Vielteilcheneffekte in Halbleiterquantenpunkten - Ladungsträgerdynamik und optische Eigenschaften

Kolja Schuh

Universität Bremen 2012

Vielteilcheneffekte in Halbleiterquantenpunkten - Ladungsträgerdynamik und optische Eigenschaften

Dissertation
zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor der Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat.)

am Fachbereich Physik und Elektrotechnik
der Universitiät Bremen

vorgelegt von
Dipl. Phys.
Kolja Schuh

Bremen, den 17.07.2012

1. Gutachter Prof. Dr. Frank Jahnke, Universität Bremen

2. Gutachter Prof. Dr. Gerd Czycholl, Universität Bremen

Eingereicht am 17.07.2012

Tag des Promotionskolloquiums: 03.09.2012

Abstract

In this thesis theoretical models for the description of optical properties of semiconductor quantum dots are developed. Particular attention is given to the inclusion of many-body effects. Quantum dots are of great interest due to their discrete states that can be tailored to a large extend. In contrast to atoms, quantum dots represent - as part of a semiconductor - embedded systems. The carrier dynamics and spectral properties due to the many-body interactions are calculated using a non-equilibrium Green's function formalism. This formalism allows the description of non-Markovian effects as well as a selfconsistent treatment of the interaction.

In particular, the Green's function formalism is used to investigate the simultaneous influence of the carrier-phonon and Coulomb interaction on scattering efficiency in a quantum-dot system. There is a substantial effect for the scattering of carriers between discrete quantum-dot states that even leads to decreasing scattering efficiency.

Besides scattering, many-body interactions cause also dephasing that destroys coherence. Coherence is of central importance for a variety of applications in quantum information. For instance, the population inversion of a transition can be used as an all-optical switch. Exemplary, population inversion of a semiconductor quantum dot ground-state transition by means of adiabatic passage with chirped optical pulses and resonant Rabi oscillations are investigated under the influence of carrier-LO-phonon interaction.

Furthermore, the interplay of structural properties and many-body interactions has a large influence on optical properties. Due to the quantum-confined Stark effect in nitride quantum dots, the single-particle states of electrons and holes are separated. This causes a weak ground-state optical transition - even in quantum dots grown in a nonpolar direction. By implementing a configuration interaction scheme, we find that the Coulomb interaction strongly enhances the ground-state transitions by partly neutralizing the quantum-confined Stark effect in nonpolar quantum dots. This finding sheds new light on existing discrepancies between previous theoretical and experimental results for these systems, as experimentally efficient optical transitions have been observed.

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung **8**

2 Halbleiterquantenpunkte **10**
2.1 Eigenschaften von Halbleiterquantenpunkten 11
2.2 InGaAs-Quantenpunkte 13
2.3 InGaN-Quantenpunkte 16

I Vielteilchentheorie **19**

3 Vielteilchensysteme **20**
3.1 Allgemeine quantenstatistische Beschreibung 21
3.2 Greensche Funktionen auf der Keldysh-Zeitkontur 22
3.3 Keldysh-Dynamik 25
3.3.1 Funktionalableitungstechnik 26
3.3.2 Abschirmung 29
3.4 Auswertung der Keldysh-Dynamik 32

4 Coulomb-Wechselwirkung **37**
4.1 Matrixelemente der Coulomb-Wechselwirkung 37
4.2 Selbstenergie 39
4.2.1 Hartree-Fock-Selbstenergie 40
4.2.2 Selbstenergie in zweiter Bornscher Näherung 42

5 Elektron-Phonon-Wechselwirkung **44**
5.1 Fröhlich-Kopplung 44
5.2 Polaronische Selbstenergie 46
5.3 Hartree-artiger Anteil 48

II Wirkung und Zusammenspiel der Wechselwirkungen **50**

6 Spektrale Eigenschaften **51**
6.1 Bedeutung und Berechnung der Spektralfunktion 51
6.2 Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung 54
6.3 Polaronen 60
6.3.1 Polaronen in der Benetzungsschicht 62
6.3.2 Polaronen in Quantenpunkten 65
6.4 Kombinierte Coulomb- und Elektron-Phonon-Wechselwirkung 70

7 Kinetik **75**
7.1 Bewegungsgleichungen 75
7.1.1 Coulomb-Streuung 77
7.1.2 Elektron-Phonon-Streuung 79
7.2 Streuraten 82
7.3 Einfluss des Zusammenspiels der Wechselwirkungen 84
7.3.1 Streuung zwischen diskreten Quantenpunktzuständen 85
7.3.2 Einfang von Ladungsträgern 88
7.4 Vergleich der Elektron-LO-Phonon-Streuraten mit einer störungstheoretischen Rechnung 91
7.5 Dephasierungsraten der Elektron-Phonon-Wechselwirkung 94

III Anwendungen **96**

8 Kohärente optische Anregungen **97**
8.1 Lösung für Zwei-Niveau-Systeme 98
8.2 Nicht-Markovsche Effekte bei der resonanten Anregung eines Quantenpunktsystems 103
8.3 Rapid adiabatic passage 105
8.4 Optisches Schalten von Besetzungen 111

9 Optische Eigenschaften von Nitrid-Quantenpunkten **115**
9.1 Verstärkte Dipolkopplung durch Coulomb-Wechselwirkung in unpolaren Nitrid-Quantenpunkten 116
9.1.1 Einteilchenzustände 117
9.1.2 Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung 122
9.1.3 Abhängigkeit von der Wechselwirkungsstärke 127
9.2 Dipolübergänge zwischen Quantenpunkt- und Benetzungsschichtzuständen 131
9.3 Dichteabhängigkeit der Spektren polarer Nitrid-Quantenpunkte 132

10 Zusammenfassung **136**

IV Anhang **139**

A Überlapp-Integrale für das Oszillatormodell **140**

B Tight-Binding Überlapp-Integrale **144**

C Berechnung der Matrixelemente **145**

D Verwendete Parameter **146**

E Numerische Verfahren **147**

Veröffentlichungen **148**

Literaturverzeichnis **150**

1 Einleitung

In Halbleitern ist es möglich, durch eine Strukturierung auf atomarer Skala die Eigenschaften dieser Systeme bedeutend und gezielt zu manipulieren. Auf diesen kleinen Skalen treten Quantisierungseffekte auf, die beispielsweise die Zustandsdichte des Systems verändern können. So sind die Elektronen und Löcher (Ladungsträger) in Quantenfilmen in einer Richtung eingeschlossen, wodurch sich die Zustandsdichte im Vergleich zu unstrukturierten Halbleitern an der Bandkante erhöht. Daher eignen sich Quantenfilme für optoelektronische Bauelemente wie Laser[1]-Dioden, lichtemittierende Dioden und Photodetektoren [71], die auch in vielen Alltagsgeräten verwendet werden, die beispielsweise zur optischen Kommunikation, Datenspeicherung oder als Beleuchtung dienen.

Als besonders interessant haben sich Quantenpunkte erwiesen [10, 11]. In diesen sind die Ladungsträger vollständig lokalisiert, so dass sich im Gegensatz zu anderen Halbleitersystemen ein diskretes Energiespektrum ergibt. Daher werden Quantenpunkte auch als "künstliche Atome" bezeichnet. Dabei ergibt sich gegenüber Atomen der Vorteil, dass die Eigenschaften der Ladungsträger in diesen Punkten manipulierbar sind. So können optische Übergangsenergien und Übergangsstärken durch Materialzusammensetzung, Größe und Geometrie beeinflusst werden, so dass sich mittels Quantenpunkten maßgeschneiderte Laser oder Dioden realisieren lassen. Auch lassen sich in Halbleiter eingebettete Quantenpunkte elektrisch pumpen. Dabei werden die Ladungsträger allerdings nicht direkt in die Quantenpunkte gepumpt, sondern in die energetisch höher liegenden quasikontinuierlichen Zustände des Halbleiters, aus denen diese zunächst in die Quantenpunkte relaxieren müssen. Dies geschieht durch die in Halbleitern auftretenden Vielteilchenwechselwirkungen, die die Quantenpunktzustände und die quasikontinuierlichen Zustände miteinander und untereinander koppeln.

Neben der Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Ladungsträgern kommt es in Halbleitern auch zur Elektron-Phonon-Wechselwirkung, die die Interaktion der Ladungsträger mit den Schwingungen des Kristallgitters (Phononen) darstellt. Beide Wechselwirkungen führen zu komplexen Renormierungen der Ladungsträger sowie Streuung und Dephasierung. Zur quantenkinetischen Beschreibung der Wechselwirkungen werden in dieser Arbeit Nichtgleichgewichts-Greenschen Funktionen im Rahmen der Keldysh-Technik genutzt [48]. Dies erlaubt es im Rahmen eines selbstkonsistenten Schemas, bestimmte Klassen von Wechselwirkungsprozessen in beliebig hoher Ordnung zu berücksichtigen. Ein Schwerpunkt ist dabei das Zusammenspiel der beiden genannten Wechselwirkungen. So können sich die Wechselwirkungen gegenseitig unterstützen, indem neue Streukanäle entstehen, oder aber blockieren, wenn beispielsweise Resonanzen aufgehoben werden. Dabei wird hier sowohl die Wirkung der Renormierungen auf die spektralen Eigenschaften der Quantenpunktzustände, als auch die Wirkung auf die Streuung - insbesondere die

[1] Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation

Relaxation - anhand eines InGaAs-Quantenpunktsystems untersucht. Zur Quantifizierung der Streuung werden für diese Raten eingeführt und mittels Greenscher Funktionen berechnet.

Ein weiteres mögliches Anwendungsgebiet von Halbleitern ist die Quanteninformationsverarbeitung. Dabei ist insbesondere Kohärenz notwendig, die jedoch durch die Vielteilchenwechselwirkungen verringert wird. Es wird daher anhand von optischen Anregungen untersucht, unter welchen Bedingungen kohärentes Verhalten in Quantenpunkten möglich ist. Dazu wird die Eignung als optischer Schalter und die Effizienz schneller adiabatischer Übergange (Rapid adiabatic passage) getestet.

Ein bezüglich der möglichen Emissionsfrequenzen besonders vielversprechendes Materialsystem für Quantenpunkte stellen Nitride wie z.B. InN dar [77]. Jedoch gibt es in diesen starke intrinsische elektrostatische Felder, die in strukturierten Halbleitern zum quantum-confined Stark effect [72, 130] führen, durch den die Effizienz optischer Übergänge massiv reduziert werden kann. Allerdings kann dieser Effekt durch die Coulomb-Wechselwirkung zumindest teilweise aufgehoben werden [104], was in dieser Arbeit untersucht wird. Dabei wird eine mögliche Lösung der Widersprüche zwischen experimentellen und bisherigen theoretischen Befunden für sogenannte unpolar gewachsene Nitridquantenpunkte dargelegt.

2 Halbleiterquantenpunkte

In diesem Abschnitt werden die allgemeinen Eigenschaften von Quantenpunkten (Kap. 2.1) sowie die Herstellung und Modellierung (Kap. 2.2 und 2.3) der betrachteten Halbleiter-Quantenpunkte vorgestellt. Dazu wird zunächst kurz auf die allgemeinen elektronischen Eigenschaften von kristallinen Festkörpern und Halbleitern im Besonderen eingegangen. Kristalline Festkörper bestehen aus einem regelmäßigen atomaren Gitter. Durch die Coulomb-Wechselwirkung bilden sich aus den atomaren Orbitalen delokalisierte elektronische Zustände, die sich gemäß Bloch-Theorem [34] in erster Näherung als Produkt aus einer gitterperiodischer Funktion und ebenen Wellen beschreiben lassen. Elektronen in diesen Zuständen verhalten sich daher in dieser Näherung wie freie Elektronen mit renormierter effektiver Masse [19]. Allerdings ergibt sich schon aufgrund der endlichen Anzahl von Gitterplätzen eine Quantisierung der elektronischen Zustände. Da diese Anzahl allerdings groß ist, liegen die Zustände bezüglich ihres Impulses und somit ihrer Energie dicht zusammen, so dass man von quasikontinuierlichen Zuständen spricht.

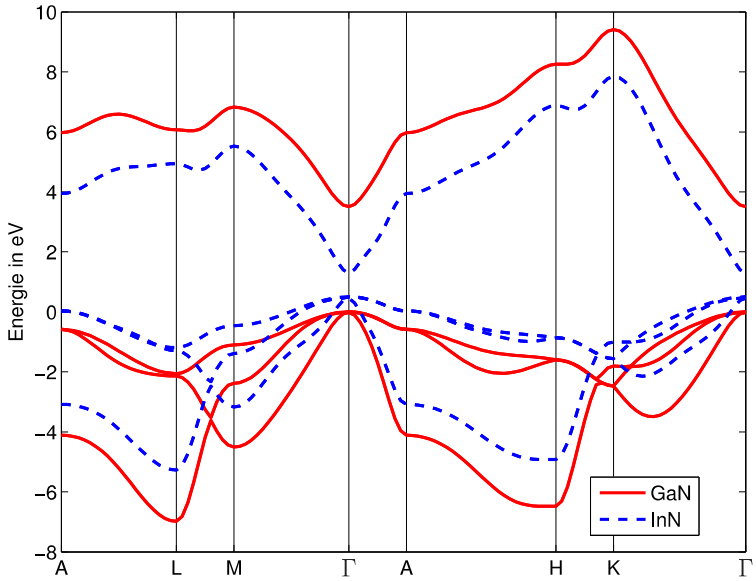


Abb. 2.1: Bandstruktur von GaN (rot) und InN (blau) entlang des irreduziblen Pfades im Impulsraum (siehe beispielsweise Ref. [50] für die Bezeichnungen): Die Bandlücke des InN liegt vollständig innerhalb der des GaN. Die Bandstruktur wurde entsprechend Ref. [74] von Stefan Barthel berechnet.

Allgemein ergeben sich Bänder aus quasikontinuierlichen Zuständen, deren Energien bezüglich des Impulses stetig sind und die einen energetischen Bereich abdecken. Abhängig vom Material und energetischer Position können sich diese Bänder überdecken oder Lücken aufweisen. Halbleiter zeichnen sich dadurch aus, dass an der Fermienergie eine Bandlücke vorliegt, durch die im Grundzustand, also im unangeregten System, voll besetzte Valenzbänder und leere Leitungsbänder voneinander getrennt sind. So weisen beispielsweise die in Abb. 2.1 dargestellten Bandstrukturen von GaN und InN eine Bandlücke von 3,51 eV beziehungsweise 0,78 eV auf. Da die Valenzbänder im Grundzustand

voll besetzt sind, bietet es sich dabei an, in diesen nicht die Anwesenheit von Elektronen, sondern das Fehlen von diesen zu beschreiben. Diese fehlenden Elektronen werden Löcher genannt. Für eine weitergehende Einführung siehe beispielsweise Ref. [19, 49].

2.1 Eigenschaften von Halbleiterquantenpunkten

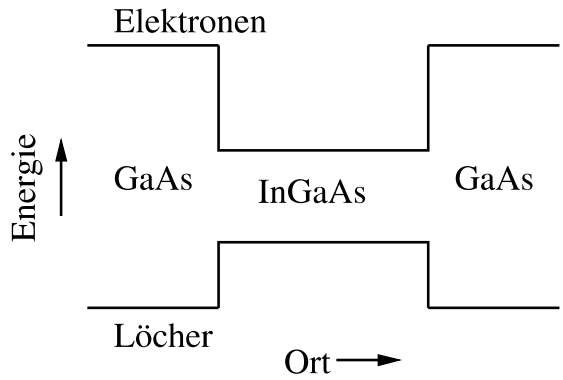


Abb. 2.2: Schematischer Verlauf der Bandkanten einer InGaAs-Halbleiternanostruktur: Da es sich bei Löchern um fehlende Elektronen handelt, ist für diese eine höhere Energie günstiger. Somit sind Elektronen wie Löcher im InGaAs gebunden.

Werden verschiedene Halbleiter auf atomarer Skala miteinander kombiniert, spricht man von Halbleiternanostrukturen. Aufgrund der unterschiedlichen Bandlücken der beteiligten Materialien kann es dabei zu einem Ladungsträgereinschluss im Material mit der kleineren Bandlücke kommen, der sowohl die Elektronen im Leitungsband, als auch die Löcher betrifft. Zu einem solchen Einschluss kommt es beispielsweise entsprechend Abb. 2.2 in InGaAs, das von GaAs umgebenen ist. Bei der Kombination von GaN und InN kommt es ebenfalls zu einem Einschluss der Ladungsträger, da die Bandlücke von InN vollständig in der Bandlücke von GaN liegt (siehe Abb. 2.1). Quantenpunkte zeichnen sich dabei dadurch aus, dass in ihnen ein Ladungsträgereinschluss in sämtlichen Richtungen vorliegt. Aufgrund der kleinen Abmessungen dieser Punkte von einigen nm bilden sich keine quasikontinuierlichen Bänder, sondern Zustände mit diskreten Energien.

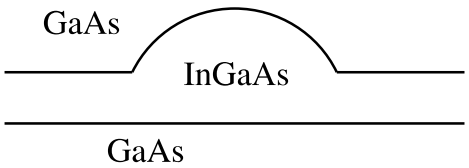


Abb. 2.3: Schematischer Querschnitt der betrachteten InGaAs-Halbleiterquantenpunktstruktur.

In dieser Arbeit werden InGaAs- und InGaN-Quantenpunkten betrachtet, die auf einer Benetzungsschicht liegen, die aus dem gleichen Material wie die Quantenpunkte besteht. Abb. 2.3 zeigt den schematischen Aufbau und Abb. 2.4 Aufnahmen einer InGaAs-Quantenpunktstruktur, in der Ladungsträger durch die gegenüber der Umgebung kleineren Bandlücke des InGaAs eingeschlossen sind. Bei der Benetzungsschicht handelt es sich um eine nur wenige Atomlagen dünne Schicht. Die Zustände in der Benetzungsschicht sind, wie auch in einem Volumenmaterial, aufgrund der Translationsinvarianz in der Ebene quasikontinuierlich, wobei sich wegen des Einschlusses und der daraus resultierenden Quantisierung in einer Raumrichtung mehrere Subbänder bilden. Im Gegensatz zu einem Quantenfilm, befinden sich auf dieser Schicht Stellen erhöhter Dicke, die die Quantenpunkte darstellen.

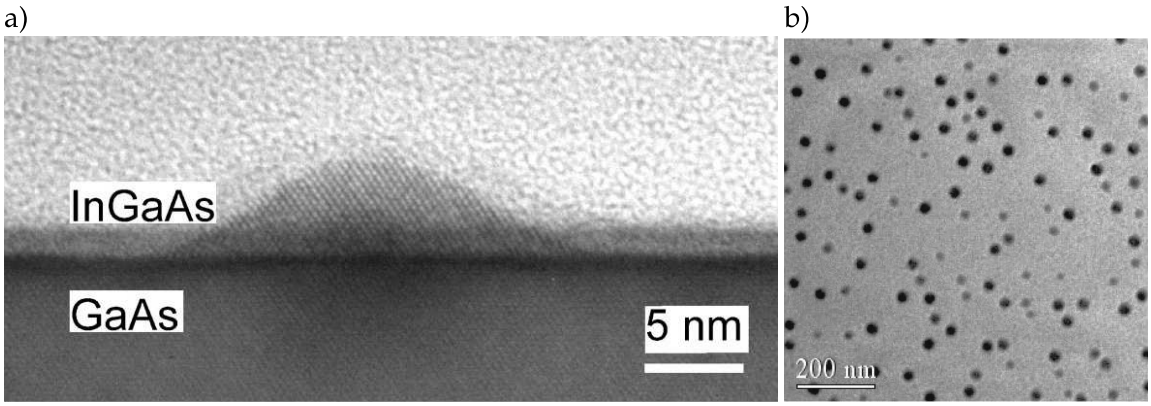


Abb. 2.4: Transmissionselektronenmikroskop-Aufnahme eines InGaAs-Quantenpunktes (a) und eines Ensembles dieser (b): Im Gegensatz zu Abb. 2.3 sind diese Quantenpunkte noch nicht mit GaAs überdeckt. Die Abbildungen wurden Ref. [3] entnommen (Copyright 2002 by The American Physical Society).

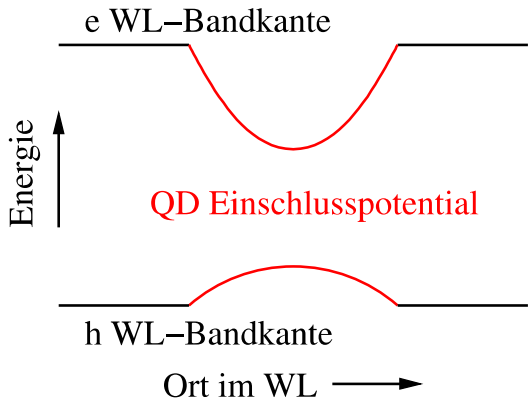


Abb. 2.5: Schema des effektiven Potentials innerhalb der Benetzungsschicht: Durch die größere Ausdehnung im Quantenpunkt (QD) gegenüber der sonstigen Benetzungsschicht (WL) ergeben sich für die Ladungsträger günstigere effektive Potentiale, die lokal gebundene Zustände für Elektronen (e) und Löcher (h) ermöglichen.

Dass diese erhöhte Dicke zu lokalisierten Zuständen führt, kann durch das in Abb. 2.5 schematisch dargestellte effektive Potential erklärt werden, das den Einschluss in Wachstumsrichtung berücksichtigt. Analog zu einem Potentialtopf ist die minimale Energie dabei um so kleiner, je breiter der eingeschlossene Bereich ist, so dass das effektive Potential am Quantenpunkt kleiner ist als in der Benetzungsschicht, die aus dem selben Material besteht. Dadurch bilden sich analog zu den Zuständen eines Elektrons in einem Atom diskrete, lokalisierte Zustände, die nicht nur in der Wachstumsrichtung, sondern auch in der Ebene eingeschlossen sind. Dies gilt ebenso für die Löcher. Es ergibt sich das in Abb. 2.6 dargestellte Energieschema. In Kap. 2.2 wird genauer auf diese Zustände eingegangen. Eine andere Möglichkeit der Bildung von Quantenpunkten in Halbleitern stellen Konzentrationsfluktuationen innerhalb einer Benetzungsschicht dar, wobei in den hier betrachteten Materialsystemen eine höhere In-Konzentration zu einem Einschluss führen würde.

Die auch als "künstliche Atome" bezeichneten Quantenpunkte weisen abgesehen von ihren diskreten Zuständen fundamentale Unterschiede zu Atomen auf. Der wesentlichste Unterschied ergibt sich durch die Einbettung der Quantenpunkte in einen Halbleiter,

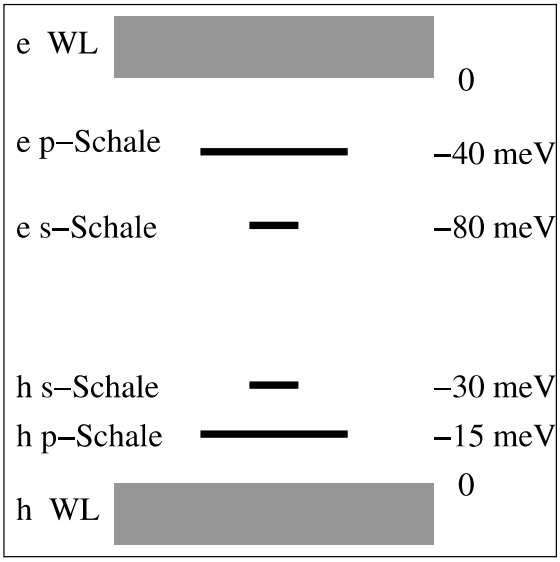


Abb. 2.6: Energieschema der betrachteten InGaAs-Quantenpunktstruktur für Elektronen (e) und Löcher (h): Unterhalb der quasikontinuierlichen Benetzungsschichtzustände (WL-Bänder) liegen mehrere diskrete Quantenpunktzustände, die aufgrund ihrer Symmetrie in Analogie zu den Orbitalen eines Atoms als s- und p-artig bezeichnet werden. Ohne Berücksichtigung der Spinentartung sind die p-Zustände dabei im Gegensatz zu den s-Zuständen jeweils zweifach entartet.

wodurch diese Teil eines Vielteilchensystems (siehe Kap. 3) sind, in dem Wechselwirkung mit anderen Elektronen (Coulomb-Wechselwirkung, siehe Kap. 4) und dem Gitter (Elektron-Phonon-Wechselwirkung, siehe Kap. 5) stattfindet. Ein großer Vorteil gegenüber Atomen ist, dass die Eigenschaften der Quantenpunkte innerhalb gewisser Bereiche während der Herstellung bestimmt werden können. So können Emissionsfrequenzen, Stärke der optischen Übergänge und sogar Ladungsträgerdynamik beeinflusst werden.

Aufgrund dieser Freiheiten beim Design stellen Quantenpunkte ein interessantes System für praktische Anwendungen dar. So werden sie als aktives Medium für optoelektronische Geräte wie lichtemittierende Dioden oder Laser[1] [66, 71] und für fundamentale Untersuchungen der Licht-Materie-Wechselwirkung genutzt [7, 96, 135]. Insbesondere für Anwendungen, die Kohärenz erfordern, kann sich dabei die Wechselwirkung mit der Umgebung als problematisch erweisen [105, 106]. Dies wird in Kap. 8 untersucht.

2.2 InGaAs-Quantenpunkte

Das InGaAs-Materialsystem ist experimentell sehr gut untersucht und bietet sich daher für grundlegende Untersuchungen zu Quantenpunkten an. Dementsprechend wird es in dieser Arbeit zur Untersuchung der spektralen Eigenschaften (Kap. 6), Kinetik (Kap. 7) und von kohärenten optischen Anregungen (Kap. 8) verwendet.

Stranski-Krastanov-Wachstum

Die Herstellung von InGaAs-Quantenpunkten erfolgt meist unter Verwendung der Molekularstrahlepitaxie (MBE), bei der die aufzubringenden Materialien auf einem GaAs-Substrat aufgedampft werden. Durch eine geringe Gitterfehlanpassung zwischen

[1] Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation

Substrat und wachsendem Kristall, der die Quantenpunktstruktur bildet, kommt es zum Stranski-Krastanov-Wachstum. Bei diesem übernimmt der wachsende Kristall zunächst die Gitterabstände des Substrats. Dies führt zwar zu Spannungen, ist aber für geringe Schichtdicken energetisch günstiger, als zusätzliche Oberfläche aufzubauen, die aufgrund der offenen Bindungen ungünstig ist. So kommt es bei geringen Schichtdicken zu einem Schicht-für-Schicht-Wachstum, wobei die Benetzungsschicht entsteht.

Mit zunehmender Schichtdicke nehmen die Spannungen allerdings zu, so dass es ab einer kritischen Dicke energetisch günstiger ist, Inseln zu bilden, da diese ein Relaxation des Kristallgitters ermöglichen. Dabei verteilen sich diese Inseln, die die Quantenpunkte darstellen, relativ homogen, da sich die während des Wachstums an der Oberfläche beweglichen Atome bevorzugt an schon vorhandene Inseln setzen, so dass in der Umgebung einer vorhandenen Insel weniger bewegliche Atome vorliegen und somit die Bildung einer Insel nahe einer anderen Insel unwahrscheinlich ist. Daher spricht man von einem selbstorganisierten Wachstum. Nach der Entstehung der Quantenpunkte wird der Wachstumsprozess mit dem Material des Substrats fortgesetzt, so dass die Quantenpunktstruktur im Substratmaterial eingeschlossen wird. Dabei lassen sich die Eigenschaften der gewachsenen Quantenpunkte wie Größe, In-Konzentration oder Dichte auf der Benetzungsschicht und damit deren elektronische und optische Eigenschaften über Wachstumsparameter wie Temperatur oder Zusammensetzung und Flussmenge des aufzubringenden Materials in gewissen Grenzen verändern.

Oszillatormodell für InGaAs-Quantenpunkte

Gemäß dem Bloch-Theorem [34] wird eine elektronische Wellenfunktion in einem translationsinvarianten Kristall in erster Näherung als Produkt aus einer einhüllenden ebenen Welle $e^{i\mathbf{kr}}$ und einem gitterperiodischen Bloch-Faktor $u(\mathbf{r})$ dargestellt. Dies gilt ebenfalls in der betrachteten InGaAs Nanostruktur, wobei sich hier allerdings für die einhüllenden Funktionen keine ebenen Wellen ergeben, da die Translationssymmetrie gebrochen ist.

Für die Benetzungsschicht verbleibt allerdings die Translationssymmetrie in der Wachstumsebene, sofern man davon ausgeht, dass die Quantenpunkte homogen auf dieser Schicht verteilt sind, also nicht von einzelnen Quantenpunkten sondern von einer homogenen Dichte von Punkten ausgegangen wird. Es bietet sich daher an, die Zustände der Benetzungsschicht als Produkt einer Wellenfunktion $\xi(z)$ in Wachstumsrichtung z und ebenen Wellen $\phi(\mathbf{r}_{||})$ in der zu z senkrechten und translationsinvarianten Ebene darzustellen. Durch Anwendung der Einhüllendennäherung (Envelope-Function-Approximation [33]), bei der die Bloch-Faktoren der einzelnen Zustände durch einen festen Bloch-Faktor genähert werden, erhält man

$$\Phi(\mathbf{r}) = \phi(\mathbf{r}_{||})\,\xi(z)\,u(\mathbf{r}) \ , \tag{2.1}$$

wobei $\mathbf{r}_{||}$ die Projektion von $\mathbf{r}$ auf die Wachstumsebene ist. Auch die lokalisierten Quantenpunktzustände lassen sich näherungsweise als solche Produkte darstellen, wobei hier die Translationssymmetrie in allen Richtungen gebrochen ist.

Ferner führt die Einhüllendennäherung dazu, dass die Erwartungswerte und Wechselwirkungsmatrixelemente dieser Zustände nur schwach von der genauen Form des Bloch-

Faktors abhängen und dieser näherungsweise durch eine Konstante dargestellt werden kann, die über die Normierung der übrigen Bestandteile berücksichtigt wird. Im Folgenden wird dieser daher nicht mehr betrachtet.

In Wachstumsrichtung sind die Ladungsträger durch die deutlich kleinere Bandlücke des InGaAs der Benetzungsschicht und der Quantenpunkte gegenüber dem umliegenden GaAs eingeschlossen, was näherungsweise durch einen Potentialtopf beschrieben werden kann. Nimmt man weiter vereinfachend ein unendlich großes Potential außerhalb der Benetzungsschicht und der Quantenpunkte an, erhält man für einen Potentialtopf der Breite L

$$\xi^{\infty}(z) = \sqrt{\frac{2}{L}} \sin\left(\frac{n\pi}{L} z\right) , \tag{2.2}$$

mit der Quantenzahl $n = 1, 2, 3, ...$ Für die elektronischen und optischen Eigenschaften eines Halbleiters sind nur die Zustände nahe der Bandlücke interessant, da weit von diesem entfernt keinerlei Streuung stattfinden kann, weil entweder alle Zustände besetzt oder unbesetzt sind. Das hier untersuchte InGaAs kann daher in guter Näherung durch ein Valenzband und ein Leitungsband beschrieben werden. Es wird daher nur der Grundzustand $n = 1$ betrachtet.

In der Benetzungsschicht kann das Einschlusspotential der linsenförmigen Quantenpunkte in guter Näherung als harmonisch angenommen werden (vergl. Abb. 2.5). So wurde in Ref. [4] gezeigt, dass die Wellenfunktionen und Energieeigenwerte von linsenförmigen Quantenpunkte sehr gut mit denen eines zweidimensionalen harmonischen Oszillators übereinstimmen. Diese sind aus der Standardliteratur [18] bekannt und lauten für die zwei energetisch niedrigsten gebundenen Zustände mit den Drehimpulsquantenzahlen $m = -1, 0, 1$ für einen Quantenpunkt am Ort $\mathbf{R}$:

$$\begin{aligned} \phi_{m=0,\mathbf{R}}\left(\mathbf{r}_{||}\right) &= \frac{\beta}{\sqrt{\pi}} e^{-\frac{\beta^2 \left|\mathbf{r}_{||} - \mathbf{R}\right|^2}{2}} , \\ \phi_{m=\pm1,\mathbf{R}}\left(r_{||}\right) &= \phi_{m=0,\mathbf{R}}\left(\mathbf{r}_{||}\right) \cdot \beta \left|\mathbf{r}_{||} - \mathbf{R}\right| e^{\pm i\Phi} , \end{aligned} \tag{2.3}$$

wobei Φ der Winkel von $\mathbf{r}_{||} - \mathbf{R}$, der zum Quantenpunkt relativen Position auf der Benetzungsschicht, ist. Für die Energieeigenwerte des Hamilton-Operators des zweidimensionalen harmonischen Oszillators gilt

$$E_m = (|m| + 1) \frac{\hbar^2 \beta^2}{\mu} \tag{2.4}$$

mit der effektiven Masse μ. In Analogie zur Atomphysik wird der Grundzustand $m = 0$ als s-Zustand und der erste angeregte Zustand $m = \pm 1$ als p-Zustand bezeichnet. Die Energiedifferenz ΔE dieser Zustände wird dabei vom Oszillatorparameter β bestimmt und ist aufgrund der größeren effektiven Masse μ für die Löcher kleiner als bei den Elektronen.

In der zweidimensionalen, homogenen Benetzungsschicht sind die Zustände durch ebene Wellen

$$\phi^0_{\mathbf{k}}\left(\mathbf{r}_{||}\right) = \frac{1}{\sqrt{A}} e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}_{||}} \tag{2.5}$$

gegeben, wobei $\mathbf{k}$ der Wellenvektor und A die Fläche in der Wachstumsebene ist. Diese Zustände sind zwar zueinander orthogonal, aber nicht zu den Quantenpunktzuständen (siehe Gl. (2.3)), so dass diese keine orthogonale Basis für das gesamte System darstellen. Daher werden für die späteren Rechnungen diese ebenen Wellen zu den Quantenpunktzuständen orthogonalisiert, wobei die OPW[2]-Methode genutzt wird, die im Anhang (A) vorgestellt wird.

2.3 InGaN-Quantenpunkte

Nitride zeichnen sich durch einen großen Bereich möglicher Emissionsfrequenzen [77, 78, 79] und starke intrinsische elektrische Felder aus. Diese Felder bewirken eine Verringerung der Dipolstärke für die Rekombination der Ladungsträger, was sich negativ auf die Effizienz optoelektronischer Anwendungen auswirkt. In Kap. 9.1 wird die Wirkung der Coulomb-Wechselwirkung auf die optischen Spektren der InGaN-Quantenpunkte ermittelt. Insbesondere werden Quantenpunkte mit verschiedenen Orientierungen bezüglich der Felder untersucht.

Bildung von InGaN-Quantenpunkten durch spinodale Entmischung

Im Gegensatz zum zuvor betrachteten InGaAs findet bei InGaN kein Stranski-Krastanov-Wachstum statt, da sich die Gitterkonstanten von InN und GaN zu stark unterscheiden. Ein Modell zur Bildung der Quantenpunkte in diesem Materialsystem liefern beispielsweise Tessarek et al. [122], das im Folgenden skizziert wird.

Nach diesem Modell bilden sich InGaN-Quantenpunkte mit niedrigem In-Anteil durch eine spinodale Entmischung. Unterhalb einer kritischen Temperatur gibt es einen Bereich der Konzentration x, in dem $\mathrm{In}_x\mathrm{Ga}_{1-x}\mathrm{N}$ nicht stabil ist und der mit fallender Temperatur größer wird. Wird also eine Schicht $\mathrm{In}_x\mathrm{Ga}_{1-x}\mathrm{N}$ bei hohen Temperaturen auf GaN aufgebracht und danach die Temperatur abgesenkt, wird die Schicht bei entsprechendem x instabil und es findet eine Phasenseparation in In-reiche und In-arme, stabile Gebiete statt. Ferner ist von Bedeutung, dass sich der instabile Bereich mit zunehmender Verspannung des $\mathrm{In}_x\mathrm{Ga}_{1-x}\mathrm{N}$ zu größeren x verschiebt. Die spinodale Entmischung in InGaN wird beispielsweise in Ref. [47] beschrieben.

Bei hohen Indiumkonzentrationen kommt es zu Volmer-Weber-Wachstum [68], bei dem sich große Strukturen bilden, was durch die hohe Mobilität des In-reichen Materials begünstigt wird. Dagegen ist die Mobilität der In-armen Gebilde klein. Durch den Wegfall des In-reichen Materials können diese teilweise relaxieren, wobei sich der instabile Bereich weiter zu niedrigen Konzentrationen verschiebt und die In-Konzentration weiter reduziert wird. Das separierte InN wandert zu den In-reichen Strukturen. Es verbleiben kleine In-arme Quantenpunkte und große In-reiche Strukturen auf der Oberfläche. Beim Überwachsen mit GaN lösen sich die In-reichen Strukturen auf und bilden einen breiten Quantenfilm geringer Konzentration. Die In-armen Quantenpunkte zeigen bei entsprechenden Wachstumsbedingungen eine grüne bis blaue Emission [122].

[2] orthogonalized plane waves

Tight-Binding-Modell

Entgegen dem InGaAs-Quantenpunktsystem lassen sich InGaN-Quantenpunktsystem nicht adäquat durch ein Oszillatormodell beschreiben. Zur Modellierung bietet sich hier ein empirisches Tight-Binding-Modell [74, 120] oder ein $k \cdot p$-Ansatz [64, 92] an. Verfahren wie Dichtefunktionaltheorie [86] sind dagegen aufgrund des enormen numerischen Aufwandes nicht geeignet, Quantenpunkte der betrachteten Größe zu modellieren.

Bei $k \cdot p$-Rechnungen wird die Bandstruktur am Γ-Punkt durch eine Störungsreihe genähert. Da es sich dabei um eine Kontinuumsmethode handelt, können $k \cdot p$-Rechnungen auf verschiedenen Skalen durchgeführt werden, was es ermöglicht bei entsprechend kleiner werdender Auflösung größere Strukturen mit dem gleichen Aufwand zu berechnen. Dagegen verwendet man beim Tight-Binding eine diskrete Basis (atomare Positionen oder Bravais-Gitter), so dass der Aufwand für größere Strukturen zunimmt. Vorteilhaft ist dagegen, dass sich mit diesem Ansatz die Bandstruktur abseits des Γ-Punktes deutlich besser beschreiben lässt, was insbesondere bei hoch angeregten Quantenpunktzuständen, wie sie in Kap. 9 benötigt werden, zum Tragen kommen kann. Die dort verwendeten Zustände der InGaN-Quantenpunkt-Systeme basieren daher auf einem empirischen Tight-Binding-Verfahren und wurden von Stefan Barthel entsprechend Ref. [74] berechnet.

Tight-Binding-Rechnungen basieren auf der Grundannahme, dass die Elektronen in einem Festkörper weiterhin stark an die Gitterionen gebunden sind. In einzelnen Atomen ergeben sich für die Elektronen lokalisierte Orbitale. In einem Festkörper können sich dagegen insbesondere benachbarte Atome beeinflussen. Dies wird im Rahmen des Tight-Binding-Verfahrens als Störung behandelt. Als Basis für dieses Problem bieten sich Wannier-Zustände $|nR\rangle$ an, da diese entgegen den Atomorbitalen orthonormal sind, wobei n das Orbital und R das jeweilige Atom beschreibt. Man erhält allgemein den Hamiltonoperator

$$H = \sum_{nR} E_{nR} \left|nR\right\rangle \left\langle nR\right| + \sum_{nn'RR'} t_{nn'RR'} \left|nR\right\rangle \left\langle n'R'\right| \ , \tag{2.6}$$

wobei der erste Term die Eigenenergien E_{nR} der Wannier-Zustände und der zweite Term die Hoppingelemente $t_{nn'RR'}$ wiedergibt. Diese beschreiben den Überlapp und damit die Übergangsrate zwischen zwei Wannier-Zuständen. Dabei führt die starke Lokalisierung dazu, dass lediglich für nah zusammenliegende Atome $t_{nn'RR'}$ merkbare Beiträge liefert, so dass hier lediglich Hoppingelemente für nächste und übernächste Nachbaratome berücksichtigt werden.

Die Eigenzustände des Hamiltonoperators stellen die Zustände des Quantenpunktsystems dar. Zur Lösung dieses Eigenwertproblems ist keine Kenntnis der Wannier-Zustände erforderlich, sofern E_{nR} und $t_{nn'RR'}$ bekannt sind. Diese Parameter können entweder durch andere Rechnungen oder empirisch durch Fitten an experimentell bekannte Bandstrukturen bestimmt werden. Statt an jedem Atom Orbitale anzusetzen, kann man auch ein effective bond-orbital model (EBOM) [57] benutzen, bei dem stattdessen effektive Orbitale an Gitterplätzen des Bravais-Gitters angesetzt werden, die die gesamte Einheitszelle beschreiben. Aufgrund der kleineren Basis lässt sich das Eigenwertproblem dabei mit weniger Aufwand lösen. Außerdem lassen sich hier die benötigten Parameter auf $k \cdot p$-Parameter zurückführen. Für die hier untersuchten Systeme wurden G_0W_0 Parameter aus Ref. [74, 133] verwendet, die die Bandstruktur für das Volumenmaterial über die gesamte

Brillouin-Zone gut beschreiben. Dabei reicht es aus, nur die Hoppingelemente zwischen Nachbarn und übernächsten Nachbarn zu berücksichtigen, und es wird eine sp^3-Basis verwendet, so dass an jedem Gitterplatz vier Orbitale vorliegen.

Eine weitere Herausforderung stellen die starken Polarisationspotentiale in Nitridquantenpunkten dar. Diese wurden von Oliver Marquardt durch Minimierung der elastischen Energie im Quantenpunktsystem und anschließender Lösung der Poisson-Gleichung bestimmt. Für Details zu dieser Rechnung siehe Ref. [62]. Dieses Potential wird unter der Annahme, dass dies der dominante Beitrag ist, entsprechend der central-cell correction [93, 120] als lokaler Beitrag $\sum_{nR} P_R \left|nR\right\rangle \left\langle nR\right|$ zum Tight-Binding-Hamiltonian (2.6) hinzu gefügt. Des Weiteren werden für die jeweiligen Gitterplätze entsprechend der Struktur des Systems InN- oder GaN-Parameter verwendet. Die Quantenpunktzustände erhält man durch Lösung des zum Hamiltonian gehörenden Eigenwertproblems. Dabei wird die Struktur auf einer Superzelle, die die Symmetrie des untersuchten Quantenpunktes erhält, mit periodischen Randbedingungen modelliert.

Da sich derartige Eigenwertprobleme aufgrund ihrer Größe nicht mehr vollständig lösen lassen, wird ein Verfahren zur Bestimmung der niedrigsten Eigenwerte verwendet. Dabei wird die folded-spectrum Methode [127] genutzt, die das Lösungsspektrum um einen festzulegenden Punkt durch Quadrierung faltet, also Energien unterhalb dieses Punktes oberhalb abbildet. Man erhält durch dieses Verfahren die Zustände nahe einer Bandkante, indem man durch Faltung knapp unterhalb der Bandkante alle Zustände mit kleineren Energien zu höheren Energien schiebt. Ferner wird die schwache Spin-Orbit-Aufspaltung von etwa 5 meV in InN [125] vernachlässigt.

Die Zustände der Benetzungsschicht werden analog zum Modell für InGaAs (2.2) als Produkt einer Wellenfunktion $\xi(z)$ in Wachstumsrichtung z und ebenen Wellen (2.5) in der Schichtebene gebildet. Die Zustände $\xi(z)$ werden entsprechend den Quantenpunkte mittels Tight-Binding-Rechnung (2.6) bestimmt, wobei die Zustände entsprechend dem Ansatz für die Schichtebene in dieser fortgesetzt werden. Dadurch unterscheiden sich im Gegensatz zum Oszillatormodell die Zustände in Wachstumsrichtung für unterschiedliche Wellenvektoren. Um die Orthogonalität zu den Quantenpunktzuständen zu gewährleisten wird wie für das InGaAs das OPW-Schema (A.8) angewendet.

Teil I

Vielteilchentheorie

3 Vielteilchensysteme

Halbleiterstrukturen stellen Vielteilchensysteme dar, bei denen aufgrund der Anzahl der wechselwirkenden Teilchen ($10^{23}/\mathrm{cm}^3$) eine direkte Lösung der Schrödingergleichung praktisch nicht durchführbar ist. Eine vereinfachende Beschreibung ist die zweite Quantisierung, bei der Besetzungen und nicht einzelne Teilchen betrachtet werden. Dadurch verzichtet man zwar auf Informationen über die Eigenschaften einzelner Teilchen. Da diese jedoch ununterscheidbar sind, verfügt man weiterhin über alle Informationen des Systems.

Bei der Berechnung der zeitlichen Entwicklung kommt es in einem Vielteilchensystem unweigerlich zu einem Hierarchieproblem. So koppeln die Bewegungsgleichungen von Einteilchenerwartungswerten an Zweiteilchenerwartungswerte, deren Bewegungsgleichungen wiederum an Dreiteilchenerwartungswerte koppeln, und so weiter. Ein gängiger Ansatz zur Lösung derartiger Probleme ist Störungstheorie, auf der auch Fermis Goldene Regel [23, 24] basiert. Während sich dieser Ansatz für die Beschreibung von Streuung in einem Kontinuum eignet, erweist sich insbesondere die strikte Energieerhaltung als Problem bei der Beschreibung von diskreten Zuständen, wie sie in Quantenpunkten auftreten (vergleiche Kap. 7.4), oder bei der Beschreibung der Streuung an dispersionslosen Teilchen [102]. Ferner stellt die strikte Energieerhaltung bei schneller Dynamik, die beispielsweise bei kurzen und starken Pulsen auftritt (siehe Kap. 8), eine schlechte Näherung dar, da sich die Energieerhaltung erst mit der Zeit aufbaut. Somit ist ein störungstheoretischer Ansatz für die in dieser Arbeit untersuchten Probleme ungeeignet. Es wird daher im Folgenden die Methode der Nichtgleichgewichts-Greenschen Funktionen genutzt, die es ermöglicht Renormierungen und Kurzzeiteffekte konsistent zu beschreiben.

Diese Methode wurde maßgeblich von Martin, Schwinger [65], Kadanoff [46], Baym [8], Abrikosov [1] und Keldysh [48] entwickelt und seitdem auf verschiedene Probleme angewendet, siehe beispielsweise Ref. [12, 13, 21, 22, 35, 36, 37, 38, 39, 94]. Im Folgenden wird die Methode zusammenfassend und zielorientiert vorgestellt. Für weitergehende Informationen siehe Ref. [5, 51, 52, 54, 99].

Bei dieser Methode wird das Hierarchieproblem so umformuliert, dass man ein geschlossenes Gleichungssystem erhält. Ausgehend von der allgemeinen quantenstatistischen Beschreibung in Kap. 3.1 ergibt sich aus der Berechnung von beliebigen Einteilchen-Erwartungswerten die Definition der Einteilchen-Greenschen Funktionen in Kap. 3.2. Das Hierarchieproblem kann in dieser Darstellung mittels Funktionalableitungstechnik formal gelöst werden (Kap. 3.3) und als geschlossenes Gleichungssystem dargestellt werden, dessen praktische Lösbarkeit durch verschiedene Näherungen in Kap. 3.4 erreicht wird. Dabei wird zunächst von einer allgemeinen Zweiteilchenwechselwirkung ausgegangen. Aufgrund der selbstkonsistenten Beschreibung, werden die Vielteilcheneffekte in beliebiger Ordnung berücksichtigt. Dies schließt insbesondere auch Abschirmung mit ein, die implizit in dieser Formulierung enthalten ist. Um die Coulomb-Wechselwirkung besser beschreiben zu können, wird die Abschirmung in Kap. 3.3.2 in eine explizite Darstellung gebracht. In

den folgenden Kap. 4 und 5 wird dann konkret auf die Coulomb- und Elektron-Phonon-Wechselwirkung eingegangen.

3.1 Allgemeine quantenstatistische Beschreibung

Um die Eigenschaften eines Vielteilchensystems zu bestimmen, wird die Wirkung einer externen Störung auf das System ermittelt. Dementsprechend beinhaltet der Hamiltonoperator des betrachteten Systems neben dem wechselwirkungsfreien Anteil H_0 und dem wechselwirkenden Anteil H_{WW} eine explizit zeitabhängige externe Störung H_{ext},

$$H(t) = H_0 + H_{WW} + H_{\text{ext}}(t) \; . \tag{3.1}$$

Im Wechselwirkungsbild bezüglich $H_0 + H_{WW}$ lässt sich die Zeitentwicklung eines Zustands $|\Psi\rangle$ durch $H_{\text{ext}}(t)$ bestimmen,

$$|\Psi(t)\rangle = S(t, t_0)\, |\Psi(t_0)\rangle \; , \tag{3.2}$$

wobei für die Zeitentwicklungsoperatoren

$$S(t_1, t_2) = T\, e^{-\frac{i}{\hbar}\int_{t_2}^{t_1} dt'\; H_{\text{ext}}(t')} \tag{3.3}$$

die Relationen

$$S(t_1, t_2) = S^{-1}(t_2, t_1) = S^{\dagger}(t_2, t_1) \; , \tag{3.4}$$

$$S(t_1, t_2) = S(t_1, t_3) S(t_3, t_2) \tag{3.5}$$

gelten und T der Zeitordnungsoperator ist. Für die Zeitentwicklung der Operatoren gilt entsprechend

$$A_D(t) = U^{\dagger}(t, t_0) A_S U(t, t_0) \quad \text{mit} \quad U(t, t_0) = e^{-\frac{i}{\hbar}(H_0 + H_{WW})(t - t_0)} \; . \tag{3.6}$$

Für den Erwartungswert

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

eines Operators A bezüglich des Dichteoperators ρ erhält man im Wechselwirkungsbild unter Ausnutzung der Eigenschaft (3.5)

$$\langle A(t) \rangle = Sp\,\{\rho_D S(-\infty, \infty) T\,[S(\infty, -\infty) A_D(t)]\} \; , \tag{3.8}$$

wobei ρ_D der Dichteoperator im Wechselwirkungsbild ist. Allerdings liegt keine einheitliche Zeitordnung vor, da der linke Teil dieses Erwartungswertes antizeitgeordnet und der rechte zeitgeordnet ist. Eine Berechnung mit quantenfeldtheoretischen Methoden, die eine einheitliche Zeitordnung voraussetzen [84], erfordert daher eine Umformulierung des Problems hin zu einer einheitlichen Zeitordnung. Dies ist im Gleichgewichtsfall leicht möglich.

Gleichgewichtsfall

Wählt man das Wechselwirkungsbild für ein System im Gleichgewicht bei $T = 0$ K ohne externe Störung derart, dass H_{WW} die Zeitentwicklung der Zustände und H_0 die der Operatoren beschreibt, bewegt sich das System gemäß dem Theorem von Gell-Mann und Low [31] durch adiabatisches Ein- und Ausschalten der Wechselwirkung

$$H_{WW} \to H_{WW} e^{-\nu|t|} \quad \text{mit} \quad \nu \to +0 \tag{3.9}$$

nicht aus dem Grundzustand $|\Phi_0\rangle$ heraus. Die Wechselwirkung bewirkt lediglich eine Phase. In diesem Fall lässt sich daher die benötigte Zeitordnung einfach herstellen, da man für den Erwartungswert nur Beiträge vom Grundzustand erhält,

$$\langle A(t)\rangle = \langle \Phi_0 | S(-\infty,\infty) T\left[S(\infty,-\infty) A_D(t)\right] | \Phi_0\rangle \ , \tag{3.10}$$

so dass man durch Einschieben der Identität und Ausnutzen der Eigenschaft (3.4)

$$\begin{aligned} \langle A(t)\rangle &= \langle \Phi_0 | S(-\infty,\infty) | \Phi_0\rangle \langle \Phi_0 | T\left[S(\infty,-\infty) A_D(t)\right] | \Phi_0\rangle \\ &= \frac{\langle \Phi_0 | T\left[S(\infty,-\infty) A_D(t)\right] | \Phi_0\rangle}{\langle \Phi_0 | S(\infty,-\infty) | \Phi_0\rangle} \\ &= \frac{Sp\left\{\rho_D T\left[S(\infty,-\infty) A_D(t)\right]\right\}}{Sp\left\{\rho_D S(\infty,-\infty)\right\}} \end{aligned} \tag{3.11}$$

erhält.

Gemäß Ref. [25, 61] lässt sich auch für Systeme im thermischen Gleichgewicht bei Temperaturen über 0 K eine einheitliche Zeitordnung erreichen. Da die in dieser Arbeit untersuchten optischen Anregungen jedoch deutlich von einem Gleichgewicht abweichen, wird im Folgenden mittels der Keldysh-Zeitkontur eine Formulierung, die kein Gleichgewicht erfordert, eingeführt.

3.2 Greensche Funktionen auf der Keldysh-Zeitkontur

Um auch für Systeme außerhalb eines Gleichgewichts eine einheitliche Zeitordnung zu erhalten, kann man die Keldysh-Zeit $\underline{t}$ einführen, die bezüglich einer Zeitkontur geordnet ist [48, 111], welche in Abb. 3.1 dargestellt ist. Dabei ist $\underline{t}$ auf dem oberen Zweig t_+ bezüglich der physikalischen Zeit t zeitgeordnet und auf dem unteren Zweig t_- antizeitgeordnet. Ferner sind Zeiten auf t_+ kleiner als Zeiten auf t_-.

Erwartungswerte im Nichtgleichgewicht

$$\langle A(\underline{t})\rangle = \frac{Sp\left\{\rho_D T_C\left[S_C(\infty,-\infty) A(\underline{t})\right]\right\}}{Sp\left\{\rho_D S_C(\infty,-\infty)\right\}} \tag{3.12}$$

können so analog zum Gleichgewichtsfall (3.11) geschrieben werden. Der Zeitordnungsoperator bezüglich der Keldysh-Zeit ist T_C und der Zeitentwicklungsoperator S_C. Dies

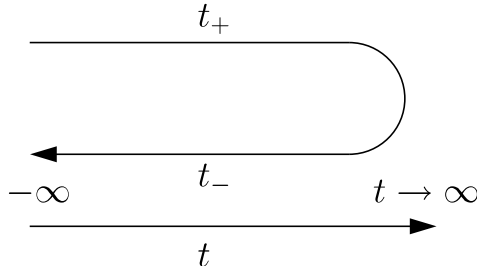


Abb. 3.1: Keldysh-Zeitkontur mit den Zeitzweigen t_+ und t_- im Vergleich zur physikalischen Zeit t. Bei der Keldysh-Zeit handelt es sich um ein mathematisches Hilfsmittel zur besseren Darstellung des physikalischen Problems. Im physikalischen Grenzfall müssen alle Größen unabhängig vom Zeitzweig sein.

ermöglicht, eine Nichtgleichgewichts-Greensche Funktion

$$\begin{aligned} i\hbar G\left(\underline{1},\underline{2}\right) &= \frac{Sp\left\{\rho_D T_C\left[S_C(\infty,-\infty)\Psi\left(\underline{1}\right)\Psi^\dagger\left(\underline{2}\right)\right]\right\}}{Sp\left\{\rho_D S_C(\infty,-\infty)\right\}} \\ &= \frac{\left\langle T_C\left[S_C(\infty,-\infty)\Psi\left(\underline{1}\right)\Psi^\dagger\left(\underline{2}\right)\right]\right\rangle}{\left\langle S_C(\infty,-\infty)\right\rangle} \\ &= \left\langle\left\langle T_C\left[\Psi\left(\underline{1}\right)\Psi^\dagger\left(\underline{2}\right)\right]\right\rangle\right\rangle \end{aligned} \tag{3.13}$$

auf der Keldysh-Kontur C zu definieren. Dabei beinhalten die Argumente $\underline{1},\underline{2}$ neben der Keldysh-Zeit $\underline{t}$ auch sämtliche Quantenzahlen. Im Folgenden wird stets von Nichtgleichgewichts-Greenschen Funktion ausgegangen.

Bezüglich der Zweige der Keldysh-Zeitkontur lässt sich die Greensche Funktion als Keldysh-Matrix

$$G\left(\underline{1},\underline{2}\right) = \begin{pmatrix} G\left(1_+,2_+\right) & G\left(1_+,2_-\right) \\ G\left(1_-,2_+\right) & G\left(1_-,2_-\right) \end{pmatrix} \tag{3.14}$$

schreiben, wobei sich die Diagonale aus kausaler und antikausaler Greensche Funktion

$$G\left(1_+,2_+\right) = \frac{1}{i\hbar}\left\langle\left\langle T\left[\Psi\left(1_+\right)\Psi^\dagger\left(2_+\right)\right]\right\rangle\right\rangle = G(1,2)\,, \tag{3.15}$$

$$G\left(1_-,2_-\right) = \frac{1}{i\hbar}\left\langle\left\langle \widetilde{T}\left[\Psi\left(1_-\right)\Psi^\dagger\left(2_-\right)\right]\right\rangle\right\rangle = \widetilde{G}(1,2) \tag{3.16}$$

zusammensetzt. Dabei ist $\widetilde{T}$ der Antizeitordnungsoperator und die Argumente $1,2$ beinhalten im Gegensatz zu $\underline{1},\underline{2}$ die physikalische Zeit. Die Indizes $+,-$ bezeichnen den zugehörigen Zeitzweig. Die nicht-diagonalen Elemente

$$G\left(1_+,2_-\right) = -\frac{1}{i\hbar}\left\langle\left\langle\left[\Psi\left(2_-\right)\Psi^\dagger\left(1_+\right)\right]\right\rangle\right\rangle = G^<(1,2)\,, \tag{3.17}$$

$$G\left(1_-,2_+\right) = \frac{1}{i\hbar}\left\langle\left\langle\left[\Psi\left(1_-\right)\Psi^\dagger\left(2_+\right)\right]\right\rangle\right\rangle = G^>(1,2) \tag{3.18}$$

werden als Propagatoren bezeichnet. Da hier jeweils Zeiten unterschiedlicher Zweige auftreten, ist die Zeitordnung von den physikalischen Zeiten unabhängig, weshalb keine Zeitordnungsoperatoren auftreten.

Betrachtet man den physikalischen Fall, in dem das System unabhängig vom Zeitzweig ist, also $\Psi(1_+) = \Psi(1_-)$ gelten muss, sind die einzelnen Elemente nicht unabhängig voneinander. So folgt direkt aus den Definitionen der Greenschen Funktionen im nicht instantanen Fall ($t_1 \neq t_2$)

$$G(1,2) = \Theta(t_1 - t_2)G^{>}(1,2) + \Theta(t_2 - t_1)G^{<}(1,2)\ , \tag{3.19}$$

$$\widetilde{G}(1,2) = \Theta(t_2 - t_1)G^{>}(1,2) + \Theta(t_1 - t_2)G^{<}(1,2)\ . \tag{3.20}$$

Es reicht also aus, lediglich zwei Funktionen zu betrachten. Aufgrund der im Folgenden erläuterten Aussagen über Besetzung und spektrale Eigenschaften bieten sich hierfür $G^{<}$ und die retardierte Greensche Funktion G^R an. Diese erhält man zusammen mit der avancierten Greensche Funktion G^A durch Linearkombination der Propagatoren

$$G^R(1,2) = \quad \Theta(t_1 - t_2)\left[G^{>}(1,2) - G^{<}(1,2)\right]\ , \tag{3.21}$$

$$G^A(1,2) = -\,\Theta(t_2 - t_1)\left[G^{>}(1,2) - G^{<}(1,2)\right]\ . \tag{3.22}$$

Dabei gelten die Relationen

$$\left[G^{\lessgtr}(1,2)\right]^* = G^{\gtrless}(2,1)\ , \tag{3.23}$$

$$\left[G^R(1,2)\right]^* = G^A(2,1)\ . \tag{3.24}$$

Bedeutung der Greenschen Funktionen

Die bezüglich der Zeit t diagonalen Propagatoren $G^{\lessgtr}_{\alpha,\beta}(t,t)$ entsprechen abgesehen von Vorfaktoren den Elementen der Dichtematrix. So lassen sich durch Entwicklung der Greenschen Funktionen

$$G\left(\underline{1},\underline{2}\right) = \sum_{\alpha\beta} \Phi_\alpha G_{\alpha,\beta}\left(\underline{t}_1,\underline{t}_2\right)\Phi^*_\beta \tag{3.25}$$

nach Einteilchen-Eigenfunktionen Φ_α Besetzungen bzw. Nicht-Besetzungen

$$i\hbar G^{<}_{\alpha,\alpha}(t,t) = \quad -\,f_\alpha(t)\ , \tag{3.26}$$

$$i\hbar G^{>}_{\alpha,\alpha}(t,t) = 1 - f_\alpha(t) \tag{3.27}$$

sowie Polarisationen (Übergangsamplituden)

$$i\hbar G^{<}_{\alpha,\beta}(t,t) = i\hbar G^{>}_{\alpha,\beta}(t,t) = -\Psi_{\alpha\beta}(t) \tag{3.28}$$

durch Propagatoren ausdrücken. Die bezüglich der Zeit t nicht-diagonalen Propagatoren $G^{\lessgtr}_{\alpha,\beta}(t,t')$ lassen sich analog als Wahrscheinlichkeitsamplitude des Übergangs eines Teilchens aus dem Zustand α zur Zeit t in den Zustand β zur Zeit t' bzw. als Wahrscheinlichkeitsamplitude für den Umkehrprozess verstehen. Die retardierten Greenschen Funktionen erlauben direkt eine Aussage über die spektralen Eigenschaften des Systems. Auf diese wird in Kap. 6 genauer eingegangen.

3.3 Keldysh-Dynamik

Die Greenschen Funktionen und somit die Besetzungen und die spektralen Eigenschaften des Systems werden über ihre Dynamik bestimmt. Dazu wird die Greensche Funktion (3.13) in einer alternativen Form

$$i\hbar G\left(\underline{1},\underline{2}\right)=\Theta\left(\underline{t}_1,\underline{t}_2\right)\left\langle\left\langle\Psi\left(\underline{1}\right)\Psi^{\dagger}\left(\underline{2}\right)\right\rangle\right\rangle-\Theta\left(\underline{t}_2,\underline{t}_1\right)\left\langle\left\langle\Psi^{\dagger}\left(\underline{2}\right)\Psi\left(\underline{1}\right)\right\rangle\right\rangle \tag{3.29}$$

dargestellt, die ohne Zeitordnungsoperatoren auskommt, wobei die Theta-Funktion für Keldysh-Zeiten

$$\Theta\left(\underline{t}_1,\underline{t}_2\right)=\delta\left(n_1,-\right)+n_1\delta\left(n_1,n_2\right)\Theta\left(t_1-t_2\right) \tag{3.30}$$

mit den Ableitungen

$$\frac{\partial}{\partial t_1}\Theta\left(\underline{t}_1,\underline{t}_2\right)=-\frac{\partial}{\partial t_2}\Theta\left(\underline{t}_1,\underline{t}_2\right)=\delta\left(\underline{t}_1,\underline{t}_2\right)=n_1\delta\left(n_1,n_2\right)\delta\left(t_1,t_2\right) \tag{3.31}$$

genutzt wird und $n_1\in\{+,-\}$ den Zeitzweig von $\underline{1}$ angibt.

Um nun eine Bewegungsgleichung für die Greensche Funktion aufzustellen, wird zunächst die Zeitentwicklung der Feldoperatoren mithilfe der Heisenberg-Bewegungsgleichung

$$i\hbar\frac{d}{d\underline{t}}\Psi\left(\underline{t}\right)=\left[\Psi\left(\underline{t}\right),H_0+H_{WW}\right] \tag{3.32}$$

gebildet. Der Hamiltonoperator setzt sich dabei aus dem wechselwirkungsfreien Anteil H_0 und dem wechselwirkenden Anteil H_{WW} zusammen. Für den wechselwirkungsfreien Anteil erhält man allgemein

$$H_0(\underline{t}_1)=\int d\underline{x}_1\;\Psi^{\dagger}\left(\underline{1}\right)h\left(\underline{1}\right)\Psi\left(\underline{1}\right) \tag{3.33}$$

mit

$$h\left(\underline{1}\right)=-\frac{\hbar^2}{2m}\Delta_1\;, \tag{3.34}$$

wobei $\underline{x}_1$ die Quantenzahlen und $\underline{t}_1$ die Zeit von $\underline{1}$ bezeichnet. Der wechselwirkende Anteil

$$H_{WW}(\underline{t}_1)=\frac{1}{2}\int d\underline{x}_1 d\underline{2}\;\Psi^{\dagger}\left(\underline{1}\right)\Psi^{\dagger}\left(\underline{2}\right)V\left(\underline{1},\underline{2}\right)\Psi\left(\underline{2}\right)\Psi\left(\underline{1}\right)\;. \tag{3.35}$$

sei eine Zweiteilchenwechselwirkung, die durch $V\left(\underline{1},\underline{2}\right)$ beschrieben wird.

Daraus folgt für die Zeitentwicklung der Feldoperatoren

$$i\hbar\frac{\partial}{\partial t_1}\Psi\left(\underline{1}\right)=h\left(\underline{1}\right)\Psi\left(\underline{1}\right)+\int d\underline{2}\;V\left(\underline{1},\underline{2}\right)\Psi^{\dagger}\left(\underline{2}\right)\Psi\left(\underline{2}\right)\Psi\left(\underline{1}\right)\;, \tag{3.36}$$

$$-i\hbar\frac{\partial}{\partial t_1}\Psi^{\dagger}\left(\underline{1}\right)=h\left(\underline{1}\right)\Psi^{\dagger}\left(\underline{1}\right)+\int d\underline{2}\;V\left(\underline{1},\underline{2}\right)\Psi^{\dagger}\left(\underline{1}\right)\Psi^{\dagger}\left(\underline{2}\right)\Psi\left(\underline{2}\right)\;, \tag{3.37}$$

so dass man für die Zeitentwicklung der Einteilchen-Greensche Funktion (3.29)

$$\begin{aligned} i\hbar\frac{\partial}{\partial t_1}G\left(\underline{1},\underline{2}\right) =& \delta\left(\underline{1},\underline{2}\right) + h\left(\underline{1}\right)G\left(\underline{1},\underline{2}\right) \\ &- \frac{1}{i\hbar}\int d\underline{3}\, V\left(\underline{1},\underline{3}\right)\left\langle\left\langle T_C\Psi\left(\underline{1}\right)\Psi\left(\underline{3}\right)\Psi^\dagger\left(\underline{3}^+\right)\Psi^\dagger\left(\underline{2}\right)\right\rangle\right\rangle \\ =& \delta\left(\underline{1},\underline{2}\right) + h\left(\underline{1}\right)G\left(\underline{1},\underline{2}\right) - i\hbar\int d\underline{3}\, V\left(\underline{1},\underline{3}\right)G\left(\underline{1},\underline{3},\underline{2},\underline{3}^+\right) \end{aligned} \tag{3.38}$$

erhält. Dabei ist die δ-Funktion mit Keldysh-Argumenten definiert als

$$\delta\left(\underline{1},\underline{2}\right) = \delta\left(\underline{t}_1,\underline{t}_2\right)\delta\left(\underline{x}_1,\underline{x}_2\right) \tag{3.39}$$

und $\underline{3}^+$ bezeichnet die gleichen Quantenzahlen wie $\underline{3}$ sowie eine infinitesimal spätere Keldysh-Zeit, um eine eindeutige Zeitordnung zu gewährleisten. Die Zeitentwicklung der Einteilchen-Greenschen Funktion ist von einer Zweiteilchen-Greensche Funktion

$$G\left(\underline{1},\underline{3},\underline{2},\underline{3}^+\right) = \frac{n_2 n_3}{\left(i\hbar\right)^2}\left\langle\left\langle T_C\Psi\left(\underline{1}\right)\Psi\left(\underline{3}\right)\Psi^\dagger\left(\underline{3}^+\right)\Psi^\dagger\left(\underline{2}\right)\right\rangle\right\rangle \tag{3.40}$$

abhängig, deren zeitliche Entwicklung wiederum von einer Dreiteilchen Greensche Funktion abhängt und so weiter. Dieses Hierarchieproblem wird im Folgenden mittels Funktionalableitungstechnik in ein geschlossenes Gleichungssystem umformuliert.

3.3.1 Funktionalableitungstechnik

Die Funktionalableitungstechnik erlaubt Zweiteilchen-Greensche Funktion durch Einteilchen-Greensche Funktion darzustellen, so dass das Hierarchieproblem formal gelöst werden kann. Dabei wird eine Selbstenergie Σ eingeführt, welche die betrachtete Wechselwirkung beschreibt. Dazu betrachtet man die Greenschen Funktionen

$$G\left(\underline{1},\underline{2}\right) = \frac{1}{i\hbar}\frac{\left\langle T_C\left[S_C\Psi\left(\underline{1}\right)\Psi^\dagger\left(\underline{2}\right)\right]\right\rangle}{\left\langle S_C\right\rangle}\ , \tag{3.41}$$

$$G\left(\underline{1},\underline{3},\underline{2},\underline{3}^+\right) = \frac{1}{\left(i\hbar\right)^2}\frac{\left\langle T_C S_C\Psi\left(\underline{1}\right)\Psi\left(\underline{3}\right)\Psi^\dagger\left(\underline{3}^+\right)\Psi^\dagger\left(\underline{2}\right)\right\rangle}{\left\langle S_C\right\rangle} \tag{3.42}$$

mit den Entwicklungsoperatoren

$$S_C = T_C e^{\frac{1}{i\hbar}\int_C d\underline{t}\, H_{\text{ext}}(\underline{t})} \tag{3.43}$$

und einer externen Störung

$$H_{\text{ext}}\left(\underline{t}\right) = \int d\underline{x_1}\, U_{\text{ext}}(\underline{1})\Psi^\dagger\left(\underline{1}\right)\Psi\left(\underline{1}\right) \tag{3.44}$$

als vom Potential der externen Störung U_{ext} abhängige Funktionale. Mit den entsprechenden Funktionalableitungen

$$\frac{\partial S_C}{\partial U_{\text{ext}}\left(\underline{1}\right)} = -\frac{1}{i\hbar}T_C S_C\Psi\left(\underline{1}\right)\Psi^\dagger\left(\underline{1}^+\right)\ , \tag{3.45}$$

$$\frac{\partial}{\partial U_{\text{ext}}\left(\underline{1}\right)}\frac{1}{\left\langle S_C\right\rangle} = \frac{1}{\left\langle S_C\right\rangle}G\left(\underline{1},\underline{1}^+\right) \tag{3.46}$$

lässt sich die Zweiteilchen Greensche Funktion

$$G\left(\underline{1},\underline{3},\underline{2},\underline{3}^{+}\right) = -\frac{\partial G\left(\underline{1},\underline{2}\right)}{\partial U_{\text{ext}}\left(\underline{3}\right)} + G\left(\underline{3},\underline{3}^{+}\right) G\left(\underline{1},\underline{2}\right) \tag{3.47}$$

durch Einteilchen Greensche Funktionen und eine Funktionalableitung ausdrücken. Dies liefert für die zeitliche Entwicklung der Einteilchen Greensche Funktion (3.38)

$$\begin{aligned} i\hbar\frac{\partial}{\partial t_1} G\left(\underline{1},\underline{2}\right) =& \delta\left(\underline{1},\underline{2}\right) + \left[h\left(\underline{1}\right) + U_{\text{ext}}\left(\underline{1}\right)\right] G\left(\underline{1},\underline{2}\right) \\ & - i\hbar \int d\underline{3}\, V\left(\underline{1},\underline{3}\right) G\left(\underline{3},\underline{3}^{+}\right) G\left(\underline{1},\underline{2}\right) \\ & + i\hbar \int d\underline{3}\, V\left(\underline{1},\underline{3}\right) \frac{\partial G\left(\underline{1},\underline{2}\right)}{\partial U_{\text{ext}}\left(\underline{3}\right)} \,. \end{aligned} \tag{3.48}$$

Die erste Zeile beschreibt neben der externen Störung den wechselwirkungsfreien Anteil. Die Wechselwirkung mit der Ladungsträgerdichte wird durch den zweiten Term dargestellt, wobei dieser Term bei der Coulomb-Wechselwirkung gerade dem Hartree-Anteil, also der klassischen Coulomb-Wechselwirkung entspricht [12, 99]. Dagegen werden über die Funktionalableitung alle weiteren Wechselwirkungsprozesse in beliebiger Ordnung beschrieben.

Um dies nun in ein geschlossenes Gleichungssystem umzuformen, definiert man über

$$i\hbar \int d\underline{3}\, V\left(\underline{1},\underline{3}\right) \left[\frac{\partial G\left(\underline{1},\underline{2}\right)}{\partial U_{\text{ext}}\left(\underline{3}\right)} - G\left(\underline{3},\underline{3}^{+}\right) G\left(\underline{1},\underline{2}\right)\right] = \int d\underline{3}\, \Sigma\left(\underline{1},\underline{3}\right) G\left(\underline{3},\underline{2}\right) \tag{3.49}$$

eine Selbstenergie Σ, die die Wechselwirkungen des Systems beschreibt. Dadurch erhält man für die Greensche Funktion

$$\left[i\hbar\frac{\partial}{\partial t_1} - h\left(\underline{1}\right) - U_{\text{ext}}\left(\underline{1}\right)\right] G\left(\underline{1},\underline{2}\right) - \int d\underline{3}\, \Sigma\left(\underline{1},\underline{3}\right) G\left(\underline{3},\underline{2}\right) = \delta\left(\underline{1},\underline{2}\right) \,. \tag{3.50}$$

Über

$$\int d\underline{3}\, G\left(\underline{1},\underline{3}\right) G^{-1}\left(\underline{3},\underline{2}\right) = \int d\underline{3}\, G^{-1}\left(\underline{1},\underline{3}\right) G\left(\underline{3},\underline{2}\right) = \delta\left(\underline{1},\underline{2}\right) \tag{3.51}$$

lässt sich eine inverse Greensche Funktion

$$G^{-1}\left(\underline{1},\underline{2}\right) = G_0^{-1}\left(\underline{1},\underline{2}\right) - \Sigma\left(\underline{1},\underline{2}\right) \tag{3.52}$$

definieren, wobei

$$G_0^{-1}\left(\underline{1},\underline{2}\right) = \left[i\hbar\frac{\partial}{\partial t_1} - h\left(\underline{1}\right) - U_{\text{ext}}\left(\underline{1}\right)\right] \delta\left(\underline{1},\underline{2}\right) \,, \tag{3.53}$$

die wechselwirkungsfreie inverse Greensche Funktion ist, wie aus Gl. (3.50) mit $\Sigma_0 = 0$ gemäß Gl. (3.51) folgt. So erhält man aus Gl. (3.50) mit $\int d\underline{1}\, G_0\left(\underline{4},\underline{1}\right)$ von links multipliziert die Dyson-Gleichung

$$G\left(\underline{1},\underline{2}\right) = G_0\left(\underline{1},\underline{2}\right) + \int d\underline{3}d\underline{4}\, G_0\left(\underline{1},\underline{3}\right) \Sigma\left(\underline{3},\underline{4}\right) G\left(\underline{4},\underline{2}\right) \,. \tag{3.54}$$

Für die Selbstenergie ergibt sich dabei

$$\begin{aligned}\Sigma\left(\underline{1},\underline{2}\right) =& i\hbar\int d\underline{3}d\underline{4}\; n_3 V\left(\underline{1},\underline{3}\right)\left[\frac{\partial G\left(\underline{1},\underline{4}\right)}{\partial U_{\text{ext}}\left(\underline{3}^{+}\right)} - G\left(\underline{3},\underline{3}^{+}\right) G\left(\underline{1},\underline{4}\right)\right] G^{-1}\left(\underline{4},\underline{2}\right)\\ =& -i\hbar\int d\underline{3}d\underline{4}\; n_3 V\left(\underline{1},\underline{3}\right) G\left(\underline{1},\underline{4}\right)\frac{\partial G^{-1}\left(\underline{4},\underline{2}\right)}{\partial U_{\text{ext}}\left(\underline{3}\right)}\\ &- i\hbar\int d\underline{3}\; n_3 V\left(\underline{1},\underline{3}\right) G\left(\underline{3},\underline{3}^{+}\right)\delta\left(\underline{1},\underline{2}\right)\end{aligned} \tag{3.55}$$

wobei für die Umformung partieller Integration angewendet wird. Mit Hilfe der Vertexfunktion

$$\Gamma\left(\underline{1},\underline{2},\underline{3}\right) = \frac{\partial G^{-1}\left(\underline{1},\underline{2}\right)}{\partial U_{\text{ext}}\left(\underline{3}\right)} \tag{3.56}$$

lässt sich die Selbstenergie (3.55) zu

$$\begin{aligned}\Sigma\left(\underline{1},\underline{2}\right) =& -i\hbar\int d\underline{3}d\underline{4}\; G\left(\underline{1},\underline{3}\right)\Gamma\left(\underline{3},\underline{2},\underline{4}\right) V\left(\underline{4},\underline{1}^{+}\right)\\ &- i\hbar\int d\underline{3}\; V\left(\underline{1},\underline{3}\right) G\left(\underline{3},\underline{3}^{+}\right)\delta\left(\underline{1},\underline{2}\right)\end{aligned} \tag{3.57}$$

weiter vereinfachen. Für die Vertexfunktion erhält man ferner mittels Gl. (3.52)

$$\begin{aligned}\Gamma\left(\underline{1},\underline{2},\underline{3}\right) =& -\delta\left(\underline{1},\underline{2}\right)\delta\left(\underline{1},\underline{3}\right) - \frac{\partial\Sigma\left(\underline{1},\underline{2}\right)}{\partial U_{\text{ext}}\left(\underline{3}\right)}\\ =& -\delta\left(\underline{1},\underline{2}\right)\delta\left(\underline{1},\underline{3}\right) - \int d\underline{4}d\underline{5}\;\frac{\partial\Sigma\left(\underline{1},\underline{2}\right)}{\partial G\left(\underline{4},\underline{5}\right)}\frac{\partial G\left(\underline{4},\underline{5}\right)}{\partial U_{\text{ext}}\left(\underline{3}\right)}\;.\end{aligned} \tag{3.58}$$

Dies lässt sich mit Gl. (3.51) und (3.56) zu

$$\Gamma\left(\underline{1},\underline{2},\underline{3}\right) = -\delta\left(\underline{1},\underline{2}\right)\delta\left(\underline{1},\underline{3}\right) + \int d\underline{4}d\underline{5}d\underline{6}d\underline{7}\;\frac{\partial\Sigma\left(\underline{1},\underline{2}\right)}{\partial G\left(\underline{4},\underline{5}\right)} G\left(\underline{4},\underline{6}\right)\Gamma\left(\underline{6},\underline{7},\underline{3}\right) G\left(\underline{7},\underline{5}\right) \tag{3.59}$$

umformen.

Zusammengefasst erhält man drei Gleichungen, die ein geschlossenes Gleichungssystem bilden, mit dem die Greenschen Funktionen über die Dyson-Gleichung

$$G\left(\underline{1},\underline{2}\right) = G_0\left(\underline{1},\underline{2}\right) + \int d\underline{3}d\underline{4}\; G_0\left(\underline{1},\underline{3}\right)\Sigma\left(\underline{3},\underline{4}\right) G\left(\underline{4},\underline{2}\right)\;, \tag{3.60}$$

die Selbstenergie

$$\begin{aligned}\Sigma\left(\underline{1},\underline{2}\right) =& -i\hbar\int d\underline{3}d\underline{4}\; G\left(\underline{1},\underline{3}\right)\Gamma\left(\underline{3},\underline{2},\underline{4}\right) V\left(\underline{4},\underline{1}^{+}\right)\\ &- i\hbar\int d\underline{3}\; V\left(\underline{1},\underline{3}\right) G\left(\underline{3},\underline{3}^{+}\right)\delta\left(\underline{1},\underline{2}\right)\end{aligned} \tag{3.61}$$

sowie die Vertexfunktion

$$\Gamma\left(\underline{1},\underline{2},\underline{3}\right) = -\delta\left(\underline{1},\underline{2}\right)\delta\left(\underline{1},\underline{3}\right) + \int d\underline{4}d\underline{5}d\underline{6}d\underline{7}\;\frac{\partial\Sigma\left(\underline{1},\underline{2}\right)}{\partial G\left(\underline{4},\underline{5}\right)} G\left(\underline{4},\underline{6}\right)\Gamma\left(\underline{6},\underline{7},\underline{3}\right) G\left(\underline{7},\underline{5}\right) \tag{3.62}$$

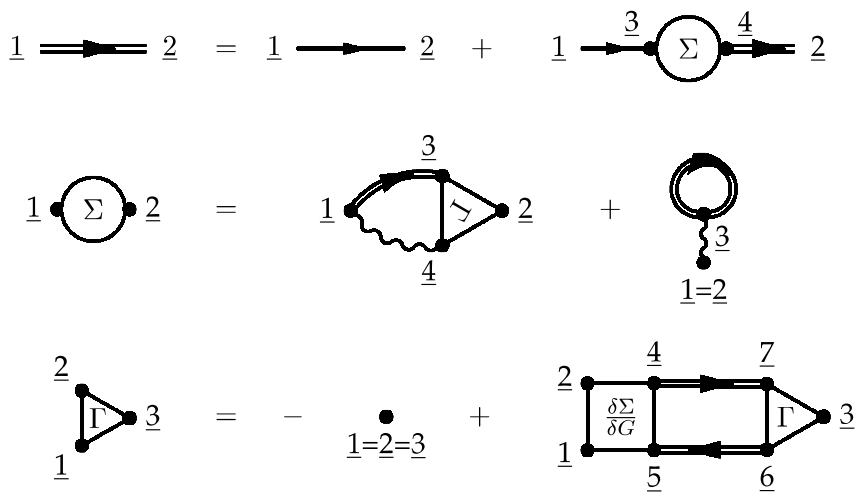


Abb. 3.2: Geschlossenes Gleichungssystem in diagrammatischer Darstellung, wobei Gl. (3.60′) bis (3.62′) jeweils Gl. (3.60) bis (3.62) entsprechen.

bestimmt sind.

Alternativ lassen sich diese Gleichungen gemäß Ref. [61] als Feynman-Diagramme (Abb. 3.2) darstellen, wobei eine doppelt durchgezogene Linie einer Greenschen Funktion und eine einfach durchgezogene Linie einer freien Greenschen Funktion entspricht. Die geschlängelten Linien sind Wechselwirkungslinien. Das Hierarchieproblem ist mit diesem Gleichungssystem formal gelöst, wobei sämtliche Prozesse, die durch Funktionalableitungen beschrieben werden, in die Vertexfunktion Γ geschoben wurden.

3.3.2 Abschirmung

Das Gleichungssystem (3.60) bis (3.62) stellt zwar eine formale Lösung des Problems dar, kann jedoch aufgrund des damit verbundenen Aufwands nicht direkt gelöst werden. Es bietet sich daher an, die Ordnung der Wechselwirkung in der Selbstenergie zu begrenzen, indem Näherungen für die Vertexfunktion durchgeführt werden. Einer der bedeutendsten Effekte in Zusammenhang mit der Coulomb-Wechselwirkung ist Abschirmung. Diese ist intrinsisch in der Vertexfunktion enthalten. In einem ersten Schritt wird daher eine abgeschirmte Wechselwirkung eingeführt, um die Abschirmungseffekte aus der Vertexfunktion herauszuziehen und somit bezüglich der abgeschirmten Wechselwirkung systematische Näherungen durchführen zu können.

Abschirmung kommt durch die Umordnung von wechselwirkenden Teilchen durch ein Potential U_{ext} zustande. So ordnen sich die Teilchen entsprechend des Potentials an, wodurch sich deren Potential so ändert, dass dessen Änderung U_{ext} entgegenwirkt. Es ergibt sich ein effektives Potential

$$U_{\text{eff}}\left(\underline{1}\right) = U_{\text{ext}}\left(\underline{1}\right) - i\hbar \int d\underline{2}\; V\left(\underline{1},\underline{2}\right) G\left(\underline{2},\underline{2}^{+}\right) \;. \tag{3.63}$$

In diesem ist zusätzlich zum ursprünglichen Potential die Wirkung der beeinflussten Teilchen enthalten. Diese Wirkung entspricht im Fall der Coulomb-Wechselwirkung dem Hartree-Anteil, der die klassische Anziehung bzw. Abstoßung von Ladungsträgern beschreibt. Mittels der inversen dielektrischen Funktion

$$\epsilon^{-1}\left(\underline{1},\underline{2}\right) = \frac{\partial U_{\text{eff}}\left(\underline{1}\right)}{\partial U_{\text{ext}}\left(\underline{2}\right)} \,, \tag{3.64}$$

die gerade den Unterschied zwischen freier und abgeschirmter Wechselwirkung beschreibt, lässt sich der Einfluss der Abschirmung von der Vertexfunktion in die Wechselwirkungslinie schieben, so dass man die abgeschirmte Wechselwirkung

$$W\left(\underline{2},\underline{1}\right) = \int d\underline{3}\; V\left(\underline{1},\underline{3}\right)\epsilon^{-1}\left(\underline{2},\underline{3}\right) \tag{3.65}$$

erhält. Dementsprechend lässt sich die Selbstenergie (3.55) zu

$$\begin{aligned}\Sigma\left(\underline{1},\underline{2}\right) = &-i\hbar\int d\underline{4}d\underline{5}\; W\left(\underline{5},\underline{1}\right)G\left(\underline{1},\underline{4}\right)\frac{\partial G^{-1}\left(\underline{4},\underline{2}\right)}{\partial U_{\text{eff}}\left(\underline{5}\right)}\\ &-i\hbar\int d\underline{3}\; V\left(\underline{1},\underline{3}\right)G\left(\underline{3},\underline{3^{+}}\right)\delta\left(\underline{1},\underline{2}\right)\end{aligned} \tag{3.66}$$

umschreiben. Die effektive Vertexfunktion bezüglich U_{eff}

$$\Gamma_{\text{eff}}\left(\underline{1},\underline{2},\underline{3}\right) = \frac{\partial G^{-1}\left(\underline{1},\underline{2}\right)}{\partial U_{\text{eff}}\left(\underline{3}\right)} \tag{3.67}$$

beinhaltet dagegen nicht mehr direkt die Abschirmungseffekte (nur indirekt über die Greenschen Funktionen und deren Selbstkonsistenz). Mit ihr lässt sich die Selbstenergie zu

$$\begin{aligned}\Sigma\left(\underline{1},\underline{2}\right) = &-i\hbar\int d\underline{3}d\underline{4}\; G\left(\underline{1},\underline{3}\right)\Gamma_{\text{eff}}\left(\underline{3},\underline{2},\underline{4}\right)W\left(\underline{4},\underline{1}^{+}\right)\\ &-i\hbar\int d\underline{3}\; V\left(\underline{1},\underline{3}\right)G\left(\underline{3},\underline{3}^{+}\right)\delta\left(\underline{1},\underline{2}\right)\;,\end{aligned} \tag{3.68}$$

zusammenfassen. Für die effektive Vertexfunktion

$$\begin{aligned}\Gamma_{\text{eff}}\left(\underline{1},\underline{2},\underline{3}\right) &= -\,\delta\left(\underline{1},\underline{2}\right)\delta\left(\underline{1},\underline{3}\right) - \frac{\partial\Sigma\left(\underline{1},\underline{2}\right)}{\partial U_{\text{eff}}\left(\underline{3}\right)}\\ &= -\,\delta\left(\underline{1},\underline{2}\right)\delta\left(\underline{1},\underline{3}\right) - \int d\underline{4}d\underline{5}\;\frac{\partial\Sigma\left(\underline{1},\underline{2}\right)}{\partial G\left(\underline{4},\underline{5}\right)}\frac{\partial G\left(\underline{4},\underline{5}\right)}{\partial U_{\text{eff}}\left(\underline{3}\right)}\;,\end{aligned} \tag{3.69}$$

erhält man dabei die gleiche Gestalt wie für die Vertexfunktion bezüglich U_{ext} (vergleiche Gl. (3.58)).

Für die inverse dielektrische Funktion ϵ^{-1} erhält man durch Einführung der Polarisationsfunktion

$$P\left(\underline{1},\underline{2}\right) = -i\hbar\frac{\partial G\left(\underline{1},\underline{1}^{+}\right)}{\partial U_{\text{eff}}\left(\underline{2}\right)} \tag{3.70}$$

und Ableitung des effektiven Potentials (3.63) mit Gl. (3.64)

$$\epsilon^{-1}\left(\underline{1},\underline{2}\right) = \delta\left(\underline{1},\underline{2}\right) + \int d\underline{3}d\underline{4}\; V\left(\underline{1},\underline{3}\right)P\left(\underline{3},\underline{4}\right)\epsilon^{-1}\left(\underline{4},\underline{2}\right)\;, \tag{3.71}$$

so dass für die abgeschirmte Wechselwirkung

$$W(\underline{1},\underline{2}) = V(\underline{1},\underline{2}) + \int d\underline{3}d\underline{4}\, V(\underline{1},\underline{3})\, P(\underline{3},\underline{4})\, W(\underline{4},\underline{2}) \tag{3.72}$$

folgt.

Durch Ableitung von Gl. (3.51) nach U_{eff} erhält man mit der Vertexfunktion (3.67) für die Polarisationsfunktion (3.70) durch entsprechende Umformungen

$$P(\underline{1},\underline{2}) = i\hbar \int d\underline{3}d\underline{4}\, G(\underline{1},\underline{3})\, \Gamma_{\text{eff}}(\underline{3},\underline{4},\underline{2})\, G\left(\underline{4},\underline{1}^{+}\right) \ . \tag{3.73}$$

Geschlossenes Gleichungssystem

Somit erhält man ein geschlossenes Gleichungssystem aus fünf Gleichungen, mit dem die Greensche Funktionen über die Dyson-Gleichung

$$G(\underline{1},\underline{2}) = G_0(\underline{1},\underline{2}) + \int d\underline{3}d\underline{4}\, G_0(\underline{1},\underline{3})\, \Sigma(\underline{3},\underline{4})\, G(\underline{4},\underline{2}) \ , \tag{3.74}$$

die Selbstenergie

$$\begin{aligned} \Sigma(\underline{1},\underline{2}) = &- i\hbar \int d\underline{3}d\underline{4}\, G(\underline{1},\underline{3})\, \Gamma_{\text{eff}}(\underline{3},\underline{2},\underline{4})\, W\left(\underline{4},\underline{1}^{+}\right) \\ &- i\hbar \int d\underline{3}\, V(\underline{1},\underline{3})\, G\left(\underline{3},\underline{3}^{+}\right) \delta(\underline{1},\underline{2}) \ , \end{aligned} \tag{3.75}$$

die abgeschirmte Wechselwirkung

$$W(\underline{1},\underline{2}) = V(\underline{1},\underline{2}) + \int d\underline{3}d\underline{4}\, V(\underline{1},\underline{3})\, P(\underline{3},\underline{4})\, W(\underline{4},\underline{2}) \ , \tag{3.76}$$

die Polarisationsfunktion

$$P(\underline{1},\underline{2}) = i\hbar \int d\underline{3}d\underline{4}\, G(\underline{1},\underline{3})\, \Gamma_{\text{eff}}(\underline{3},\underline{4},\underline{2})\, G\left(\underline{4},\underline{1}^{+}\right) \tag{3.77}$$

sowie die Vertexfunktion

$$\Gamma_{\text{eff}}(\underline{1},\underline{2},\underline{3}) = -\delta(\underline{1},\underline{2})\, \delta(\underline{1},\underline{3}) + \int d\underline{4}d\underline{5}d\underline{6}d\underline{7}\, \frac{\partial \Sigma(\underline{1},\underline{2})}{\partial G(\underline{4},\underline{5})} G(\underline{4},\underline{6})\, \Gamma_{\text{eff}}(\underline{6},\underline{7},\underline{3})\, G(\underline{7},\underline{5}) \tag{3.78}$$

bestimmt sind.

Zwar wird in den einzelnen Gleichungen immer nur ein Teil der Wechselwirkung in niedrigster Ordnung beschrieben, doch bewirkt die rekursive Form des Gleichungssystems, dass sich die Wechselwirkung in beliebig hoher Ordnung aufbaut. So ist in der Dyson-Gleichung (3.74) die volle Greensche Funktion auch wieder von anderen vollen Greenschen Funktionen abhängig, die wiederum von weiteren vollen Greenschen Funktionen abhängen. Darüber hinaus ist diese Gleichung an die übrigen durch die Selbstenergie gekoppelt, so dass sämtliche Aspekte der Wechselwirkung letztendlich auf die vollen Greenschen Funktionen einwirken. Dieses Verhalten wird als selbstkonsistent bezeichnet, da sich durch die Rekursion Größen bilden, die mit sich selbst im Sinne dieser Gleichungen konsistent sind. Abb. 3.3 zeigt die entsprechenden Feynman-Diagramme. Um dieses Gleichungssystem lösen zu können, werden verschiedene Näherungen durchgeführt, auf die im folgenden Abschnitt eingegangen wird.

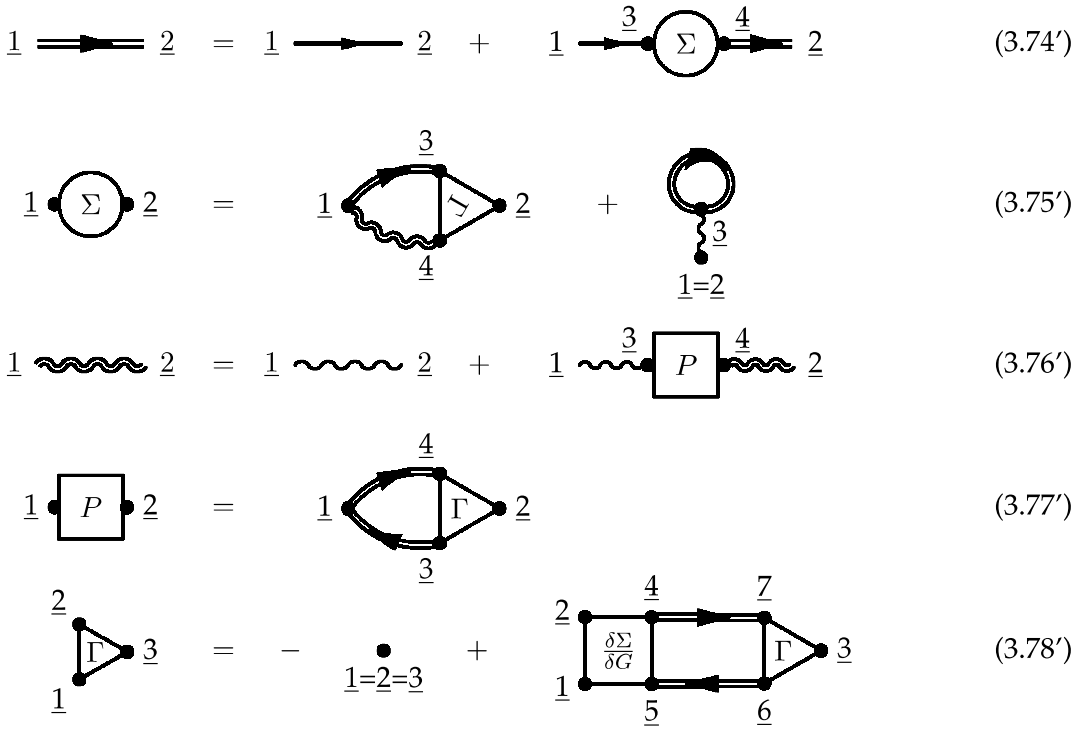


Abb. 3.3: Geschlossenes Gleichungssystem in diagrammatischer Darstellung, wobei Gl. (3.74′) bis (3.78′) jeweils Gl. (3.74) bis (3.78) entsprechen.

3.4 Auswertung der Keldysh-Dynamik

Bevor auf konkrete Wechselwirkungen eingegangen wird (siehe Kap. 4 und 5), wird zunächst erläutert, wie die Keldysh-Zeiten durch physikalische Zeiten dargestellt werden können und die zweizeitigen Greenschen Funktionen durch den verallgemeinerter Kadanoff-Baym Ansatz durch einzeitige Funktionen genährt werden können. Darüber hinaus wird kurz die einfachste Näherung für die Vertexfunktion vorgestellt und gezeigt, wie die Eigenschaften der untersuchten Quantenpunkte zur Vereinfachung des Problems genutzt werden können.

Kadanoff-Baym-Gleichungen

Um von der Keldysh-Zeit wieder auf die physikalische Zeit zu kommen, wird die Zeitintegration über die Keldysh-Kontur in Integrationen über die einzelnen Zeitzweige zerlegt

$$\int_C d\underline{t} = \int_{-\infty}^{\infty} dt_+ + \int_{\infty}^{-\infty} dt_- \,. \tag{3.79}$$

Dabei gelten nach dem Langreth-Wilkins-Theorem [55] für Ausdrücke der Form

$$\int d\underline{3}\, A\left(\underline{1},\underline{3}\right) B\left(\underline{3},\underline{2}\right) \tag{3.80}$$

die Relationen

$$(AB)^{\lessgtr} = A^R B^{\lessgtr} + A^{\lessgtr} B^A \,, \tag{3.81}$$

$$(AB)^{R/A} = A^{R/A} B^{R/A} \,. \tag{3.82}$$

Damit lässt sich die Dyson-Gleichung (3.74) durch Anwendung der freien inversen Greenschen Funktion in Gleichungen für die Propagatoren, sowie für die retardierte und avancierte Greensche Funktion umformen,

$$\left[i\hbar\frac{\partial}{\partial t_1} - h\left(1\right) - U_{\text{ext}}\left(1\right)\right] G^{\lessgtr}(1,2) = \int d3\, \left[\Sigma^R(1,3)G^{\lessgtr}(3,2) + \Sigma^{\lessgtr}(1,3)G^A(3,2)\right] \,, \tag{3.83}$$

$$\left[i\hbar\frac{\partial}{\partial t_1} - h\left(1\right) - U_{\text{ext}}\left(1\right)\right] G^{R/A}(1,2) = \delta\left(1,2\right) + \int d3\, \Sigma^{R/A}(1,3)G^{R/A}(3,2) \,, \tag{3.84}$$

die als Kadanoff-Baym-Gleichungen bezeichnet werden. Die singulären Beiträge für $G^{\lessgtr}$ verschwinden, weil jeweils eine Zeit auf dem oberen Zweig und die andere auf dem unteren Zweig der Keldysh-Zeitkontur liegt und somit die Keldysh-Zeiten nie übereinstimmen. Selbiges bewirkt auch, dass im Falle einer instantanen Wechselwirkung $\Sigma^{\lessgtr}$ verschwindet. Dabei sind die Kadanoff-Baym-Gleichungen über G^R in Gl. (3.83) und die Selbstenergien Σ miteinander gekoppelt, so dass die durch $G^<$ und G^R beschriebenen kinetischen (siehe Kap. 7) und spektralen (siehe Kap. 6) Eigenschaften des Systems nicht unabhängig voneinander sind.

Verallgemeinerter Kadanoff-Baym-Ansatz (GKBA)

Letztendlich sollen über die Kadanoff-Baym-Gleichungen die Besetzungen und Polarisationen des untersuchten Systems, also die bezüglich der Zeit diagonale Propagatoren, berchnet werden. Dabei koppeln allerdings diese diagonalen Propagatoren an nicht-diagonale Propagatoren, die Wahrscheinlichkeitsamplituden für Übergänge darstellen. Dies bedeutet, dass zur Berechnung der Besetzungen und Polarisationen des Systems sämtliche Propagatoren berechnet werden müssen, obwohl lediglich die zeitlich diagonalen Propagatoren von Interesse sind. Um das Problem zu vereinfachen, sollen die zeitlich nicht-diagonalen Propagatoren im Rahmen des verallgemeinerten Kadanoff-Baym Ansatzes durch zeitlich diagonale Propagatoren ausgedrückt werden, so dass die Kadanoff-Baym-Gleichungen nur noch durch diagonale Propagatoren dargestellt werden. Dazu wird die in

[56] gezeigte Identität

$$\begin{aligned} G^{\lessgtr}(t_1,t_2) =& i\hbar\Big[G^R(t_1,t_2)\,G^{\lessgtr}(t_2,t_2) - G^{\lessgtr}(t_1,t_1)\,G^A(t_1,t_2)\Big] \\ &+\Theta(t_1-t_2)\int_{t_2}^{t_1} dt_3 \int_{-\infty}^{t_2} dt_4 \\ &\quad G^R(t_1,t_3)\Big[\Sigma^R[t_3,t_4]\,G^{\lessgtr}(t_4,t_2) + \Sigma^{\lessgtr}[t_3,t_4]\,G^A(t_4,t_2)\Big] \\ &+\Theta(t_2-t_1)\int_{t_1}^{t_2} dt_3 \int_{-\infty}^{t_1} dt_4 \\ &\quad \Big[G^{\lessgtr}(t_1,t_4)\,\Sigma^A[t_4,t_3] + G^R(t_1,t_4)\,\Sigma^{\lessgtr}[t_4,t_3]\Big]\,G^A(t_3,t_2) \end{aligned} \tag{3.85}$$

betrachtet, deren 0-te Näherung als verallgemeinerter Kadanoff-Baym Ansatz

$$G^{\lessgtr}(t_1,t_2) = i\hbar\Big[G^R(t_1,t_2)\,G^{\lessgtr}(t_2,t_2) - G^{\lessgtr}(t_1,t_1)\,G^A(t_1,t_2)\Big] \tag{3.86}$$

bezeichnet wird. Dabei werden die Propagatoren $G^{\lessgtr}$ durch zweizeitige retardierte Greensche Funktionen und einzeitige, also die Zeit betreffend diagonale, Propagatoren ausgedrückt, so dass nun die Berechnung der zeitlich nicht-diagonalen Propagatoren nicht mehr erforderlich ist. Auch lassen sich die retardierten Greenschen Funktionen unter der Annahme konstanter Besetzungen als Funktionen der Zeitdifferenz darstellen (siehe Kap. 6). Somit vereinfachen sich unter diesen Annahmen sämtliche zweizeitige Größen zu einzeitigen Größen. Dabei führt das Θ-artige Verhalten der retardierten und avancierten Greenschen Funktionen dazu, dass jeweils nur der Propagator zur früheren Zeit beiträgt (vergleiche Gl. (3.21) und (3.22)). In Ref. [30] wurde die Gültigkeit des GKBA für die Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung bei kleinen Kopplungsstärken bestätigt.

Dabei ist zu beachten, dass die Wahl des Ansatzes nicht eindeutig ist [99], sondern im Fall verschwindender Wechselwirkung verschiedene Ansätze

$$G^{\lessgtr}(t_1,t_2) = i\hbar[G^a(t_1,t_2)G^{\lessgtr}(t_2,t_2) + G^{\lessgtr}(t_1,t_1)G^b(t_1,t_2)] \tag{3.87}$$

mit den Parametern G^a und G^b äquivalent sind, sofern $G^a+G^b = G^R-G^A$ gilt. Im Gegensatz zur obiger Variante (3.86), die sich durch eine maximale Retardierung auszeichnet, da jeweils nur der Propagator früherer Zeit beiträgt, zeichnet sich

$$G^{\lessgtr}(t_1,t_2) = -i\hbar\Big[G^A(t_1,t_2)\,G^{\lessgtr}(t_2,t_2) - G^{\lessgtr}(t_1,t_1)\,G^R(t_1,t_2)\Big] \tag{3.88}$$

dadurch aus, dass jeweils nur der Propagator späterer Zeit beiträgt. Dies entspricht gerade einer Markov-Näherung, bei der unter der Annahme nur schwach veränderlicher Erwartungswerte Propagatoren zu früheren Zeiten durch aktuelle ersetzt werden.

Random-Phase-Approximation

Den größten Aufwand zur Lösung des geschlossenen Gleichungssystems liegt aufgrund der vierfachen Integration und der drei äußeren Indizes bei den Vertexfunktionen (3.78). Eine erste Näherung für diese stellt die Random-Phase-Approximation (RPA) dar, bei der die

sogenannten Vertexkorrekturen vernachlässigt werden, so dass sich die Vertexfunktion zu einer δ-Funktion

$$\Gamma^{\mathrm{RPA}}\left(\underline{1},\underline{2},\underline{3}\right) = -\delta\left(\underline{1},\underline{2}\right)\delta\left(\underline{1},\underline{3}\right) \tag{3.89}$$

vereinfacht. Diese Näherung begrenzt nicht die Ordnung beitragender Wechselwirkungsprozesse, vernachlässigt aber solche, die erst ab höheren Ordnungen in der Selbstenergie auftreten. Da die Stärke der Wechselwirkung mit zunehmender Ordnung in der Selbstenergie abfällt, werden in dieser Arbeit jeweils nur Beiträge zur Selbstenergie betrachtet, deren Ordnung die niedrigste zum betrachteten Problem beitragende ist. So wird diese Näherung in Kap. 4 für die Polarisationsfunktion

$$P^{\mathrm{RPA}}\left(\underline{1},\underline{2}\right) = -i\hbar G\left(\underline{1},\underline{2}\right)G\left(\underline{2},\underline{1}\right) \tag{3.90}$$

angewendet. Für die Selbstenergie ergibt sich analog ohne Hartree-Beitrag

$$\Sigma^{\mathrm{RPA}}\left(\underline{1},\underline{2}\right) = i\hbar G\left(\underline{1},\underline{2}\right)W\left(\underline{2},\underline{1}\right). \tag{3.91}$$

Während diese Näherung für die Elektron-Phonon-Streuung in Kap. 5 verwendet wird, werden bei der Coulomb-Wechselwirkung zusätzliche Terme berücksichtigt, da dort erst ab der zweiten Ordnung in W^R Streuung auftritt, in der auch ein weiterer Term Beiträge liefert (siehe Kap. 4.2.2).

Quantenpunktsystem

Die im Folgenden untersuchten Quantenpunktsysteme erlauben einige weitere Vereinfachungen. Dazu werden die Greenschen Funktionen entsprechend Kap. 3.2 nach Eigenfunktionen des Systems entwickelt, um deren Eigenschaften ausnutzen zu können.

Die Entwicklungsindizes α_1,β_2 stehen bei den Zuständen in der Benetzungsschicht für den Impuls $\mathbf{k}$ und in den Quantenpunkten für die Position des Quantenpunkts $\mathbf{R}$ und den Zustand ν; die Subindizes $1,2$ bezeichnen das jeweilige Band. Allgemein erhält man so für die Dyson-Gleichung und die Selbstenergie in RPA

$$\left[i\hbar\frac{\partial}{\partial\underline{t}_1} - h_{\alpha_1}\left(\underline{t}_1\right)\right]G_{\alpha_1,\beta_2}\left(\underline{t}_1,\underline{t}_2\right) = \delta\left(\underline{t}_1,\underline{t}_2\right) + \sum_{\gamma,3}\int d\underline{t}_3\,\Sigma_{\alpha_1,\gamma_3}\left(\underline{t}_1,\underline{t}_3\right)G_{\gamma_3,\beta_2}\left(\underline{t}_3,\underline{t}_2\right)\ , \tag{3.92}$$

$$\Sigma_{\alpha_1,\beta_2}\left(\underline{t}_1,\underline{t}_2\right) = \sum_{\gamma,\delta,3,4} W_{\alpha_1,\beta_2,\gamma_3,\delta_4}\left(\underline{t}_2,\underline{t}_1\right)G_{\gamma_3,\delta_4}\left(\underline{t}_1,\underline{t}_2\right)\ , \tag{3.93}$$

wobei $W_{\alpha_1,\beta_2,\gamma_3,\delta_4}$ Wechselwirkungsmatrixelemente sind. Diese Matrixelemente beschreiben die jeweilige Wechselwirkung und werden im folgenden Kap. 4 für die Coulomb- und in Kap. 5 für die Elektron-Phonon-Wechselwirkung eingeführt. Sowohl die Dyson-Gleichung als auch die Selbstenergie weisen in den Entwicklungsindizes nicht-diagonale Kopplungen auf, die durch physikalische Annahmen über das betrachtete System deutlich reduziert werden können.

Die Selbstenergie beschreibt die Wechselwirkungen, so dass es ausreicht nur solche Zustände zu betrachten, zwischen denen auch eine Wechselwirkung stattfindet. Da

die hier betrachteten Quantenpunkte auf der Benetzungsschicht homogen verteilt sind, kann diese im Mittel in der Wachstumsebene als homogen angenommen werden, so dass aufgrund der damit verbundenen Translationsinvarianz und Impulserhaltung nur bezüglich des Impulses diagonale Elemente beitragen (siehe Kap. 2). Ferner führt die geringe Dichte der hier betrachteten Quantenpunkte und der damit verbundene große Abstand zwischen diesen zu kleinen Überlapps der stark lokalisierten Wellenfunktionen verschiedener Quantenpunkte. Dementsprechend schwach sind die Übergangsamplituden zwischen diesen, so dass sie hier nicht berücksichtigt werden.

Aufgrund der Symmetrie der Eigenzustände des InGaAs-Quantenpunktsystems (siehe Kap. 2.2) gibt es in diesem nur direkte optische Übergänge, also nur Übergänge zwischen Zuständen, die sich lediglich im Band unterscheiden. Die übrigen Übergangsamplituden werden dagegen nicht optisch und wiederum aufgrund der Symmetrie auch nur minimal durch andere Polarisationen angeregt. Dementsprechend können die derartig nicht-diagonalen Greenschen Funktionen vernachlässigt werden. Die Gültigkeit dieser Näherung wurde in [113] für retardierte Greensche Funktionen bestätigt und bezüglich der Greenschen Funktionen zwischen verschiedenen Quantenpunktzuständen auch für die Kinetik überprüft. In der Selbstenergie müssen somit nur noch bezüglich des Zustands diagonale Greensche Funktionen berücksichtigt werden,

$$\Sigma_{\alpha_1,\alpha_2}\left(\underline{t}_1,\underline{t}_2\right) = \sum_{\beta,3,4} W_{\alpha_1,\alpha_2,\beta_3,\beta_4}\left(\underline{t}_2,\underline{t}_1\right) G_{\beta_3,\beta_4}\left(\underline{t}_1,\underline{t}_2\right) \ . \tag{3.94}$$

Diese Näherung vereinfacht nicht nur die Berechnung einzelner Greensche Funktionen, sondern ermöglicht es auch, nur bezüglich des Zustandes (mit Ausnahme des Bandes) diagonale Greensche Funktionen zu berücksichtigen. Für die Kadanoff-Baym-Gleichungen (3.83) und (3.84) erhält man somit im Fall von InGaAs-Quantenpunktsystemen

$$\left[i\hbar\frac{\partial}{\partial\underline{t}_1} - h_{\alpha_1}\left(\underline{t}_1\right)\right] G_{\alpha_1,\alpha_2}\left(\underline{t}_1,\underline{t}_2\right) = \delta\left(\underline{t}_1,\underline{t}_2\right) + \sum_3 \int d\underline{t}_3\, \Sigma_{\alpha_1,\alpha_3}\left(\underline{t}_1,\underline{t}_3\right) G_{\alpha_3,\alpha_2}\left(\underline{t}_3,\underline{t}_2\right) \ , \tag{3.95}$$

so dass verschiedene Zustände in diesem System nur über die Selbstenergie koppeln. Für die ebenfalls betrachteten InGaN-Quantenpunktsysteme (siehe Kap. 2.3) ist dies aufgrund der nicht-diagonalen optischen Übergänge nicht möglich.

Für beide Materialsysteme wird dagegen angenommen, dass die Spins der einzelnen Ladungsträger nicht durch die Wechselwirkung verändert werden, da derartige Prozesse deutlich langsamer ablaufen als die in dieser Arbeit betrachtete Streuung ohne Spinänderung. Ferner wird davon ausgegangen, dass sich die Besetzungen beider Spinrichtungen gleich entwickeln. In diesem Fall reicht es eine Spinrichtungen zu behandeln, wobei in Fällen, in denen sich unterschiedliche Spins beeinflussen (siehe Kap. 4.2.2), aufgrund der zweiten Annahme alle Größen durch die der betrachteten Spinrichtung ersetzt werden können.

4 Coulomb-Wechselwirkung

Die Eigenschaften von Elektronen und Löchern (Ladungsträger) in Halbleitern werden maßgeblich durch die Coulomb-Wechselwirkung zwischen einander und dem Kristallgitter beeinflusst. Dabei ist zwischen Effekten, die bereits in der Bandstruktur und somit in der verwendeten Basis enthalten sind (siehe Kap. 2), und Vielteilcheneffekten zu unterschieden. Bei diesen handelt es sich zum einen um die Elektron-Phonon-Wechselwirkung, die die Interaktion der Ladungsträger mit den Schwingungen des Kristallgitters beschreibt und in Kap. 5 vorgestellt wird, und zum anderen um die direkte Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern, die in diesem Kapitel behandelt wird. Im Folgenden ist mit Coulomb-Wechselwirkung stets die Wechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern gemeint.

4.1 Matrixelemente der Coulomb-Wechselwirkung

Die Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektronen wird durch den Hamiltonoperator

$$H_{\text{coul}} = \sum_{\alpha\beta} \frac{1}{2} v\left(\mathbf{r}_\alpha - \mathbf{r}_\beta\right) \Psi_\alpha^\dagger \Psi_\beta^\dagger \Psi_\beta \Psi_\alpha \tag{4.1}$$

beschrieben, wobei $\mathbf{r}_\alpha$ der Ort des Elektrons α ist. Für das Wechselwirkungspotential folgt durch Fouriertransformation

$$\begin{aligned} v\left(\mathbf{r}_\alpha - \mathbf{r}_\beta\right) &= \frac{1}{4\pi} \frac{e^2}{\epsilon_0 \epsilon(\infty) \left|\mathbf{r}_\alpha - \mathbf{r}_\beta\right|} \\ &= \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{q}} v_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q}\left(\mathbf{r}_\alpha - \mathbf{r}_\beta\right)} \end{aligned} \tag{4.2}$$

mit

$$v_{\mathbf{q}} = \frac{e^2}{\epsilon_0 \epsilon(\infty) \mathbf{q}^2} \ , \tag{4.3}$$

wobei e die Elementarladung, $\mathbf{q}$ der Impuls, ϵ_0 die Dielektrizitätskonstante des Vakuums und $\epsilon(\infty)$ die materialspezifische hochfrequente Dielektrizitätskonstante ist. Letztere beschreibt die durch die Elektronen im Halbleiter hervorgerufene Hintergrundabschirmung.

Durch die Entwicklung nach Eigenfunktionen ϕ_α lässt sich der Hamiltonoperator mit den Matrixelementen

$$V_{\alpha\beta\beta'\alpha'} = \frac{1}{2V} \sum_{\mathbf{q}} v_{\mathbf{q}} \left\langle \phi_\alpha \left| e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} \right| \phi_{\alpha'} \right\rangle \left\langle \phi_\beta \left| e^{-i\mathbf{q}\mathbf{r}} \right| \phi_{\beta'} \right\rangle \tag{4.4}$$

zu

$$H_{\text{coul}} = \sum_{\alpha\alpha'\beta\beta'} V_{\alpha\beta\beta'\alpha'} a_\alpha^\dagger a_\beta^\dagger a_{\beta'} a_{\alpha'} \tag{4.5}$$

umschreiben. Zur Berechnung der Matrixelemente für die Quantenpunktsysteme siehe Kap. A und C.

Lindhard-Abschirmung

Die Matrixelemente $V_{\alpha\beta\beta'\alpha'}$ entsprechen gerade den unabgeschirmten Wechselwirkungslinien in Eigenfunktionsbasis. Wie bereits in Kap. 3.3.2 beschrieben, ist der Effekt der Abschirmung für die Coulomb-Wechselwirkung von entscheidender Bedeutung, weshalb im Folgenden zusätzlich zu diesen unabgeschirmten Matrixelementen V entsprechend Lindhard-Theorie abgeschirmte Matrixelemente W eingeführt werden. Mithilfe dieser Matrixelemente soll die abgeschirmte Wechselwirkungslinie, die über die Dyson-Gleichung

$$W\left(\underline{1},\underline{2}\right) = V\left(\underline{1},\underline{2}\right) + \int d\underline{3}d\underline{4}\, V\left(\underline{1},\underline{3}\right) P\left(\underline{3},\underline{4}\right) W\left(\underline{4},\underline{2}\right) \tag{4.6}$$

definiert ist, durch eine effektive Wechselwirkung

$$W_{\alpha\beta\beta'\alpha'} = \sum_{\mathbf{q}} \underbrace{\frac{1}{2V}\frac{v_{\mathbf{q}}}{\epsilon_q} \left\langle \phi_\alpha \left| e^{i\mathbf{qr}} \right| \phi_{\alpha'} \right\rangle \left\langle \phi_\beta \left| e^{-i\mathbf{qr}} \right| \phi_{\beta'} \right\rangle}_{W^q_{\alpha\beta\beta'\alpha'}} \tag{4.7}$$

dargestellt werden. Diese unterscheidet sich lediglich um eine vom übertragenen Impuls q abhängige dielektrische Funktion $\epsilon_{\mathbf{q}}$ von der unabgeschirmten Wechselwirkung (4.4), so dass weiterhin auch für die abgeschirmte Wechselwirkung W eine Instantanität angenommen werden kann. Diese Ansatz beschreibt die statische und somit instantane Abschirmung durch eine vorgegebene Gleichgewichtsbesetzung. Eine dynamische Behandlung der Abschirmung wird beispielsweise in Ref. [6] vorgestellt.

Dabei wird angenommen, dass nur delokalisierte Zustände in der Benetzungsschicht zur Abschirmung beitragen, da die Quantenpunktzustände aufgrund ihres diskreten Energiespektrums und ihrer Lokalität kaum beitragen können. Dies führt insbesondere zu Impulserhaltung und erlaubt die Dyson-Gleichung (3.76) zu

$$W^q_{\alpha\beta\gamma\delta}(t,t') = V^q_{\alpha\beta\gamma\delta}\delta(t-t') + V^q_{\alpha\beta\gamma\delta} \int dt'' \sum_{kk'} P_{kk'}(t,t'') W^q_{kk'kk'}(t'',t') \tag{4.8}$$

umzuformen. Während die griechischen Buchstaben beliebige Eigenzustände beschreiben, bezeichnen k, k' nur Benetzungsschichtzustände. Bezüglich der Impulserhaltung wird dabei angenommen, dass es sich um ein reines zweidimensionales Problem handelt, da ansonsten in der zusätzlichen Richtung keine Impulserhaltung gelten würde.

Bei zeitunabhängigen Besetzungen sind die Polarisationsfunktionen und infolgedessen auch die Wechselwirkungsmatrixelemente nur von der Differenz der Zeitargumente, nicht

aber von der absoluten Zeit abhängig. Im Frequenzraum bezüglich der Zeitdifferenz $t - t'$ erhält man die Matrixelemente

$$W^q_{\alpha\beta\gamma\delta}(\omega) = V^q_{\alpha\beta\gamma\delta} + V^q_{\alpha\beta\gamma\delta} \sum_{kk'} P_{kk'}(\omega) W^q_{kk'kk'}(\omega) \tag{4.9}$$

und somit im Sinne von Gl. (4.7) die dielektrische Funktion

$$\epsilon_q(\omega) = 1 - \sum_{kk'} P_{kk'}(\omega) V^q_{kk'kk'} \ . \tag{4.10}$$

Ferner wird für die Polarisationsfunktion die RPA genutzt (siehe Gl. (3.90)), so dass man mittels GKBA in der Eigenfunktionsbasis

$$P^R_{kk'}(t,t') = \hbar^2 G^R_k(t,t') G^{R,*}_{k'}(t,t') \left[G^<_{k'}(t') - G^<_k(t') \right] \tag{4.11}$$

erhält. Wie auch in Kap. 7 gezeigt wird, hängt der Wert einer Summe über alle Zustände einer quasikontinuierlichen Benetzungsschicht nur schwach von der genauen Gestalt der retardierten Greenschen Funktionen ab, sofern wie hier gegeben die übrigen Faktoren nur schwach k-abhängig sind. Dies erlaubt es, die vollen retardierten Greenschen Funktionen G^R durch Freie $G^R_0(t,t') = \frac{1}{i\hbar}\Theta(t-t')e^{\frac{\epsilon_k}{i\hbar}(t-t')}$ zu ersetzen (siehe auch Kap. 6.1), so dass sich die Polarisationsfunktionen für zeitunabhängige Besetzungen weiter vereinfachen; man erhält im Frequenzraum bezüglich der Zeitdifferenz $(t - t')$

$$\begin{aligned} P^R_{kk'}(\omega) &= \frac{1}{i\hbar}(f_k - f_{k'}) \int_0^\infty dt\, e^{-i\frac{\epsilon_k - \epsilon_{k'} - i\delta + \hbar\omega}{\hbar} t} \\ &= \frac{f_k - f_{k'}}{\hbar\omega + \epsilon_\alpha - \epsilon_\beta + i\delta} \ , \end{aligned} \tag{4.12}$$

wobei δ eine infinitesimale Energieverbreiterung und ϵ_k die Energie des Zustands k ist.

Im statischen Limit $\omega = 0$ erhält man somit für die dielektrische Funktion

$$\epsilon_q = 1 - \frac{v_{\mathbf{q}}}{A} \sum_{\mathbf{k}} \frac{f_{\mathbf{k}-\mathbf{q}_{||}} - f_{\mathbf{k}}}{\epsilon_{\mathbf{k}-\mathbf{q}_{||}} - \epsilon_{\mathbf{k}} + i\delta} \left| \left\langle \xi_k \left| e^{iq_z z} \right| \xi_{k-q_{||}} \right\rangle \right|^2 \ , \tag{4.13}$$

wobei $q_{||}$ der Anteil von q ist, der in der Ebene der Benetzungsschicht liegt, und ξ_k die Zustände in Wachstumsrichtung z beschreibt (siehe auch Kap. 2.2). Der Anteil der Zustände in der Benetzungsschicht ergibt gerade die δ-Funktion $\delta(k' - (k - q_{||}))$.

4.2 Selbstenergie

Durch die Wahl der Selbstenergie wird festgelegt, welche Wechselwirkungsklassen betrachtet werden. Für die Coulomb-Wechselwirkung wird zunächst die in Kap. 3.4 eingeführte RPA verwendet. Dabei ist zu bedenken, dass die zuvor eingeführten Matrixelemente instantan sind, sich also mit diesen zwar eine retardierte Wechselwirkung W^R, aber kein Wechselwirkungspropagator $W^{\gtrless}$ definieren lässt, der zur Beschreibung der

Kinetik erforderlich ist. Allerdings können mit Hilfe des optischen Theorems [33]

$$\begin{aligned} W^{\gtrless}(2,1) &= \int d3\, d4\, W^R(2,3) P^{\gtrless}(3,4) W^A(4,1) \\ &= -i\hbar \int d3\, d4\, W^R(2,3) G^{\gtrless}(3,4) G^{\lessgtr}(4,3) W^A(4,1) \end{aligned} \tag{4.14}$$

Wechselwirkungspropagatoren durch W^R und das aufgrund der Instantanität identische W^A dargestellt werden, wobei die RPA (3.90) für die Polarisation verwendet wird. Dementsprechend erhält man in der Selbstenergie einen Term zweiter Ordnung bezüglich W^R, der trotz Instantanität der W^R auch zur Kinetik beiträgt.

4.2.1 Hartree-Fock-Selbstenergie

In einem ersten Schritt werden die Beiträge erster Ordnung in W^R, die zur Hartree-Fock-Selbstenergie führen, betrachtet. Daraufhin wird in Kap. 4.2.2 die zweite Ordnung, deren Selbstenergie die Form der zweiten Bornschen Näherung hat, behandelt. Dies bedeutet nicht, dass die Wechselwirkung nur bis zu dieser Ordnung behandelt wird, sondern dass aufgrund der selbstkonsistenten Beschreibung Wechselwirkungen beliebiger Ordnung berücksichtigt werden, sofern sie sich aus den betrachteten Wechselwirkungsprozessen zusammensetzen.

Neben der RPA-Selbstenergie (3.91) liefert auch die Hartree-Selbstenergie (zweiter Term) einen Beitrag erster Ordnung in der Wechselwirkung

$$\begin{aligned} \frac{1}{i\hbar}\Sigma(\underline{1},\underline{2}) &= G(\underline{1},\underline{2}) W(\underline{2},\underline{1}) \\ &\quad - \int d\underline{3}\, \delta(\underline{1},\underline{2}) G(\underline{3},\underline{3}^+) V(\underline{1},\underline{3}) \,. \end{aligned} \tag{4.15}$$

Aufgrund der Instantanität der Selbstenergie bezüglich der Keldysh-Zeit erhält man in erster Ordnung sofort

$$\Sigma^{\gtrless}(1,2) = 0 \tag{4.16}$$

und dementsprechend keine Kinetik, jedoch durch die retardierte Selbstenergie

$$\begin{aligned} \frac{1}{i\hbar}\Sigma^R(1,2) =& \frac{1}{2}\left[G^>(1,2) + G^<(1,2)\right] W^R(2,1) \\ &- \int d3\, \delta(1,2) \frac{1}{2}\left[G^>(3,3^+) + G^<(3,3^+)\right] V^R(1,3) \end{aligned} \tag{4.17}$$

beschriebene Renormierungen. Für bezüglich des Zustands α diagonale Selbstenergien erhält man durch Anwendung der Feynman-Regeln [84] und Berücksichtigung der Instantanität

$$\begin{aligned} \Sigma^R_{\alpha_1,\alpha_2}(t,t') =& \frac{i\hbar}{2} \sum_{\beta} \left[G^>_{\beta_1,\beta_2}(t) + G^<_{\beta_1,\beta_2}(t)\right] W^R_{\alpha_1\beta_2\alpha_2\beta_1} \delta(t-t') \\ &- \frac{i\hbar}{2} \sum_{\beta_3} \left[G^>_{\beta_3,\beta_3}(t) + G^<_{\beta_3,\beta_3}(t)\right] V^R_{\alpha_1\beta_3\beta_3\alpha_1} \delta(t-t') \delta(\alpha_1,\alpha_2) \,. \end{aligned} \tag{4.18}$$

Drückt man die Propagatoren in dieser Selbstenergie durch Besetzungen f und Polarisationen (Übergangsamplituden) Ψ aus

$$\begin{aligned}\Sigma^R_{\alpha_1,\alpha_1}(t) =& \frac{1}{2}\sum_\beta (1-2f_{\beta_1}(t))W^R_{\alpha_1\beta_1\alpha_1\beta_1} \\ &- \frac{1}{2}\sum_\beta \left[(1-2f_{\beta_1}(t))V^R_{\alpha_1\beta_1\beta_1\alpha_1} + (1-2f_{\beta_3}(t))V^R_{\alpha_1\beta_3\beta_3\alpha_1}\right] \text{ mit } 3 \neq 1\,, \\ \Sigma^R_{\alpha_e,\alpha_h}(t) =& -\sum_\beta \Psi_\beta(t) W^R_{\alpha_e\beta_h\beta_h\alpha_e}\,,\end{aligned} \tag{4.19}$$

erkennt man leicht, dass diese Selbstenergie für ein leeres System nicht verschwindet. Da aber alle elektronischen Beiträge für ein leeres System in der Bandstruktur berücksichtigt werden, muss Σ für ein leeres System verschwinden. Dies lässt sich einfach durch einen Korrekturterm beheben, der die Beiträge abzieht, die im leeren System auftreten. Ferner heben sich die besetzungsunabhängigen Anteile des Hartree-Beitrags selbst auf, sofern man von gleichen einhüllenden Wellenfunktionen für Elektronen und Löcher ausgeht. Ansonsten sind diese Beiträge ebenfalls der Bandstruktur zuzuordnen, so dass sie hier nicht berücksichtigt werden. Für eine detailliertere Betrachtung siehe hierzu auch Ref. [81]. Man erhält im Elektron-Loch-Bild

$$\begin{aligned}\Sigma^R_{\alpha_1,\alpha_1}(t) =& -\sum_\beta \left[f_{\beta_1}(t)W^R_{\alpha_1\beta_1\alpha_1\beta_1} - \frac{1}{2}\left\{W^R_{\alpha_1\beta_1\alpha_1\beta_1} - V^R_{\alpha_1\beta_1\alpha_1\beta_1}\right\}\right] \\ &+ \sum_\beta \left[f_{\beta_1}(t)V^R_{\alpha_1\beta_1\beta_1\alpha_1} - f_{\beta_3}(t)V^R_{\alpha_1\beta_3\beta_3\alpha_1}\right] \text{ mit } 3 \neq 1\,.\end{aligned} \tag{4.20}$$

Bezüglich des Hartree-Anteils lässt sich ausnutzen, dass im Folgenden von globaler Ladungsneutralität ausgegangen wird. Dementsprechend ergibt sich durch die in der Ebene homogen verteilten Benetzungsschichtzustände kein direkter Beitrag, da sich die Wirkungen von Elektronen und Löchern gegenseitig aufheben. Allerdings führt die Ladungsinhomogenität in den Quantenpunkten zu einer Umverteilung der Ladungsträger in der Benetzungsschicht, die für die Hartree-Wechselwirkung entsprechend Kap. 3.3.2 gerade der Coulomb-Abschirmung entspricht. Da gemäß Kap. 4.1 gerade nur Benetzungsschichtzustände zur Abschirmung beitragen, können diese Effekte durch Nutzung der abgeschirmten Wechselwirkung anstelle einer direkten Berücksichtigung der Benetzungsschichtladungsträger beschrieben werden. Eine detailiertere Beschreibung und Begründung für dieses Vorgehen ist in Ref. [81] zu finden. Man erhält

$$\begin{aligned}\Sigma^R_{\alpha_1,\alpha_1}(t) =& -\sum_\beta \left[f_{\beta_1}(t)W^R_{\alpha_1\beta_1\alpha_1\beta_1} - \frac{1}{2}\left\{W^R_{\alpha_1\beta_1\alpha_1\beta_1} - V^R_{\alpha_1\beta_1\alpha_1\beta_1}\right\}\right] \\ &+ \sum_{\beta\in\mathrm{QD}} \left[f_{\beta_1}(t)W^R_{\alpha_1\beta_1\beta_1\alpha_1} - f_{\beta_3}(t)W^R_{\alpha_1\beta_3\beta_3\alpha_1}\right] \text{ mit } 3 \neq 1\,.\end{aligned} \tag{4.21}$$

Beim ersten Term handelt es sich um die abgeschirmte Austausch-Wechselwirkung, die stets eine Energieabsenkung bewirkt und auf der Ununterscheidbarkeit der Ladungsträger basiert. Der zweite Term wird als Coulomb-hole bezeichnet. Bei diesen beiden Termen handelt es sich um rein quantenmechanische Beiträge. Siehe hierzu auch Ref. [34]. Der

Hartree-Term in der zweiten Zeile beschreibt die klassische Coulomb-Wechselwirkung, also die Abstoßung gleich bzw. Anziehung entgegengesetzt geladener Teilchen. Die bezüglich des Bandes nicht-diagonale Selbstenergie

$$\Sigma^R_{\alpha_e,\alpha_h}(t) = -\sum_\beta \Psi_\beta(t) W^R_{\alpha_e\beta_h\alpha_h\beta_e} \tag{4.22}$$

beinhaltet dagegen nur einen Austausch-Term und führt zu Renormierungen von optischen Anregungen (siehe Gl. (8.16)).

Da $\Sigma^{\gtrless}(1,2) = 0$ gilt, hat die hier betrachtete Selbstenergie in erster Ordnung keine direkte Wirkung auf die Kinetik. Allerdings ergeben sich Renormierungen der spektralen Eigenschaften, wobei die Instantanität der Selbstenergie dafür sorgt, dass es sich dabei nur um Energieverschiebungen bzw. Renormierungen optischer Pulse handelt (siehe Halbleiter-Bloch-Gleichungen (8.13)-(8.16)).

4.2.2 Selbstenergie in zweiter Bornscher Näherung

Um nicht nur Energieverschiebungen durch die Coulomb-Wechselwirkung zu beschreiben, sondern auch Streuung oder komplexere Renormierungen, muss eine Selbstenergie zweiter Ordnung betrachtet werden. Dabei gilt entsprechend dem vorherigen Kapitel, dass dies nicht die Ordnung der Wechselwirkung begrenzt.

Die Selbstenergie in erster Ordnung von W (4.21) und (4.22) beinhaltet allerdings höhere Beiträge in V, die auch in einer Selbstenergie in zweiter Ordnung von W enthalten sind. Um diese Doppelzählung zu vermeiden, ist es notwendig, anstelle der abgeschirmten Wechselwirkung die Unabgeschirmte für den Fock-Anteil der Selbstenergie zu verwenden, sofern die Selbstenergien erster und zweiter Ordnung zusammen betrachtet werden. Dagegen kommt die Hartree-Selbstenergie nur in erster Ordnung von W vor.

Neben dem RPA-Term liefert der Austauschterm (zweite Zeile), der einer ersten Vertexkorrektur entspricht, einen Beitrag in zweiter Ordnung von W^R zur Selbstenergie

$$\begin{aligned}\Sigma(1,2) =& i\hbar G(1,2)W(2,1)\\ &+(i\hbar)^2\int d3\, d4\, G(1,4)G(4,3)G(3,2)W(2,4)W(3,1)\,.\end{aligned} \tag{4.23}$$

Die Instantanität der Wechselwirkung bewirkt hier im Gegensatz zur Selbstenergie erster Ordnung keine Instantanität der Selbstenergie, so dass $\Sigma^{\gtrless}$ hier nicht verschwindet. Für den RPA-Term wird dabei das optische Theorem (4.14) verwendet, so dass man in 2. Ordnung die Selbstenergie

$$\begin{aligned}\Sigma^{\gtrless}(1,2) = -(i\hbar)^2\int d3\, d4\, & G^{\gtrless}(1,2)W^R(2,3)G^{\lessgtr}(3,4)G^{\gtrless}(4,3)W^A(4,1)\\ &-G^{\gtrless}(1,4)G^{\lessgtr}(4,3)G^{\gtrless}(3,2)W^R(2,4)W^A(3,1)\end{aligned} \tag{4.24}$$

erhält. Durch Ausnutzung der Instantanität der Wechselwirkung erhält man nach

Eigenfunktionen entwickelt

$$\begin{aligned}\Sigma^{\gtrless}_{\alpha_1\alpha_2}(t_1,t_2) = -(i\hbar)^2 \sum_{\beta\gamma\delta}\sum_{3,4} & \\ & G^{\gtrless}_{\beta_1,\beta_2}(t_1,t_2)G^{\lessgtr}_{\delta_3,\delta_4}(t_2,t_1)G^{\gtrless}_{\gamma_4,\gamma_3}(t_1,t_2)W_{\beta_2\gamma_4\delta_4\alpha_2}(t_2)W_{\alpha_1\delta_3\gamma_3\beta_1}(t_1) \\ & -G^{\gtrless}_{\beta_1,\beta_4}(t_1,t_2)G^{\lessgtr}_{\gamma_4,\gamma_3}(t_2,t_1)G^{\gtrless}_{\delta_3,\delta_2}(t_1,t_2)W_{\delta_2\beta_4\gamma_4\alpha_2}(t_2)W_{\alpha_1\gamma_3\delta_3\beta_1}(t_1)\ ,\end{aligned} \tag{4.25}$$

wobei nur banddiagonale Überlapps in den Matrixelementen angenommen werden, also die schwachen Interbandübergänge von Ladungsträgern nicht betrachtet werden.

Werden nur Besetzungen betrachtet (bezüglich des Bandes diagonale Propagatoren und Selbstenergie), beschreibt der direkte Term in der ersten Zeile die Streuung von Ladungsträgern zwischen den Zuständen α und β durch die Wechselwirkung mit einem weiteren Ladungsträger, der bei diesem Vorgang zwischen γ und δ gestreut wird. Daneben trägt auch der rein quantenmechanische Austauschterm zur Streuung bei, wobei dieser dem direkten Term entgegenwirkt. In Kap. 7 wird die Ladungsträgerdynamik durch die Coulomb-Wechselwirkung genauer betrachtet.

5 Elektron-Phonon-Wechselwirkung

Neben der bereits in Kap. 4 eingeführten Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern kommt es ebenfalls zur Wechselwirkung dieser Ladungsträger mit den Gitterionen des Festkörpers. Während die Wechselwirkung mit dem starren Gitter bereits in der Bandstruktur berücksichtigt ist, lässt sich die Wechselwirkung mit den Gitterschwingungen, deren Anregungsquanten als Phononen bezeichnet werden, in Form der Elektron-Phonon-Wechselwirkung behandeln.

Die untersuchten Halbleiterkristalle besitzen jeweils eine mehratomige Basis, so dass neben den gleichphasigen akustischen Schwingungen auch gegenphasige optische Schwingungen auftreten. Für die in dieser Arbeit betrachteten Quantenpunktsysteme sind insbesondere die optischen Phononen von Interesse, da diese im Gegensatz zu den akustischen Phononen auch bei kleinen Impulsen $\mathbf{q}$ Energien besitzen, die eine Streuung der Elektronen und Löcher zwischen den diskreten Quantenpunktzuständen erlaubt. Da Quantenpunkte und Benetzungsschicht nur einen kleinen Teil des Halbleiters ausmachen, wird angenommen, dass die Phononen des Volumenmaterials nur schwach durch die Strukturierung des Halbleiters beeinflusst werden. Außerdem stellen diese Phononen den überwiegenden Teil der Phononen, so dass im Wesentlichen nur diese zur Wechselwirkung beitragen. Dementsprechend werden nur diese Phononen betrachtet. Siehe zu den Eigenschaften von Phononen auch Ref. [19].

5.1 Fröhlich-Kopplung

Die Gitterionen in einem Festkörper bewirken aufgrund ihrer Ladung eine Änderung der Energie der Elektronen

$$v_G(\mathbf{r},t) = \sum_j v\left(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j(t)\right) \ , \tag{5.1}$$

wobei $v\left(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j\right)$ die Coulomb-Energie (4.2) ist. Dabei ist zu bedenken, dass der Beitrag der Gitterionen j in deren Ruhelage $\mathbf{R}_j^0$ schon in der Bandstruktur berücksichtigt wird und lediglich die Auslenkungen $\mathbf{u}_j(t) = \mathbf{R}_j(t) - \mathbf{R}_j^0$ zur Elektron-Phonon-Wechselwirkung beitragen. Gemäß Taylor-Entwicklung erhält man für das Potential der Gitterionen bei kleinen Auslenkungen

$$v_G(\mathbf{r},t) = \sum_j v\left(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j^0 - \mathbf{u}_j(t)\right) = \sum_j \ v\left(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j^0\right) - \nabla v\left(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j^0\right) \cdot \mathbf{u}_j(t) \ . \tag{5.2}$$

Während der erste Term dabei das statische Potential der Gitterionen beschreibt, ruft der zweite Term die Elektron-Phonon-Wechselwirkung hervor, die in zweiter Quantisierung

durch den Hamiltonoperator

$$H_{\text{e-pn}} = -\sum_j \nabla v\left(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j^0\right) \cdot \mathbf{u}_j \Psi^\dagger \Psi \tag{5.3}$$

beschrieben wird. Durch Entwicklung der Auslenkung

$$\mathbf{u}_j = \sum_{\mathbf{q}} \sqrt{\frac{\hbar}{2M\omega_{\mathbf{q}}}} \mathbf{e}_q e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}_j^0} \left(b_{\mathbf{q}} + b_{-\mathbf{q}}^\dagger\right) \tag{5.4}$$

in Normalmoden und der Feldoperatoren

$$\Psi = \sum_\alpha \phi_\alpha a_\alpha \tag{5.5}$$

nach Eigenfunktionen ϕ_α, wobei $\mathbf{e}_\mathbf{q}$ der Polarisationsvektor, M die Ionen-Masse und $\omega_\mathbf{q}$ die Frequenz der Mode $\mathbf{q}$ ist, erhält man mit

$$\nabla v\left(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j^0\right) = \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{q}} i\mathbf{q} v_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q}\left(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j^0\right)} \ , \tag{5.6}$$

$$\sum_j e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}_j^0} = \delta\left(\mathbf{q}\right) \tag{5.7}$$

für den Hamilton-Operator

$$H_{\text{e-pn}} = \sum_{\alpha,\beta,\mathbf{q}} M_{\alpha,\beta}\left(\mathbf{q}\right) \left(b_{\mathbf{q}} + b_{-\mathbf{q}}^\dagger\right) a_\alpha^\dagger a_\beta \tag{5.8}$$

mit den Wechselwirkungsmatrixelementen

$$M_{\alpha,\beta}\left(\mathbf{q}\right) = -i\sqrt{\frac{\hbar}{2M\omega_{\mathbf{q}}}} \frac{1}{V} v_{\mathbf{q}} \mathbf{e}_q \mathbf{q} \left\langle \phi_\alpha \left| e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} \right| \phi_\beta \right\rangle \ . \tag{5.9}$$

Aufgrund des Skalarproduktes $\mathbf{e}_\mathbf{q}\mathbf{q}$ tragen hier also nur longitudinale Phononen bei. Dies ist eine Folge der Linearisierung in den Auslenkungen. Die Wechselwirkung mit transversalen Phononen erfordert dagegen Beiträge höherer Ordnung und ist dementsprechend schwach. Daher werden in dieser Arbeit ausschließlich longitudinale optische (LO) Phononen betrachtet.

Für die Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung erhält man im Rahmen der Fröhlich-Kopplung [29] unter der Annahme einer konstante Dispersion $\omega_\mathbf{q} = \omega_{LO}$, die für LO-Phononen in guter Näherung erfüllt ist, die Matrixelemente

$$M_{\alpha,\beta}(\mathbf{q}) = \frac{1}{\sqrt{V}} \frac{M_{LO}}{|q|} \left\langle \phi_\alpha \left| e^{i\mathbf{q}\rho} \right| \phi_\beta \right\rangle \tag{5.10}$$

mit der Kopplungsstärke

$$M_{LO}^2 = 4\pi\alpha \frac{\hbar}{\sqrt{2\mu}} \left(\hbar\omega_{LO}\right)^{3/2} \ . \tag{5.11}$$

Dabei ist

$$\alpha = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\hbar}\sqrt{\frac{\mu}{2\hbar\omega_{LO}}}\left(\frac{1}{\epsilon(\infty)} - \frac{1}{\epsilon(0)}\right) \tag{5.12}$$

die dimensionslose Fröhlich-Kopplungskonstante [29], die materialabhängig ist und experimentell bestimmt werden kann. Sie ist über die Elementarladung e, effektive Masse μ, die Dielektrizitätskonstante des Vakuums ϵ_0 sowie die materialabhängigen Dielektrizitätskonstanten für den statischen $\epsilon(0)$ und hochfrequenten $\epsilon(\infty)$ Fall definiert. Während die Ionen nur bei niederfrequenter Anregung (beschrieben durch $\epsilon(0)$) zur Dielektrizitätskonstante beitragen, reagieren die Elektronen aufgrund ihrer vergleichsweise kleinen Masse auch auf hochfrequente Anregungen, was durch $\epsilon(\infty)$ beschrieben wird. Dementsprechend wird durch die Differenzbildung in der Fröhlich-Kopplungskonstante der ionische Anteil beschrieben.

5.2 Polaronische Selbstenergie

Im folgenden wird in Analogie zur Coulomb-Wechselwirkung eine RPA-Selbstenergie für die Elektron-Phonon-Wechselwirkung eingeführt. Eine grundlegende Herleitung über die Funktionalableitungstechnik ist beispielsweise in Ref. [81, 99, 124] zu finden. Der Hartree-Anteil wird in Kap. 5.3 diskutiert.

Die Elektron-Phonon-Wechselwirkung soll als eine effektive Wechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern dargestellt werden, die über Phononen vermittelt wird. Da die Energie der Phononen deutlich kleiner als die Bandlücke der betrachteten Materialien ist, werden hier nur Intrabandwechselwirkungen betrachtet und dementsprechend keine Bandindizes verwendet. Die Phononen sollen durch ein Phononenbad dargestellt werden, das nicht durch die Wechselwirkung beeinflusst wird. Dazu wird die Wechselwirkung in zweiter Ordnung bezüglich des Hamiltonoperators (5.3) betrachtet. So lässt sich ein zur Wechselwirkungslinie der Coulomb-Wechselwirkung analoger Phononpropagator

$$\begin{aligned} D^{>}_{\alpha\beta\gamma\delta}(t_1,t_2) &= \sum_{\mathbf{q}} M_{\alpha,\delta}(\mathbf{q})\, M_{\beta,\gamma}(-\mathbf{q}) \left\langle \left[b_{\mathbf{q}} + b^{\dagger}_{-\mathbf{q}}\right]_{t_2} \left[b_{-\mathbf{q}} + b^{\dagger}_{\mathbf{q}}\right]_{t_1} \right\rangle \\ &= \sum_{\mathbf{q}} M_{\alpha,\delta}(\mathbf{q})\, M_{\beta,\gamma}(-\mathbf{q}) \underbrace{\left[(1+N_{LO})\, e^{-i\omega_{LO}(t_1-t_2)} + N_{LO} e^{i\omega_{LO}(t_1-t_2)}\right]}_{d^{>}(t_1,t_2)} \end{aligned} \tag{5.13}$$

einführen, der die Wirkung eines sich im thermodynamischen Gleichgewicht befindenden Phononenbads beschreibt. Dabei wird der Erwartungswert des phononischen Anteils $d^{>}(t_1,t_2)$ unter Annahme einer freien Zeitentwicklung für die Phononen gebildet, so dass sich die Beschreibung der Phononen auf deren Energie $\hbar\omega_{LO}$ und die Phononbesetzung

$$N_{LO} = \frac{1}{e^{\frac{\hbar\omega_{LO}}{k_B T}} - 1}\,, \tag{5.14}$$

die durch eine Boseverteilung gegeben ist, reduzieren lässt. Der zu $1 + N_{LO}$ proportionale Term beschreibt die spontane und induzierte Emission eines Phonons und der zu N_{LO}

proportionale Term die Absorption. Die Lebensdauer der LO-Phononen wird durch die Streuung mit anderen Phononen reduziert. Dies wird phänomenologisch durch eine zusätzliche Dämpfung $e^{-\Gamma_{LO}/\hbar}$ berücksichtigt:

$$\begin{aligned} D^{>}_{\alpha\beta\gamma\delta}(t_1,t_2) = \sum_{\mathbf{q}} & M_{\alpha,\delta}(\mathbf{q})\, M_{\beta,\gamma}(-\mathbf{q}) \\ & \left[(1+N_{LO})\, e^{-i\omega_{LO}(t_1-t_2)} + N_{LO} e^{i\omega_{LO}(t_1-t_2)}\right] e^{-\frac{\Gamma_{LO}}{\hbar}(t_1-t_2)} \,. \end{aligned} \tag{5.15}$$

In Übereinstimmung mit experimentellen Befunden [98] wird $\Gamma_{LO}/\hbar = 0,2/\text{ps}$ als phänomenologische Dämpfung verwendet.

Die effektiven Matrixelemente der Fröhlich-Kopplung in zweiter Ordnung

$$|M_{\alpha\beta\gamma\delta}(\mathbf{q})|^2 = \frac{\hbar\omega_{LO}}{2}\left(1-\frac{\epsilon(\infty)}{\epsilon(0)}\right) V_{\alpha\beta\gamma\delta}(\mathbf{q}) \tag{5.16}$$

entsprechen bis auf einen Vorfaktor den Matrixelementen der Coulomb-Wechselwirkung. Somit erhält man ausgehend von der RPA-Selbstenergie der Coulomb-Wechselwirkung aus Gl. (4.15) die entsprechende Selbstenergie der Elektron-Phonon-Wechselwirkung, indem man die abgeschirmte Wechselwirkungslinie $W(\underline{2},\underline{1})$ der Coulomb-Wechselwirkung durch eine Linie der Elektron-Phonon-Wechselwirkung $D(\underline{2},\underline{1})$ ersetzt

$$\Sigma(\underline{1},\underline{2}) = G(\underline{1},\underline{2})\, D(\underline{2},\underline{1}) \,. \tag{5.17}$$

Dabei wird für $D(\underline{2},\underline{1})$ allerdings keine Instantanität angenommen, so dass diese Selbstenergie insbesondere auch Streuung beschreibt und nicht nur für Renormierungen sorgt. Ferner wird eine unabgeschirmte Wechselwirkung angesetzt. Durch Entwicklung nach Eigenfunktionen erhält man für bezüglich des Zustands diagonale Greensche Funktionen und Selbstenergien

$$\Sigma^{\lessgtr}_{\alpha,\alpha}(t_1,t_2) = \sum_{\gamma} G^{\lessgtr}_{\beta,\beta}(t_1,t_2)\, \underbrace{D^{\lessgtr}_{\alpha\beta\alpha\beta}(t_1,t_2)}_{D^{\lessgtr}_{\alpha,\beta}(t_1,t_2)} \tag{5.18}$$

und dementsprechend für die retardierte Selbstenergie

$$\begin{aligned} \Sigma^{R}_{\alpha,\alpha}(t_1,t_2) =& \Theta(t_1-t_2)\left(\Sigma^{>}_{\alpha,\alpha}(t_1,t_2) - \Sigma^{<}_{\alpha,\alpha}(t_1,t_2)\right) \\ =& \Theta(t_1-t_2)\sum_{\beta}\left(G^{>}_{\beta,\beta}D^{>}_{\beta,\alpha} - G^{<}_{\beta,\beta}D^{<}_{\beta,\alpha}\right)_{(t_1,t_2)} \\ =& \Theta(t_1-t_2)\sum_{\beta}\left(G^{R}_{\beta,\beta}D^{>}_{\beta,\alpha} - G^{<}_{\beta,\beta}\left(D^{<}_{\beta,\alpha} - D^{>}_{\beta,\alpha}\right)\right)_{(t_1,t_2)} \,. \end{aligned} \tag{5.19}$$

Geht man von einem unangeregten Kristall aus, so erhält man im Elektron-Loch-Bild durch die verschwindende Besetzung ($G^{<}=0$) für Gl. (5.19) den vereinfachten Ausdruck

$$\Sigma^{R}_{\alpha,\alpha}(t_1,t_2) = \sum_{\beta} G^{R}_{\beta,\beta}(t_1,t_2) D^{>}_{\beta,\alpha}(t_1,t_2) \,. \tag{5.20}$$

Dies stellt eine gute Näherung für geringe Anregungsdichten dar, da sich die spektralen Eigenschaften in diesem Bereich kaum ändern (siehe Ref. [30] und Kap. 6.3.2). Durch

das Wegfallen von $G^<$ in der retardierten Selbstenergie entkoppelt die Kadanoff-Baym-Gleichung für die retardierte Greensche Funktion (5.1) von der Besetzung, so dass G^R separat von der Kinetik berechnet werden kann.

Diese Entkopplung wird auch durch die Annahme einer konstanten Ladungsträgerbesetzung erreicht. Durch Umformungen erhält man gemäß Gl. (5.19) für die polaronische Selbstenergie durch Anwendung des retardierten GKBA (3.86) bei konstanten Besetzungen

$$\Sigma^R_{\alpha,\alpha}(t_1,t_2) = \sum_\beta G^R_{\beta,\beta}(t_1-t_2)\left[(1-f_\beta)D^>_{\beta,\alpha}(t_1-t_2) + f_\beta D^<_{\beta,\alpha}(t_1-t_2)\right] . \tag{5.21}$$

Der erste Term gibt die Wirkung der Ausstreuung aus dem Zustand α in den Zustand β an und der zweite die Wirkung der entgegengesetzten Einstreuung. Mit zunehmender Besetzung findet also eine Umverteilung von Ausstreuung zu Einstreuung statt. Alternativ lässt sich dies durch einen Übergang von Emission zu Absorption und umgekehrt darstellen, was zu einem modifizierten Phononpropagator

$$\widetilde{D^>}_{\beta,\alpha}(t) = \sum_{\mathbf{q}} |M_{\alpha,\beta}(\mathbf{q})|^2 \left[(1-f_\beta+N_{LO})e^{-i\omega_{LO}t} + (f_\beta+N_{LO})e^{i\omega_{LO}t}\right] \tag{5.22}$$

führt (vergleiche Gl. (5.15)), mit dem man wieder die bekannte Form für die Selbstenergie des Null-Dichte-Falls (5.20)

$$\Sigma^R_{\alpha,\alpha}(t_1,t_2) = \sum_\beta G^R_\beta(t_1-t_2)\widetilde{D^>_{\beta,\alpha}}(t_1-t_2) \tag{5.23}$$

erhält.

Dies lässt sich unter der vereinfachenden Annahme strikter Energieerhaltung folgendermaßen verstehen. Betrachtet man ein Elektron im Zustand α in einem System mit den Zuständen β_+, der eine Phononenergie oberhalb von α liegt, und β_-, der eine Phononenergie unterhalb von α liegt, so kann das Elektron in α in einem leeren System ($f_\beta = 0$ mit $\beta \neq \alpha$) mit β_+ lediglich über die Absorption und mit β_- über die Emission eines Phonons durch Ausstreuung aus α wechselwirken. Neben dieser Ausstreuung trägt im Falle eines angeregten Systems auch die Einstreuung zu den spektralen Eigenschaften von α bei. So kann α auch mit β_+ über Emission und mit β_- über Absorption eines Phonons durch Einstreuung wechselwirken. Mit zunehmender Besetzung findet so entsprechend den verfügbaren Ladungsträgern und den verfügbaren unbesetzten Zuständen eine Umverteilung zu letztgenannten Prozessen statt.

5.3 Hartree-artiger Anteil

Neben der RPA-Selbstenergie gibt es ebenfalls einen Hartree-artigen Anteil der Elektron-Phonon-Wechselwirkung. Dieser ergibt sich analog zur Coulomb-Wechselwirkung (siehe

Kap. 4.2.1):

$$\begin{aligned}
\Sigma^R_{\alpha_1\alpha_1}(t) =& -\frac{1}{2}\int dt' \sum_{\beta 2}\left[G^>_{\beta_2}(t') + G^<_{\beta_2}(t')\right] D^R_{\alpha_1\beta_2\beta_2\alpha_1}(t,t') \\
=& \frac{1}{i\hbar}\int dt' \sum_{\beta\mathbf{q}} M_{\alpha_1\alpha_1}(\mathbf{q})\left[f_{\beta_1}(t')M^*_{\beta_1\beta_1}(\mathbf{q}) - f_{\beta_3}(t')M^*_{\beta_3\beta_3}(\mathbf{q})\right] \\
& \left(d^>(t-t') - d^<(t-t')\right)\Theta(t-t') \quad \text{mit } 3 \neq 1 \\
=& \frac{1}{i\hbar}\int_{-\infty}^{t} dt' \sum_{\beta\mathbf{q}} M_{\alpha_1\alpha_1}(\mathbf{q})\left[f_{\beta_1}(t')M^*_{\beta_1\beta_1}(\mathbf{q}) - f_{\beta_3}(t')M^*_{\beta_3\beta_3}(\mathbf{q})\right] \\
& \left(e^{-i\omega_{LO}(t-t')} - e^{i\omega_{LO}(t-t')}\right) \quad \text{mit } 3 \neq 1\,.
\end{aligned} \tag{5.24}$$

Dies lässt sich unter Annahme einer konstanten Besetzung und einer verschwindenden Dämpfung $\gamma \to +0$ mittels

$$\begin{aligned}
\int_{-\infty}^{t} dt' \left[e^{-i\omega_{LO}(t-t')} - e^{i\omega_{LO}(t-t')}\right] e^{-\gamma(t-t')} =& i\left[\frac{1}{-\omega_{LO}+i\gamma} - \frac{1}{\omega_{LO}+i\gamma}\right] \\
=& -2i\frac{1}{\omega_{LO}}
\end{aligned} \tag{5.25}$$

zu

$$\Sigma^R_{\alpha_1\alpha_1}(t) = -\frac{2}{\hbar\omega_{LO}}\sum_{\beta q} M_{\alpha_1\alpha_1}(\mathbf{q})\left[f_{\beta_1}M^*_{\beta_1\beta_1}(\mathbf{q}) - f_{\beta_3}M^*_{\beta_3\beta_3}(\mathbf{q})\right] \text{ mit } 3 \neq 1 \tag{5.26}$$

vereinfachen.

Der Hartree-Anteil beschreibt die Wechselwirkung mit dem Ladungshintergrund, wobei die Coulomb-Wechselwirkung (siehe Kap. 4.2.1) die direkte Wechselwirkung mit anderen Elektronen oder Löchern und die Elektron-Phononen-Wechselwirkung die über Phononen (also Gitterionen) vermittelte Wechselwirkung berücksichtigt. Dabei unterscheiden sich die Hartree-Anteile der beiden Wechselwirkungen gemäß Gl. (5.16) lediglich um den Vorfaktor

$$\frac{\epsilon(\infty) - \epsilon(0)}{\epsilon(0)}\,. \tag{5.27}$$

Betrachtet man also beide Hartree-Terme ((4.20) und (5.26)), lassen sich diese zu einem Term

$$\Sigma^H_{\text{all}} = \frac{\epsilon(\infty)}{\epsilon(0)}\Sigma^H_{\text{Coulomb}} \tag{5.28}$$

zusammenfassen, der im Vergleich zum Hartree-Anteil der Coulomb-Wechselwirkung neben dem Anteil der Elektronen ($\epsilon(0)$) auch den Anteil der Ionen an der Dielektrizitätskonstante berücksichtigt. Im Folgenden wird der Hartree-artige Anteil der Elektron-Phononen-Wechselwirkung nicht berücksichtigt, da es sich hierbei lediglich um eine Energieverschiebung handelt.

Teil II

Wirkung und Zusammenspiel der Wechselwirkungen

6 Spektrale Eigenschaften

Neben der Kinetik, die in Kap. 7 behandelt wird, sind Renormierungen eine wichtige Folge von Wechselwirkungen. Diese reichen von einfachen Energieverschiebungen, die beispielsweise durch die Hartree-Fock-Selbstenergie hervorgerufen werden, über komplexe Renormierungen, die zu neuen Quasiteilchen führen, bis hin zur Beeinflussung anderer Wechselwirkungen, die beim Zusammenspiel zwischen Coulomb- und Elektron-Phonon-Wechselwirkung auftreten. Zur Untersuchung dieser Renormierungen, die die Kinetik und optischen Eigenschaften deutlich beeinflusst, werden im Folgenden die energetischen Eigenschaften anhand der in Kap. 3 eingeführten retardierten Greenschen Funktionen und der daraus abgeleiteten Spektralfunktionen untersucht. Dabei wird von Systemen im Gleichgewicht ausgegangen, so dass die Selbstenergie nur noch von festen Besetzungen abhängt und somit die Kopplung (3.84) der spektralen Eigenschaften an die Kinetik entfällt.

Die zeitliche Entwicklung der retardierten Greenschen Funktionen wird ausgehend von der Kadanoff-Baym-Gleichung (3.95) mittels der in Kap. 4 und 5 eingeführten Selbstenergien berechnet und untersucht. Aufgrund ihrer selbstkonsistenten Berechnung beinhalten die so berechneten retardierten Greenschen Funktionen sämtliche Kombinationen der in den Selbstenergien beschriebenen Wechselwirkungsprozesse. Dabei werden anhand von InGaAs-Quantenpunkten zunächst die Coulomb- (Kap. 6.2) und Elektron-Phonon-Wechselwirkung (Kap. 6.3) getrennt behandelt, bevor deren kombinierte Wirkung in Kap. 6.4 betrachtet wird. Die hier vorgestellten retardierten Greenschen Funktionen werden für die Berechnung der Kinetik in den Kap. 7 bis 9 verwendet.

6.1 Bedeutung und Berechnung der Spektralfunktion

Die Annahme konstanter Besetzungen führt nicht nur zur Unabhängigkeit der retardierten Greenschen Funktionen G^R und damit der spektralen Eigenschaften von der Kinetik, deren Wirkung durch die Annahme ja gerade vernachlässigt wird, sondern auch dazu, dass eine Invarianz bezüglich der Schwerpunktzeit vorliegt:

$$G^R(t_1, t_2) = G^R(t_1 + t_3, t_2 + t_3) \; . \tag{6.1}$$

Es bietet sich daher an, die Parametrisierung der Zeitargumente auf eine Relativzeit $\tau = t_1 - t_2$ und Schwerpunktzeit $T = \frac{t_1+t_2}{2}$ zu ändern. Für die G^R reicht es dabei sich auf die Relativzeit zu beschränken

$$G^R(t_1, t_2) = G^R(t_1 - t_2) \; . \tag{6.2}$$

Ferner sind im Folgenden nur diagonale Greensche Funktionen G und Selbstenergien Σ von Interesse, so dass die Schreibweise $G_\alpha = G_{\alpha,\alpha}$ verwendet wird.

Die Spektralfunktion eines Zustandes α

$$\widehat{G}_\alpha(\omega) = -\frac{1}{\pi}\Im G^R_\alpha(\omega) \tag{6.3}$$

ergibt sich aus der zugehörigen, im Zustand diagonalen retardierten Greenschen Funktion. Diese lässt sich im Frequenzraum bezüglich der Relativzeit als

$$G^R_\alpha(\omega) = \frac{1}{\hbar\omega - \epsilon_\alpha - \Sigma^R_\alpha(\omega)} \tag{6.4}$$

schreiben, so dass die Spektralfunktion über

$$\widehat{G}_\alpha(\omega) = -\frac{1}{\pi}\Im\frac{1}{\hbar\omega - \epsilon_\alpha - \Sigma^R_\alpha(\omega)} \tag{6.5}$$

gegeben ist, wobei ϵ_α die freie Energie des Zustandes α ist. Da von einer zeitlich konstanten Besetzung ausgegangen wird, sind die hier betrachteten Selbstenergien und somit Spektralfunktionen nicht von der Schwerpunktzeit abhängig.

Für ein freies Teilchen ohne Wechselwirkung verschwindet die Selbstenergie

$$\Sigma^R_\alpha(\omega) = 0\,, \tag{6.6}$$

so dass für dessen Spektralfunktion ein δ-Peak

$$\begin{aligned}\widehat{G}_\alpha(\omega) &= -\frac{1}{\pi}\Im\frac{1}{\hbar\omega - \epsilon_\alpha + i\nu} \quad \text{mit} \quad \nu \to +0 \\ &= \delta(\hbar\omega - \epsilon_\alpha)\end{aligned} \tag{6.7}$$

bei der freien Energie des betrachteten Zustandes folgt. Dies entspricht der Tatsache, dass nicht wechselwirkende Zustände eine diskrete Energie besitzen.

Zur Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung wird häufig eine Renormierung der Zustandsenergie [58, 114] angesetzt

$$\tilde{\epsilon}_\alpha = \epsilon_\alpha + (\Delta_\alpha - i\Gamma_\alpha) \quad \text{mit} \quad \Delta, \Gamma \in \mathbb{R}\,, \tag{6.8}$$

wobei Δ_α eine Verschiebung der Energie und Γ_α eine Verbreiterung des Energiepeaks bewirkt, die der durch die Wechselwirkung hervorgerufenen begrenzten Lebensdauer des Zustands entspricht. Dementsprechend erhält man anstelle eines δ-Peaks, der einer unendlichen Lebensdauer entspricht, einen verbreiterten lorentzförmigen Peak

$$\widehat{G}_\alpha(\omega) = \frac{1}{\pi}\frac{\Gamma_\alpha}{(\hbar\omega - \epsilon_\alpha - \Delta_\alpha)^2 + \Gamma_\alpha^2}\,. \tag{6.9}$$

Dies wird als Polnäherung bezeichnet. Der wechselwirkende Zustand kann also nicht mehr mit einer scharfen Energie beschrieben werden, sondern mit einer Energieverteilung, der Spektralfunktion. In Kap. 6.2 wird dieser Ansatz mit einer vollen Rechnung entsprechend Gl. (6.14) verglichen. Im allgemeinen Fall - insbesondere bei Berücksichtigung der Elektron-Phonon-Wechselwirkung - können Spektralfunktionen komplexere Renormierungen mit mehreren Peaks aufweisen, wie in den folgenden Kap. 6.2 bis 6.4 gezeigt wird. Dabei kann

jeder dieser Peaks als Quasiteilchen aufgefasst werden, dessen Energie durch die Position des Peaks und dessen Lebensdauer durch die Breite des Peaks gegeben ist.

Die Spektralfunktion eines Zustands kann als Projektion der Zustandsdichte auf den betreffenden Zustand aufgefasst werden. Die Zustandsdichte des Systems

$$D(\hbar\omega) = \sum_{\alpha} \widehat{G}_{\alpha}(\omega) \tag{6.10}$$

ergibt sich somit direkt durch Summation der Spektralfunktionen aller Zustände des Systems. Dementsprechend sind die Spektralfunktionen normiert:

$$\int d(\hbar\omega)\, \widehat{G}_{\alpha}(\omega) = 1\ . \tag{6.11}$$

Berechnung der retardierten Green-Funktionen

Entsprechend der Kadanoff-Baym-Gleichung (3.95) erhält man in InGaAs-Quantenpunktsystemen, in denen nur bezüglich des Zustands diagonale Greensche Funktionen von Bedeutung sind, für die zeitliche Entwicklung der retardierten Greenschen Funktionen bei konstanten Besetzungen

$$\left(i\hbar\frac{\partial}{\partial t} - h_{\alpha}\right) G^R_{\alpha}(\tau) = \delta(\tau) + \int_0^{\tau} d\tau' \Sigma^R_{\alpha}(\tau - \tau') G^R_{\alpha}(\tau'), \tag{6.12}$$

wobei für die Berechnungen nicht direkt G^R bestimmt wird, sondern die über

$$G^R_{\alpha}(\tau) = G^R_{\alpha,0}(\tau)\widetilde{G}^R_{\alpha}(\tau) = \frac{1}{i\hbar}\Theta(\tau) e^{\frac{1}{i\hbar}\widetilde{\epsilon}_{\alpha}\tau}\widetilde{G}^R_{\alpha}(\tau) \tag{6.13}$$

definierte Renormierung $\widetilde{G}^R$, da sich mit dieser Gl. (6.12) zu

$$i\hbar\frac{\partial}{\partial\tau}\widetilde{G}^R_{\alpha}(\tau) = \int_0^{\tau} d\tau'\ \Sigma^R_{\alpha}\left(\tau - \tau'\right) \widetilde{G}^R_{\alpha}\left(\tau'\right) e^{-\frac{1}{i\hbar}\widetilde{\epsilon}_{\alpha}(\tau-\tau')} \tag{6.14}$$

mit

$$\widetilde{G}^R_{\alpha}(0) = 1 \tag{6.15}$$

vereinfacht. Dabei ist $\widetilde{\epsilon}_{\alpha}$ die Energie des Zustands α. Über diese Energie werden die Hartree-Fock-Renormierungen der Coulomb-Wechselwirkung, die lediglich zu Energieverschiebungen führen, berücksichtigt (siehe Gl. (6.17)). Die Wechselwirkungen, die komplexere Renormierungen bewirken, werden mittels der Selbstenergien Σ^R_{α} beschrieben. Es wird unter der Annahme, dass sich beide Spinrichtungen gleich entwickeln, nur eine Spinrichtung betrachtet. Bei Wechselwirkungsprozessen, die zwischen verschiedenen Spinrichtungen auftreten, wird daher im Folgenden die nicht betrachtete Spinrichtung durch die Betrachtete genährt.

6.2 Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung

In diesem Abschnitt werden die im Rahmen der Hartree-Fock- und SBA-Selbstenergie auftretenden Renormierungen der Coulomb-Wechselwirkung vorgestellt. Dabei wird die Bedeutung der Selbstkonsistenz im verwendeten quantenkinetischen Ansatz und dessen Zusammenhang mit dem Auftreten neuer Quasiteilchen diskutiert.

Selbstenergie

Der instantane Hartree-Fock-Anteil (4.21) der Coulomb-Wechselwirkung

$$\begin{aligned}\Sigma^{R,F}_{\alpha_1} &= -\sum_{\beta} f_{\beta_1} V_{\alpha_1\beta_1\alpha_1\beta_1} \\ \Sigma^{R,H}_{\alpha_1} &= \pm_1 2 \sum_{\beta} \left[f_{\beta_e} W_{\alpha_1\beta_e\beta_e\alpha_1} - f_{\beta_h} W_{\alpha_1\beta_h\beta_h\alpha_1} \right]\end{aligned} \tag{6.16}$$

bewirkt lediglich eine Verschiebung der Energie und kann somit über die renormierte Energie

$$\begin{aligned}\widetilde{\epsilon_{\alpha_1}} = \epsilon_{\alpha_1} + \sum_{\beta} &- f_{\beta_1} V_{\alpha_1\beta_1\alpha_1\beta_1} \\ &\pm_1 2 \left[f_{\beta_e} W_{\alpha_1\beta_e\beta_e\alpha_1} - f_{\beta_h} W_{\alpha_1\beta_h\beta_h\alpha_1} \right]\end{aligned} \tag{6.17}$$

berücksichtigt werden. Die Energien und Besetzungen sind dabei im Elektron-Loch-Bild angegeben und $\pm_1$ ist $+$ für $1 = e$ sowie $-$ für $1 = h$. Der Faktor 2 des Hartree-Anteils berücksichtigt die zweite Spinrichtung, die nicht explizit mitgerechnet wird. Dagegen erlaubt der Fock-Anteil keine Wechselwirkung zwischen verschiedenen Spinrichtungen.

Die Beiträge höherer Ordnung, die durch die Selbstenergie in zweiter Bornscher Näherung (SBA, siehe Kap. 4.2.2) beschrieben werden, können nicht mehr über eine einfache Energierenormierung dargestellt werden. Für diese nicht instantanen Beiträge gilt

$$\Sigma^R_{\alpha}(t) = \Theta(t) \left(\Sigma^{>}_{\alpha}(t) - \Sigma^{<}_{\alpha}(t) \right) \ , \tag{6.18}$$

so dass sich aus Gl. (4.25) für diese Beiträge

$$\begin{aligned}\Sigma^{R,SBA}_{\alpha_1}(t) = &- \frac{1}{i\hbar} \sum_{\beta\gamma\delta,3} \left[f_{\beta_1}(1-f_{\gamma_3}) f_{\delta_3} + (1-f_{\beta_1}) f_{\gamma_3}(1-f_{\delta_3}) \right] \left(\widetilde{G}^R_{\beta_1} \widetilde{G}^{R,*}_{\gamma_3} \widetilde{G}^R_{\delta_3} \right)_t \\ &* \left[2 W_{\beta_1\delta_3\gamma_3\alpha_1} W_{\alpha_1\gamma_3\delta_3\beta_1} - \delta_{1,3} W_{\delta_1\beta_1\gamma_1\alpha_1} W_{\alpha_1\gamma_1\delta_1\beta_1} \right] e^{\frac{1}{i\hbar}\left(\widetilde{\epsilon}_{\beta_1} - \widetilde{\epsilon}_{\gamma_3} + \widetilde{\epsilon}_{\delta_3}\right)t}\end{aligned} \tag{6.19}$$

ergibt. Dabei beschreibt der erste Summand aus Besetzungen die Wirkung einstreuender und der zweite Summand die Wirkung ausstreuender Prozesse. Der direkte Anteil ($\propto \ 2W_{\beta_1\delta_3\gamma_3\alpha_1} W_{\alpha_1\gamma_3\delta_3\beta_1}$) lässt wie der Hartree-Anteil eine Wechselwirkung zwischen verschiedenen Spinrichtungen zu, was hier ebenfalls über einen Faktor 2 beschrieben wird.

Da in dieser Arbeit in Bezug auf die SBA-Anteile der Coulomb-Wechselwirkung ausschließlich Eigenschaften der Quantenpunkte betrachtet werden, wird die SBA-Selbstenergie (6.19) nur für die Quantenpunktzustände berücksichtigt ($\alpha_1 \in$ QD). Die

nicht betrachteten SBA-Renormierungen der Benetzungsschichtzustände haben nur einen schwachen Einflüss auf die Quantenpunktzustände, da die Benetzungsschichtzustände quasikontinuierlich sind. So wirken sich zusätzliche Verbreiterungen oder die genaue Form der Spektralfunktionen kaum auf die gesamte Wirkung der Benetzungsschicht aus. Ferner sind die durch die Coulomb-Wechselwirkung verursachten Energieverschiebungen weitgehend im Hartree-Fock-Anteil enthalten.

Vergleich mit Polnäherung

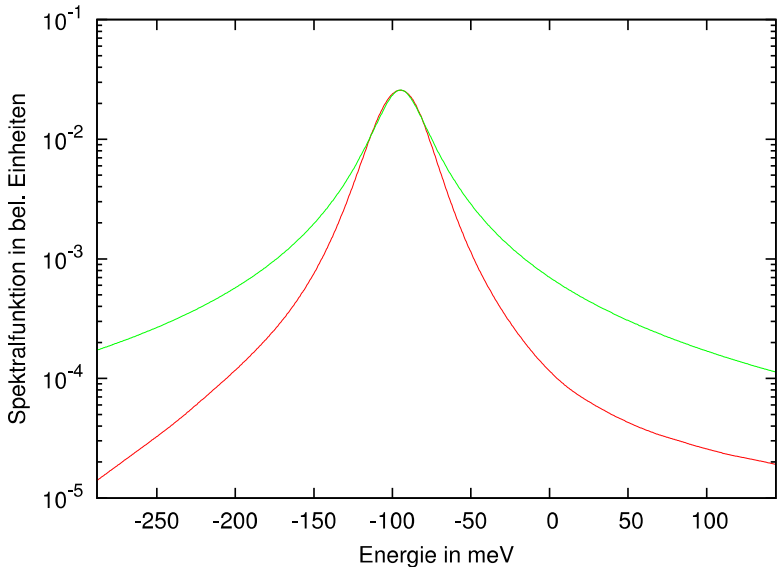


Abb. 6.1: Vergleich einer mittels SBA-Selbstenergie berechneten Spektralfunktion für den Grundzustand des Quantenpunkts (rot) und einer daran gefitteten Polnäherung (grün) logarithmisch aufgetragen für eine Besetzungsdichte von $5 \cdot 10^{11}\mathrm{cm}^{-2}$ (ohne Elektron-Phonon-Wechselwirkung).

Die über Gl. (6.9) gegebene Polnäherung wird aufgrund ihrer Einfachheit häufig zur Beschreibung der Coulomb-Wechselwirkung genutzt. Um deren Gültigkeit zu untersuchen, wird diese mit den Ergebnissen der quantenkinetischen Rechnung mit SBA-Selbstenergie (6.19) verglichen. Dazu ist in Abb. 6.1 zusätzlich zur berechneten Spektralfunktion (rot) eine angepasste Lorentzfunktion (grün) entsprechend Gl. (6.9) dargestellt. Die Lorentzverbreiterung fällt mit zunehmendem Abstand vom Maximum zunehmend langsamer ab als die berechnete Spektralfunktion. Dementsprechend führt eine Polnäherung zur Überschätzung der Aufweichung der Energieerhaltung. Dies lässt sich mit dem $t = 0$ Verhalten der retardierten Greensche Funktionen G^R begründen, deren zeitliche Entwicklung in Abb. 6.2 dargestellt ist. Entsprechend Gl. (6.14) ist G^R bei $t = 0$ konstant, wohingegen eine Polnäherung durch eine in der Zeit exponentiell abfallende Greensche Funktion zustande kommt. So bewirkt eine Polnäherung grade bei kleinen Zeiten einen zu schnellen Abfall und damit im Frequenzraum einen zu langsamen Abfall abseits des Maximums.

Darüber hinaus führt die asymmetrische Verteilung von Zuständen, mit denen der

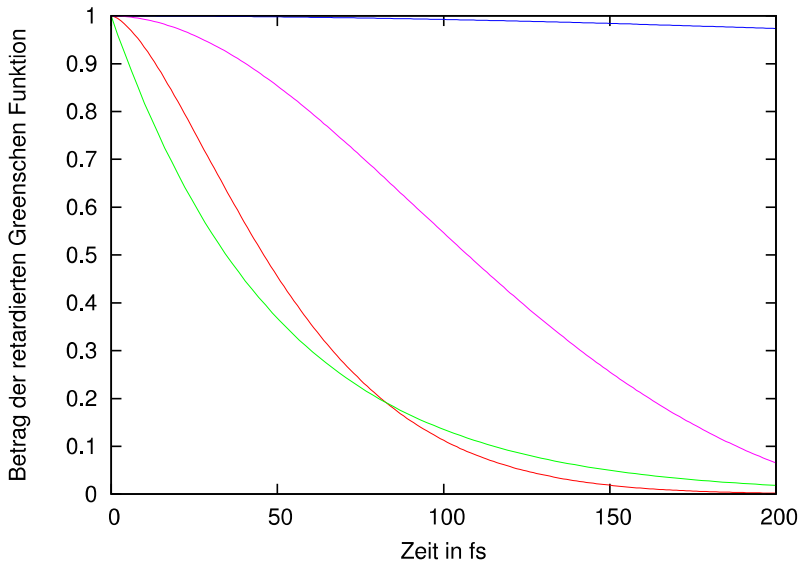


Abb. 6.2: Retardierte Greensche Funktion des elektronischen Grundzustands für verschiedene Besetzungsdichten ($1 \cdot 10^7 \mathrm{cm}^{-2}$ (blau), $1 \cdot 10^9 \mathrm{cm}^{-2}$ (lila) und $5 \cdot 10^{11} \mathrm{cm}^{-2}$ (rot)) sowie einer daran angepasste Polnäherung (grün) für $5 \cdot 10^{11} \mathrm{cm}^{-2}$ entsprechend Abb. 6.1.

betrachtete Zustand wechselwirkt, zu einer Asymmetrie der Wechselwirkung und damit zu einer Asymmetrie in der Spektralfunktion, die bei einer logarithmischen Darstellung deutlich zu erkennen ist. Dieser Effekt kann nicht durch eine Polnäherung beschrieben werden. Da der Grundzustand betrachtet wird, ist dabei zu bedenken, dass hier nur energetisch höhere Zustände zur Verfügung stehen und somit eine extreme Asymmetrie bezüglich der wechselwirkenden Zustände besteht. Dabei ist zu beachten, dass in Abb. 6.1 die Energieskala nicht bezüglich des Peaks zentriert ist.

Besetzungsabhängigkeit

Neben dem Vergleich zur Polnäherung zeigt Abb. 6.2 die zeitliche Entwicklung der Beträge der retardierten Greenschen Funktionen für Gleichgewichtsbesetzungen mit verschiedenen Anregungsdichten ($1 \cdot 10^7 \mathrm{cm}^{-2}$ (blau), $1 \cdot 10^9 \mathrm{cm}^{-2}$ (lila) und $5 \cdot 10^{11} \mathrm{cm}^{-2}$ (rot)), wobei die Beträge mit zunehmender Dichte schneller abfallen. Dies ist durch die zunehmende Wechselwirkung aufgrund der ansteigenden Anzahl möglicher Streuprozesse zu erklären, die entsprechend Gl. (6.19) proportional zu $f_{\beta_1}(1 - f_{\gamma_2})f_{\delta_2} + (1 - f_{\beta_1})f_{\gamma_2}(1 - f_{\delta_2})$ ist, so dass die Wechselwirkung mit der Besetzungsdichte für die hier betrachteten Dichten zunimmt. Eine stärkere Wechselwirkung führt zu einem schnellerem Abfall, der einer kürzeren Lebensdauer und damit einer größeren spektralen Verbreiterung entspricht.

Betrachtet man nun die Spektralfunktionen für verschiedene Besetzungen in Abb. 6.3, erkennt man eine dem Abfall der retardierten Greenschen Funktionen entsprechende besetzungsabhängige Verbreiterung sowie eine Energieverschiebung des Hauptpeaks, die auch in Abb. 6.4 dargestellt sind. Auf weitere Eigenschaften wird weiter unten

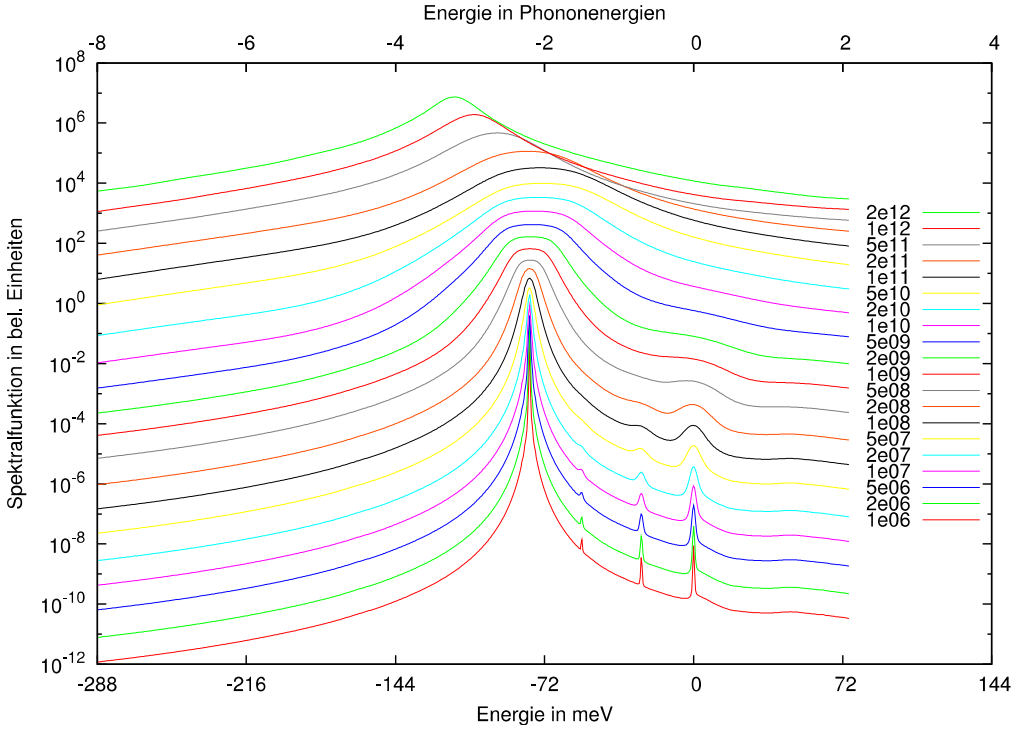


Abb. 6.3: Spektralfunktion des elektronischen Quantenpunktgrundzustands für Gleichgewichtsbesetzungen bei 300K und verschiedene Besetzungsdichten (in der Legende in cm^{-2} angegeben) unter Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung: Zu Präsentationszwecken ist jeweils zwischen den Funktionen benachbarter Besetzungsdichten ein Faktor von $3,3$ in die Spektralfunktionen eingeflossen; die Legende ist so gewählt, dass sich die Position der Einträge ebenfalls um den Faktor $3,3$ bezüglich der logarithmischen Skala unterscheiden, so dass alle Spektralfunktionen bezogen auf ihren Eintrag gleich normiert sind. Die Energie wird Zwecks besserer Vergleichbarkeit mit folgenden Abbildungen zusätzlich in Phononenergien ($\hbar\omega_{LO} = 36$meV) angegeben, auch wenn diese Energie im Fall der Coulomb-Wechselwirkung keine Bedeutung besitzt.

eingegangen. Zunächst nimmt die Verbreiterung des Hauptpeaks, die der Lebensdauer (bzw. Verweildauer) der Ladungsträger in dem Zustand entspricht, mit steigender Besetzungsdichte auf bis zu 42 meV bei $5 \cdot 10^{10}$ cm^{-2} zu. Bei darüber hinaus zunehmender Besetzung führen die Nichtbesetzungen $(1 - f)$ in den Besetzungsfaktoren in Gl. (6.19) aufgrund des Pauli-Blocking in Kombination mit der zunehmenden Abschirmung zu einer Reduktion der Wechselwirkungsstärke für den betrachteten Grundzustand, so dass die Lebensdauer wieder zunimmt und damit die Peakverbreiterung abnimmt. Diese Ergebnisse stimmen qualitativ mit einer Polnäherung überein, die in Ref.[58] auf das gleiche Quantenpunktsystem angewendet wurde. Beide Ergebnisse werden in Abb. 6.3 gegenübergestellt. So ist die maximale Verbreiterung (volle Breite bei halbem Maximum) des elektronischen Grundzustands von 42 meV etwa 30% größer als die 34 meV bei Anwendung der Polnäherung (dieser Wert wurde Ref. [58] entnommen).

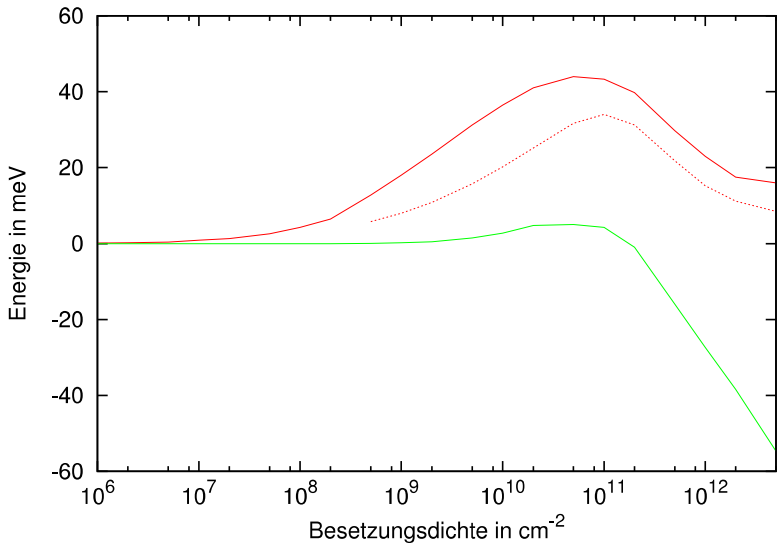


Abb. 6.4: Verbreiterung (rot, durchgehende Linie) und Energieverschiebung (grün) der Hauptpeaks der Spektralfunktionen des elektronischen Grundzustands in Abhängigkeit der Besetzungsdichte. Zu Vergleichszwecken sind die in Ref. [58] von Michael Lorke mittels einer Polnäherung berechneten Ergebnisse für die energetische Verbreiterung (rot, gestrichelte Linie) zusätzlich dargestellt.

Da die Energieverschiebungen im Wesentlichen durch Hartree-Fock-Beiträge, die unabhängig von der Behandlung der Beiträge höherer Ordnungen sind, hervorgerufen werden, stimmen die Ergebnisse beider Rechnungen in diesem Punkt gut überein. So kommt es ausgehend von einem unangeregten System zunächst aufgrund der höheren Bindungsenergie der Elektronen im Quantenpunkt zu einer Aufladung, so dass die Abstoßung der Ladungsträger deren Anziehung übersteigt. Dieser positive Hartree-Beitrag übersteigt zunächst den entgegenwirkenden Fock-Beitrag. Mit weiter zunehmender Besetzungsdichte nähert sich die Anzahl der Elektronen und Löcher allerdings an, so dass der Hartree-Beitrag gegen null geht. Dies ist Folge der gleichen einhüllenden Wellenfunktionen für Elektronen und Löcher, durch die die Matrixelemente unabhängig vom Band sind. Würde man dagegen InGaN-Quantenpunkte betrachten, in denen eine derartige Näherung nicht gerechtfertigt ist, würde der Hartree-Beitrag nicht verschwinden. Dagegen nimmt der Betrag des negativen Fock-Beitrags mit steigender Besetzung beständig zu, da es keinen kompensierenden Term gibt. So kommt es nach einem zunächst leichten Anstieg zu einem deutlichen Abfall der Energie für Besetzungen oberhalb von $1 \cdot 10^{11}\mathrm{cm}^{-2}$.

Deutung als Quasiteilchen

Darüber hinaus erhält man bei niedrigen Besetzungsdichten weitere kleine Peaks bzw. Satelliten. Diese sind im Rahmen des in Kap. 3 beschriebenen selbstkonsisten Schemas zu verstehen. So werden zwar in der Selbstenergie erst einmal nur Prozesse bestimmter Ordnung erfasst, aber diese beschreiben aufgrund der Selbstkonsistenz (in

den Selbstenergien befinden sich die vollen Greenschen Funktionen) Prozesse beliebiger Ordnung, sofern diese sich aus den in der Selbstenergie enthaltenen Prozessen zusammen setzen lassen. Dabei bilden sich die Prozesse höherer Ordnung iterativ bei der zeitlichen Entwicklung der Greenschen Funktionen, da für jeden Zeitschritt die bis dahin volle Funktion verwendet wird. Dies bedeutet im Umkehrschluss, dass sämtliche Teilprozesse bzw. im zeitlichen Kontext angefangene Prozesse höherer Ordnung in der Greenschen Funktion und damit in der Spektralfunktion enthalten sein müssen.

Die in den Spektralfunktionen (siehe Abb. 6.1 und 6.3) auftretenden Asymmetrien sowie die zusätzlichen Peaks können dementsprechend als Zwischenzustand eines Prozesses zweiter Ordnung bezüglich der SBA-Selbstenergie aufgefasst werden. Dabei können die Energieverschiebungen folgendermaßen interpretiert werden: Während bei einem Prozess erster Ordnung neben dem betrachteten Zustand noch drei weitere Zustände über die Selbstenergie beteiligt sind und somit über die retardierten Greenschen Funktionen zur Energieerhaltung beitragen, sind bei einem Prozess zweiter Ordnung acht Zustände involviert (vier Streuvorgänge). Die vier zusätzlichen Zustände werden dabei in dem selbstkonsistenten Ansatz nicht direkt, sondern über die Renormierung der übrigen Zustände berücksichtigt. Da diese vier Zustände selbst keiner Energieerhaltung unterliegen, sind für diese beliebige Kombinationen möglich. Um insgesamt wieder eine Energieerhaltung zu erreichen, müssen die ursprünglich betrachteten Zustände die Abweichung der zusätzlichen Zustände gerade kompensieren. Dementsprechend sind die Peaks der Zwischenzustände, die den zusätzlichen Prozess beinhalten, energetisch vom ursprünglichen Peak der Spektralfunktion verschoben.

Die zusätzlichen Peaks bei kleinen Dichten in Abb. 6.3 ergeben sich, wenn die in den Renormierungen berücksichtigten Übergänge alle zwischen diskreten Quantenpunktzuständen stattfinden. So führt der Übergang eines Elektrons aus dem angeregten Quantenpunktzustand p in den Grundzustand s zu einem Energieüberschuss von $40\text{meV} = \epsilon_p - \epsilon_s$. Der stets auftretende assistierende Prozess kann ebenfalls zwischen den elektronischen Quantenpunktzuständen (± 40meV) oder beim entsprechenden Loch-Übergang (± 15meV) erfolgen. Dementsprechend ergeben sich Peaks 25, 55 und 80 meV oberhalb des Hauptpeaks; der Peak des vierten Prozesses wird vom Hauptpeak überlagert.

Da die Coulomb-Prozesse, sobald die quasikontinuierliche Benetzungsschicht involviert ist, keine diskrete Energie aufweisen, ergeben sich für derartige Übergänge keine weiteren Peaks, sondern ein breiter Untergrund, der die leichte Asymmetrie der Spektralfunktionen bewirkt. Auch sind Peaks, die Prozesse noch höherer Ordnung repräsentieren, nicht erkennbar, da diese Prozesse nicht mehr hinreichend wahrscheinlich sind. Ferner treten keine Prozesse, bei denen drei Ladungsträger gestreut werden, auf, da diese nicht in der Selbstenergie berücksichtigt werden. Bei höheren Besetzungsdichten nimmt die Coulomb-Wechselwirkung und somit die Verbreiterung der Peaks zu, so dass diese Satelliten nur bei relativ geringen Besetzungsdichten erkennbar sind. Während die Satelliten hier nur schwach ausgeprägt sind (in Abb. 6.3 wird eine logarithmische Skala verwendet), sind sie für Elektron-Phonon-Wechselwirkung, die im Folgenden behandelt wird, von großer Bedeutung.

6.3 Polaronen

Wie bereits für die Coulomb-Wechselwirkung gezeigt wurde, kommt es durch diskrete Energien zu zusätzlichen Peaks in den Spektralfunktionen, die als Quasiteilchen aufgefasst werden können. Im Gegensatz zur Coulomb-Wechselwirkung erfolgt die Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung mit Phononen von in guter Näherung fester Energie $\hbar\omega_{LO}$, so dass die Quasiteilchen hier weitaus stärker ausgeprägt sind. Ferner kommt es durch den Einschluss in den Quantenpunkten zu einer starken Kopplung und dabei zu Hybridisierungen, die einen wichtigen Einfluss auf die Kinetik haben.

Selbstenergie

Die retardierte Selbstenergie der Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung (RPA-Anteil) gemäß Gl. (5.22) und (5.23) bezüglich der Relativzeit ist über

$$\Sigma_\alpha^{R,LO}(t) = \frac{1}{i\hbar}\sum_\beta \widetilde{G}_\beta^R(t) e^{\frac{1}{i\hbar}\widetilde{\epsilon}_\beta t}\widetilde{D_{\beta,\alpha}^{>}}(t) \tag{6.20}$$

mit den durch Besetzungen renormierten Phonon-Propagatoren

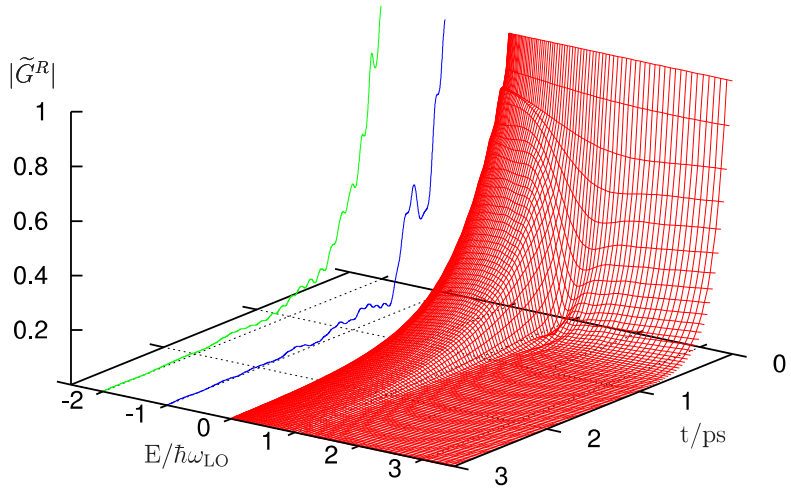
$$\widetilde{D_{\beta,\alpha}^{>}}(t) = \sum_{\mathbf{q}} |M_{\alpha\beta}(\mathbf{q})|^2 \left[(1 - f_\beta + N_{LO})e^{-i\omega_{LO}t} + (f_\beta + N_{LO})e^{i\omega_{LO}t}\right] \tag{6.21}$$

gegeben.

Numerische Ergebnisse

Der Betrag der Renormierungsfunktion $|\widetilde{G}_\alpha(t)|$ ist für Raumtemperatur ($300K$, $N_{LO} = 0,31$) in Abb. 6.5a für Elektronen als Funktion der Relativzeit t und der freien Energie E dargestellt. Da ein unbesetztes System angenommen wird, fallen die Besetzungen im renormierten Phononpropagator (6.21) weg und man erhält wieder den Phononpropagator (5.15). Definitionsgemäß gilt $\widetilde{G}(0) = 1$. Mit zunehmender Relativzeit fällt der Betrag in grober Näherung exponentiell ab, wobei die Greenschen Funktionen der Elektronen für Energien oberhalb einer Phononenenergie deutlich schneller abfallen als unterhalb. Dementsprechend besitzen die Zustände unterhalb einer Phononenenergie eine längere Lebensdauer. Dies ist dadurch zu erklären, dass aus diesen Zuständen die Emission von Phononen kaum möglich ist, da es im allgemeinen keine passenden Zielzustände mit um eine Phononenergie reduzierter Energie gibt. Im hier betrachteten Modellquantenpunkt liegen die elektronischen Quantenpunktzustände mit ihren Energien $1,1\hbar\omega_{LO}$ bzw. $2,2\hbar\omega_{LO}$ unterhalb der Bandkante und sind somit unpassend. Daher tritt fast ausschließlich Absorption auf, wodurch die Möglichkeit der Ausstreuung gegenüber den höherenergetischen Zuständen deutlich reduziert ist. Bei den Löchern, für die Ergebnisse in Ref. [103] gezeigt werden, verhält es sich ebenfalls so. Allerdings liegen hier die Quantenpunktzustände $0,4\hbar\omega_{LO}$ bzw. $0,8\hbar\omega_{LO}$ unterhalb der Bandkante, so dass aus den Zuständen der Benetzungsschicht mit Energien um $0,6\hbar\omega_{LO}$ bzw. $0,2\hbar\omega_{LO}$ Emission von

a)



b)

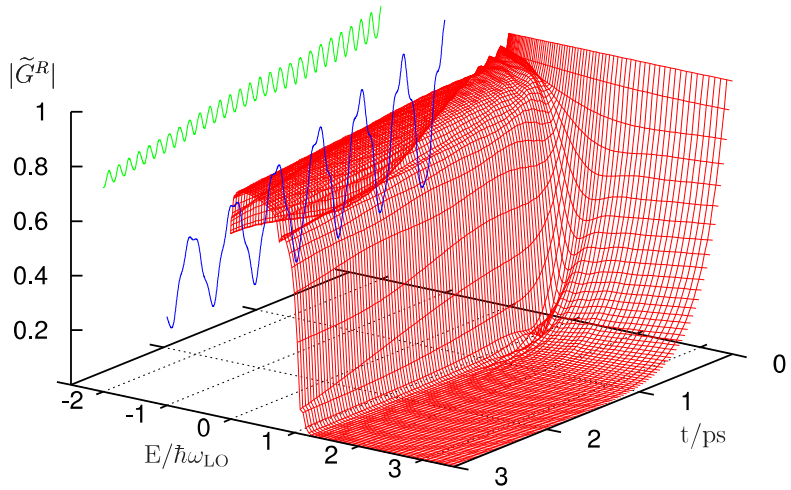


Abb. 6.5: Zeitlichen Entwicklung des Betrages der retardierten Greensche Funktionen der elektronischen Zustände bei 300K (a) und 77K (b) für die Benetzungsschicht (rot), die angeregten Quantenpunktzustände (blau) und den Grundzustand (grün): Die Zustände sind durch ihre Energie relativ zur Bandkante der Benetzungsschicht klassifiziert und es wird ein unbesetztes System angenommen.

Phononen möglich ist. Deren reduzierte Lebensdauern zeigen sich in einem schnelleren

Abfall.

Da die Absorption proportional zur Phononbesetzung ist, die für Phononen im thermischen Gleichgewicht einer Bose-Verteilung folgt, ist die Absorption bei niedrigeren Temperaturen im Vergleich zur Emission deutlich schwächer. So nehmen die retardierten Greenschen Funktionen bei $77K$ (siehe Abb. 6.5b) unterhalb einer Phononenenergie aufgrund der kleinen Phononbesetzung ($N_{LO} = 0,0037$) nur sehr langsam ab, so dass sich ein Plateau bildet. Dagegen ist die Temperaturabhängigkeit oberhalb einer Phononenenergie deutlich schwächer, da dort neben der Absorption auch die besetzungs- und somit temperaturunabhängige spontane Emission beiträgt.

Zwar liegt die freie Energie der p-Schale der Elektronen mit $-1,1\hbar\omega$ deutlich mehr als eine Phononenenergie von der Bandkante entfernt, doch gibt es bei den Elektronen an der Bandkante dennoch einen merklich schnelleren Abfall. Dies kann durch die Verbreiterung der Energiepeaks in der Spektralfunktion erklärt werden, durch die auch Streuung zwischen Zuständen möglich wird, deren freie Energien aufgrund der Energieerhaltung keine erlauben würden. Insbesondere auf den Plateaus sind bei kleinen Zeiten Oszillationen mit einer Frequenz von etwa ω_{LO} zu erkennen, die mit zunehmender Zeit immer schwächer werden. Diese deuten auf zusätzliche Peaks in der Spektralfunktion bei $\pm\hbar\omega_{LO}$ hin (s. Kap. 6.3.1).

Für die Beträge der Renormierungsfunktionen der Quantenpunktzustände (grün: Grundzustand, blau: angeregte Zustände) ergibt sich ein ähnlicher exponentieller Abfall wie für die Benetzungsschichtzustände, der jedoch deutlich komplexere Oszillationen aufweist. Diese Oszillationen besitzen - bei 77 K deutlich erkennbar - ebenfalls Anteile mit der Frequenz ω_{LO}. Wie auch die Oszillationen bei den Benetzungsschichtzuständen deuten diese auf zusätzliche Peaks in der Spektralfunktion hin. Auf diese wird in Kap. 6.3.2 eingegangen.

Die Wechselwirkung zwischen Elektronen und Phononen führt zu neuen Quasiteilchen, den Polaronen, die sich aus einem Elektron und einer variablen Anzahl von Phononen zusammensetzen. Diese Quasiteilchen stellen sich als Peaks in der Spektralfunktion dar, die entsprechend Gl. (6.3) leicht aus den retardierten Greenschen Funktionen gewonnen werden kann. Da sich die Diskussion von Polaronen in der Benetzungsschicht, die einen Quantenfilm bildet, und in Quantenpunkten deutlich unterscheiden, werden zunächst Polaronen in der Benetzungsschicht betrachtet, bevor auf Quantenpunkte eingegangen wird. Dabei wird jeweils zuerst eine analytische Betrachtung des Polarons vorgestellt, bevor die numerisch berechnete Spektralfunktion interpretiert wird.

6.3.1 Polaronen in der Benetzungsschicht

Anschaulich lässt sich ein Polaron als ein Ladungsträger verstehen, der sich durch einen Ionenkristall bewegt und dabei aufgrund der Coulomb-Wechselwirkung geladene Ionen anzieht bzw. abstößt, wodurch eine Polarisationswolke, die sich durch Phononen beschreiben lässt, um den Ladungsträger erzeugt wird. Zusammen mit der Polarisationswolke bildet der Ladungsträger eine gekoppelte Anregung, die als Polaron bezeichnet wird. Die Polaronen stellen Eigenzustände des Hamiltonoperators der Elektron-Phonon-Wechselwirkung dar, deren Eigenwerte für eine schwache Kopplung ($\alpha \ll 1$) ansatzweise durch Störungsrechnung [19, 61] bestimmt werden können. Dabei bewirkt die

Renormierung eine konstante Energieabsenkung

$$\Delta \approx \alpha \hbar \omega_{LO} \ , \tag{6.22}$$

den Polaronenshift, der durch die anziehende Wechselwirkung zwischen Ladungsträger und Polarisationswolke hervorgerufen wird, die dadurch entsteht, dass abstoßende Gitterionen einen größeren Abstand und anziehende einen kleineren Abstand zum Ladungsträger gegenüber einem starren Kristall einnehmen. Durch die Polarisationswolke, die sich bei der Bewegung des Elektrons mit bewegt, wird die Bewegung erschwert, wodurch die effektive Masse

$$m^* \approx \left(1 + \frac{\alpha}{6}\right) m \tag{6.23}$$

gegenüber einem starren Kristall ohne Phononen größer wird, wobei die parabolische Dispersion

$$\epsilon_{\mathbf{k}} = \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m^*} - \Delta \tag{6.24}$$

erhalten bleibt.

Phononrepliken

Darüber hinaus kommt es zur Bildung von Phononrepliken, die sich durch folgende analytische Überlegungen herleiten lassen. Ausgehend von der Selbstenergie (6.20) erhält man im Frequenzraum

$$\Sigma_\alpha^R(\omega) = \sum_{\beta,\mathbf{q}} |M_{\alpha,\beta}(\mathbf{q})|^2 \left[(N_{LO}+1)\, G_\beta^R(\omega - \omega_{LO}) + N_{LO} G_\beta^R(\omega + \omega_{LO}) \right] \ . \tag{6.25}$$

In niedrigster Ordnung reicht es aus, in der Selbstenergie freie retardierte Greensche Funktionen zu verwenden, so dass sich die Selbstenergie zu

$$\Sigma_\alpha^R(\omega) = \sum_{\beta,\mathbf{q}} |M_{\alpha,\beta}(\mathbf{q})|^2 \left[\frac{N_{LO}+1}{\hbar(\omega - \omega_{LO}) - \epsilon_\beta + i\eta} + \frac{N_{LO}}{\hbar(\omega + \omega_{LO}) - \epsilon_\beta + i\eta} \right] \tag{6.26}$$

vereinfacht. Für quasikontinuierliche Zustände β erhält man über die Dirac-Identität für den Imaginärteil

$$\Im\Sigma_\alpha^R(\omega) = -\pi \sum_{\beta,\mathbf{q}} |M_{\alpha,\beta}(\mathbf{q})|^2 \left[(N_{LO}+1)\, \delta\left(\hbar(\omega - \omega_{LO}) - \epsilon_\beta\right) + N_{LO} \delta\left(\hbar(\omega + \omega_{LO}) - \epsilon_\beta\right) \right] \ . \tag{6.27}$$

Die hierdurch beschriebenen δ-förmigen Resonanzen des Imaginärteils der Selbstenergie führen entsprechend Gl. (6.5) zu Peaks in der Spektralfunktion. Durch die Summation über β und die Form der Matrixelemente $M_{\alpha,\beta}$, die breite Peaks für $\epsilon_\alpha \approx \epsilon_\beta$ aufweist (siehe Kap. A), erhält man verbreiterte Resonanzen bei $\hbar\omega = \epsilon_\alpha \pm \hbar\omega_{LO}$, die als Phononrepliken bezeichnet werden und analog zur Coulomb-Wechselwirkung als Quasiteilchen aufgefasst werden können. Bei stärkeren Kopplungen, die in den untersuchten Quantenpunkten

auftreten, ist eine Betrachtung in dieser Ordnung nicht mehr ausreichend. So kommt es entsprechend des Independent Boson Models (siehe Kap. 6.3.2) zur Bildung von Phononrepliken, die auch um Vielfache der Phononenergie verschoben sein können.

Die Phononrepliken können als Polaron, das gerade ein Phonon emittiert ($+\hbar\omega_{LO}$), bzw. absorbiert ($-\hbar\omega_{LO}$), aufgefasst werden. Aufgrund des spontanen Anteils ist die Emission proportional zu $N_{LO}+1$, so dass die höherenergetische Phononreplik stets auftritt. Dagegen ist der niederenergetische Peak nur für entsprechend hohe Temperaturen sichtbar, da die Absorption proportional zur Phononbesetzung ist, die einer Boseverteilung (5.14) folgt. Eine Untersuchung der Temperaturabhängigkeit erfolgt beispielsweise in Ref. [102].

Numerische Ergebnisse

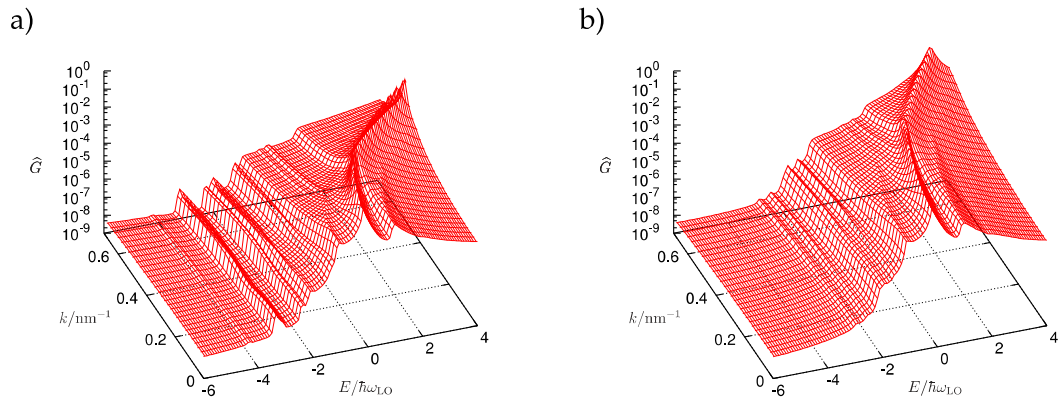


Abb. 6.6: Polaronische Spektralfunktion für Elektronen (a) und Löcher (b) der Benetzungsschicht bei 300K inklusive der Einflüsse aus der Wechselwirkung mit Quantenpunktzuständen, durch die sich dispersionslose Merkmale ergeben.

Abb. 6.6 zeigt die Ergebnisse der numerischen Rechnung für die an Quantenpunkte gekoppelten Benetzungsschichtzustände bei 300K ($N_{LO} = 0,31$). Aufgetragen ist die Spektralfunktion $\widehat{G}$ als Funktion der Frequenz ω und des Impulses k der betrachteten Zustände. Sowohl bei den Elektronen (Abb. 6.6a) als auch bei den Löchern (Abb. 6.6b) folgt der Hauptpeak in der ω-k-Ebene näherungsweise einer Parabel, welche weitgehend mit der modifizierten Dispersion der Störungsrechnung (6.24) übereinstimmt, also eine leicht erhöhte Masse und eine zusätzlich abgesenkte Energie aufweist. Dabei ist die Krümmung des Hauptpeaks bei den Löchern aufgrund ihrer größeren effektiven Masse schwächer als bei den Elektronen. Die Verbreiterung entspricht der Lebensdauer der Polaronen im jeweiligen Zustand. Ab etwa einer Phononenergie nimmt die Verbreiterung des Hauptpeaks sprunghaft und deutlich zu. Diese verkürzte Lebensdauer ist äquivalent mit dem schnelleren Abfall der retardierten Greenschen Funktionen (siehe Abb. 6.5) und ist auf die zusätzliche Möglichkeit der Emission durch Relaxation des Ladungsträgers in einen um eine Phononenenergie niedrigeren Benetzungsschichtzustand zu erklären.

Auch treten entsprechend der analytischen Überlegungen (6.27) Phononrepliken auf, die der Dispersion des Hauptpeaks folgen. Diese sind allerdings deutlich schwächer als der

Hauptpeak. Da die Emission aufgrund des spontanen Anteils immer die Absorption in einem unangeregten System ($f = 0$) übertrifft, ist die höherenergetische Replik stärker ausgeprägt. Entsprechend der Bose-Besetzung (5.14) der Phononen verschwindet der niederenergetische Peak für niedrige Temperaturen; siehe hierzu auch Ref. [102]. Daneben sind mehrere dispersionslose Merkmale bei Energien unterhalb der Bandkante zu erkennen, die ein Resultat der Wechselwirkung mit den Quantenpunktzuständen sind, auf die im nachfolgenden Abschnitt eingegangen wird. Analog kann das Plateau, das ab einer Phononenergie unterhalb der Bandkante auftritt, durch die Wechselwirkung mit anderen Benetzungsschichtzuständen erklärt werden.

6.3.2 Polaronen in Quantenpunkten

Wie zuvor für die Benetzungsschicht werden zwecks Interpretation der polaronischen Spektralfunktionen zunächst analytische Überlegungen für vereinfachte Systeme betrachtet. Dabei wird im Rahmen des Independent Boson Models ein einzelner diskreter Quantenpunktzustand betrachtet, der an LO-Phononen koppelt, bevor ein zusätzlicher Zustand und die daraus resultierende Hybridisierung zwischen beiden Zuständen betrachtet wird. Die Bedeutung polaronischer Effekte in Quantenpunkten wurde beispielsweise auch in Ref. [44, 116] untersucht.

Independent Boson Model

Für einen einzelnen diskreten Quantenpunktzustand α mit Energie ϵ_α und LO-Phononen mit Energie $\hbar\omega_{LO}$ und Impuls $\mathbf{q}$, die gemäß Gl. (5.8) gekoppelt sind erhält man den Hamilton-Operator

$$H = \epsilon_\alpha a_\alpha^\dagger a_\alpha + \sum_{\mathbf{q}} \hbar\omega_{LO} \left(b_{\mathbf{q}}^\dagger b_{\mathbf{q}} + \frac{1}{2} \right) + \sum_{\mathbf{q}} M_{\alpha,\alpha}(\mathbf{q}) a_\alpha^\dagger a_\alpha \left(b_{\mathbf{q}} + b_{-\mathbf{q}}^\dagger \right) \ . \tag{6.28}$$

Dieser lässt sich durch eine kanonische Transformation zu

$$H = a_\alpha^\dagger a_\alpha \left(\epsilon_\alpha - \Delta \right) + \sum_{\mathbf{q}} \hbar\omega_{LO} b_{\mathbf{q}}^\dagger b_{\mathbf{q}} \tag{6.29}$$

mit

$$\Delta = \sum_{\mathbf{q}} \frac{\left| M_{\alpha,\alpha}\left(\mathbf{q}\right) \right|^2}{\hbar\omega_{LO}} \tag{6.30}$$

umformen. Dies führt gemäß Ref. [61] zu der Spektralfunktion

$$\begin{aligned} \widehat{G}_\alpha(\omega) = 2\pi e^{-\frac{\Delta(2N_{LO}+1)}{\hbar\omega_{LO}}} \sum_{l=-\infty}^{\infty} I_l \left(\frac{2\Delta}{\hbar\omega_{LO}} \sqrt{N_{LO}(N_{LO}+1)} \right) e^{-\frac{l\hbar\omega_{LO}}{2k_B T}} \\ \times \delta\left(\hbar\omega - \epsilon_\alpha + \Delta - l \cdot \hbar\omega_{LO} \right) \ , \end{aligned} \tag{6.31}$$

die sich aus mehreren δ-Peaks im Abstand der Phononenenergie $\hbar\omega_{LO}$ zusammensetzt, wobei N_{LO} die Phononbesetzung, $k_B T$ die thermische Energie und I_l die Bessel-Funktionen sind. Dabei werden die Peaks mit zunehmendem Abstand von der renormierten Energie $\epsilon_\alpha - \Delta$ schwächer. Die Peaks bei $\epsilon_\alpha - \Delta + l \cdot \hbar\omega_{LO}$ lassen sich als Zustände interpretieren, die sich aus einem Elektron im Zustand α und l Phononen zusammensetzen.

Hybridisierung

Bei zwei Zuständen, die an LO-Phononen koppeln, ergibt sich nicht nur entsprechend des Independent Boson Models für jeden Zustand eine Aufspaltung, sondern es kommt aufgrund der starken Kopplung zwischen den Quantenpunktzuständen zusätzlich zu einer Hybridisierung zwischen den Peaks. Die starke Kopplung ist eine Folge der Lokalisierung der Zustände im Quantenpunkt. So reicht eine relativ kleine Kopplungsstärke in GaAs für die Hybridisierung von Quantenpunktzuständen aus, wohingegen sich solche Effekte bei den zuvor betrachteten delokalisierten Benetzungsschichtzuständen nicht zeigen.

Aus Gl. (6.29) folgt für dieses um einen Zustand β erweiterte Modell der Hamilton-Operator

$$H = a_\alpha^\dagger a_\alpha(\epsilon_\alpha - \Delta_\alpha) + a_\beta^\dagger a_\beta(\epsilon_\beta - \Delta_\beta) + \hbar\omega_{LO}\sum_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{q}}^\dagger b_{\mathbf{q}} - \sum_{\mathbf{q}} M_{\alpha\beta}(\mathbf{q})\left(b_{\mathbf{q}}^\dagger a_\alpha^\dagger a_\beta + a_\beta^\dagger a_\alpha b_{\mathbf{q}}\right) . \tag{6.32}$$

Dieses Modell entspricht dem aus der Quantenoptik bekannten Jaynes-Cummings-Modell [70, 126], das die Kopplung zweier atomarer Zustände durch ein einmodiges Photonenfeld beschreibt. Zwar werden hier mehrere Phononenmoden betrachtet, doch kommt es dadurch, dass die Phononen als dispersionslos angenommen werden, zu einem ähnlichen Ergebnis.

Betrachtet man nun ein Elektron im höherenergetischen Zustand ohne Phononen $|0,\beta\rangle$ und ein Elektron im niederenergetischen Zustand mit einem Phonon $|1,\alpha\rangle$ als Funktion der Energiedifferenz beider Zustände $\epsilon_\beta - \epsilon_\alpha$, ergibt sich ohne Wechselwirkung in Resonanz ($\epsilon_\beta - \epsilon_\alpha = \hbar\omega_{LO}$) eine Entartung der beiden Zustände. Aufgrund der Kopplung zwischen diesen Zuständen kommt es zur Hybridisierung, also zur Bildung zweier neuer Zustände $|1,\pm\rangle$ aus den ursprünglichen. Dies gilt für beliebige Phononenbesetzungen N_{LO}, so dass $|N_{LO},\beta\rangle$ und $|N_{LO}+1,\alpha\rangle$ die Hybridzustände $|N_{LO},\pm\rangle$ bilden. Dabei vermeiden die Hybridzustände eine Entartung, was als Anticrossing bezeichnet wird.

Die ursprünglichen Zustände lassen sich nun als Linearkombination der Hybridzustände verstehen, so dass diese Anteile beider Hybridzustände beinhalten. Damit werden aus den Peaks in der Spektralfunktion, die sich gemäß Independent Boson Model ergeben, jeweils Peaks bei den Energien der Hybridzustände. Abb. 6.7 zeigt numerische Ergebnisse der Spektralfunktion der p-Schale (entspricht β) für verschiedene energetische Abstände zur s-Schale (entspricht α).

Durch eine Diagonalisierung des Hamilton-Operators (6.32) erhält man die Eigenfrequenzen der Hybridzustände $|N_{LO},\pm\rangle$ [126],

$$\omega_{N_{LO},\pm} = \frac{1}{2}\left[\omega_\alpha + \omega_\beta + (2N_{LO}+1)\,\omega_{LO} \pm \sqrt{\delta^2 + \sum_{\mathbf{q}} |M_{\alpha\beta}(\mathbf{q})|^2\,(N_{LO}+1)}\right] , \tag{6.33}$$

wobei $\delta = \omega_\beta - \omega_\alpha - \omega_{LO}$ die Verstimmung gegenüber der Resonanz ist und $\omega_\alpha = \frac{\epsilon_\alpha - \Delta_\alpha}{\hbar}$. Dementsprechend hängt das Maß der Energieverschiebung gegenüber den ursprünglichen Peaks auch leicht von der Anzahl der Phononen (N_{LO}) ab, so dass sich Serien von Hybridzuständen bilden.

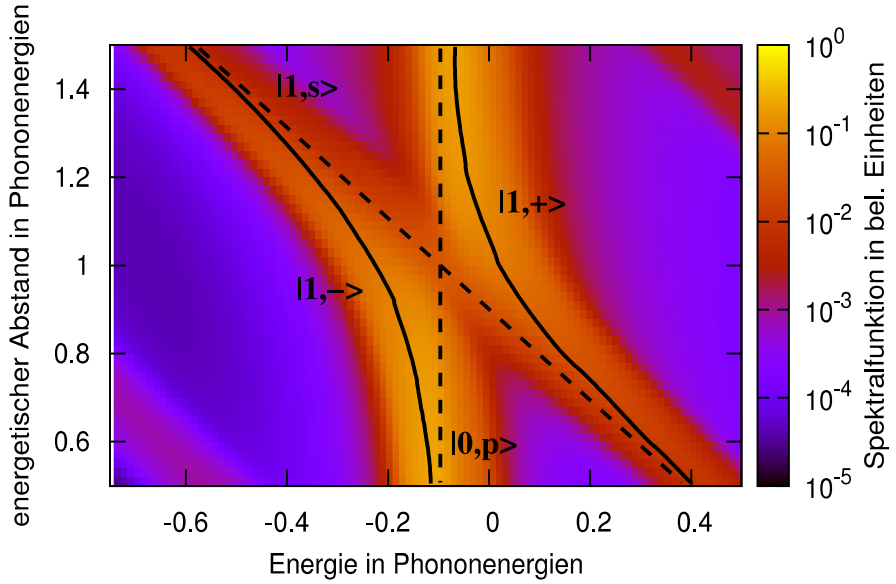


Abb. 6.7: Hybridisierung: Numerisch berechnete Spektralfunktionen der p-Schale für verschiedene Energieabstände zwischen den QD-Zuständen (logarithmische Skala). Ohne Wechselwirkung (gestrichelte Linien) würde der s-Zustand mit einem Phonon $|1, s>$ durch das Spektrum geschoben und der p-Zustand ohne Phononen $|0, p>$ bei konstanter Energie liegen. Es kommt zur Bildung von Hybridzuständen (durchgehende Linien). Die Spektralfunktionen setzt sich aus beiden Hybridzuständen zusammen, wobei jeweils der zum ursprünglichen p-Zustand näher liegende stärker beteiligt ist.

Numerische Ergebnisse

Die numerischen Ergebnisse für die Spektralfunktionen der Elektronen (Abb. 6.8) und Löcher (Abb. 6.9) zeigen sowohl die nach dem Independent Boson Model zu erwartende Aufspaltung, als auch Hybridisierungseffekte. Die Aufspaltung ist deutlich stärker als in der Benetzungsschicht (vergleiche Kap. 6.3.1), so dass jeweils sechs bzw. sieben Doppelpeaks zu erkennen sind. Dabei stellt der Hauptpeak jeweils den mit Abstand größten Teil der Spektralfunktion dar (die logarithmische Skalierung in den Abbildungen ist zu berücksichtigen). Aufgrund der Wechselwirkung mit der Benetzungsschicht kommt es auf der höherenergetischen Seite zur Bildung eines Plateaus, wohingegen die Spektralfunktion auf der niederenergetischen Seite abgesehen von den Phononrepliken abfällt.

Die Doppelpeakstruktur lässt sich direkt auf die Hybridisierung zurückführen. Dabei sind allerdings keine Serien von Hybridzuständen, wie sie aus dem Hamilton-Operator (6.32) gemäß Gl. (6.33) folgen, sondern jeweils ein großer Peaks zu beobachten. Numerisch folgt dies aus der Verwendung der mittleren Phononbesetzung N_{LO} im Phononpropagator. So bildet sich nicht für jede Phononenzahl eine Peak sondern für die mittlere Anzahl

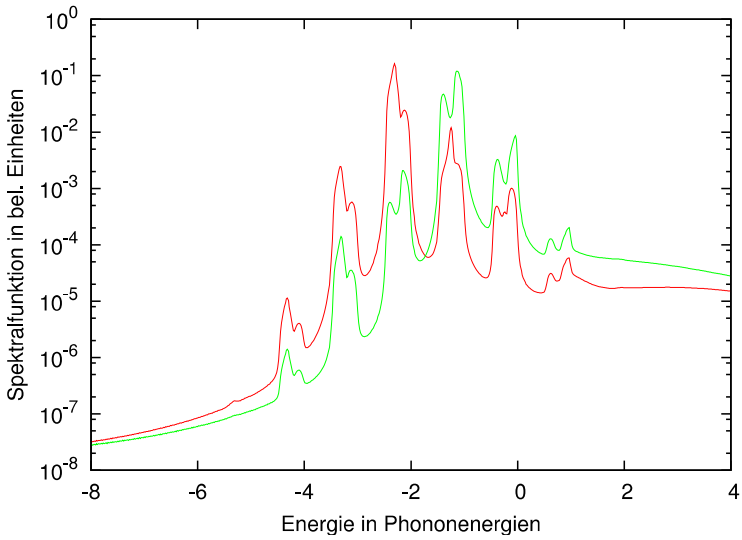


Abb. 6.8: Spektralfunktionen des Quantenpunkt-s-Zustands (rot) und eines Quantenpunkt-p-Zustands (grün) der Elektronen in Anwesenheit einer Benetzungsschicht bei 300K im unbesetzten Grundzustand: Es bilden sich mehrere Phononrepliken heraus, die hybridisieren. Dadurch ergibt sich ein starker spektraler Überlapp zwischen den Zuständen.

ein gemeinsamer Peak. Da die Kopplung mit den quasikontinuierlichen Zuständen der Benetzungsschicht zu einer gemessen am Abstand der einzelnen Peaks einer Serie großen Verbreiterung der Peaks führt, würden diese allerdings auch ohne diese Näherung nicht aufgelöst. In Ref. [114] werden für einen isolierten Quantenpunkt beide Rechnungen verglichen.

Die Peaks liegen in Übereinstimmung mit den in Abb. 6.7 gezeigten Greenschen Funktionen aufgrund des Anticrossing weiter auseinander, als es einzig durch die Energiedifferenz der freien Zustände der Fall wäre. Während die Energiedifferenz der elektronischen Quantenpunktzustände mit $1,1\ \hbar\omega_{LO}$ nahe einer Phononenergie liegt und somit eine starke Hybridisierung nicht verwundert, gibt es auch bei den Löchern schwächere, aber immer noch deutliche Hybridisierungseffekte, obwohl die Energiedifferenz hier mit $0,4\ \hbar\omega_{LO}$ deutlich von einer Phononenergie abweicht. Von besonderer Bedeutung ist, dass sich die Zustände aus den gleichen Hybridzuständen zusammensetzen, da so jeweils s- und p-Schale bei gleichen Energien Peaks aufweisen. Dies bewirkt eine effizientere Elektron-Phonon-Streuung zwischen den Quantenpunktzuständen.Dies kann über die Interpretation der Spektralfunktionen als Angabe der zu einem Zustand gehörenden Energien erklärt werden. Entgegen Fermis goldener Regel, nach der die Energieerhaltung über eine δ-Funktion beschrieben wird, wird die Energieerhaltung hier über den Überlapp der Spektralfunktionen, von denen eine um eine Phononenergie verschoben ist, beschrieben. Da die einzelnen Hybridzustände um fast genau eine Phononenergie auseinander liegen und beide hier betrachteten Quantenpunktzustände Anteile an diesen besitzen, ist dieser Überlapp deutlich größer, als würde es nicht zu einer Hybridisierung kommen. So ergibt sich selbst für die mit einem Abstand von $0,4\ \hbar\omega_{LO}$ energetisch ungünstig liegenden Lochzustände ein merklicher, wenn auch verglichen mit den Elektronen schwacher

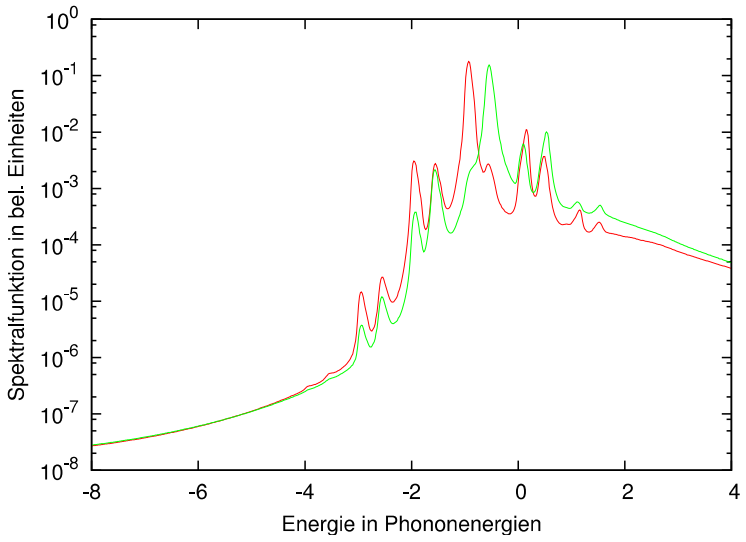


Abb. 6.9: Spektralfunktionen des Quantenpunkt-s-Zustands (rot) und eines Quantenpunkt-p-Zustands (grün) der Löcher in Anwesenheit einer Benetzungsschicht bei 300K im unbesetzten Grundzustand: Aufgrund des energetischen Abstands, der hier deutlich von einer Phononenenergie abweicht, liegen die Peaks der Hybridzustände im Vergleich zu den Elektronen (Abb. 6.8) weiter auseinander. Die unterschiedlichere Gewichtung der Hybridpeaks führt ferner zu einem geringeren spektralen Überlapp als bei den Elektronen.

Überlapp. Der Einfluss der Hybridisierung auf die Effizienz der Streuung zwischen Quantenpunktzuständen wird auch in Kap. 7.3.1 behandelt.

Polaron bei endlicher Dichte

Ausgehend von einem unbesetzten System, in dem die höherenergetischen Phononrepliken aufgrund der zusätzlichen spontanen Emission immer die niederenergetischen Repliken übertreffen, führt eine zunehmende Besetzung entsprechend Abb. 6.10 zu einer Umverteilung zu den niederenergetischen Peaks. Wie in Kap. 5.2 gezeigt wurde, kann die Abhängigkeit der Selbstenergie und damit der Spektralfunktionen von einer zeitlich konstanten Besetzung des Systems durch den renormierten Phononpropagator

$$\widetilde{D^{>}_{\beta,\alpha}}(t) = \sum_{\mathbf{q}} |M_{\alpha,\beta}(\mathbf{q})|^2 \left[(1 - f_\beta + N_{LO})e^{-i\omega_{LO}t} + (f_\beta + N_{LO})e^{i\omega_{LO}t}\right] \tag{6.34}$$

beschrieben werden, wobei mit zunehmender Besetzung ein Übergang von Emission zu Absorption für die Wechselwirkung mit den niederenergetischeren Zuständen und umgekehrt für die höherenergetischeren Zustände stattfindet. Dies entspricht dem Übergang von unbesetzten Zuständen, in die nur eingestreut werden kann, zu vollständig besetzten Zuständen, aus denen nur ausgestreut werden kann. Dies führt zu den gleichen Effekten, die beim Übergang von Elektronen zu Löchern auftreten. So kehrt sich auch die energetische Verschiebung der Peaks von einer Energieabsenkung zu einer entsprechenden

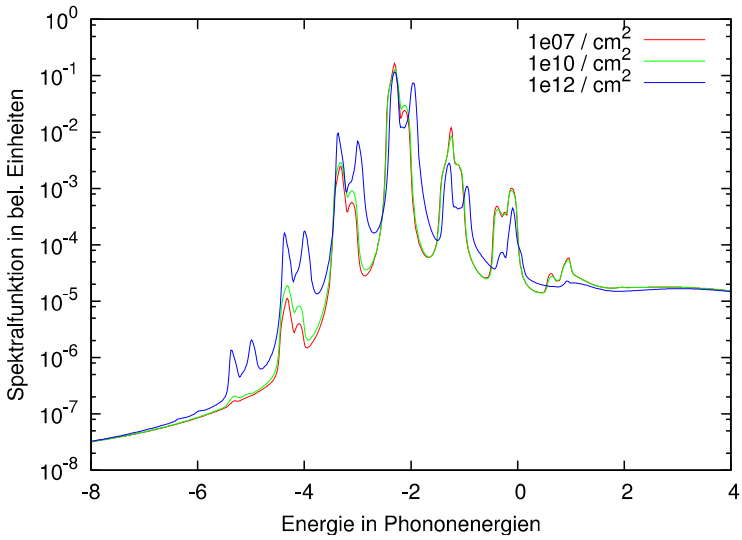


Abb. 6.10: Spektralfunktionen des elektronischen Grundzustands für verschiedene Besetzungsdichten (siehe Legende): Mit zunehmender Dichte findet eine Umverteilung von höher- zu niederenergetischen Peaks statt.

Erhöhung um, so dass es mit zunehmender Besetzung zu einer Verschiebung der Peaks zu höheren Energien kommt. Ferner kommt es zu einer Vergrößerung des energetischen Abstandes zwischen den hybridisierten Peaks und zu einer Umverteilung der Ausprägung dieser Peaks entsprechend dem Übergang von Emission zu Absorption und umgekehrt. Die Ergebnisse stimmen qualitativ mit denen aus Ref. [114] überein; ein quantitativer Vergleich wurde nicht durchgeführt.

6.4 Kombinierte Coulomb- und Elektron-Phonon-Wechselwirkung

Die bisherigen Berechnungen beziehen sich jeweils einzeln auf die Coulomb- oder Elektron-Phonon-Wechselwirkung. Allerdings kommt es in Halbleitern zu beiden Wechselwirkungen, wobei diese nicht unabhängig voneinander wirken. So kommt es zu kombinierten Streuprozessen, an denen beide Wechselwirkungen beteiligt sind. Ferner wirken sich Renormierungen der einen Wechselwirkung auch auf die andere aus. Dies erfordert es, beide Wechselwirkungen selbstkonsistent zueinander zu behandeln. Da der verwendete Ansatz bereits selbstkonsistent ist, reicht es bereits aus, beide Wechselwirkungen zusammen wirken zu lassen.

Um also sowohl die Coulomb- als auch die Elektron-Phonon-Wechselwirkungen zu berücksichtigen, wird bei der Berechnung der retardierten Greenschen Funktionen über Gl. (6.14) die Selbstenergie

$$\Sigma_\alpha^R(t) = \Sigma_\alpha^{R,LO}(t) + \Sigma_\alpha^{R,SBA}(t) \tag{6.35}$$

additiv aus den Selbstenergien der einzelnen Wechselwirkungen (siehe Kap. 6.1) zusammen

gesetzt. Zusätzlich wird der Hartree-Fock-Anteil direkt über die Renormierung der Energien berücksichtigt. Dieser Ansatz beinhaltet aufgrund der Selbstkonsistenz alle Kombinationen der Wechselwirkungsprozesse, die in den Selbstenergien der einzelnen Wechselwirkungen enthalten sind, sofern es dabei im diagramatischen Sinn zu keinen überkreuzenden Wechselwirkungslinien zwischen den einzelnen Selbstenergien kommt. In dieser Hinsicht ist der Ansatz analog zur RPA (3.91) aufzufassen, die zwar Prozesse beliebig hoher Ordnung beinhaltet, aber keine Prozesse zulässt, bei denen sich einzelne Wechselwirkungselemente überschneiden.

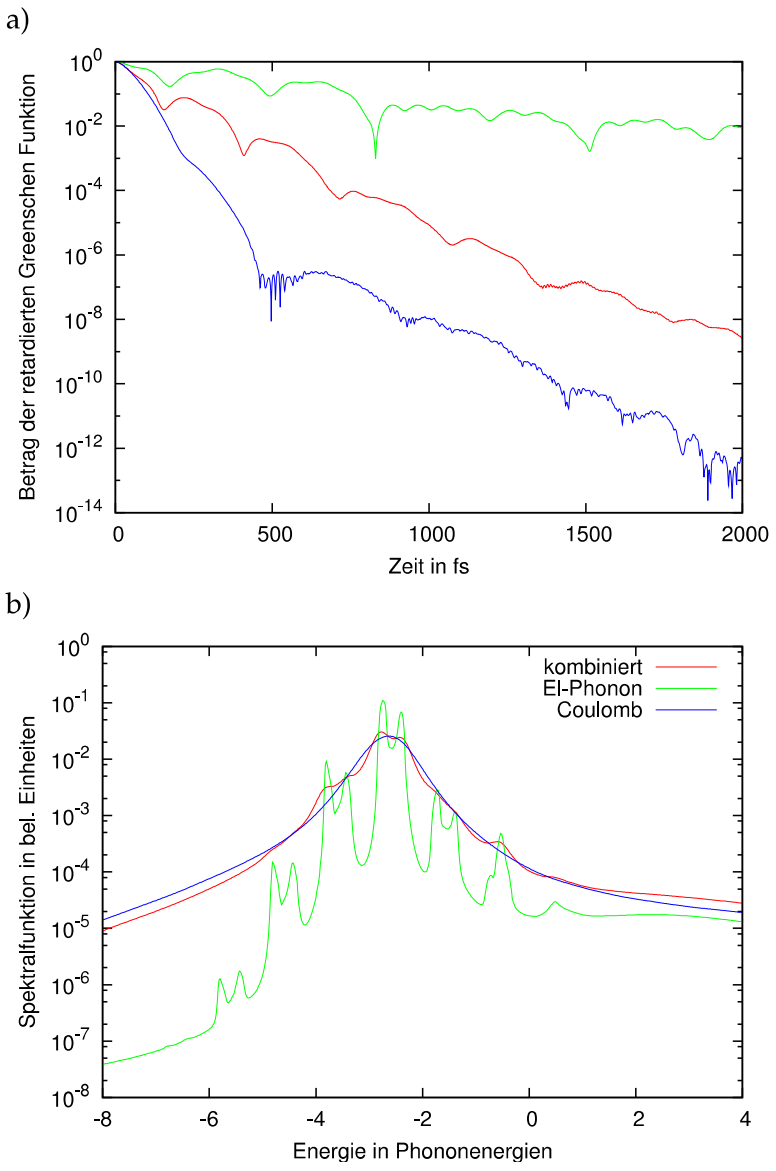


Abb. 6.11: Vergleich der Beträge der retardierten Greensche Funktionen (a) und Vergleich der Spektralfunktionen (b) des elektronischen Grundzustands bei Anwesenheit der Coulomb- (blau), der Elektron-Phonon-Wechselwirkung (grün) und beider Wechselwirkungen (rot) bei 300K und einer Besetzungsdichte von $5 \cdot 10^{11}\mathrm{cm}^{-2}$.

Abb. 6.11 zeigt die daraus resultierende retardierte Greensche Funktion (a) und Spektralfunktion (b) des elektronischen Grundzustands (rot). Zu Vergleichszwecken sind zusätzlich die in den vorhergehenden Kap. 6.2 und 6.3 behandelten Fälle mit Coulomb- (blau) und mit Elektron-Phonon-Wechselwirkung (grün, zur besseren Vergleichbarkeit mit Hartree-Fock-Renormierungen) dargestellt. Besonders auffällig ist dabei in Abb. 6.11a der Abfall des Betrages der retardierten Greenschen Funktion für die kombinierte Wechselwirkung, der zwar deutlich schneller als bei der Funktion für die Elektron-Phonon-Wechselwirkung, aber langsamer als für die Coulomb-Wechselwirkung erfolgt. Dementsprechend ist der zentrale Peak der kombinierten Wechselwirkungen etwas schmaler - hierbei ist die logarithmischen Skalierung zu berücksichtigen. Da der Abfall einer retardierten Greenschen Funktion bzw. die Peakbreite in der Spektralfunktion für einen stärkeren Einfluss der Wechselwirkungen stehen, bedeutet dies, dass die Elektron-Phonon- und Coulomb-Wechselwirkung einander entgegenwirken oder blockieren müssen.

Entsprechend des schnelleren Abfalls des Betrages der retardierten Greenschen Funktion für den reinen Coulomb-Fall (blau) und der damit verbundenen stärkeren Verbreiterung der Spektralfunktion ist diese auf der niederenergetischen Seite größer als die Spektralfunktion des kombinierten Falls (rot). Jedoch verhält es sich auf der höherenergetischen Seite gerade umgekehrt. Dieser Unterschied beruht wie bei den zuvor diskutierten Asymmetrien auf den zusätzlichen Zuständen des Systems. So führt das Zusammenspiel der Wechselwirkungen aufgrund der neuen Interaktionsmöglichkeiten zu einer verstärkten Wechselwirkung der Quantenpunktzustände mit der Benetzungsschicht, was sich eben in der erhöhten Spektralfunktion für hohe Energien zeigt. Somit muss die zuvor diskutierte Abschwächung der Wechselwirkung von den Quantenpunktzuständen herrühren. In Kap. 7.3.1 und 7.3.2 werden die daraus resultierenden Effekte auf die Kinetik diskutiert.

Die Phononrepliken in der Spektralfunktion werden durch die Coulomb-Wechselwirkung - abhängig von der Ladungsträgerbesetzung - weitgehend überdeckt, sind aber meistens noch leicht zu erkennen. Insbesondere der Hauptpeak behält eine markante, wenn auch nur noch schwach ausgeprägte Doppelpeakstruktur. Auch wenn die Coulomb-Wechselwirkung im Null-Dichte-Fall verschwindet, tritt dieser Effekt schon bei geringen Besetzungsdichten auf, wie in Abb. 6.12 gezeigt wird. So reicht bereits eine Ladungsträgerdichte von $5 \cdot 10^8$ cm^{-2}, die 0,05 Ladungsträger pro Quantenpunkt entspricht, um die Höhe der zentralen Phononrepliken um über die Hälfte zu reduzieren. Bis zu einer Dichte von etwa $2 \cdot 10^{11}$ cm^{-2} nimmt der Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung auf den Quantenpunkt zu. Für weiter steigende Dichten nimmt dieser aufgrund der zunehmenden Abschirmung und vor allem des Pauli-Blockings wieder leicht ab, so dass die Phononrepliken bei $2 \cdot 10^{12}$ cm^{-2} wieder etwas markanter sind. Dies ist auch gut in Abb. 6.13a zu erkennen, die die Spektralfunktionen der kombinierten Wechselwirkungen für weitere Besetzungsdichten zeigt. Bemerkenswert ist, dass dieser Effekt schon bei deutlich kleineren Besetzungen auftritt, als entsprechend Kap. 7 für effiziente Coulomb-Streuung notwendig sind. Dies folgt direkt aus den Besetzungsfaktoren, von denen es hier im Vergleich zur Kinetik einen weniger gibt, so dass es hier zu einem für kleine Dichten linearen Beitrag der SBA-Selbstenergie bezüglich der Anregungsdichte kommt. Die bei der Coulomb-Wechselwirkung beobachteten Satelliten bei kleinen Anregungsdichten werden hier durch die Elektron-Phonon-Wechselwirkung überlagert.

Zu Vergleichszwecken sind in Abb. 6.13b die Spektralfunktionen unter Einfluss der

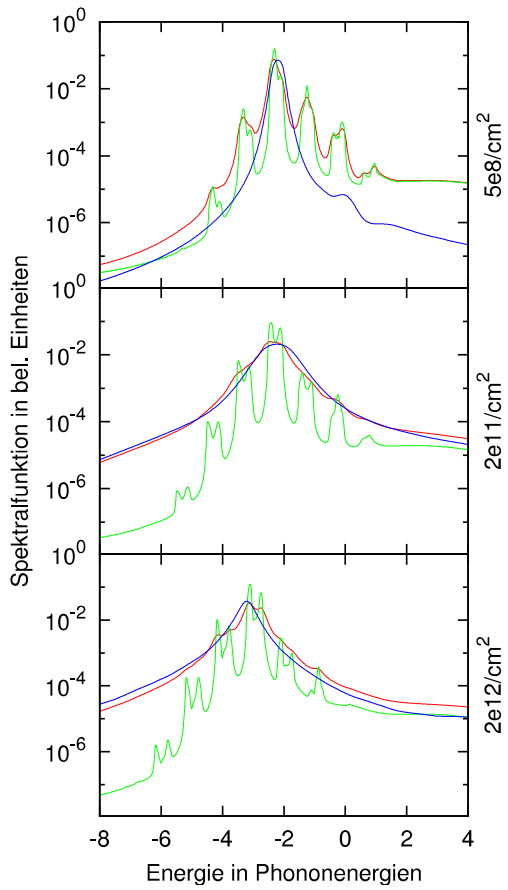


Abb. 6.12: Vergleich der Spektralfunktionen unter Einfluss der Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkungen (grün) und unter Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung (blau) mit den Spektralfunktionen (rot), die dem Einfluss beider Wechselwirkungen unterliegen, für verschiedene Besetzungen. Zur besseren Vergleichbarkeit wurden die Hartree-Fock-Renormierungen, die lediglich eine energetische Verschiebung bewirken, für alle Spektralfunktionen berücksichtigt.

Elektron-Phonon-Wechselwirkung kombiniert mit den Hartree-Fock-Renormierungen (also ohne SBA-Selbstenergie) dargestellt. Es sind die von der Elektron-Phonon-Wechselwirkung bekannten besetzungsabhängigen Änderungen sowie die Energieverschiebungen der Hartree-Fock-Wechselwirkung zu erkennen, wobei sich beide Effekte nur unwesentlich beeinflussen. Dagegen ist im Vergleich zu Abb. 6.13a zu erkennen, dass die Verbreiterungen der Spektralfunktionen weitgehend auf die SBA-Selbstenergie zurückzuführen ist.

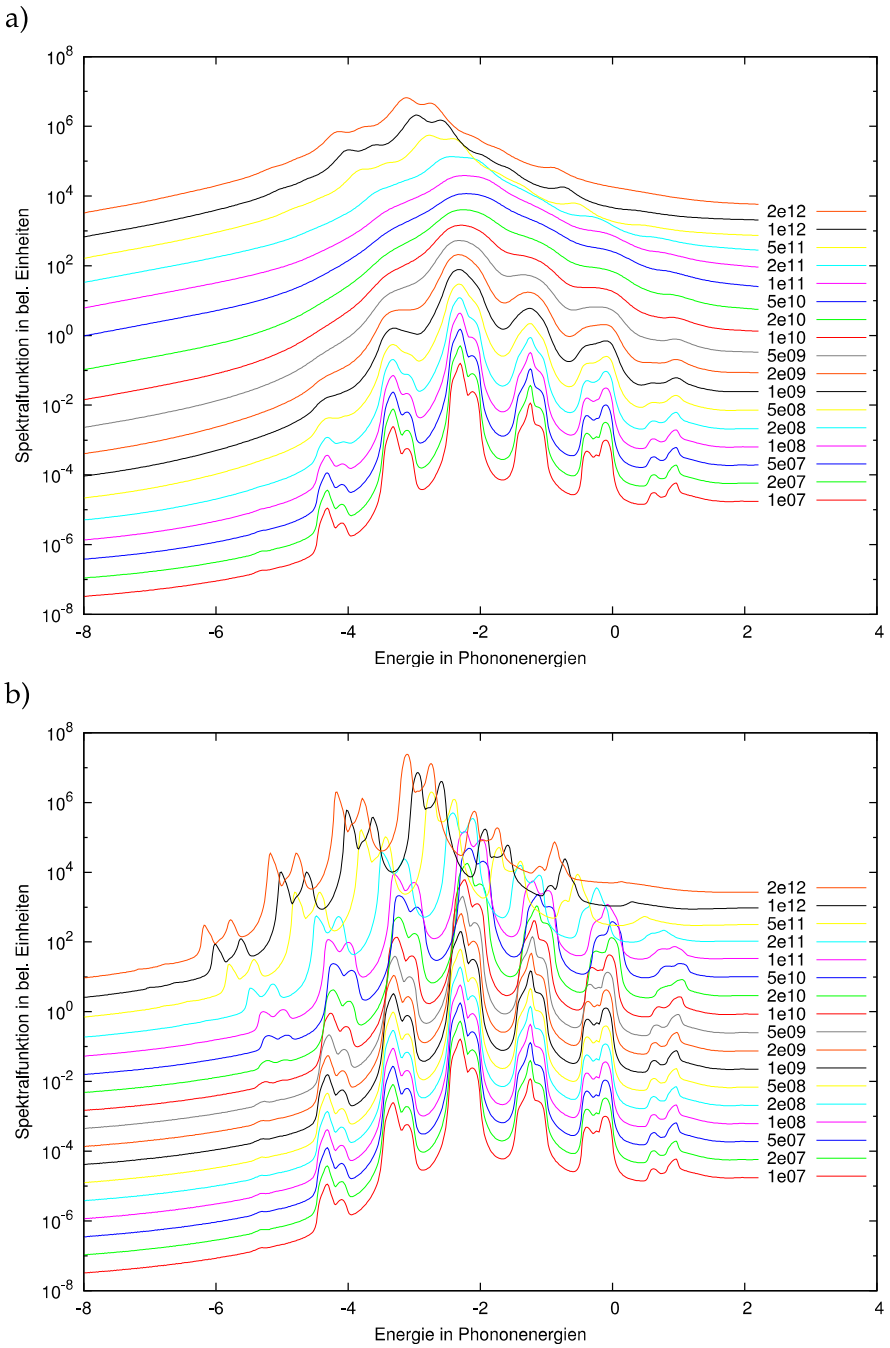


Abb. 6.13: Spektralfunktion des elektronischen Grundzustands für Gleichgewichtsbesetzungen bei 300K und verschiedene Besetzungsdichten (in der Legende in cm^{-2} angegeben) unter Berücksichtigung der kombinierten Wirkung der Coulomb- und Elektron-Phonon-Wechselwirkung (a) sowie der Elektron-Phonon-Wechselwirkung in Kombination mit den Hartree-Fock-Renormierungen (b): Zu Präsentationszwecken ist jeweils zwischen den Funktionen benachbarter Besetzungsdichten ein Faktor von $3,3$ in die Spektralfunktionen eingeflossen; die Legende ist so gewählt, dass sich die Position der Einträge ebenfalls um den Faktor $3,3$ bezüglich der logarithmischen Skala unterscheiden, so dass alle Spektralfunktionen bezogen auf ihren Eintrag gleich normiert sind.

7 Kinetik

Das Zusammenspiel der Coulomb- und Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung hat entsprechend Kap. 6.4 einen bedeutenden Einfluss auf die spektralen Eigenschaften eines Quantenpunktsystems. Im Folgenden wird die Bedeutung dieses Zusammenspiels für die Kinetik untersucht. So wird in Kap. 7.3.1 die Ralaxation von Ladungsträgern in einem Quantenpunkt untersucht. Aufgrund der diskreten Quantenpunktzustände hat die Coulomb-Wechselwirkung großen Einfluss auf die Elektron-LO-Phonon-Streuung. Dagegen ist die Bedeutung des Zusammenwirkens der Wechselwirkungen bei dem Einfang aus der Benetzungsschicht, die quasikontinuierliche Zustände besitzt, klein, wie in Kap. 7.3.2 gezeigt wird. Für diese Untersuchung wird zunächst die Kadanoff-Baym-Gleichung (3.83) unter Anwendung verschiedener GKBA Varianten für die Coulomb- (Kap. 7.1.1) und Elektron-LO-Phonon-Streuung (Kap. 7.1.2) ausgewertet. Auf Grundlage dieser Bewegungsgleichungen werden in Kap. 7.2 zeitunabhängige Streuraten eingeführt, um eine eindeutige und einfache Quantifizierung der Streuung unterschiedlicher Wechselwirkungen zu ermöglichen.

Über die Untersuchungen des Zusammenspiels der Coulomb- und Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung in Kap. 7.3 hinausgehend wird der quantenkinetische Ansatz für die Elektron-LO-Phonon-Streuung in Kap. 7.4 mit einer störungstheoretischen Rechnung verglichen. Letztendlich werden in Kap. 7.5 Dephasierungsraten eingeführt und bestimmt. Diese ermöglichen eine qualitative Abschätzung der Dephasierung und somit Kohärenz und werden zur Diskussion der Ergebnisse im folgenden Kap. 8 genutzt.

7.1 Bewegungsgleichungen

Entsprechend Gl. (3.26) bis (3.28) lassen sich die Besetzungen und Polarisationen durch die zeitdiagonalen Propagatoren ausdrücken. Es bietet sich also an, entsprechend Kap. 6 die Parametrisierung der Zeitargumente auf eine Relativzeit, die hier per Definition null ist, und eine Schwerpunktzeit $t = \frac{t_1+t_2}{2}$ zu ändern. So lässt sich die zeitliche Entwicklung der Besetzungen und Polarisationen durch die Ableitung der Propagatoren $G^<(t_1, t_2)$ nach der Schwerpunktzeit

$$i\hbar\frac{\partial}{\partial t}G^<_{\alpha_1,\alpha_2}(t) = i\hbar\left[\frac{\partial}{\partial t_1} + \frac{\partial}{\partial t_2}\right]G^<_{\alpha_1,\alpha_2}(t_1, t_2) \tag{7.1}$$

bestimmen. Dabei wird für die zeitdiagonalen Propagatoren die Schreibweise $G^<(t) = G^<(t, t)$ verwendet, wohingegen entsprechend Kap. 6 für die retardierten Greenschen Funktionen das Zeitargument für die Relativzeit steht ($G^R(\tau) = G^R(t, t-\tau)$).

Zur Berechnung der zeitdiagonalen Propagatoren wird das Langreth-Wilkins-Theorem (3.81) genutzt, wobei sich dieses für $t_1 = t_2$ unter Zuhilfenahme von Gl. (3.19) bis (3.22)

zu

$$\int d\underline{3}\,(A\,(1,\underline{3})\,B\,(\underline{3},2))^{\lessgtr} = \int d3\;\Theta(t_1-t_3)\left[A^{>}\,(1,3)\,B^{<}\,(3,2) - A^{<}\,(1,3)\,B^{>}\,(3,2)\right] \tag{7.2}$$

vereinfacht, so dass man aus der Kadanoff-Baym-Gleichung (3.83)

$$\begin{aligned} i\hbar\frac{\partial}{\partial t}G^{<}_{\alpha_1\alpha_2}(t) = \sum_3 \int_{-\infty}^{t} dt' \Sigma^{>}_{\alpha_1\alpha_3}(t,t')G^{<}_{\alpha_3\alpha_2}(t',t) - \Sigma^{<}_{\alpha_1\alpha_3}(t,t')G^{>}_{\alpha_3\alpha_2}(t',t) \\ -G^{>}_{\alpha_1\alpha_3}(t,t')\Sigma^{<}_{\alpha_3\alpha_2}(t',t) + G^{<}_{\alpha_1\alpha_3}(t,t')\Sigma^{>}_{\alpha_3\alpha_2}(t',t) \end{aligned} \tag{7.3}$$

erhält, wobei die in Kap. 3.4 vorgestellten Vereinfachungen für InGaAs-Quantenpunktsysteme ausgenutzt werden.

Obwohl nur zeitdiagonale Propagatoren, die Besetzungen bzw. Polarisationen entsprechen, gesucht werden, sind zweizeitige Größen zu deren Berechnung notwendig. Es bietet sich an, die zweizeitigen Propagatoren mittels GKBA (3.87) durch einzeitige Größen darzustellen, um den numerischen Aufwand zu reduzieren. Während für die spektralen Eigenschaften die Näherung verwendet wurden, dass diese nicht von der Kinetik, sondern nur noch von einer festen Besetzung abhängen (vgl. Kap. 6), ist die Kinetik durch Anwendung des GKBA direkt über die retardierten Greenschen Funktionen G^R von den spektralen Eigenschaften des Systems abhängig. Für die Definition von Streuraten in Kap. 7.2 und Dephasierungsraten in Kap. 7.5 bietet sich die Anwendung des retardierungsfreien GKBA

$$G^{\lessgtr}_{\alpha\beta}\,(t_1,t_2) = i\hbar\left[G^{\lessgtr}_{\alpha\beta}\,(t_1)\,G^{R}_{\beta}\,(t_1-t_2) - G^{A}_{\alpha}\,(t_1-t_2)\,G^{\lessgtr}_{\alpha\beta}\,(t_2)\right] \tag{7.4}$$

an, da die Kinetik so entsprechend einer Markov-Näherung nur von Propagatoren zur aktuellen Zeit abhängt. Dagegen bietet sich in Kap. 8 der maximal retardierte GKBA

$$G^{\lessgtr}_{\alpha\beta}\,(t_1,t_2) = i\hbar\left[G^{R}_{\alpha}\,(t_1-t_2)\,G^{\lessgtr}_{\alpha\beta}\,(t_2) - G^{\lessgtr}_{\alpha\beta}\,(t_1)\,G^{A}_{\beta}\,(t_1-t_2)\right] \tag{7.5}$$

an, da sich dort Besetzungen und Polarisationen aufgrund kurzer optischer Anregungen schnell ändern, was zu deutlichen Gedächtniseffekten führt. So wird dort gezeigt, dass diese Effekte auf kurzen Zeitskalen bei derart schnellen Änderungen zusätzliche Streukanäle bilden, die nicht nur einer strikten Energieerhaltung, sondern auch einer Energieerhaltung im Sinne der Spektralfunktionen widersprechen. Man erhält dabei

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}G^{<}_{\alpha_1\alpha_2}(t) = \sum_3 \int_{-\infty}^{t} dt' \left[-\Sigma^{>}_{\alpha_1\alpha_3}(t,t')G^{<}_{\alpha_3\alpha_2}(t') + \Sigma^{<}_{\alpha_1\alpha_3}(t,t')G^{>}_{\alpha_3\alpha_2}(t')\right] G^{R,*}_{\alpha_2}(t-t') \\ + \left[-G^{>}_{\alpha_1\alpha_3}(t')\Sigma^{<}_{\alpha_3\alpha_2}(t',t) + G^{<}_{\alpha_1\alpha_3}(t')\Sigma^{>}_{\alpha_3\alpha_2}(t',t)\right] G^{R}_{\alpha_1}(t-t') \end{aligned} \tag{7.6}$$

sofern nur diagonale retardierte Greensche Funktionen beitragen.

Da sich die Selbstenergie der kombinierten Wechselwirkung additiv aus den einzelnen Wechselwirkungen zusammen setzt, können auch bei Betrachtung der kombinierten Wechselwirkungen beide Beiträge der einzelnen separat berechnet werden. Dabei wird die Wirkung der jeweils anderen Wechselwirkung über die retardierten Greenschen Funktionen berücksichtigt.

7.1.1 Coulomb-Streuung

Da der Hartree-Fock-Anteil nur über Renormierungen, die über die retardierten Greenschen Funktionen berücksichtigt werden, zur Kinetik beiträgt, ist für die Coulomb-Streuung lediglich die Selbstenergie in SBA-Näherung (4.25) zu berücksichtigen. Durch Anwendung des maximal retardierten GKBA (7.5) folgt für diese Selbstenergie (4.25) mit $t > t'$

$$\begin{aligned}\Sigma^{\gtrless}_{\alpha_1\alpha_2}(t,t') = -(i\hbar)^5 \sum_{\beta\gamma\delta}\sum_{3,4} & \\ & - \left[G^{\gtrless}_{\beta_1,\beta_2} G^{\lessgtr}_{\delta_3,\delta_4} G^{\gtrless}_{\gamma_4,\gamma_3}\right]_{t'} W_{\beta_2\gamma_4\delta_4\alpha_2}(t') W_{\alpha_1\delta_3\gamma_3\beta_1}(t) \left[G^R_{\beta_1} G^{R,*}_{\delta_4} G^R_{\gamma_4}\right]_{(t-t')} \\ & + \left[G^{\gtrless}_{\beta_1,\beta_4} G^{\lessgtr}_{\gamma_4,\gamma_3} G^{\gtrless}_{\delta_3,\delta_2}\right]_{t'} W_{\delta_2\beta_4\gamma_4\alpha_2}(t') W_{\alpha_1\gamma_3\delta_3\beta_1}(t) \left[G^R_{\beta_1} G^{R,*}_{\gamma_3} G^R_{\delta_3}\right]_{(t-t')} ,\end{aligned} \tag{7.7}$$

$$\begin{aligned}\Sigma^{\gtrless}_{\alpha_1\alpha_2}(t',t) = -(i\hbar)^5 \sum_{\beta\gamma\delta}\sum_{3,4} & \\ & + \left[G^{\gtrless}_{\beta_1,\beta_2} G^{\lessgtr}_{\delta_3,\delta_4} G^{\gtrless}_{\gamma_4,\gamma_3}\right]_{t'} W_{\beta_2\gamma_4\delta_4\alpha_2}(t) W_{\alpha_1\delta_3\gamma_3\beta_1}(t') \left[G^{R,*}_{\beta_2} G^R_{\delta_3} G^{R,*}_{\gamma_3}\right]_{(t-t')} \\ & - \left[G^{\gtrless}_{\beta_1,\beta_4} G^{\lessgtr}_{\gamma_4,\gamma_3} G^{\gtrless}_{\delta_3,\delta_2}\right]_{t'} W_{\delta_2\beta_4\gamma_4\alpha_2}(t) W_{\alpha_1\gamma_3\delta_3\beta_1}(t') \left[G^{R,*}_{\beta_4} G^R_{\gamma_4} G^{R,*}_{\delta_2}\right]_{(t-t')} .\end{aligned} \tag{7.8}$$

Somit erhält man aus Gl. (7.6) die Bewegungsgleichung

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial t} G^{<}_{\alpha_1\alpha_0}(t_1) = & -(i\hbar)^5 \sum_{\beta\gamma\delta}\sum_{2,3,4} \int_{-\infty}^{t_1} dt_2\, W_{\beta_2\gamma_4\delta_4\alpha_2}(t_2) W_{\alpha_1\delta_3\gamma_3\beta_1}(t_1) \\ & \Big\{ \left[\left[G^{>}_{\beta_1,\beta_2} G^{<}_{\delta_3,\delta_4} G^{>}_{\gamma_4,\gamma_3} G^{<}_{\alpha_2\alpha_0}\right]_{t_2} - [<\leftrightarrow>]\right] \left[G^R_{\beta_1} G^{R,*}_{\delta_4} G^R_{\gamma_4} G^{R,*}_{\alpha_0}\right]_{(t_1-t_2)} \\ & + \left[\left[G^{>}_{\beta_2,\beta_0} G^{<}_{\delta_3,\delta_4} G^{>}_{\gamma_4,\gamma_3} G^{<}_{\alpha_1\alpha_2}\right]_{t_2} - [<\leftrightarrow>]\right] \left[G^{R,*}_{\beta_0} G^R_{\delta_3} G^{R,*}_{\gamma_3} G^R_{\alpha_1}\right]_{(t_1-t_2)} \Big\} \\ & - W_{\delta_2\beta_4\gamma_4\alpha_2}(t_2) W_{\alpha_1\gamma_3\delta_3\beta_1}(t_1) \\ & \Big\{ \left[\left[G^{>}_{\beta_1,\beta_4} G^{<}_{\gamma_4,\gamma_3} G^{>}_{\delta_3,\delta_2} G^{<}_{\alpha_2\alpha_0}\right]_{t_2} - [<\leftrightarrow>]\right] \left[G^R_{\beta_1} G^{R,*}_{\gamma_3} G^R_{\delta_3} G^{R,*}_{\alpha_0}\right]_{(t_1-t_2)} \\ & + \left[\left[G^{>}_{\beta_2,\beta_4} G^{<}_{\gamma_4,\gamma_3} G^{>}_{\delta_3,\delta_0} G^{<}_{\alpha_1\alpha_2}\right]_{t_2} - [<\leftrightarrow>]\right] \left[G^{R,*}_{\beta_4} G^R_{\gamma_4} G^{R,*}_{\delta_0} G^R_{\alpha_1}\right]_{(t_1-t_2)} \Big\} .\end{aligned} \tag{7.9}$$

Dabei beschreibt $[<\leftrightarrow>]$ jeweils den vorangehenden Term mit getauschten Propagatoren: $G^<$ wird durch $G^>$ und umgekehrt ersetzt. Die Zeitargumente, die als Indizes an einer Klammer angefügt sind, beziehen sich stets auf alle Größen innerhalb der jeweiligen Klammer.

Bisher wurde lediglich eine Spinrichtung betrachtet. Zwar ergibt sich für den Austauschbeitrag ($\propto W_{\delta_2\beta_4\gamma_4\alpha_2} W_{\alpha_1\gamma_3\delta_3\beta_1}$) keinerlei Wechselwirkung zwischen verschiedenen Spins, doch erlaubt die direkte Wechselwirkung ($\propto W_{\beta_2\gamma_4\delta_4\alpha_2} W_{\alpha_1\delta_3\gamma_3\beta_1}$) die Streuung eines Ladungsträgers durch einen Anderen mit beliebigem Spin. Unter der Annahme, dass sich beide Spinrichtungen gleich entwickeln, kann die Wechselwirkung zwischen verschiedenen Spins durch eine Verdopplung des direkten Beitrags des gleichen Spins berücksichtigt werden.

Für die Definition zeitunabhängiger Raten bietet es sich an, keine Polarisationen sondern nur Besetzungen zu betrachten. Der Einfluss der Coulomb-Streuung auf die Polarisationen wird nicht untersucht. So werden für diese Streuung im Folgenden nur noch Besetzungen berücksichtigt. Ferner wird für die Behandlung der Abschirmung eine Gleichgewichtsbesetzung angesetzt, was zu einer zeitunabhängigen Abschirmung und damit zu zeitunabhängigen Matrixelementen

$$W_{\alpha_1\beta_2\gamma_2\delta_1} = \frac{e^2}{\epsilon_0\epsilon(\infty)}\frac{1}{2V}\sum_{\mathbf{q}}\frac{1}{q^2\epsilon_q}\left\langle\alpha_1\left|e^{i\mathbf{qr}}\right|\delta_1\right\rangle\left\langle\gamma_2\left|e^{i\mathbf{qr}}\right|\beta_2\right\rangle^* \tag{7.10}$$

führt, wobei $\epsilon(q)$ entsprechend Gl. (4.13) die Abschirmung beschreibt. Somit lässt sich Gl. (7.9) zu

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial t}f_{\alpha_1}(t) = \int_0^\infty dt'\, 2\hbar^2\Re\sum_{\beta\gamma\delta,2}&\left[2W_{\beta_1\delta_2\gamma_2\alpha_1}W_{\alpha_1\gamma_2\delta_2\beta_1} - \delta_{1,2}W_{\delta\beta\gamma\alpha_1}W_{\alpha\gamma\delta\beta_1}\right]\\ &\left[f_{\beta_1}(1-f_{\gamma_2})f_{\delta_2}(1-f_{\alpha_1}) - (1-f_{\beta_1})f_{\gamma_2}(1-f_{\delta_2})f_{\alpha_1}\right]_{(t-t')}\\ &\left[G^R_{\beta_1}G^{R,*}_{\gamma_2}G^R_{\delta_2}G^{R,*}_{\alpha_1}\right]_{(t')}\end{aligned} \tag{7.11}$$

vereinfachen. Werden nur Besetzungen und keine Polarisationen betrachtet, besteht der Übergang zwischen Markov-Näherung und maximal retardiertem Ansatz lediglich darin, die Besetzungen früherer Zeiten durch aktuelle Besetzungen zu ersetzen, so dass man

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial t}f_{\alpha_1}(t) =&2\hbar^2\Re\sum_{\beta\gamma\delta,2}\left[2W_{\beta_1\delta_2\gamma_2\alpha_1}W_{\alpha_1\gamma_2\delta_2\beta_1} - \delta_{1,2}W_{\delta\beta\gamma\alpha_1}W_{\alpha\gamma\delta\beta_1}\right]\\ &\left[f_{\beta_1}(1-f_{\gamma_2})f_{\delta_2}(1-f_{\alpha_1}) - (1-f_{\beta_1})f_{\gamma_2}(1-f_{\delta_2})f_{\alpha_1}\right]_t\\ &\int_0^\infty dt'\,\left[G^R_{\beta_1}G^{R,*}_{\gamma_2}G^R_{\delta_2}G^{R,*}_{\alpha_1}\right]_{(t')}\end{aligned} \tag{7.12}$$

erhält. Das Zeitintegral beschränkt sich nun einzig auf die retardierten Greenschen Funktionen und liefert somit die durch die Spektralfunktionen aufgeweichte Energieerhaltung. Damit besitzt diese Gleichung die Struktur einer Boltzmann-Gleichung [32] und bietet sich als Ausgangspunkt für die Definition von Streuraten in Kap. 7.2 an. Im hier nicht weiter betrachteten Fall freier retardierter Greenscher Funktionen wird entsprechend Gl. (6.7) das Zeitintegral zu einer δ-Funktion, die die strikte Energieerhaltung im Sinne freier Teilchen sicherstellt, so dass man die entsprechende Boltzmann-Gleichung als Grenzfall der Markov-Näherung erhält.

Die zuvor betrachtete nicht-markovsche Beschreibung führt zu Gedächtniseffekten, also dazu, dass die aktuelle Zeitentwicklung von Größen zu vergangenen Zeiten abhängt. Dies bedeutet insbesondere auch, dass auf kurzen Zeitskalen nicht-energieerhaltende Streuprozesse möglich sind. Dies geht über die in Kap. 6 beschriebenen Aufweichung der Energieerhaltung durch die Renormierung der spektralen Eigenschaften hinaus. So treten hier Zeitintegrale nicht nur über G^{R}, sondern auch über zeitabhängige Besetzungen auf. Daher kommt es insbesondere bei schnellen Besetzungsänderungen zu einer Energieerhaltung, die nicht mehr wie für konstante Besetzungen über den Überlapp der Spektralfunktionen gegeben ist (siehe Kap. 6). Es kommt zu einer Energieerhaltung, die gegenüber den Spektralfunktionen zusätzlich aufgeweicht ist, wobei die zusätzliche Aufweichung tendenziell proportional zu den Besetzungsänderungen ist.

Der erste Besetzungsterm ($\propto\ (1 - f_\alpha)$) beschreibt die Einstreuung eines Teilchens aus dem Zustand β in den Zustand α, die durch die Streuung eines anderen Teilchens von δ nach γ assistiert wird. Dabei wird davon ausgegangen, dass die einzelnen Streuungen nur innerhalb eines Bandes ablaufen, aber eine Streuung in einem Band auch durch eine Streuung in einem anderen Band assistiert werden kann. Dies ist aufgrund der Bandlücke und des geringen Überlapps zwischen Elektron- und Lochzuständen gerechtfertigt. Der zweite Besetzungsterm ($\propto f_\alpha$) beschreibt die entgegengesetzte Ausstreuung. Da jeweils die Ausstreuung mit vertauschtem α und β der entsprechenden Einstreuung entspricht, bleibt die Teilchenzahl erhalten, es gilt also $\sum_\alpha \frac{\partial}{\partial t} f_{\alpha_1}(t) = 0$.

7.1.2 Elektron-Phonon-Streuung

In Kap. 8 wird der Einfluss der Elektron-Phonon-Streuung auf optische Anregungen untersucht, die über die Polarisationen wirkt. Dementsprechend werden für diese Wechselwirkung entgegen der Coulomb-Streuung auch Polarisationen berücksichtigt, was den oben genutzten Übergang zwischen Markov-Näherung und maximal retardiertem Ansatz ausschließt. Zunächst wird der maximal retardierte GKBA angewendet, bevor weiter unten mittels retardierungsfreiem GKBA eine Markov-Näherung erreicht wird. Ferner kommt es in Nitrid-Quantenpunkten zu nichtdiagonalen optischen Übergängen, so dass in Kap. 9.3 auch nichtdiagonale Polarisationen berücksichtigt werden müssen.

Der maximal retardierte GKBA (7.5) liefert für die Selbstenergie (5.18) mit $t > t'$ und banddiagonalen Überlappintegralen in den Matrixelementen

$$\Sigma^{\lessgtr}_{\alpha_1\beta_2}(t,t') = i\hbar \sum_{\gamma\delta} G^R_{\gamma_1}(t-t') G^{\lessgtr}_{\gamma_1\delta_2}(t') D^{\lessgtr}_{\alpha_1\delta_2\beta_2\gamma_1}(t'-t)\ , \tag{7.13}$$

$$\Sigma^{\lessgtr}_{\alpha_1\beta_2}(t',t) = -i\hbar \sum_{\gamma\delta} G^A_{\delta_2}(t'-t) G^{\lessgtr}_{\gamma_1\delta_2}(t') D^{\lessgtr}_{\alpha_1\delta_2\beta_2\gamma_1}(t-t') \tag{7.14}$$

und somit aus Gl. (7.6) die Bewegungsgleichung

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial t} G^<_{\alpha_1\beta_2}(t) = i\hbar \sum_{\gamma\delta\epsilon 3} \int_{-\infty}^{t} dt' \; & -G^R_{\delta_1}(t-t') G^>_{\delta_1\epsilon_3}(t') D^>_{\alpha_1\epsilon_3\gamma_3\delta_1}(t-t') G^<_{\gamma_3\beta_2}(t') G^A_{\beta_2}(t'-t) \\ & +[<\leftrightarrow>] \\ & +G^R_{\alpha_1}(t-t') G^>_{\alpha_1\gamma_3}(t') G^A_{\epsilon_2}(t'-t) G^<_{\delta_3\epsilon_2}(t') D^>_{\gamma_3\epsilon_2\beta_2\delta_3}(t-t') \\ & -[<\leftrightarrow>]\ .\end{aligned} \tag{7.15}$$

Damit erhält man für die Besetzungen

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial t} f_{\alpha_e}(t) = 2\Re \sum_\delta \int_{-\infty}^{t} dt \; & \left[G^R_{\delta_e} G^{R,*}_{\alpha_e}\right]_{(t-t')} \Big\{ -\left[(1-f_{\delta_e}) f_{\alpha_e}\right]_{t'} D^>_{\alpha_e\delta_e\alpha_e\delta_e}(t-t') \\ & \qquad + \left[f_{\delta_e}(1-f_{\alpha_e})\right]_{t'} D^<_{\alpha_e\delta_e\alpha_e\delta_e}(t-t') \Big\} \\ & + \sum_{\gamma\epsilon} \left[G^R_{\delta_e} G^{R,*}_{\alpha_e}\right]_{(t-t')} \left[\Psi_{\delta\epsilon}\Psi^*_{\alpha\gamma}\right]_{t'} \left[D^>_{\alpha_e\epsilon_h\gamma_h\delta_e} - D^<_{\alpha_e\epsilon_h\gamma_h\delta_e}\right]_{(t-t')}\ ,\end{aligned} \tag{7.16}$$

wobei es sich beim ersten Term um die Ausstreuung aus dem Zustand δ, beim zweiten um entsprechende Einstreuung und beim dritten um die Polarisationsstreuung handelt. Bei der Polarisationsstreuung kann ebenfalls entsprechend dem jeweiligen Vorzeichen zwischen einer Ein- ($D^{>}$) und Ausstreuung ($D^{<}$) unterschieden werden. Diese Gleichung erfüllt die Teilchenzahlerhaltung, so dass wie auch bei der Coulomb-Wechselwirkung $\sum_\alpha \frac{\partial}{\partial t} f_{\alpha_e}(t) = 0$ gilt. So kompensieren sich Ein- und Ausstreuung für jedes Paar von Zuständen (entsprechend der oben verwendeten Notation α und δ); was in den einen Zustand eingestreut wird, verliert der Andere. Aufgrund des verwendeten Elektron-Loch-Bildes ergibt sich für die Löcher eine gleichartige Bewegungsgleichung, wobei Ψ durch Ψ^* zu ersetzen ist.

Für die Polarisation erhält man

$$\begin{aligned}
\frac{\partial}{\partial t}\Psi_{\alpha_e\beta_h}(t) = \sum_{\gamma\delta}\int_{-\infty}^{t} dt' \\
G^R_{\delta_e}(t-t')G^R_{\beta_h}(t-t') \\
\Big\{ + (1-f_{\delta_e}(t'))\Psi_{\gamma_e\beta_h}(t')D^{>}_{\alpha_e\delta_e\gamma_e\delta_e}(t-t') + f_{\delta_e}(t')\Psi_{\gamma_e\beta_h}(t')D^{<}_{\alpha_e\delta_e\gamma_e\delta_e}(t-t') \\
- (1-f_{\beta_h}(t'))\Psi_{\delta_e\gamma_h}(t')D^{>}_{\alpha_e\gamma_h\beta_h\delta_e}(t-t') - f_{\beta_h}(t')\Psi_{\delta_e\gamma_h}(t')D^{<}_{\alpha_e\gamma_h\beta_h\delta_e}(t-t')\Big\} \\
+G^R_{\alpha_e}(t-t')G^R_{\delta_h}(t-t') \\
\Big\{ - (1-f_{\alpha_e}(t'))\Psi_{\gamma_e\delta_h}(t')D^{>}_{\alpha_e\delta_h\beta_h\gamma_e}(t-t') - f_{\alpha_e}(t')\Psi_{\gamma_e\delta_h}(t')D^{<}_{\alpha_e\delta_h\beta_h\gamma_e}(t-t') \\
+ (1-f_{\delta_h}(t'))\Psi_{\alpha_e\gamma_h}(t')D^{>}_{\gamma_h\delta_h\beta_h\delta_h}(t-t') + f_{\delta_h}(t')\Psi_{\alpha_e\gamma_h}(t')D^{<}_{\gamma_h\delta_h\beta_h\delta_h}(t-t')\Big\}\,.
\end{aligned} \tag{7.17}$$

Man kann hier zwischen diagonaler Dephasierung und nicht-diagonaler Dephasierung unterscheiden. Als diagonale Dephasierung wird dabei der Anteil bezeichnet, der proportional zur betrachteten Polarisation $\Psi_{\alpha\beta}$ ist, wohingegen die nicht-diagonale Dephasierung ($\propto \Psi_{\gamma\delta}$ mit $\gamma \neq \alpha$ oder $\delta \neq \beta$) die Kopplung mit anderer Polarisation beschreibt. Die diagonale Dephasierung alleine bewirkt ein exponentielles Abklingen der Polarisation. Interessanterweise heben sich die Änderungen aller Polarisationen $\sum_{\alpha\beta} \frac{\partial}{\partial t}\Psi_{\alpha\beta}(t) = 0$ im Fall gleicher einhüllender Wellenfunktionen, durch die die Phononpropagatoren unabhängig von den Bändern werden, auf. Dies ist nicht nur für das hier betrachtete InGaAs-Quantenpunktmodell, sondern in erster Linie für unstrukturierte dreidimensionale Halbleiter gegeben, in denen sich für die Einhüllenden ebene Wellen mit gleichen Wellenzahlen für jedes Band ergeben.

Im Gegensatz zu den Besetzungen lässt sich daraus allerdings keine Erhaltung der Polarisationen ableiten, da diese zusätzlich über eine Phase verfügen, die sich durch die freie Zeitentwicklung

$$\frac{\partial}{\partial t}\Psi_{\alpha\beta}(t) = i\hbar\left(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta\right)\Psi_{\alpha\beta}(t) \tag{7.18}$$

proportional zur jeweiligen Übergangsenergie $(\epsilon_\alpha - \epsilon_\beta)$ ändert, so dass sich die Phasendifferenzen zwischen miteinander wechselwirkenden Polarisationen kontinuierlich ändert. Dadurch heben sich die Wirkungen anderer Polarisationen auf eine betrachtete Polarisation über die Zeit zu einem bedeutenden Teil selbst auf (nicht-diagonale Dephasierung),

wohingegen bei der diagonalen Dephasierung, die stets zu einem Abklingen führt, keine Phasendifferenzen eingehen. Auf langen Zeitskalen ist die diagonale Dephasierung daher dominant, weshalb man sich häufig auf diese beschränkt. Insbesondere für die in Kap. 8 untersuchten schnellen kohärenten Anregungen ist diese Näherung jedoch ungeeignet. Nichtsdestotrotz wird diese in Kap. 7.5 genutzt, um Dephasierungsraten zwecks Abschätzung des Gesamteinflusses einzuführen.

Diagonale Polarisationen

Da in InGaAs-Quantenpunkten nicht-diagonale Polarisationen vernachlässigt werden können (siehe Kap. 3.4), ergibt sich für diese Quantenpunkte eine weitere Vereinfachung der Bewegungsgleichungen. So folgt für die Besetzungen aus Gl. (7.16)

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial t} f_{\alpha_e}(t) = 2\Re \sum_{\beta} \int_{-\infty}^{t} dt'\, & G^R_{\beta_e}(t-t') G^{R,*}_{\alpha_e}(t-t') \\ & \Big\{ \Psi_\beta(t')\Psi^*_\alpha(t') \left[D^{>}_{\alpha_e\beta_h\alpha_h\beta_e} - D^{<}_{\alpha_e\beta_h\alpha_h\beta_e} \right]_{(t-t')} \\ & - \left[(1-f_{\beta_e}) f_{\alpha_e}\right]_{t'} D^{>}_{\alpha_e\beta_e\alpha_e\beta_e}(t-t') + \left[f_{\beta_e}(1-f_{\alpha_e})\right]_{t'} D^{<}_{\alpha_e\beta_e\alpha_e\beta_e}(t-t') \Big\}\end{aligned} \tag{7.19}$$

und für die Polarisation aus Gl. (7.17)

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial t} \Psi_\alpha(t) = \sum_{\delta} \sum_{1\neq 2} \int_{-\infty}^{t} dt' \\ G^R_{\delta_1}(t-t') G^R_{\alpha_2}(t-t') \\ \Big\{ + (1-f_{\delta_1}(t'))\Psi_\alpha(t') D^{>}_{\alpha_1\delta_1\alpha_1\delta_1}(t-t') + f_{\delta_1}(t')\Psi_\alpha(t') D^{<}_{\alpha_1\delta_1\alpha_1\delta_1}(t-t') \\ - (1-f_{\alpha_2}(t'))\Psi_\delta(t') D^{>}_{\alpha_1\delta_2\alpha_2\delta_1}(t-t') - f_{\alpha_2}(t')\Psi_\delta(t') D^{<}_{\alpha_1\delta_2\alpha_2\delta_1}(t-t') \Big\} .\end{aligned} \tag{7.20}$$

Die Unterscheidung zwischen diagonaler Dephasierung ($\propto \Psi_\alpha$) und nicht-diagonaler Dephasierung ($\propto \Psi_\beta$ mit $\beta \neq \alpha$) ist hier noch klarer. Auch bei nur diagonalen Polarisationen kommt es neben den über Besetzungen erfolgenden Einfluss anderer Polarisationen auch weiterhin durch die nicht-diagonale Dephasierung zur unmittelbaren Durchmischung verschiedener Polarisationen.

Markov-Näherung

Für die Streuraten, die nur Besetzungen berücksichtigen, erhält man die Markov-Näherung analog zur Coulomb-Streuung, indem die Besetzungen früherer Zeiten durch aktuelle Besetzungen ersetzt werden. Jedoch ist dies bei Anwesenheit von Polarisationen, die in Kap. 7.5 zur Berechnung von Dephasierungsraten benötigt werden, nicht möglich, weshalb der retardierungsfreie GKBA (7.4) angewendet wird. Analog zu Gl. (7.15) ergibt sich so für die

Zeitentwicklung der Propagatoren

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial t}G^{<}_{\alpha_1,\beta_2}(t) = i\hbar \sum_{\gamma\delta\epsilon,3} \int_{-\infty}^{t} dt' \\ \Big\{ G^R_{\delta_3}(t,t')G^A_{\gamma_3}(t',t)\left[-G^{>}_{\epsilon_1,\delta_3}(t)D^{<}_{\alpha_1\delta_3\gamma_3\epsilon_1}(t',t)G^{<}_{\gamma_3,\beta_2}(t) + [<\leftrightarrow>]\right] \\ + G^R_{\gamma_3}(t,t')G^A_{\epsilon_3}(t',t)\left[G^{>}_{\alpha_1,\gamma_3}(t)G^{<}_{\epsilon_3,\delta_2}(t)D^{>}_{\gamma_3\delta_2\beta_2\epsilon_3}(t,t') - [<\leftrightarrow>]\right]\Big\},\end{aligned} \tag{7.21}$$

so dass man für die Besetzungen

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial t}f_{\alpha_e} = 2\Re \sum_{\delta} \int_{-\infty}^{t} dt' \\ \left[G^R_{\delta_e}G^{R,*}_{\alpha_e}\right]_{(t-t')}\Big\{ -(1-f_{\delta_e}(t))f_{\alpha_e}(t)D^{>}_{\alpha_e\delta_e\alpha_e\delta_e}(t-t') \\ + f_{\delta_e}(t)(1-f_{\alpha_e}(t))D^{<}_{\alpha_e\delta_e\alpha_e\delta_e}(t-t')\Big\} \\ + \sum_{\gamma\epsilon}\left[G^R_{\delta_h}G^{R,*}_{\gamma_h}\right]_{(t-t')}\Psi_{\epsilon\delta}(t)\Psi^*_{\alpha\gamma}(t)\left[D^{>}_{\alpha_e\delta_h\gamma_h\epsilon_e}(t-t') - D^{<}_{\alpha_e\delta_h\gamma_h\epsilon_e}(t-t')\right]\end{aligned} \tag{7.22}$$

und die Polarisation

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial t}\Psi_{\alpha_e\beta_h} = \sum_{\gamma\delta}\int_{-\infty}^{t} dt' \\ \Big\{ -\left[G^R_{\delta_e}G^{R,*}_{\gamma_e}\right]_{(t-t')}\Psi_{\gamma\beta}(t)\left[(1-f_{\delta_e}(t))D^{>}_{\alpha_e\delta_e\gamma_e\delta_e}(t-t') + f_{\delta_e}(t)D^{<}_{\alpha_e\delta_e\gamma_e\delta_e}(t-t')\right] \\ + \left[G^R_{\delta_h}G^{R,*}_{\gamma_h}\right]_{(t-t')}\Psi_{\alpha\gamma}(t)\left[(1-f_{\delta_h}(t))D^{>}_{\gamma_h\delta_h\beta_h\delta_h}(t-t') + f_{\delta_h}(t)D^{<}_{\gamma_h\delta_h\beta_h\delta_h}(t-t')\right]\Big\} \\ + \Big\{ -\left[G^R_{\beta_h}G^{R,*}_{\delta_h}\right]_{(t-t')}\Psi_{\gamma\delta}(t)\left[(1-f_{\beta_h}(t))D^{>}_{\alpha_e\delta_h\beta_h\gamma_e}(t-t') + f_{\beta_h}(t)D^{<}_{\alpha_e\delta_h\beta_h\gamma_e}(t-t')\right] \\ + \left[G^R_{\alpha_e}G^{R,*}_{\gamma_e}\right]_{(t-t')}\Psi_{\gamma\delta}(t)\left[(1-f_{\alpha_e}(t))D^{>}_{\alpha_e\delta_h\beta_h\gamma_e}(t-t') + f_{\alpha_e}(t)D^{<}_{\alpha_e\delta_h\beta_h\gamma_e}(t-t')\right]\Big\}\end{aligned} \tag{7.23}$$

erhält.

7.2 Streuraten

Um die Effizienz der verschiedenen Streukanäle zu quantifizieren, werden zeitunabhängige Streuraten eingeführt. Dabei wird von einem System nahe des Gleichgewichts ausgegangen, so dass eine Markov-Näherung verwendet werden kann und darüber hinaus nur Besetzungen betrachtet werden müssen, also Polarisationen und somit Polarisationsstreuung vernachlässigt werden können. Mit Hilfe der Streuraten $S_{\alpha\beta}$ lässt sich so die Zeitentwicklung der Besetzungen $f_\alpha(t)$ in Gl. (7.11) und (7.22) zu

$$\frac{\partial}{\partial t}f_\alpha(t) = \sum_\beta (1-f_\alpha(t))f_\beta(t)S_{\beta\alpha} - f_\alpha(t)(1-f_\beta(t))S_{\alpha\beta} \tag{7.24}$$

vereinfachen, wobei $S_{\alpha\beta}$ die Streuung eines Ladungsträgers vom Zustand α in den Zustand β beschreibt.

Für die Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung vereinfacht sich Gl. (7.22) durch Vernachlässigung nicht-diagonaler Propagatoren (InGaAs) zu

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial t} f_\alpha(t) = 2\Re \sum_\beta \int_{-\infty}^{t} dt'\, G^R_\beta(t-t') G^{R,*}_\alpha(t-t') \\ *\Big\{ \left[f_\beta(t)\left(1-f_\alpha(t)\right)\right] D^<_{\alpha\beta}(t-t') \\ - \left[f_\alpha(t)\left(1-f_\beta(t)\right)\right] D^>_{\alpha\beta}(t-t')\Big\}\,,\end{aligned} \tag{7.25}$$

so dass sich für die Streurate

$$S^{LO}_{\alpha\beta} = 2\Re \int_0^\infty dt'\, G^R_\beta(t') G^{R,*}_\alpha(t') D^>_{\alpha\beta}(t') \tag{7.26}$$

ergibt. Dabei ist für die spätere Diskussion insbesondere zu beachten, dass das Integral proportional zum Überlapp der Spektralfunktionen von α und β ist, wobei eine Spektralfunktion aufgrund des Phononpropagators $D^>$ um eine Phononenergie $\pm\hbar\omega_{LO}$ verschoben ist.

Analog folgt aus Gl. (7.11) für den Coulomb-Anteil

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial t} f_\alpha(t) = \sum_{\beta\gamma\delta} (1-f_\alpha(t)) f_\beta(t) (1-f_\gamma(t)) f_\delta(t) \widetilde{S}_{\beta\alpha\delta\gamma} \\ - f_\alpha(t)(1-f_\beta(t)) f_\gamma(t)(1-f_\delta(t)) \widetilde{S}_{\alpha\beta\gamma\delta}\end{aligned} \tag{7.27}$$

mit den Streuraten

$$\widetilde{S}_{\alpha\beta\gamma\delta} = 2\hbar^2 \Re \left[W_{\alpha\gamma\delta\beta}(2W^*_{\alpha\gamma\delta\beta} - W^*_{\alpha\gamma\beta\delta}) \int_0^\infty dt'\, \left[G^{R,*}_\alpha G^R_\beta G^{R,*}_\gamma G^R_\delta\right]_{(t-t')} \right]\,. \tag{7.28}$$

Im Gegensatz zur Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung handelt es sich hier nicht nur um die Streuung eines Teilchens von α nach β, sondern es findet damit verbunden zusätzlich eine assistierende Streuung von γ nach δ statt. Dies hat zur Folge, dass sich Gl. (7.24) nicht direkt anwenden lässt. Um dennoch die beiden Wechselwirkungen direkt vergleichen zu können, werden für die Coulomb-Streuung effektive Streuraten

$$S^C_{\alpha\beta} = \sum_{\gamma\delta} \widetilde{S}_{\alpha\beta\gamma\delta} (1-f^0_\gamma) f^0_\delta \tag{7.29}$$

eingeführt, die nur die Streuung von α nach β beschreiben, indem über alle möglichen assistierenden Prozesse summiert wird. Dabei wird für die assistierende Streuung von γ nach δ entsprechend den retardierten Greenschen Funktionen (siehe Kap. 6) von einer Gleichgewichtsbesetzung f^0 ausgegangen, so dass beide Wechselwirkungen mittels Gl. (7.24) beschrieben werden können.

Relaxationszeitnäherung

Betrachtet man eine Gleichgewichtsbesetzung, bei der die Markov-Näherung und das Nicht-Vorhandensein von Übergangsamplituden bzw. Polarisationen hier automatisch aus der Gleichgewichtsannahme folgt, lassen sich aufgrund der konstanten Besetzungen zeitunabhängige Einstreuraten

$$S_\alpha^{in} = \sum_\beta f_\beta^0 S_{\beta\alpha} \tag{7.30}$$

und Ausstreuraten

$$S_\alpha^{out} = \sum_\beta (1 - f_\beta^0) S_{\alpha\beta} \tag{7.31}$$

definieren, so dass sich Gl. (7.24) weiter zu

$$\frac{\partial}{\partial t} f_\alpha(t) = (1 - f_\alpha)\, S_\alpha^{in} - f_\alpha S_\alpha^{out} \tag{7.32}$$

vereinfacht. Betrachtet man nun eine Abweichung

$$f^\delta = f^0 - f \tag{7.33}$$

vom Gleichgewicht f^0, folgt aus Gl. (7.32) zusammen mit der Tatsache, dass die Gleichgewichtsbesetzung zu keiner Umverteilung von Besetzungen führt,

$$\left(1 - f_\alpha^0\right) S_\alpha^{in} - f_\alpha^0 S_\alpha^{out} = 0\ , \tag{7.34}$$

dass

$$\frac{\partial}{\partial t} f_\alpha(t) = -f_\alpha^\delta (S_\alpha^{in} + S_\alpha^{out})\ . \tag{7.35}$$

Somit lässt sich eine Relaxationsrate

$$\Gamma_{rel} = S^{in} + S^{out} \tag{7.36}$$

definieren, mit der das System ins Gleichgewicht zurück kehrt. Dabei ist zu beachten, dass die Streuraten von der Besetzung abhängig sind und sich somit eine zeitunabhängige Relaxationsrate nur für kleine Abweichung f^δ vom Gleichgewicht definieren lässt.

7.3 Einfluss des Zusammenspiels der Wechselwirkungen

Mit Hilfe der im vorangehenden Kap. 7.2 eingeführten Streuraten wird nun der Einfluss des Zusammenspiels der Wechselwirkungen quantitativ untersucht. Dabei wird die Selbstenergie der kombinierten Wechselwirkung wie in Kap. 6.4 additiv aus den Selbstenergien der einzelnen Wechselwirkungen gebildet. Somit ergeben sich auch die kombinierten Streuraten durch Addition der einzelnen Streuraten, wobei allerdings die retardierten Greenschen Funktionen bezüglich der kombinierten Wechselwirkungen zu berücksichtigen

sind, so dass die gegenseitige Beeinflussung der Wechselwirkungen über die retardierten Greenschen Funktionen, also durch Renormierungen der spektralen Eigenschaften, erfolgt. Die Streuraten sind entsprechend Gl. (7.26) und (7.28) proportional zu den Überlapps der retardierten Greenschen Funktionen und somit der Spektralfunktionen. In Kap. 6.4 wird das Zusammenwirken der Coulomb- und der Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung in Hinblick auf die Spektralfunktionen untersucht, wobei sich deutliche Abweichungen von den Spektralfunktionen der einzelnen Wechselwirkungen ergeben. Diese Resultate legen nahe, dass sich auch für die Kinetik deutliche Abweichungen zwischen einer Addition der Raten beider Wechselwirkungen und der Rate ergeben, die aus einer Kombination beider Wechselwirkungen, die gegenseitige Einflüsse zwischen den Wechselwirkungen erlaubt, resultiert.

7.3.1 Streuung zwischen diskreten Quantenpunktzuständen

Wie bereits in Kap. 6 gezeigt wird, ergeben sich deutliche Unterschiede bei der Betrachtung von diskreten, lokalisierten Quantenpunktzuständen und quasikontinuierlichen, delokalisierten Benetzungsschichtzuständen. Daher wird zunächst die Streuung zwischen Quantenpunktzuständen betrachtet, bevor in Kap. 7.3.2 der Einfang von Ladungsträgern aus der Benetzungsschicht untersucht wird.

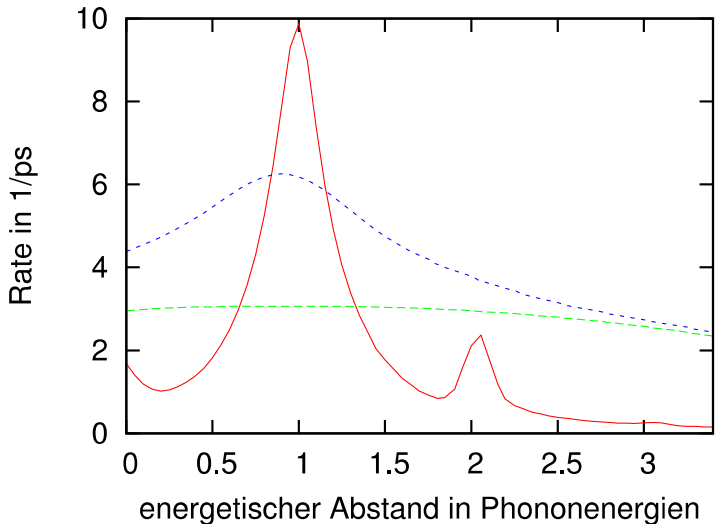


Abb. 7.1: Raten für die Streuung von Elektronen aus einem angeregten Quantenpunktzustand in den Grundzustand als Funktion des energetischen Abstands der Zustände bei 300K: Im Gegensatz zur reinen Coulomb-Streuung (grün, Ladungsträgerdichte von $5 \cdot 10^{11}/\mathrm{cm}^2$) ist die reine Elektron-LO-Phonon-Streuung (rot) sensitiv zu Resonanzen der Energiedifferenz mit Vielfachen der Phononenergie $\hbar\omega_{LO}$. Das Zusammenwirken beider Wechselwirkungen (blau) entspricht aufgrund gegenseitiger Beeinflussung nicht einer einfachen Addition der Raten.

Abb. 7.1 zeigt die Streuraten der Elektronen von einem angeregten p-Zustand in den s-artigen Grundzustand als Funktion des energetischen Abstands dieser Quantenpunkt-

zustände. Die Coulomb-Wechselwirkung (grün) ohne Beiträge der Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung ist dabei nur schwach vom energetischen Abstand abhängig, da sie mit keiner spezifischen Energie verknüpft ist. So kann die Streuung durch die Coulomb-Wechselwirkung durch beliebige Benetzungsschichtzustände effizient über einen großen Energiebereich assistiert werden. Dagegen wird die Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung (rot) durch die fast dispersionslosen LO-Phononen hervorgerufen, so dass die Streuung zwischen Zuständen im Abstand der Phononenergie $\hbar\omega_{LO}$ deutlich begünstigt ist. Daher kommt es bei dieser Energie zu einer Resonanz, so dass die Rate dort einen deutlichen Peak aufweist. Ferner bilden sich durch Mehr-Phononen-Prozesse weitere Peaks bei Vielfachen der Phononenergie, die allerdings mit zunehmender Anzahl der beteiligten Phononen kleiner werden, so dass der Peak bei der dreifachen Phononenergie kaum noch sichtbar ist. Aufgrund der endlichen Lebensdauer, die über die retardierten Greenschen Funktionen bzw. Spektralfunktionen eingeht, sind die Peaks verbreitert.

Die Kombination beider Wechselwirkungen führt im Vergleich zur reinen Elektron-LO-Phonon-Streuung zu deutlich verbreiterten Spektralfunktionen (siehe Kap. 6), was wiederum eine Verbreiterung der Resonanzen bewirkt, so dass die Peaks für die kombinierte Wechselwirkung deutlich breiter als die der Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung alleine sind. Durch die gegenseitige Beeinflussung der Wechselwirkungen ergibt sich so eine ausgeprägte Differenz zwischen der Summe der Raten der einzelnen Wechselwirkungen zur Rate der kombinierten Wechselwirkung (blau). Dies führt sogar dazu, dass die Rate der kombinierten Wechselwirkungen für energetische Abstände um eine Phononenergie kleiner ist als die der Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung alleine.

Durch die Coulomb-Wechselwirkung reduzierte Raten

Um diese reduzierten Raten besser zu verstehen, wird in Abb. 7.2 die Abhängigkeit der Relaxationsraten von der Besetzungsdichte für drei Quantenpunkte mit unterschiedlichen Energiedifferenzen zwischen den Quantenpunktzuständen gezeigt. Während die Raten der Elektron-LO-Phonon-Streuung für sich so gut wie unabhängig von der Besetzungsdichte ist (nicht gezeigt), sind die Raten der Coulomb-Wechselwirkung bis zu einer Dichte von etwa $2\cdot 10^{11}/\mathrm{cm}^2$ näherungsweise proportional zum Quadrat dieser, da in dem betrachteten System bis zu dieser Dichte das Pauli-Blocking vernachlässigbar ist. Dennoch fallen die Raten der kombinierten Wechselwirkungen zunächst mit zunehmender Ladungsträgerdichte ab.

Die Ursache für dieses Verhalten kann mit den zugehörigen Spektralfunktionen verdeutlicht werden (siehe auch Kap. 6). Diese sind für die in Abb. 7.2 betrachteten Energieabstände und Ladungsträgerdichten von $1\cdot 10^7/\mathrm{cm}^2$, $2\cdot 10^8/\mathrm{cm}^2$ und $2\cdot 10^{10}/\mathrm{cm}^2$ in Abb. 7.3 dargestellt. Dabei wird hier entgegen Kap. 6 eine lineare Skala verwendet. Gemäß Gl. (7.26) sind die Streuraten der Elektron-Phonon-Wechselwirkung proportional zu dem um eine Phononenergie verschobenen Überlapp

$$\int d\omega\, \hat{G}_s(\omega)\hat{G}_p(\omega \pm \omega_{LO}) \tag{7.37}$$

der Spektralfunktionen der beteiligten Zustände, wobei hier nur der energetisch passendere Überlapp mit $+\omega_{LO}$ betrachtet wird. Bei geringen Dichten (linke Felder) ist der Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung verschwindend gering und die durch die

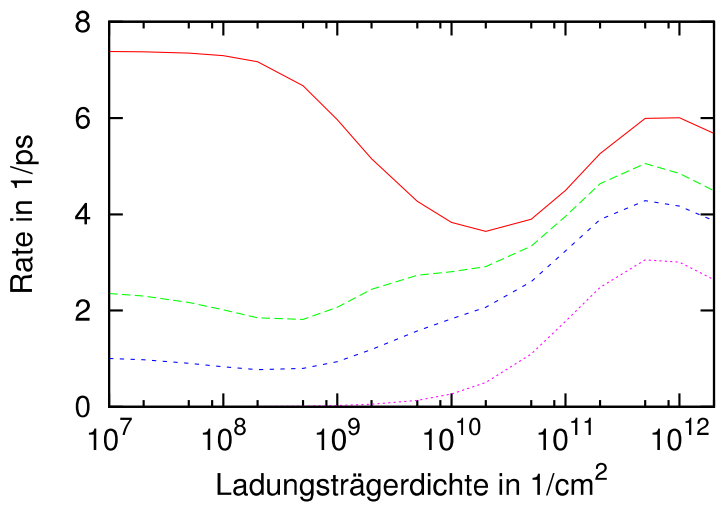


Abb. 7.2: Raten der Streuung von Elektronen durch die kombinierte Wirkung der Coulomb- und Elektron-LO-Phonon-Streuung aus einem angeregten Quantenpunktzustand in den Grundzustand bei 300K und verschiedenen energetischen Abstands der Zustände von $1,1$ (rot), $1,4$ (grün) und $1,7\hbar\omega_{LO}$ (blau): Die Coulomb-Wechselwirkung an sich (lila, $1,4\hbar\omega_{LO}$) ändert sich für die betrachteten Energieabstände um weniger als 10% (vergleiche Abb. 7.1).

Elektron-Phonon-Wechselwirkung hervorgerufene Hybridisierung bewirkt einen großen spektralen Überlapp und somit effiziente Streuung, wobei in Übereinstimmung mit den in Abb. 7.1 gezeigten Ergebnissen eine möglichst zu einer Phononenergie passende Energiedifferenz der betrachteten Zustände den Überlapp und somit die Streuung erhöht. Mit zunehmender Dichte nimmt auch die Coulomb-Wechselwirkung zu, was zu einer Verbreiterung der Spektralfunktionen und damit zu einer Schwächung der Hybridisierung führt, die wiederum eine Reduktion der Überlapps und Streuraten bewirkt. Eine weitere Verbreiterung der Spektralfunktionen durch eine weiter zunehmende Besetzungsdichte bewirkt für Energieabstände nahe einer Phononenergie (obere Felder) eine zusätzliche Reduktion der Überlapps und somit der durch den Elektron-Phonon-Anteil beigetragenen Streuraten. Die Zunahme der Raten kommt durch den einsetzenden Coulomb-Anteil zustande.

Dagegen bewirkt die zunehmende Verbreiterung der Spektralfunktionen für Energieabstände abseits einer Phononenergie eine Zunahme des spektralen Überlapps, so dass die Raten nach einer anfänglichen Reduktion wieder ansteigen. Dabei können die Raten abhängig vom Energieabstand auch wieder über das Niveau bei niedriger Ladungsträgerdichte ansteigen, bevor die Coulomb-Streuung ab etwa $1 \cdot 10^{10}/\text{cm}^2$ merklich beiträgt. Der Abfall der Raten ab etwa $1 \cdot 10^{12}/\text{cm}^2$ wird durch die zunehmende Abschirmung und Pauli-Blocking verursacht. Zwar werden die Raten auch durch Energierenormierungen, die die Verstimmung des Energieabstandes zur Phononenergie beeinflussen, verändert, doch wird dieser Effekt deutlich abgeschwächt, da alle Quantenpunktzustände ähnlich verschoben werden. Ferner wird dieser Effekt durch die Verbreiterung der Spektralfunktionen reduziert.

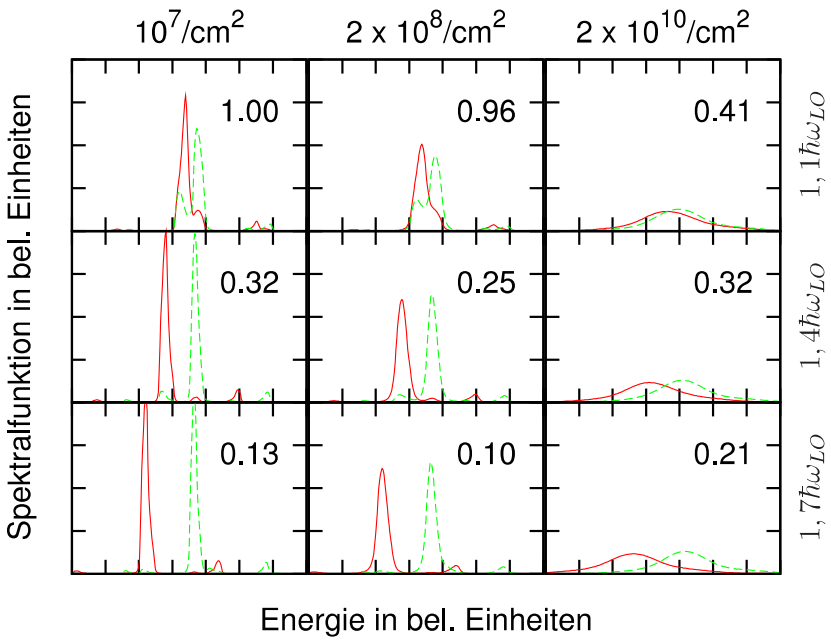


Abb. 7.3: Spektralfunktionen des Grundzustandes (rot) und angeregten Zustands (grün) des Quantenpunkts für verschiedene Energieabstände zwischen diesen Zuständen und Ladungsträgerdichten. Die spektrale Position des angeregten Zustands wurde um eine Phononenergie verschoben, um den für die Streuraten der Elektron-LO-Phonon-Streuung entscheidenden Überlapp (7.37) zu verdeutlichen. Dieser ist zu den in den einzelnen Paneelen angegebenen Werten proportional.

Es lässt sich zusammenfassen, dass schon eine schwache Coulomb-Wechselwirkung ausreicht, die für die Elektron-Phonon-Streuung wichtige Hybridisierung zu reduzieren und dadurch zu einem Rückgang der Streuraten zu führen. Bei höheren Besetzungsdichten und somit stärkerer Wechselwirkung wird die Resonanz der Elektron-Phonon-Wechselwirkung deutlich verbreitert, wodurch die Streuung nahe der Resonanz weiter verringert wird und die Streuung abseits der Resonanz zunimmt.

7.3.2 Einfang von Ladungsträgern

Neben der Relaxation von Ladungsträgern innerhalb eines Quantenpunkts ist ebenfalls der Einfang der Ladungsträger aus einer Benetzungsschicht von Interesse. Zur Quantifizierung wird hier auf die Einfangrate S^{in} und Ausstreurate S^{out} gemäß Gl. (7.30) und (7.31) zurückgegriffen, wobei hier lediglich die Beiträge der Streuung mit der Benetzungsschicht (WL) betrachtet werden

$$\begin{aligned} S_\alpha^{in} &= \sum_{k\in\mathrm{WL}} S_{k\alpha} f_k^0 \,, \\ S_\alpha^{out} &= \sum_{k\in\mathrm{WL}} S_{\alpha k}(1-f_k^0) \,. \end{aligned} \tag{7.38}$$

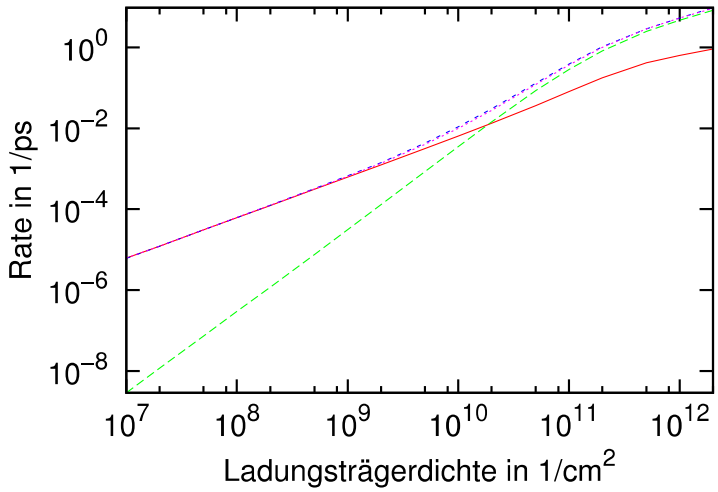


Abb. 7.4: Einfangrate der Elektronen S^{in} von der Benetzungsschicht in einen angeregten Quantenpunktzustand im Abstand von $1,1\hbar\omega_{LO}$ von der Benetzungsschicht als Funktion der Ladungsträgerdichte durch die Elektron-LO-Phonon- (rot), Coulomb-Wechselwirkung (grün), und beide Wechselwirkungen kombiniert (blue) bei 300K: Die Rate der kombinierten Wechselwirkungen weicht dabei um maximal 9% von der Summe der Raten der einzelnen Wechselwirkungen (lila) ab.

Abb. 7.4 zeigt die Einfangraten der Elektronen aus der Benetzungsschicht in einen angeregten Quantenpunktzustand. Bis zu einer Besetzungsdichte von $1 \cdot 10^{11}/\text{cm}^2$ nehmen die Einfangraten durch die Elektron-Phonon-Wechselwirkung etwa linear und die der Coulomb-Wechselwirkung quadratisch zu. Im Vergleich zur Relaxation in Quantenpunkten ist dabei die unterschiedliche Definition der Raten zu beachten, durch die hier weitere Besetzungsfaktoren eingehen. Für größere Besetzungen bewirkt Pauli-Blocking und Abschirmung einen geringeren Anstieg der Raten. Entsprechend des stärkeren Anstiegs der Coulomb-Streuung ist diese bei hohen Dichten und die Elektron-LO-Phonon-Streuung bei kleineren Dichten dominant.

Im Gegensatz zur Relaxation in Quantenpunkten gibt es hier keine starke Kopplung der beteiligten Zustände und somit keine Hybridisierung, die durch die Coulomb-Wechselwirkung verhindert werden könnte. Ferner sorgt das Quasikontinuum der Benetzungsschichtzustände dafür, dass Energieverschiebungen und -verbreiterungen nur einen im Vergleich zur Streuung zwischen zwei Quantenpunktzuständen kleinen Einfluss auf den gesamten Einfang haben. In diesem Fall ist das Zusammenwirken der beiden Wechselwirkungen daher vergleichsweise unbedeutend und die Summe der einzelnen Wechselwirkungsbeiträge entspricht bis auf eine Verstärkung von maximal 9% der Rate der beiden kombinierten Wechselwirkungen. Diese Verstärkung ist insbesondere in dem Bereich groß, in dem beide Wechselwirkungen ähnlich stark zur Rate beitragen, da in diesem Bereich die Elektron-Phonon-Wechselwirkung noch deutlich zur Rate beiträgt und gleichzeitig schon ein großer Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung auf die Elektron-Phonon-Wechselwirkung vorliegt. Der stets gegenüber den einzelnen Wechselwirkungen

beschleunigte Einfang durch das Zusammenspiel der Wechselwirkungen ist darauf zurückzuführen, dass im Gegensatz zum Übergang zwischen diskreten Zuständen keine Resonanz vorliegt, die durch zusätzliche Wechselwirkung verhindert werden könnte, und durch die Möglichkeit der Kombination von Wechselwirkungsprozessen neue Streukanäle geschaffen werden. Siehe hierzu auch die Spektralfunktionen in Kap. 6.4.

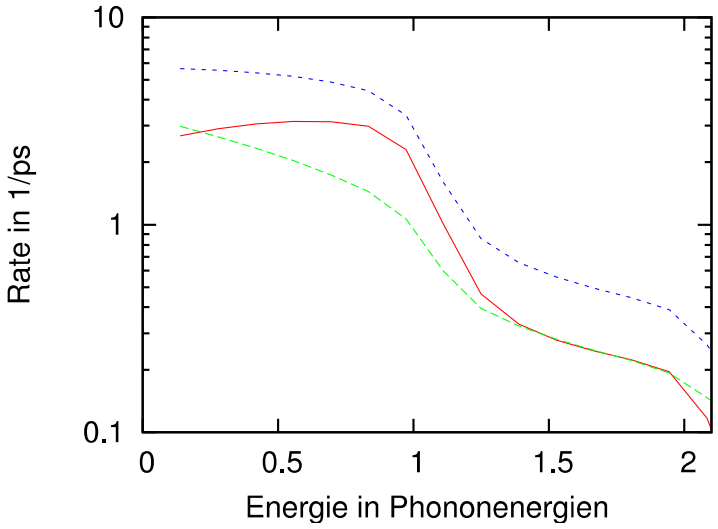


Abb. 7.5: Rate der Einstreuung (rot), Ausstreuung (grün) und Relaxationsrate (blau) bei einer Ladungsträgerdichte von $5 \cdot 10^{11}/\mathrm{cm}^2$ und 300K durch die Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung als Funktion der Bindungsenergie des betrachteten Quantenpunktzustandes.

Während die Abhängigkeit des Coulomb-Anteils der Einfangrate von der Bindungsenergie der Quantenpunktzustände (Differenz der Energie des Quantenpunktzustands zur Bandkante der Benetzungsschicht) genau so schwach ist wie für die Relaxation (nicht gezeigt, vergleiche Abb. 7.1), ist die Rate der Elektron-Phonon-Wechselwirkung, die in Abb. 7.5 gezeigt wird, stark von der Bindungsenergie abhängig. Bis zu einer Bindungsenergie des betrachteten Quantenpunktzustandes von einer Phononenergie nimmt die Relaxationsrate (Einfangrate plus Ausstreurate) kaum ab, da es im gesamten Bereich energetisch passende also um eine Phononenergie verschobene Benetzungsschichtzustände gibt. Dabei nimmt die zur Besetzung der Benetzungsschichtzustände proportionale Einstreuung mit zunehmender Bindungsenergie sogar zu, da sich die Wechselwirkung zu niederenergetischeren Benetzungsschichtzuständen verschiebt, die aufgrund der Gleichgewichtsbesetzung höhere Besetzungen aufweisen. Dagegen nimmt zur Nicht-Besetzung der Benetzungsschichtzustände proportionale Ausstreuung aus selben Grund ab. Bei Bindungsenergien von über einer Phononenergie nehmen die Raten stufenförmig mit jeder weiteren Phononenergie ab, da mit jeder weiteren Phononenergie ein zusätzliches Phonon für die Streuung benötigt wird. Durch die Verbreiterung der Spektralfunktionen schmieren die Stufen dabei aus. Bei Berücksichtigung von Coulomb-Einflüssen würden die Stufen mit steigender Besetzungsdichte zunehmend ausschmieren.

7.4 Vergleich der Elektron-LO-Phonon-Streuraten mit einer störungstheoretischen Rechnung

In diesem Abschnitt wird die in dieser Arbeit behandelte quantenkinetische Rechnung für die Elektron-LO-Phonon-Streuung (siehe Kap. 7.1.2) auf Basis des in Kap. 7.2 vorgestellten Ratenmodells mit einem störungstheoretischen Ansatz verglichen. Der wichtigste Unterschied ergibt sich aus der strikten Energieerhaltung des störungstheoretischen Ansatzes. So lässt sich die Streuung zwischen diskreten Quantenpunktzuständen durch LO-Phononen mit fester Energie nicht störungstheoretisch beschreiben, da die Energie der Phononen entweder nicht zum Übergang zwischen den Quantenpunktzuständen passt (phonon bottleneck [9]) oder sich aufgrund der flachen Dispersion im Resonanzfall eine unendlich große Rate ergibt. Daher wird in diesem Abschnitt ein Quantenpunkt mit lediglich einem elektronischen Zustand, der an eine Benetzungsschicht gekoppelt ist, betrachtet.

Der Unterschied zwischen den beiden Ansätzen lässt sich auf die renormalisierten retardierten Greenschen Funktionen zurückführen. So besitzen die freien retardierten Greenschen Funktionen lediglich ein oszillatorisches Verhalten, das zu der selben δ-artigen Energieerhaltung führt, die auch bei der Störungstheorie auftritt. Renormalisierte Greensche Funktionen zeigen dieses Verhalten allerdings nicht mehr und bewirken daher auch keine strikte Energieerhaltung der Streuprozesse. So ergeben sich zusätzliche Streukanäle, die die Streuung beschleunigen und auch die Streuung zwischen diskreten Zuständen ermöglichen, die aufgrund der δ-artigen Energieerhaltung nicht durch Störungstheorie beschreiben werden kann.

Entsprechend erster Ordnung Störungstheorie (siehe beispielsweise Ref. [32]) erhält man für zeitliche Besetzungsentwicklung eines derartigen Quantenpunktzustandes α

$$\frac{d}{dt} f_\alpha = \sum_{k \in \mathrm{WL}} \Gamma_k f_k (1 - f_\alpha)(N_{LO} + 1) - \Gamma_k (1 - f_k) f_\alpha N_{LO} \ , \tag{7.39}$$

wobei f_k die Besetzung des Benetzungsschichtzustands k, N_{LO} die Besetzung der LO-Phononen bei einer gegebenen Temperatur ist und

$$\Gamma_k = \frac{2\pi}{\hbar} \delta(\epsilon_\alpha - \epsilon_k + \hbar\omega_{LO}) \sum_q \left| M^q_{k\alpha} \right|^2 \tag{7.40}$$

die strikte Energieerhaltung entsprechend Fermis goldener Regel [23, 24] gewährleistet sowie Wechselwirkungsmatrixelemente $M^q_{k\alpha}$ beinhaltet. Aufgrund der konstanten Dispersion ist die Energie der Phononen $\hbar\omega_{LO}$ dabei unabhängig von deren Impuls q. Bei einer Quantenpunktbindungsenergie (Differenz der Energie des Quantenpunktzustands zur Bandkante der Benetzungsschicht) unterhalb einer Phononenergie $\hbar\omega_{LO}$ ist dies der dominante Beitrag. Oberhalb einer Phononenergie trägt die erste Ordnung (bezüglich der Anzahl der beteiligten Phononen) dagegen aufgrund der strikten Energieerhaltung nicht bei. Um derartige Quantenpunkte zu beschreiben ist eine höhere Ordnung notwendig, wobei hier neben der ersten noch die zweite Ordnung behandelt wird, die im Bereich zwischen einer und zwei Phononenergien dominant ist. So können Quantenpunkte mit einer Bindungsenergie von bis zu zwei Phononenergien mit diesem Ansatz beschreiben werden.

Dazu wird Gl. (7.39) durch die Beiträge zweiter Ordnung

$$\frac{d}{dt}f_\alpha = \sum_{k\in\mathrm{WL}} \Gamma'_k f_k(1-f_\alpha)(N_{LO}+1)^2 - \Gamma'_k(1-f_k)f_\alpha N_{LO}^2 \tag{7.41}$$

mit

$$\begin{aligned}\Gamma'_k = &\frac{2\pi}{\hbar}\delta(\epsilon_\alpha - \epsilon_k + 2\hbar\omega_{LO}) \\ &\times \sum_{qq'}\sum_{k'k''} \frac{(1-f_{k'})}{\epsilon_{k'} - \epsilon_\alpha - \hbar\omega_{LO}} \cdot \frac{(1-f_{k''})}{\epsilon_{k''} - \epsilon_\alpha - \hbar\omega_{LO}} \\ &\times \left[M^q_{kk'}M^{q'}_{k'\alpha}M^{-q'}_{\alpha k''}M^{-q}_{k''k} + M^q_{kk'}M^{q'}_{k'\alpha}M^{-q}_{\alpha k''}M^{-q'}_{k''k}\right]\end{aligned} \tag{7.42}$$

entsprechend Ref. [20] ergänzt, wobei die Indizes q, q' über die Impulse der Phononen laufen und die Zustände k', k'' Zwischenschritte der Zwei-Phononen-Prozesse sind. Im thermodynamischen Gleichgewicht erhält man somit die Ein- und Ausstreuraten

$$\begin{aligned}S^{in}_\alpha &= \sum_{k\in\mathrm{WL}} (\Gamma_k(N_{LO}+1) + \Gamma'_k(N_{LO}+1)^2)f^0_k \\ S^{out}_\alpha &= \sum_{k\in\mathrm{WL}} (\Gamma_k N_{LO} + \Gamma'_k N_{LO}^2)(1-f^0_k)\end{aligned} \tag{7.43}$$

mit den Fermifunktionen f^0_k. Aufgrund der strikten Energieerhaltung in Gl. (7.40) und (7.42) sind jeweils nur Benetzungsschichtzustände einer Energie beteiligt, so dass deren Fermibesetzungen gleich sind. Ferner führt ein hier angenommener rotationssymmetrischer Quantenpunktzustand (s-artig) dazu, dass jeweils alle beitragenden Γ_k und Γ'_k gleich sind, so dass die Summation der Multiplikation dieser Konstanten mit der entsprechenden Zustandsdichte in der Benetzungsschicht entspricht.

Die quantenkinetischen Ergebnisse als Funktion der Bindungsenergie (siehe Abb. 7.5) werden in Abb. 7.6 den Ergebnissen des störungstheoretischen Ansatzes gegenübergestellt. Während die qualitative Abhängigkeit der Streurate von der Quantenpunktbindungsenergie bei einer Ladungsträgerdichte von $5 \cdot 10^{11}/\mathrm{cm}^2$ ähnlich sind, ergibt sich ein deutlicher quantitativer Unterschied zwischen beiden Ansätzen. So liegen die Ergebnisse für die störungstheoretische Rechnung unterhalb einer Phononenergie etwa um den Faktor zwei und zwischen einer und zwei Phononenergien um den Faktor vier unterhalb der Ergebnisse der quantenkinetischen Rechnung.

Es ergibt sich insbesondere bei Bindungsenergien knapp oberhalb einer Phononenergie eine deutliche Abweichung. So sorgt der Wegfalls von Prozessen erster Ordnung für einen abrupten Abfall der störungstheoretischen Rate, wohingegen die aufgeweichte Energieerhaltung in der quantenkinetischen Rechnung einen stetigen Übergang bewirkt. Diese Abweichung nimmt entsprechend Abb. 7.7 mit zunehmender Ladungsträgerdichte zu, wobei bis etwa $5 \cdot 10^{11}/\mathrm{cm}^2$ der qualitative Verlauf gleich ist. Darüber hinaus kommt es aufgrund des Pauli-Blockings der Zwischenzustände (k' und k'' in Gl. (7.42)) zu einer Reduktion der störungstheoretisch ermittelten Einstreuraten, wohingegen der quantenkinetische Ansatz deutlich schwächer von anderen Zuständen, die über die Spektralfunktionen eingehen, abhängt.

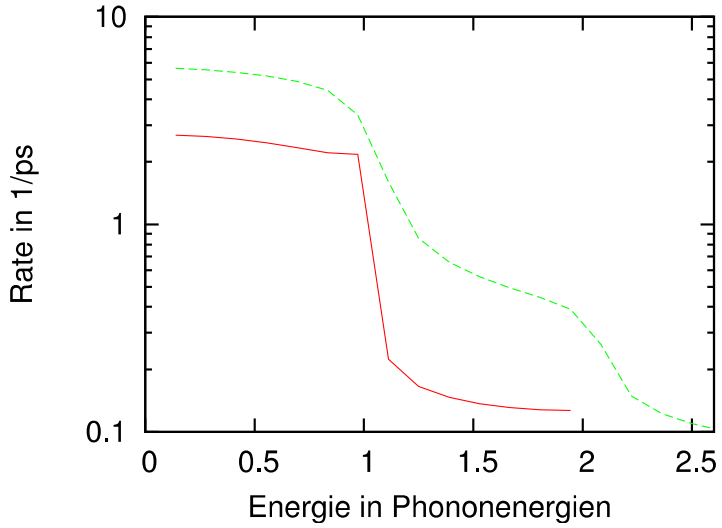


Abb. 7.6: Relaxationsrate bei einer Ladungsträgerdichte von $5 \cdot 10^{11}/\text{cm}^2$ und 300K durch die Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung als Funktion der QD Bindungsenergie entsprechend der störungstheoretischen Rechnung (rot) und der quantenkinetischen Rechnung (grün).

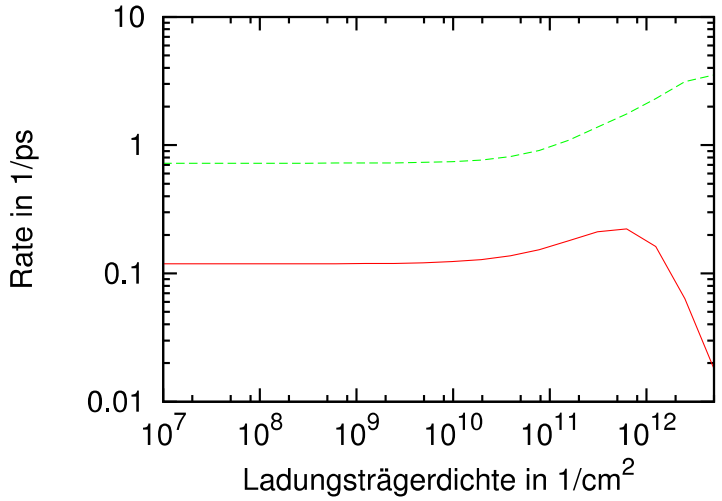


Abb. 7.7: Relaxationsrate durch die Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung als Funktion der Ladungsträgerdichte bei 300K und einer QD Bindungsenergie von $1,1\hbar\omega_{LO}$ entsprechend der störungstheoretischen Rechnung (rot) und der quantenkinetischen Rechnung (grün).

Im Vergleich zu einer störungstheoretischen Rechnung hat der in dieser Arbeit diskutierte quantenkinetische Ansatz zur Berechnung der Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung nicht nur den Vorteil auch Prozesse zwischen diskreten Quantenpunktzuständen beschreiben zu

können, sondern auch im Rahmen einer selbstkonsistenten Selbstenergie erster Ordnung Prozesse beliebiger Ordnung zu berücksichtigen. Bei niedrigen Ladungsträgerdichten ergeben sich im Wesentlichen quantitative Unterschiede zwischen den Modellen, wohingegen es bei höheren Dichten zu deutlich abweichenden Verhalten kommt.

7.5 Dephasierungsraten der Elektron-Phonon-Wechselwirkung

Um eine quantitative Abschätzung der Dephasierung durchzuführen, werde im Folgenden analog zu Streuraten Dephasierungsraten eingeführt. Dies erlaubt beispielsweise eine einfache Abschätzung der Dephasierungsanfälligkeit der in Kap. 8 betrachteten Systeme, anhand derer der Einfluss der Dephasierung und Streuung auf kohärente optische Phänomene untersucht wird. Dabei wird hier lediglich diagonale Dephasierung, also keine Wirkungen durch andere Polarisationen auf die betrachtete Polarisation betrachtet. Entsprechend den Überlegungen zur Besetzungsstreuung werden die Besetzung im Gleichgewicht angenommen und eine Markov-Näherung genutzt. Sofern nur diagonale Dephasierung betrachtet wird, erhält man ausgehend von Gl. (7.23) für diagonale Polarisationen

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial t}\Psi_\alpha(t) &= -\Psi_\alpha(t)\sum_{\beta\neq\alpha}\sum_{1}\int_{-\infty}^{t} dt'\, G^{R,*}_{\alpha_1}(t-t')G^{R}_{\beta_1}(t-t') \\ &\qquad \left[f_{\beta_1}D^{<}_{\alpha,\beta}\left(t-t'\right)+\left(1-f_{\beta_1}\right)D^{>}_{\alpha,\beta}\left(t-t'\right)\right] \\ &= -\Psi_\alpha(t)R_\alpha\,,\end{aligned} \tag{7.44}$$

wobei der Realteil von R_α die Dephasierungsrate D_α ist und der Imaginärteil zu Renormierungen führt, die hier nicht betrachtet werde. Somit folgt für den Betrag der Polarisation

$$\frac{\partial}{\partial t}\left|\Psi_\alpha(t)\right| = -D_\alpha\left|\Psi_\alpha(t)\right| \tag{7.45}$$

mit der Dephasierungsrate

$$D_\alpha = \Re\sum_{\beta\neq\alpha}\sum_{1}\int_{0}^{\infty} dt'\, G^{R,*}_{\alpha_1}(t')G^{R}_{\beta_1}(t')\left\{f_{\beta_1}D^{<}_{\alpha,\beta}\left(t'\right)+\left(1-f_{\beta_1}\right)D^{>}_{\alpha,\beta}\left(t'\right)\right\}\,. \tag{7.46}$$

Entsprechend Abb. 7.8 nimmt mit zunehmenden energetischen Abstand von der Benetzungsschicht die Dephasierungsrate aufgrund der abnehmenden Wechselwirkung mit dieser ab. Allerdings führen Resonanzen zwischen den Quantenpunktzuständen, bei denen diese um ein Vielfaches der Phononenergie voneinander getrennt sind, zu einer deutlich effektiveren Wechselwirkung und damit zu peakartig erhöhten Raten. So ergibt sich bei $E = 1,5\hbar\omega_{LO}$ ein Peak durch die Resonanz der elektronischen Zustände und bei $3,8\hbar\omega_{LO}$ durch die Loch-Zustände. Dabei ist zu beachten, dass Renormierungen in der Rechnung berücksichtigt wurden, sich die angegebene Bindungsenergien aber auf die freien Energien beziehen. Mit zunehmender Ordnung der Wechselwirkung werden die Resonanzen schwächer. So fällt die Resonanz bei einem energetischen Abstand von zwei Phononenergien zwischen den Lochzuständen (bei $9\hbar\omega_{LO}$) deutlich schwächer aus.

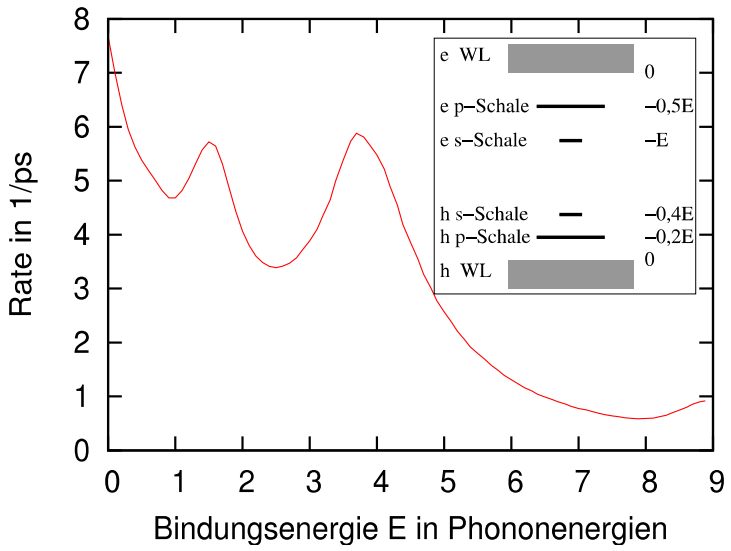


Abb. 7.8: Diagonale Dephasierungsrate für den s-Schalen Übergang in Abhängigkeit der Bindungsenergie des s-Schalen Elektrons (entsprechend dem Inset ist das s-Schalen Loch mit 40% dieser Energie gebunden und die p-Schalen-Ladungsträger jeweils mit der Hälfte des entsprechenden s-Schalen-Ladungsträgers) bei 300K und einer Besetzungsdichte von $5 \cdot 10^{11}\text{cm}^{-2}$.

Gleiches gilt für den Entsprechenden Fall bei den Elektronen, wobei diese Resonanz mit der durch den Abstand von einer Phononenergie bei den Lochzuständen zusammenfällt (bei $3,8\hbar\omega_{LO}$). Die höheren Resonanzen sind bereits so schwach, dass diese nicht mehr zu erkennen sind.

Teil III

Anwendungen

8 Kohärente optische Anregungen

In diesem Kapitel sind Übersetzungen aus den Veröffentlichungen [105, 106] enthalten. Für diese wurden Verwertungsrechte an das American Institute of Physics übertragen.

Quantenmechanische Kohärenz ist für verschiedene Anwendungsbereiche von Halbleiter-Quantenpunkten von zentraler Bedeutung. So bestimmt die Dynamik kohärenter Polarisationen (Übergangsamplituden) nicht nur Pump-Probe-Messungen und Vier-Wellen-Mischung [117], sondern auch die optischen Absorptions- und Gewinnspektren [60, 67, 85] (siehe auch Kap. 9), die von großer Bedeutung für opto-elektronische Geräte sind. Ferner ist Kohärenz für die Quanteninformationstechnologie von entscheidender Bedeutung. So erfordert die Verschränkung von Photonenpaaren [2, 121] Kohärenz, deren Beeinflussung durch die Elektron-Phonon-Wechselwirkung in Ref. [42] untersucht wurde. Daher ist ein detailliertes Verständnis der Prozesse, die diese Kohärenz zerstören, für derartige Anwendungen notwendig. Die Kohärenz wird dabei sowohl durch Dephasierung als auch Streuung verringert. Diese werden in Halbleitern im Wesentlichen durch Coulomb- und Elektron-Phonon-Wechselwirkung hervorgerufen.

Vorhergehende Untersuchungen, die sich beispielsweise mit der Form der Absorptionslinien von Quantenpunkten bei niedrigen Temperaturen [53, 75, 76] oder der Dämpfung von optischen Rabi-Oszillationen [26, 95, 123, 128] befassen, waren auf den Einfluss der LA-Phononen fokussiert, die aufgrund des diskreten Quantenpunktspektrums in Kombination mit den kleinen Phononenergien zwar Dephasierung, aber keine nennenswerte Streuung verursachen. Die Beschränkung auf LA-Phononen war überwiegend durch die Vorhersage eines unbedeutenden Beitrags von LO-Phononen in Quantenpunkten aufgrund von störungstheoretischen Argumenten motiviert, was als phonon bottleneck [9] bezeichnet wird. Neuere theoretische Untersuchungen zeigen allerdings, dass LO-Phononen aufgrund polaronischer Effekte sowohl effiziente Streuung [44, 116] als auch Dephasierung [60] erlauben (siehe auch Kap. 6 und 7). Dabei bewirkt in Quantenpunktsystemen insbesondere auch die Anwesenheit einer Benetzungsschicht mit quasikontinuierlicher Zustandsdichte wichtige Beiträge zur Wechselwirkung der Quantenpunktzustände, was selbst bei störungstheoretischer Betrachtung entsprechend Ref. [20] und Kap. 7.4 zu effizienten Streukanälen führt.

Während LO-Phononen aufgrund ihrer größeren Energie neben Dephasierung auch Streuung verursachen (siehe Kap. 7), tragen LA-Phononen in Quantenpunkten nur zur Dephasierung bei, da bei der Wechselwirkung mit Ladungsträgern überwiegend Phononen mit kleinen Impulsen beitragen, deren Energien deutlich kleiner als die Abstände zwischen den Energien der diskreten Quantenpunktzustände sind. So ist der Einfluss der LO-Phononen typischer Weise dominant, sofern effiziente Streukanäle vorliegen. Um auch insbesondere die kombinierte Wirkung der Dephasierung und der Ladungsträgerstreuung auf kohärente Phänomene zu zeigen, wird hier der Einfluss

der Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung untersucht. Dazu wird betrachtet, inwieweit sich der Grundzustandsübergang eines InGaAs Quantenpunktes mittels eines optischen Pulses bei Anwesenheit von Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung invertieren lässt. Die Ladungsträgerdynamik wird entsprechend Kap. 7 und die optische Anregung entsprechend dem folgenden Kap. 8.1 über die Bloch-Gleichungen modelliert. Neben resonanten Rabi-Oszillationen in Halbleiter-Quantenpunkten (Kap. 8.2, siehe auch Ref. [106]) wird auch der Einfluss auf schnelle adiabatische Übergange (Rapid adiabatic passage, RAP) untersucht (Kap. 8.3, siehe auch Ref. [105]). Zuvor werden deren analytische Lösungen in Kap. 8.1 für den Fall eines Zwei-Niveau-Systems vorgestellt.

Neben der Depasierung und Ladungsträgerstreuung ist die starke Abhängigkeit der erzielten Inversion von den Pulsparametern bei resonanten Rabi-Oszillationen problematisch. Ein weiteres Hindernis stellen Quantenpunkt-Ensemble dar, da aufgrund deren inhomogener Übergangsenergien und Dipolmatrixelemente, die die Stärke der Licht-Materie-Wechselwirkung angeben, für jeden Quantenpunkt unterschiedliche Pulse zwecks Inversion erforderlich sind. Dagegen ist die durch RAP erzeugte Inversion in gewissen Bereichen weitgehend unabhängig von den Anregungsbedingungen. RAP kann durch verschiedene Anregungsschemen realisiert werden. In Halbleitern wurden beispielsweise Verfahren untersucht, die auf der stimulated Raman adiabatic passage [14, 41] basieren oder gechirpte optische Pulse [69, 101, 119] nutzen. In dieser Arbeit wird der letztere Ansatz betrachtet, bei dem sich die Trägerfrequenz des anregenden Pulses linear mit der Zeit ändert und durch die Resonanz des zu invertierenden Übergangs geführt wird.

Als konkretes Anwendungsbeispiel werden rein-optische Schalter betrachtet, die beispielsweise durch optisch verstärkende Halbleiter [45, 80] oder Quantenpunkte in photonischen Kristallen [89] realisiert wurden. Rein-optische Schalter werden unter anderem für photonische Schaltkreise benötigt, in denen optische Signale direkt von anderen optischen Signalen beeinflusst werden. So wird in Kap. 8.4 untersucht, wie sich die zuvor betrachteten Invertierungsprozesse bei mehrfacher Anwendung zum Schalten zwischen Grundzustand und voller Inversion eignen und welche Voraussetzungen die Quantenpunktsysteme dabei erfüllen müssen.

8.1 Lösung für Zwei-Niveau-Systeme

Zunächst wird für ein Zwei-Niveau-Systems, in dem neben der optischen Anregung keine weiteren Wechselwirkungen stattfinden, die analytische Lösung des Problems betrachtet.

Dipolübergänge

Für die optische Anregung wird dabei die Dipolnäherung [99] verwendet. In dieser wird die Wechselwirkung der Elektronen mit einem externen elektromagnetischen Feld über den Hamiltonoperator

$$H_D = \sum_{\alpha,\beta,\mathbf{q}} \sum_{1,2} -\mathbf{d}_{\alpha_1,\beta_2} \mathbf{E} a^\dagger_{\alpha_1} a_{\beta_2} \tag{8.1}$$

beschrieben, wobei

$$\mathbf{d}_{\alpha_1\beta_2} = \langle \phi_{\alpha_1} | e\mathbf{r} | \phi_{\beta_2} \rangle \tag{8.2}$$

die Matrixelemente der Dipol-Wechselwirkung sind. Die elementare Wechselwirkung besteht dabei im Übergang eines Elektrons vom Zustand β_2 in den Zustand α_1 durch Einwirkung eines externen elektromagnetischen Feldes $\mathbf{E}$, das als klassische Größe behandelt wird.

Da der Impulsübertrag bei einer optischen Wechselwirkung klein ist, kann man für die translationsinvariante Benetzungsschicht aufgrund der Impulserhaltung näherungsweise davon ausgehen, dass nur direkte Übergänge vorliegen, bei denen sich zwar das Band, aber nicht der Impuls des Elektrons ändert. Dementsprechend werden auch keine Intrabandübergänge betrachtet. Aufgrund der Symmetrie der Zustände der hier betrachteten InGaAs-Quantenpunkte ergeben sich auch für diese nur direkte Übergänge, so dass nur die Elemente $\mathbf{d}_{\alpha_e,\alpha_h}$ beitragen. Dagegen sind für die in Kap. 9 betrachteten InGaN-Quantenpunkte auch nichtdiagonale Übergänge ($\mathbf{d}_{\alpha_e,\beta_h}$) möglich.

Optische Bloch-Gleichungen

Durch Auswertung von Gl. (8.1) erhält man für ein Zwei-Niveau-System die optischen Bloch-Gleichungen (e-h-Bild, siehe beispielsweise Ref. [34, 40])

$$i\hbar\frac{d}{dt}\Psi = (\epsilon_e + \epsilon_h)\,\Psi - (1 - f_e - f_h)\,\mathbf{dE}\,, \tag{8.3}$$

$$i\hbar\frac{d}{dt}f_{e,h} = \mathbf{dE}^*\Psi - \mathbf{dE}\Psi^*\,. \tag{8.4}$$

Durch Abspaltung der Frequenz $\omega(t)$ des externen Feldes (rotating frame)

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(t) &= \widetilde{\mathbf{E}}(t)e^{-i\omega(t)t}\,, \\ \Psi(t) &= \widetilde{\Psi}(t)e^{-i\omega(t)t} \end{aligned} \tag{8.5}$$

und durch Einführen des Bloch-Vektoren

$$\mathbf{U} = \begin{pmatrix} 2\Re\widetilde{\Psi} \\ 2\Im\widetilde{\Psi} \\ f_e + f_h - 1 \end{pmatrix}\,, \tag{8.6}$$

lassen sich die optischen Bloch-Gleichungen (8.3) und (8.4) in Vektorform

$$\frac{d\mathbf{U}}{dt} = \mathbf{\Omega}_R \times \mathbf{U} \tag{8.7}$$

schreiben, wobei

$$\mathbf{\Omega}_R = \frac{1}{\hbar}\begin{pmatrix} -\mathbf{d}\widetilde{\mathbf{E}} \\ 0 \\ \epsilon_e + \epsilon_h - \hbar\frac{\partial}{\partial t}\left[\omega(t)\cdot t\right] \end{pmatrix}\,. \tag{8.8}$$

die Winkelgeschwindigkeit dieser Rotation ist (im Rotating-Frame). Diese Rotationen werden als Rabi-Oszillationen bezeichnet. Im Folgenden wird der Fall einer resonanten Anregung, die zu oszillierenden Besetzungen führt, und einer linear zu- bzw. abnehmenden Frequenz, die einen schnellen adiabatischen Übergang (RAP) bewirken kann, behandelt. Die Behandlung dieser Fälle in einem Quantenpunktsystem, in dem weitere Wechselwirkungen berücksichtigt werden müssen, wird in den Kap. 8.2 und 8.3 behandelt.

Resonante Anregung

Im Falle einer resonanten Anregung $\hbar\omega(t) = \epsilon_e + \epsilon_h$ erhält man gemäß Gl. (8.8)

$$\mathbf{\Omega}_R = \frac{1}{\hbar}\begin{pmatrix} -\mathbf{d}\widetilde{\mathbf{E}} \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}, \tag{8.9}$$

was eine Oszillation der Inversion und des Imaginärteils der Polarisation darstellt. Befindet sich das System zunächst im Grundzustand ($f = 0$, $\Psi = 0$ und somit $U = (00-1)$), bewegt sich der zugehörige Blochvektor mit einsetzender Anregung mit der Winkelgeschwindigkeit $d\widetilde{E}$ zunächst in Richtung voller Inversion ($U = (001)$). Da sich die Richtung der Winkelgeschwindigkeit nicht ändert, nähert sich der Blochvektor, nachdem volle Inversion erreicht wurde, anschließend wieder dem Grundzustand. So lange der Puls andauert kommt es somit zu einer Oszillation deren Endzustand einzig von der Pulsfläche

$$A = \int dt\, \frac{\mathbf{d}\widetilde{\mathbf{E}(t)}}{\hbar} \tag{8.10}$$

der Anregung abhängig ist. Dabei ist eine Pulsfläche von π erforderlich um das System vollständig zu invertieren und von 2π um wieder in den Ursprungszustand zu kommen.

Der Endzustand ist also stark von der Pulsfläche abhängig. Daneben ergibt sich - sofern man keine Resonanz angenommen hätte - eine weitere deutlich Abhängigkeit von der Anregungsfrequenz. Insbesondere kann durch eine von der Resonanz abweichenden Frequenz eine volle Inversion nicht mehr erreicht werden. Diese starken Abhängigkeiten können mittels RAP vermieden werden. Dazu wird keine konstante Anregungsfrequenz, sondern eine linear zu- bzw abnehmende Frequenz verwendet.

Gechirpte Pulse

Im Falle einer linear zu- bzw. abnehmenden Frequenz $\omega(t) = \omega_0 + \alpha t$ (gechirpter Puls) erhält man gemäß Gl. (8.8)

$$\mathbf{\Omega}_R = \frac{1}{\hbar}\begin{pmatrix} -\mathbf{d}\widetilde{\mathbf{E}} \\ 0 \\ \epsilon_e + \epsilon_h - \hbar(\omega_0 + 2\alpha t) \end{pmatrix}. \tag{8.11}$$

In diesem gemäß Gl. (8.5) beschleunigten rotierenden Bild folgt der Bloch-Vektor dem Rotationsvektor, sofern man sich im adiabatischen Regime befindet, was erfordert, dass die

Rotation schnell gegenüber der Änderung der Ausrichtung des Rotationsvektors $\mathbf{\Omega}_R$ ist:

$$|\mathbf{\Omega}_R(t)| \gg \frac{d}{dt}\left|\text{arc tan}\frac{-\mathbf{d}\widetilde{\mathbf{E}}}{\epsilon_e + \epsilon_h - \hbar(\omega_0 + 2\alpha t)}\right| . \tag{8.12}$$

Im Falle eines gechirpten Pulses, dessen Frequenz durch die Resonanz des betrachteten Übergangs läuft ($\epsilon_e + \epsilon_h = \hbar\omega_0$), ändert sich die Ausrichtung des Rotationsvektors abhängig von der Richtung der Frequenzänderung von zum Grundzustand zeigend ($\propto$ (00 − 1)) zu zur vollen Inversion zeigend ($\propto$ (001)) bzw. umgekehrt. Dies ist unabhängig von den weiteren Pulsparametern, wie Pulsfläche, Pulsdauer oder dem genauen Frequenzverlauf. Für ein sich im Grundzustand befindendes System führt ein derartiger Puls, der das adiabatische Regime einhält, zu einem bezüglich der Pulsparameter stabilen Übergang zur vollen Inversion. Umgekehrt bewegt sich ein voll invertiertes System in den Grundzustand.

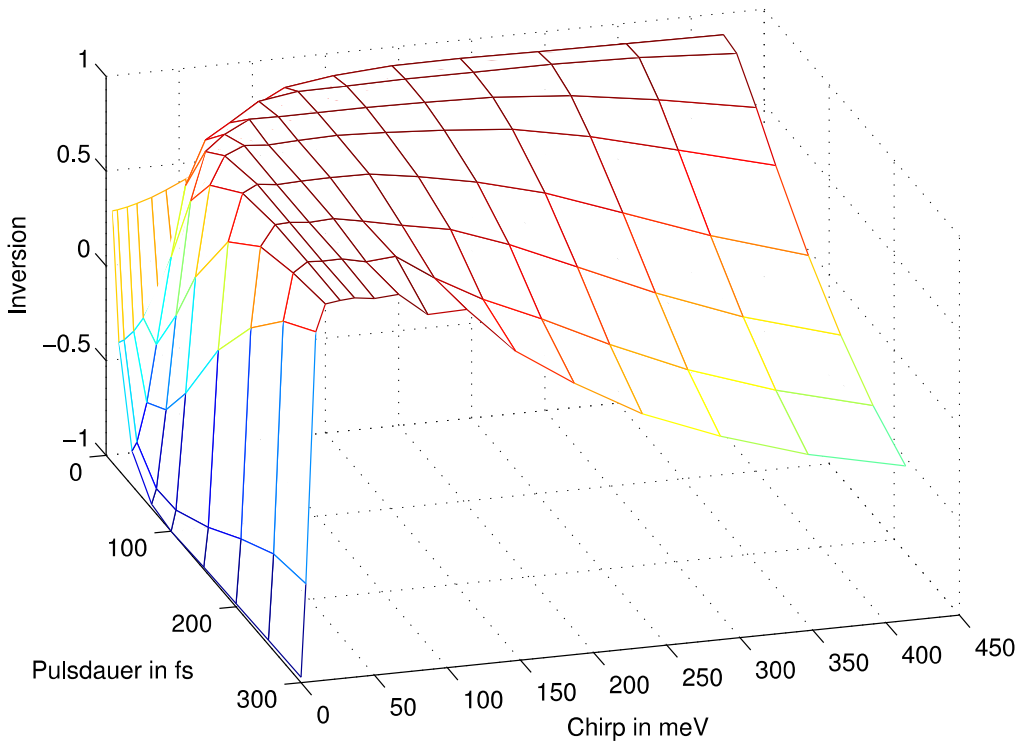


Abb. 8.1: Durch 3,2π-Pulse hervorgerufene Inversion eines Zwei-Niveau-Systems in Abhängigkeit der Pulsdauer und des Chirps (Energieverschiebung der Pulsfrequenz während des Pulses): Ohne Chirp (Chirp $= 0$) kommt es zu Rabi-Oszillationen, nach denen sich das System aufgrund der Renormierungen bei Pulsdauern von über 100 fs fast wieder im Grundzustand befindet. Dagegen kann das System mittels eines gechirpten Pulses nahezu vollständig invertiert werden.

Zur Untersuchung der Grenzen des adiabatischen Regimes sind in Abb. 8.1 und 8.2 die Endinversionen in Abhängigkeit der Pulsdauer und des Chirps, der der Frequenzänderung

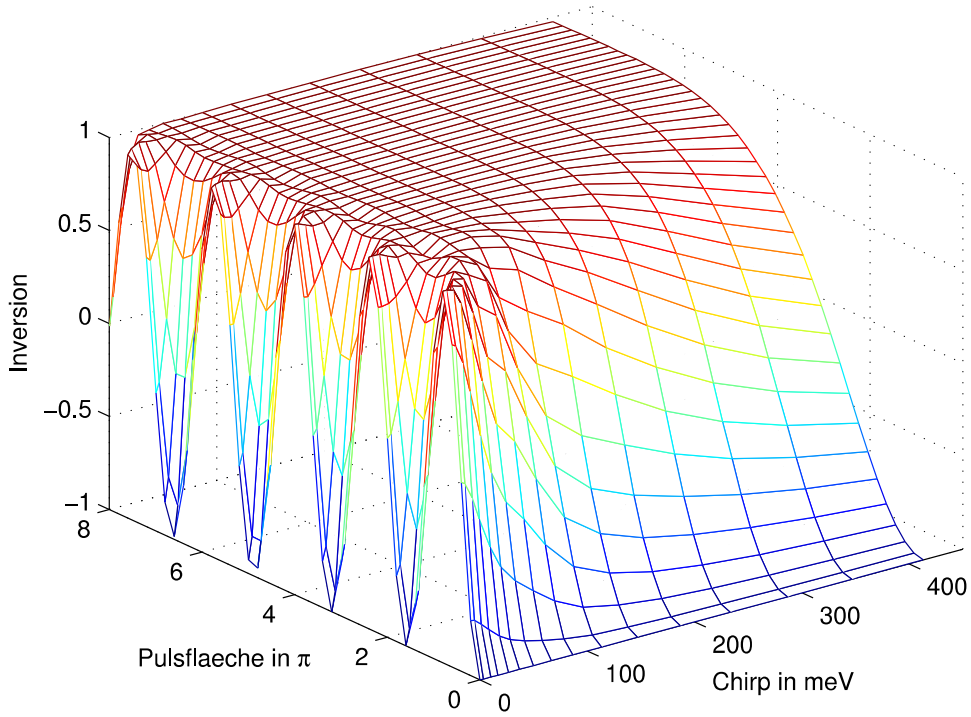


Abb. 8.2: Durch 100fs-Pulse hervorgerufene Inversion eines Zwei-Niveau-Systems in Abhängigkeit der Pulsfläche und des Chirps: Ohne Chirp (Chirp $= 0$) kommt es zu Rabi-Oszillationen zwischen dem Grundzustand und voller Inversion.

während des Pulses entspricht, bzw. in Abhängigkeit der Pulsfläche und des Chirps dargestellt. Um eine bessere Vergleichbarkeit mit dem in Abb. 8.4 dargestellten Fall eines Quantenpunktsystems zu erreichen, werden in diesen Abbildungen die Renormierungen des Systems gemäß den Halbleiter-Bloch-Gleichungen

$$i\hbar\frac{d}{dt}\Psi_\alpha = (\widetilde{\epsilon}_{\alpha_e} + \widetilde{\epsilon}_{\alpha_h})\,\Psi_\alpha - (1 - f_{\alpha_e} - f_{\alpha_h})\,\Omega_\alpha\,, \tag{8.13}$$

$$i\hbar\frac{d}{dt}f_{\alpha_{e,h}} = \Omega_\alpha^*\Psi_\alpha - \Omega_\alpha\Psi_\alpha^*. \tag{8.14}$$

berücksichtigt. Diese stellen eine Erweiterung der optischen Bloch-Gleichungen zur Berücksichtigung der Hartree-Fock-Renormierungen der Coulomb-Wechselwirkung (Kap. 4.2.1) dar. Dabei gilt für die verallgemeinerte Rabi-Energie Ω_α und die durch die Coulomb-Wechselwirkung renormierte Einteilchenenergie $\epsilon_{\alpha_{e,h}}$

$$\widetilde{\epsilon}_{\alpha_1} = \epsilon_{\alpha_1} + \Sigma^{HF}_{\alpha_1,\alpha_1}\,, \tag{8.15}$$

$$\Omega_\alpha = \mathbf{dE} + \Sigma^{HF}_{\alpha_e,\alpha_h} \tag{8.16}$$

unter Verwendung der in Gl. (4.21) und (4.22) angegebenen Selbstenergien Σ. Daher führt ein ungechirpter $3{,}2\pi$-Puls bei entsprechender Pulsdauer zu einem System, das sich nach

dem Puls wieder im Grundzustand befindet; dieser Puls entspricht etwa einem nicht renormierten 4π-Puls. Dabei sind die Renormierungen in Abb. 8.1 auch von der Pulsdauer abhängig. So ergibt sich auch für ungechirpte, resonante Pulse eine Abhängigkeit der Endinversion von der Pulsdauer.

Entsprechend Gl. (8.12) lassen sich die Anforderungen an das adiabatische Regime auch durch

$$A^2 \gg \frac{C \cdot T}{\hbar} \gg 1 \tag{8.17}$$

ausdrücken, wobei A die Pulsfläche, $C = \alpha\hbar T$ der Chirp und T die Pulsdauer ist. Dementsprechend ergibt sich mit steigender Pulsdauer und konstanter Pulsfläche ein kleiner werdender zu kleineren Chirps bewegter Bereich für das adiabatische Regime. Dies lässt sich in Abb. 8.1 bestätigen, sofern die Bereiche als adiabatisch gewertet werden, in denen die Endinversion nahe 1 liegt und nur schwach von den Parametern abhängt, was bei der gewählten Pulsfläche, die für das System ohne Chirp nicht zu einer vollständigen Inversion führt, gerechtfertigt ist. Außerdem nimmt der Bereich erlaubter Chirps mit steigender Pulsfläche entsprechend Gl. (8.17) zu. Wie in Abb. 8.2 zu sehen ist, bildet sich dieser Bereich ab einer Pulsfläche von etwa 2π. Unterhalb dieser Pulsfläche ist daher kein RAP möglich, was jedoch nicht bedeutet, dass eine vollständige Inversion nicht möglich wäre, sondern dass keine bezüglich der Pulsparameter stabile Inversion möglich ist.

Im Bereich zu schwacher Chirps ($C \cdot T/\hbar$ ist nicht deutlich größer als 1) geht die durch die Pulse hervorgerufene Inversion weitgehend stetig zu der Inversion einer resonanten Anregung ($C = 0$) über; es kommt zu von der Pulsfläche abhängigen Oszillationen. Dabei ist zu bedenken, dass die Pulse gerade so gewählt wurden, dass im ungechirpten Fall eine resonante Anregung vorliegt. Dagegen kommt es im Bereich zu starker Chirps ($C \cdot T/\hbar$ ist nicht deutlich kleiner als A^2) zu einer verringerten Inversion, da der Blochvektor mit zunehmendem Chirp immer weniger in der Lage ist, dem Rotationsvektor zu folgen, da dessen Richtungsänderung zu schnell im Verhältnis zu dessen Betrag erfolgt.

8.2 Nicht-Markovsche Effekte bei der resonanten Anregung eines Quantenpunktsystems

Nachdem ein Zwei-Niveau-System betrachtet wurde, wird jetzt ein InGaAs-Quantenpunktsystem betrachtet, das aus einer Benetzungsschicht und mit einer Dichte von 10^{10} cm^{-2} zufällig verteilten Quantenpunkten besteht. Entsprechend Kap. 2.2 gibt es für Elektronen und Löcher jeweils neben den Grundzuständen zwei entartete angeregte Zustände, wobei der energetische Abstand 40 meV $= 1,1\hbar\omega_{LO}$ bei den Elektronen and 15 meV $= 0,4\hbar\omega_{LO}$ bei den Löchern beträgt. Der Abstand der angeregten Zustände zu den Benetzungsschichtzuständen entspricht jeweils auch diesem Abstand. Dieses Energieschema bewirkt den Befunden aus Kap. 7 entsprechend effiziente Streuung.

Die Betrachtung eines Quantenpunktsystems macht es erforderlich, neben den Renormierungen der Halbleiter-Bloch-Gleichungen (8.13) und (8.14) auch Dephasierung und Streuung zu berücksichtigen. Zur Einbindung weiterer Wechselwirkungen bietet es sich an, diese entsprechend Kap. 7 mittels den Kadanoff-Baym-Gleichungen (3.95) zu

behandeln und als zusätzlichen additiven Beitrag zu den Halbleiter-Bloch-Gleichungen einzubringen. Dabei beschränkt sich die folgende Untersuchung neben den Hartree-Fock-Renormierungen auf die Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung, deren Beiträge zur Kinetik mittels Gl. (7.19) und (7.20) beschrieben werden. Wie in Kap. 7.2 anhand von Streuraten gezeigt wurde, gibt es dabei sowohl innerhalb des Quantenpunkts als auch mit der Benetzungsschicht effiziente Streuung, wobei hier allerdings nicht auf die Markov-Näherung zurückgegriffen wird.

Im Folgenden wird eine Gittertemperatur von 4 K ($N_{LO} = 4,4 \cdot 10^{-46}$) angenommen, so dass die Phononbesetzung nahe null liegt und somit die Absorption von Phononen nur unmerklich zur Streuung beiträgt. Dies legt im Sinne der Energieerhaltung als Überlapp der Spektralfunktionen - wie sie bei der zuvor genutzten Markov-Näherung angewendet wurde - nahe, dass Streuung in höherenergetische Zustände nur in unbedeutenden Umfang stattfindet. Diese Näherung ist allerdings nur für sich langsam ändernde Besetzungen sinnvoll, wohingegen hier bei entsprechend starker Anregung auch sehr schnelle Besetzungsänderungen zu erwarten sind. Da sich die Energieerhaltung in diesem nicht-markovschen Ansatz erst über die Zeit allmählich aufbaut und nicht instantan vorliegt, bewirken diese schnellen Besetzungsänderungen effektiv ein Aufweichen der Energieerhaltung auf kurzen Zeitskalen. Daher sind im Regime schneller Besetzungsänderungen auch Prozesse, die der Energieerhaltung deutlich zu widersprechen scheinen, wie der Streuung eines Ladungsträgers in einen höherenergetischen Zustand durch die Emission eines Phonons, effizient, so dass trotz der tiefen Temperatur und der damit verbundenen kleinen Phononbesetzung die Streuung zwischen allen Quantenpunktzuständen effizient ist.

Um dies zu verdeutlichen, werden in Abb. 8.3 die Rabi-Oszillationen der elektronischen Grundzustandsbesetzung in Folge einer optischen Anregung des Grundzustandes mittels gaussförmiger 4π-Pulse (inklusive Renormierung) unterschiedlicher Länge τ gezeigt. Ohne die Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung (schwarz) bewirken die 4π-Pulse zwei komplette Oszillationszyklen zwischen einer Besetzung von $f = 0$ und $f = 1$, wie es eben in einem Zwei-Niveau-System entsprechend den Bloch-Gleichungen (siehe Kap. 8.1) zu erwarten ist. Die durch die Wechselwirkung verursachte Dephasierung bewirkt eine Dämpfung der Amplitude der Rabi-Oszillationen, so dass die durch die Oszillation abgedeckten Besetzungen kleiner werden und dementsprechend die Extrema ($f = 0$ und $f = 1$) nicht mehr erreicht werden. Sofern es sich um einen Puls handelt, der das System voll invertiert oder in den Grundzustand zurück führt, treten Polarisationen hauptsächlich während des Pulses auf. Da die Dephasierung proportional zu Polarisation ist, nimmt dieser Effekt mit größer werdender Pulsdauer zu, da die Zeit, während der Dephasierung stattfinden kann, mit der Pulsdauer zunimmt. Der selbe Effekt ergibt sich auch für LA-Phononen [26], so dass es nahe liegt, anzunehmen dass kurze Pulse vorteilhaft zur Invertierung eines Quantenpunktsystems sind. Allerdings erkennt man in Abb. 8.3 anhand der Besetzung des Grundzustands der Elektronen (rot) und der Löcher (blau), dass die Abweichungen vom Zwei-Niveau-System auch bei kurzen Pulsen deutlich sind. Dies kann durch Besetzungsstreuung erklärt werden, die nicht nur während der Pulse sondern auch danach wirkt. Dabei bewirken insbesondere kurze Pulse aufgrund der damit verbundenen schnelleren Besetzungsänderungen eine ultrakurze aber drastische Aufhebung der Energieerhaltung und damit viele effiziente Streukanäle aus dem Grundzustand heraus, obwohl keine nennenswerte Absorption möglich ist, die in Markov-

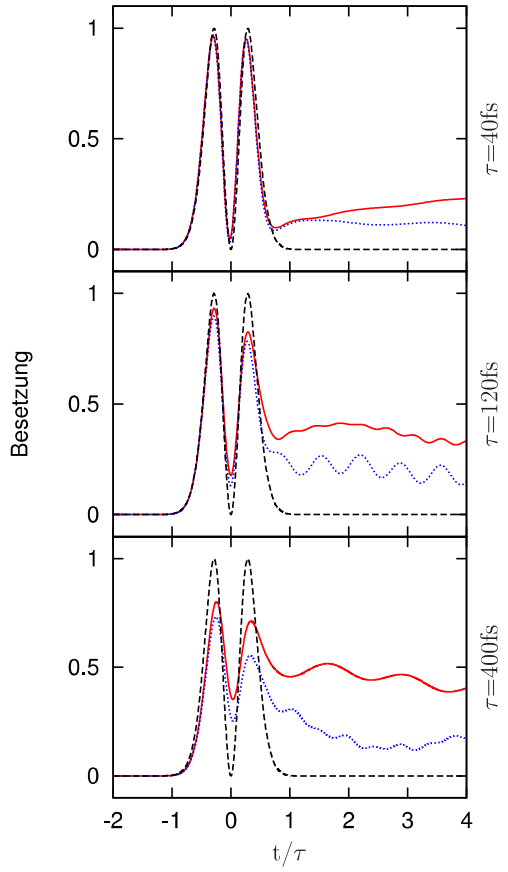


Abb. 8.3: Zeitliche Entwicklung der Besetzung des Grundzustands der Elektronen (rot) und der Löcher (blau) für verschieden lange Pulse. Entgegen dem Fall ohne Elektron-Phonon-Wechselwirkung (schwarz) kommt es zu Dephasierung und darüber hinaus auch nach der optischen Anregung zu Umverteilungen der Besetzungen, die für Elektronen und Löcher unterschiedlich verlaufen. Dabei ist zu beachten, dass die Zeitskala jeweils in Pulsdauern gewählt ist.

Näherung notwendig wäre. Siehe auch Ref. [106].

Dieses Beispiel verdeutlicht eindrucksvoll die Bedeutung der sich erst über die Zeit aufbauenden nicht-markovschen Energieerhaltung gegenüber einer instantanen markovschen Energieerhaltung, wie sie zum Beispiel notwendigerweise in Kap. 7 zur Definition von Zeitunabhängigen Streuraten verwendet wurde. Das Zusammenspiel von Dephasierung und Streuung, das bei LA-Phononen nicht auftritt, schränkt bei den untersuchten Quantenpunkten eine kohärente Anregung unabhängig von der Pulsdauer und auch bei niedrigen Temperaturen deutlich ein. Entsprechend den Ergebnissen für die Streuraten und Dephasierungsraten aus Kap. 7 versprechen Quantenpunkte mit anderem Energieschema bessere Bedingungen für kohärente Anregungen. Solche Quantenpunkte werden in Kap. 8.4 zur Realisierung optischer Schalter betrachtet.

8.3 Rapid adiabatic passage

Um den Einfluss der Dephasierung und der Besetzungsstreuung gegenüber der vorhergehenden Untersuchung für resonante Anregungen klein zu halten wird hier ein Quantenpunktsystem mit anderem Energieschema untersucht. So wird ein Energieabstand der Quantenpunktzustände von 60 meV $= 1,6\hbar\omega_{LO}$ für die Elektronen und 25 meV $=$

$0,7\hbar\omega_{LO}$ für die Löcher angesetzt, was entsprechend den Ergebnissen aus Kap. 7 insbesondere eine deutliche Reduktion der Streuung im Quantenpunkt bewirkt (siehe Abb. 7.1 und 7.5), wohingegen die Dephasierung nur wenig abnimmt (siehe Abb. 7.8).

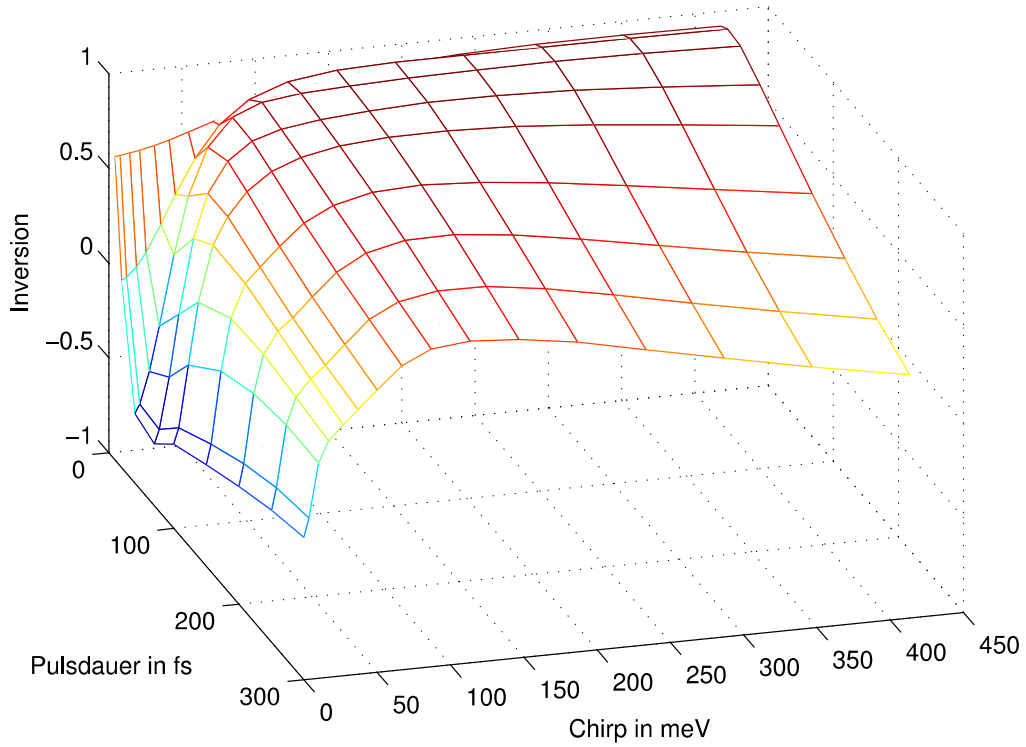


Abb. 8.4: Durch $3{,}2\pi$-Pulse hervorgerufene Inversion eines Quantenpunktsystems mit Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung in Abhängigkeit der Pulsdauer und des Chirps (Abb. 8.1 zeigt den analogen Fall ohne Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung): Die Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung führt zur Dephasierung sowie Ladungsträgerstreuung, deren Einfluss mit der Pulsdauer zunimmt und zu die Inversion reduziert.

Während Quantenpunktsysteme mit schwacher Dephasierung mittels optischer Pulse von mehreren ps Länge invertiert werden können [101, 119], führt dieser relativ lange Zeitraum in Quantenpunktsystemen mit effizienten Dephasierungsmechanismen zu einer vollständigen Dephasierung, wodurch eine Inversion verhindert wird. Um dennoch Inversion zu erreichen ist in solchen Systemen ein schneller Übergang vom Grundzustand zur Inversion notwendig, um die Zeit zu reduzieren, in der Polarisationen vorhanden sind und somit Dephasierung stattfinden kann. Dabei liegt die größte Anfälligkeit für Dephasierung im Bereich mittlerer Inversion ($f \approx 0,5$), da hier die Polarisation im Verlauf einer kohärenten Anregung am größten ist. Dagegen kommt es im voll be- bzw. unbesetzten Zustand nur zu Besetzungsstreuung. Diese ist für die hier betrachteten Quantenpunktzustände mit großen energetischen Abständen zu anderen Zuständen relativ klein. Aus diesem Aspekt heraus sind kurze (T klein) und stark gechirpte (C/T groß)

Pulse vorteilhaft. Dagegen verlangt das adiabatische Regime gemäß Gl. (8.17), dass sich $C \cdot T$ in einem bestimmten von der Pulsfläche abhängigem Intervall befindet, so dass die Anforderungen zur Verringerung der Dephasierung zu einer Verletzung des adiabatischen Regimes führen, was wiederum zu einer Verringerung der Inversion führt. Betrachtet man unter diesen Gesichtspunkten nochmals Abb. 8.1 ergibt sich ein Bereich relativ kurzer Pulse und hoher Chirps der beide Anforderungen weitgehend erfüllt, was durch die in Abb. 8.4 dargestellten Ergebnisse für das betrachtete Quantenpunktsystem bestätigt wird. Die Inversion im Bereich langer, schwach gechirpter Pulse wird dagegen merklich durch die Wechselwirkung reduziert.

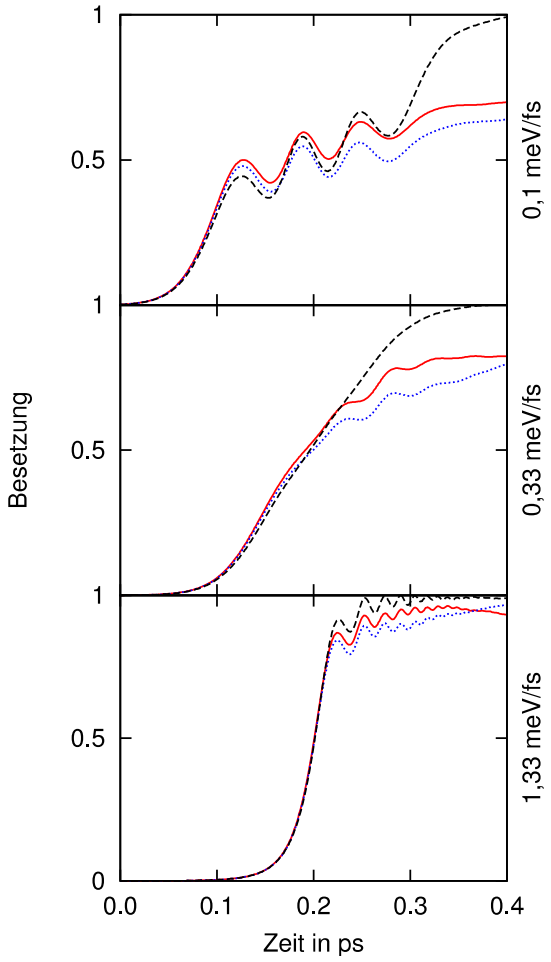


Abb. 8.5: Zeitliche Entwicklung der Besetzung des Quantenpunkt-Grundzustandes der Elektronen (durchgehende Linie) und Löcher (gepunktete Linie): Durch verschieden stark gechirpte Pulse ($0,1\frac{\text{meV}}{\text{fs}}$, $0,33\frac{\text{meV}}{\text{fs}}$ und $1,33\frac{\text{meV}}{\text{fs}}$) mit einer Pulsfläche von 8π bei einer Temperatur von 77K wird der Grundzustand teilweise invertiert. Im Fall eines Zwei-Niveau-System (gestrichelte Linie), in dem zwar Energierenormierungen, aber keine Streuung oder Dephasierung berücksichtigt werden, werden deutlich höhere Inversionen erreicht.

Zur genaueren Untersuchung wird in Abb. 8.5 die zeitliche Entwicklung der Grundzustandsbesetzung der Elektronen und Löcher für verschieden stark gechirpte 200fs Pulse mit einer Pulsfläche von 8π betrachtet. Diese gegenüber den zuvor betrachteten $3,!2\pi$ vergrößerte Pulsfläche führt entsprechend Gl. (8.17) zu einem größeren adiabatischen Bereich für den Chirp. Die Pulse sind in Abb. 8.6 dargestellt. Zum Vergleich sind in Abb. 8.5 auch die Besetzungen für ein Zwei-Niveau-System (also ohne Dephasierung und Streuung) gestrichelt eingetragen. Die Oszillationen in den Besetzungen des Zwei-Niveau-Systems während des Übergangs zeigen, dass nur die Dynamik für die mittlere Chirprate von $0.33\frac{\text{meV}}{\text{fs}}$ adiabatisch abläuft. So ist das adiabatische Regime im unteren Bild verletzt, da

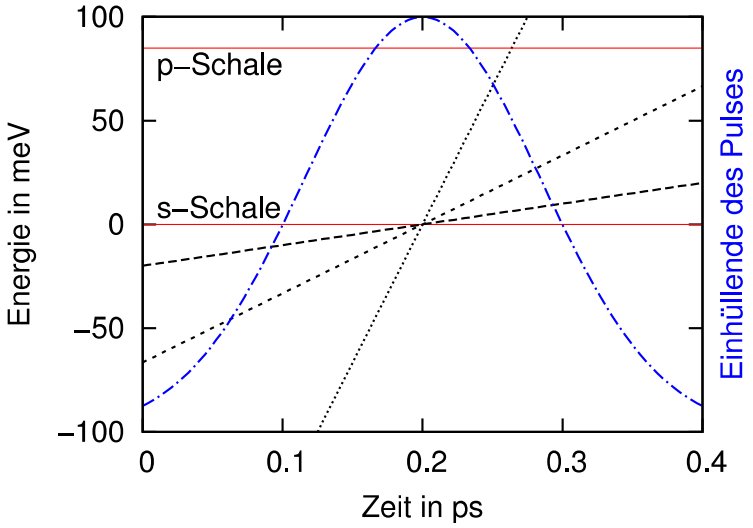


Abb. 8.6: Anregungsschema ohne Berücksichtigung der Renormierungen mit den Übergangsenergien für die s- und p-Schalen (rot) und zeitabhängige Frequenzen der verschieden gechirpten Pulse. Zum zeitlichen Maximum der Pulsintensität (blau) sind die Pulse resonant mit dem s-Schalen-Übergang. Dabei entsprechen die Chirpraten denen aus Abb. 8.5 (lang gestrichelt $0,1\frac{\text{meV}}{\text{fs}}$, kurz gestrichelt $0,33\frac{\text{meV}}{\text{fs}}$, gepunktet $1,33\frac{\text{meV}}{\text{fs}}$). Beim Chirp von $1,33\frac{\text{meV}}{\text{fs}}$ wird ebenfalls die p-Schale signifikant angeregt.

die Chirprate im Vergleich zum Quadrat der maximalen Rabi-Frequenz zu groß ist, und im oberen Bild, da die Rate zu klein verglichen mit dem Quadrat der inversen Pulsdauer ist. Allerdings führt dies nur zu einer kleinen Reduktion der resultierenden Inversion für einen weiten Bereich an Chirpraten.

Betrachtet man nun das Quantenpunktsystem, verbessert sich die Inversion weiter mit steigender Rate, auch wenn dadurch das adiabatische Regime verletzt wird. Dies ist dadurch zu erklären, dass der stärkere Chirp zu einem beschleunigten Übergang führt, so dass der Einfluss der Dephasierung reduziert wird. Zwar findet Ladungsträger-Streuung auch vor und nach dem Übergang statt, doch ist dessen Einfluss für das betrachtete Quantenpunktsystem deutlich schwächer. Wie in Kap. 7 gezeigt wurde hängt die stärke der Streuung allerdings stark von den jeweiligen Quantenpunkten ab. So sind insbesondere Quantenpunktzustände nahe einem Kontinuum oder nahe der Resonanz mit anderen Quantenpunktzuständen (wie in Kap. 8.2) aufgrund ihrer starken Streuung ungeeignet, die hier erzielte Inversion zu erreichen.

In dem betrachteten Bereich ist der Effekt durch die reduzierte Dephasierung stärker als die Reduktion der Inversion durch das Verletzen des adiabatischen Regimes. Somit sind hohe Chirpraten, die die Dephasierung reduzieren, aber nicht so groß sind, dass die Verletzung des adiabatischen Regimes den RAP-Effekt an sich kompromittiert, vorteilhaft um eine hohe Inversion zu erreichen, wie dies beispielsweise in Abb. 8.5 für eine Rate von $1,33\frac{\text{meV}}{\text{fs}}$ der Fall ist.

Die unterschiedlichen Energieabstände zwischen den Zuständen führen für Elektronen und Löcher zu Unterschieden in der Zeitentwicklung der Besetzungen. So ist die Ausstreuung der Löcher aus dem Quantenpunkt aufgrund des kleineren Energieabstandes zur Benetzungsschicht schneller als die der Elektronen, was zu dem kleineren Anstieg der Lochbesetzungen während der Pulse führt. Da aus gleichem Grund aber auch die Einstreuraten größer sind, überholt die Lochbesetzung die der Elektronen nach den Pulsen, sofern der Chirp ausreichend groß war, um genügend Ladungsträger in angeregten Zuständen anzuregen, die in den Grundzustand gestreut werden können.

Stabilität gegenüber Pulsparametern

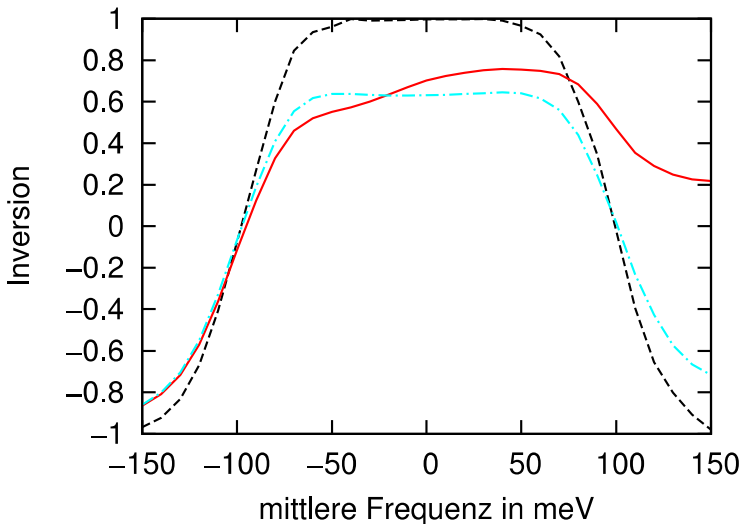


Abb. 8.7: Resultierende Inversion als Funktion der Pulsfrequenz relativ zur Resonanz bei maximaler Intensität für ein Zwei-Niveau-System (schwarz) und den Quantenpunktgrundzustand (rot) (Pulsfläche $= 6\pi$, Chirprate $= 0,33\frac{\text{meV}}{\text{fs}}$, Pulsdauer $= 200$fs). Die blaue Kurve zeigt den Quantenpunktgrundzustand ohne Ladungsträgerstreuung, aber mit Dephasierung durch die Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung. Durch den großen Frequenzbereich, in dem eine hohe Inversion erreicht wird, ist es möglich mit einem einzelnen Puls Quantenpunkte mit Übergangsenergien in einem Bereich von über 100 meV zu invertieren.

Im Folgenden wird gezeigt, wie sich die Wechselwirkung auf die Stabilität der erzielten Inversion gegenüber den Pulsparametern auswirkt. Bevor die Abhängigkeit von der Pulsfläche betrachtet wird, wird zunächst die Stabilität gegenüber der Pulsfrequenz untersucht und in Abb. 8.7 gezeigt. Dabei ergibt sich ein Intervall, dessen Größe im Falle eines hier betrachteten linear gechirpten Pulses etwa das Doppelte des Chirps ist ($2C = 133$meV), hoher resultierender Inversion. Für den Fall eines Zwei-Niveau-Systems (schwarz) bedeutet dies nahezu volle Inversion, wohingegen diese im Quantenpunktsystem durch die Dephasierung merklich abgesenkt ist, wie auch schon in Abb. 8.5 gezeigt wurde. Allerdings ist die Größe des Intervalls nicht durch die zusätzliche Wechselwirkung

verändert worden. Während sich im Fall ohne Streuung (blau) wie für das Zwei-Niveau-System eine nahezu symmetrische Form ergibt, hebt die Streuung diese auf, da eine höhere Frequenz dazu führt, dass die angeregten Zustände stärker besetzt werden. Dies führt bei niedriger Anregungsfrequenz zu einer die Einstreuung übertreffenden Ausstreuung, so dass die resultierende Inversion kleiner als die ohne Streuung ist. Dagegen übertrifft die Einstreuung aufgrund der stärkeren Anregung von Ladungsträgern in anderen Zuständen ab einer bestimmten Frequenz die Ausstreuung, wodurch die resultierende Inversion größer als die ohne Streuung wird. Diese Einstreuung führt auch zu einer deutlich erhöhten Inversion für hohe Frequenzen abseits des adiabatischen Bereichs.

Die weitreichende Unabhängigkeit von der Frequenz des anregenden Pulses bedeutet anders herum auch, dass mit einem einzigen Puls verschiedene Quantenpunkte mit Übergangsenergien, die sich beispielsweise in dem hier dargestellten Fall um über 100 meV unterscheiden, weitgehend invertiert werden können. Da sich selbstorganisierte Quantenpunkte eines Ensembles eine Streuung der Übergangsenergien aufweisen, bietet sich RAP zur Invertierung derartiger Ensembles an. Im Gegensatz zu diesem Ergebnis ist es mit langen und nur schwach gechirpten Pulsen möglich, nur bestimmte Übergänge zu invertieren, wie beispielsweise von Melinger et al. [69] an Molekülen gezeigt wurde.

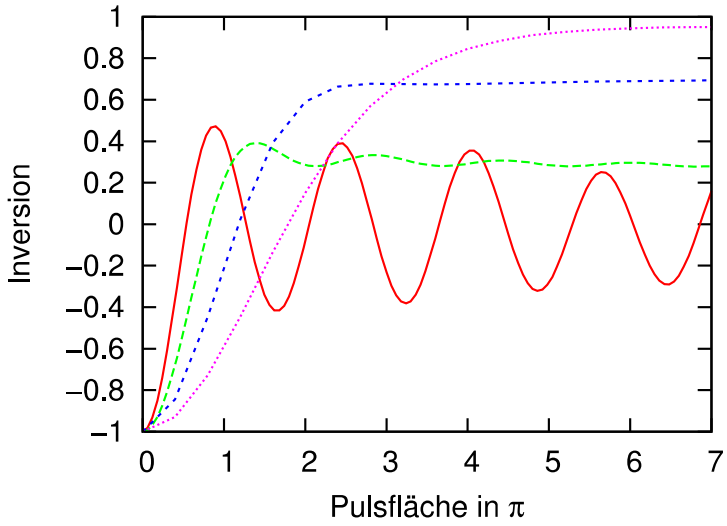


Abb. 8.8: Resultierende Inversion des Grundzustandes bei resonanter (rot) und gechirpter (sonst) Anregung durch einen 200fs Puls gegen dessen nicht renormalisierte Pulsfläche: Während die resonante Anregung zu Rabi-Oszillationen und damit zu einer oszillierenden Abhängigkeit der Inversion von der Pulsfläche führt, ist die durch die gechirpten Pulse hervorgerufene Inversion kaum von der Pulsfläche abhängig. Mit zunehmender Chirprate (grün $0,1\frac{\text{meV}}{\text{fs}}$, blau $0,33\frac{\text{meV}}{\text{fs}}$, lila $1,33\frac{\text{meV}}{\text{fs}}$) wird darüber hinaus der Einfluss des Dephasierung reduziert und somit die Inversion vergrößert. Die durch die gechirpten Pulse hervorgerufene Kinetik ist in Abb. 8.5 für eine Pulsfläche von 8π dargestellt.

Neben der Stabilität gegenüber der Pulsfrequenz ist vor allem die in Abb. 8.8 gezeigte Stabilität gegenüber der Pulsfläche von Bedeutung. Eine resonante Anregung (rot) führt

wie zuvor diskutiert zu Rabi-Oszillationen, so dass die durch einen Puls erzeugte Inversion stark von dessen Pulsfläche abhängt. Dagegen ist die Inversion, die durch gechirpte Pulse hervorgerufen wird, auch von deren Pulsfläche relativ unabhängig, wobei allerdings eine mit der Chirprate zunehmende Mindestfläche notwendig ist. Dies stimmt mit der Bedingung (8.17) überein, nach der die notwendige Pulsfläche wurzelartig mit dem Chirp und somit mit der Chirprate ansteigt. Bei ausreichender Pulsfläche nimmt nicht nur die erreichte Inversion sondern auch deren Stabilität mit zunehmender Chirprate zu. Dagegen ist für kleine Pulsflächen eine kleine Chirprate vorteilhaft, da diese das adiabatische Regime weniger stark verletzt. Auch hier gilt, dass die stabilen Bereiche durch die zusätzliche Wechselwirkung im Quantenpunktsystem gegenüber einem Zwei-Niveau-System nicht kleiner werden, sondern nur die in diesen Bereichen erzielte Inversion abnimmt.

Es lässt sich festhalten, dass RAP eine nützliche Methode ist, um ein Quantenpunktsystem oder gar ein Ensemble von Quantenpunkten zu invertieren, und dass mittels schneller und stark gechirpter Pulse die Reduktion der erzielbaren Inversion durch die Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung gering gehalten werden kann. Damit stellt sich die Frage, ob sich dieser Effekt nutzen lässt um einen Quantenpunkt optisch zu schalten, was im nächsten Abschnitt diskutiert wird.

8.4 Optisches Schalten von Besetzungen

Im Folgenden wird untersucht inwiefern sich die Ergebnisse der vorhergehenden Abschnitte, in denen die einmalige Inversion eines Quantenpunktsystems bzw. die Wirkung eines einzelnen Pulses betrachtet wurde, auf optische Schalter übertragen lassen, die durch mehrfache aufeinander folgende Pulse realisiert werden, die das System aus den Grundzustand zu voller Inversion bzw. umgekehrt überführen sollen. Dabei wird insbesondere untersucht, unter welchen Bedingungen sich Quantenpunktsysteme für die Realisierung solcher Schalter eignen.

Resonante Anregung

Zunächst wird die Realisierung eines optischen Schalters mittels resonanter π-Pulse betrachtet. Eine ausführlichere Diskussion dazu ist in Ref. [106] zu finden. Entsprechend Kap. 8.1 lässt sich ein Zwei-Niveau-System mittels π-Pulsen invertieren bzw. aus dem invertierten Zustand zurück in den Grundzustand überführen, wie auch in Abb. 8.9 anhand einer Sequenz von vier π-Pulsen gezeigt wird (schwarz). Die verwendeten Parameter entsprechen dabei denen aus Kap. 8.2. Selbst bei Berücksichtigung von Dephasierung (keine Streuung, blau) lässt sich immer noch zwischen einem Zustand positiver und negativer Inversion unterscheiden, wobei der Betrag der Inversion mit jedem Puls abnimmt. Allerdings führt die Besetzungsstreuung zu Besetzungsänderungen, die auch nach den Pulsen anhalten, so dass keine klare Unterscheidung von Zuständen positiver und negativer Inversion mehr möglich ist. So nimmt die Besetzung nach dem vierten Puls derart zu, dass sich die Inversion ohne optische Anregung um über $0,5$ verändert und sich dabei das Vorzeichen und somit der Schaltzustand wechselt, sofern man das Vorzeichen der Inversion als Schaltzustand verwendet. Ferner bewirkt in dem hier gezeigten Beispiel der dritte Puls

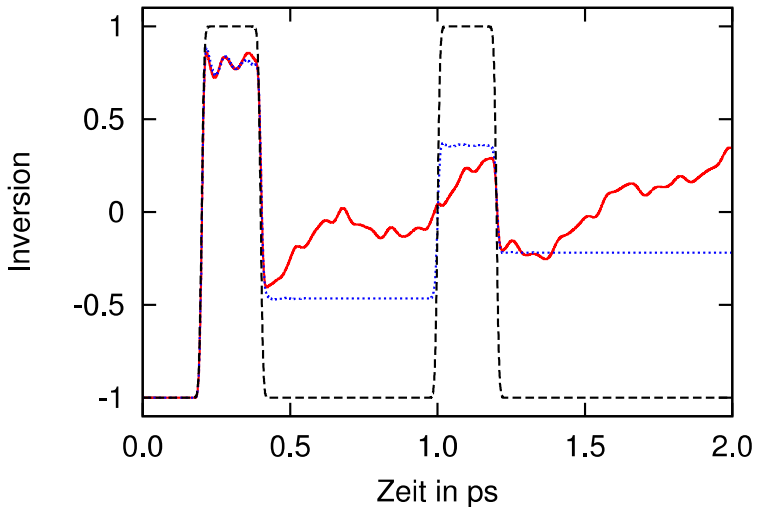


Abb. 8.9: Durch eine Folge von vier 25 fs langen π-Pulsen bewirkte zeitliche Entwicklung der Inversion des Grundzustands (stark wechselwirkender Quantenpunkt): Ohne Wechselwirkung (schwarz), mit Dephasierung und ohne Streuung (blau), mit Dephasierung und Streuung (rot) durch Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung.

kaum eine Änderung der Besetzung, da der untersuchte Übergang während des Pulses fast transparent ist.

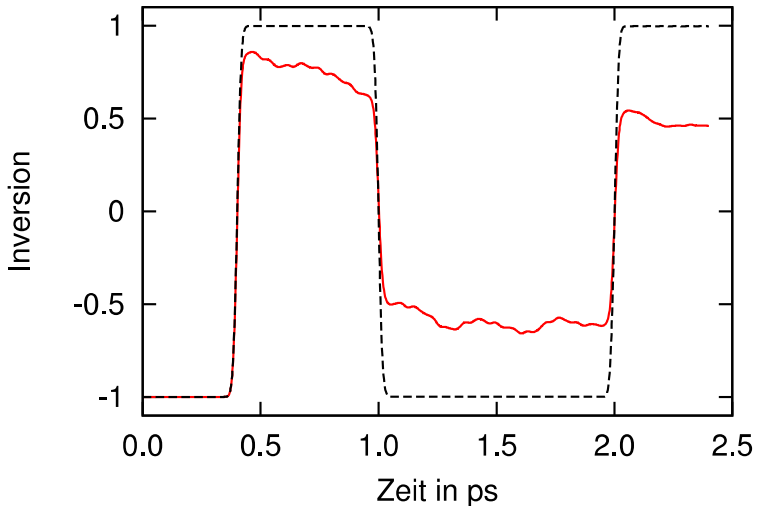


Abb. 8.10: Durch eine Folge von drei 50 fs langen π-Pulsen bewirkte zeitliche Entwicklung der Inversion des Grundzustands (schwächer wechselwirkender Quantenpunkt): Ohne Wechselwirkung (schwarz) und mit Dephasierung und Streuung (rot) durch Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung.

Das betrachtete System lässt sich also aufgrund der Stärke der Wechselwirkung nicht

sinnvoll als optischen Schalter verwenden, wobei insbesondere die Streuung problematisch ist. Deren Effizienz ist allerdings gemäß den Ergebnissen aus Kap. 7 stark vom jeweiligen Energiespektrum der Quantenpunkte abhängig und in dem hier betrachteten Fall wurde ein System mit starker Streuung betrachtet, so dass sich diese Probleme durch die Verwendung entsprechender Quantenpunkte deutlich reduzieren lässt. So wird im Folgenden entsprechend Kap. 8.3 ein Quantenpunkt betrachtet, dessen elektronische Zustände eine Energiedifferenz von 1,6 Phononenergien und dessen Lochzustände 0,7 Phononenergien auseinander liegen. Ferner sind die Abstände der Grundzustände zu den Benetzungsschichtbändern mit 2,8 bzw. 1,3 Phononenergien hier so groß, dass die Wechselwirkung mit der Benetzungsschicht deutlich kleiner ist als in dem zuvor betrachteten System.

Dementsprechend ergibt sich für die in Abb. 8.10 dargestellte Kinetik eine deutlich langsamere Streuung, wodurch insbesondere zwischen den Schaltpulsen nur eine geringe Umverteilung der Besetzungen stattfindet, so dass analog zum in Abb. 8.9 untersuchten Fall mit Dephasierung aber ohne Streuung zwischen einem Zustand positiver und negativer Inversion unterschieden werden kann. Dies liegt nicht nur an den kleineren Streuraten, sondern auch daran, dass die Pulse aufgrund der größeren energetischen Abstände der Zustände und der verlängerten Pulsdauer hier kaum Ladungsträger in den übrigen Zuständen anregen und somit die gegenüber der Ausstreuung energetisch begünstigte Einstreuung aufgrund geringerer Besetzungen deutlich reduziert wird. Dies lässt sich auch an der durch die Streuung überwiegend abnehmende Inversion erkennen, wohingegen in dem zuvor betrachteten System die Inversion überwiegend zunimmt.

Quantenpunkte eignen sich also als optische Schalter, sofern die Wechselwirkung mit dem übrigen Festkörper schwach ist. Dafür ist entsprechend Kap. 7 insbesondere ein hinreichend großer energetischer Abstand zu anderen Zuständen und die Vermeidung von Resonanzen notwendig.

Rapid adiabatic passage

Zwar eignet sich resonante Anregung zur Realisierung optischer Schalter, jedoch können bereits leichte Abweichungen der Pulsfläche oder der Pulsfrequenz zu deutlich abweichenden Ergebnissen führen. Dabei entstehen durch die Pulse Renormierungen der Übergangsenergie und auch der Pulsfläche, die von der Pulsdauer oder allgemeiner Pulsform abhängen und ausgeglichen werden müssen. Robuster ist in dieser Hinsicht das RAP-Verfahren (siehe Kap. 8.3), das innerhalb des adiabatischen Regimes (siehe Gl. (8.17)) von diesen Parametern unabhängig ist, weshalb sich die Frage stellt, ob diese sich zum optischen Schalten von Besetzungen eignen.

In Abb. 8.11 ist der durch mehrere gechirpte Pulse hervorgerufene zeitliche Verlauf der Inversion dargestellt, wobei die Pulse zeitlich wie für die zweite resonante Anregung (siehe Abb. 8.10) angeordnet sind. Ohne Wechselwirkung wird die Inversion, da das adiabatische Regime eingehalten wird, erwartungsgemäß (siehe Kap. 8.3) zwischen dem Grundzustand und voller Inversion mit jedem Puls hin- und hergeschaltet. Für die ersten zwei Pulse ändert dies sich auch mit Wechselwirkung nur in kleinem Maße, wobei aufgrund der schnelleren Übergänge im Vergleich zur resonanten Anregung der Einfluss der Dephasierung noch kleiner ist und somit eine deutlichere Inversion beim Schalten

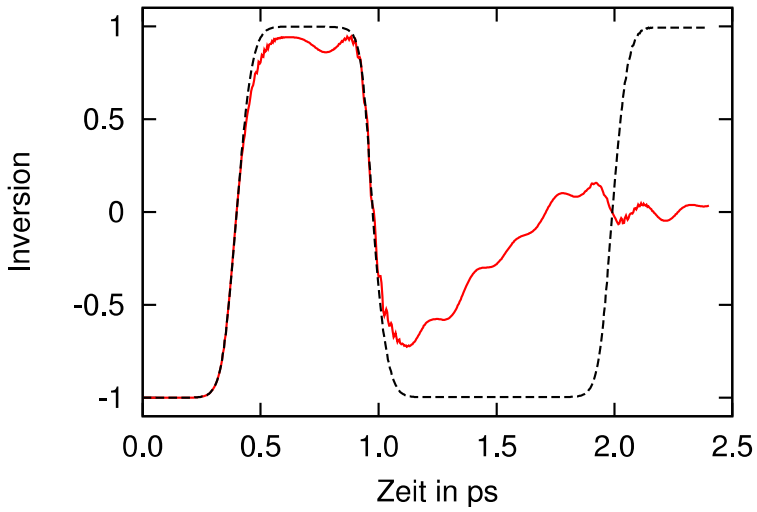


Abb. 8.11: Durch eine Folge von drei 200 fs langen, mit 2 meV/fs gechirpten 8π-Pulsen bewirkte zeitliche Entwicklung der Inversion des Grundzustands: Ohne Wechselwirkung (schwarz), mit Dephasierung und Streuung durch Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung (rot).

erreicht wird. Dabei verläuft der Übergang aufgrund des starken Chirps schneller, auch wenn die Pulsdauer an sich länger ist. Der Chirp ist aber auch dafür verantwortlich, dass trotz der großen Energieabstände zwischen den Zuständen auch in anderen Zuständen viele Ladungsträger angeregt werden, deren Relaxation in den Grundzustand nach dem zweiten Puls durch Einstreuung zu einem starken Anstieg der Inversion führt, so dass das System analog zum ersten Fall resonanter Anregung (siehe Abb. 8.9) während des dritten Pulses fast transparent ist.

Damit eignet sich RAP für das hier betrachtete System nicht um einen optischen Schalter zu realisieren. Dies ändert sich allerdings bei Systemen mit schwächerer Wechselwirkung, wie sie z.B. in Ref.[101, 119] betrachtet wurden. So ermöglicht eine schwächere Wechselwirkung längere und somit gemäß Gl. (8.17) schwächer gechirpte Pulse, die wiederum dazu führen, dass neben den betrachteten Übergang keine weiteren Zustände besetzt werden, was Streuung bei niedrigen Temperaturen (sofern der Grundzustand betrachtet wird) fast vollkommen ausschließt, so dass analog zum Fall schwächerer Wechselwirkung bei resonanter Anregung (Abb. 8.10) eine Verwendung als Schalter möglich sein kann.

9 Optische Eigenschaften von Nitrid-Quantenpunkten

Dieses Kapitel ist weitgehend in enger Zusammenarbeit mit Stefan Barthel entstanden. So wurden die Einteilchenzustände, Einteilchenenergien, effektive Potentiale und Dipolmatrixelemente von Stefan Barthel berechnet, wobei in Kap. 9.1 und 9.2 von Oliver Marquardt berechnete Felder genutzt wurden. Diese Einteilcheneigenschaften wurden zur Berechnung von Vielteilchenzuständen und optischen Spektren verwendet. Die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Zustände wurde von Stefan Barthel berechnet. Die Diskussion der Ergebnisse bis zur Visualisierung der "Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Elektronen- und Loch-Anteils der Exzitonen" (bis Seite 125) wurden im Wesentlichen gemeinsam mit Stefan Barthel erarbeitet.

Aufgrund des großen Bereichs möglicher Emissionsfrequenzen [77, 78, 79], die auch den grünen und blauen Spektralbereich einschließen, bieten sich Nitrid-Quantenpunkte für optoelektronische Anwendungen an. In diesem Kapitel werden daher die optischen Eigenschaften von InGaN-Quantenpunktsystemen untersucht.

Experimentell wurde beobachtet, dass bei Wahl einer unpolaren Wachstumsrichtung der Quantenpunkte gegenüber einer polaren Richtung eine erhöhte Dipolstärke auftritt [27]. Dies konnte nicht durch bisherige theoretische Untersuchungen erklärt werden. In dieser Arbeit werden zwei Ansätze zur Beschreibung der erhöhten Dipolstärke in unpolaren Nitrid-Quantenpunkten vorgestellt. Dazu werden in Kap. 9.1 neben den Einteilchenzuständen mittels Konfigurationswechselwirkungsrechnung (CI-Rechnung) die exzitonischen Zustände für einen polaren und einen unpolaren InN-Quantenpunkt sowie deren optische Eigenschaften bestimmt. In Kap. 9.2 werden dagegen die optischen Übergänge zwischen Quantenpunkt- und Benetzungsschichtzuständen untersucht.

Schließlich wird in Kap. 9.3 für verschiedene Anregungsdichten der Einfluss der Renormierungen der Coulomb- und Elektron-Phonon-Wechselwirkung (siehe Kap. 4 und 5) auf die optischen Eigenschaften polarer Quantenpunkte untersucht, die im Absorptions- bzw. Gewinnspektrum des Systems sichtbar werden. Dabei wird zur Berechnung der Absorptions- bzw. Gewinnspektren die Antwort des Systems auf einen optischen Puls bestimmt.

Es werden hier linsenförmige, pure InN-Quantenpunkte mit einem Durchmesser von 7,7 nm und einer Höhe von 3,1 nm betrachtet, die von GaN umgeben sind und auf einer Benetzungsschicht liegen, die aus zwei Atomlagen besteht. Für die polaren Quantenpunkte ist dies abgesehen davon, dass hier pure InN-Quantenpunkte betrachtet werden, konsistent mit experimentellen Untersuchungen [97, 112, 122]. Die Einteilchenzustände und Eigenenergien dieser Quantenpunkte werden mittels empirischen Tight-Binding entsprechend Kap. 2.3 berechnet.

9.1 Verstärkte Dipolkopplung durch Coulomb-Wechselwirkung in unpolaren Nitrid-Quantenpunkten

In diesem Kapitel sind Übersetzungen aus der Veröffentlichung [104] enthalten. Für diese wurden Verwertungsrechte an das American Institute of Physics übertragen.

In Nitriden gibt es starke intrinsische elektrische Felder, durch die es in kleinen Strukturen, wie den hier betrachteten Quantenpunktsystemen, zum quantum-confined Stark effect [72, 130] und somit zu einer Separation der Elektronen und Löcher kommen kann (siehe auch Ref. [34]). Dies führt zu einer Verringerung der Dipolstärke für die Rekombination der Ladungsträger und somit zu einer Verlängerung der Lebensdauer [88], was sich negativ auf die Effizienz optoelektronischer Anwendungen auswirkt. Für zweidimensionale Strukturen lässt sich dies vermeiden, indem diese so gewachsen werden, dass die Felder senkrecht zur Einschlussrichtung verlaufen (unpolare Richtung) [131]. Dies lässt sich allerdings nicht analog auf Quantenpunkte übertragen, deren Zustände in allen Richtungen gebunden sind, so dass es stets zu einer Separation der Ladungsträger kommt. Allerdings deuten Experimente [27] auf eine beschleunigte Rekombination für Quantenpunkte hin, die in unpolarer Richtung gewachsen wurden.

Verschiedene theoretische Studien haben den Einfluss der intrinsischen Felder auf die Einteilchengrundzustände der unpolaren Quantenpunkte hinsichtlich des Vorzeichens der piezoelektrischen Konstante [107], Geometrie [63] und Konzentration [109] untersucht. Dabei ergaben sich lediglich marginale räumliche Überlappungen der Einteilchengrundzustände und somit implizit schwache Dipolübergänge, die im Widerspruch zu den erwähnten experimentellen Ergebnissen zu langsamer Rekombination der Ladungsträger im Vergleich zu polaren Quantenpunkten führt. Dies wird hauptsächlich durch die größere Ausdehnung der unpolaren Quantenpunkte in Richtung der Felder verursacht, wodurch die räumliche Trennung von Elektronen und Löchern selbst bei schwächeren Feldern größer ist als im polaren Fall.

Von Quantenfilmen her ist bekannt, dass der quantum-confined Stark effect durch Vielteilchenwechselwirkungen beeinflusst wird [129, 132]. In diesem Abschnitt wird daher über eine Einteilchenrechnung hinaus gegangen, wobei exzitonische Zustände und deren optische Spektren berechnet werden. Dazu wird die Coulomb-Wechselwirkung mittels Konfigurationswechselwirkungsrechnung (CI) beschrieben. Als Basis dienen dabei die Produktzustände sämtlicher Quantenpunkt-Einteilchenzustände, also alle Zustände, die an den Quantenpunkt gebunden sind. Die CI erlaubt es, alle Korrelationen der betrachteten Wechselwirkung innerhalb der gewählten Basis zu berücksichtigen. Diese Korrelationen sind von entscheidender Bedeutung für die Exzitonen des unpolaren Quantenpunkts. Hartree-Fock- und andere Einteilchenrechnungen beinhalten dagegen nicht alle Korrelationen des Systems [15] und sind aus diesem Grund hier ungeeignet.

Zwar ist bekannt, dass die Form und Größe von Quantenpunkten von der Wachstumsrichtung abhängen kann [134], doch wird für die unpolare Wachstumsrichtung die gleiche Quantenpunktgeometrie wie für die polare Richtung angenommen - zumal zur Zeit keine genauen Hinweise auf ihre Geometrie vorliegen. Dies erlaubt es, sich auf die Effekte der Ausrichtung des Polarisationspotentials zu konzentrieren. Dabei kommt es durch die unterschiedliche Ausrichtung des zugrundeliegenden Kristallgitters bei den Abmessungen

der Quantenpunkte zu Abweichungen von bis zu 10%. Da die Benetzungsschichtzustände bei kleinen Anregungsdichten aufgrund des großen energetischen Abstands keinen nennenswerten Einfluss auf die niederenergetischen Quantenpunktübergänge haben, werden diese Zustände nicht berücksichtigt.

9.1.1 Einteilchenzustände

Bevor die CI-Rechnung zur Bestimmung der Vielteilcheneigenschaften präsentiert wird, werden zunächst die Einteilchenzustände, die mittels Tight-Binding-Rechnung entsprechend Kap. 2.3 berechnet werden, und deren optische Eigenschaften diskutiert. Dabei werden alle Eigenfunktionen bis zur Bandkante der Benetzungsschicht bestimmt und für die spätere CI-Rechnung verwendet. Die Bandkanten werden mittels halbanalytischer Tight-Binding-Rechnung der zweidimensionalen, translationsinvarianten Benetzungsschicht bestimmt (siehe Kap. 2.3). Insgesamt erhält man so 25 Elektronen- und 90 Lochzustände im unpolaren sowie acht und 96 Zustände im polaren Quantenpunkt.

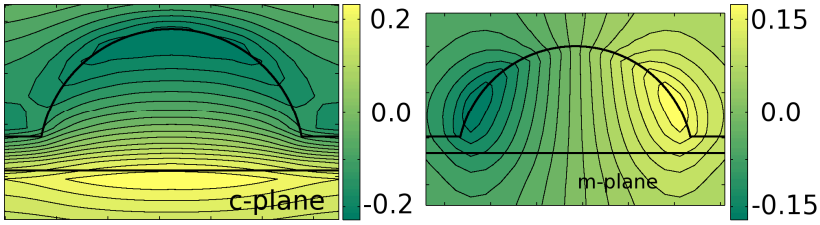


Abb. 9.1: Querschnitt der intrinsischen Potentiale in eV für den polaren (c-plane) und unpolaren (m-plane) Quantenpunkt: Die Form der Quantenpunkte wird durch die schwarze Kontur angedeutet. Die Abbildungen wurden auf Grundlage von Berechnungen, die von Oliver Marquardt durchgeführt wurden, von Stefan Barthel angefertigt.

Die in Abb. 9.1 dargestellten intrinsischen Potentiale beeinflussen die Eigenschaften der Einteilchenzustände entscheidend. Erwartungsgemäß sind diese Felder im unpolaren Quantenpunkt aufgrund der kleineren spontanen Polarisation schwächer. So ergibt sich eine maximale Potentialdifferenz von 488 meV für den polaren Quantenpunkt, wohingegen der unpolare Quantenpunkt lediglich 384 meV aufweist, was auch eine höhere Grundzustandsübergangsenergie in diesem Quantenpunkt bewirkt. Da der unpolare Quantenpunkt in Feldrichtung deutlich stärker ausgedehnt ist, ist die Feldstärke in diesem sogar um etwa 60% schwächer.

Wie in Abb. 9.2 zu sehen ist, werden im polaren Quantenpunkt die Elektronen durch das Feld nach oben, also in Wachstumsrichtung, gedrückt und die Löcher nach unten. Diese räumliche Trennung der Zustände impliziert durch den geringen Überlapp kleine Dipolmatrixelemente (8.2) und damit schwache optische Übergänge. Zwar weisen die angeregten elektronischen Zustände zunehmende Aufenthaltswahrscheinlichkeit im unteren Teil des Quantenpunkts auf, doch liegen diese energetisch mindestens 150 meV oberhalb des Grundzustands. Dagegen liegen 35 Lochzustände weniger als 100 meV vom Grundzustand entfernt. Aufgrund des starken Feldes weisen allerdings erst

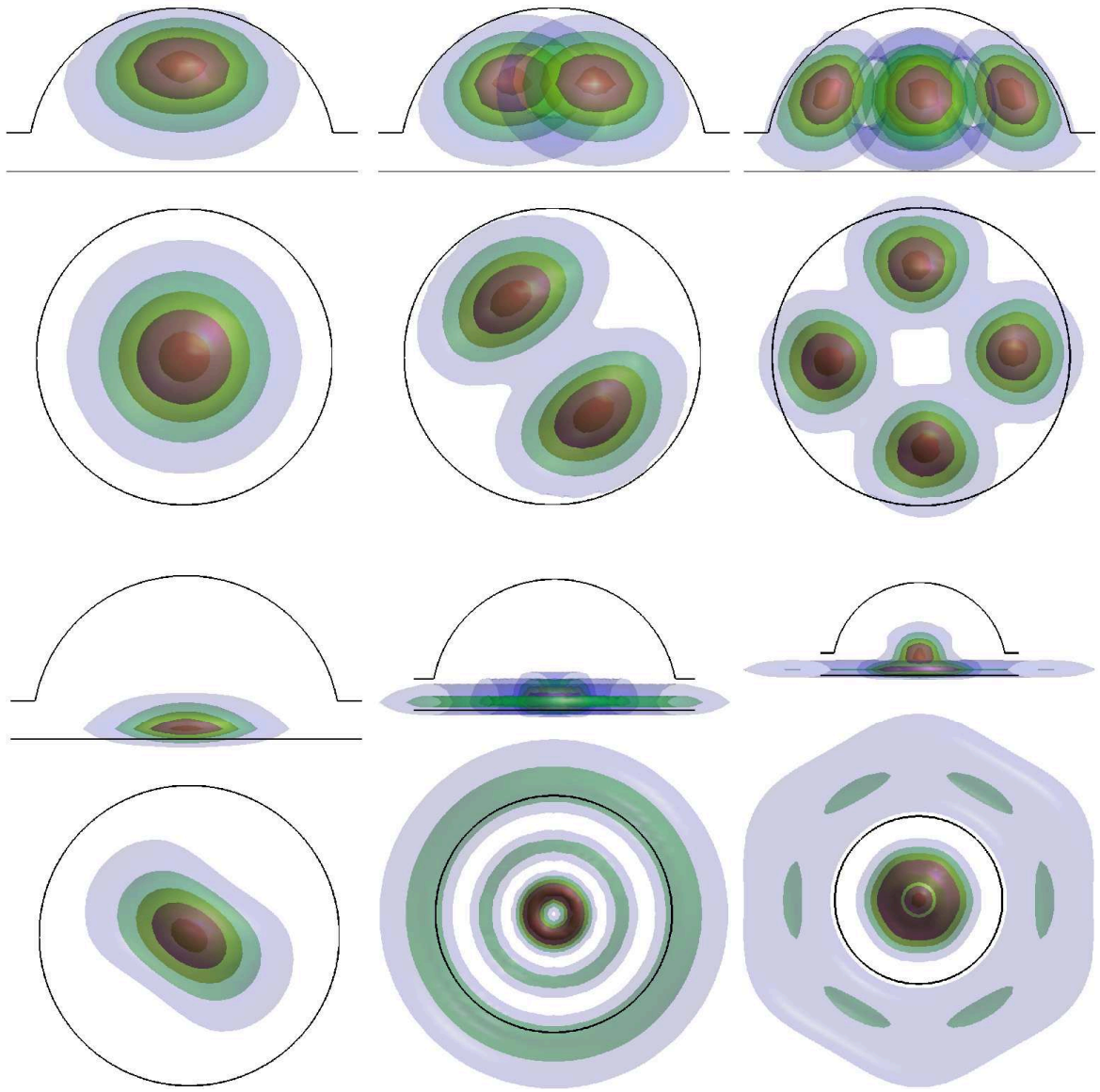


Abb. 9.2: Exemplarische Elektronen- (oben) und Lochzustände (unten) des polaren Quantenpunkts jeweils von der Seite und von oben: Die Quantenpunktgeometrie wird durch die schwarzen Linien angedeutet. Gezeigt werden der erste, zweite und sechste elektronische Zustand sowie der erste, 20. und 66. Lochzustand (jeweils von links nach rechts). Aus Darstellungsgründen sind die angeregten Lochzustände verkleinert dargestellt. Gezeigt werden die Flächen gleicher Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichte normiert auf deren Maximum. Von rot zu blau nimmt diese von 0,9 auf 0,1 ab. Die Einzelbilder wurden von Stefan Barthel berechnet und angefertigt.

noch höher angeregte Zustände deutliche Anteile oberhalb der untersten Gitterebenen des Quantenpunktes auf. Vielmehr werden diese mit zunehmender Anregung weiter

vom Zentrum des Quantenpunkts weg in die Benetzungsschicht gedrückt. Dies bewirkt insbesondere aufgrund des zunehmenden Abstands eine schwächere Coulomb-Anziehung mit den elektronischen Zuständen, was dazu führt, dass diese Zustände nur unwesentlich den exzitonischen Grundzustand beeinflussen - wie in Kap. 9.1.2 gezeigt wird.

In Abb. 9.3 sind einige Einteilchenzustände des unpolaren Quantenpunkts dargestellt. Trotz der deutlich reduzierten Feldstärke kommt es hier aufgrund der größeren räumlichen Ausdehnung in Feldrichtung zu einer noch stärkeren Separation der Grundzustände als im polaren Quantenpunkt. Im Gegensatz zu diesem besitzen hier allerdings die angeregten Lochzustände zunehmende räumliche Überlapps mit den elektronischen Zuständen. Dabei nähern sich die Zustände der Elektronen und Löcher zunächst an, wobei die Löcher zunehmend im Zentrum Anteile besitzen und die allerdings energetisch deutlich weiter vom Grundzustand entfernten Elektronenzustände den gesamten Quantenpunkt ausfüllen. Bei noch höherer Anregung kehrt sich dies allerdings um und die Löcher und Elektronen schieben in entgegengesetzte Richtungen in die Benetzungsschicht.

Zur Deutung dieser Einteilchenzustände wird ein zweidimensionales effektives Potential eingeführt, das neben den Feldern auch den Einschluss durch die Nanostrukturierung in der Wachstumsrichtung berücksichtigt. Dabei wird aus dem eigentlich dreidimensionalen ein zweidimensionales Problem der Wachstumsebene, bei dem alle Eigenschaften der Wachstumsrichtung in diesem Potential berücksichtigt werden. Das effektive Potential wird dabei definiert als Grundzustandsenergie des eindimensionalen Problems der atomaren Säule in Wachstumsrichtung an dem betreffenden Ort auf der Wachstumsebene, wobei das Potential separat für Elektronen und Löcher berechnet wird. Dieses Problem stellt einen endlichen, diskreten Potentialtopf dar, dessen Höhe durch den Bandversatz des Quantenpunktmaterials zum Umgebungsmaterial gegeben ist. Die Breite ist dagegen vom Ort abhängig und entspricht der Anzahl der Einheitszellen aus dem Quantenpunktmaterial in der betreffenden Säule. Hinzu kommt das Polarisationspotential, das für jede Säule unterschiedlich ist.

Die Ergebnisse sind in Abb. 9.4a für Elektronen und in Abb. 9.4b für Löcher dargestellt. Vereinfacht ergibt sich für einen eindimensionalen Schnitt durch den Quantenpunkt der in Abb. 9.5b dargestellte Verlauf. Ohne Feld führt der größere Bereich mit InN im Quantenpunkt zu einem abgesenkten Potential gegenüber der dünneren Benetzungsschicht (schwarz). Durch das Feld werden die Potentiale verkippt (rot), wobei die Potentialtöpfe (grau hinterlegt) nun auch teilweise außerhalb des Quantenpunktes liegen. Insbesondere für die Löcher liegen aufgrund des Feldes einige Bereiche des Quantenpunktes energetisch ungünstiger als Teile der Benetzungsschicht. Die berechneten effektiven Potentiale, deren Querschnitte in Abb. 9.5a dargestellt sind, stimmen gut mit diesem Bild überein. Entsprechend dieser Potentiale ergeben sich die zuvor beschriebenen Aufenthaltswahrscheinlichkeiten der Zustände.

Einteilchenspektren

Gemäß Gl. (8.2) können für die Einteilchenzustände Dipolmatrixelemente $\mathbf{d}_{\alpha\beta}$ berechnet werden. Diese Matrixelemente werden hier entsprechend Ref. [108] durch Anwendung der Einhüllendendarstellung des Ortsoperators bestimmt. Damit lässt sich direkt das lineare

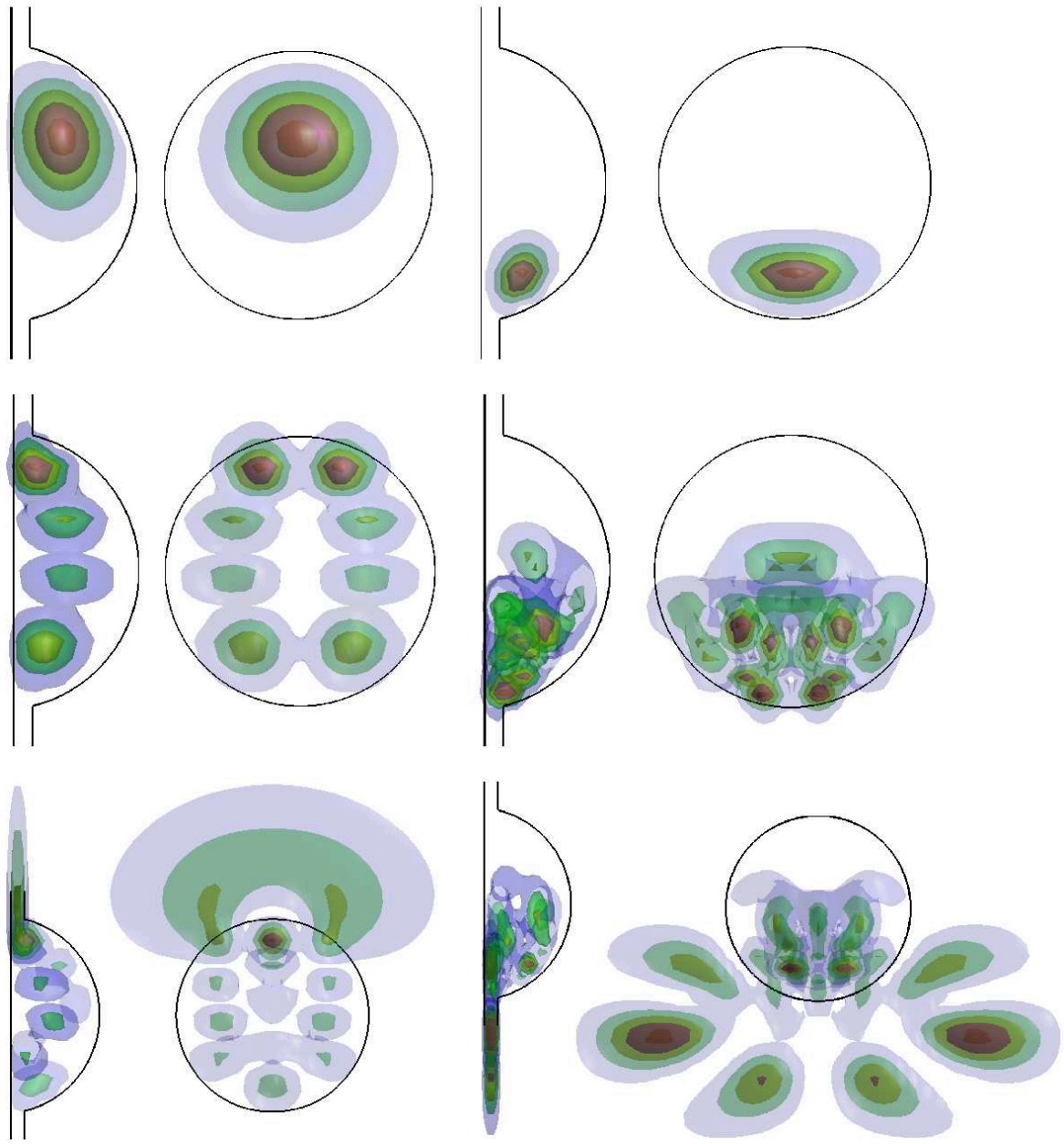


Abb. 9.3: Exemplarische Elektronen- (links) und Lochzustände (rechts) des unpolaren Quantenpunkts jeweils von der Seite und von oben: Gezeigt werden der erste, 13. und 21. elektronische Zustand sowie der erste, 43. und 80. Lochzustand (jeweils von oben nach unten). Aus Darstellungsgründen sind die am höchsten angeregten Zustände verkleinert dargestellt. Die Art der Darstellung entspricht ansonsten der in Abb. 9.2. Die Einzelbilder wurden von Stefan Barthel berechnet und angefertigt.

optische Spektrum durch Anwendung von Fermis goldener Regel,

$$I(\epsilon, \hat{\mathbf{E}}) = \frac{2}{\hbar} \sum_{\alpha,\beta} |\mathbf{d}_{\alpha\beta} \hat{\mathbf{E}}|^2 \frac{\Delta}{\Delta^2 + (\epsilon_\alpha + \epsilon_\beta - \epsilon)^2} \,, \tag{9.1}$$

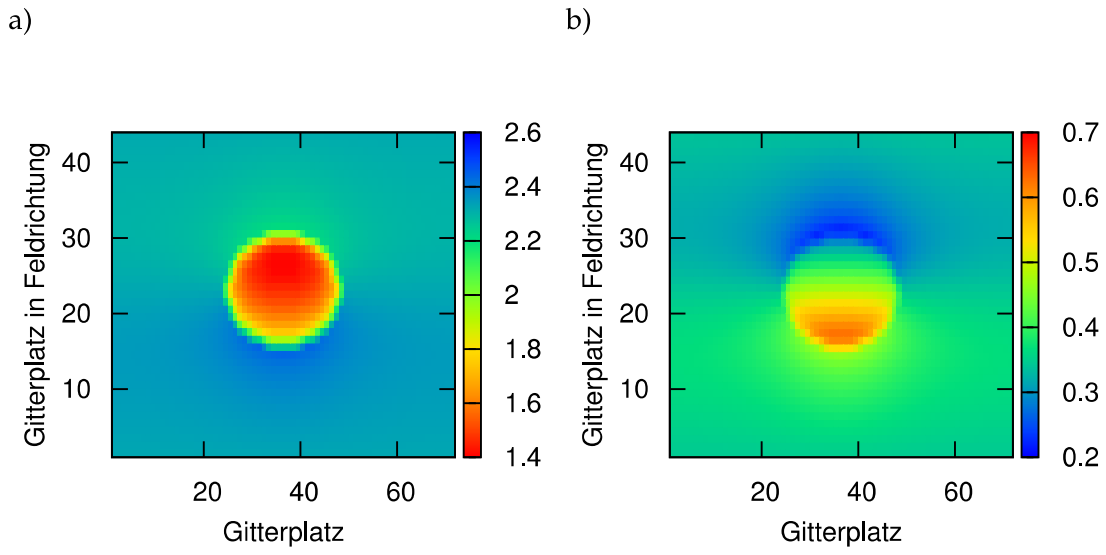


Abb. 9.4: Numerisch berechnetes effektives Potential in eV für die Elektronen (a) und Löcher (b) im unpolaren Quantenpunkt: Jedes farbkodierte Rechteck stellt das effektive Potential einer atomaren Säule dar. Der Quantenpunkt befindet sich jeweils mittig und ist durch die starken Änderungen des Potentials an dessen Rändern gut zu erkennen. Die energetisch günstigsten Orte sind jeweils rot gefärbt. Die Energie wird im cv-Bild angegeben, so dass hohe Energien für Löcher günstiger sind. Die Berechnungen wurden von Stefan Barthel durchgeführt.

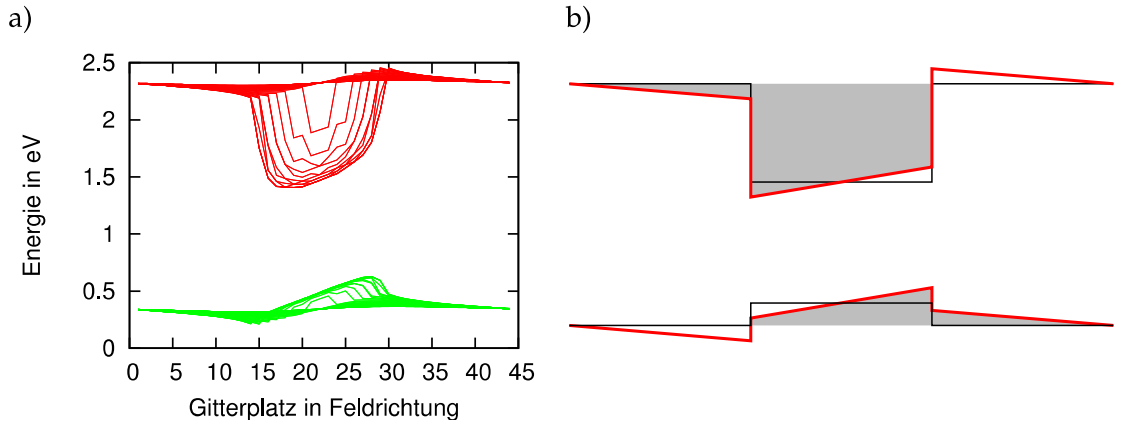


Abb. 9.5: Auf die Feldrichtung projiziertes effektives Einschlusspotential für den unpolaren Quantenpunkt: Neben dem berechneten Potential aus Abb. 9.4 (a) für Elektronen (rot) und Löcher (grün) wird ein vereinfachtes Schema (b) dieses Potentials ohne (schwarz) und mit (rot) Feld gezeigt. Für die Löcher ergibt sich durch das Feld ein effektives Potential, bei dem ein Teil der Benetzungsschicht energetisch günstiger liegt als Teile des Quantenpunkts. Die Berechnungen für Teil (a) wurden von Stefan Barthel durchgeführt.

bestimmen, wobei hier eine lorentzförmige Verbreiterung von $\Delta = 10$ meV angenommen wird, wie sie entsprechend Ref. [112] für Temperaturen um 100 K zu erwarten ist. Physikalisch kann diese Verbreiterung als Wirkung inelastischer Streuung gesehen werden, die in diesem Modell nicht explizit berücksichtigt wird. Um keine Richtung auszuzeichnen, wird für das Spektrum von einem unpolarisierten E-Feld ausgegangen. Dazu wird über alle möglichen Polarisationsrichtungen $\hat{\mathbf{E}}$ gemittelt.

Aufgrund der hohen Zustandsdichte der Lochzustände gibt es viele mögliche Übergänge zwischen diesen Zuständen und dem elektronischen Grundzustand in einem energetisch kleinen Bereich. Das Spektrum der Einteilchenzustände ist für diesen Bereich in den linken Paneelen von Abb. 9.6 dargestellt (zwecks besserer Vergleichbarkeit sind die im folgenden Abschnitt diskutierten Vielteilchenspektren in der selben Abbildung dargestellt). Beim polaren Quantenpunkt ist der Grundzustandsübergang dominant. Da sich die Absorption (rot) aus zwei entarteten Übergängen zusammensetzt, besitzt die Emission des Grundzustandsübergangs (blau) nur die halbe Höhe. Dagegen sind aufgrund der C_{6v}-Symmetrie die meisten anderen Übergänge dunkel oder besitzen nur eine schwache Dipolkopplung, so dass trotz der hohen Zustandsdichte der Löcher nur wenige, im Vergleich zum Grundzustandsübergang schwache Übergänge in dessen Nähe liegen und sich somit ein alleinstehender Grundzustandsübergang ergibt. Weitere merkliche Beiträge ergeben sich erst durch angeregte elektronische Zustände, die energetisch weiter entfernt liegen.

Im Gegensatz dazu ist der Grundzustandsübergang des unpolaren Quantenpunkts deutlich schwächer als beim Polaren und auch die ersten angeregten Lochzustände tragen kaum zum Spektrum bei. Dagegen ergeben sich starke Übergänge höher angeregter Lochzustände mit dem elektronischen Grundzustand. Ferner sind aufgrund der geringeren Symmetrie die meisten Übergänge optisch aktiv, so dass sich in Kombination mit der hohen Zustandsdichte und der Verbreiterung von 10 meV im Gegensatz zum polaren Quantenpunkt eine quasikontinuierliche Absorption ergibt. Zu höheren Übergangsenergien gehend nimmt nicht nur die Zustandsdichte, sondern auch auch die Absorption deutlich zu, so dass es ab Energien von etwa 80 meV oberhalb des Grundzustandsübergangs zu einer Absorption kommt, die stärker als für den Grundzustandsübergangs des polaren Quantenpunkts ist. Auch hier tragen die Übergänge angeregter elektronischer Zustände nicht im betrachteten Energiebereich bei.

9.1.2 Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung

Der Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung soll mittels voller Konfigurationswechselwirkung ("full configuration interaction", FCI) bestimmt werden. Diese Methode erlaubt die exakte Lösung des Eigenwertproblems eines Hamiltonoperators innerhalb eines endlich dimensionalen Hilbertraums. FCI ist nicht mit der hier unpraktikablen kompletten CI ("complete CI") zu verwechseln, bei der eine vollständige Basis verwendet wird [87]. Eine ausführliche Einführung in die Theorie des Konfigurationswechselwirkungs-Verfahrens ist beispielsweise in Ref. [118] zu finden. Die FCI-Methode ist nicht nur bewährt, sondern wurde ausgiebig für Quantenpunktsysteme genutzt, wobei Basen beispielsweise durch Effektivmassen- [43], k·p- [100], Tight-Binding- [110] und empirische Pseudopotential-Rechnungen [28] gewonnen wurden.

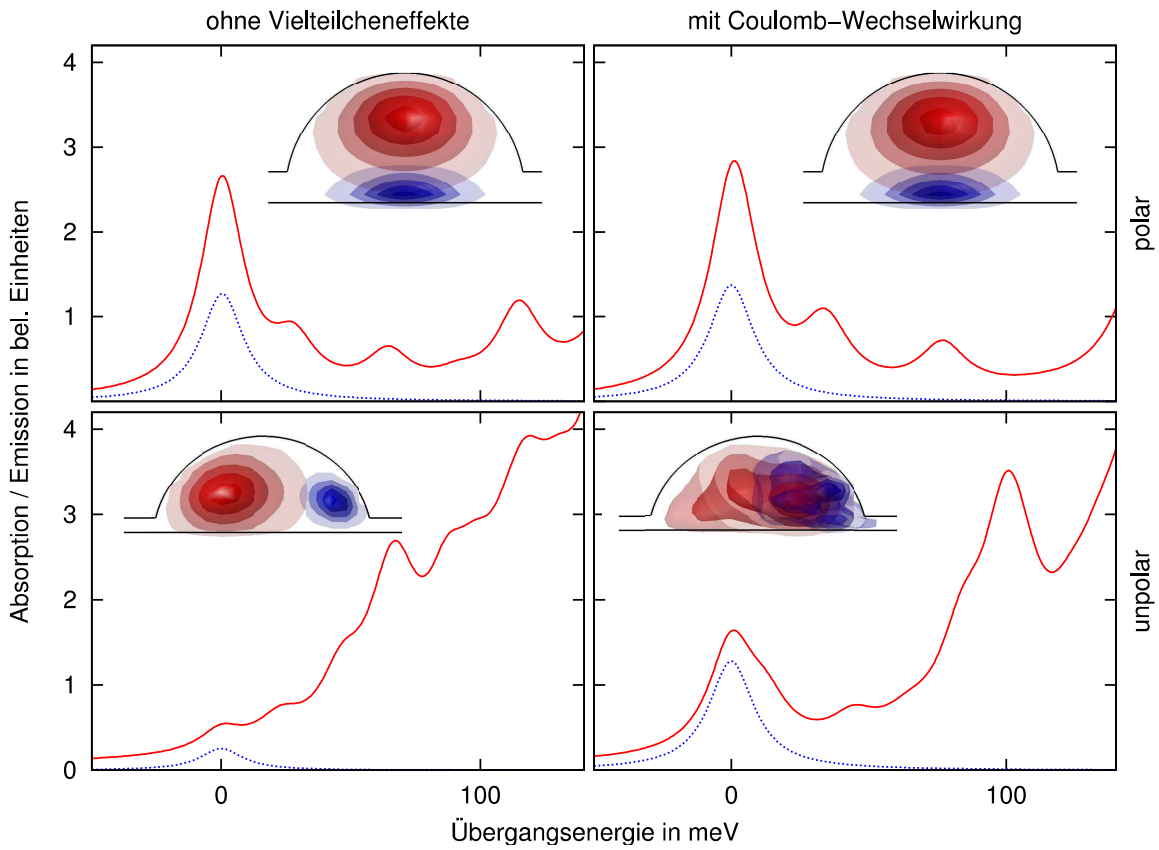


Abb. 9.6: Absorptionsspektren des leeren Systems (rot) und Emissionsspektren des Grundzustandsexzitons (blau) ohne Vielteilcheneffekte (links) - also auf Basis der Einteilchenzustände - und mit Coulomb-Wechselwirkung (rechts) für den polaren (oben) und unpolaren (unten) Quantenpunkt: Die Insets zeigen Oberflächen von gleicher Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichte (0,9 bis 0,1, normiert auf das jeweilige Maximum, berechnet gemäß Gl. (9.9)) für den elektronischen (rot) und lochartigen (blau) Anteil der Zustände zum jeweiligen Spektrum. Die Insets wurden von Stefan Barthel erstellt.

Der hier betrachtete Coulomb-Hamiltonian

$$H_X = \underbrace{\sum_{\alpha} \epsilon_\alpha e_\alpha^\dagger e_\alpha + \sum_{\beta} \epsilon_\beta h_\beta^\dagger h_\beta}_{\text{Einteilchenenergien}} - \underbrace{\sum_{\alpha\beta\alpha'\beta'} V^{ehhe}_{\alpha\beta\beta'\alpha'} e_\alpha^\dagger e_{\alpha'} h_\beta^\dagger h_{\beta'}}_{\text{Elektron-Loch-Anziehung}} \tag{9.2}$$

erhält die Teilchenzahl, so dass zur Berechnung der Exzitonen nur Produktzustände

$$e_\alpha^\dagger h_\beta^\dagger \left|0\right\rangle \tag{9.3}$$

benötigt werden, die genau ein Elektron-Loch-Paar beinhalten, da diese vom restlichen Hilbertraum entkoppelt sind. Dabei wird die schwache Elektron-Loch-Austauschwechselwirkung (V^{eheh}) nicht berücksichtigt. Da nur ein einzelnes Exziton betrachtet wird,

ergibt sich keine Wechselwirkung zwischen gleich geladenen Ladungsträgern. Die Coulomb-Matrixelemente V^{ehhe} werden entsprechend Gl. (4.4) im Fourierraum berechnet. Zwar ist das Problem formal immer noch unendlich-dimensional, doch kann es durch Beschränkung auf die Produktzustände der Einteilchenquantenpunktzustände, von denen es 2250 im unpolaren und 768 im polaren Quantenpunkt gibt effektiv in einem endlich-dimensionalen Hilbertraum berechnet werden. Da die übrigen Eigenzustände des Einteilchenproblems energetisch weit entfernt liegen und nicht mehr lokalisiert sind, stellt dies eine gerechtfertigte Näherung dar. Die Berechnung erfolgt dabei durch Entwicklung des Hamiltonoperators nach den Produktzuständen und Diagonalisierung der daraus resultierenden Matrix

$$\langle 0|\, e_\alpha h_\beta\, H_X\, e^\dagger_{\alpha'} h^\dagger_{\beta'}\, |0\rangle = \delta_{\alpha\alpha'}\delta_{\beta\beta'}\,(E_\alpha + E_\beta) - V^{ehhe}_{\alpha\beta\beta'\alpha'}\,. \tag{9.4}$$

Die Diagonalisierung liefert neben den exzitonischen Eigenenergien E_X auch die Koeffizienten $c_X^{\alpha\beta}$, die die Zusammensetzung der exzitonischen Zustände

$$|\psi_X\rangle = \sum_{\alpha\beta} c_X^{\alpha\beta} e^\dagger_\alpha h^\dagger_\beta\, |0\rangle \tag{9.5}$$

als Linearkombination der Produktzustände angeben. Im hier betrachteten Fall der optischen Erzeugung und Rekombination einzelner Exzitonen können die Dipolmatrixelemente

$$\mathbf{d}_X = \sum_{\alpha\beta} c_X^{\alpha\beta} \mathbf{d}_{\alpha\beta} \tag{9.6}$$

in gleicher Weise als Linearkombination berechnet werden. Entsprechend den Spektren der Einteilchenrechnung können die exzitonischen Spektren mittels Fermis goldener Regel (9.1) bestimmt werden. Die rechten Paneele in Abb. 9.6 zeigen die so berechneten Emissions- und Absorptionsspektren.

Durch die Coulomb-Wechselwirkung werden die Grundzustandsübergänge um 70 meV für den polaren und 99 meV für den unpolaren Quantenpunkt abgesenkt, was hier aufgrund der relativen Energieskala, die den Abstand zum jeweiligen Grundzustandsübergang zeigt, nicht zu sehen ist. Während sich im polaren Fall die Stärke des optischen Grundzustandsübergangs nur geringfügig ändert, verstärkt sich der Grundzustandsübergang des unpolaren Quantenpunktes durch die Coulomb-Wechselwirkung erheblich. Dadurch haben beide Quantenpunkte einen ähnlich starken Grundzustandsübergang, wie anhand des Emissionsspektrums zu sehen ist. Bei der Absorption ist die Entartung des Grundzustandsübergangs im polaren Fall zu berücksichtigen, durch die die Absorption an der Grundzustandsübergangsenergie weiterhin deutlich größer als im unpolaren Fall ist.

Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Elektronen- und Loch-Anteils der Exzitonen

Um den Unterschied zwischen Einteilchen- und Vielteilchenzuständen besser darstellen zu können, bietet es sich an jeweils die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen- und Lochanteile der Zustände zu vergleichen. Während dies für die Einteilchenzustände

unproblematisch ist, kann dies für die Vielteilchenzustände nicht direkt erfolgen, da es sich bei diesen Aufenthaltswahrscheinlichkeiten um Einteilchengrößen handelt, deren Berechnung erfordert, dass der Elektron- bzw. Lochanteil der exzitonischen Zustände heraus projiziert wird. Um den Elektronanteil zu erhalten wird vom Dichteoperator

$$\rho = \sum_{\alpha\beta\alpha'\beta'} \left|\phi^e_\alpha, \phi^h_\beta\right\rangle c^X_{\alpha\beta} c^X_{\alpha'\beta'} \left\langle \phi^e_{\alpha'}, \phi^h_{\beta'}\right| \tag{9.7}$$

der Lochanteil abgespurt

$$\rho^e = \sum_{\alpha\alpha'} |\phi^e_\alpha\rangle \underbrace{\sum_\beta c^X_{\alpha\beta} c^X_{\alpha'\beta}}_{\rho^e_{\alpha\alpha'}} \langle\phi^e_{\alpha'}| \ , \tag{9.8}$$

so dass man für die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des elektronischen Anteils

$$|\Psi^e_X(r)|^2 = \langle \mathbf{r}\,|\rho^e|\,\mathbf{r}\rangle = \sum_{\alpha\beta} \langle \mathbf{r}|\phi^e_\alpha\rangle\, \rho^e_{\alpha\beta} \left\langle \phi^e_\beta|\mathbf{r}\right\rangle \tag{9.9}$$

erhält. Analog erhält man den Lochanteil durch Abspuren des elektronischen Anteils.

Diese Darstellung wird in den Insets von Abb. 9.6 genutzt. Die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Grundzustände ändert sich durch die Coulomb-Wechselwirkung im polaren Quantenpunkt nur schwach. Dagegen führt die Wechselwirkung im unpolaren Quantenpunkt zu einer deutlichen Annäherung der Elektronen und Löcher. Im Folgenden wird dies für den unpolaren Quantenpunkt genauer betrachtet.

Zusammensetzung der Vielteilchenzustände

Das Grundzustandsexziton des unpolaren Quantenpunkts setzt sich aus einer Vielzahl von Einteilchenproduktzuständen zusammen. Um dies zu verdeutlichen, werden die diagonalen Elemente der abgespurten Dichtematrix $\rho^{e/h}_{\alpha\alpha}$ betrachtet (siehe Gl. (9.8)). Diese geben den Anteil der Einteilchenzustände α an der Normierung des elektronischen bzw. Lochanteils des Vielteilchenzustandes an und sind in Abb. 9.7 dargestellt. Der elektronische Anteil (a) besteht zu über 50% aus dem Grundzustand. Jeweils weitere etwa 10% Anteil haben die beiden darauf folgenden Zustände. Die restlichen Zustände stellen im Schnitt nur wenig mehr als 1%, wobei die Anteile bezüglich der Energie etwa exponentiell abfallen.

Dagegen trägt der Lochgrundzustand nur etwa 7% zum exzitonischen Grundzustand bei (siehe Abb. 9.7b). Es gibt hier eine starke Durchmischung vieler Zustände, wobei eine Gruppe von Zuständen deutlich stärker als die übrigen Zustände ähnlicher Energie beiträgt. Während die Anteile der stärker beitragenden Zustände zunächst ähnlich stark mit der Energie abfallen wie bei den elektronischen Anteilen, ergibt sich ab etwa 150 meV ein etwa dreifach schnellerer Abfall. Es liegt nahe, dass dieser schnellere Abfall durch die zunehmende Verschiebung der Zustände in die Benetzungsschicht weg vom Quantenpunkt und die daraus resultierende Abschwächung der Coulomb-Wechselwirkung mit im Quantenpunkt lokalisierten Zuständen zustande kommt.

Zur genaueren Untersuchung der stark und schwach beitragenden Gruppen von Zuständen werden in Abb. 9.8 die Zusammensetzungen der ersten vier Zustände betrachtet. Beim

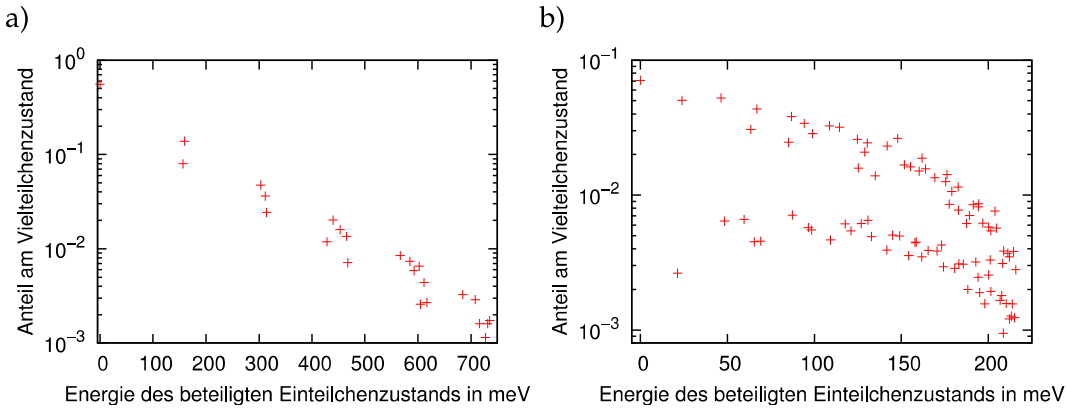


Abb. 9.7: Anteile der Einteilchenzustände an der Normierung des elektronischen Anteils (a) und des Lochanteils (b) des Vielteilchengrundzustands des unpolaren Quantenpunktes als Funktion der Einteilchenzustandsenergien relativ zum jeweiligen Grundzustand: Mit zunehmender Energie fällt tendenziell der Anteil, wobei der Abfall für den Lochanteil bezüglich der Einteilchenenergien schneller als exponentiell erfolgt. Außerdem bilden sich zwei Klassen von Zuständen heraus, von denen eine bezüglich der jeweiligen Energie große und die andere kleine Anteile am Vielteilchengrundzustand hat, wohingegen bis etwa 200 meV kein Zustand einen mittleren Anteil aufweist. Beim elektronischen Anteil ist dies nicht der Fall und der Abfall erfolgt etwa exponentiell.

Vergleich des Grundzustandes (rot) mit dem ersten angeregten Zustand (grün) stellt man fest, dass die Zustände, die beim Grundzustand schwach beitragen, beim angeregten Zustand stark beitragen und umgekehrt, wobei der sich die Beiträge beider Gruppen meist um einen Faktor im Bereich von fünf bis zehn unterscheiden. Da es sich zwischen dem zweiten (blau) und dritten (lila) angeregten Zustand zwischen den Gruppen ebenso verhält, liegt der Schluss nahe, dass diese Gruppen - verglichen mit der Wechselwirkung innerhalb der Gruppen - nur schwach miteinander wechselwirken.

Während die ersten beiden Zustände (rot und grün) bedeutende Beiträge vieler Einteilchenzustände besitzen, setzen sich Letztere (blau und lila) hauptsächlich aus den ersten beiden Einteilchenzuständen zusammen. Dementsprechend liegen die Anteile der übrigen Einteilchenzustände etwa um einen Faktor zehn unterhalb der Anteile, die bei den ersten beiden Vielteilchenzuständen auftreten. Dieser Unterschied macht sich insbesondere in den Spektren bemerkbar (siehe Abb. 9.6). So entspricht die Absorptionsstärke der letzteren Vielteilchenzustände (2. und 3. angeregter Zustand; etwa 40 bzw. 60 meV oberhalb des Grundzustandsübergangs) etwa der Absorptionsstärke der ersten beiden Einteilchenübergänge, die relativ schwach sind. Dagegen führen die vergleichsweise großen Beiträge der energetisch höheren Einteilchenzustände, die größere Dipolstärken aufweisen als die niederenergetischen Zustände, zu einer relativ großen Absorptionsstärke des Vielteilchengrundzustands.

Dagegen setzt sich der Vielteilchengrundzustand des polaren Systems weitgehend aus dem elektronischen Einteilchengrundzustand und den beiden entarteten Lochgrundzuständen zusammen (nicht gezeigt), weshalb eben die in Abb. 9.6 gezeigte Aufenthaltswahrschein-

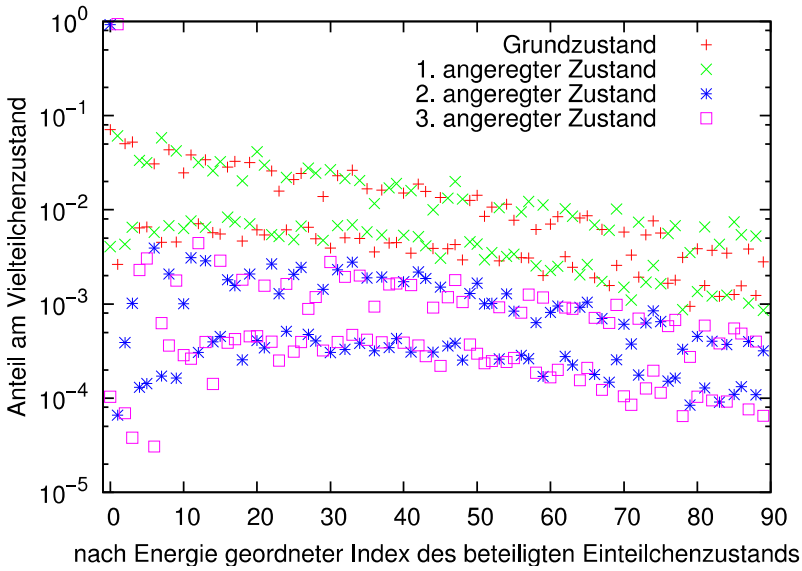


Abb. 9.8: Anteile der Einteilchenlochzustände an der Normierung der Lochanteile der energetisch niedrigsten Vielteilchenzustände des unpolaren Quantenpunktes: Jeweils die Einteilchenzustände, die zur am Grundzustand stärker beitragenden Klasse gehören, tragen nur schwach zum ersten angeregten Zustand bei und umgekehrt. Beim zweiten und dritten angeregten Zustand verhält es sich ebenfalls so. Ferner setzen sich diese jeweils fast vollständig ($> 90\%$) aus dem Einteilchengrundzustand beziehungsweise ersten angeregten Einteilchenzustand zusammen.

lichkeit kaum durch die Coulomb-Wechselwirkung verändert wird. Dies legt nahe, dass es beim polaren Quantenpunkt eine gute Näherung ist, die Basis der CI Rechnung nach wenigen Einteilchenzuständen abzuschneiden, wohingegen diese Näherung beim unpolaren Quantenpunkt aufgrund der starken Durchmischung nicht möglich ist. Qualitativ kann dieser Unterschied auf die räumliche Trennung der angeregten Zustände zurückgeführt werden. So führt die etwa 2,5-fach stärkere elektrostatische Feldstärke im polaren Quantenpunkt dazu, dass auch die angeregten Zustände räumlich separiert sind, während es beim unpolaren Quantenpunkt zu einem erhöhten Überlapp der angeregten Zustände kommt, was eine stärkere Elektron-Loch-Anziehung durch die Beimischung angeregter Zustände zum Grundzustandsexziton bewirkt.

9.1.3 Abhängigkeit von der Wechselwirkungsstärke

Zur weiteren Analyse des Einflusses der Coulomb-Wechselwirkung wird betrachtet, wie sich die Exzitonen und somit die Spektren in Abhängigkeit der Wechselwirkungsstärke verhalten. Dies ermöglicht es insbesondere, die für eine signifikante Änderung der Grundzustände und die damit einhergehende Zunahme der Dipolstärke benötigte Wechselwirkungsstärke zu ermitteln. Dazu werden gemäß

$$H = H_0 + c \cdot H_{\text{Coulomb}} \,, \tag{9.10}$$

wobei c die Stärke bzw. anteilige Wirkung der Coulomb-Wechselwirkung ist, Absorptionsspektren für verschiedene Stärken berechnet. Für die Spektren wird hier aus Darstellungsgründen eine auf 0,1 meV reduzierte Verbreiterung verwendet, wie sie bei tiefen Temperaturen auftritt [112].

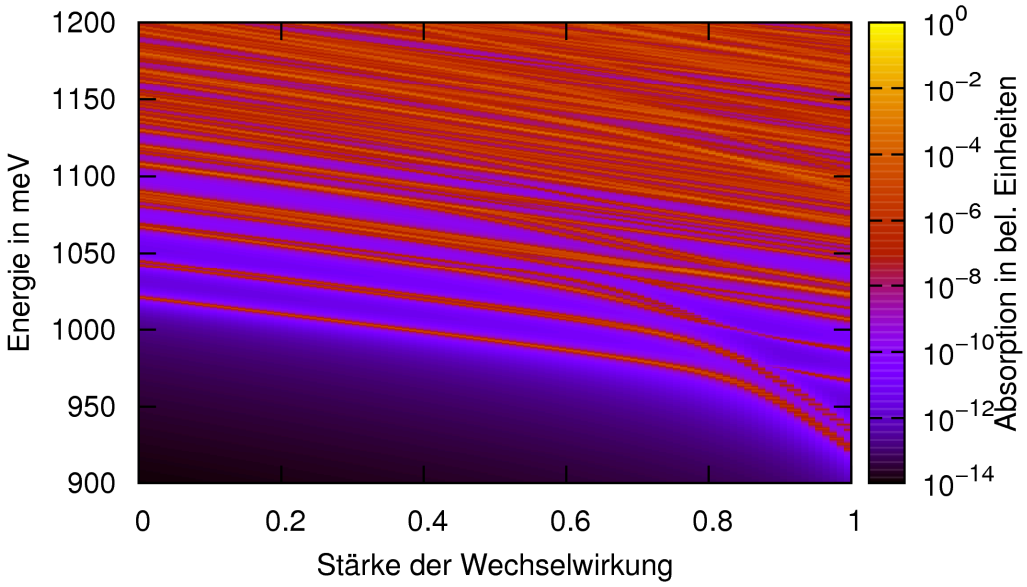


Abb. 9.9: Absorptionsspektrum der Elektron-Loch-Paare im unpolaren Quantenpunkt in Abhängigkeit der Stärke der Coulomb-Wechselwirkung c: $c = 0$ (links) entspricht dem Spektrum der Einteilchenzustände und $c = 1$ (rechts) dem Fall voller Vielteilchen-Coulomb-Wechselwirkung.

Abb. 9.9 zeigt die entsprechenden Ergebnisse für den unpolaren Quantenpunkt. Da eine logarithmische Skala für die Absorption verwendet wird, sind die Änderungen der Dipole mit zunehmender Wechselwirkung nicht zu erkennen. Auffallend ist das weitgehend lineare Regime für große Teile des betrachteten Bereichs und die schwache Abweichung der Steigungen der einzelnen Zustände voneinander. Dieses lineare Regime entspricht den Energierenormierungen der unveränderten Einteilchenzustände und bleibt solange erhalten, wie die Vielteilchenzustände sich nicht verändern, also ihre Zusammensetzung bezüglich der Produktzustände der Einteilchenzustände nicht bzw. nur schwach ändern. Im Wesentlichen ergibt sich die Steigung in diesem Regime aus dem Abstand des elektronischen und lochartigen Anteils der exzitonische Zustände. So entspricht die Steigung der Coulomb-Anziehung zweier Punktladungen im Abstand von etwa 6 nm. Dieses Bild kommt der Situation zwischen den energetisch niedrigsten elektronischen Einteilchenzuständen und den Einteilchenlochzuständen, deren Übergänge im hier betrachteten Energiebereich auftreten, relativ nahe. Mit zunehmender Anregung der beteiligten Zustände nimmt dabei der Abfall leicht zu, da der Abstand der beteiligten

Zustände abnimmt.

Sobald die Wechselwirkung so stark ist, dass es zu einer Durchmischung der Zustände kommt, ergeben sich bei der Energierenormierung nicht-lineare Effekte. Diese führen insbesondere bei den beiden energetisch niedrigsten Zuständen zu einer deutlichen zusätzlichen Energieabsenkung, die im Vergleich zum polaren Quantenpunkt (siehe Abb. 9.10) um 29 meV größer ist. Die Ursache für die erst ab etwa 80% der natürlichen Wechselwirkungsstärke auftretenden überlinearen Effekte ist das Polarisationspotential, das eine Annäherung der unterschiedlich geladenen, an den Exzitonen beteiligten Ladungsträger ungünstig macht. Im Fall einer Wechselwirkung, die nicht ausreicht diesen Effekt zu neutralisieren, bewirkt lediglich die Anziehung der kaum veränderten Zustände eine Energieabsenkung. Ist die Wechselwirkung allerdings stark genug, dass eine Annäherung trotz des Feldes vorteilhaft ist, führt die Änderung der Zustände, die sich als Durchmischung der Basiszustände ausdrückt, zu überlinearen Effekten. Im Bild der Punktladungen würden sich diese durch die zusätzliche Anziehung also nicht nur stärker anziehen, sondern auch näher aneinander rücken und sich dementsprechend zusätzlich stärker anziehen.

Wie schon anhand von Abb. 9.8 gezeigt wurde, sind die beiden energetisch niedrigsten Zustände im Fall voller Coulomb-Wechselwirkung stark durchmischt, was sich hier in dem beschleunigten Energieabfall für große c zeigt. Dagegen ist die Abnahme des dritten und vierten Zustands für $c = 1$ entsprechend ihrer Zusammensetzung aus jeweils weitgehend nur einem Einteilchenzustand wieder annähernd linear.

Im Unterschied zum unpolaren Quantenpunkt ergeben sich entsprechend Abb. 9.10 für den polaren Quantenpunkt keine erkennbaren überlinearen Effekte bei voller Coulomb-Wechselwirkung ($c = 1$, in der Abbildung werden Wechselwirkungsstärken bis $c = 2,5$ betrachtet). Allerdings stellen sich solche Effekte für Wechselwirkungen ein, die im Vergleich zur Natur verstärkt sind ($c > 1$). Dies ist konsistent mit der zuvor diskutierten Erklärung, dass die Polarisationsfelder zunächst überwunden werden müssen, bevor sich nennenswerte Durchmischungseffekte ergeben. So sind die Felder hier etwa um den Faktor $2,5$ stärker als im unpolaren Quantenpunkt. Eine derart erhöhte Wechselwirkung stellt sich unter natürlichen Bedingungen bei Multiexzitonen ein, was vermuten lässt, dass sich auch im polaren Quantenpunkt ähnliche Effekte ergeben, wie sie für den Unpolaren beobachtet wurden, sofern eine größere Anregungsdichte vorhanden ist.

Daneben ist auffällig, dass sich hier im Gegensatz zum unpolaren Quantenpunkt die Steigungen im linearen Bereich zwischen den einzelnen Übergängen deutlich unterscheiden, wobei die Steigung weitgehend vom beteiligten Einteilchenlochzustand abhängt. Dies entspricht der Tatsache, dass der effektive Abstand zwischen den Ladungsträgern mit zunehmender Anregung tendenziell zunimmt. Das stärkere Feld bewirkt ein Ausweichen der Lochzustände vom unteren Zentrum des Quantenpunktes nach Außen, weg von den niederenergetischen elektronischen Zuständen, wodurch die Einteilchengrundzustände auch mit Coulomb-Wechselwirkung weitgehend erhalten bleiben. Die Ursache hierfür liegt in den starken Feldern.

Ferner ist hier das Entstehen von zusätzlichen Peaks im Spektrum bei zunehmender Wechselwirkungsstärke zu beobachten. Dies ergibt sich nicht nur durch das Auseinanderlaufen zuvor überlagerter Peaks, sondern auch durch das Entstehen neuer optischer Übergänge,

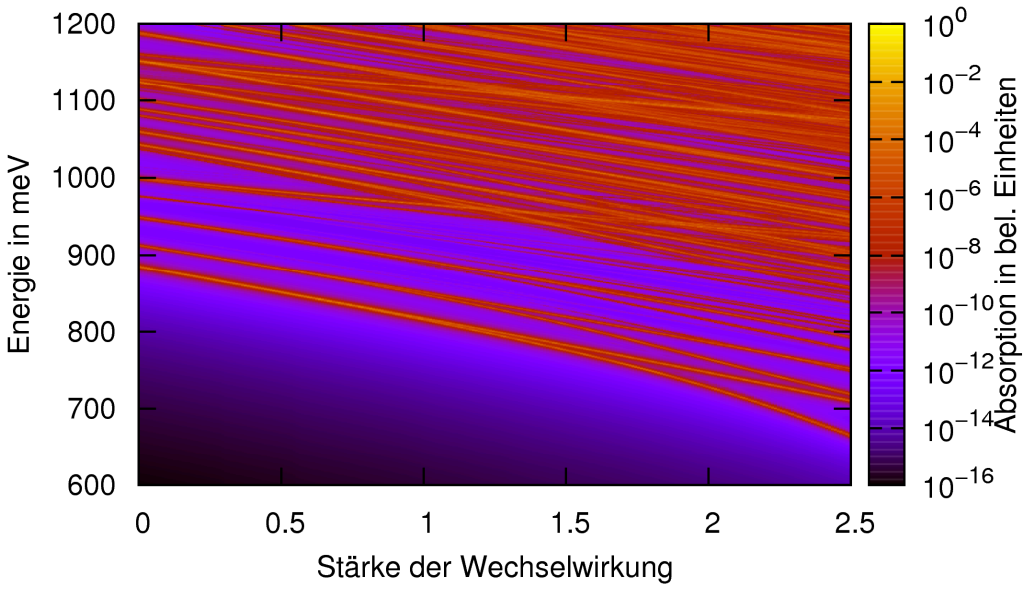


Abb. 9.10: Absorptionsspektrum der Elektron-Loch-Paare im polaren Quantenpunkt in Abhängigkeit der Stärke der Coulomb-Wechselwirkung c: $c = 0$ (links) entspricht dem Spektrum der Einteilchenzustände und $c = 1$ dem Fall voller Vielteilchen-Coulomb-Wechselwirkung. Darüber hinausgehende $c > 1$ entsprechen einer im Vergleich zur Natur verstärkt angenommenen Wechselwirkung.

die zuvor aufgrund der hohen Symmetrie der Quantenpunkte dunkel waren und durch die Einmischung anderer Einteilchenzustände mit zunehmender Wechselwirkung optisch aktiv werden.

Zusammenfassung

Während unsere Untersuchungen der Einteilcheneigenschaften vorhergehende Studien [63, 107, 109] bezüglich des Rückgangs der Dipolstärke beim Übergang von einem polaren zu einem unpolaren Nitrid-Quantenpunkt bestätigen, zeigen unsere Ergebnisse der Vielteilchenrechnung, dass die Coulomb-Wechselwirkung in unpolaren Quantenpunkten von entscheidender Bedeutung für die optischen Eigenschaften ist und zu einer beträchtlichen Steigerung der Dipolstärke des Grundzustandsübergangs führt. Dies wird durch eine starke Durchmischung vieler Einteilchenzustände verursacht. Dagegen bewirkt die Coulomb-Wechselwirkung im polaren Fall aufgrund der stärkeren Felder, die einer Durchmischung entgegenwirken, neben einer Energieverschiebung nur schwache qualitative Änderungen des Spektrums. Daraus folgt eine etwa gleich große Dipolstärke der exzitonischen Grundzustandsübergänge für beide Geometrien.

9.2 Dipolübergänge zwischen Quantenpunkt- und Benetzungsschichtzuständen

Zur Erklärung der erhöhten Dipolstärke der unpolaren Quantenpunkte kommen neben den zuvor betrachteten Coulomb-Effekten ebenfalls optische Übergänge mit Beteiligung von Benetzungsschichtzuständen in Betracht. Diese liegen allerdings energetisch mindestens 200 meV vom Grundzustandsübergang entfernt. Am nächsten liegen die Übergänge zwischen den elektronischen Quantenpunktgrundzuständen und den Lochzuständen in der Benetzungsschicht, da die elektronischen Bänder mit etwa 800 meV deutlich weiter vom Grundzustand entfernt liegen als bei den Löchern (200 meV). Da dementsprechend die Übergänge zwischen Benetzungsschichtzuständen ohne Beteiligung der Quantenpunktzustände also mindestens 1 eV oberhalb des Grundzustandsübergangs liegen, beschränkt sich diese Untersuchung auf die Übergänge zwischen dem elektronischen Grundzustand mit den Lochzuständen der Benetzungsschicht. Ferner werden hier lediglich die Einteilcheneigenschaften betrachtet, also im Gegensatz zu den vorhergehenden Untersuchungen keine Coulomb-Effekte berücksichtigt.

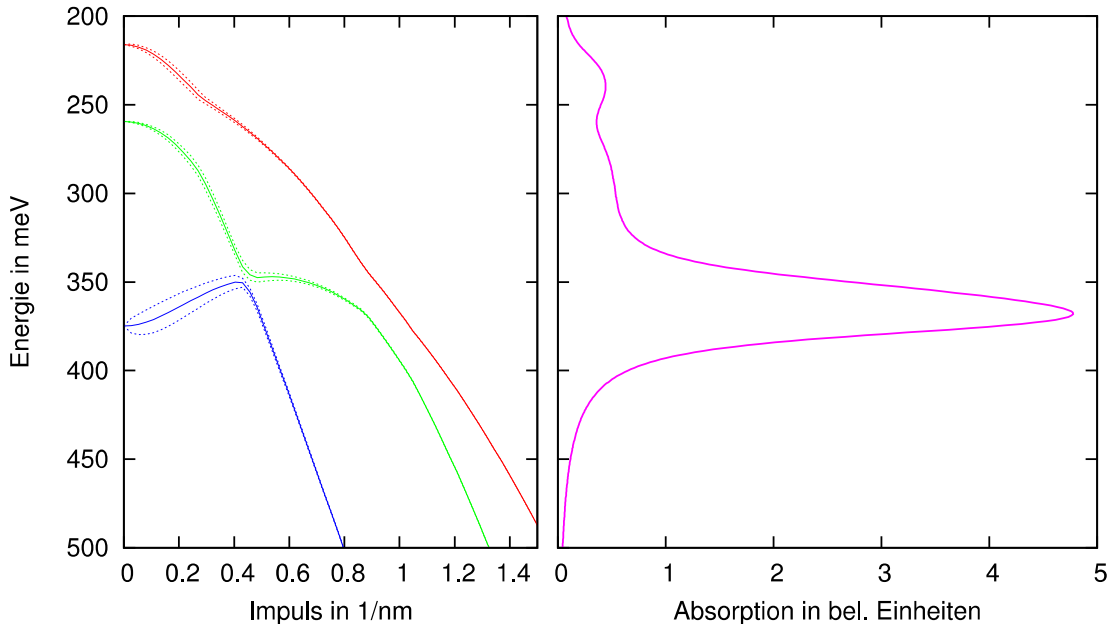


Abb. 9.11: Durch Übergänge zwischen dem elektronischen Quantenpunktgrundzustand und den Lochbändern der Benetzungsschicht hervorgerufenes Absorptionsspektrum (lila, rechts): Die Energieskala ist relativ zum Grundzustandsübergang gewählt. Zusätzlich ist die winkelgemittelte Bandstruktur der Lochzustände dargestellt (durchgängige Linien in rot, grün und blau; links). Der Abstand der gestrichelten Linien zur entsprechenden durchgängigen Linie gibt die effektiven Dipolmatrixelemente zwischen dem betreffenden Band und dem elektronischen Grundzustand in beliebigen Einheiten an. Die Berechnungen der Bandstruktur wurden von Stefan Barthel durchgeführt; die Dipolmatrixelemente wurden gemeinsam berechnet.

Abb. 9.11 zeigt das Absorptionsspektrum der Übergänge zwischen dem elektronischen Grundzustand mit den Lochzuständen der Benetzungsschicht (lila). Auffällig ist der große Peak 360 meV oberhalb des Grundzustandsübergangs. Dieser Peak übertrifft die Absorption des Quantenpunktgrundzustandsübergangs (auch bei Berücksichtigung der Coulomb-Effekte), wobei zu beachten ist, dass in diesem Energiebereich auch Übergänge zwischen Quantenpunktzuständen liegen, deren Absorption die gleiche Größe des hier gezeigten Peaks erreicht. Zu diesem ausgeprägten Peak kommt es durch die flache Dispersion zweier Lochbänder in der Benetzungsschicht (durchgängige Linien in blau und grün) in Kombination mit insbesondere beim dritten (blau) Band großen Dipolmatrixelementen, deren Größe jeweils durch den Abstand der durchgängigen Linien zu den gestrichelten Linien dargestellt sind. Während dieses dritte Band fast ausschließlich zu diesem Peak beiträgt, bewirkt des zweite (grün) Band zusätzlich einen Ausläufer in der Absorption, der bis etwa 260 meV reicht. Daneben bewirkt das erste (rot) Band einen kleinen Peak bei 240 meV.

Bei den hier dargestellten Dipolmatrixelementen handelt es sich um effektive Dipolmatrixelemente, die die Übergänge mit allen Benetzungsschichtzuständen eines Impulsbetrages k berücksichtigen. Dementsprechend verschwinden diese Elemente für $k = 0$ und nehmen zunächst mit k zu. Dagegen nehmen die eigentlichen Dipolmatrixelemente zwischen dem elektronischen Grundzustand und einem Benetzungsschichtzustand mit größer werdendem k ab, da deren zunehmend kurzwelligere Oszillationen dazu führen, dass sich die Beiträge unterschiedlicher Orte zu den Matrixelementen zunehmend gegenseitig aufheben. Dieses Verhalten dominiert für größere k, so dass die effektiven Dipolmatrixelemente auch für größer werdende Impulse verschwinden. Daher gibt es oberhalb von 400 meV mit Ausnahme des Ausläufers des großen Peaks keine nennenswerten Beiträge dieser Übergänge zur Absorption.

9.3 Dichteabhängigkeit der Spektren polarer Nitrid-Quantenpunkte

In diesem Abschnitt wird die Dichteabhängigkeit der Spektren polarer Nitrid-Quantenpunkte unter dem Einfluss der Hartree-Fock-Renormierungen und Elektron-Phonon-Wechselwirkung untersucht. Dazu werden wie im letzten Kapitel die Halbleiter-Bloch-Gleichungen (8.13) mit der Elektron-Phonon-Wechselwirkung entsprechend Gl. (7.16) und (7.17) kombiniert.

Es werden hier jeweils die drei am stärksten gebundenen Quantenpunktzustände der Elektronen und Löcher sowie die zwei energetisch am nächsten gelegenen Lochbänder der Benetzungsschicht und ein entsprechendes elektronisches Band betrachtet. Die anderen Quantenpunktzustände werden aus numerischen Gründen nicht betrachtet. Wie in Kap. 9.1 gezeigt wird, ist zumindest bei kleinen Dichten die Wirkung dieser Zustände durch die Coulomb-Wechselwirkung auf die Grundzustandsübergänge gering.

Im Gegensatz zu den zuvor betrachteten InGaAs-Quantenpunkten weisen die hier Betrachteten nicht-diagonale Übergänge auf. In Abb. 9.12 sind diese schematisch dargestellt. Die Entartung des Grundzustandes der Löcher führt zu zwei Grundzustandsübergängen (rot) und analog kommt es zu einem weiteren zweifach entarteten Übergang (blau).

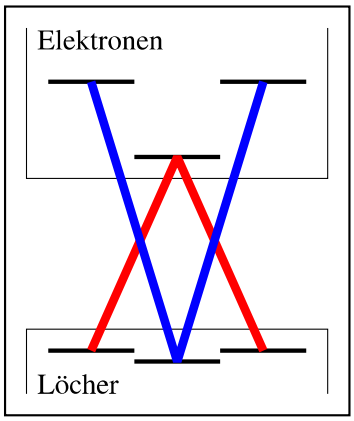


Abb. 9.12: Energieschema der untersuchten Quantenpunkte sowie die Grundzustandsübergänge (rot) und Übergänge zwischen den angeregten Zuständen (blau).

Bemerkenswert ist dabei, dass die energetische Reihenfolge der Lochzustände von der genauen Größe der Quantenpunkte abhängt. So liegt der im betrachteten Quantenpunkt angeregte Zustand bei einem kleineren Quantenpunkt unterhalb der entarteten Zustände. Da sich die Auswahlregeln für erlaubte Übergänge dagegen nicht ändern, kommt es für derartige Quantenpunkte zu einem dunklen Grundzustandsexziton. Eine zu der hier gezeigten Untersuchung analoge Betrachtung derartiger Quantenpunkte ist in Ref. [115] zu finden.

Um das lineare Absorptionsspektrum des Systems zu erhalten, wird die Suszeptibilität $\chi(\omega)$ genutzt, deren Imaginärteil die Absorption darstellt. Die Suszeptibilität

$$\chi(\omega) = \frac{P(\omega)}{E(\omega)} \tag{9.11}$$

und somit die Absorption werden durch Anwendung eines externen elektrischen Feldes E und die durch dieses erzeugte optische Polarisation $P = \sum_{\alpha\beta} \Psi_{\alpha\beta} d^*_{\alpha\beta}$ bestimmt, siehe auch Ref. [59]. Durch einen hinreichend kurzen und daher spektral breiten Puls kann das System über einen großen Bereich angeregt werden und damit auch die Suszeptibilität über einen großen spektralen Bereich bestimmt werden. Dabei wird die optische Anregung entsprechend Kap. 8 analog zu den optischen Bloch-Gl. (8.3) und (8.4) modelliert. Im Null-Dichte-Fall entspricht dies einer CI-Rechnung, wie sie in Kap. 9.1 zur Bestimmung Vielteilchenzustände angewendet wird.

Abb. 9.13 zeigt die Absorptionsspektren der betrachteten InN-Quantenpunkte für verschiedene Gleichgewichtsbesetzungen bei 300 K. Oberhalb von etwa 1300 meV gibt es aufgrund der Benetzungsschicht eine starke Absorption. Insbesondere führt die Bildung von Exzitonen in der Benetzungsschicht zu einer Zunahme der Zustandsdichte an der Bandkante, so dass die Absorption hier besonders stark ist. Unterhalb der Bandkante sind die Übergänge zwischen den Quantenpunktzuständen erkennbar. Mit zunehmender Besetzung vollzieht sich ein Übergang von Absorption hin zu Gewinn, da die Quantenpunktübergänge durch die zunehmende Besetzung invertiert werden. Ferner ist eine Verschiebung der Übergänge hin zu höheren Energien mit zunehmender Besetzungsdichte von jeweils über 150 meV erkennbar. Dagegen ändert sich die Absorption durch die Benetzungsschicht nur wenig. Die verglichen mit der Benetzungsschicht schwache Absorption der Quantenpunktübergänge ergibt sich durch die Quantenpunktdichte von $10^{10}/\text{cm}^2$ und die daraus resultierende geringere Zustandsdichte der Quantenpunktzustände.

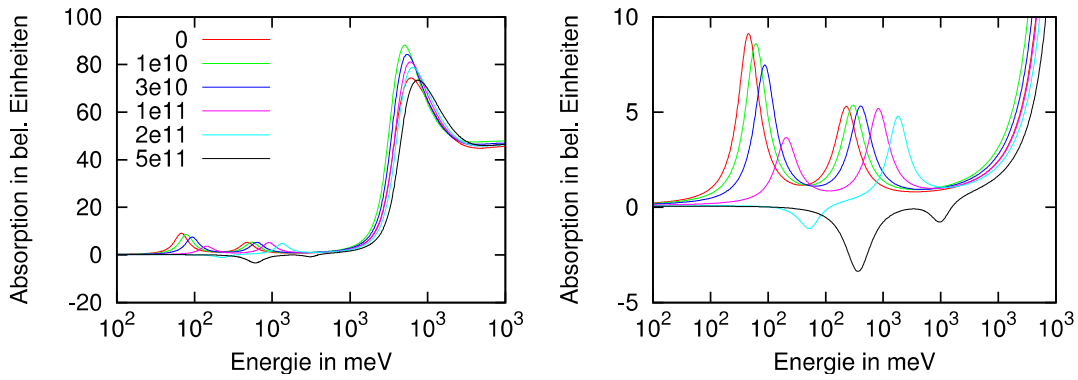


Abb. 9.13: Absorptionsspektrum der Quantenpunkte für verschiedene Ladungsträgerdichten (Legende in cm^{-2}): Rechts sind die Quantenpunktübergänge vergrößert dargestellt.

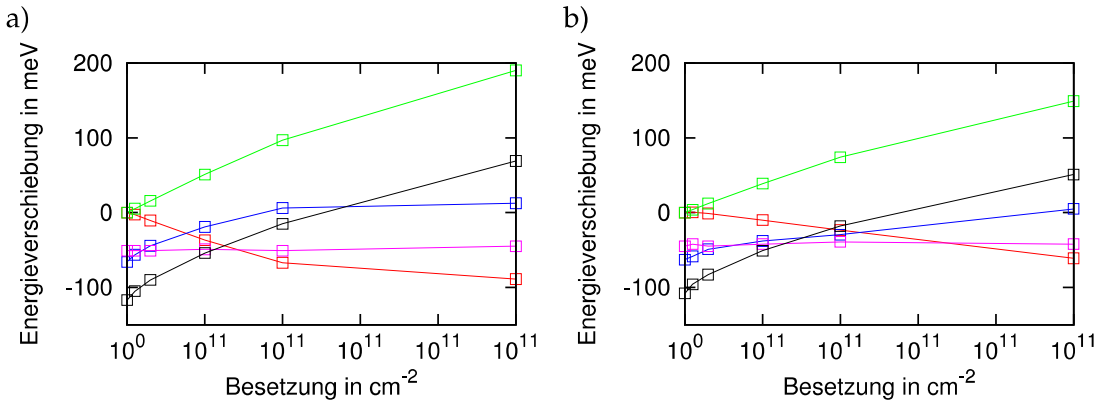


Abb. 9.14: Die in Abb. 9.13 auftretenden Renormierungen (schwarz) und deren einzelne Beiträge (restliche Kurven, siehe Text) für den Grundzustandsübergang (a) und den Übergang zwischen den angeregten Zuständen (b) in Abhängigkeit der Ladungsträgerdichte.

Die bereits erwähnte Verschiebung der Übergänge von jeweils über 150 meV zu höheren Energien bei einer Änderung der Besetzungsdichte von 0 auf $5 \cdot 10^{11}/\mathrm{cm}^2$ wird durch mehrere Beiträge hervorgerufen. Die einzelnen Energierenormierungen sowie die resultierende Verschiebung gegenüber dem freien Übergang (schwarz) sind in Abb. 9.14a für den niederenergetischen Übergang und in Abb. 9.14b für den höherenergetischen Übergang dargestellt.

Der Hartree-Beitrag (grün, siehe Gl. (4.21)) entspricht der klassischen Coulomb-Wechselwirkung. Dabei bewirkt der quantum-confined Stark effect in den Nitriden durch die Separation von Elektronen und Löchern, dass sich jeweils gleich geladene Ladungsträger näher sind als entgegengesetzt geladene Ladungsträger, so dass prinzipiell von einer stärkeren Abstoßung als Anziehung auszugehen ist. Dementsprechend führt dieser Beitrag zu einer Zunahme der Übergangsenergie, die mit zunehmender Besetzungsdichte weiter

ansteigt, sofern die Besetzung in den Quantenpunktzuständen noch weiter ansteigt. Dabei ist zu beachten, dass in dieser Rechnung nur Einteilchenzustände verwendet werden und somit eine möglicherweise mit zunehmender Besetzung auftretende Reduktion des Stark-Effekts durch die Anwesenheit der zusätzlichen Ladungsträger nicht in der Rechnung berücksichtigt wird.

Der Austausch-Beitrag ist hier in durch Besetzungen verursachte Anteile (rot, siehe Gl. (4.21)) und zusätzliche, über die Polarisation wirkende Anteile (blau, siehe Gl. (4.22)) aufgeteilt. Der durch Besetzungen hervorgerufene Anteil im Gegensatz zum Hartree-Beitrag prinzipiell negativ. Die Auswirkungen auf die Polarisation sind wiederum proportional zur Inversion $f^e + f^h - 1$ des Übergangs, so dass dieser Beitrag zur Verschiebung der Übergänge für kleine Besetzungen negativ ist, mit zunehmender Besetzung ansteigt und schließlich positiv wird, sobald Inversion eintritt.

Auch die Abschirmung der Coulomb-Wechselwirkung durch die Ladungsträger in der Benetzungsschicht nimmt mit zunehmender Besetzungsdichte zu. Dies bewirkt eine Reduktion der durch die zuvor genannten Beiträge hervorgerufenen Renormierungen. Für die untersuchten Besetzungen führt dies allerdings noch nicht zu einer Reduktion der Beiträge, da die an den Übergängen beteiligten Besetzungen bzw. Inversionen stärker zunehmen, als notwendig ist um die ansteigende Abschirmung zu kompensieren.

Entsprechend des verwendeten Modells ist der Beitrag der Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung (lila, siehe Gl. (5.20)) hier unabhängig von den Besetzungen und somit konstant. Die leichten Schwankungen liegen im Bereich der Genauigkeit der Berechnung. Die Verschiebung entspricht dabei in etwa dem nach Störungstheorie zu erwartenden Wert von $-\hbar\omega_{LO} \cdot \alpha = -45$meV [19, 61].

Obwohl sich die Beiträge teilweise kompensieren, resultieren aus ihnen deutliche Energieverschiebungen (schwarz). Die Übergänge im leeren System sind ausgehend von freien Übergängen jeweils um etwa 100 meV zu niedrigeren Energien verschoben. Mit zunehmender Besetzungsdichte nimmt die Übergangsenergie zu, was hauptsächlich durch den Hartree-Beitrag bewirkt wird. So ergibt sich für eine Besetzungsdichte von $5 \cdot 10^{11}/\text{cm}^2$ jeweils eine Energieverschiebung von etwa 50 meV zu höheren Energien.

10 Zusammenfassung

In dieser Arbeit werden unter Anwendung der Methode der Nichtgleichgewichts-Greenschen Funktionen die Coulomb- und Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung in Halbleiterquantenpunkten untersucht. Mittels Renormierungen, die über retardierte Greensche Funktionen beschrieben werden, erlaubt der verwendete Ansatz eine selbstkonsistente, mikroskopische Beschreibung der durch die Wechselwirkungen verursachten Dephasierung und Streuung. Die Renormierungen berücksichtigen nicht nur Energieverschiebungen und -verbreiterungen, sondern auch komplexe Eigenschaften, die als Quasiteilchen interpretiert werden können. Insbesondere bedeutet dies, dass keine strikte Energieerhaltung vorliegt. Dabei werden nicht nur die Quantenpunkte an sich betrachtet, sondern auch eine an diese gekoppelte, quasikontinuierliche Benetzungsschicht.

In Quantenpunkten kommt es aufgrund der Lokalisierung der Ladungsträger zu einer verstärkten Kopplung zwischen diesen verglichen mit delokalisierten Ladungsträgern. Dies wirkt sich insbesondere auf die Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung aus, durch welche sich eine Hybridisierung ergibt, die die Streuung zwischen Quantenpunktzuständen deutlich verstärkt. Allerdings wird diese Hybridisierung durch die Coulomb-Wechselwirkung reduziert. Um diesen Einfluss zu quantifizieren, werden Streuraten genutzt, die nicht nur die einzelnen Wechselwirkungen, sondern auch deren gegenseitige Beeinflussungen berücksichtigen. So können die Streuraten der Elektron-Phonon-Wechselwirkungdurch die Coulomb-Wechselwirkung um über die Hälfte reduziert werden. Dabei werden insbesondere die Streuraten zwischen Zuständen reduziert, die ohne Coulomb-Wechselwirkung aufgrund ihres energetischen Abstands nahe der Energie der LO-Phononen große Streuraten aufweisen. Zusätzlich bewirkt das Zusammenwirken der Wechselwirkungen eine energetische Verbreiterung der Zustände, die die Streuraten abseits dieser Resonanz erhöht.

Für zukünftige Untersuchungen könnte es interessant sein, zusätzlich zu den betrachteten Wechselwirkungen auch die LA-Phononen zu betrachten. Diese lassen zwar aufgrund der diskreten Quantenpunktzustände keinen großen Beitrag erwarten, tragen aufgrund ihrer kleineren Energie gegenüber LO-Phononen jedoch auch bei niedrigen Temperaturen bei. Da sie unabhängig von der Ladungsträgerdichte auftreten, könnten sich ferner zusätzliche Einflüsse auf die oben erwähnte Hybridisierung ergeben, die bei niedrigen Dichten wichtig sein könnten.

Die Streuraten werden auch genutzt, um die Vorteile des verwendeten Ansatzes gegenüber einer störungstheoretischen Rechnung zu verdeutlichen. So führt die Selbstkonsistenz automatisch zur Berücksichtigung von Prozessen beliebig hoher Ordnung, so dass beispielsweise automatisch Streuung mit mehreren Phononen berücksichtigt wird, wohingegen in einem störungstheoretischen Modell jede Ordnung, die berücksichtigt werden soll, explizit berechnet werden muss. Auch ergeben sich deutliche quantitative und qualitative Unterschiede der Streuraten. Am deutlichsten wird der Unterschied bei der Betrachtung

von zwei diskreten Quantenpunktzuständen, zwischen denen die durch LO-Phononen assistierte Streuung nicht durch Anwendung von Fermis goldener Regel mit strikter Energieerhaltung beschrieben werden kann; tatsächlich kommt es jedoch zu schneller Streuung, die durch Nichtgleichgewichts-Greenschen Funktionen beschrieben werden kann.

Ein weiterer Schwerpunkt dieser Dissertation war die Beschreibung des Einflusses der Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung auf die kohärente Dynamik optischer Anregungen. Analog zu den Streuraten wurden Dephasierungsraten berechnet. Diese zeigen, dass insbesondere in Quantenpunkten mit Zuständen nahe eines Kontinuums Dephasierung schnell abläuft, was sich insbesondere negativ auf Anwendungen auswirkt, die Kohärenz erfordern. Die Untersuchungen des Einflusses der Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung auf die Invertierung eines Quantenpunktübergangs durch resonante Rabi-Oszillationen sowie schnelle adiabatische Übergange (RAP) zeigen, dass der Einfluss der Dephasierung durch schnelle optische Anregungen, die teilweise in unter 100 fs ablaufen, deutlich verringert werden kann. Derart schnelle Besetzungsänderungen führen jedoch zu bedeutenden nicht-markovschen Effekten und somit zu einer weiteren Aufweichung der Energieerhaltung; die Energieerhaltung stellt sich erst mit der Zeit ein. Dies bewirkt insbesondere eine deutlich beschleunigte Streuung, die ebenfalls die Kohärenz reduziert. So ist auch Ausstreuung aus dem elektronischen Grundzustand in einen höherenergetischen Zustand durch die Emission eines Phonons aufgrund der spontanen Emission, die temperaturunabhängig ist, selbst bei 4 K ein effizienter Prozess. Dieses Verhalten ist allerdings stark von den Energieniveaus der Quantenpunktzustände abhängig. So kann ein weniger stark wechselwirkender Quantenpunkt als optischer Schalter verwendet werden, der mittels resonanter π-Pulse invertiert wird. Auch ist RAP gut dazu geeignet, derartige Quantenpunkte zu invertieren. Dabei ist insbesondere die relativ große Unabhängigkeit der erzielten Inversion von den Pulsparametern vorteilhaft. Dies ermöglicht beispielsweise auch mit einem einzelnen Puls ein Ensemble von verschiedenen Quantenpunkte zu invertieren. Allerdings ergibt sich dabei eine stärkere Anfälligkeit gegenüber den Wechselwirkungen, so dass eine Verwendung als optischer Schalter für die betrachteten Quantenpunkte nicht möglich ist.

Eine sinnvolle Erweiterung der Berechnungen zur kohärenten Dynamik wäre die Einbeziehung der Coulomb-Wechselwirkung. Dies erfordert allerdings - anders als bei der Berechnung der Streuraten - die Einbeziehung von Übergangsamplituden und Dephasierung, was den Rahmen dieser Arbeit übersteigt. Die Coulomb-Wechselwirkung würde zusätzliche Dephasierungs- und Steuprozesse bewirken. Andererseits könnte das Zusammenspiel beider Wechselwirkungen - entsprechend den Streuraten - auch zu einer Reduktion der Interaktion zwischen den Quantenpunktzuständen führen. Insbesondere bei den hier betrachteten schnellen Prozessen wäre eine zweizeitige Rechnung, die auf den GKBA (siehe Kap. 3.4) verzichtet, sinnvoll, jedoch auch numerisch deutlich aufwendiger.

Ein dritter Schwerpunkt bestand in der Untersuchung von Nitrid-Quantenpunkten. Experimentelle Befunde, die eine erhöhte Rekombination in unpolaren gegenüber polaren Nitrid-Quantenpunkten festgestellt haben, können durch den Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung erklärt werden. Die intrinsischen Felder in Nitriden führen durch den quantum-confined Stark effect zu einer Separation von Elektronen und Löchern und damit zu einer Reduktion der Dipolstärke, die direkt die Rekombinationsrate bestimmt. Dieser

Effekt wird allerdings in unpolaren Quantenpunkten, in denen die Felder schwächer sind, ausreichend durch die Coulomb-Wechselwirkung reduziert, um eine effiziente Rekombination der Ladungsträger zu ermöglichen. Der Fall eines einzelnen Exzitons wird mittels Konfigurationswechselwirkungsrechnung betrachtet. Dies führt für beide Quantenpunkte zu etwa gleich starken Dipolübergängen der Grundzustände, wohingegen diese ohne Wechselwirkung im polaren Quantenpunkt deutlich stärker sind. Weitere Untersuchungen zeigen, dass auch starke Dipolübergänge zwischen Quantenpunkt- und Benetzungsschichtzuständen vorliegen, die allerdings bei deutlich höheren Energien als die Grundzustandsübergänge liegen.

Es wird gezeigt, dass die Überwindung der Felder eine gewisse Wechselwirkungsstärke erfordert, die beim polaren Quantenpunkt nicht erreicht wird. Daher wäre die Betrachtung von Multiexzitonen, bei denen die Wechselwirkung stärker ist, von Interesse. So könnte die Dipolstärke des unpolaren Quantenpunkts möglicherweise weiter verstärkt werden. Auch könnte die beim Exziton kaum veränderte Dipolstärke des polaren Quantenpunkts gegebenenfalls durch die zusätzlichen Ladungsträger erhöht werden. Ferner werden hier reine InN-Quantenpunkte betrachtet, so dass die Felder sehr stark sind, wohingegen experimentell nur In-Konzentrationen von etwa 20% erreicht werden. Es ist daher erstrebenswert, die Rechnung mit niedriger In-Konzentrationen durchzuführen, um sich stärker am Experiment orientieren zu können. Dies könnte ebenfalls die Feldstärke reduzieren und damit den Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung verstärken.

Darüber hinaus wurde die Besetzungsabhängigkeit der Spektren des polaren Nitrid-Quantenpunkts unter Einfluss der Elektron-LO-Phonon-Wechselwirkung und einfacher Coulomb-Renormierungen betrachtet. Insbesondere kommt es dabei zu starken Energieverschiebungen. Dabei werden aus numerischen Gründen nur die niedrigsten Quantenpunktzustände berücksichtigt. Daher bietet es sich an, bei zukünftigen Untersuchungen alle Quantenpunktzustände zu berücksichtigen. Dies kann insbesondere in Verbindung mit der reduzierten In-Konzentration erfolgen, da diese zu einer kleineren Anzahl gebundener Zuständen führt. Des weiteren wäre es erstrebenswert, auch komplexere Effekte der Coulomb-Wechselwirkung zu berücksichtigen, was für dieses Materialsystem ebenfalls aus numerischen Gründen nicht erfolgte.

Teil IV

Anhang

A Überlapp-Integrale für das Oszillatormodell

Dieser Abschnitt entspricht weitgehend dem entsprechenden Teil meiner Diplomarbeit [103].

Entsprechend Kap. 2.2 können die Zustände des InGaAs-Quantenpunktsystems als Produkt einer Wellenfunktion $\xi(z)$ in Wachstumsrichtung z und Funktionen $\phi_\alpha(\mathbf{r}_{||})$ in der Ebene der Benetzungsschicht dargestellt werden,

$$\Phi_\alpha(\mathbf{r}) = \phi_\alpha(\mathbf{r}_{||})\,\xi(z)\ , \tag{A.1}$$

wobei $\mathbf{r}_{||}$ die Projektion von $\mathbf{r}$ auf die Wachstumsebene ist.

Formfaktor

Diese Aufspaltung der Wellenfunktionen erlaubt es, den z-abhängigen Anteil der Matrixelemente in einem Formfaktor $F(|\mathbf{q}_{||}|)$ zusammenzufassen, so dass die Coulomb-Matrixelemente (vergleiche Gl. (4.4))

$$V_{\alpha\beta\beta'\alpha'} = \frac{1}{(2\pi)^2}\int d^2\mathbf{q}_{||}\,\frac{e^2}{\epsilon_0\epsilon(\infty)}\frac{F(\mathbf{q}_{||})}{4\,|\mathbf{q}_{||}|}\left\langle\phi_\alpha\left|e^{i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}}\right|\phi_{\alpha'}\right\rangle\left\langle\phi_\beta\left|e^{-i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}}\right|\phi_{\beta'}\right\rangle \tag{A.2}$$

bei gegebenen Formfaktor nicht mehr vom vollständigem $\mathbf{q}$, sondern nur noch vom Anteil in der Wachstumsebene $q_{||}$ abhängen. Da der z-abhängigen Anteil für alle Wellenfunktionen gleich ist, ist der Formfaktor unabhängig von den betrachteten zuständen. Man erhält für diesen

$$F(|\mathbf{q}_{||}|) = \int dz\int dz'\,\xi^*(z)\,\xi^*(z')\,e^{-q_{||}|z-z'|}\xi^*(z')\,\xi^*(z)\ , \tag{A.3}$$

wobei zur Ausführung der q_z-Integration

$$\int dq_z\,\frac{1}{q_z^2+q_{||}^2}e^{iq_z(z-z')} = \frac{\pi}{q_{||}}e^{-q_{||}|z-z'|} \tag{A.4}$$

verwendet wird. Dabei gilt $F(q_{||}=0)=1$ und dass der Formfaktor für größer werdende $q_{||}$ stetig abnimmt. Für die Matrixelemente der Elektron-Phonon-Wechselwirkung folgt dies vollkommen analog. Für einen unendlich hohen Potentialtopf erhält man den Formfaktor

$$F(|\mathbf{q}_{||}|) = \frac{2}{q_{||}L} + \frac{q_{||}L}{(q_{||}L)^2+4\pi^2} + 2\left(e^{-q_{||}L}-1\right)\left(\frac{1}{q_{||}L} - \frac{q_{||}L}{(q_{||}L)^2+4\pi^2}\right)^2 \tag{A.5}$$

mit $|\mathbf{q}_{||}| = q_{||}$.

Quantenpunkt-Überlapp-Integrale

Für die Berechnung der Matrixelemente werden nun noch die Überlapp-Integrale der betrachteten Zustände in der Benetzungsschichtebene benötigt.

Für die Quantenpunktzustände ergibt sich für diese gemäß (2.3)

$$\left\langle \phi_{m,\mathbf{R}} | e^{i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}} | \phi_{m',\mathbf{R}} \right\rangle = \left\langle \phi_m | e^{i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}} | \phi_{m'} \right\rangle e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}} \tag{A.6}$$

mit

$$\begin{aligned}
\left\langle \phi_0 | e^{i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}} | \phi_0 \right\rangle &= e^{-\frac{q^2}{4\beta^2}} \ , \\
\left\langle \phi_0 | e^{i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}} | \phi_{\pm 1} \right\rangle &= i\frac{q}{2\beta} e^{\pm i\Phi_q} \ e^{-\frac{q^2}{4\beta^2}} \ , \\
\left\langle \phi_{\pm 1} | e^{i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}} | \phi_{\pm 1} \right\rangle &= \left[1 - \frac{q^2}{4\beta^2} \right] e^{-\frac{q^2}{4\beta^2}} \ , \\
\left\langle \phi_{\pm 1} | e^{i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}} | \phi_{\mp 1} \right\rangle &= -\frac{q^2}{4\beta^2} e^{\mp 2i\Phi_q} \ e^{-\frac{q^2}{4\beta^2}} \ .
\end{aligned} \tag{A.7}$$

Dabei ist Φ_q der Winkel von $\mathbf{q}$ in Polardarstellung. Selbiges gilt im Folgenden auch für die Vektoren $\mathbf{k}$ und $\mathbf{k}+\mathbf{q}$.

Orthogonalisierte ebene Wellen

Mittels der OPW[1]-Methode können aus ebenen Wellen zu den Quantenpunktzuständen orthogonale Benetzungsschichtzustände konstruiert werden. Dazu wird von den ebenen Wellen deren Überlapp mit den Quantenpunktzuständen subtrahiert

$$|\phi_{\mathbf{k}}\rangle = \frac{1}{N_{\mathbf{k}}} \left[|\phi^0_{\mathbf{k}}\rangle - \sum_{m,\mathbf{R}} |\phi_{m,\mathbf{R}}\rangle \left\langle \phi_{m,\mathbf{R}} | \phi^0_{\mathbf{k}} \right\rangle \right] \ . \tag{A.8}$$

Dabei gilt für den Normierungsfaktor

$$N_{\mathbf{k}} = \sqrt{1 - N \sum_m \left| \left\langle \phi^0_{\mathbf{k}} | \phi_m \right\rangle \right|^2} \ . \tag{A.9}$$

Die verschiedenen Quantenpunktpositionen $\mathbf{R}$ liefern hier lediglich einen Phasenfaktor, der das Betragsquadrat nicht verändert, so dass die Summation über die Quantenpunktpositionen der N Quantenpunkte ausgeführt werden kann, wobei $\phi_m = \phi_{m,0}$. Mit Gl. (A.12) erhält man

$$N^2_{\mathbf{k}} = 1 - 4\pi \frac{n_{QD}}{\beta^2} \left\{ 1 + 2\frac{k^2}{\beta^2} \right\} e^{-\frac{k^2}{\beta^2}} \ , \tag{A.10}$$

wobei $n_{QD} = N/A$ die Dichte der Quantenpunkte auf der Benetzungsschicht ist. Eine detailliertere Darstellung dieses Schemas ist beispielsweise in Ref. [81, 82, 83] zu finden.

[1] orthogonalized plane waves

Überlapp-Integrale der ebenen Wellen

Zur Berechnung der OPW-Überlapp-Integrale werden die Skalarprodukte zwischen Quantenpunktzuständen und ebenen Wellen sowie die Überlapp-Integrale der ebenen Wellen benötigt. Für die Skalarprodukte zwischen den Quantenpunktzuständen erhält man mit (2.3) und (2.5)

$$\left\langle \phi^0_{\mathbf{k}} | \phi_\nu \right\rangle = \left\langle \phi^0_{\mathbf{k}} | \phi_m \right\rangle e^{i\mathbf{k}\mathbf{R}} \tag{A.11}$$

mit

$$\begin{aligned} \left\langle \phi^0_{\mathbf{k}} | \phi_0 \right\rangle =& \frac{2\sqrt{\pi}}{\sqrt{A}} \frac{1}{\beta} e^{-\frac{\mathbf{k}^2}{2\beta^2}} \ , \\ \left\langle \phi^0_{\mathbf{k}} | \phi_{\pm 1} \right\rangle =& \left\langle \phi^0_{\mathbf{k}} | \phi_0 \right\rangle \frac{-i\,|\mathbf{k}|}{\beta} e^{\pm i \Phi_{\mathbf{k}}} \ , \end{aligned} \tag{A.12}$$

wobei sich die übrigen Skalarprodukte durch komplexes Konjugieren ergeben.

Die Überlapp-Integrale der ebenen Wellen ergeben sich aus selbigen Gleichungen und lauten

$$\begin{aligned} \left\langle \phi_\nu | e^{i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}} | \phi^0_{\mathbf{k}} \right\rangle &= \left\langle \phi_m | e^{i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}} | \phi^0_{\mathbf{k}} \right\rangle e^{i\{\mathbf{k}+\mathbf{q}\}\mathbf{R}} \\ &= \left\langle \phi_m | \phi^0_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} \right\rangle e^{i\{\mathbf{k}+\mathbf{q}\}\mathbf{R}} \end{aligned} \tag{A.13}$$

mit

$$\begin{aligned} \left\langle \phi_0 | e^{i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}} | \phi^0_{\mathbf{k}} \right\rangle =& \frac{2\sqrt{\pi}}{\sqrt{A}} \frac{1}{\beta} e^{-\frac{\mathbf{k}+\mathbf{q}^2}{2\beta^2}} \ , \\ \left\langle \phi_{\pm 1} | e^{i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}} | \phi^0_{\mathbf{k}} \right\rangle =& \left\langle \phi_0 | e^{i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}} | \phi^0_{\mathbf{k}} \right\rangle i \frac{|\mathbf{k}+\mathbf{q}|}{\beta} e^{\mp i \Phi_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}} \end{aligned} \tag{A.14}$$

und

$$\left\langle \phi^0_{\mathbf{k}} | e^{i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}} | \phi^0_{\mathbf{k}'} \right\rangle = \delta\left(\mathbf{k} - \mathbf{k}' - \mathbf{q}\right) \ . \tag{A.15}$$

Überlapp-Integrale zwischen Quantenpunkten und OPW-Zuständen

Gemäß Gl. (A.8) gilt für die Überlapp-Integrale der Quantenpunktzustände mit den OPW-Zuständen

$$\begin{aligned} \left\langle \phi_\nu | e^{i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}} | \phi_k \right\rangle &= \left\langle \phi_m | e^{i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}} | \phi_k \right\rangle e^{i(\mathbf{k}+\mathbf{q})\mathbf{R}} \\ &= \frac{1}{N_k} \left\{ \left\langle \phi_m | e^{i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}} | \phi^0_k \right\rangle - \sum_{m'} \left\langle \phi_m | e^{i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}} | \phi_{m'} \right\rangle \left\langle \phi_{m'} | \phi^0_k \right\rangle \right\} e^{i(\mathbf{k}+\mathbf{q})\mathbf{R}} \ . \end{aligned} \tag{A.16}$$

Durch Einsetzen der Überlappintegrale (A.7) und der Skalarprodukte (A.12) erhält man

$$\left\langle \phi_0 | e^{i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}} | \phi_k \right\rangle = \frac{1}{N_k} \frac{2\sqrt{\pi}}{\sqrt{A}\beta} \left\{ e^{-\frac{(\mathbf{k}+\mathbf{q})^2}{2\beta^2}} - e^{-\frac{2\mathbf{k}^2+\mathbf{q}^2}{4\beta^2}} \left[1 - \frac{kq}{\beta^2} \cos\left(\Phi_q - \Phi_k\right) \right] \right\} \tag{A.17}$$

und

$$\begin{aligned}\left\langle \phi_{\pm 1} | e^{i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}} | \phi_k \right\rangle =& \frac{1}{N_k} \frac{2\sqrt{\pi}}{\sqrt{A}\beta} \left\{ \frac{|\mathbf{k}+\mathbf{q}|}{\beta} e^{-\frac{(\mathbf{k}+\mathbf{q})^2}{2\beta^2}} e^{\mp i \Phi_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}} + e^{-\frac{2\mathbf{k}^2+\mathbf{q}^2}{4\beta^2}} \right. \\ & \left. * \left[\frac{q}{2\beta} e^{\mp i \Phi_q} - \frac{k}{\beta} e^{\mp i \Phi_k} + \frac{q^2}{4\beta^2} \frac{k}{\beta} \left(e^{\mp i \Phi_k} + e^{\mp i (2\Phi_q + \Phi_k)} \right) \right] \right\} .\end{aligned} \tag{A.18}$$

Überlapp-Integrale der OPW-Zustände

Analog folgt aus der Definition der OPW-Zustände (A.8) für den Überlapp dieser

$$\begin{aligned}\left\langle \phi_{\mathbf{k}} | e^{i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}} | \phi_{\mathbf{k}'} \right\rangle = \frac{\delta\left(\mathbf{k}-\mathbf{q}-\mathbf{k}'\right)}{N_{\mathbf{k}} N_{\mathbf{k}'}} \Big\{ 1 &+ \sum_{m,m'} \left\langle \phi_k^0 | \phi_m \right\rangle \left\langle \phi_m | e^{i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}} | \phi_{m'} \right\rangle \left\langle \phi_{m'} | \phi_{k'}^0 \right\rangle \\ & - \sum_m \left| \left\langle \phi_k^0 | \phi_m \right\rangle \right|^2 - \sum_m \left| \left\langle \phi_{k'}^0 | \phi_m \right\rangle \right|^2 \Big\} ,\end{aligned} \tag{A.19}$$

was sich durch Einsetzen der Überlappintegrale (A.7) und der Skalarprodukte (A.12) in

$$\begin{aligned}\left\langle \phi_{\mathbf{k}} | e^{i\mathbf{q}_{||}\mathbf{r}_{||}} | \phi_{\mathbf{k}'} \right\rangle =& \frac{\delta\left(\mathbf{k}-\mathbf{q}-\mathbf{k}'\right)}{N_{\mathbf{k}} N_{\mathbf{k}'}} \left\{ 1 - 4\pi \frac{n_{QD}}{\beta^2} \left[e^{-\frac{k'^2}{\beta^2}} \left(1 + 2\frac{k'}{\beta} \right) + e^{-\frac{k^2}{\beta^2}} \left(1 + 2\frac{k}{\beta} \right) \right] \right. \\ & + 4\pi \frac{n_{QD}}{\beta^2} e^{-\frac{2k^2+2k'^2+q^2}{4\beta^2}} \left\{ 1 - \frac{q}{\beta} \left(k' \cos\left(\Phi_{k'} - \Phi_q\right) - k \cos\left(\Phi_k - \Phi_q\right) \right) \right. \\ & \left. \left. + 2\frac{kk'}{\beta^2} \left[\left(1 - \frac{q^2}{4\beta^2} \right) \cos\left(\Phi_k - \Phi_{k'}\right) - \frac{q^2}{4\beta^2} \cos\left(\Phi_k + \Phi_{k'} - 2\Phi_q\right) \right] \right\} \right\}\end{aligned} \tag{A.20}$$

umformen lässt.

B Tight-Binding Überlapp-Integrale

Bei der hier verwendeten Tight-Binding Rechnung wird eine diskrete Basis aus Wannier-Zuständen $|n\mathbf{R}\rangle$ verwendet, wobei n das Orbital und $\mathbf{R}$ den Ort der jeweiligen Einheitszelle des Kristallgitters beschreibt (siehe auch Kap. 2.3). Dementsprechend lassen sich die Eigenfunktionen

$$|\phi_\alpha\rangle = \sum_{n,\mathbf{R}} c_\alpha^{n,\mathbf{R}} |nR\rangle \tag{B.1}$$

und somit Überlappintegrale

$$\left\langle \phi_\alpha \left| e^{i\mathbf{qr}} \right| \phi_{\alpha'} \right\rangle = \sum_{n,\mathbf{R}} c_\alpha^{n,\mathbf{R},*} c_{\alpha'}^{n,\mathbf{R}} e^{i\mathbf{qR}} \tag{B.2}$$

als Summe schreiben und berechnen.

Für die Benetzungsschichtzustände wird wie bei dem Oszillatormodell ein Produktansatz (A.1) verwendet, wobei sich hier die z-Anteile der einzelnen Zustände unterscheiden. Zur Berechnung der Überlappintegrale mit Beteiligung von Quantenpunkt- und Benetzungsschichtzuständen werden letztere durch Bildung des Produktes der z-Anteile und der Anteile in der Ebene auf die gleiche Basis wie die Quantenpunktzustände gebracht, so dass Gl. (B.2) zur Berechnung verwendet werden kann. Sind nur Benetzungsschichtzustände beteiligt, werden analog zu Gl. (A.2) Formfaktoren genutzt, wobei zu beachten ist, dass sich die z-Anteile der Zustände und daher die Formfaktoren für verschiedene Zustände unterscheiden.

C Berechnung der Matrixelemente

Die Berechnung der Matrixelemente nach Gl. (A.2) kann für die InGaAs-Quantenpunktzustände direkt erfolgen. Zwar liegt eine $1/\mathbf{q}$-Singularität vor, doch ist diese über das $\mathbf{q}$-integral hebbar. Um nicht jeden Quantenpunkt einzeln betrachten zu müssen, wird die Summation über die Quantenpunkte in die Matrixelemente gezogen, die die Wirkung der Quantenpunkt- auf die Benetzungsschichtzustände beschreiben. Da angenommen wird, dass alle Quantenpunkte identisch sind, lässt sich die Summation als Multiplikation mit der Anzahl der Quantenpunkte schreiben. Für diese gilt $N = n_{QD}A$ mit n_{QD} Quantenpunktdichte und A Fläche der Benetzungsschicht, wobei sich A bei der Verrechnung mit der Normierung der Benetzungsschichtzustände aufhebt.

Ferner kommt es bei den quasikontinuierlichen Benetzungsschichtzuständen zu dem Problem, dass deren Anzahl nicht begrenzt ist. Dieses Problem lässt sich durch eine Näherung lösen. Geht man von einer winkelunabhängigen Dispersion und Besetzung aus, verfügen Benetzungsschichtzustände mit k-Werten innerhalb eines Betragsintervalls näherungsweise über gleiche Besetzungen und Energien. Dies erlaubt die Summation über diese aus den Differentialgleichungen direkt in die Matrixelemente zu ziehen. So erhält man beispielsweise ein Fock-artiges Matrixelemente

$$\widetilde{V}_{\alpha K \alpha K} = \sum_{\mathbf{k} \in K} V_{\alpha \mathbf{k} \alpha \mathbf{k}} \ , \tag{C.1}$$

das die Wechselwirkung eines Zustandes α mit den Benetzungsschichtzuständen im Bereich K mit $\mathbf{k} \in K$ g.d.w. $K - \Delta < |\mathbf{k}| < K + \Delta$ darstellt, wobei 2Δ die Breite des Betragsintervalls ist. Durch Umwandlung der Summation in eine Integration

$$\widetilde{V}_{\alpha K \alpha K} = \frac{A}{(2\pi)^2} \int_K d^2\mathbf{k} \, V_{\alpha \mathbf{k} \alpha \mathbf{k}} \ , \tag{C.2}$$

lässt sich die Menge an zu berechnenden Größen für die Benetzungsschicht auf eine numerisch beherrschbare Zahl reduzieren. Die Fläche der Benetzungsschicht A hebt sich bei der Verrechnung mit der Normierung der Benetzungsschichtzustände auf.

Die $1/\mathbf{q}$-Singularität wird bei den Matrixelementen zwischen verschiedenen Benetzungsschichtzuständen $\mathbf{k}$,$\mathbf{k}'$ aufgrund der δ-Relation (Impulserhaltung) in den Überlappintegralen zu einer $1/(\mathbf{k} - \mathbf{k}')$-Singularität. Bei den oben beschriebenen Matrixelementen (C.2) wird diese durch das $\mathbf{k}$-Integral gehoben.

Für die InGaN-Quantenpunktsysteme ist bei Beteiligung der Quantenpunktzustände Gl. (4.4) anzuwenden, da keine Zerlegung der Quantenpunktzustände in z-Anteil und dazu senkrechten Anteil möglich ist. Auch wenn dieses Materialsystem schon in der Nähe der Bandkante eine leichte richtungsabhängige Bandstruktur der Benetzungsschicht aufweist, wird hier obiges Schema zur Bildung von Matrixelementen, die Betragsintervalle beschreiben, als Näherung angewendet.

D Verwendete Parameter

Sofern nicht anders angegeben, wurden folgende Parameter für die Berechnungen verwendet.

Parameter für das InGaAs-Quantenpunktsystem		
LO-Phononenenergie	$\hbar\omega_{LO}$	36 meV
Fröhlich-Kopplungskonstante	α	0,06
effektive Elektronenmasse	m_e	0,067 m_0
effektive Lochmasse	m_h	0,150 m_0
Quantenpunktdichte	n_{QD}	10^{10}cm^{-2}
Höhe der Benetzungsschicht	L_{WL}	2,2 nm
freie Energie der s-Schalen Elektronen	ϵ_s^e	-2,2 $\hbar\omega_{LO}$
freie Energie der p-Schalen Elektronen	ϵ_p^e	-1,1 $\hbar\omega_{LO}$
freie Energie der s-Schalen Löcher	ϵ_s^h	-0,8 $\hbar\omega_{LO}$
freie Energie der p-Schalen Löcher	ϵ_p^h	-0,4 $\hbar\omega_{LO}$
Oszillatorparameter	β	0,1797 nm^{-1}
Dielektrizitätskonstante	$\epsilon(\infty)$	12

Parameter für das InGaN-Quantenpunktsystem		
LO-Phononenenergie	$\hbar\omega_{LO}$	90 meV
Fröhlich-Kopplungskonstante	α	0,5
Quantenpunktdichte	n_{QD}	10^{10}cm^{-2}
Dielektrizitätskonstante	$\epsilon(\infty)$	8,4

E Numerische Verfahren

Die Differentialgleichungen werden mittels eines Prädiktor-Korrektor-Verfahrens dritter Ordnung entsprechend Ref. [90] gelöst.

Die Integrationen werden abhängig vom Problem mittels Gauss-Chebyshev-Verfahrens sowie Trapez- oder Simpson-Regel berechnet. Diese etablierten Verfahren sind beispielsweise in Ref. [90, 91] dargestellt. Für die hochdimensionalen Integrationen der Coulomb-Streuung (SBA-Selbstenergie) wird eine Quasi-Monte Carlo Integration genutzt, die im Folgenden vorgestellt wird.

Quasi-Monte Carlo Integration

Der Aufwand für die Berechnung von mehrdimensionalen Integralen über ein festes Raster für jede Dimension nimmt exponentiell mit der Dimension zu. So stellen in dieser Arbeit insbesondere die achtdimensionalen Integrale zur Berechnung der Coulomb-Streuung einen großen numerischen Aufwand dar. Eine ansprechende Alternative zur Verwendung fester Raster stellen Monte Carlo Integrationen dar. Diese verwenden ein Set quasi zufälliger Punkte im zu integrierenden Raum, die anstelle des festen Rasters ausgewertet werden. Für hochdimensionale Integrale glatter Funktionen erhält man mit dieser Methode ein deutlich kleineren Fehler bei gleicher Anzahl auszuwertender Punkte bzw. bei gleichem Fehler des Integrals sind weniger Punkte und damit weniger numerischer Aufwand notwendig. Details und Untersuchungen sind in Ref. [73] zu finden.

Als quasi zufällige Punkte wird dabei eine Sobol-Sequenz verwendet. Bei diesem Verfahren werden quasi zufällige Punkte bestimmt, die unabhängig von ihrer Anzahl möglichst gleichmäßig verteilt sind, so dass es zu keinen Häufungen und damit Übergewichtungen von Teilen des zu integrierenden Raumes kommt. Diese Verteilung der auszuwertenden Punkte (Quasi-Monte Carlo Integration) gewährleistet gegenüber einer zufälligen Verteilung für glatte Funktionen mit steigender Anzahl der Punkte ein schnelleres Konvergieren des Integrals. Eine Implementierung zur Berechnung einer Sobol-Sequenz wird in Ref. [16] diskutiert.

Bei Anwendung dieses Verfahrens erhält man für das achtdimensionale Integral zur Berechnung der Coulomb-Streuung (durch Ausstreuung assistierter Einfang) bereits bei $4 \cdot 10^6$ ausgewerteten Punkten die gleiche Genauigkeit, die bei Anwendung eines gleichmäßigen Rasters erst bei etwa 10^{10} Punkten erreicht würde (nach Umformung in zwei sechsdimensionale Integrale). Dabei wurde zur Erzeugung der Sobol Sequenzen ein Programm von John Burkardt [17] verwendet.

Veröffentlichungen in Fachzeitschriften

1. Rabi oscillations in semiconductor quantum dots revisited: Influence of LO-phonon collisions,
   K. Schuh, J. Seebeck, M. Lorke und F. Jahnke,
   Appl. Phys. Lett. 94, 201108 (2009)

2. Rapid adiabatic passage in quantum dots: Influence of scattering and dephasing,
   K. Schuh, F. Jahnke und M. Lorke,
   Appl. Phys. Lett. 99, 011105 (2011)

3. Optical spectra of nitride quantum-dot systems: From tight-binding states to many-body effects,
   J. Seebeck, M. Lorke, S. Schulz, K. Schuh, P. Gartner und F. Jahnke,
   phys. stat. sol. (b) 248, 1871-1878 (2011)

4. Strong dipole coupling in nonpolar nitride quantum dots due to Coulomb effects,
   K. Schuh, S. Barthel, O. Marquardt,d T. Hickel, J. Neugebauer, G. Czycholl
   und F. Jahnke,
   Appl. Phys. Lett. 100, 092103 (2012)

Konferenzbeiträge

1. The Influence of Fröhlich-Coupling on Rabi-Oscillations in Semiconductor Quantum Dots,
   K. Schuh, J. Seebeck, M. Lorke, P. Gartner und F. Jahnke,
   DPG Frühjahrstagung 2009, Dresden

2. Theory for optical Properties of Nitrite-based Quantum Dot Systems,
   M. Lorke , J. Seebeck , K. Schuh , S. Schulz , P. Gartner , G. Czycholl und F. Jahnke,
   ICNS 8 (2009), Jeju, Süd Korea

3. Theory for optical Properties of Nitrite-based Quantum Dot Systems,
   M. Lorke , J. Seebeck , K. Schuh , S. Schulz , P. Gartner , G. Czycholl und F. Jahnke,
   DPG Frühjahrstagung 2010, Regensburg

4. Quantum-kinetic Discription of Interaction-induced Effects in Self-assembled Quantum-dot Systems,
   K. Schuh, J. Seebeck, M. Lorke, P. Gartner und F. Jahnke,
   NOEKS 2010, Paderborn

5. Influence of LO-phonon collisions on robust adiabatic passage in semiconductor quantum dots,
   K. Schuh, M. Lorke und F. Jahnke,
   DPG Frühjahrstagung 2011, Dresden

6. Nonclassical light and stimulated emission in the strong coupling regime for single-quantum dot lasers,
   C. Gies, K. Schuh, M. Florian und F. Jahnke,
   DPG Frühjahrstagung 2011, Dresden

7. The Single QD laser – From Weak To High Excitation,
   C. Gies, M. Florian, P. Gartner, E. Goldmann, A. Steinhoff, K. Schuh und F. Jahnke,
   FOPS 2011 at Lake Junaluska, North Carolina, USA

8. Strong dipole coupling in nonpolar nitride quantum dots due to Coulomb effects,
   K. Schuh, S. Barthel, O. Marquardt, T. Hickel, J. Neugebauer, G. Czycholl und F. Jahnke,
   DPG Frühjahrstagung 2012, Berlin

9. Tight binding model of strain-reducing layers in semiconductor quantum dots,
   E. Goldmann, S. Barthel, K. Schuh, G. Czycholl und F. Jahnke,
   DPG Frühjahrstagung 2012, Berlin

Literaturverzeichnis

[1] A. A. Abrikosov, L. P. Gorkov, and I. E. Dzyaloshinski. *Methods of Quantum Field Theory in Statistical Physics*. Dover, New York, 1963.

[2] N. Akopian, N. H. Lindner, E. Poem, Y. Berlatzky, J. Avron, D. Gershoni, B. D. Gerardot, and P. M. Petroff. Entangled photon pairs from semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 96:130501, 2006.

[3] S. Anders, C.S. Kim, B. Klein, M.W. Keller, R.P. Mirin, and A.G. Norman. Bimodal size distribution of self-assembled $In_xGa_{1-x}As$ quantum dots. *Phys. Rev. B*, **66**:125309, 2002.

[4] N. Baer. Optische Eigenschaften von Halbleiter-Quantenpunkten. Diplomarbeit, Universität Bremen, 2003.

[5] L. Bányai and H. Haug. Improved spectral functions for quantum kinetics. *Solid State Comm.*, **100**:303, 1996.

[6] L. Bányai, Q.T. Vu, B. Mieck, and H. Haug. Ultrafast quantum kinetics of time-dependent RPA-screened Coulomb scattering. *Phys. Rev. Lett.*, **81**:882, 1998.

[7] M. Bayer, P. Hawrylak, K. Hinzer, S. Fafard, M. Korkusinski, Z. R. Wasilewski, O. Stern, and A. Forchel. Coupling and entangling of quantum states in quantum dot molecules. *Science*, 291:451, 2001.

[8] G. Baym and L.P. Kadanoff. Conservation laws and correlation functions. *Phys. Rev.*, **124**:287, 1961.

[9] H. Benisty. Reduced electron-phonon relaxation rates in quantum-box systems: Theoretical analysis. *Phys. Rev. B*, **51**:13281, 1995.

[10] D. Bimberg. Vom hässlichen Entlein zum Schwan. *Physik Journal*, 11(5):25, 2012.

[11] D. Bimberg, M. Grundmann, and N. N. Ledenstov, editors. *Quantum Dot Heterostructures*. Wiley, New York, 1999.

[12] R. Binder and S. W. Koch. Nonequilibrium semiconductor dynamics. *Progress in Quant. Electron.*, **19**(4/5), 1995.

[13] R. Binder, H.S. Köhler, M. Bonitz, and N.H. Kwong. Green's function description of momentum-orientation relaxation of photoexcited electron plasmas in semiconductors. *Phys. Rev. B*, **55**:5110, 1997.

[14] R. Binder and M. Lindberg. Ultrafast adiabatic population transfer in p-doped semiconductor quantum wells. *Phys. Rev. Lett.*, 81(7):1477–1480, 1998.

[15] M. Braskén, M. Lindberg, D. Sundholm, and J. Olsen. Full configuration interaction calculations of electron-hole correlation effects in strain-induced quantum dots. *Phys. Rev. B*, 61:7652–7655, 2000.

[16] P. Bratley and B. L. Fox. Algorithm 659: Implementing Sobol's quasirandom sequence generator. *ACM Transactions on Mathematical Software*, 14, 1988.

[17] J. Burkardt. Sobol dataset. `people.sc.fsu.edu/~jburkardt/f_src/sobol_dataset/sobol_dataset.html`.

[18] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloe. *Quantum Mechanics: Volume 1*. Wiley, New York, 1991.

[19] G. Czycholl. *Theoretische Festkörperphysik*. Springer Verlag, Berlin, 2008.

[20] M.-R. Dachner, E. Malic, M. Richter, A. Carmele, J. Kabuss, A. Wilms, J.-E. Kim, G. Hartmann, J. Wolters, U. Bandelow, and A. Knorr. Theory of carrier and photon dynamics in quantum dot light emitters. *phys. stat. sol. (b)*, 247(4):809–828, 2010.

[21] P. Danielewicz. Quantum theory of nonequilibrium processes. *Ann. Phys.*, **152**:239, 1984.

[22] P. Danielewicz. Quantum theory of nonequilibrium processes - II. Application to nuclear collisions. *Ann. Phys.*, **152**:305, 1984.

[23] P. A. M. Dirac. The quantum theory of the emission and absorption of radiation. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A*, 114(767):243–265, 1927.

[24] E. Fermi. *Nuclear Physics*. University of Chicago Press, 1950.

[25] A. L. Fetter and J. D. Walecka. *Quantum Theory of Many-Particle Systems*. Dover Publications, Mineola, New York, 2. edition, 2003.

[26] J. Förstner, C. Weber, J. Danckwerts, and A. Knorr. Phonon-induced damping of Rabi oscillations in semiconductor quantum dots. *phys. stat. sol. (b)*, **238**:419, 2003.

[27] S. Founta, F. Rol, E. Bellet-Amalric, J. Bleuse, B. Daudin, B. Gayral, H. Mariette, and C. Moisson. Optical properties of GaN quantum dots grown on nonpolar (11-20) SiC by molecular-beam epitaxy. *Appl. Phys. Lett.*, 86(17):171901, 2005.

[28] A. Franceschetti, H. Fu, L. W. Wang, and A. Zunger. Many-body pseudopotential theory of excitons in InP and CdSe quantum dots. *Phys. Rev. B*, 60:1819–1829, 1999.

[29] H. Fröhlich. Electrons in lattice fields. *Adv. Phys.*, **3**:325, 1954.

[30] P. Gartner, L. Bányai, and H. Haug. Two-time electron-LO-phonon quantum kinetics and the generalized Kadanoff-Baym approximation. *Phys. Rev. B*, **60**:14234, 1999.

[31] M. Gell-Mann and F. Low. Bound states in quantum field theory. *Phys. Rev.*, **84**:350–354, 1951.

[32] H. Haug. *Statistische Physik*. Springer, 2006.

[33] H. Haug and A.-P. Jauho. *Quantum Kinetics in Transport & Optics of Semiconductors*. Springer-Verlag, Berlin, 1. edition, 1996.

[34] H. Haug and S.W. Koch. *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors*. World Scientific Publ., Singapore, 4. edition, 2004.

[35] K. Henneberger. Resonant laser excitation and electron-hole kinetics of a semiconductor: I. Nonequilibrium Green's function treatment and fundamental equations. *Physica A*, **150**:419, 1988.

[36] K. Henneberger and H. Haug. Nonlinear optics and transport in laser-excited semiconductors. *Phys. Rev. B*, **38**(14):9759, 1988.

[37] K. Henneberger and K.H. Kühn. Resonant laser excitation and electron-hole kinetics of a semiconductor: II. Nonlinear particle transport and field propagation. *Physica A*, **150**:439, 1988.

[38] K. Henneberger, G. Manzke, V. May, and R. Zimmermann. Nonequilibrium Green's functions and kinetic equations for highly excited semiconductors: II. Application to the study of nonlinear optical and transport properties of the many-exciton system. *Physica A*, **138**:557, 1986.

[39] K. Henneberger and V. May. Nonequilibrium Green's functions and kinetic equations for highly excited semiconductors: I. General considerations. *Physica A*, **138**:537, 1986.

[40] I. V. Hertel, C.-P. Schulz, and C.-P. Schulz. Die optischen Bloch-Gleichungen. In *Atome, Moleküle und optische Physik 2*, Springer-Lehrbuch. Springer Berlin Heidelberg, 2010.

[41] U. Hohenester, J. Fabian, and F. Troiani. Adiabatic passage schemes in coupled semiconductor nanostructures. *Optics Communications*, 264:426–434, 2006.

[42] U. Hohenester, G. Pfanner, and M. Seliger. Phonon-assisted decoherence in the production of polarization-entangled photons in a single semiconductor quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, 99:047402, 2007.

[43] Y. Z. Hu, M. Lindberg, and S. W. Koch. Theory of optically excited intrinsic semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. B*, 42:1713–1723, 1990.

[44] T. Inoshita and H. Sakaki. Density of states and phonon-induced relaxation of electrons in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. B*, **56**:R4355, 1997.

[45] H. Ju, S. Zhang, D. Lenstra, H. de Waardt, E. Tangdiongga, G. Khoe, and H. Dorren. SOA-based all-optical switch with subpicosecond full recovery. *Opt. Express*, 13(3):942–947, 2005.

[46] L. P. Kadanoff and P. C. Martin. Theory of many-particle systems. II. Superconductivity. *Phys. Rev.*, 124:670, 1961.

[47] S.Y. Karpov. Suppression of phase separation in InGaN due to elastic strain. *MRS Internet Journal of Nitride Semiconductor Research*, 3(16), 1998.

[48] L.V. Keldysh. Diagram technique for nonequilibrium processes. *Sov.Phys. JETP*, **20**:1018, 1965.

[49] C. Kittel. *Einführung in die Festkörperphysik*. Oldenbourg Verlag, 2005.

[50] A. Kobayashi, O.F. Sankey, S.M. Volz, and J.D. Dow. Semiempirical tight-binding band structures of wurtzite semiconductors: AlN, CdS, CdSe, ZnS, and ZnO. *Phys. Rev. B*, **28**:935, 1983.

[51] W. D. Kraeft, D. Kremp, W. Ebeling, and G. Röpke. *Quantum Statistics of Charged Particle Systems*. Akademie-Verlag, Berlin, 1986.

[52] D. Kremp, M. Schlanges, and W.-D. Kraeft. *Quantum Statistics of Nonideal Plasmas*. Springer-Verlag, Berlin, 2004.

[53] B. Krummheuer, V.M. Axt, and T. Kuhn. Theory of pure dephasing and the resulting absorption lineshape in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. B*, **65**:195313, 2002.

[54] L. D. Landau and E. M. Lifschitz. *Lehrbuch der Theoretischen Physik - Band X: Physikalische Kinetik*. Akademie-Verlag, Berlin, 1. edition, 1986.

[55] D. C. Langreth and J. W. Wilkins. Theory of spin resonance in dilute magnetic alloys. *Phys. Rev. B*, 6:3189–3227, 1972.

[56] P. Lipavský, V. Špička, and B. Velický. Generalized Kadanoff-Baym ansatz for deriving quantum transport equations. *Phys. Rev. B*, **34**:6933, 1986.

[57] J. P. Loehr. Improved effective-bond-orbital model for superlattices. *Phys. Rev. B*, 50(8):5429–5434, 1994.

[58] M. Lorke. *Optical gain and laser properties of semiconductor quantum-dot systems*. PhD thesis, Universität Bremen, 2008.

[59] M. Lorke, W.W. Chow, T. R. Nielsen, J. Seebeck, P. Gartner, and F. Jahnke. Anomaly in the excitation dependence of optical gain in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. B*, 74:035334, 2006.

[60] M. Lorke, F. Jahnke, and W.W. Chow. Excitation dependence of gain and carrier induced refractive index changes in quantum dots. *Appl. Phys. Lett.*, **90**:51112, 2007.

[61] G. D. Mahan. *Many-particle physics*. Plenum Press, New York, 1981.

[62] O. Marquardt, S. Boeck, C. Freysoldt, T. Hickel, and J. Neugebauer. Plane-wave implementation of the real-space formalism and continuum elasticity theory. *Computer Physics Communications*, 181(4):765 – 771, 2010.

[63] O. Marquardt, T. Hickel, and J. Neugebauer. Polarization-induced charge carrier separation in polar and nonpolar grown GaN quantum dots. *Journal of Applied Physics*, 106(8):083707, 2009.

[64] O. Marquardt, D. Mourad, S. Schulz, T. Hickel, G. Czycholl, and J. Neugebauer. Comparison of atomistic and continuum theoretical approaches to determine electronic properties of GaN/AlN quantum dots. *Phys. Rev. B*, 78:235302, 2008.

[65] P.C. Martin and J. Schwinger. Theory of many-particle systems. *Phys. Rev.*, **115**:1342, 1959.

[66] Y. Masumoto and T. Takagahara, editors. *Semiconductor Quantum Dots*. Springer-Verlag, Berlin, 1. edition, 2002.

[67] K. Matsuda, K. Ikeda, T. Saiki, H. Saito, and K. Nishi. Carrier-carrier interaction in single $In_{0.5}Ga_{0.5}As$ quantum dots at room temperature investigated by near-field scanning optical microscope. *Appl. Phys. Lett.*, **83**:2250, 2003.

[68] C. Meissner, S. Ploch, M. Leyer, M. Pristovsek, and M. Kneissl. Indium nitride quantum dot growth modes in metalorganic vapour phase epitaxy. *Journal of Crystal Growth*, 310(23):4959 – 4962, 2008.

[69] J. S. Melinger, Suketu R. Gandhi, A. Hariharan, J. X. Tull, and W. S. Warren. Generation of narrowband inversion with broadband laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 68(13):2000–2003, 1992.

[70] P. Meystre and M. Sargent III. *Elements of Quantum Optics*. Springer, New York, 2. edition, 1991.

[71] P. Michler. *Single Quantum Dots - Fundamentals, Applications and New Concepts*. Springer-Verlag, Berlin, 2003.

[72] D.A.B. Miller, D.S. Chemla, T.C. Damen, A.C. Gossard, W. Wiegmann, T.H. Wood, and C.A. Burrus. Band-edge electroabsorption in quantum well structures - The quantum-confined Stark-effect. *Phys. Rev. Lett.*, 53(22):2173–2176, 1984.

[73] W. J. Morokoff, R. E. Caflisch, and O. Numbers. Quasi-monte carlo integration. *Journal of Computational Physics*, 122:218–230, 1995.

[74] D. Mourad, S. Barthel, and G. Czycholl. Multiband effective bond-orbital model for nitride semiconductors with wurtzite structure. *Phys. Rev. B*, 81(16):165316, 2010.

[75] E.A. Muljarov, T. Takagahara, and R. Zimmermann. Phonon-induced exciton dephasing in quantum dot molecules. *Phys. Rev. Lett.*, **95**:177405, 2005.

[76] E.A. Muljarov and R. Zimmermann. Dephasing in quantum dots: Quadratic coupling to acoustic phonons. *Phys. Rev. Lett.*, **93**:237401, 2004.

[77] S. Nakamura. The roles of structural imperfections in InGaN-based blue light-emitting diodes and laser diodes. *Science*, 281(5379):956–961, 1998.

[78] S. Nakamura, T. Mukai, and M. Senoh. Candela-class high-brightness InGaN/AlGaN double-heterostructure blue-light-emitting diodes. *Appl. Phys. Lett.*, 64:1687, 1994.

[79] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku, and Y. Sugimoto. InGaN-based multi-quantum-well-structure laser diodes. *Japanese Journal of Applied Physics*, 35:L74, 1996.

[80] M. L. Nielsen, J. Mørk, R. Suzuki, J. Sakaguchi, and Y. Ueno. Experimental and theoretical investigation of the impact of ultra-fast carrier dynamics on high-speed SOA-based all-optical switches. *Opt. Express*, 14(1):331–347, 2006.

[81] T.R. Nielsen. *Carrier-carrier and carrier-phonon scattering in self-assembled quantum dots*. PhD thesis, Universitt Bremen, 2005.

[82] T.R. Nielsen, P. Gartner, and F. Jahnke. Many-body theory of carrier capture and relaxation in semiconductor quantum-dot lasers. *Phys. Rev. B*, **69**:235314, 2004.

[83] T.R. Nielsen, P. Gartner, M. Lorke, J. Seebeck, and F. Jahnke. Coulomb scattering in nitride based self-assembled quantum-dot systems. *Phys. Rev. B*, **72**:235311, 2005.

[84] W. Nolting. *Grundkurs Theoretische Physik 7, Viel-Teilchen-Theorie*. Springer-Verlag, Berlin, 5 edition, 2002.

[85] S. Osborne, P. Blood, P. Smowton, J. Lutti, Y.C. Xin, A. Stintz, D. Huffaker, and L.F. Lester. State filling in InAs quantum-dot laser structures. *IEEE J. Quant. Electron.*, 40:1639, 2004.

[86] M. Cardona P. Y. Yu. *Fundamentals of semiconductors: physics and materials properties*. Springer, 2005.

[87] J. Paldus. *J. Chem. Phys.*, 61:5321, 1974.

[88] H.J. Polland, L. Schultheis, J. Kuhl, E.O. Gobel, and C.W. Tu. Lifetime enhancement of two-dimensional excitons by the quantum-confined Stark-effect. *Phys. Rev. Lett.*, 55(23):2610–2613, 1985.

[89] R. Prasanth, J. E. M. Haverkort, A. Deepthy, E. W. Bogaart, J. J. G. M. van der Tol, E. A. Patent, G. Zhao, Q. Gong, P. J. van Veldhoven, R. Nötzel, and J. H. Wolter. All-optical switching due to state filling in quantum dots. *Appl. Phys. Lett.*, 84(20):4059–4061, 2004.

[90] W.H. Press, S.A. Teukolsky, and W.T. Vetterling. *Numerical recipes in FORTRAN 77*. University Press, Cambridge, 2. edition, 1992.

[91] W.H. Press, S.A. Teukolsky, W.T. Vetterling, and B.P. Flannery. *Numerical recipes in FORTRAN 90*. University Press, Cambridge, 2. edition, 1996.

[92] N. J. M. Horing R. Enderlein. *Fundamentals of semiconductor physics and devices*. World Scientific, 1997.

[93] H. I. Ralph, G. Simpson, and R. J. Elliott. Central-cell corrections to the theory of ionized-impurity scattering of electrons in silicon. *Phys. Rev. B*, 11:2948–2956, 1975.

[94] J. Rammer and H. Smith. Quantum field-theoretical methods in transport theory of metals. *Rev. Mod. Phys.*, **58**:323, 1986.

[95] A. J. Ramsay, Achanta Venu Gopal, E. M. Gauger, A. Nazir, B. W. Lovett, A. M. Fox, and M. S. Skolnick. Damping of exciton Rabi rotations by acoustic phonons in optically excited InGaAs/GaAs quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 104(1):017402, 2010.

[96] J. P. Reithmaier, G. Sek, A. Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L.V. Keldysh, V. D. Kulakovskii, T. L. Reinecke, and A. Forchel. Strong coupling in a single quantum dot-semiconductor microcavity system. *Nature*, **432**:197, 2004.

[97] A. Rosenauer, T. Mehrtens, K. Müller, K. Gries, M. Schowalter, P. V. Satyam, S. Bley, C. Tessarek, D. Hommel, K. Sebald, M. Seyfried, J. Gutowski, A. Avramescu, K. Engl, and S. Lutgen. Composition mapping in InGaN by scanning transmission electron microscopy. *Ultramicroscopy*, 111(8):1316 – 1327, 2011.

[98] S. Sauvage and P. Boucaud. Long polaron lifetime in InAs/GaAs self-assembled QDs. *Physical Review Letters*, 88(17):177402, 2002.

[99] W. Schäfer and M. Wegener. *Semiconductor Optics and Transport Phenomena*. Springer-Verlag, Berlin, 1. edition, 2002.

[100] A. Schliwa, M. Winkelnkemper, and D. Bimberg. Few-particle energies versus geometry and composition of $In_xGa_{1-x}As$/GaAs self-organized quantum dots. *Phys. Rev. B*, 79:075443, 2009.

[101] E. R. Schmidgall, P. R. Eastham, and R. T. Phillips. Population inversion in quantum dot ensembles via adiabatic rapid passage. *Phys. Rev. B*, 81(19):195306, 2010.

[102] K. Schuh. Einfluss von Polaron- und Memory-Effekten auf die Elektron-Phonon-Streuung in Halbleitern. Studienarbeit, Universität Bremen, 2007.

[103] K. Schuh. Polaronen in Halbleiter-Quantenpunkten. Diplomarbeit, Universität Bremen, 2008.

[104] K. Schuh, S. Barthel, O. Marquardt, T. Hickel, J. Neugebauer, G. Czycholl, and F. Jahnke. Strong dipole coupling in nonpolar nitride quantum dots due to Coulomb effects. *Appl. Phys. Lett.*, 100(9):092103, 2012.

[105] K. Schuh, F. Jahnke, and M. Lorke. Rapid adiabatic passage in quantum dots: Influence of scattering and dephasing. *Appl. Phys. Lett.*, 99(1):011105, 2011.

[106] K. Schuh, J. Seebeck, M. Lorke, and F. Jahnke. Rabi oscillations in semiconductorquantum dots revisited: Influence of LO-phonon collisions. *Appl. Phys. Lett.*, 94:201108, 2009.

[107] S. Schulz, A. Berube, and E. P. O'Reilly. Polarization fields in nitride-based quantum dots grown on nonpolar substrates. *Physical Review B*, 79(8):081401, 2009.

[108] S. Schulz, D. Mourad, and G. Czycholl. Multiband description of the optical properties of zincblende nitride quantum dots. *Phys. Rev. B*, 80:165405, 2009.

[109] S. Schulz and E. P. O'Reilly. Built-in fields in non-polar $In_xGa_{1-x}N$ quantum dots. *phys. stat. sol. (c)*, 7(1):80–83, 2010.

[110] S. Schulz, S. Schumacher, and G. Czycholl. Tight-binding model for semiconductor quantum dots with a wurtzite crystal structure: From one-particle properties to Coulomb correlations and optical spectra. *Phys. Rev. B*, **73**:245327, 2006.

[111] J. Schwinger. Brownian motion of a quantum oscillator. *J. Math. Phys.*, **2**:407, 1961.

[112] K. Sebald, J. Kalden, H. Lohmeyer, and J. Gutowski. Optical properties of single InGaN quantum dots and their devices. *phys. stat. sol. (b)*, 248(8):1777–1786, 2011.

[113] J. Seebeck. Quantenkinetische Beschreibung von Polaronen in Halbleiter-Quantenpunkten. Diplomarbeit, Universität Bremen, 2004.

[114] J. Seebeck. *Carrier-Phonon Interaction in Semiconductor Quantum Dots*. PhD thesis, Universität Bremen, 2009.

[115] J. Seebeck, M. Lorke, S. Schulz, K. Schuh, P. Gartner, and F. Jahnke. Optical spectra of nitride quantum-dot systems: From tight-binding states to many-body effects. *phys. stat. sol. (b)*, 248(8):1871, 2011.

[116] J. Seebeck, T.R. Nielsen, P. Gartner, and F. Jahnke. Polarons in semiconductor quantum dots and their role in the quantum kinetics of carrier relaxation. *Phys. Rev. B*, **71**:125327, 2005.

[117] J. Shah. *Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures*. Springer-Verlag, Berlin, 1999.

[118] C. D. Sherrill. CI. `vergil.chemistry.gatech.edu/notes/ci/ci.pdf`, 1995.

[119] C.-M. Simon, T. Belhadj, B. Chatel, T. Amand, P. Renucci, A. Lemaitre, O. Krebs, P. A. Dalgarno, R. J. Warburton, X. Marie, and B. Urbaszek. Robust quantum dot state preparation via adiabatic passage with frequency-swept optical pulses. *arXiv*, 1007.2808v1, 2010.

[120] J. C. Slater and G. F. Koster. Simplified LCAO method for the periodic potential problem. *Phys. Rev.*, 94:1498–1524, 1954.

[121] R.M. Stevenson, R.J. Young, P. Atkinson, K. Cooper, D.A. Ritchie, and A.J. Shields. A semiconductor source of triggered entangled photon pairs. *Nature*, 439:179, 2006.

[122] C. Tessarek, S. Figge, T. Aschenbrenner, S. Bley, A. Rosenauer, M. Seyfried, J. Kalden, K. Sebald, J. Gutowski, and D. Hommel. Strong phase separation of strained $In_xGa_{1-x}N$ layers due to spinodal and binodal decomposition: Formation of stable quantum dots. *Phys. Rev. B*, 83:115316, 2011.

[123] A. Vagov, M.D. Croitoru, V.M. Axt, and T. Kuhn F.M. Peeters. High pulse area undamping of Rabi oscillations in quantum dots coupled to phonons. *phys. stat. sol. (b)*, **243**:2233, 2006.

[124] R. van Leeuwen. First-principles approach to the electron-phonon interaction. *Phys. Rev. B*, **69**:115110, 2004.

[125] I. Vurgaftman and J. R. Meyer. Band parameters for nitrogen-containing semiconductors. *J. Appl. Phys.*, 94(6):3675–3696, 2003.

[126] S. Wallentowitz W. Vogel, D.-G. Welsch. *Quantum Optics: An Introduction*. Wiley-VCH, Berlin, 2001.

[127] L.-W. Wang and A. Zunger. Solving Schrödinger's equation around a desired energy: Application to silicon quantum dots. *J. Chem. Phys.*, 100(3):2394–2397, 1994.

[128] Q. Q. Wang, A. Muller, P. Bianucci, E. Rossi, Q. K. Xue, T. Takagahara, C. Piermarocchi, A. H. MacDonald, and C. K. Shih. Decoherence processes during optical manipulation of excitonic qubits in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. B*, 72:035306, 2005.

[129] X. Wang, X. X. Liang, and K. Chang. Effect of electron-phonon coupling on the quantum-confined Stark effect. *Solid State Communications*, 65(1):83 – 85, 1988.

[130] G.W. Wen, J.Y. Lin, H.X. Jiang, and Z. Chen. Quantum-confined Stark effects in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. B*, 52(8):5913–5922, 1995.

[131] C. Wetzel, M. Zhu, J. Senawiratne, T. Detchprohm, P.D. Persans, L. Liu, E.A. Preble, and D. Hanser. Light-emitting diode development on polar and non-polar GaN substrates. *Journal of Crystal Growth*, 310:3987, 2008.

[132] J.-W. Wu and A.V. Nurmikko. The role of the electron-hole Coulomb interaction in quantum confined Stark effect. *Superlattices and Microstructures*, 4(1):81 – 85, 1988.

[133] Q. Yan, P. Rinke, M. Winkelnkemper, A. Qteish, D. Bimberg, M. Scheffler, and C. G. Van de Walle. Band parameters and strain effects in ZnO and group-III nitrides. *Semiconductor Science and Technology*, 26(1):014037, 2011.

[134] X. Yang, M. Arita, S. Kako, and Y. Arakawa. Formation of m-plane InGaN/GaN quantum dots using strain engineering of AlGaN/AlN interlayers. *Appl. Phys. Lett.*, 99(6):061914, 2011.

[135] T. Yoshie, A. Scherer, J. Hendrickson, G. Khitrova, H. M. Gibbs, G. Rupper, C. Ell, O. B. Shchekin, and D. G. Deppe. Vacuum Rabi splitting with a single quantum dot in a photonic crystal nanocavity. *Nature*, **432**:200, 2004.

Danksagung

Zuerst danke ich Prof. Dr. Frank Jahnke für die ausgezeichnete Betreuung und Unterstützung über die letzten Jahre seit meiner Studienarbeit. Für viele ergiebige und hilfreiche Diskussionen gilt mein Dank Paul Gartner. Insbesondere danke ich Stefan Barthel für die hervorragende Zusammenarbeit bezüglich Kap. 9 und die Bereitstellung seiner Tight-Binding-Ergebnisse. Des Weiteren danke ich Michael Lorke und Jan Seebeck für die exzellente Zusammenarbeit bezüglich Kap. 8. Andreas Beuthner und Klaus Bowe danke ich für die technische Unterstützung.

Prof. Dr. Gerd Czycholl danke ich für die Übernahme des Zweitgutachtens. Auch danke ich Dr. Kathrin Sebald sowie Prof. Dr. Tim Wehling dafür, dass sie sich als Prüfer für meine Verteidigung zur Verfügung stellen.

Für das Korrekturlesen der Arbeit gilt mein Dank Stefan Barthel, Alexander Steinhoff, Mathias Florian, Michael Lorke, Elias Goldmann sowie Christopher Gies. Bei allen zuvor Genannten sowie Sandra Ritter, Julia Unterhinninghofen und Jan Wiersig möchte ich mich für die gute Arbeitsatmosphäre bedanken.

Zum Abschluss danke ich meiner Familie und meinen Freunden für ihre Unterstützung.