P(z, \omega_0). \quad (1.51b)$$

¹⁸Der zeitliche Mittelungsprozess entfällt als Nebeneffekt auf elegante Weise.

Damit ergibt die Energiebilanz (1.48) explizit

$$1 - |r|^2 - |t|^2 = \mathfrak{a} = \frac{1}{q_0} \frac{\omega^2}{c^2} \text{Im} \int_{-L/2}^{L/2} dz E^*(z, \omega) P(z, \omega) \quad (1.52)$$

und stellt für ein beliebiges Medium, charakterisiert durch eine (exakte) dielektrische Suszeptibilität, eine exakte Beziehung zwischen den äußeren und inneren Koeffizienten dar. Die Größe $\mathfrak{a} = 1 - |r|^2 - |t|^2$ ist offensichtlich die klassische *Absorption* des Mediums, während die rechte Seite der Gleichung (1.52) dessen Response auf ein äußeres elektromagnetisches Feld (gegeben durch die Suszeptibilität) enthält und diese Größe daher als *Reemission* zu interpretieren ist.

Energieerhaltung bei Verwendung zusätzlicher Randbedingungen

Wir haben nun alle Hilfsmittel zusammengetragen, um analytisch zeigen zu können, dass die Energieerhaltung, bzw. die Identität (1.52), erfüllt ist, solange die Felder an der Mediumsoberfläche stetig im Sinne der Maxwellschen Randbedingungen sind. Es wird sich zeigen, dass dies auch zutreffend ist, wenn innerhalb des Mediums mehrere Moden propagieren. Das elektrische Feld besitzt dann die Darstellung $E(z, \omega) = \sum_i E_i(z, \omega) = \sum_i f_i e^{iQ_{z,i}[\omega]z} + b_i e^{-iQ_{z,i}[\omega]z}$, mit den Lösungszweigen $Q_{z,i}$ der Polaritongleichung $Q_i^2 = \frac{\omega^2}{c^2}(1 + \chi(Q_i, \omega)) = Q_{z,i}^2 + q_\perp^2$. Betrachten wir zum Beweis zunächst die Maxwellschen Randbedingungen

$$e^{-iq_0 L/2} + r e^{iq_0 L/2} = \sum_i (f_i e^{-iQ_i L/2} + b_i e^{iQ_i L/2}) \quad (1.53a)$$

$$e^{-iq_0 L/2} - r e^{iq_0 L/2} = \sum_i \frac{Q_i}{q_0} (f_i e^{-iQ_i L/2} - b_i e^{iQ_i L/2}) \quad (1.53b)$$

$$t e^{iq_0 L/2} = \sum_i (f_i e^{iQ_i L/2} + b_i e^{-iQ_i L/2}) \quad (1.53c)$$

$$t e^{iq_0 L/2} = \sum_i \frac{Q_i}{q_0} (f_i e^{iQ_i L/2} - b_i e^{-iQ_i L/2}), \quad (1.53d)$$

so dass ein Ausdruck für die klassische Absorption $1 - |r|^2 - |t|^2$ entsprechend

$$\begin{aligned} \mathfrak{a} = & \frac{1}{4} (|(1.53a) + (1.53b)|^2 - |(1.53a) - (1.53b)|^2 \\ & - |(1.53c) + (1.53d)|^2 + |(1.53c) - (1.53d)|^2) \end{aligned} \quad (1.54)$$

konstruiert werden kann¹⁹. Unabhängig von diesem Ergebnis berechnen wir nun die Reemission und müssen hierzu zunächst noch eine konsistente Darstellung der Polarisierung zum Ansatz für das elektrische Feld finden. Setzen wir diesen hierzu in die Wellengleichung (1.40) ein, so folgt unter Ausnutzung der Polaritongleichung der Ausdruck²⁰

$$P(z, \omega) = \varepsilon_0 \sum_i \chi(Q_i, \omega) E_i(z, \omega). \quad (1.55)$$

Hiermit kann nun leicht die Gültigkeit der Identität (1.52) gezeigt werden, wobei wir die etwas längliche Rechnung an dieser Stelle nicht ausführen wollen. Stattdessen sei auf den Anhang A.2 verwiesen.

Bemerkenswert ist aber, dass keinerlei Aussage über die Verwendung von zusätzlichen Randbedingungen getroffen werden musste und diese zumindest in Hinblick auf die Energieerhaltung gleichwertig sind. Dies setzt selbstverständlich voraus, dass bei Vorgabe einer, möglicherweise durch das Modell beliebig falschen, Suszeptibilität $\chi(z, z')$ alle physikalischen Größen hieraus konsistent abgeleitet wurden. So ergibt sich formal z.B. eine modellunabhängige Darstellung sowohl des elektrischen, wie auch mechanischen Poyntingvektors

$$S_e(z, \omega) = -S_m(z, \omega) = \int_{-\infty}^z dz' W(z', \omega), \quad (1.56)$$

mit der Dissipation $W(z, \omega)$ entsprechend (1.49b). Es ist daher nur konsequent, zusätzliche Randbedingungen nicht phänomenologisch bzgl. der makroskopischen Polarisierung, welche keiner Differentialgleichung genügt, einzuführen, sondern ausgehend von einer genährten Suszeptibilität die Theorie aufzubauen. In der Arbeit von Maradudin und Mills [27] wird hierzu vorgeschlagen, näherungsweise die dielektrische Funktion des Volumenmaterials zu benutzen und diese mittels Sprungfunktionen auf das Medium zu beschränken, um so eine nichtlokale Situation zu erhalten. Da die Frage nach der Energieerhaltung geklärt wurde, soll dieser Ansatz, als ein analytisch lösbares Beispiel, nachfolgend vorgestellt werden.

¹⁹Hierin ist der letzte Term identisch Null.

²⁰Existiert mehr als eine Resonanz, z.B. durch lh- und hh - Exzitonen, so ist die Polarisierung entsprechend $P(z, \omega) = \varepsilon_0 \sum_{i,m} \chi^{(m)}(Q_i, \omega) E_i(z, \omega)$ zu wählen, wobei m die Resonanzen abzählt.

1.3.3 Konstruktion einer konsistenten makroskopischen Näherung – Dielektrische Näherung

“Alles sollte so einfach wie möglich sein - aber nicht einfacher.”

— Albert Einstein

In diesem Abschnitt sollen der als *dielektrische Näherung* bekannte Ansatz

$$\chi(z, z') = \theta(L/2 - |z|)\chi(z - z')\theta(L/2 - |z'|) \quad (1.57)$$

analytisch untersucht und ausgehend hiervon Forderungen an die makroskopische Polarisation, im Sinne einer verallgemeinerten Pekarschen Randbedingung, für die geometrischen Gegebenheiten einer dielektrischen Schicht abgeleitet werden. Anschließend werden numerische Resultate am Beispiel von GaAs im Vergleich mit anderen Näherungen diskutiert.

Wir beginnen unsere Untersuchung mit der Betrachtung der Wellengleichung (1.40) unter Verwendung der dielektrischen Näherung (1.57):

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} + q_0^2\right) E(z, \omega) + \frac{\omega^2}{c^2} \int_{-L/2}^{L/2} dz' \chi_{\mathbf{q}\perp}(z - z', \omega) E(z', \omega) = 0 \quad (1.58)$$

Die dielektrische Suszeptibilität möge N Polstellen bzw. (exzitonische) Resonanzen und einen Hintergrundsbeitrag χ_b enthalten:

$$\chi_{\mathbf{q}\perp}(z - z') = \int \frac{dQ_z}{2\pi} \chi_{\mathbf{q}\perp}(Q_z) e^{iQ_z(z-z')} = \sum_{\nu=1}^N R_\nu e^{i\Gamma_{\mathbf{q}\perp, \nu}|z-z'|} + \chi_b \delta(z - z') \quad (1.59)$$

Die Anwendung des Operators $\prod_{\nu'} \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} + \Gamma_{\mathbf{q}\perp, \nu'}^2\right)$ erzeugt²¹ mit dem Ansatz $E(z) \propto e^{iQ_z z}$ eine algebraische Gleichung $(N+1)$ -ten Grades in Q_z^2 , d.h. $2(N+1)$ Lösungen $\pm Q_{z,j}$, $j = 1, \dots, N+1$ vorwärts- und rückwärtspropagierender Moden. Die allgemeine Struktur des elektrischen Feldes ist folglich durch den bekannten Ansatz (1.42) gegeben. Setzen wir diesen, zusammen mit (1.59) in (1.58) ein und führen die verbleibende Integration

²¹Es ist aus $e^{i\Gamma_{\mathbf{q}\perp, \nu}|z-z'|} = \theta(z - z')e^{i\Gamma_{\mathbf{q}\perp, \nu}(z-z')} + \theta(z' - z)e^{-i\Gamma_{\mathbf{q}\perp, \nu}(z-z')}$ leicht zu sehen, dass $(\partial_z^2 + \Gamma_{\mathbf{q}\perp, \nu}^2)e^{i\Gamma_{\mathbf{q}\perp, \nu}|z-z'|} = 2i\Gamma_{\mathbf{q}\perp, \nu}\delta(z - z')$ gilt.

aus, so erhalten wir nach kurzer Rechnung:

$$\begin{aligned} & \sum_j \left[(Q_{z,j}^2 - Q_{b,\parallel}^2) - \frac{\omega^2}{c^2} \sum_\nu \frac{R_\nu}{i} \frac{2\Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu}}{Q_{z,j}^2 - \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu}^2} \right] E_j(z) \\ &= \frac{\omega^2}{c^2} \sum_{\nu, j} \frac{R_\nu}{i} \left\{ e^{-i\Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu} z} \left[f_j \frac{e^{i(Q_{z,j} + \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu})L/2}}{Q_{z,j} + \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu}} + b_j \frac{e^{i(Q_{z,j} - \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu})L/2}}{Q_{z,j} - \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu}} \right] \right. \\ & \quad \left. - e^{i\Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu} z} \left[f_j \frac{e^{-i(Q_{z,j} - \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu})L/2}}{Q_{z,j} - \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu}} - b_j \frac{e^{i(Q_{z,j} + \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu})L/2}}{Q_{z,j} + \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu}} \right] \right\}. \end{aligned} \quad (1.60)$$

Hierin ist die Größe $Q_{b,\parallel}^2 = \frac{\omega^2}{c^2}(1 + \chi_b) - \mathbf{q}_\perp^2$ die Parallelkomponente der Dispersion des nichtresonanten Hintergrundes. Ferner kann die linke Seite der Gleichung (1.60), wegen

$$\chi(Q_z) = \int dz e^{-iQ_z z} \sum_\nu R_\nu e^{i\Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu}|z|} = \sum_\nu \frac{R_\nu}{i} \frac{2\Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu}}{Q_z^2 - \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu}^2}, \quad (1.61)$$

unter der Bedingung des Verschwindens der eckigen Klammern für alle ν , als die Polartongleichung

$$(Q_{z,j}^2 - Q_{b,\parallel}^2) - \frac{\omega^2}{c^2} \chi(Q_z) = 0 \quad \Rightarrow \quad Q_{z,j}^2 - \mathbf{q}_\perp^2 = \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon_{\mathbf{q}_\perp}(Q_{z,j}) \quad (1.62)$$

identifiziert werden. Wir haben folglich neben den 4 Maxwellschen Randbedingungen zusätzlich einen Satz von $2N$ Gleichungen

$$\begin{aligned} & \sum_j \left[f_j \frac{e^{i(Q_{z,j} + \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu})L/2}}{Q_{z,j} + \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu}} + b_j \frac{e^{i(Q_{z,j} - \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu})L/2}}{Q_{z,j} - \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu}} \right] = 0 \\ & \sum_j \left[f_j \frac{e^{-i(Q_{z,j} - \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu})L/2}}{Q_{z,j} - \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu}} - b_j \frac{e^{i(Q_{z,j} + \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu})L/2}}{Q_{z,j} + \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu}} \right] = 0 \quad \forall \nu \end{aligned} \quad (1.63)$$

zu erfüllen, so dass sich die $2(N + 1)$ Koeffizienten f_j, b_j und r, t bestimmen lassen. Betrachten wir des Weiteren die makroskopische Polarisierung nebst erster Ableitung

$$P^{(\nu)}(\pm L/2) = \sum_j \frac{R_\nu}{i} \frac{2\Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu}}{Q_{z,j}^2 - \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu}^2} [f_j e^{\pm iQ_{z,j}L/2} - b_j e^{\mp iQ_{z,j}L/2}] \quad (1.64a)$$

$$\partial_z P^{(\nu)}(z)|_{\pm L/2} = \sum_j R_\nu \frac{2\Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu} Q_{z,j}}{Q_{z,j}^2 - \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu}^2} [f_j e^{\pm iQ_{z,j}L/2} + b_j e^{\mp iQ_{z,j}L/2}], \quad (1.64b)$$

so finden wir mit (1.63) durch Koeffizientenvergleich eine Darstellung der verallgemei-

nerten Pekarschen Randbedingungen der Art:

$$\partial_z P(z)|_{\pm L/2} \mp i\Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu} P(\pm L/2) = 0 \quad \forall \nu \quad (1.65)$$

Wir wollen dieses allgemeine Ergebnis nun noch explizit für das Halbleitermodell (1.33) angeben, unter der Annahme, dass die Beiträge negativer Frequenzen energetisch wohl separiert sind und dem konstanten Hintergrund zugeschrieben werden können. Die dielektrische Suszeptibilität sei dann durch

$$\chi(Q, \omega) = \chi_b - \sum_{\nu} \frac{\hbar \Delta_{\nu}}{\hbar(\omega - \omega_{\text{ex}, \nu}) - \hbar^2 Q^2 / 2M_{\text{ex}, \nu}} \quad (1.66)$$

gegeben, wobei die longitudinal-transversal-Aufspaltung $\hbar \Delta_{\nu}$ wie in Abschnitt 1.3 eingeführt sei. Wir betrachten den Einfluss der räumlichen Dispersion separat, so dass die freie Exziton-Dispersion durch $\hbar \omega_{\text{ex}, \nu} = E_{\text{gap}} - \varepsilon_{\nu} + i\hbar \gamma_{\nu}$ gegeben ist. Die Größe (1.66) lässt sich mittels Fouriertransformation auf die Gestalt (1.59) bringen. Um dies zu sehen, formen wir noch etwas um und erhalten

$$\chi(Q, \omega) = \chi_b - \sum_{\nu} \frac{2M_{\text{ex}, \nu} \Delta_{\nu}}{\hbar} \frac{1}{[Q_z - \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu}][Q_z + \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu}]} \quad (1.67)$$

mit

$$(\Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu})^2 = \frac{2M_{\text{ex}, \nu}}{\hbar} [\omega - \omega_{\text{ex}, \nu}] - \mathbf{q}_\perp^2. \quad (1.68)$$

Bei Verwendung des Residuensatzes ist darauf zu achten, dass das Integral lediglich für die positive Wurzel ($\text{sign}(\text{Im } \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, n}) > 0$) analytisch ist, und wir erhalten für R_{ν} den Ausdruck

$$R_{\nu} = \frac{iM_{\text{ex}, \nu} \Delta_{\nu}}{\hbar \Gamma_{\mathbf{q}_\perp, \nu}}. \quad (1.69)$$

Um dieses Resultat eingehender diskutieren zu können, sollen nachfolgend sowohl numerische Ergebnisse zur Absorption und zum Phasenverhalten eines Reflektions-Transmissionsexperimentes an einer GaAs Schicht (Abbildung 1.6) für senkrechten Einfall ($\mathbf{q}_\perp = 0$), als auch die zugehörige räumliche Verteilung der makroskopischen Interbandpolarisation (Abbildung 1.7), im Vergleich zu den bekannten Ergebnissen der Näherungen von Pekar und Ting-Frankel-Birman [46, 37, 39], vorgestellt werden. Zuvor sei aber darauf hingewiesen, dass die folgenden Ausführungen nicht den Anspruch erheben, die

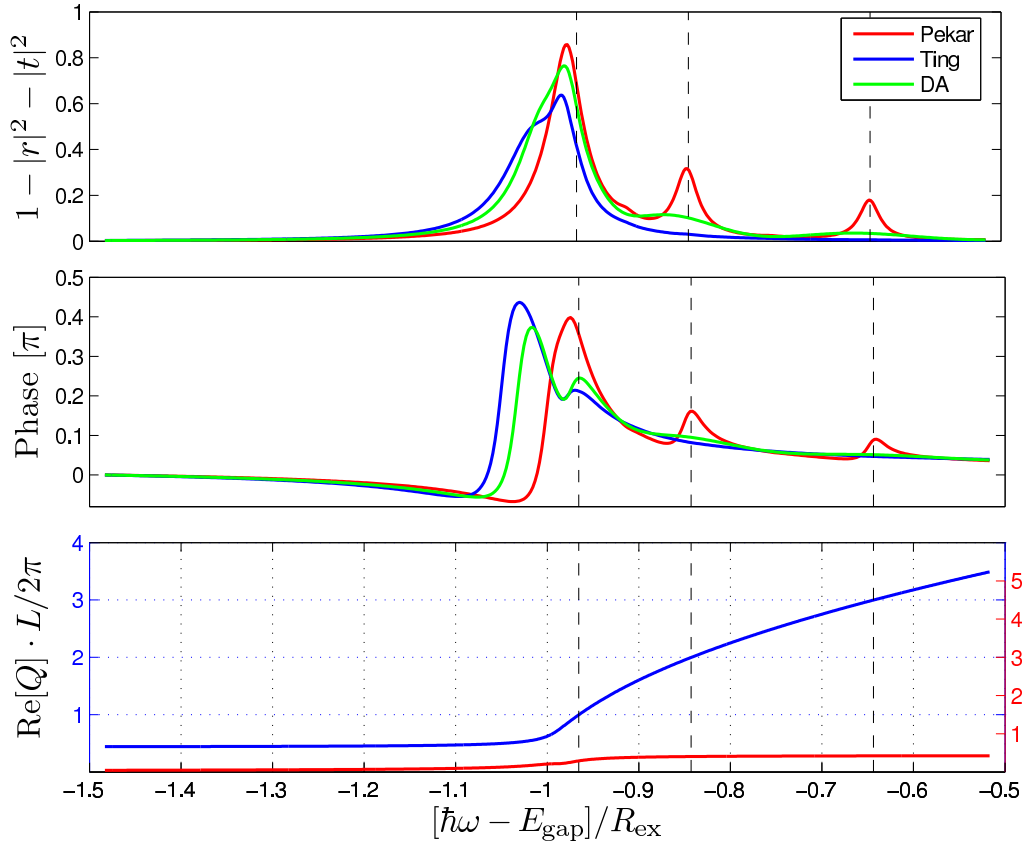


Abbildung 1.6: Absorptionsspektrum (oben), Phase des Reflexionskoeffizienten (mitte) und Realteil der Dispersionszweige (unten) für eine 100 nm GaAs Schicht. Die gestrichelten Linien markieren die Resonanzbedingung für die Ausbildung dipolaktiver, stehender Polarisationswellen.

Qualität der Näherung widerzuspiegeln oder gar experimentelle Daten zu reproduzieren. Vielmehr sollen quantitativ die charakteristischen Effekte, infolge der räumlichen Nichtlokalität, im Rahmen dieser Näherung dargelegt werden.

Betrachtet sei die idealisierte Situation, dargestellt in Abbildung 1.5, für GaAs im Bereich der 1s-hh Exzitonresonanz. Ferner möge die dielektrische Schicht eine Ausdehnung von der Größenordnung $10 a_{\text{ex}} \approx 100 \text{ nm}$ besitzen, welche den Übergangsbereich zwischen einem quasi-zweidimensionalen System und einem Volumenmaterial darstellt, so dass sich einerseits Effekte, bedingt durch die Lokalisierung der Exzitonen, noch gut studieren lassen und andererseits die Annahme der Separation der Relativ- und Schwerpunktskoordinaten näherungsweise erfüllt ist. Infolge der räumlichen Dispersion wird das Exzitonspektrum nun nicht mehr wasserstoffartig sein, so dass sich energetisch oberhalb des 1s-hh zusätzliche Resonanz im Absorptionsspektrum bzw. Sprünge

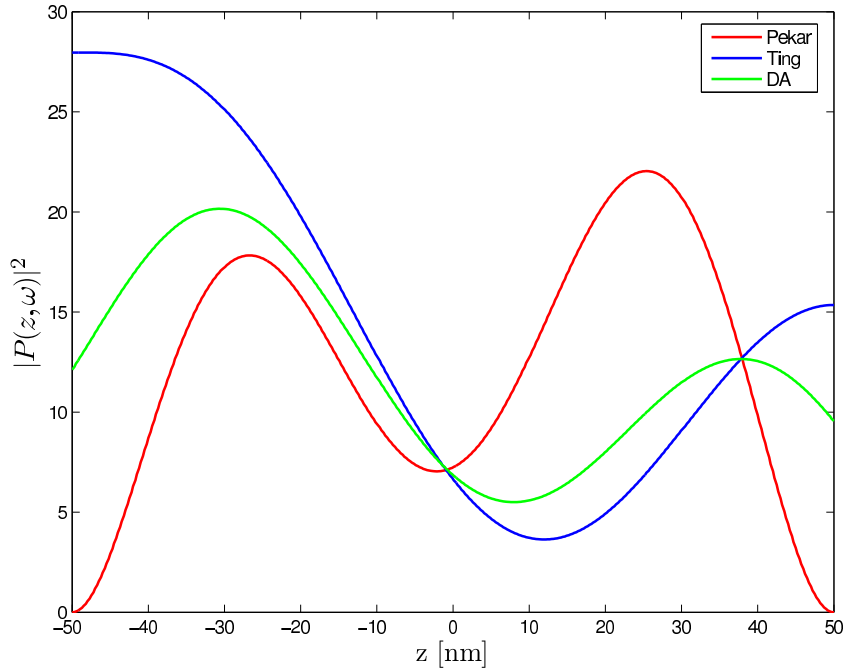


Abbildung 1.7: Räumliche Verteilung der makroskopischen Interbandpolarisation für stationäre, monochromatische Anregung einer 100 nm GaAs Schicht im Bereich der $n=2$ Polaritonresonanz, markiert in Abbildung 1.6, ohne Beitrag des konstanten Hintergrundes.

im Phasenverhalten [31, 37] befinden. Um an dieser Stelle eine grobe Interpretation dieses Verhaltens angeben zu können, soll von einer Quantisierung der Schwerpunktsbewegung [48, 12] ausgegangen werden. Im Fall verschwindender Polarisation an den Mediumsgrenzen ist die Schwerpunktsbewegung vergleichbar mit der eines Teilchens in einem unendlich hohen Potential. Die Lösungen der stationären Schrödingergleichung sind dann gegeben durch das diskrete Spektrum der Eigenenergien $\varepsilon_n = \frac{\hbar^2}{2M_{\text{ex}}} \left(\frac{n\pi}{L}\right)^2$ und zugehörigen sinusförmigen Eigenfunktionen²² mit n Maxima. Stehende Polarisationswellen können sich bei stationärer Anregung folglich ausbilden, wenn die Bedingung $\text{Re}(Q_z)L/\pi = n$ erfüllt ist. Ferner gelten Auswahlregeln für die optische Aktivität der Zustände in Abhängigkeit von der Schichtdicke [48], so dass in unserem Fall nur die Zustände mit geradem n resonant sind. Ein Vergleich mit numerischen Ergebnissen auf mikroskopischer Basis [37, 39] zeigt, dass sich die wesentlichen Effekte mit diesem Bild punktförmiger Exzitonen verstehen lassen. Abweichungen ergeben sich durch deren endliche Ausdehnung, infolgedessen es zur Ausbildung einer polarisationsarmen Rand-

²²Die Asymmetrie in Abbildung 1.7 ist die Konsequenz einer ebensolchen Anregung des Dielektrikums durch eine einfallende Welle von links.

schicht²³ kommt, da sich die Exzitonen nicht beliebig der Mediumsgrenze nähern können [23]. Nach Einführung einer effektiven, kürzeren Probenlänge L^* ließen sich die Lösungen der Zwei-Teilchen Schrödingergleichung mit den Pekarschen Randbedingungen zufriedenstellend reproduzieren. Hingegen scheiterten Anpassungsversuche unter Verwendung der Randbedingungen von Ting-Frankel-Birman. Ferner ist zu erwarten, dass auch die dielektrische Näherung diese nur bedingt wiedergeben kann. Indizien hierfür sind zum einen die endliche makroskopische Interbandpolarisation an den Mediumsgrenzen und zum anderen die dadurch bedingte schwache Ausbildung der zusätzlichen Resonanzen. Ein direkter Vergleich der Ergebnisse mit mikropischen Rechnungen für einen großen Parametersatz wäre daher wünschenswert, um den Gültigkeitsbereich dieser Näherung besser abschätzen und qualitative Aussagen treffen zu können.

²³engl.: dead layer

Kapitel 2

Polariton-Effekte in gekoppelten Halbleiter-Quantenpunkten

“Zögere nicht, Kleines einzusetzen, wenn du nach Großem strebst!”
— Cato der Ältere

2.1 Einleitung

In den bisherigen Betrachtungen haben wir gesehen, dass Exziton-Polaritonen die grundlegende Anregung der linearen Optik eines Halbleiters in einem schwachen äußeren optischen Feld sind, da die Interbandpolarisation nie als ein isolierter Freiheitsgrad angesehen werden kann. Die Exzitonzustände koppeln via Licht-Materie-Wechselwirkung stets an das elektromagnetische Feld und es kommt ferner zur Ausbildung von Eigenmoden der an die Mediumsanregung gekoppelten Maxwellgleichungen. Im Falle eines Volumenmaterials führte dies, infolge der Translationsinvarianz, zu einer starken Mischung von Photon- und Exzitonmoden gleichen Moments und gleicher Polarisation¹, mithin kommt es zur longitudinal-transversal-Aufspaltung. Bei Systemen mit gebrochener Translationssymmetrie ist das Polaritonbild modifiziert, entsprechend der Kopplung einzelner Exzitonen an ein Kontinuum von Photonen und folglich einer endlichen (radia-

¹Von Umklappprozessen soll abgesehen werden!

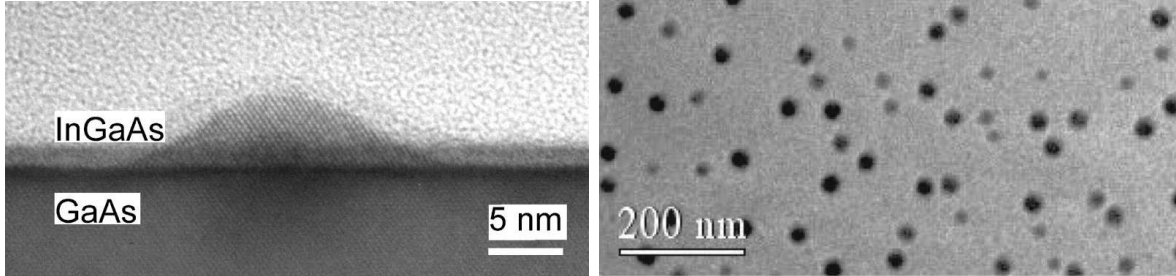


Abbildung 2.1: TEM Aufnahmen linsenförmiger InGaAs Quantenpunkte, gewachsen auf einem GaAs Substrat [1].

tiven) Lebensdauer des Exzitons bzw. des Polaritons² [10, 2, 3]. Durch die Fortschritte bei der Herstellung niederdimensionaler Strukturen ist es möglich geworden, diese bis zu einem bestimmten Grad durch Wahl der Material- und Wachstumsparameter in ihren Eigenschaften zu kontrollieren. Dies eröffnet einen Zugang, Modifikationen, insbesondere der optischen Eigenschaften, durch das Quantenconfinement eingehend zu untersuchen. Die Frage stellt sich nun, inwiefern das Polariton-Konzept in *Quantenpunkten*³ (QD), d.h. Halbleiterstrukturen, deren Ladungsträger in allen drei Raumrichtungen in einem Bereich der Größenordnung ihrer de-Broglie Wellenlänge eingeschlossen sind (s. Abb 2.1), eine Rolle spielt. Zum einen wird sich zeigen, dass die Selbstenergie eines einzelnen QDs im Strahlungsfeld sowohl zu einer endlichen radiativen Lebensdauer, als auch energetischen Verschiebung der QD-Niveaus⁴ führt. Zum anderen kann durch die Möglichkeit der Mehrfachabsorption bzw. -emission von Photonen, auf Grund mehrerer QDs im System, der exzitronische Zustand eines einzelnen QD nicht mehr als Eigenzustand dieses angesehen werden. Vielmehr kommt es zur Anregung kollektiven Verhaltens und zum Energietransport zwischen den QDs, vermittelt durch das transversal elektromagnetische Feld, in Analogie zum Volumenpolariton. Ersteres zeigt sich in der Ausbildung von Moden deutlich längerer oder kürzerer Lebensdauer, verglichen mit der nichtwechselwirkender Systeme.

Die Abhängigkeit der Kopplung von der energetischen Verstimmung⁵ und des Abstandes der QDs soll, nach Erarbeitung einer Lösungsmethode des vollen Maxwell-Schrödinger Formalismus zur Beschreibung der radiativen Wechselwirkung zwischen

²Eine gleichzeitige Dimensionsreduktion des Photonfeldes, z.B. durch Resonatoren, würde die Invarianz wieder herstellen.

³engl.: quantum dot

⁴Durch die Lokalisation der Ladungsträger kommt es zur Ausbildung scharfer, deutlich voneinander getrennter Energieniveaus energetisch unterhalb der Zustände des Volumenmaterials.

⁵Man denke hier zunächst an gekoppelte Zwei-Niveau-Systeme.

diesen, diskutiert werden. Bemerkenswert ist, dass die Reichweite der Kopplung von der Größenordnung der Wellenlänge ist. Dies hat möglicherweise Konsequenzen für die Implementierung von Quanteninformationssystemen [7, 34]. Einerseits kann sich diese Wechselwirkung als störend bei der Realisierung einer großen Anzahl nahezu identischer und unabhängiger Qubits, der Elementareinheit eines Quantencomputers, herausstellen, bietet andererseits aber auch die Möglichkeit, kollektive Moden langer Lebensdauer zwischen den QDs zu erzeugen, d.h. Photonen dort einzufangen. Letzteres wird unter der Bezeichnung *photon trapping* aktuell diskutiert und ist von grundlegendem Interesse [24, 45].

Ausgangspunkt für die Ankopplung der optisch angeregten QDs an das äußere Lichtfeld soll die im Kapitel zur Interbandpolarisation, unter Berücksichtigung eines Quantenconfinements, gefundene Darstellung der linearen, nichtlokalen, dielektrischen Suszeptibilität (1.34) sein. Für die darin enthaltene Wellenfunktion gebundener Einteilchen-Zustände wird im Folgenden für die geometrischen Verhältnisse linsenförmiger QDs ein etabliertes Modell vorgestellt und deren Näherungen diskutiert werden.

2.2 Quantenpunktmodell

2.2.1 Einteilchen-Spektrum

Die Berechnung der Einteilchen-Zustände bzw. der Bandstruktur bei vorgegebener Geometrie ist schon für sich genommen ein eigenständiges Arbeitsgebiet. Es kann und soll daher nur ein Überblick grundlegender Ideen vermittelt werden, welche aber die wesentlichen physikalischen Eigenschaften enthalten.

Wir wollen uns nachfolgend auf die Beschreibung linsenförmiger InGaAs/GaAs QDs⁶ beschränken, welche mittels der Methode nach Stranski und Krastanow gewachsen wurden [44]. Durch Gitterverspannungen, infolge geringfügig unterschiedlicher Gitterkonstanten der aufgewachsenen Materialien, formen sich selbstorganisiert und inselartig Atomgruppen auf dem Substrat, um so die Oberflächenenergie zu minimieren. Die Abmaße typischer Strukturen liegen in der Größenordnung von 25 nm im Durchmesser und 10 nm in der Höhe. Ferner kommt es auf Grund der Dimensionsreduzierung und Gitterverspannung sowohl zu einer Absenkung des Doubletbandes (Γ_7), als auch zur Aufhebung der Entartung des Quadrupletbandes (Γ_8) am Γ -Punkt [53]. Bandmischungseffekte

⁶Diese sind zylindersymmetrisch und die Höhe des QD ist vergleichsweise klein gegen dessen Durchmesser.

werden hierdurch reduziert, so dass wir uns auf die Beschreibung eines Systems ohne diese beschränken und lediglich das oberste Valenzband, neben dem rein spinentarteten Leitungsband, betrachten wollen⁷. Ferner lässt sich zeigen, dass insbesondere für die flachen und zylindersymmetrischen QDs die Effektiv-Massen-Näherung gute Resultate liefert [42]. Es sei aber darauf hingewiesen, dass im Allgemeinen diese Näherung nicht möglich sein wird, wie ab initio Rechnungen für Quantenpunkte auf Nitritbasis zeigen [5]. Desweiteren sei angenommen, dass die Effektiv-Massen isotrop sind und sich beim Übergang von einem Halbleitermaterial zum anderen nur langsam ändern, so dass dieser Effekt in erster Näherung vernachlässigt werden kann.

Um die Einteilchen-Zustände und -energien bestimmen zu können, haben wir eine Einteilchen-Schrödingergleichung

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_\lambda^*} \Delta + U_\lambda(\mathbf{r}) \right] \Phi_\mu(\mathbf{r}) = \varepsilon_\mu \Phi_\mu(\mathbf{r})$$

entsprechend der Effektiv-Massen-Näherung (1.6) zu lösen. Das Einschlusspotential

$$U_\lambda(\mathbf{r}) = \begin{cases} 0 & \text{innerhalb des QD} \\ U_\lambda = \text{const.} & \text{außerhalb} \end{cases}$$

entsteht beim Übergang beider Halbleitermaterialien durch einen Versatz der Bandlücken. Durch die Rotationssymmetrie des Potentials um die Quantenpunktachse ist die zugehörige Komponente des Drehimpulses eine gute Quantenzahl. Wählen wir die Wachstumsrichtung entlang der z-Achse, so sind die entsprechenden Eigenfunktionen des Drehimpulsoperators aus der Behandlung des Wasserstoffproblems bekannt und können separiert werden $\Phi(\rho, \varphi, z) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{im\varphi} \Phi(\rho, z)$. Die dreidimensionale Einteilchen-Schrödingergleichung reduziert sich damit und durch Einführung von Zylinderkoordinaten auf ein Problem in zwei Dimensionen:

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_\lambda^*} \left\{ \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \left(\rho \frac{\partial}{\partial \rho} \right) + \frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{m^2}{\rho^2} \right\} \right] \Phi_\mu(\rho, z) = \varepsilon_\mu \Phi_\mu(\rho, z). \quad (2.1)$$

Da es sich um einen flachen QD handelt, ist anzunehmen, dass sich die Wellenfunktion $\Phi_\mu(\rho, z)$ bei festem z nur langsam in radialer Richtung ändern wird. Dies legt eine

⁷Bei der konkreten Beschreibung experimenteller Resultate wird die Vernachlässigung der Bandmischungseffekte im Allgemeinen nicht mehr möglich sein [19].

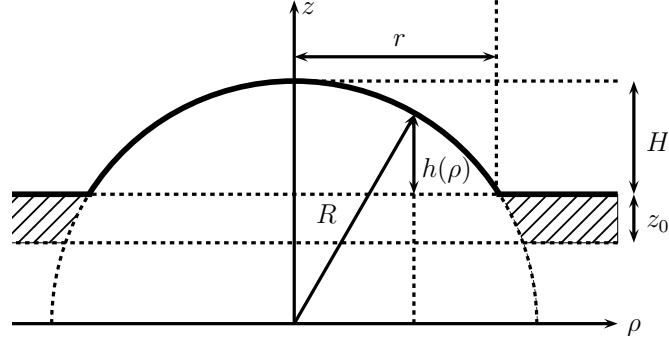


Abbildung 2.2: Geometrie linsenförmiger Quantenpunkte im Schnitt senkrecht zur (x, y) Ebene

adiabatische Entkopplung [51] der Koordinaten mittels Produktansatz nahe.

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_\lambda^*} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + U_\lambda(\rho, z) \right] \xi_\alpha(z) = \varepsilon_\alpha(\rho) \xi_\alpha(z) \quad (2.2a)$$

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_\lambda^*} \left\{ \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \left(\rho \frac{\partial}{\partial \rho} \right) - \frac{m^2}{\rho^2} \right\} + \varepsilon_\alpha(\rho) \right] \varphi_\mu(\rho) = \varepsilon_\mu(\rho) \varphi_\mu(\rho) \quad (2.2b)$$

Die geometrischen Gegebenheiten sollen durch eine Kugelkappe auf einer Benetzungsschicht (Wettinglayer) mittels des Einschlusspotentials

$$U_\lambda(\rho, z) = \begin{cases} 0 & |z| \leq h(\rho) \\ \infty & \text{sonst} \end{cases}$$

modelliert werden. Die Höhe des Quantenpunktes $h(\rho)$, parametrisch im Abstand von der Symmetrieachse ρ , ist dann durch

$$h(\rho) = \sqrt{R^2 - \rho^2} - R + H + z_0 \quad \text{mit} \quad R = \frac{H^2 + r^2}{2H} \quad (2.3)$$

entsprechend Abbildung 2.2 gegeben, mit typischen Parametern zusammengestellt im Anhang B.2. Die geringe Ausdehnung der Struktur in Wachstumsrichtung führt zu einer starken Aufspaltung der Subbänder (für Elektronen in der Größenordnung eines eVs), so dass wir uns auf das energetisch am niedrigsten liegende ($\alpha = 0$) beschränken wollen. Um zudem einem starken Quantenconfinement in dieser Richtung und damit der endlichen Ausdehnung der Wellenfunktionen gerecht zu werden, nehmen wir einen unendlichen Bandversatz an. In realen Systemen ist dieser selbstverständlich endlich. Da jedoch die energetische Lage des Wettinglayers nur durch aufwendige Bandstrukturrechnungen oder Experimente zugänglich ist und die Berücksichtigung lediglich den

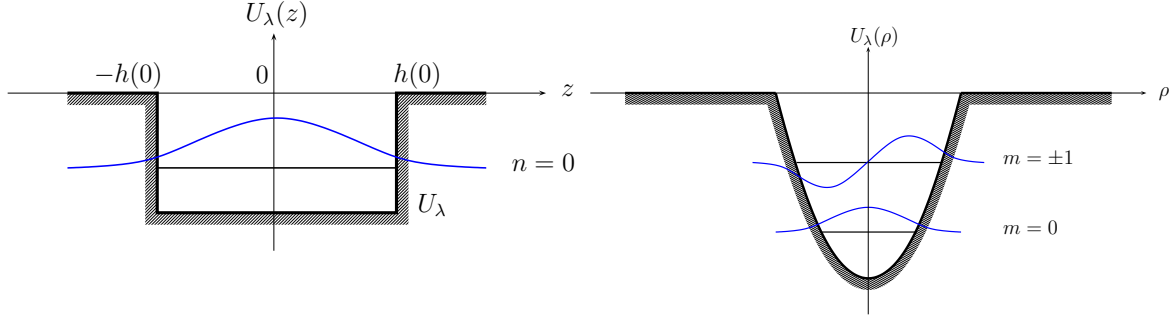


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung der niedrigsten gebundenen Elektron-Loch-Paareigenzustände im dreidimensionalen Einschlusspotential, genähert durch einen Potentialtopf in z -Richtung (*links*) bzw. ein zweidimensionales harmonisches Potential in der (x, y) -Ebene (*rechts*).

überschätzten Absolutwert der Quantenconfinementenergie in z -Richtung korrigiert, ist ein Mehraufwand an dieser Stelle nicht gerechtfertigt. In den nachfolgenden Rechnungen wird daher die Absolutposition des Subbandes parametrisch an experimentelle Messergebnisse angepasst.

Die Lösung der Bewegung in z -Richtung, d.h. in einem unendlich hohen Potentialtopf (parametrisch in ρ), ist ein Standardproblem der Quantenmechanik mit den Eigenenergien

$$\varepsilon_0(\rho) = \frac{\hbar^2}{2m_\lambda^*} \left(\frac{\pi}{h(\rho)} \right)^2. \quad (2.4)$$

Da der Quantenpunkt bei $\rho = 0$ die größte Verdickung besitzt, welche radial und sich der Symmetriachse entfernend abnimmt, soll $\varepsilon_0(\rho)$ durch eine Parabel genähert werden⁸. Hierzu entwickeln wir bis zur zweiten Ordnung in ρ und erhalten schließlich

$$\varepsilon_0(\rho) = \frac{\hbar^2}{2m_\lambda^*} \left(\frac{\pi}{h(0)} \right)^2 + \frac{1}{2} m_\lambda^* \omega_\lambda^2 \rho^2 + \mathcal{O}(\rho^3) \quad \text{mit} \quad \hbar\omega_\lambda = \frac{\hbar^2 \pi}{m_\lambda^*} \sqrt{\frac{2H}{(H+z_0)^3(H^2+r^2)}}. \quad (2.5)$$

Wie nun leicht ersichtlich ist, lässt sich das dreidimensionale Einschlusspotential durch einen Potentialtopf der Länge $h(0)$ in Wachstumsrichtung und das eines zweidimensionalen harmonischen Oszillators der Frequenz ω_λ senkrecht hierzu näherungsweise ersetzen (s. Abb. 2.3). Das Spektrum des ersten Subbandes $\mu = (0, n, m)$ ist dann entspre-

⁸Es zeigt sich, dass diese Näherung erstaunlich gut die Resultate der numerischen Lösung des vollen Problems wiedergibt [51].

chend

$$\varepsilon_\mu = \hbar\omega_\lambda(2n + |m| + 1) + \frac{\hbar^2\pi^2}{2m_\lambda^*h(0)^2}, \quad (2.6)$$

mit der radialen Quantenzahl $n = 0, 1, \dots$ und der z-Komponente des Drehimpulses $m = 0, \pm 1, \dots$. Tatsächlich weisen reale Quantenpunktsysteme nur eine geringe Anzahl gebundener Zustände auf [14], so dass wir unsere folgenden Betrachtungen auf den Elektron-Loch-Paargrundzustand $\mu = (0, 0, 0)$ beschränken wollen. Die zugehörigen Eigenfunktionen sind durch

$$\xi_{000}(z) = \sqrt{\frac{2}{h(0)}} \cos\left(\pi \frac{z}{h(0)}\right), \quad \varphi_{000}(\varphi, \rho) = \frac{\beta}{\sqrt{\pi}} e^{-\beta^2 \rho^2/2} \quad (2.7)$$

gegeben, wobei die inverse Oszillatorlänge $\beta = \sqrt{\frac{m_\lambda^* \omega_\lambda}{\hbar}}$ eingeführt wurde, welche identisch für Elektronen und Löcher ist, da die Oszillatorenergien, bis auf einen konstanten Faktor, bereits durch deren Massenverhältnis $m_e^*/m_h^* = \omega_h/\omega_e$ festgelegt sind.

2.2.2 Dielektrische Suszeptibilität

Wir wollen nun die Darstellung der linearen, nichtlokalen, dielektrischen Suszeptibilität (1.34) der Situation einer in der (x, y) - Ebene befindlichen QD-Schicht mit α QDs anpassen. Deren planare, quasi-zweidimensionale Geometrie bedingt, dass nur zwei Zustände⁹ der optischen Interbandpolarisation an das elektromagnetische Feld koppeln, so dass die Suszeptibilität einen anisotropen Charakter erhält. Nehmen wir ferner an, dass im System starken Einschlusses die Coulombkorrelationen zwischen Elektronen und Löchern nur einen quantitativen und daher in erster Näherung vernachlässigbaren Einfluss auf die kohärente Übergangsamplitude hat [43], vereinfacht sich die Situation erheblich, da nun die Elektron-Loch-Paarwellenfunktion $\Psi_\alpha(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h)$ in jeweils einen dem Elektron und dem Loch zugehörigen Anteil faktorisiert, d.h. $\Psi_\alpha(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) = \Psi_\alpha(\mathbf{r}_e)\Psi_\alpha(\mathbf{r}_h)$. Da uns zudem der Einfluss polaritonischer Effekte interessiert, soll das System bei hinreichend tiefen Temperaturen betrachtet werden, so dass z.B. eine phonon-bedingte Verbreiterung des nichtradiativen QD-Linienprofils vernachlässigt und dieses als delta-artig angenommen werden kann. Unter Berücksichtigung dieser Annahmen ist die dielektrische Suszeptibilität für ein Ensemble von α QDs nun durch die nichtlokale und tensorielle

⁹Im Falle kubischer Gittersymmetrie sind dies entsprechend die x - und y -Komponente der Polarisation.

Größe

$$\overleftrightarrow{\chi}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = \frac{|d_{cv}|^2}{\hbar} \sum_{\alpha} \frac{\Psi_{\alpha}(\mathbf{r}, \mathbf{r}) \otimes \Psi_{\alpha}^*(\mathbf{r}', \mathbf{r}')}{\omega_{\alpha} - \omega - i0^+}, \quad (2.8)$$

mit den vektorwertigen Wellenfunktionen $\Psi_{\alpha} = (\Psi_{\alpha}, \Psi_{\alpha}, 0)$, gegeben.

2.3 Lösung des vollen Maxwell-Schrödinger-Problems

Es soll nun die Ankopplung der durch die dielektrische Suszeptibilität beschriebenen Antwort der Mediumsanregung an das äußere Maxwellfeld vollzogen werden. Für das transversale zweikomponentige elektrische Feld entsprechend der unabhängigen Polarisationszustände haben wir

$$(q_0^2 - \text{rot rot}) \mathbf{E}_T(\mathbf{r}, \omega) = -\frac{q_0^2}{\varepsilon_0 \varepsilon_b} \mathbf{P}(\mathbf{r}, \omega; [\mathbf{E}_T]) =: \mathcal{V}(\mathbf{r}, \omega; [\mathbf{E}_T]), \quad (2.9)$$

mit der makroskopischen Interbandpolarisation $\mathbf{P}(\mathbf{r}; [\mathbf{E}_T]) = \int d^3\mathbf{r}' \overleftrightarrow{\chi}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \cdot \mathbf{E}_T$ und der freien Dispersion $q_0^2 = \omega^2/c^2 \varepsilon_b$, welche den die Quantenpunkte umgebenden, dielektrischen Halbleiterhintergrund modelliert. Als Hilfsmittel zur Lösung des vektorwertigen Problems (2.9) soll im Folgenden die Technik Greenscher Funktionen verwendet werden. Zuvor sei jedoch noch erwähnt, dass die hierzu benötigten Konzepte nur einen Teilaspekt dieser Theorie darstellen und Greensche Funktionen hierüber hinaus auch die Behandlung quantenmechanischer Problemstellungen sowohl des Gleichgewichts wie auch des Nichtgleichgewichts ermöglichen [25, 36]. Zunächst betrachten wir den einfachen Fall des skalaren Problems

$$\int d^3\mathbf{r}' \mathcal{D}_{\text{vac}}^{-1}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \mathbf{E}_T(\mathbf{r}') = -\mu_0 \mathbf{j}_{\text{ext}} \quad (2.10)$$

mit zugehörigem Differentialoperator $\mathcal{D}_{\text{vac}}^{-1}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = (q_0^2 + \Delta_{\mathbf{r}}) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$. Formal wird diese Potentialgleichung durch $\mathbf{E}_T(\mathbf{r}) = -\mu_0 \int d^3\mathbf{r}' \mathcal{D}_{\text{vac}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \mathbf{j}_{\text{ext}}$ gelöst, worin die Vakuum-Photon-Greensche Funktion $\mathcal{D}_{\text{vac}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ der Dysongleichung $\int d^3\mathbf{r}'' \mathcal{D}_{\text{vac}}^{-1}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'') \mathcal{D}_{\text{vac}}(\mathbf{r}'', \mathbf{r}') = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$ genügt. Wie leicht zu zeigen ist, besitzt $\mathcal{D}_{\text{vac}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ die Darstellung

$$\mathcal{D}_{\text{vac}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = -\frac{1}{4\pi} \frac{e^{iq_0|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), \quad (2.11)$$

d.h. die einer Kugelwelle, erzeugt am Punkte \mathbf{r}' und beobachtet bei \mathbf{r} , bzw. im Fourierraum $\mathcal{D}_{\text{vac}}(\mathbf{q}) = -(q^2 - q_0^2)^{-1}$, wobei $\text{Im } q_0 \geq 0$. Betrachten wir nun zur Lösung des vektoriellen Problems ein beliebiges Vektorfeld \mathcal{V} und gehen in Fourierdarstellung über ($\nabla_{\mathbf{r}} \leftrightarrow i\mathbf{q}$), so wird die Wellengleichung des transversalen elektrischen Feldes algebraisch

$$(q_0^2 - q^2)\mathbf{E}_T + \mathbf{q}(\mathbf{q} \cdot \mathbf{E}_T) = \mathcal{V} \quad (2.12)$$

und \mathbf{E}_T kann einfach konstruiert werden:

$$\mathbf{E}_T = -(q^2 - q_0^2)^{-1}\mathcal{V} + \frac{\mathbf{q}(\mathbf{q} \cdot \mathcal{V})}{q_0^2}(q^2 - q_0^2)^{-1} \quad (2.13)$$

oder entsprechend in Ortsdarstellung

$$\mathbf{E}_T(\mathbf{r}) = \int d^3\mathbf{r}' \mathcal{D}_{\text{vac}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')\mathcal{V}(\mathbf{r}') + q_0^{-2} \int d^3\mathbf{r}' \nabla_{\mathbf{r}} \mathcal{D}_{\text{vac}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \nabla_{\mathbf{r}'} \mathcal{V}(\mathbf{r}'). \quad (2.14)$$

Bemerkt sei, dass die Forderung nach $\text{Im } q_0 \geq 0$ die Asymptotik im Unendlichen sichert und eine Änderung dieser, durch Hinzufügen einer beliebigen homogenen Lösung der Wellengleichung, d.h. des dielektrischen Hintergrundes ohne resonante, nichtlokale Suszeptibilität, möglich ist. Spezifizieren wir nun das formale Ergebnis für ein Vektorfeld, gegeben durch die makroskopische Polarisation (2.9), so enthält dieses

$$\mathcal{V}(\mathbf{r}; [\mathbf{E}_T]) = -q_0^2 \frac{|d_{cv}|^2}{\varepsilon_b} \sum_{\alpha} \frac{\Psi_{\alpha}(\mathbf{r}, \mathbf{r})}{\hbar(\omega_{\alpha} - \omega - i0^+)} \cdot \mathbf{E}_{\alpha}[\mathbf{E}_T] \quad (2.15)$$

mit der Definition $\mathbf{E}_{\alpha}[\mathbf{E}_T] = \int d^3\mathbf{r}' \Psi_{\alpha}^*(\mathbf{r}', \mathbf{r}') \cdot \mathbf{E}_T(\mathbf{r}')$, das transversale elektrische Feld nur als Projektion auf den Unterraum der Exziton-Paarwellenfunktionen. Eine Betrachtung in dieser Exzitonbasis vereinfacht das Problem erheblich, da man durch Projektion der Gleichung (2.9) auf $\Psi_{\alpha}^*(\mathbf{r}, \mathbf{r})$ eine algebraische Form der Lippmann-Schwinger Gleichung [52]

$$\mathbf{E}_{\alpha} = \sum_{\beta} \frac{\overleftrightarrow{G}_{\alpha\beta}}{\hbar(\omega_{\beta} - \omega - i0^+)} \cdot \mathbf{E}_{\beta} \quad (2.16)$$

erhält. Hierin ist die Kopplungsmatrix durch den Ausdruck

$$G_{\alpha i, \beta j} = -q_0^2 \frac{|d_{cv}|^2}{\varepsilon_b} \int d^3\mathbf{r} d^3\mathbf{r}' (\Psi_{\alpha, i}^*(\mathbf{r}) \mathcal{D}_{\text{vac}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \Psi_{\beta, j}(\mathbf{r}') - q_0^{-2} [\nabla_{\mathbf{r}} \Psi_{\alpha, i}^*(\mathbf{r})] \mathcal{D}_{\text{vac}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') [\nabla_{\mathbf{r}'} \Psi_{\beta, j}^*(\mathbf{r}')]), \quad i, j \in \{x, y\} \quad (2.17)$$

gegeben, wobei der erste Term diagonal in i, j ist, da $\Psi_{\alpha,i} \perp \Psi_{\beta,j}$ für $i \neq j$. Ferner wollen wir noch bzgl. der Ebenenkoordinaten in die Fourierdarstellung $(x, y) \rightarrow \mathbf{k}_{\parallel}$ übergehen:

$$\overleftrightarrow{G}_{\alpha\beta} = q_0^2 \frac{|d_{cv}|^2}{\varepsilon_b} \sum_{\mathbf{k}_{\parallel}} \int dz dz' \Psi_{\alpha,\mathbf{k}_{\parallel}}^*(z) \overleftrightarrow{G}_{\mathbf{k}_{\parallel}}(z - z') \Psi_{\beta,\mathbf{k}_{\parallel}}(z'), \quad (2.18)$$

mit der Fouiertransformierten $\Psi_{\beta,\mathbf{k}_{\parallel}}(z)$ der Elektron-Loch-Paarwellenfunktion des β -ten QD. Letzterer ist zentriert am Orte \mathbf{R}_{β} und folglich $\Psi_{\beta,\mathbf{k}_{\parallel}}(z) = \psi_{\beta,\mathbf{k}_{\parallel}}(z) e^{i\mathbf{k}_{\parallel} \cdot \mathbf{R}_{\beta}}$. Die Ortsdarstellung der Größe $\psi_{\beta,\mathbf{k}_{\parallel}}(z) = \int \frac{d^2\rho}{(2\pi)^2} \varphi_{000}(\rho) \xi_{000}(z) e^{i\mathbf{k}_{\parallel} \cdot \rho}$ ist schon aus einem vorangegangenen Abschnitt bekannt und es sei noch angemerkt, dass durch die geringe Ausdehnung der QD Schicht in z-Richtung der zugehörige Anteil der Wellenfunktion in guter Näherung durch eine Deltafunktion $\xi_{000}(z) \approx \delta(z)$ approximiert werden kann, wodurch sich die Auswertung der Kopplungsmatrix vereinfacht (vgl. hierzu B.1).

Im Folgenden sollen sowohl die Effekte der Wechselwirkung eines einzelnen QD mit dem äußeren elektromagnetischen Feld, als auch die radiative Kopplung zwischen mehreren, eingehender diskutiert werden. Hierzu werden zum einen analytische Eigenschaften des Greenschen Tensors

$$\overleftrightarrow{G}_{\mathbf{k}_{\parallel}}(z - z') = -q_0^{-2} \begin{pmatrix} q_0^2 - k_x^2 & -k_x k_y \\ -k_x k_y & q_0^2 - k_y^2 \end{pmatrix} \mathcal{D}_{\text{vac}}(z - z'; \mathbf{k}_{\parallel}) \quad (2.19)$$

mit der Vakuum-Photon-Greenschen Funktion in planarer Geometrie

$$\mathcal{D}_{\text{vac}}(z - z'; \mathbf{k}_{\parallel}) = \frac{1}{2i\kappa_z} e^{i\kappa_z |z - z'|}, \quad \kappa_z^2 = q_0^2 - k^2 \quad (\text{Im } \kappa_z \geq 0), \quad (2.20)$$

zur Sprache kommen, und zum anderen konkrete numerische Rechnungen für das QD-Modell aus Abschnitt 2.2 vorgestellt werden.

Betrachten wir zunächst den Fall eines einzelnen QD in der Ebene. Auf Grund der Isotropie des Gesamtsystems verschwinden die Nichtdiagonalelemente des Greenschen Tensors unter der \mathbf{k}_{\parallel} -Summe. Dies diagonalisiert ferner die Lippmann-Schwinger Gleichung, so dass diese trivial lösbar ist und für den α -ten QD folgt:

$$\mathbf{E}_{\alpha} = \frac{G_{\alpha\alpha}}{\hbar(\omega_{\alpha} - \omega - i0^+)} \mathbf{E}_{\alpha}, \quad (2.21)$$

Die Größe $-G_{\alpha\alpha}$, des ungekoppelten Systems¹⁰ kann als die radiative, komplexwertige

¹⁰Eine konkrete Darstellung dieser Größe für das betrachtete Modellsystem findet sich im Anhang B.1

Selbstenergie identifiziert werden, verursacht durch Streuung am α -ten QD. Während der Realteil die energetische Verschiebung der QD-Niveaus beschreibt, verursacht der Imaginärteil eine radiative Linienbreite, d.h. eine damit verbundene endliche Lebensdauer. Es soll noch einmal betont werden, dass dieser Effekt allein durch die Wechselwirkung mit dem klassischen elektromagnetischen Feld bedingt ist.

Im Gegensatz dazu erzeugt ein System bestehend aus zwei oder mehreren QDs eine anisotrope Situation. Die Nichtdiagonalelemente sind folglich verantwortlich für die zusätzliche radiative Kopplung der QDs untereinander bzw. der Reabsorption der durch andere QDs gestreuten Photonen. Dies führt zu einer longitudinal-transversal-Aufspaltung bzgl. die Lebensdauer, wie nach Diagonalisierung der Kopplungsmatrix (B.3) ersichtlich ist. Ein direkter Hinweis auf die Analogie zum Volumenpolariton findet sich ferner in (2.18). Da sich die Summe in Bezug auf den Impuls in der Ebene \mathbf{k}_{\parallel} über den gesamten zweidimensionalen Phasenraum erstreckt, müssen zwei Fälle unterschieden werden. Lediglich Exzitonzustände mit $\mathbf{k}_{\parallel} < q_0$ zerfallen radiativ, haben eine endliche Lebensdauer und erzeugen in Wachstumsrichtung, weit von der Ebene entfernt, ein oszillierendes elektrisches Feld, welches experimentellen Messungen zugänglich ist. Hingegen für $\mathbf{k}_{\parallel} > q_0$ wird κ_z imaginär und das zugehörige Feld exponentiell gedämpft, d.h. diese Zustände zerfallen nicht radiativ und können als Oberflächenmoden bzw. Polaritonen bezeichnet werden [2].

Es sollen nun die Eigenschaften der radiativen Kopplung zwischen den QDs näher betrachtet werden. Zu diesem Zweck werden numerische Resultate, zunächst für zwei gekoppelte QDs und anschließend für ein Ensemble, diskutiert werden. Um das Spektrum dieser $2N$ Polaritonmoden, eines Systems bestehend aus N gekoppelten QDs, berechnen zu können, haben wir, ausgehend von der Lippmann-Schwinger Gleichung (2.16), die komplexwertigen Pole $\hbar\omega = \Delta + i\Gamma$ des homogenen Gleichungssystems

$$\sum_{\beta} \left[\overset{\leftarrow}{\delta}_{\alpha\beta} - \frac{\overset{\leftarrow}{G}_{\alpha\beta}}{\hbar(\omega_{\alpha} - \omega - i0^+)} \right] \cdot \mathbf{E}_{\beta} = 0 \quad (2.22)$$

zu bestimmen, welches im Allgemeinen ein schwieriges numerisches Problem darstellt. Jedoch kann unter der Voraussetzung, dass die Kopplungsmatrix $\overset{\leftarrow}{G}_{\alpha\beta}$ über dem betrachteten Energiebereich konstant ist, das äquivalente $2N \times 2N$ - Eigenwertproblem¹¹

$$\sum_{j \in (\beta, \sigma)} \left[\tilde{G}_{ij} - \hbar\omega\delta_{ij} \right] \tilde{E}_j = 0, \quad \sigma = (x, y) \quad (2.23)$$

¹¹Dieses ist für rein reelle Elektron-Loch-Paarwellenfunktion zudem symmetrisch, d.h. $\tilde{G}_{ij} = \tilde{G}_{ji}$

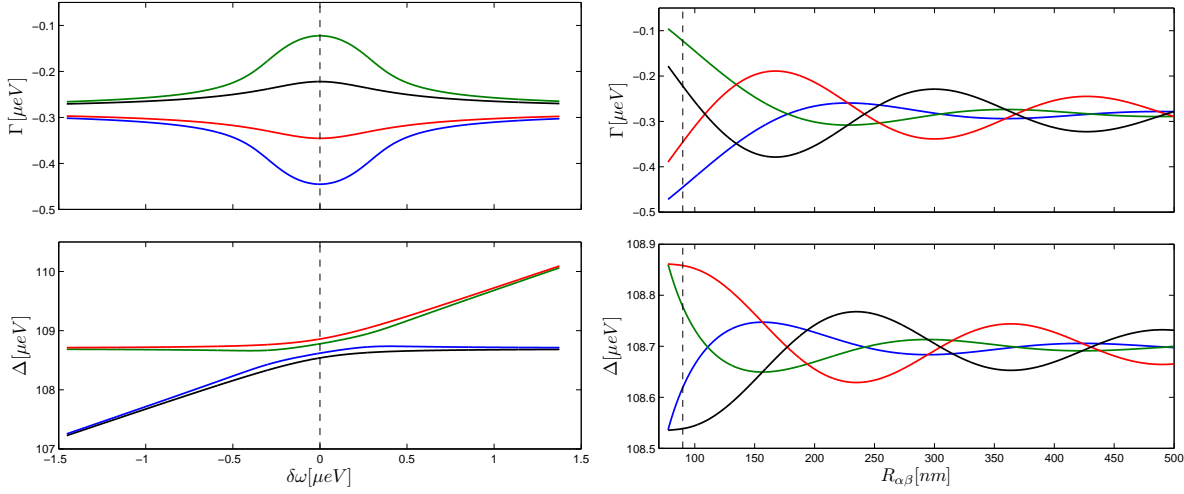


Abbildung 2.4: Real- und Imaginärteil der Polaritonresonanzen $\hbar\omega = \Delta + i\Gamma$ zweier gekoppelter QDs in Abhängigkeit der energetischen Verstimmung ihrer Niveaus für $R_{\alpha\beta} = 90$ nm (*links*) und als Funktion des Abstandes bei resonanter Kopplung (*rechts*). Der Absolutwert des Realteils ist relativ zum ersten Subband des z-confinements gemessen und die gestrichelte Linie markiert die Lösung der Eigenwertgleichung für gleichen Parametersatz.

mit $\tilde{G}_{\alpha\sigma,\beta\sigma'} = -G_{\alpha\sigma,\beta\sigma'} + \hbar(\omega_\beta - i0^+)\delta_{\alpha\beta}\delta_{\sigma\sigma'}$ und $\tilde{E}_{\beta,\sigma'} = E_{\beta,\sigma'}(\hbar[\omega_\beta - i0^+])^{-1}$ betrachtet werden. Diese Annahme ist, wie numerische Auswertungen der Kopplungsmatrix zeigen, für InGaAs/GaAs QDs erfüllt.

2.3.1 Diskussion zweier gekoppelter QDs

In physikalisch relevanten QD-Systemen, gewachsen im Stranski–Krastanow Verfahren [44], findet sich sowohl eine zufällige räumliche Verteilung der QDs, als auch eine bzgl. deren Größe. Letztere induziert eine, im Allgemeinen inhomogene, Verteilung der confinement-Energie entsprechend (2.5) und ferner eine energetische Verstimmung der QDs untereinander. Wie die Ergebnisse numerischer Rechnungen in Abbildung 2.4 zeigen, findet sich nur für geringe Verstimmung, d.h. für das betrachtete InGaAs/GaAs QD Modellsystem von der Größenordnung eines μeV , ein merklicher Kopplungseffekt. Andererseits sind die Polaritonmoden in der Umgebung der Resonanz wohl separiert in Analogie zur longitudinal-transversal-Aufspaltung des Volumen-Polaritons, wobei jeweils zwei eine deutlich längere bzw. kürzere Lebensdauer besitzen, als im ungekoppelten Fall. Auf Savona [32] geht in diesem Zusammenhang die entsprechende Bezeichnung *sub-* und *superradiant* zurück. Es soll aber darauf hingewiesen werden, dass der Le-

ser diese Begriffsbildung, insbesondere letztere, nicht mit der nichtlinearen Verstärkung der spontanen Emission wechselwirkender Zwei-Niveau Systeme im quantisierten Strahlungsfeld [13, 26] verwechseln möge. Diese ist zusätzlich zu der hier behandelten Kopplung, vermittelt durch Lichtpropagation des klassischen elektromagnetischen Feldes zwischen räumlich separierten Emitttern, zu sehen. Ferner zeigen die Moden in Abhängigkeit von der Entfernung ein oszillierendes Verhalten, im Sinne der Interferenz elektromagnetischer Wellen, welche von einem QD emittiert und von anderen reemittiert wurde. Bei Abständen des Vielfachen der halben optischen Wellenlänge bilden sich durch konstruktive bzw. destruktive Interferenz entsprechend Wellenberge und -täler aus. Bemerkenswert ist, dass im Gegensatz zur ebenfalls langreichweitigen¹² Försterwechselwirkung, vermittelt durch das elektrostatische Feld (Dipol-Dipol-Wechselwirkung), die Reichweite der Wechselwirkung nicht proportional zur sechsten Potenz des Abstandes abnimmt [15], sondern lediglich $\propto 1/R_{\alpha\beta}$, wie aus (B.3) zu entnehmen ist, mit den in der Einleitung zu diesem Kapitel angemerkten Konsequenzen.

2.3.2 Diskussion eines Ensembles gekoppelter QDs

Ausgehend von den bisherigen Betrachtungen soll nun der Fall eines Systems bestehend aus einer Vielzahl von QDs beschrieben werden. Die mit einem Energietransfer verbundenen Emissions- und Reabsorptionsprozesse führen, auf Grund der Beteiligung mehrerer QDs am Kopplungsmechanismus, zu kollektivem Verhalten analog der Behandlung lediglich zweier QDs, d.h. mitunter zu einer Aufspaltung der Lebensdauer im Vergleich zum ungekoppelten Fall (s. Abb. 2.5). Um realen Gegebenheiten gerecht zu werden, seien die QDs in der (x, y) - Ebene gleichverteilt und deren Größe, genauer gesagt deren Radien, besitze Normalverteilung $\mathcal{N}_{\mu, \sigma}$. Da die Wahrscheinlichkeit eine bestimmte Realisierung zweier QDs anzutreffen mit der Gesamtzahl der im System vorhandenen QDs skaliert, sollte diese, um eine gute Statistik zu erhalten, nach Möglichkeit groß ($> 10^5$) gewählt werden. Die direkte Bestimmung aller Eigenwerte einer solch dicht besetzten, hochdimensionalen Koeffizientenmatrix ist jedoch numerisch impraktikabel. Allerdings ist auf Grund der endlichen Wechselwirkungslänge zu erwarten, dass stattdessen ein Ensemblemittel über einem Grundgebiet, mit Abmaßen größer als die der optischen Wellenlänge, und einer geringeren Anzahl von QDs (~ 100), nach hinreichend vielen und zufälligen Realisierungen das gleiche Resultat liefert, wie die direkte Berechnung eines einzelnen großen Systems. Nachfolgend sollen die Ergebnisse anhand der Darstellung der Dichte

¹²d.h. ohne Überlapp der Wellenfunktionen der separierten Einzelsysteme.

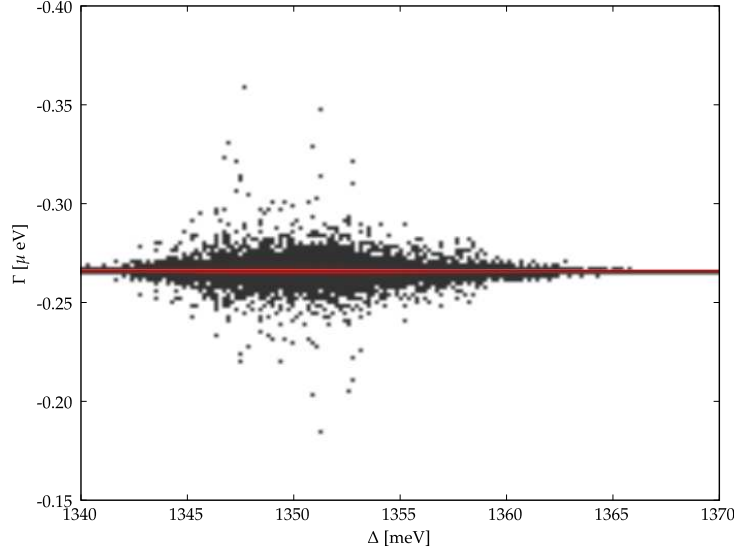


Abbildung 2.5: Histogramm der Resonanzen $\hbar\omega = \Delta + i\Gamma$ kollektiver Polaritonmoden in der komplexen Ebene für ein InGaAs/GaAs QD-System der Dichte $1000 \text{ QDs}/\mu\text{m}^2$ bei räumlich homogener Verteilung und Gaußscher Größenverteilung $\mathcal{N}_{\mu,\sigma}$ mit $\sigma=1.8 \text{ nm}$. In *rot* hervorgehoben ist der reine Streuanteil ungekoppelter QDs gleichen Parametersatzes.

der Verteilungsfunktionen des Real- und Imaginärteils der Resonanzen kollektiver Polaritonmoden eines InGaAs/GaAs QD-Systems mit $1000 \text{ QDs}/\mu\text{m}^2$ (Abb. 2.6) diskutiert werden. Da die Effekte der radiativen Kopplung eine starke Abhängigkeit, sowohl von der Verstimmung, als auch vom Abstand der QDs besitzen, soll sich dem Problem eines in beiderlei Hinsicht ungeordneten Systems schrittweise genähert werden.

Zunächst vernachlässigen wir den Einfluss der Kopplung der QDs untereinander, folglich auch den der räumlichen Verteilung, nehmen aber nach wie vor in Bezug auf die QD-Radien eine Gaußverteilung an. Allein die Wechselwirkung des α -ten QD mit dem Strahlungsfeld bedingt schon eine radiative Selbstenergie $-G_{\alpha\alpha}$, verbunden mit einer endlichen Linienbreite Γ_α und einer Verschiebung Δ_α des QD-Niveaus in der Größenordnung eines μeV . Deren Verteilung ist nun aber, infolge der Abhängigkeit der Quantenconfinementenergie von der QD-Größe, im Allgemeinen inhomogen¹³ verbreitert. Es zeigt sich, dass dieser Effekt dazu führt, dass der radiative Energieshift zumeist vernachlässigbar und lediglich der Einfluss der Kopplung auf die Lebensdauer maßgeblich ist. Wir wollen uns daher auf die Betrachtung dieser, im Kontext des Einflusses der radiativen Wechselwirkung zwischen den QDs, beschränken. Einerseits führt die Berücksichtigung der Kopplung untereinander und der damit verbundenen Ausbildung kollektiver Moden ana-

¹³Sind $f_R \sim \mathcal{N}_{\mu,\sigma}$ und f_ε die zum QD-Radius und dessen Übergangsenergie gehörenden Dichten der Verteilungsfunktionen und der funktionale Zusammenhang $\varepsilon = F(R)$ invertierbar [vgl. (2.5)], so ist $f_\varepsilon(\varepsilon) = f_R(F^{-1}[\varepsilon])[\partial_R F(R)|_{F^{-1}(\varepsilon)}]^{-1}$ eine im Allgemeinen asymmetrische Dichte.

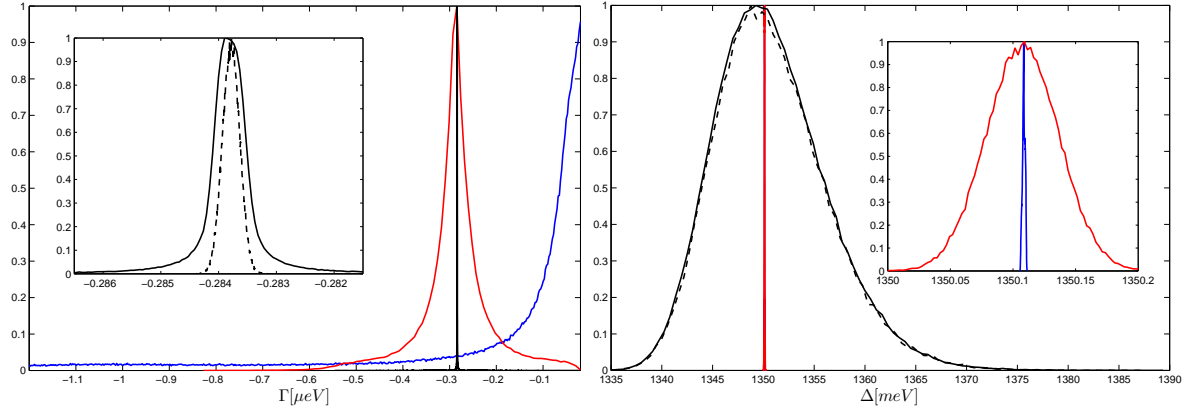


Abbildung 2.6: Dichte der Verteilungsfunktionen des Real- (*rechts*) und Imaginärteils (*links*) der Resonanzen $\hbar\omega = \Delta + i\Gamma$ kollektiver Polaritonmoden in Abhängigkeit von der Standardabweichung σ der Gaußschen Größenverteilung $\mathcal{N}_{\mu,\sigma}$ der räumlich homogen verteilten QDs: (—) identische QDs, (—) $\sigma=10^{-2}$ nm, (—) $\sigma=1.8$ nm, (---) ungekoppelte QDs mit $\sigma=1.8$ nm. Zum Zwecke der gemeinsamen Darstellung wurde die Normierungseigenschaft der Wahrscheinlichkeitsdichte fortgelassen.

log zum Fall zweier QDs zu einer zusätzlichen Aufspaltung der Lebensdauer, welche aber andererseits für ein Ensemble um ein Vielfaches größer sein kann. Dies ist jedoch stark von der Größenverteilung der QDs abhängig und es zeigt sich, dass für energetische Verstimmungen im Bereich einiger μeV ($\sigma \sim 1$ nm) die meisten Moden lediglich Streucharakter besitzen und sub- bzw. superradiantes Verhalten nur mit geringer Wahrscheinlichkeit auftritt. Eine merkliche Verstärkung dieses Effektes ist erst im sub- μeV Bereich ($\sigma \sim 10^{-2}$ nm) zu beobachten (vgl. Abb. 2.4) und bedingt die Ausbildung von Moden mit nahezu unendlich langer Lebensdauer ($\Gamma \rightarrow 0$). Die gezielte Anregung dieser böte die Möglichkeit, Photonen im QD-System zu speichern, was, einleitend erwähnt, von grundlegendem Interesse für die Quanteninformationsverarbeitung ist. Bei weiterer Reduktion der Verstimmung und speziell im Grenzfall identischer QDs verschwindet der Einfluss der Verbreiterung durch die Größenverteilung, so dass man einen Eindruck von der Größenordnung des radiativen Energieshifts bekommt. Des Weiteren verlagert sich das Gewicht der Verteilung der Lebensdauern, infolge der starken radiativen Verbreiterung und unter Beachtung der Kausalität ($\Gamma \leq 0$), zu dem Betrage nach kleineren Werten, worin sich direkt zeigt, dass ein Teil der Ordnung des Systems wiederhergestellt wurde. Ein Teil deswegen, da es sich einerseits auf Grund der räumlichen Verteilung bei endlicher Dichte immer noch um ein anisotropes System handelt, und andererseits eine scharfe Verteilung um $\Gamma = 0$ für Volumenmaterialien mit vollständiger Translationsinvarianz zu erwarten ist.

Zusammenfassung und Ausblick

“Die Wissenschaft fängt eigentlich erst da an interessant zu werden, wo sie aufhört.”

— Justus Freiherr von Liebig

In der vorliegenden Arbeit wurden verschiedene Aspekte der Wechselwirkung eines klassischen propagierenden Lichtfeldes mit Halbleiter-Nanostrukturen untersucht. Zu diesem Zweck wurde im Rahmen der Einhüllenden-Näherung ein darstellungsfreier Ausdruck für die mikroskopische Interbandpolarisation im linear optischen Regime und für konkrete Fälle eine nichtlokale dielektrische Suszeptibilität, als Response des Mediums auf ein äußeres elektromagnetisches Feld, abgeleitet. Ausgehend hiervon wurde zunächst der Polariton-Effekt im Volumenmaterial und anschließend die Wellenausbreitung durch eine dielektrische Schicht unter Berücksichtigung räumlicher Dispersion diskutiert. Konzeptionelle Probleme treten an den Mediumsgrenzen auf, falls es zum Impulsaustausch zwischen elektromagnetischem Feld und Mediumspolarisation kommt. Die dielektrische Suszeptibilität weicht dann, im Übergangsbereich zwischen Vakuum und Medium stark von der eines unendlich ausgedehnten Halbleiters ab, so dass eine makroskopische Theorie neben den Maxwellschen zusätzliche Randbedingungen fordert, wobei der Literatur [8] zu entnehmen ist, dass einige anscheinend die Energieerhaltung verletzen. Die Betrachtung wurden allerdings modellabhängig geführt, so dass eine allgemeingültige Theorie benötigt wird, um diese Fragestellung letztlich zu klären. Das Poyntingsche Theorem lieferte hierzu ein geeignetes Hilfsmittel in Form eines Zusammenhanges zwischen klassischer Absorption und Reemission und es zeigte sich, dass die Maxwellschen Randbedingungen allein die Energieerhaltung sichern. Ausgangspunkt war stets die dielektrische Suszeptibilität als eine exakte, aber im Allgemeinen unbekannte Darstellung des Mediums. Es müssen daher für konkrete Fragestellungen Näherungen durchgeführt werden und als ein einfaches, analytisch lösbares Beispiel wurde die dielektrische Näherung vorgestellt. Die Diskussion der numerischen Ergebnisse konnte allerdings nur quantitativ

erfolgen, so dass eine Überprüfung deren Qualität und Gültigkeitsbereich durch Vergleich mit mikroskopischen Rechnungen in der Zukunft wünschenswert wäre.

Im zweite Kapitel wurde sich dann der Thematik radiativer Kopplung selbstorganisiert gewachsener, linsenförmiger InGaAs/GaAs Quantenpunkte zugewandt. Hierzu wurde in einem ersten Schritt ein Modell zur Beschreibung der Einteilchen-Zustände dargelegt, dem ein Formalismus zur Lösung des vollen Maxwell-Schrödinger-Problems unter Verwendung der Technik Greenscher Funktionen folgte. Numerische Ergebnisse für ein System zunächst bestehend aus zwei und anschließend aus einem Ensemble gekoppelter Quantenpunkte wurde vorgestellt. Es ergab sich, dass Halbleiter-Quantenpunkte in einem äußeren elektromagnetischen Feld keine isolierten Systeme darstellen, sondern durch die Kopplung kollektive Moden in Analogie zum Polariton entstehen, die eine Änderung der radiativen Lebensdauer im Vergleich zum ungekoppelten Fall zur Folge haben. Bermerkenswert war die Reichweite dieses Effekts, auch über Entfernungen von der Größenordnung einer Wellenlänge. Unbeantwortet ist jedoch noch die Frage nach einem experimentellen Nachweis. Denkbar wäre prinzipiell eine Messung der Reflektions- und Transmissionsspektren einer Halbleiter-Quantenpunktschicht, vergleichbar der Anordnung 1.5. Allerdings sind der Anteil radiativ an das elektromagnetische Feld koppelnder Moden und die durch die Kopplung der Quantenpunkte untereinander bedingte Verbreiterung des Linienprofils (μeV) im Vergleich zu den Dephasingeffekten durch Streuprozesse der Ladungsträger (meV) klein. Durch eine zusätzliche Kopplung mehrerer, im Abstand eines ganzzahligen Vielfachen der Wellenlänge befindlicher, Quantenpunktschichten über die in Wachstumsrichtung propagierenden radiativen Moden, können evtl. bessere Resultate erzielt werden. Eine genaue Untersuchung der Eigenschaften solcher Quantenpunktschichtsysteme wäre daher interessant. Des Weiteren enthält diese Arbeit lediglich eine Beschreibung der klassischen Lichtpropagation. Es ist jedoch bekannt, dass Quantenpunkte auch über das quantisierte Strahlungsfeld koppeln können, resultierend in einer nichtlinearen Verstärkung der spontanen Emission; eine Untersuchung des Wechselspiels beider Effekte würde sicherlich neue Erkenntnisse im Hinblick auf das Verständnis der Licht-Materie-Wechselwirkung liefern.

Anhang A

A.1 Goeppert-Mayer Transformation

In diesem Abschnitt soll dargelegt werden, wie sich der quadratische Anteil des Vektorpotentials im Hamiltonoperator

$$\mathcal{H} = \sum_j \left(\frac{1}{2m_j} [\mathbf{p}_j - e\mathbf{A}(\mathbf{r}_j, t)]^2 + U(\mathbf{r}_j) \right) + \mathcal{H}_{\text{el-el}} \quad (\text{A.1})$$

mittels unitärer Transformation ($\mathcal{U}^\dagger = \mathcal{U}^{-1}$) entfernen lässt. Bekanntlich bleiben die Eigenwerte von Operatoren unter solch einer Transformationen invariant, da

$$\langle \mathcal{O} \rangle = \langle \Psi | \mathcal{O} | \Psi \rangle = \langle \tilde{\Psi} | \tilde{\mathcal{O}} | \tilde{\Psi} \rangle \quad \text{mit} \quad \tilde{\mathcal{O}} = \mathcal{U}(t) \mathcal{O} \mathcal{U}(t)^\dagger \quad \text{und} \quad |\tilde{\Psi}\rangle = \mathcal{U}(t) |\Psi\rangle.$$

Wir suchen daher nach einer forminvarianten Schrödingergleichung

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\tilde{\Psi}\rangle = \tilde{\mathcal{H}} |\tilde{\Psi}\rangle \quad (\text{A.2})$$

und finden, auf Grund der expliziten Zeitabhängigkeit von $\mathcal{U} \equiv \mathcal{U}(t)$

$$\tilde{\mathcal{H}} = \mathcal{U} \mathcal{H} \mathcal{U}^\dagger + i\hbar \frac{\partial \mathcal{U}}{\partial t} \mathcal{U}^\dagger. \quad (\text{A.3})$$

Zur Transformation nutzen wir den Translationsoperator

$$\mathcal{U}(t) = \exp \left[\frac{1}{i\hbar} \sum_j q_j \mathbf{r}_j \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}_j, t) \right], \quad (\text{A.4})$$

der offensichtlich unitär ist. Für die beiden Terme in (A.3) folgt nach kurzer Rechnung

$$\mathcal{U} \mathcal{H} \mathcal{U}^\dagger = \sum_j \left(\frac{p_j^2}{2m_j} + U(\mathbf{r}_j) \right) + \mathcal{H}_{el-el} \quad (\text{A.5})$$

$$i\hbar \frac{\partial \mathcal{U}}{\partial t} \mathcal{U}^\dagger = \sum_j e \mathbf{r}_j \cdot \dot{\mathbf{A}}(\mathbf{r}, t), \quad (\text{A.6})$$

wobei zu beachten ist, dass \mathcal{U} sowohl mit \mathbf{A} , als auch mit \mathbf{r} kommutiert und

$$\mathcal{U} \mathbf{p}_j \mathcal{U}^\dagger = \mathbf{p}_j + e \mathbf{A}(\mathbf{r}, t). \quad (\text{A.7})$$

Vernachlässigt wurden in (A.7) Terme $\propto \mathbf{r} \cdot \nabla_{\mathbf{r}_j} \mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$, welche auch in transversaler Eichung nicht verschwinden würden. Dieses Vorgehen entspricht der Dipolnäherung und setzt ein schwach veränderliches Feld über der Ladungsverteilung voraus.

A.2 Zum Beweis der Energieerhaltung bei Verwendung zusätzlicher Randbedingungen

Die in Abschnitt 1.3.2 nur grob skizzierte Beweisidee soll an dieser Stelle der Vollständigkeit halber ausführlich dargelegt werden. Zur Berechnung der klassischen Absorption wird ein Satz Gleichungen benötigt, der neben den Ausdrücken für die Größen $|r|^2$ und $|t|^2$ auch solch einen enthalten muss, welcher identisch 1 ist.

$$|r|^2 = \frac{1}{4} \sum_{ij} \left[\left(f_i \left(1 - \frac{Q_{z,i}}{q_0} \right) e^{-iQ_{z,i}L/2} + b_i \left(1 + \frac{Q_{z,i}}{q_0} \right) e^{iQ_{z,i}L/2} \right) \cdot \right. \quad (\text{A.8a})$$

$$\left. \cdot \left(f_j^* \left(1 - \frac{Q_{z,j}^*}{q_0} \right) e^{iQ_{z,j}^*L/2} + b_j^* \left(1 + \frac{Q_{z,j}^*}{q_0} \right) e^{-iQ_{z,j}^*L/2} \right) \right] \\ |t|^2 = \frac{1}{4} \sum_{ij} \left[\left(f_i \left(1 + \frac{Q_{z,i}}{q_0} \right) e^{iQ_{z,i}L/2} + b_i \left(1 - \frac{Q_{z,i}}{q_0} \right) e^{-iQ_{z,i}L/2} \right) \cdot \right. \quad (\text{A.8b})$$

$$\left. \cdot \left(f_j^* \left(1 + \frac{Q_{z,j}^*}{q_0} \right) e^{-iQ_{z,j}^*L/2} + b_j^* \left(1 - \frac{Q_{z,j}^*}{q_0} \right) e^{iQ_{z,j}^*L/2} \right) \right] \\ 1 = \frac{1}{4} \sum_{ij} \left[\left(f_i \left(1 + \frac{Q_{z,i}}{q_0} \right) e^{-iQ_{z,i}L/2} + b_i \left(1 - \frac{Q_{z,i}}{q_0} \right) e^{iQ_{z,i}L/2} \right) \cdot \right. \quad (\text{A.8c})$$

$$\left. \cdot \left(f_j^* \left(1 + \frac{Q_{z,j}^*}{q_0} \right) e^{iQ_{z,j}^*L/2} + b_j^* \left(1 - \frac{Q_{z,j}^*}{q_0} \right) e^{-iQ_{z,j}^*L/2} \right) \right]$$

$$0 = \frac{1}{4} \sum_{ij} \left[\left(f_i \left(1 - \frac{Q_{z,i}}{q_0} \right) e^{iQ_{z,i}L/2} + b_i \left(1 + \frac{Q_{z,i}}{q_0} \right) e^{-iQ_{z,i}L/2} \right) \cdot \right. \\ \left. \cdot \left(f_j^* \left(1 - \frac{Q_{z,j}^*}{q_0} \right) e^{-iQ_{z,j}^*L/2} + b_j^* \left(1 + \frac{Q_{z,j}^*}{q_0} \right) e^{iQ_{z,j}^*L/2} \right) \right], \quad (\text{A.8d})$$

Für die spätere Rechnung hat es sich als zweckmäßig erwiesen, zusätzlich den nullwertigen Beitrag (A.8d) zu berücksichtigen. Wir wollen uns im Folgenden auf die Betrachtung der Koeffizienten $f_j^* f_i$ beschränken, da der Beweis für die übrigen analog verläuft. Es muss lediglich berücksichtigt werden, dass $f_j^* b_i$ und $b_j^* f_i$ nicht separat betrachtet werden dürfen. Somit erhalten wir für den Beitrag des betrachteten Koeffizienten zur klassischen Absorption den Ausdruck

$$\frac{1}{4} \left[\left(e^{-i(Q_{z,i} - Q_{z,j}^*)L/2} - e^{i(Q_{z,i} - Q_{z,j}^*)L/2} \right) \cdot \right. \\ \left. \cdot \left\{ \left(\frac{Q_{z,i}}{q_0} + 1 \right) \left(\frac{Q_{z,j}^*}{q_0} + 1 \right) - \left(\frac{Q_{z,i}}{q_0} - 1 \right) \left(\frac{Q_{z,j}^*}{q_0} - 1 \right) \right\} \right], \quad (\text{A.9})$$

wobei sich die geschweifte Klammer zu $2(Q_{z,i} + Q_{z,j}^*)/q_0$ vereinfachen lässt. Zur Bestimmung eines vergleichbaren Ausdrucks für die Reemission

$$\frac{1}{q_0} \frac{\omega^2}{c^2} \text{Im} \int_{-L/2}^{L/2} dz E^*(z) P(z)$$

wird die in der Polarisierung auftretende dielektrische Suszeptibilität unter Nutzung der Polaritongleichung mittels

$$\frac{1}{q_0} \frac{\omega^2}{c^2} \chi(Q_i, \omega) = \frac{1}{q_0} (Q_{z,i}^2 + Q_{\perp,i}^2 - \frac{\omega^2}{c^2}) = q_0 \left(\frac{Q_{z,i}}{q_0} + C \right) \left(\frac{Q_{z,i}}{q_0} - C \right) \quad (\text{A.10})$$

ersetzt¹:

$$\frac{1}{q_0} \frac{\omega^2}{c^2} \text{Im} \sum_{ij} \left(\frac{Q_{z,i}}{q_0} - C \right) \left(\frac{Q_{z,i}}{q_0} + C \right) \cdot \\ \cdot \int_{-L/2}^{L/2} dx \left(f_j^* e^{-iQ_{z,j}^* z} + b_j^* e^{iQ_{z,j}^* z} \right) \left(f_i e^{iQ_{z,i} z} + b_i e^{-iQ_{z,i} z} \right) \quad (\text{A.11})$$

Hierin ist das verbleibende Integral analytisch ausführbar und speziell für $f_j^* f_i$ ist

$$\int_{-L/2}^{L/2} dx e^{i(Q_{z,i} - Q_{z,j}^*)z} = \left[\frac{1}{i(Q_{z,i} - Q_{z,j}^*)} \left(e^{i(Q_{z,i} - Q_{z,j}^*)L/2} - e^{-i(Q_{z,i} - Q_{z,j}^*)L/2} \right) \right]. \quad (\text{A.12})$$

¹Es ist stets $|Q_{\perp}| \leq \omega/c$, so dass C reell ist.

Stellen wir nun noch den zu berechnenden Imaginärteil über die Subtraktion des komplex Konjugierten dar und beachten, dass dabei die Indizes i und j miteinander zu vertauschen sind, so folgt für die Reemission des betrachteten Koeffizienten:

$$\begin{aligned} & \frac{1}{2i} \left[\frac{q_0}{i(Q_{z,i} - Q_{z,j}^*)} \left(e^{i(Q_{z,i} - Q_{z,j}^*)L/2} - e^{-i(Q_{z,i} - Q_{z,j}^*)L/2} \right) \right. \\ & \quad \cdot \left. \left\{ \left(\frac{Q_{z,i}}{q_0} - C \right) \left(\frac{Q_{z,i}}{q_0} + C \right) - \left(\frac{Q_{z,j}^*}{q_0} - C \right) \left(\frac{Q_{z,j}^*}{q_0} + C \right) \right\} \right] \end{aligned} \quad (\text{A.13})$$

Wieder lässt sich der Ausdruck in der geschweiften Klammer vereinfachen, diesmal zu $(Q_{z,i} - Q_{z,j}^*)(Q_{z,i} + Q_{z,j}^*)/q_0^2$, womit die Identität von (A.13) und (A.9) gezeigt und somit die Behauptung bewiesen ist.

A.3 Materialparameter - GaAs

In diesem Abschnitt sollen die Parameter des 1s-hh Exzitons in GaAs angegeben werden, welche für die numerischen Auswertungen zu den Abbildungen 1.4, 1.6 und 1.7 verwendet wurden.

Dielektrizitätskonstante des Hintergrundes	ε_b	12.55
longitudinal-transversal-Aufspaltung	$\hbar\Delta_{hh}$	1.0375 meV
Exziton-Schwerpunktmasse	M_{ex}/m_e^0	0.9152
Bindungsenergie	ε_{hh}	4.14 meV
Bandlücke	E_{gap}	1519.14 meV
Dämpfung	$\hbar\gamma_{hh}$	50 μeV

Anhang B

B.1 Hinweise zur Berechnung der Kopplungsmatrix $G_{\alpha i, \beta j}$

An dieser Stelle sollen unter der Annahme, dass die Elektron-Loch-Paarwellenfunktion auf Grund der geringen Ausdehnung der QD-Schicht in Wachstumsrichtung durch eine Deltafunktion ersetzt werden kann, und der Darstellung in [32] folgend, numerisch handhabbare Ausdrücke für die Kopplungsmatrix

$$\overleftrightarrow{G}_{\alpha\beta} = q_0^2 \frac{|d_{cv}|^2}{\varepsilon_b} \sum_{\mathbf{k}_{\parallel}} \psi_{\alpha, \mathbf{k}_{\parallel}}^* \overleftrightarrow{G}_{\mathbf{k}_{\parallel}} \psi_{\beta, \mathbf{k}_{\parallel}} e^{-i\mathbf{k}_{\parallel} \cdot \mathbf{R}_{\alpha\beta}} \quad (\text{B.1})$$

mit dem Abstand $R_{\alpha\beta} = R_{\alpha} - R_{\beta}$ zwischen den QDs α und β angegeben werden. Die \mathbf{k}_{\parallel} -Werte sind quasikontinuierlich, so dass wir zur Integraldarstellung übergehen können. Für die um den Ursprung zentrierten Elektron-Loch-Paarwellenfunktion finden wir auf Grund der Zylindersymmetrie lediglich eine Abhängigkeit vom Betrag des Ebenenimpulses, entsprechend $\psi_{\alpha, \mathbf{k}_{\parallel}} \equiv \psi_{\alpha, k} = \frac{1}{2\pi} e^{-(k/(2\beta_{\alpha}))^2}$, so dass für die Kopplungsmatrix verbleibt

$$\begin{aligned} \overleftrightarrow{G}_{\alpha\beta} = & -\frac{1}{2i} \frac{|d_{cv}|^2}{\varepsilon_b} \int_0^{\infty} dk \psi_{\alpha, k}^* \frac{k}{\kappa_z} \psi_{\beta, k} \\ & \times \int_0^{2\pi} d\varphi \begin{pmatrix} q_0^2 - k^2 \cos^2 \varphi & -k^2 \sin \varphi \cos \varphi \\ -k^2 \sin \varphi \cos \varphi & q_0^2 - k^2 \sin^2 \varphi \end{pmatrix} e^{-ik_{\parallel} R_{\alpha\beta} \cos(\varphi - \theta_{\alpha\beta})}, \end{aligned}$$

mit den zu \mathbf{k}_{\parallel} und $\mathbf{R}_{\alpha\beta}$ gehörenden Winkeln ϕ und $\theta_{\alpha\beta}$, jeweils betrachtet gegen die x-Achse des Koordinatensystems. Durch Rotation der Matrix um den Winkel $\theta_{\alpha\beta}$ mittels unitärer Transformation $\mathcal{U}(\theta_{\alpha\beta})$, lässt sich die Winkelintegration analytisch, durch

Verwendung einer Integraldarstellung¹ der Besselfunktionen ν -ter Ordnung

$$J_\nu(z) = \frac{(z/2)^\nu}{\Gamma(\nu + 1/2)\Gamma(1/2)} \int_0^\pi d\varphi e^{\pm iz \cos \varphi} \sin^{2\nu} \varphi, \quad (\text{B.2})$$

worin $\Gamma(\nu)$ die Eulersche Gammafunktion ist, ausführen und man erhält

$$\begin{aligned} \mathcal{U}(\theta_{\alpha\beta}) \overleftrightarrow{G}_{\alpha\beta} \mathcal{U}^T(\theta_{\alpha\beta}) &= -\frac{\pi |d_{cv}|^2}{i \varepsilon_b} \int_0^\infty dk \psi_{\alpha,k}^* \frac{k}{\kappa_z} \psi_{\beta,k} \\ &\times \begin{pmatrix} \kappa_z^2 J_0(kR_{\alpha\beta}) + \frac{1}{R_{\alpha\beta}} k J_1(kR_{\alpha\beta}) & 0 \\ 0 & q_0^2 J_0(kR_{\alpha\beta}) - \frac{1}{R_{\alpha\beta}} k J_1(kR_{\alpha\beta}) \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (\text{B.3})$$

Die verbleibende Integration kann numerisch durchgeführt werden, so dass die vollständige Kopplungsmatrix im ursprünglichen Koordinatensystem nach Rotation um den Winkel $-\theta_{\alpha\beta}$ folgt. Betrachten wir noch den Grenzfall $R_{\alpha\beta} \rightarrow 0$, so kann ein Ausdruck für die radiative Selbstenergie $-G_{\alpha\alpha}$ des ungekoppelten α -ten QD gefunden werden²:

$$\overleftrightarrow{G}_{\alpha\beta} = -\frac{\pi |d_{cv}|^2}{2i \varepsilon_b} \int_0^\infty dk \frac{k(\kappa_z^2 + q_0^2)}{\kappa_z} \Psi_{\alpha,k} \otimes \Psi_{\alpha,k}^* \delta_{\alpha,\beta}. \quad (\text{B.4})$$

Alle auftretenden Integrale sind vom Typ einer Hankel-Transformation und besitzen eine hebbare Singularität der Form

$$\int_0^\infty dk \frac{k}{\sqrt{a^2 - k^2}} f(k) = \int_0^{|a|} dk f(\sqrt{a^2 - k^2}) - i \int_0^\infty dk f(\sqrt{a^2 + k^2}). \quad (\text{B.5})$$

Das Integral für G_α ist dann bei der zu betrachtenden Wellenfunktion $\psi_{\alpha,k}$ sogar analytisch lösbar mit dem Ergebnis

$$G_{\alpha\alpha} = \frac{1}{2} \frac{|d_{cv}|^2}{4\pi\varepsilon_b} \left[\sqrt{\frac{\pi}{2}} \beta_\alpha (q_0^2 - \beta_\alpha^2) (1 + \operatorname{erf}\left(\frac{iq_0}{\sqrt{2}\beta_\alpha}\right)) \exp\left(-\frac{q_0^2}{2\beta_\alpha^2}\right) + i\beta_\alpha^2 q_0 \right], \quad (\text{B.6})$$

worin $\operatorname{erf}(z)$ die ins Komplexe fortgesetzte Gaußsche Fehlerfunktion ist, welche sich z.B. über die numerisch gut handhabbare Faddeeva Funktion $W(z) = \exp(-z^2)(1 - \operatorname{erf}(-iz))$ darstellen lässt.

¹vgl. hierzu [16] 8.411.7 S.962

²Zu beachten ist für $R_{\alpha\beta} \rightarrow 0$, dass $J_0(kR_{\alpha\beta}) \approx 1$ und $J_1(kR_{\alpha\beta}) \approx kR_{\alpha\beta}/2$.

B.2 Materialparameter - InGaAs/GaAs QDs

In diesem Abschnitt sollen die Parameter des InGaAs/GaAs QD-Systems angegeben werden, welche für die numerischen Auswertungen zu den Abbildungen 2.4, 2.5 und 2.6 verwendet wurden.

Dielektrische Konstante des Hintergrundes	ε_b	13.69
Bandlücke abzüglich z-confinement	$E_{\text{gap}} - \varepsilon_0$	1295 meV
Dipolmatrixelement	$ d_{cv} ^2$	$e \cdot 5 \text{ \AA}$
effektive Elektronmasse	m_e^*/m_e^0	0.065
effektive Lochmasse	m_h^*/m_e^0	0.17
Höhe des Quantenpunktes	H	4.4 nm
Dicke der Benetzungsschicht	z_0	1.6 nm
mittlerer QD-Radius	μ	18 nm

Literaturverzeichnis

- [1] ANDERS, S. ; KIM, C. S. ; KLEIN, B. ; KELLER, M. W. ; MIRIN, R. P. ; NORMAN, A. G.: Bimodal size distribution of self-assembled $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ quantum dots. In: *Phys. Rev. B* 66 (2002), S. 125309
- [2] *Kapitel* Optical Transitions, Excitons, and Polaritons in Bulk and Low-Dimensional Semiconductor Structures. In: ANDREANI, L. : *Confined Electrons and Photons*. Bd. 340. Plenum Press, 1994, S. 57–112
- [3] ANDREANI, L. C.: Exciton-polaritons in superlattices. In: *Phys. Lett. A* 192 (1994), S. 99–109
- [4] AXT, V. M. ; STAHL, A. : A dynamics-controlled truncation scheme for the hierarchy of density matrices in semiconductor optics. In: *Z. Phys. B* 93 (1994), S. 195–204
- [5] BAER, N. ; SCHULZ, S. ; GARTNER, P. ; SCHUMACHER, S. ; CZYCHOLL, G. ; JAHNKE, F. : Influence of symmetry and Coulomb correlation effects on the optical properties of nitride quantum dots. In: *Phys. Rev. B* 76 (2007), S. 075310
- [6] BASTARD, G. : *wave mechanics applied to semiconductor heterostructure*. Monographies de Physique, 1988
- [7] BIOLATTI, E. ; IOTTI, R. C. ; ZANARDI, P. ; ROSSI, F. : Quantum Information Processing with Semiconductor Macroatoms. In: *Phys. Rev. Lett.* 85 (2000), Nr. 26, S. 5647–5650
- [8] BISHOP, M. F. ; MARADUDIN, A. A.: Energy flow in a semi-infinite spatially dispersive absorbing dielectric. In: *Phys. Rev. B* 14 (1976), S. 3384
- [9] CHOW, W. W. ; KOCH, S. W. ; SARGENT III, M. : *Semiconductor-Laser Physics*. Springer, 1994

- [10] CITRIN, D. S.: Exciton radiative decay and polaritons in multiquantum wells: quantum-well-to-superlattices crossover. In: *Solid State Communications* 89 (1994), S. 139–143
- [11] COHEN-TANNOUDJI, C. ; DUPONT-ROC, J. ; GRYNBERG, G. : *Photons and atoms*. Wiley, New York, 1989
- [12] D’ANDREA, A. ; DEL SOLE, R. : Exciton quantization and polariton propagation in semiconductor slabs: From semi-infinite crystals to quantum wells. In: *Phys. Rev. B* 41 (1990), Nr. 3, S. 1413–1423
- [13] DICKE, R. H.: Coherence in spontaneous radiation processes. In: *Phys. Rev.* 93 (1954), S. 99–110
- [14] FAFARD, S. ; WASILEWSKI, Z. R. ; ALLEN, C. N. ; PICARD, D. ; SPANNER, M. ; MCCAFFREY, J. P. ; PIVA, P. G.: Manipulating the energy levels of semiconductor quantum dots. In: *Phys. Rev. B* 59 (1999), Nr. 23, S. 15368–15373
- [15] FÖRSTER, T. : Zwischenmolekulare Energiewanderung und Fluoreszenz. In: *Annalen der Physik* 437 (1948), S. 55–75
- [16] GRADSHTEYN, I. S. ; RYZHIK, I. M. ; JEFFREY, A. (Hrsg.): *Table, Integrals, Series, and Products*. Fifth Edition. Academic Press, London, 1995
- [17] HALEVI, P. : *Spatial Dispersions in Solids and Plasma*. North-Holland, Amsterdam, 1992
- [18] HAUG, H. ; KOCH, S. W.: *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors*. 4th. World Scientific, Singapore, 2004
- [19] HEITZ, R. ; STIER, O. ; MUKHAMETZHANOV, I. ; MADHUKAR, A. ; BIMBERG, D. : Quantum size effect in self-organized InAs/GaAs quantum dots. In: *Phys. Rev. B* 62 (2000), Nr. 16, S. 11017–11028
- [20] HENNEBERGER, K. : Additional Boundary Conditions: An Historical Mistake. In: *Phys. Rev. Lett.* 80 (1998), S. 2889–2892
- [21] *Kapitel Quantum Kinetic Theory of the Semiconductor Laser*. In: HENNEBERGER, K. ; KOCH, S. W.: *Microscopic theory of semiconductors: Quantum Kinetics, Confinement and Lasers*. World Scientific, Singapore, 1995

- [22] HOPFIELD, J. J.: Theory of the Contribution of Excitons to the Complex Dielectric Constant of Crystals. In: *Phys. Rev.* 112 (1958), Dec, Nr. 5, S. 1555–1567
- [23] HOPFIELD, J. J. ; THOMAS, D. G.: Theoretical and Experimental Effects of Spatial Dispersion on the Optical Properties of Crystals. In: *Phys. Rev.* 132 (1963), Nr. 2, S. 563–572
- [24] LUKIN, M. D. ; YELIN, S. F. ; FLEISCHHAUER, M. : Entanglement of Atomic Ensembles by Trapping Correlated Photon States. In: *Phys. Rev. Lett.* 84 (2000), Nr. 18, S. 4232–4235
- [25] MAHAN, G. D.: *Many-Particle Physics*. Third. Springer, 2000
- [26] MANDEL, L. ; WOLF, E. : *Optical coherence and quantum optics*. Cambridge University Press, 1995
- [27] MARADUDIN, A. A. ; MILLS, D. L.: Effect of Spatial Dispersion on the Properties of a Semi-Infinite Dielectric. In: *Phys. Rev. B* 7 (1973), S. 2787–2810
- [28] MARTIENSSEN, W. (Hrsg.) ; WARLIMONT, H. (Hrsg.): *Springer Handbook of Condensed Matter and Materials Data*. Springer, 2005
- [29] M.KIRA ; F.JAHNKE ; W.HOYER ; S.W.KOCH: Quantum theory of spontaneous emission and coherent effects in semiconductor microstructures. In: *Progress in Quantum Electronics* 23 (1999), S. 189–279
- [30] MULJAROV, E. A. ; ZIMMERMANN, R. : Exciton polariton including continuum states: Microscopic versus additional boundary conditions. In: *Phys. Rev. B* 66 (2002), S. 235319
- [31] NÄGERL, J. S. ; STABENAU, B. ; BÖHNE, G. ; DREHER, S. ; ULBRICH, R. G. ; MANZKE, G. ; HENNEBERGER, K. : Polariton pulse propagation through GaAs: Excitation-dependent phase shifts. In: *Phys. Rev. B* 63 (2001), Nr. 23, S. 235202
- [32] PARASCANDOLO, G. ; SAVONA, V. : Long-range radiative interaction between semiconductor quantum dots. In: *Phys. Rev. B* 71 (2005), S. 045335
- [33] PEKAR, S. : In: *Zh. Eksp. Theor. Fiz.* 33 (1957), S. 1022 – [*Sov. Phys. JETP* 6, 785 (1958)]

- [34] QUIROGA, L. ; JOHNSON, N. F.: Entangles Bell and Greenberger-Horne-Zeilinger states of excitons in coupled quantum dots. In: *Phys. Rev. Lett.* 83 (1999), S. 2270–2273
- [35] RICHTER, F. ; FLORIAN, M. ; HENNEBERGER, K. : Poynting's theorem and energy conservation in the propagation of light in bounded media. In: *Europhys. Lett.* 81 (2008), S. 67005
- [36] RICHTER, F. ; FLORIAN, M. ; HENNEBERGER, K. : Generalized radiation law for excited media in a nonequilibrium steady state. In: *Phys. Rev. B* 78 (2008), S. 205114
- [37] SCHNEIDER, H. C. ; JAHNKE, F. ; KOCH, S. W. ; TIGNON, J. ; HASCHE, T. ; CHEMLA, D. S.: Polariton propagation in high quality semiconductors: Microscopic theory and experiment versus additional boundary conditions. In: *Phys. Rev. B* 63 (2001), S. 045202
- [38] SCHUMACHER, S. ; CZYCHOLL, G. ; JAHNKE, F. : Microscopic description of exciton-polaritons in thin semiconductor layers. In: *physica status solidi (b)* 234 (2002), S. 172–182
- [39] SCHUMACHER, S. ; CZYCHOLL, G. ; JAHNKE, F. ; KUDYK, I. ; RÜCKMANN, H. I. ; GUTOWSKI, J. ; GUST, A. ; ALEXE, G. ; HOMMEL, D. : Polariton propagation in shallow-confinement heterostructures: Microscopic theory and experiment showing the breakdown of the dead-layer concept. In: *Phys. Rev. B* 70 (2004), S. 235340
- [40] SEEMANN, M. ; KIESELING, F. ; STOLZ, H. ; FLORIAN, M. ; MANZKE, G. ; HENNEBERGER, K. ; HOMMEL, D. : Absorption and emission of polariton modes in a ZnSe-ZnSSe heterostructure. In: *phys. stat. sol. (b)* 245 (2008), S. 1093
- [41] SEEMANN, M. ; KIESELING, F. ; STOLZ, H. ; MANZKE, G. ; HENNEBERGER, K. ; PASSOW, T. ; HOMMEL, D. : Phase resolved polariton interferences in a ZnSe-ZnSSe heterostructure. In: *phys. stat. sol. (c)* 3 (2006), S. 2453–2456
- [42] SHENG, W. ; CHENG, S.-J. ; HAWRYLAK, P. : Multiband theory of multi-exciton complexes in self-assembled quantum dots. In: *Phys. Rev. B* 71 (2005), S. 035316
- [43] STIER, O. ; GRUNDMANN, M. ; BIMBERG, D. : Electronic and optical properties of strained quantum dots modeled by 8-band $k \cdot p$ theory. In: *Phys. Rev B* 59 (1999), S. 5688–5701

- [44] STRANSKI, I. N. ; KRASTANOW, L. : Theory of orientation separation of ionic crystals. In: *Ber. Akad. Wiss. Wien, Math.-Naturwiss. Kl., Abt. IIb* 146 (1938), S. 797
- [45] TANABE, T. ; NOTOMI, M. ; KURAMOUCHI, E. ; SHINYA, A. ; TANIYAMA, H. : Trapping and delaying photons for one nanosecond in an ultrasmall high-Q photonic-crystal nanocavity. In: *Nature Photonics* 51 (2006), S. 49–52
- [46] TIGNON, J. ; HASCHE, T. ; CHEMLA, D. S. ; SCHNEIDER, H. C. ; JAHNKE, F. ; KOCH, S. W.: Unified Picture of Polariton Propagation in Bulk GaAs Semiconductors. In: *Phys. Rev. Lett.* 84 (2000), S. 3382
- [47] TING, C. S. ; FRANKEL, M. J. ; BIRMAN, J. L.: Electrodynamics of bounded spatially dispersive media: The additional boundary conditions. In: *Solid State Communications* 17 (1975), S. 1285
- [48] TREDICUCCI, A. ; CHEN, Y. ; BASSANI, F. ; MASSIES, J. ; DEPARIS, C. ; NEU, G. : Center-of-mass quantization of excitons and polariton interference in GaAs thin layers. In: *Phys. Rev. B* 47 (1993), S. 10348–10357
- [49] TUFFIGO, H. ; COX, R. T. ; MAGNEA, N. ; D'AUBIGNÉ, Y. M. ; MILLION, A. : Luminescence from quantized exciton-polariton states in $\text{Cd}_{1-x}\text{Zn}_x\text{Te}/\text{CdTe}/\text{Cd}_{1-x}\text{Zn}_x\text{Te}$ thin-layer heterostructures. In: *Phys. Rev. B* 37 (1988), S. 4310–4313
- [50] VENGER, E. F. ; PISKOVOI, V. N.: Consistency of boundary conditions in crystal optics with spatial dispersion. In: *Phys. Rev. B* 70 (2004), S. 115107
- [51] WOJS, A. ; HAWRYLAK, P. ; FAFARD, S. ; JACAK: Electronic structure and magneto-optics of self-assembled quantum dots. In: *Phys. Rev. B* 54 (1996), S. 5604 – 5608
- [52] WUBS, M. ; LANGENDIJK, A. : Local optical density of states in finite crystals of plane scatterers. In: *Phys. Rev. E* 65 (2002), S. 046612
- [53] ZORY, P. S.: *Quantum Well Lasers*. Academic Press, Boston, 1993

Danksagung

Hiermit sei all jenen gedankt, ohne deren Hilfe und Unterstützung die vorliegende, nein die hinter uns liegende, Arbeit in ihrer endgültigen Form nie zustande gekommen wäre.

Außerordentlich möchte ich Klaus Henneberger und Frank Jahnke für die hervorragende Betreuung und die vielen gemeinsamen Diskussionen danken, aber auch für ihr Vertrauen und die bedingungslose Unterstützung auf dem Weg zu dieser Diplomarbeit.

Besonderer Dank gilt Felix Richter für die angenehme Zeit im Büro, die fruchtbare Zusammenarbeit bei gemeinsamen Projekten und so manchen heiteren Plausch bei einer Tasse Kaffee (oder auch zwei).

Des Weiteren danke ich Günter Manzke und Paul Gartner für ihre unermessliche Hilfsbereitschaft und die vielen konstruktiven Ideen, die mir sehr beim Verständnis geholfen und Teile der Arbeit geprägt haben.

Abschließend möchte ich noch meiner Freundin Sarah Schaible für den schönen privaten Ausgleich und die Korrekturlesung und nicht zu vergessen Sven Meyer, Anke Busch, Mathias Winkel, Antje Kuhlmann, Doreen Neumann und Christian Voß für ihre Freundschaft und so manchen Abend in geselliger Runde danken.

Zu guter Letzt gilt mein Dank meinen Eltern, ohne deren Zutun diese Arbeit mit Sicherheit nicht zustande gekommen wäre und die mich während meines gesamten Studiums stets unterstützt haben.

Erklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig angefertigt, ohne fremde Hilfe verfasst und keine anderen außer den von mir angegebenen Quellen verwendet habe.

Matthias Florian
Rostock, November 2008