

Zeitabhängige Schrödingergleichung für wechselwirkende Elektronensysteme

Diplomarbeit

von

Stefan Schumacher

angefertigt am

Institut für Theoretische Physik
der Universität Bremen

18. Dezember 2001

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	1
1 Theoretische Grundlagen	5
1.1 Zeitabhängige Schrödingergleichung	5
1.2 Explizite numerische Integration der zeitabhängigen Schrödingergleichung	7
1.3 Zweiteilchen-Zustände	11
1.4 Diskretisierung des Zweiteilchen-Hamiltonoperators in Ortsdarstellung	13
1.5 Hubbard-Modell	19
1.5.1 Grundlagen	19
1.5.2 Hamiltonmatrix für die numerischen Berechnungen	21
1.5.3 Analytische Lösung für zwei Elektronen auf 1D-Hubbard-Gitter	22
2 Zeitentwicklung von Zweielektronen-Systemen	27
2.1 Grundlagen	27
2.2 Kontrolle der numerischen Implementierung	28
2.3 Zeitentwicklung ein- und zweidimensionaler Zweielektronen-Systeme	33
2.3.1 Coulomb-Streuung von zwei Elektronen im Ortsraum	33
2.3.2 Zeitentwicklung von Zweielektronen-Zuständen im Hubbard-Modell	39
3 Exziton-Polaritonen	43
3.1 Motivation zur Betrachtung von Exziton-Polaritonen	43
3.2 Exziton-Polaritonen im Volumenkristall	45
3.2.1 Licht-Materie-Wechselwirkung in Kristallen	45
3.2.2 Die Exziton-Gleichung im Volumenkristall	52
3.2.3 Das Exziton-Polariton im Volumenkristall	56
3.3 Exziton-Polaritonen in dünnen Halbleiterschichten	63
3.3.1 Pekars ABCs	64
3.3.2 Mikroskopische Theorie	69
3.3.3 Numerische Umsetzung	72
3.3.4 Mikroskopische Theorie vs. Pekars ABCs	74
3.3.5 Gültigkeit der Dead-layer-Approximation	79
3.3.6 Dead-layer-Dicke in Abhängigkeit von μ^*/M^*	82
3.3.7 Eigenwertproblem des Exzitons in einer Halbleiterschicht	86
4 Rekapitulation und Ausblick	89

Anhang	91
A Allgemeines	91
A.1 Verwendete Einheiten	91
A.2 Coulomb-Matrixelemente in Kugel- und Zylinderkoordinaten	91
A.3 Parameter zu den Abbildungen	93
B Anhang zur Numerik	94
B.1 Allgemeines zu verwendeten numerischen Methoden	94
B.2 Diskretisierung der 1D-Maxwell-Gleichungen	94
B.3 Numerische Hebung der Singularität im Coulomb-Integral	99
Literatur	101

Einleitung

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der zeitlichen Dynamik in wechselwirkenden Elektronensystemen. Dafür wird die zeitabhängige Schrödingergleichung für unterschiedlich komplexe Beispielsysteme gelöst, wobei die numerischen Auswertungen zu effektiven Zweiteilchen-Problemen erfolgen. Für solche Systeme ist das explizite Lösen der zeitabhängigen Schrödingergleichung und das Verfolgen der zeitlichen Entwicklung der Zweiteilchen-Wellenfunktionen noch mit akzeptablem Aufwand möglich. Außerdem stellt ein System aus zwei wechselwirkenden Teilchen das kleinste nicht trivial lösbare „Vielteilchen“-System dar. Besonders verlockend erscheint hierbei die noch recht gute Überschaubarkeit der Effekte, die insbesondere durch die Wechselwirkung der Teilchen untereinander herbeigeführt werden. Zumindest innerhalb der numerischen Berechnungen lässt sich an diesen „kleinen“ Systemen die Zeitentwicklung „mit“ und „ohne“ Wechselwirkung gut verfolgen. Die Lösung der zeitabhängigen Zweiteilchen-Schrödingergleichung wird in dieser Arbeit sowohl für ein- und zweidimensionale Systeme im Ortsraum durchgeführt, wie auch im Rahmen eines ein- und zweidimensionalen Hubbard-Modells. Für das Zweiteilchen-Problem im eindimensionalen Hubbard-Modell kann die numerisch berechnete Zeitentwicklung der Zustände anhand eines Beispiels sogar mit der analytisch gefundenen Lösung verglichen werden. Eine grundlegende Motivation zur Betrachtung des Hubbard-Modells wird im nächsten Abschnitt der Einleitung folgen. Die zweidimensionalen Zweiteilchen-Systeme werden aufgrund des hohen numerischen Aufwandes nur für recht kleine Systeme betrachtet werden, es kann aber anhand von 3D-Grafiken, in denen die Teilchendichte dargestellt wird, der grundlegende Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung auf die zeitliche Entwicklung eines solchen Systems systematisch beobachtet werden.

Der zweite Teil dieser Arbeit, ab Kapitel 3, wird sich mit einem System beschäftigen, das sich physikalisch ebenfalls durch ein effektives Zweiteilchen-System beschreiben lässt, und von großem Interesse ist, um experimentelle Beobachtungen zu verstehen und zu erklären. Hier werden die zu Beginn dieser Arbeit gewonnenen Erkenntnisse bezüglich der numerischen Integration der zeitabhängigen Schrödingergleichung auf die inhomogene Exziton-Gleichung angewandt. Für genügend tiefe Temperaturen können die optischen Eigenschaften von Halbleiterkristallen unterhalb und im Bereich der Bandlückenenergie in einem effektiven Einteilchen-Bild nicht ausreichend verstanden werden. Die explizite Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung der Elektronen untereinander führt jedoch im Rahmen der Hartree-Fock-Näherung auf eine Beschreibung der optischen Eigenschaften in einem effektiven Zweiteilchen-Bild, dem sogenannten Exzitonen-Bild, das die experimentellen Beobachtungen zumindest im optisch linearen Regime recht zufrieden stellend beschreiben kann. Anhand dieses effektiven Zweiteilchen-Systems, bestehend aus einem Elektron-Loch-Paar, lassen sich die diskreten gebundenen Zustände unterhalb der Bandkante erklären, sowie auch das Coulomb-Enhancement der Absorption in die Kontinuumszustände oberhalb der Bandkante, siehe z.B. [Yu/Cardona, 1999]. Die lineare Antwort der Exzitonen auf ein einfallendes elektromagnetisches Feld lässt sich im Volumenkristall analytisch berechnen. Die Zustände des effektiven Zweiteilchen-Systems aus Elektron und Loch entsprechen gerade Wasserstoff-Zuständen mit effektiven Parametern.

In räumlich begrenzten Halbleiterschichten sind jedoch experimentell zusätzliche Peaks in optischen Spektren beobachtet worden, die sich nicht durch Zustände der Exzitonen im Volumenkristall erklären lassen, siehe dazu z.B. [Tuffigo et al., 1988]. Wenn man die räumliche Beweglichkeit der Exzitonen auf die Größenordnung von einigen Exziton-Bohrradien einschränkt, verändern sich die optischen Eigenschaften, weil die Exziton-Zustände dann aufgrund der veränderten Randbedingungen nicht mehr wasserstoffartig sind.

Deshalb wird in dieser Arbeit das optische Verhalten solcher Systeme auf mikroskopischer Ebene berechnet. Aufgrund des hohen numerischen Aufwands des dafür notwendigen Verfahrens sind in den letzten Jahrzehnten verschiedene Ansätze entwickelt worden, um ein System mit Exzitonen in einem begrenzten Halbleiter auf makroskopischer Ebene mit phänomenologischen Ansätzen näherungsweise zu beschreiben. Eine detailliertere Einführung dazu folgt im dritten Abschnitt dieser Einleitung. Zunächst folgt nun aber noch eine kurze Motivation für die Betrachtung des Hubbard-Modells.

EINFÜHRUNG INS HUBBARD-MODELL

Das Hubbard-Modell ist ein in der theoretischen Festkörperphysik wohl bekanntes Modell zur Beschreibung der möglichen Zustände eines Elektronensystems auf einem Gitter von Ionenrümpfen im Festkörper. Ausgangspunkt ist dazu die Beschreibung des Systems in einer Einteilchenbasis aus gut an den Gitterplätzen lokalisierten Zuständen im Ortsraum, den sogenannten Wannier-Zuständen. Die Modellbildung besteht darin, nur eine gitterplatzdiagonale Wechselwirkung anzunehmen, und es wird ausschließlich ein „Hopping“ der Elektronen auf die direkt benachbarten Gitterplätze zugelassen. Damit ist das Modell in dieser Form wohl das einfachste zur Beschreibung wechselwirkender Elektronen im Festkörper. Obwohl es seit einigen Jahrzehnten intensiv untersucht worden ist, existiert bis heute keine vollständige Lösung und es wird immer noch versucht verschiedene Effekte, wie z.B. das Auftreten von kollektivem Magnetismus in unterschiedlichen Dimensionen, insbesondere in Übergangsmetallen, im Rahmen dieses Modells besser zu verstehen.

In dieser Arbeit wird ein neuer Aspekt des Hubbard-Modells untersucht. Oftmals ist man nur an den stationären Lösungen eines Vielteilchen-Systems im Rahmen des Hubbard-Modells interessiert. Hier wird auf ein- und zweidimensionalen Gittern die zeitliche Dynamik eines Zweiteilchen-Systems im Rahmen des Hubbard-Modells beobachtet, und insbesondere welchen Einfluss die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Teilchen auf ihre Bewegung in solch einem atomaren Gitter hat. Eine Einführung in die theoretischen Grundlagen des Hubbard-Modells folgt dazu in Kapitel 1.5.1, sowie eine analytische Lösung dieses Modells für zwei Elektronen in einer Dimension in Kapitel 1.5.3.

EXZITON-POLARITONEN MIT ZUSÄTZLICHEN RANDBEDINGUNGEN

Das Verhalten von Halbleitern in optischen Feldern bei starker Kopplung des elektromagnetischen Feldes an die Ladungsträger im Medium kann nur zufrieden stellend im sogenannten Polaritonen-Bild verstanden werden, siehe dazu Kapitel 3.2.3. Eine störungstheoretische Betrachtung des quantenmechanischen Systems aus Ladungsträgern und Photonen reicht dann im Allgemeinen nicht mehr aus, um die experimentellen Beobachtungen theoretisch zu verstehen. Bei direkten Halbleitern wird im Bereich der Bandlückenenergie im optisch linearen Regime die Reaktion des Mediums auf optische Felder dominiert von exzitonischen Anregungen, die stark an das elektrische Feld koppeln. In diesem Energiebereich kann die Propagation der elektromagnetischen Wellen durch das Medium durch die Einführung neuer Quasiteilchen, den sogenannten Exziton-Polaritonen, korrekt beschrieben werden. Aus quantenmechanischer Sicht entsprechen diese Quasiteilchen den möglichen gemeinsamen Zuständen aus angeregten Exzitonen und den Photonen des optischen Feldes im Medium. Im Rahmen der zweiten Quantisierung können die entsprechenden Polariton-Vernichter und -Erzeuger durch eine unitäre Transformation dargestellt werden; als Linearkombination aus Vernichtern und Erzeugern der Exzitonen im Medium und der Photonen (ähnlich der Bogoliubov-Transformation, bekannt aus der BCS-Theorie), siehe hierzu Kapitel 3.2.3. Der Hamiltonoperator kann dann bezüglich der neuen Polariton-Basis näherungsweise diagonalisiert werden. Mit diesem Modell lassen sich optische Phänomene in der Nähe der Bandlückenenergie auch bei direkten Halbleitern gut verstehen, zumindest im Volumenkristall.

In dünnen, typischerweise einige Exziton-Bohrradien dicken Halbleiterschichten ergeben sich im Bereich der exzitonischen Resonanzen bei tiefen Temperaturen und in sehr reinen Proben weitere Peaks in experimentell gemessenen optischen Spektren. Diese können nicht durch die Lösungen der Exziton-Polaritonen im Volumenmaterial erklärt werden, und auch nicht einfach als Fabry-Perot-Interferenzen des optischen Feldes zwischen den Oberflächen des Kristalls. Es ist lange Zeit versucht worden das veränderte optische Verhalten mit Hilfe von zusätzlichen, phänomenologisch eingeführten Randbedingungen zu beschreiben, die an die makroskopische Polarisierung des Mediums gestellt wurden, siehe hierzu [Pekar, 1958], [Ting et al., 1975] oder [Henneberger, 1998].¹ Im Vergleich mit Experimenten führen diese Ansätze aber nur teilweise zu zufrieden stellenden Ergebnissen, eine Untersuchung dazu findet man in [Schneider et al., 2001]. Um unter Berücksichtigung von zusätzlichen Randbedingungen auf theoretischer Ebene zufrieden stellende Ergebnisse zu erhalten, ist es im Allgemeinen notwendig mit empirisch bestimmten „effektiven Probendicken“ zu arbeiten. Dazu werden in Kapitel 3.3.1 mit den ursprünglich von Pekar eingeführten zusätzlichen Randbedingungen berechnete optische Transmissionsspektren untersucht und mit den Ergebnissen einer voll mikroskopischen Theorie verglichen. Im Rahmen der mikroskopischen Theorie wird das exzitonische, effektive Zweiteilchen-Problem numerisch unter starker Kopplung an ein anregendes optisches Feld in selbstkonsistenter Weise zusammen mit den das optische Feld beschreibenden Maxwell-Gleichungen gelöst. Innerhalb dieser Berechnungen ist es dann möglich, die korrekten mikroskopischen Randbedingungen zur Beschreibung der Polariton-Propagation durch das Medium direkt an die Exziton-Übergangsamplitude, die der inhomogenen Exzitongleichung genügt, zu stellen. Daraus ergeben sich auf mikroskopischer Ebene gewonnene optische Eigenschaften des Systems, wie Transmission und Reflexion, anhand derer die experimentell beobachteten, zusätzlichen Resonanzen verständlich werden.

Aufgrund der endlichen räumlichen Ausdehnung der Exzitonen existieren in der Nähe von Oberflächen in räumlich begrenzten Halbleitern Bereiche, in denen nur eine geringe Polarisierung des Mediums durch optische Felder möglich ist. Mit den in dieser Arbeit durchgeführten, mikroskopischen Berechnungen lässt sich das Auftreten dieser Verarmungsschichten, der sogenannten „Dead-layer“ auf mikroskopischer Ebene berechnen und untersuchen. Unter Berücksichtigung der korrekten Dead-layer-Dicke ist es zum Teil möglich mit den weniger aufwändigen, makroskopischen Ansätzen zu besseren Ergebnissen im Vergleich zu den Ergebnissen der mikroskopischen Berechnungen zu gelangen, siehe dazu die Diskussion in Kapitel 3.3.4. Speziell für die Pekar’schen zusätzlichen Randbedingungen wird hier diskutiert, für welche Probenparameter und Anregungsbedingungen diese in Verbindung mit effektiven Probendicken² zu sinnvollen Ergebnissen führen können. Die Bewegung von Elektron und Loch bezüglich der Schwerpunktkoordinate des Exzitons lässt sich charakterisieren durch das Verhältnis zwischen seiner reduzierten, effektiven Masse μ^* und seiner effektiven Schwerpunktmasse M^* . Deshalb ist es sinnvoll die Dicke der Dead-layer in Abhängigkeit des μ^*/M^* -Verhältnisses zu betrachten, was abschließend in den Kapiteln 3.3.6 und 3.3.7 mit zwei unterschiedlichen Verfahren durchgeführt wird.

¹Diese auf makroskopischer Ebene zusätzlich gestellten Randbedingungen werden in der Literatur im Allgemeinen als ABCs (Additional Boundary Conditions) bezeichnet.

²Die effektive Probendicke ergibt sich gerade aus der tatsächlichen Dicke abzüglich einer Dead-layer-Schicht an jeder der beiden Oberflächen.

1 Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel werden zunächst die notwendigen theoretischen Grundlagen zur Behandlung der zeitabhängigen Schrödingergleichung zusammengestellt. Es handelt sich hierbei in der Ortsdarstellung um eine partielle Differentialgleichung in Ort und Zeit. Deshalb wird sowohl auf Algorithmen zur Behandlung der Zeitabhängigkeit eingegangen, als auch ein im Ortsraum und im Rahmen des Hubbard-Modells diskretisierter Hamiltonoperator für die Anwendung in den späteren Kapiteln bereitgestellt.

1.1 Zeitabhängige Schrödingergleichung

Um ein nicht relativistisches quantenmechanisches System vollständig beschreiben zu können, ist es notwendig, die zeitabhängige Schrödingergleichung

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\psi(t)\rangle = \mathbf{H}(t) |\psi(t)\rangle \quad (1.1)$$

für das betrachtete System zu lösen. Da es sich hierbei um eine Differentialgleichung erster Ordnung in der Zeit handelt, wird der Zustand $|\psi(t)\rangle$ zum Zeitpunkt t in vollem Umfang durch einen Anfangszustand $|\psi(t_0)\rangle$ zum Zeitpunkt $t = t_0$ bestimmt. Die Zeitentwicklung wird dabei bestimmt durch die Wirkung des (im Allgemeinen zeitabhängigen) Hamiltonoperators auf einen Zustand $|\psi(t)\rangle$ des Systems. Formal lässt sich die Lösung der Gleichung (1.1) angeben als

$$|\psi(t)\rangle = \mathbf{U}(t, t_0) |\psi(t_0)\rangle \quad (1.2)$$

wobei $\mathbf{U}(t, t_0)$ den hier eingeführten Zeitentwicklungs-Operator bezeichnet. Einsetzen von (1.2) in (1.1) liefert eine Bewegungsgleichung für den Zeitentwicklungs-Operator:¹

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{U}(t, t_0) = \mathbf{H}(t) \mathbf{U}(t, t_0) \quad (1.3)$$

Diese Gleichung kann mit der Bedingung $\mathbf{U}(t_0, t_0) = \mathbf{1}$ formal integriert werden, woraus man eine zu (1.3) äquivalente Integralgleichung für die Bestimmung des Zeitentwicklungs-Operators erhält:

$$\mathbf{U}(t, t_0) = \mathbf{1} + \frac{1}{i\hbar} \int_{t_0}^t dt_1 \mathbf{H}(t_1) \mathbf{U}(t_1, t_0) \quad (1.4)$$

Hier bietet sich nun eine Iteration zur Lösung des Problems an. Für $t_1 \leq t$ folgt zunächst:

$$\mathbf{U}(t_1, t_0) = \mathbf{1} + \frac{1}{i\hbar} \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \mathbf{H}(t_2) \mathbf{U}(t_2, t_0)$$

Einsetzen in (1.4) liefert dann den ersten Schritt der Iteration:

$$\mathbf{U}(t, t_0) = \mathbf{1} + \frac{1}{i\hbar} \int_{t_0}^t dt_1 \mathbf{H}(t_1) + \frac{1}{(i\hbar)^2} \int_{t_0}^t dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \mathbf{H}(t_1) \mathbf{H}(t_2) \mathbf{U}(t_2, t_0)$$

¹Es folgt direkt, $[(i\hbar \frac{\partial}{\partial t} - \mathbf{H}) \mathbf{U}(t, t_0)] |\psi(t_0)\rangle = 0$, was für jeden beliebigen Anfangszustand $|\psi(t_0)\rangle$ gilt, woraus sich wiederum ergibt: $(i\hbar \frac{\partial}{\partial t} - \mathbf{H}) \mathbf{U}(t, t_0) = 0$.

Weitere Iteration liefert als approximative Lösung die von-Neumann'sche Reihe zur Bestimmung des Zeitentwicklungs-Operators:

$$\mathbf{U}(t, t_0) = \mathbf{1} + \sum_{n=1}^{\infty} \mathbf{U}^{(n)}(t, t_0) \quad (1.5)$$

$$\text{mit } \mathbf{U}^{(n)}(t, t_0) = \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^n \int_{t_0}^t dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \dots \int_{t_0}^{t_{n-1}} dt_n \mathbf{H}(t_1) \mathbf{H}(t_2) \dots \mathbf{H}(t_n) \quad (1.6)$$

wobei $(t \geq t_1 \geq t_2 \geq \dots \geq t_n \geq t_0)$

Bei diesem Ausdruck ist strikt auf die richtige Zeitordnung zu achten, weil die Hamiltonoperatoren bei expliziter Zeitabhängigkeit zu verschiedenen Zeitpunkten nicht notwendig vertauschbar sind. Zur weiteren Vereinfachung wird nun ausgenutzt, was sich für den $n = 2$ -Term leicht zeigen lässt:

$$\int_{t_0}^t dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \mathbf{H}(t_1) \mathbf{H}(t_2) = \frac{1}{2} \int_{t_0}^t \int_{t_0}^t dt_1 dt_2 \hat{\mathbf{T}} (\mathbf{H}(t_1) \mathbf{H}(t_2)) \quad (1.7)$$

Hierbei ist $\hat{\mathbf{T}}$ das Zeitordnungs-Symbol, das formal die zeitlich richtige Reihenfolge bei der Anwendung der Hamiltonoperatoren gewährleistet. Es ist möglich die Aussage in Gleichung (1.7) auf n Terme zu verallgemeinern, so dass sich Gleichung (1.6) schreiben lässt als:

$$\mathbf{U}^{(n)}(t, t_0) = \frac{1}{n!} \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^n \int_{t_0}^t \dots \int_{t_0}^t dt_1 \dots dt_n \hat{\mathbf{T}} (\mathbf{H}(t_1) \mathbf{H}(t_2) \dots \mathbf{H}(t_n))$$

Daraus ergibt sich unter Verwendung von Gleichung (1.5) folgende sehr kompakte Darstellung des Zeitentwicklungs-Operators:

$$\mathbf{U}(t, t_0) = \hat{\mathbf{T}} \exp \left(-\frac{i}{\hbar} \int_{t_0}^t dt' \mathbf{H}(t') \right) \quad (1.8)$$

Das Zeitordnungs-Symbol sorgt formal für die zeitlich folgerichtige Anwendung der Operatoren auf den Zustand des Systems. Für Systeme mit nicht explizit zeitabhängigem Hamiltonoperator lässt sich $\mathbf{U}(t, t_0)$ vereinfachen zu

$$\mathbf{U}(t, t_0) = \mathbf{U}(t - t_0) = \exp \left(-\frac{i}{\hbar} \mathbf{H} \cdot (t - t_0) \right) \quad (1.9)$$

also wie in Gleichung (1.8), aber ohne dass die korrekte Zeitordnung formal durch das Zeitordnungs-Symbol gewährleistet werden muss.

Ein beliebiger Anfangszustand $|\psi(t_0)\rangle$ des betrachteten Systems kann immer nach einer vollständigen, orthonormalen Eigenbasis $\{|\psi_n\rangle\}$ des Hamiltonoperators $\mathbf{H}$ entwickelt werden, also mit $\mathbf{H}|\psi_n\rangle = E_n|\psi_n\rangle$, $\langle\psi_m|\psi_n\rangle = \delta_{n,m}$ und $\mathbf{1} = \sum_n |\psi_n\rangle \langle\psi_n|$:

$$|\psi(t_0)\rangle = \sum_n a_n(t_0) |\psi_n\rangle$$

Zu einem späteren Zeitpunkt t lässt sich der Zustand $|\psi(t)\rangle$ des Systems natürlich immer noch entwickeln nach den $|\psi_n\rangle$:

$$|\psi(t)\rangle = \sum_n a_n(t) |\psi_n\rangle$$

Die Zeitentwicklung des Systems ist damit bestimmt durch die zeitabhängigen Entwicklungskoeffizienten $a_n(t)$. Die formale Lösung der Schrödingergleichung (1.1) ist für nicht explizit zeitabhängigen Hamiltonoperator leicht anzugeben, da die $|\psi_n\rangle$ eine vollständige, orthonormale Basis bilden:

$$|\psi(t)\rangle = \sum_n a_n(t_0) e^{-\frac{i}{\hbar} E_n(t-t_0)} |\psi_n\rangle \quad (1.10)$$

Die $a_n(t_0)$ bestimmen den Zustand des Systems zur Zeit $t = t_0$, die Zeitentwicklung bis zur Zeit t erfolgt gemäß Gleichung (1.10). Die Wahrscheinlichkeit $|a_n(t_0)|^2$ das System im Zustand $|\psi_n\rangle$ vorzufinden bleibt bei zeitunabhängigem Hamiltonoperator während der gesamten Zeitentwicklung konstant, lediglich die Wahrscheinlichkeits-Amplituden oszillieren zeitlich jeweils mit der Frequenz $\omega_n = \frac{E_n}{\hbar}$. Wesentlicher Bestandteil der vorliegenden Arbeit ist es die Zeitentwicklung eines Zweiteilchen-Systems numerisch zu berechnen, wobei ein mögliches Kriterium für die Qualität der numerischen Algorithmen ist, dass $\forall n, t, |\langle \psi_n | \psi(t) \rangle| = |a_n(t)| = |a_n(t_0)| = \text{const}$, gilt. Mit diesem Kriterium ist automatisch die Energieerhaltung im System sowie die Erhaltung der Norm der Zustände gewährleistet. Mit der Entwicklung eines geeigneten Algorithmus wird sich das folgende Kapitel beschäftigen.

1.2 Explizite numerische Integration der zeitabhängigen Schrödingergleichung

Die zeitabhängige Schrödingergleichung (1.1) wird im Allgemeinen für Vielteilchen-Systeme mit Wechselwirkung nicht analytisch lösbar sein, da eine analytische Angabe der exakten Eigenzustände $|\psi_n\rangle$ eines solchen Systems nicht mehr möglich ist. Deshalb erscheint es sinnvoll diese Differentialgleichung, erster Ordnung in der Zeit, numerisch zu integrieren, ausgehend von einem geeignet gewählten Anfangszustand $|\psi(0)\rangle$.² Hierfür soll ein möglichst effizienter und genauer Algorithmus gewählt werden. Besonders naheliegend erscheint dabei zunächst eine Taylor-Entwicklung des Zeitentwicklungs-Operators $\mathbf{U}(t, t_0)$, siehe Gleichung (1.9), für ein kleines Zeitintervall Δt und Abbrechen nach dem linearen Term:³

$$\mathbf{U}(t + \Delta t, t) = \mathbf{U}(\Delta t) = \exp\left(-\frac{i}{\hbar} \mathbf{H} \Delta t\right) = 1 - \frac{i}{\hbar} \mathbf{H} \Delta t + \dots$$

Daraus ergibt sich eine einfache Möglichkeit aus dem Zustand zum Zeitpunkt t näherungsweise numerisch den Zustand zu einem späteren Zeitpunkt $t + \Delta t$ zu berechnen:

$$|\psi(t + \Delta t)\rangle \approx |\psi(t)\rangle - \frac{i}{\hbar} \mathbf{H} |\psi(t)\rangle \Delta t \quad (1.11)$$

²Auf die konkrete Form des Hamiltonoperators und der Zustände wird erst in den Kapiteln 1.4 und 1.5.2 eingegangen, um das Problem dann tatsächlich numerisch handhaben zu können. Dieser Abschnitt beschäftigt sich zunächst nur mit der numerischen Lösung des zeitabhängigen Anteils.

³Der Zeitentwicklungs-Operator bewirkt hier die Zeitentwicklung des Systems von einem beliebigen Zeitpunkt t zu einem um einen kleinen Zeitschritt Δt späteren Zeitpunkt $t + \Delta t$.

Es lässt sich jedoch zeigen, dass dieser einfache Algorithmus, der einer Integration der Differentialgleichung nach Euler entspricht, numerisch nicht stabil ist und nicht geeignet, um die zeitabhängige Schrödingergleichung numerisch zu behandeln.⁴ Ein sehr effizienter, numerisch stabiler und ähnlich einfacher Algorithmus wie (1.11) lässt sich aber aus folgender Beziehung ableiten:

$$|\psi(t + \Delta t)\rangle - |\psi(t - \Delta t)\rangle = \mathbf{U}(\Delta t) |\psi(t)\rangle - \mathbf{U}^\dagger(\Delta t) |\psi(t)\rangle = \left(e^{-\frac{i}{\hbar} \mathbf{H} \Delta t} - e^{\frac{i}{\hbar} \mathbf{H} \Delta t} \right) |\psi(t)\rangle \quad (1.12)$$

Entwicklung der Operatoren $\mathbf{U}(\Delta t)$ und $\mathbf{U}^\dagger(\Delta t)$ in eine Taylor-Reihe und Abbrechen nach dem linearen Term in Δt liefert das sogenannte Second Order Differencing Scheme (SOD) für die Zeitentwicklung des betrachteten Systems:^{5,6}

$$|\psi(t + \Delta t)\rangle \approx |\psi(t - \Delta t)\rangle - 2 \frac{i}{\hbar} \mathbf{H} |\psi(t)\rangle \Delta t \quad (1.13)$$

Mit dieser Methode kann die Zeitentwicklung eines Zustands $|\psi(t)\rangle$ numerisch unter Norm- und Energieerhaltung im System berechnet werden, vorausgesetzt der Hamiltonoperator $\mathbf{H}$ ist hermitesch und die Zeitschritte Δt sind klein genug gewählt nach dem Stabilitätskriterium:⁴

$$\Delta t < \frac{\hbar}{E_{\max}} \quad (1.14)$$

wobei $E_{\max}$ die dem Betrag nach maximale Eigenenergie des Hamiltonoperators $\mathbf{H}$ bezeichnet. Für Berechnungen im Ortsraum ergibt sich über die Bedingung (1.14) automatisch eine Beziehung zwischen der Schrittweite, die bei der Diskretisierung der Ortskoordinaten gewählt wird, und der maximalen Schrittweite in der Zeit. Je enger die Schritte der Diskretisierung im Ortsraum liegen, desto kleiner müssen die Zeitschritte gewählt werden, um ein stabiles Verhalten des Schemas (1.13) zu gewährleisten. Es handelt sich aber natürlich weiterhin nur um eine näherungsweise Berechnung der Zeitentwicklung des Systems, da die Taylor-Reihe der Zeitentwicklungs-Operatoren nach dem linearen Term in Gleichung (1.12) abgebrochen wurde, um auf Gleichung (1.13) zu kommen. Bei dieser Methode sammeln sich die numerischen Fehler in den Phasen von $\exp(-\frac{i}{\hbar} E_n(t - t_0))$ aus Gleichung (1.10), da Norm und Energie erhalten bleiben. Unter Beachtung der Stabilität (1.14) und für Systeme mit hermiteschem Hamiltonoperator hat das SOD-Verfahren für die in dieser Arbeit bearbeiteten Beispiele zu deutlich besseren numerischen Ergebnissen und vor allem zu stabileren Rechnungen geführt als Runge-Kutta-Verfahren zweiter und vierter Ordnung. Bei den Runge-Kutta-Verfahren vergrößert sich bei langer Laufzeit die Wahrscheinlichkeit $|a_n(t)|^2$ das System in bestimmten Eigenzuständen $|\psi_n\rangle$ zu finden, wogegen sie sich für andere Eigenzustände $|\psi_{n'}\rangle$ verringert. Einfach ausgedrückt könnte man sagen, es setzen sich dadurch auf Dauer bestimmte Eigenzustände durch. Auch wenn es in dieser Arbeit nur zu Testzwecken zum Einsatz gekommen ist, wird der Vollständigkeit halber im folgenden Abschnitt ein explizites Runge-Kutta-Verfahren vierter Ordnung, angewandt auf die zeitabhängige Schrödingergleichung, dargestellt. Das Schema zur numerischen

⁴Siehe [Leforestier et al., 1991]

⁵Die beiden Anfangswerte $|\psi(t)\rangle$ und $|\psi(t - \Delta t)\rangle$ erhält man am besten, indem man von $|\psi(t - \Delta t/2)\rangle$ z.B. nach Euler (Gleichung (1.11)) einen Zeitschritt $\Delta t/2$ vor und einen Zeitschritt $\Delta t/2$ zurückgeht, nach Möglichkeit mit vielen, sehr kleinen Zeitschritten.

⁶Diese Betrachtung entspricht der Bildung der Zeitableitung in Gleichung (1.1) durch einen symmetrisch gebildeten Differenzen-Quotienten $\frac{\partial}{\partial t} |\psi(t)\rangle \approx \frac{\psi(t+\Delta t) - \psi(t-\Delta t)}{2\Delta t}$ mit endlichem Δt . Dabei wird die Symmetrie der Lösung in der Zeit besser erhalten, als bei Integration nach Euler, bei der die Ableitung näherungsweise ersetzt wird durch $\frac{\partial}{\partial t} |\psi(t)\rangle \approx \frac{\psi(t+\Delta t) - \psi(t)}{\Delta t}$.

Integration der zeitabhängigen Schrödingergleichung sieht nach [Numerical Recipies, 1988] folgendermaßen aus:

$$|\psi(t + \Delta t)\rangle = |\psi(t)\rangle + \frac{k_1}{6} + \frac{k_2}{3} + \frac{k_3}{3} + \frac{k_4}{6} \quad (1.15)$$

$$\begin{aligned} \text{mit } k_1 &= -\frac{i}{\hbar} \mathbf{H} |\psi(t)\rangle \Delta t \\ k_2 &= -\frac{i}{\hbar} \mathbf{H} \left(|\psi(t)\rangle + \frac{k_1}{2} \right) \Delta t \\ k_3 &= -\frac{i}{\hbar} \mathbf{H} \left(|\psi(t)\rangle + \frac{k_2}{2} \right) \Delta t \\ k_4 &= -\frac{i}{\hbar} \mathbf{H} (|\psi(t)\rangle + k_3) \Delta t \end{aligned}$$

Es kann auch mit diesem Verfahren der Zustand $|\psi(t + \Delta t)\rangle$ des Systems zu einem Zeitpunkt $t + \Delta t$ aus dem Zustand $|\psi(t)\rangle$ zu dem nächstfrüheren Zeitpunkt t numerisch berechnet werden, allerdings mit den oben angesprochenen Problemen bezüglich der Norm der Zustände, und der nicht konstanten Wahrscheinlichkeiten $|a_n(t)|^2$ das System in einem Eigenzustand $|\psi_n\rangle$ vorzufinden. Ein kurzer Vergleich des Runge-Kutta-Verfahrens vierter Ordnung mit dem SOD-Verfahren folgt in Kapitel 2.2 anhand eines Beispiels.

Für die Behandlung der Zeitentwicklung eines Systems mit nicht streng hermiteschem Hamiltonoperator ist das oben beschriebene Schema (SOD) genau genommen nicht gut geeignet. Hier führt es nach längeren Laufzeiten zu einer numerisch bedingten Instabilität der Lösung, selbst wenn das Stabilitätskriterium (1.14) erfüllt ist. Bevor sich die Instabilität in dem Verhalten der Lösung deutlich bemerkbar macht, liefert es jedoch gute Ergebnisse, weswegen es für die Rechnungen ab Kapitel 3.2.3 weiter benutzt wird. In Kapitel 3.2.3 wird die inhomogene Exziton-Gleichung unter Berücksichtigung einer kleinen Dämpfung⁷ numerisch mit dem SOD-Verfahren gelöst. Es hat sich dabei als ausreichend erwiesen, die Rechnungen vor dem Erreichen eines numerisch instabilen Verhaltens zu beenden, um ausreichend gute Ergebnisse zu erhalten. Deshalb wurde dafür das Schema (1.13) z.B. einem Runge-Kutta-Verfahren, wie oben beschrieben, aufgrund seiner Einfachheit und des vergleichsweise geringen numerischen Aufwandes, vorgezogen.

Die inhomogene Exziton-Gleichung entspricht formal einer Zweiteilchen-Schrödingergleichung mit zeitabhängiger Inhomogenität $\phi(t)$:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\psi(t)\rangle = \mathbf{H} |\psi(t)\rangle + \phi(t) \quad (1.16)$$

Das in Gleichung (1.13) aufgeführte SOD-Schema lässt sich zur numerischen Behandlung einer Gleichung dieser Form folgendermaßen leicht erweitern:

$$|\psi(t + \Delta t)\rangle = |\psi(t - \Delta t)\rangle - 2\frac{i}{\hbar} [\mathbf{H} |\psi(t)\rangle + \phi(t)] \Delta t \quad (1.17)$$

Die Zeitentwicklung eines beliebigen Vielteilchen-Systems im Zustand $|\psi(t)\rangle$ mit zeitunabhängigem hermiteschem Hamiltonoperator $\mathbf{H}$ kann nun nach Gleichung (1.13) berechnet werden, bzw. mit zeitabhängiger Inhomogenität nach Gleichung (1.17).

⁷Diese Dämpfung führt gerade dazu, dass der Hamiltonoperator nicht mehr streng hermitesch ist.

Als Vorbereitung besteht nun die zweite Aufgabe darin, Zustände $|\psi(t)\rangle$ und den Hamiltonoperator $\mathbf{H}$ in einer geeigneten Darstellung auszudrücken, um Berechnungen nach Gleichung (1.13) durchführen zu können. Um den numerischen Aufwand im Rahmen des Möglichen zu halten beschäftigt sich diese Arbeit nur mit Berechnungen zu effektiven Zweiteilchen-Systemen. Die Rechnungen werden sowohl in der Ortsdarstellung in einer und zwei Dimensionen durchgeführt, als auch mit Hamiltonoperator und Zuständen im Rahmen des Hubbard-Modells auf einem ein- und zweidimensionalen atomaren Gitter. Im folgenden Kapitel 1.3 werden dazu die notwendigen Grundlagen bezüglich der Zustände eines Zweiteilchen-Systems zusammengestellt, die konkrete Aufstellung des diskreten Hamiltonoperators in der Ortsdarstellung und seine Anwendung auf die im Ortsraum diskretisierten Zustände des Zweiteilchen-Systems erfolgt in Kapitel 1.4. In Kapitel 1.5 werden die notwendigen Grundlagen zum Hubbard-Modell besprochen.

1.3 Zweiteilchen-Zustände

Dieses Kapitel beschäftigt sich mit der Struktur von Zweiteilchen-Zuständen identischer und unterscheidbarer Teilchen, da dieses eine wichtige Basis für die späteren Kapitel darstellt. Die allgemeine Betrachtung solcher Zweiteilchen-Zustände liefert die notwendigen Grundlagen zur numerischen Behandlung wechselwirkender Zweiteilchen-Systeme. Wie bereits in Kapitel 1.1 beschrieben, lässt sich ein beliebiger zeitabhängiger Zustand $|\psi(t)\rangle$ eines Systems mit zeitunabhängigem Hamiltonoperator $\mathbf{H}$ nach dessen Eigenzuständen $|\psi_n\rangle$ mit zeitabhängigen Koeffizienten $a_n(t)$ entwickeln, wobei dann die Zeitentwicklung Gleichung (1.10) genügt:

$$|\psi(t)\rangle = \sum_n a_n(t) |\psi_n\rangle \quad (1.18)$$

Um die möglichen Eigenzustände $|\psi_n\rangle$ und Eigenenergien E_n zu bestimmen muss folgende Eigenwertgleichung gelöst werden:

$$\mathbf{H} |\psi_n\rangle = E_n |\psi_n\rangle \quad (1.19)$$

Das Kapitel 2 beschäftigt sich mit der Zeitentwicklung von Systemen bestehend aus zwei Elektronen. Es werden hier nur Systeme ohne direkt spinabhängigen Hamiltonoperator behandelt, weswegen sich die Zweiteilchen-Zustände immer zusammensetzen als direktes Produkt aus Spinanteil und Ortsanteil. Es lassen sich im Spinraum folgende Zustände zu festem Gesamtspin S und fester z -Komponente S_z konstruieren:

Zustand	S	S_z
$\frac{1}{\sqrt{2}}(\uparrow\downarrow\rangle - \downarrow\uparrow\rangle)$	0	0
$ \uparrow\uparrow\rangle$	1	1
$\frac{1}{\sqrt{2}}(\uparrow\downarrow\rangle + \downarrow\uparrow\rangle)$	1	0
$ \downarrow\downarrow\rangle$	1	-1

Tabelle 1.1: Mögliche Spinzustände eines Zweielektronen-Systems

Hierbei ist der erste Zustand antisymmetrisch im Spinraum (Singulett) und die anderen drei symmetrisch unter Teilchenvertauschung (Triplet). Für Fermionen muss allerdings verlangt werden, dass die Gesamtwellenfunktion unter Teilchenvertauschung ihr Vorzeichen ändert, also antisymmetrisch ist. Es wird in dieser Arbeit ausschließlich die Lösung des Problems im Ortsraum betrachtet. Die Spinwellenfunktion wird nur insofern berücksichtigt, als dass im Ortsraum entweder vollständig symmetrische oder vollständig antisymmetrische Zustände unter Teilchenvertauschung realisiert sind, je nachdem welche Einstellungen der beiden Spins zueinander möglich sind, ohne das Pauli-Prinzip zu verletzen. Das Kapitel 3 beschäftigt sich mit einem effektiven Zweiteilchen-System aus Elektron und Loch im Halbleiter, für das sich aber auch für nicht explizit spinabhängigen Hamiltonoperator die Zustände separieren lassen, in ein direktes Produkt aus Spinanteil zu festem Gesamtspin und fester z -Komponente und einen Anteil, der nur noch von den Ortsfreiheitsgraden der beiden Teilchen abhängt.

Kompliziert wird das Lösen dieser Zweiteilchen-Probleme erst durch die Wechselwirkung der Teilchen untereinander, weil sich hierdurch der Zweiteilchen-Hamiltonoperator $\mathbf{H}$ nicht mehr einfach als Summe aus Einteilchen-Hamiltonoperatoren h_i darstellen lässt:

$$\mathbf{H} = h_1 + h_2 + V_{1,2} \quad \text{mit} \quad h_i = \frac{p_i^2}{2m_e} + v_i \quad i = 1, 2 \quad (1.20)$$

Hierbei bezeichnen die v_i das äußere Potential, das die beiden Teilchen spüren, und $V_{1,2}$ das Wechselwirkungspotential zwischen den beiden Teilchen. Durch die Berücksichtigung der Wechselwirkung $V_{1,2}$ zwischen den Teilchen ist die Eigenwertgleichung (1.19) für einen echten Zweiteilchen-Operator zu lösen, um die Eigenzustände und Eigenenergien des Systems zu berechnen. Bezeichne $|l\rangle$ alle möglichen normierten Eigenzustände zu den h_i , also zu den Einteilchen-Hamiltonoperatoren, dann gilt:

$$h_i |l\rangle = \varepsilon_l |l\rangle$$

Zu einem wechselwirkungsfreien System lassen sich dann Eigenzustände zu dem Zweiteilchen-Hamiltonoperator im Zweiteilchen-Hilbertraum konstruieren als direkte Produktzustände aus den Einteilchen-Zuständen:⁸

$$H_{\text{o.WW}} |\psi\rangle_{\text{o.WW}} = (h_1 + h_2) |l\rangle^{(1)} |k\rangle^{(2)} = (\varepsilon_l + \varepsilon_k) |l\rangle^{(1)} |k\rangle^{(2)}$$

Berücksichtigt man noch die quantenmechanische Ununterscheidbarkeit der identischen Teilchen, muss man symmetrisierte oder antisymmetrisierte Produktzustände aus Einteilchen-Zuständen als Eigenzustände des wechselwirkungsfreien Systems konstruieren:⁹

$$|\psi\rangle_{\text{o.WW}} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(|l\rangle^{(1)} |k\rangle^{(2)} \pm |l\rangle^{(2)} |k\rangle^{(1)} \right) \quad (1.21)$$

Unter Berücksichtigung der Wechselwirkung zwischen den Teilchen bilden symmetrisierte bzw. antisymmetrisierte Produktzustände aus Einteilchen-Wellenfunktionen nur noch eine Basis des Hilbertraumes der exakten Zweiteilchen-Zustände, sind aber selbst keine Eigenzustände zum vollen Hamiltonoperator (1.20). Der im Folgenden betrachtete Zweiteilchen-Hilbertraum $\mathcal{H}^{(2)}$, in dem die gesuchten Lösungen des Eigenwertproblems (1.19) existieren, lässt sich darstellen als direktes Produkt der beiden Einteilchen-Hilberträume $\mathcal{H}_1^{(1)}, \mathcal{H}_2^{(1)}$:

$$\mathcal{H}^{(2)} = \mathcal{H}_1^{(1)} \otimes \mathcal{H}_2^{(1)}$$

Die exakten Eigenzustände zu einem Zweiteilchen-System identischer Fermionen mit Wechselwirkung lassen sich in diesem Raum konstruieren als Linearkombinationen der Zustände in Gleichung (1.21), entweder auf dem vollständig symmetrischen Teilraum $\mathcal{H}_S^{(2)}$, oder dem vollständig antisymmetrischen Teilraum $\mathcal{H}_A^{(2)}$ (ohne Spins):

$$\begin{aligned} |\psi_n\rangle_{\text{WW},S} &= \sum_{l,k} c_n^{l,k} \left(|l\rangle^{(1)} |k\rangle^{(2)} + |l\rangle^{(2)} |k\rangle^{(1)} \right) \\ \text{oder} \quad |\psi_n\rangle_{\text{WW},A} &= \sum_{l,k} d_n^{l,k} \left(|l\rangle^{(1)} |k\rangle^{(2)} - |l\rangle^{(2)} |k\rangle^{(1)} \right) \end{aligned} \quad (1.22)$$

Wenn man die stationären Lösungen (1.22) für das Zweiteilchen-Problem in Gleichung (1.18) einsetzt, lässt sich die zeitabhängige Lösung schreiben als

$$\begin{aligned} |\psi(t)\rangle_S &= \sum_n a_n(t) \left(\sum_{l,k} c_n^{l,k} \left(|l\rangle^{(1)} |k\rangle^{(2)} + |l\rangle^{(2)} |k\rangle^{(1)} \right) \right) \\ \text{oder} \quad |\psi(t)\rangle_A &= \sum_n b_n(t) \left(\sum_{l,k} d_n^{l,k} \left(|l\rangle^{(1)} |k\rangle^{(2)} - |l\rangle^{(2)} |k\rangle^{(1)} \right) \right) \end{aligned}$$

⁸ l, k nummerieren jeweils alle möglichen Einteilchen-Zustände durch, (1), (2) nummerieren die Teilchen durch.

⁹Um Zweiteilchen-Zustände für unterscheidbare Teilchen zu konstruieren muss ab hier auf die Symmetrisierung der Zustände verzichtet werden.

Befinden sich beide Teilchen im gleichen Einteilchen-Zustand, verschwindet der räumlich antisymmetrische Zustand, was auch mit dem Pauli-Prinzip in Übereinstimmung ist. Um einen insgesamt antisymmetrischen Zustand zu konstruieren müsste die Spinwellenfunktion sonst symmetrisch sein, was ein Übereinstimmen aller Quantenzahlen beider Teilchen bedeuten würde, und das ist nach dem Pauli-Prinzip für Fermionen bekanntlich „verboten“. Der Hilbertraum lässt sich im Falle von nur zwei Teilchen auch als direkte Summe aus dem Teilraum der vollständig symmetrischen und dem der vollständig antisymmetrischen Zweiteilchen-Zustände darstellen:¹⁰

$$\mathcal{H}^{(2)} = \mathcal{H}_S^{(2)} \oplus \mathcal{H}_A^{(2)}$$

Es ist möglich das Zweiteilchen-Problem unabhängig voneinander auf den beiden in sich abgeschlossenen Teilräumen zu lösen. Dadurch lässt sich der Rechenaufwand sowohl bei der numerischen Integration der zeitabhängigen Schrödingergleichung verringern, da sich die Symmetrie des Anfangszustandes durch die Anwendung des Hamiltonoperators $\mathbf{H}$ nicht ändert, als auch bei der numerischen Berechnung der Eigenwerte E_n und Eigenzustände $|\psi_n\rangle$ des Hamiltonoperators, indem die Rechnung entweder auf dem vollständig symmetrischen oder antisymmetrischen Teilraum durchgeführt wird.

1.4 Diskretisierung des Zweiteilchen-Hamiltonoperators in Ortsdarstellung

Um die zeitliche Entwicklung von Zweiteilchen-Zuständen im Ortsraum (Zweiteilchen-Wellenfunktionen) nach Gleichung (1.13) berechnen zu können, ist es notwendig die Schrödingergleichung auf einem endlichen Intervall im Ortsraum zu diskretisieren. Das hat zur Folge, dass unter bestimmten Randbedingungen die Wirkung des Hamiltonoperators auf einen Zweiteilchen-Zustand dargestellt werden kann in Form einer Multiplikation einer im Ortsraum diskretisierten Hamiltonmatrix mit einem im Ortsraum diskretisierten Zustandsvektor. Die explizite Form dieses diskretisierten Hamiltonoperators und die Form der entsprechend diskretisierten Zweiteilchen-Zustände werden dazu im nächsten Abschnitt diskutiert. Dies wird allerdings der Übersichtlichkeit halber nur für eindimensionale Systeme vorgeführt, kann aber ganz analog auf die später ebenfalls betrachteten zweidimensionalen Systeme übernommen werden. Die Dimension der diskreten Hamiltonmatrix und der diskreten Zustandsvektoren ist dann für D -dimensionale Zweiteilchen-Systeme jeweils $(N)^{2D}$, wobei N die Anzahl der äquidistant liegenden Stützstellen im Ortsraum pro Raumrichtung ist. Die Eigenwertgleichung des Zweiteilchen-Systems auf dem endlichen Ortsraumintervall kann ebenfalls gelöst werden, indem die Eigenwerte und Eigenvektoren der $(N)^{2D}$ -dimensionalen Hamiltonmatrix berechnet werden.

Der Zweielektron-Hamiltonoperator in Ortsdarstellung in einer Dimension hat mit Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Elektronen folgende allgemeine Form:

$$\mathbf{H} = \left(-\frac{\hbar^2}{2m_2} \frac{\partial^2}{\partial x_1^2} - \frac{\hbar^2}{2m_1} \frac{\partial^2}{\partial x_2^2} + v(x_1) + v(x_2) + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 (|x_1 - x_2| + \mu)} \right) \quad (1.23)$$

¹⁰Bei mehr als zwei Teilchen lässt sich nicht der gesamte Produkt-Hilbertraum $\mathcal{H}^{(N)} = \mathcal{H}_1^{(1)} \otimes \mathcal{H}_2^{(1)} \otimes \dots \otimes \mathcal{H}_N^{(1)}$ als Summe aus total symmetrischem und total antisymmetrischem Teilraum darstellen, denn hier gibt es auch gemischte Zustände, die aber physikalisch nicht realisiert werden: $\mathcal{H}^{(N)} = \mathcal{H}_S^{(N)} \oplus \mathcal{H}_A^{(N)} \oplus \mathcal{H}_{\text{rest}}^{(N)}$, siehe [Schwabl, 1997].

Die Einführung der Konstante μ ist an dieser Stelle aufgrund der numerischen Behandlung in nur einer Dimension notwendig, bei der man ansonsten auf Schwierigkeiten mit Divergenzen der Coulomb-Wechselwirkung stößt.¹¹ Auch bei den zweidimensionalen Berechnungen im Ortsraum ist ebenfalls über eine additive Konstante im Nenner der Coulomb-Wechselwirkung die Singularität für die numerische Bearbeitung behoben worden. Anschaulich bedeutet die Einführung der Konstanten μ , dass es sich bei dem Wechselwirkungspotential der Elektronen untereinander um ein abgeschnittenes Coulomb-Potential handelt, das auch für sehr kleine Abstände $|\vec{x}_1 - \vec{x}_2|$ endlich bleibt. Die Wahl des abschneidenden Parameters ist bei diesen Berechnungen allerdings relativ unkritisch, da hier nur qualitative Aussagen über das zeitliche Verhalten von Zweiteilchen-Systemen im Ortsraum getroffen werden. In Kapitel 3, wo auf quantitativ korrekte Ergebnisse Wert gelegt wird, ist die Coulomb-Singularität, wie in Anhang B.3 beschrieben, sorgfältig numerisch gehoben worden. Um die Zweiteilchen-Zustände numerisch behandeln zu können werden sie nur noch an diskreten Stützstellen (n, m) auf einem zweidimensionalen Gitter der in $N - 1$ äquidistante Intervalle der Länge d unterteilten Ortskoordinaten $x_1 = (x_1^1, x_1^2, \dots, x_1^N) = \{x_n\}$ und $x_2 = (x_2^1, x_2^2, \dots, x_2^N) = \{x_m\}$ betrachtet¹², siehe hierzu Abbildung 1.1.

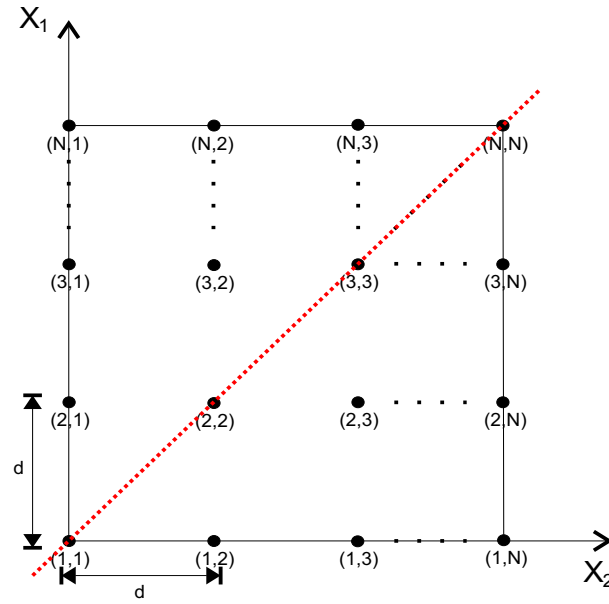


Abbildung 1.1:

Schematische Darstellung der Diskretisierung der Zweiteilchen-Wellenfunktion $\psi(x_1, x_2)$ in einer Dimension im Ortsraum, rote Linie: Symmetrieebene unter Teilchenvertauschung

¹¹Siehe die Diskussion dazu in [Haug/Koch, 1993].

¹²Der Index n sei der Ortskoordinate x_1 zugeordnet und der Index m der Ortskoordinate x_2 .

Als Basis des Zweiteilchen-Hilbertraumes, auf dem der Hamiltonoperator (1.23) operiert, kann man nach Kapitel 1.3 bei identischen Teilchen zunächst symmetrisierte oder antisymmetrisierte Produktzustände¹³

$$\psi_{i,j}^{\text{produkt,S,A}} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\phi_i^{(1)} \phi_j^{(2)} \pm \phi_j^{(1)} \phi_i^{(2)} \right)$$

aus normierten Einteilchen-Wellenfunktionen ϕ_i, ϕ_j ansetzen, um dann in diesem Raum die zeitliche Entwicklung beliebiger Zweiteilchen-Zustände zu verfolgen bzw. um die exakten Eigenvektoren (Linearkombinationen aus symmetrisierten oder antisymmetrisierten Produktzuständen aus Einteilchen-Zuständen) und Eigenwerte der diskreten Hamiltonmatrix zu bestimmen. Bei unterscheidbaren Teilchen muss an dieser Stelle auf die Symmetrisierung der Produktzustände verzichtet werden, und es müssen gegebenenfalls unterschiedliche Massen der Teilchen berücksichtigt werden, ansonsten erfolgt die Diskretisierung ganz analog. In Ortsdarstellung ist die Wirkung des Hamiltonoperators auf so einen Produktzustand:

$$\begin{aligned} \mathbf{H} \left(\phi_i^{(1)} \phi_j^{(2)} \pm \phi_j^{(1)} \phi_i^{(2)} \right) = & - \frac{\hbar^2}{2m_e} \left(\phi_j^{(2)} \phi_i^{(1)''} \pm \phi_i^{(2)} \phi_j^{(1)''} + \phi_i^{(1)} \phi_j^{(2)''} \pm \phi_j^{(1)} \phi_i^{(2)''} \right) \\ & + \left(v^{(1)} + v^{(2)} + V^{(1,2)} \right) \left(\phi_i^{(1)} \phi_j^{(2)} \pm \phi_j^{(1)} \phi_i^{(2)} \right) \end{aligned}$$

Führt man jetzt folgende Diskretisierung der Einteilchen-Wellenfunktionen ein

$$\begin{aligned} \phi(x_1) &= (\phi^{1(1)}, \phi^{2(1)}, \dots, \phi^{N(1)}) = \{\phi^n\} & n = 1, \dots, N \\ \phi(x_2) &= (\phi^{1(2)}, \phi^{2(2)}, \dots, \phi^{N(2)}) = \{\phi^m\} & m = 1, \dots, N \end{aligned}$$

und ersetzt ihre zweifachen Ortsableitungen gemäß der Definition¹⁴ durch einen Differenzen-Quotienten an jeder Stützstelle des diskreten Gitters:

$$\begin{aligned} \phi_m'' &\approx \frac{\phi_{m+1} + \phi_{m-1} - 2\phi_m}{d^2} \\ \phi_n'' &\approx \frac{\phi_{n+1} + \phi_{n-1} - 2\phi_n}{d^2} \end{aligned}$$

ergeben sich N^2 gekoppelte lineare Gleichungen:¹⁵

$$\begin{aligned} &\mathbf{H} (\phi_i^n \phi_j^m \pm \phi_j^n \phi_i^m) \\ &= \underbrace{-\frac{\hbar^2}{2m_e d^2} \left[\left(\phi_i^{n+1} \phi_j^m \pm \phi_j^{n+1} \phi_i^m \right) + \left(\phi_i^{n-1} \phi_j^m \pm \phi_j^{n-1} \phi_i^m \right) + \left(\phi_i^n \phi_j^{m+1} \pm \phi_j^n \phi_i^{m+1} \right) \right]}_a \\ &+ \left(\phi_i^n \phi_j^{m-1} \pm \phi_j^n \phi_i^{m-1} \right) + \underbrace{\left(\frac{2\hbar^2}{m_e d^2} + V^{n,m} + v^n + v^m \right)}_{a_{n,m}} (\phi_i^n \phi_j^m \pm \phi_j^n \phi_i^m) \end{aligned}$$

¹³Mit den hochgestellten Indizes (1), (2) seien hier die Teilchen durchnummeriert, die Ableitungen beziehen sich dann natürlich auch auf die jeweilige Ortskoordinate x_1 oder x_2 , die tiefgestellten Indizes i, j bezeichnen die Einteilchen-Zustände.

¹⁴Gemäß ihrer Definition, jedoch nur näherungsweise aufgrund des endlichen d , also ohne Grenzübergang $d \rightarrow 0$.

¹⁵ $v^n = v(x_1^n)$ und $v^m = v(x_2^m)$ bezeichnen jeweils das externe Potential, in dem sich die Teilchen bewegen, an den entsprechenden Stützstellen, und $V^{n,m} = V(x_1^n, x_2^m)$ das Wechselwirkungspotential.

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(x_1, x_2, t)_{\text{WW}} = \mathbf{H} \psi(x_1, x_2, t)_{\text{WW}}$$
$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \sum_{i,j} c_{i,j} \psi_{i,j}^{\text{produkt,S}} &= \mathbf{H} \sum_{i,j} c_{i,j} \psi_{i,j}^{\text{produkt,S}} \\ \text{oder} \quad i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \sum_{i,j} d_{i,j} \psi_{i,j}^{\text{produkt,A}} &= \mathbf{H} \sum_{i,j} d_{i,j} \psi_{i,j}^{\text{produkt,A}} \end{aligned}$$
$$\mathbf{H} = \begin{bmatrix} \begin{array}{ccc|c} a_{1,1} & a & & \\ & a_{1,2} & \ddots & \\ & & \ddots & a \\ & & & a_{1,N} \\ & & & 0 \end{array} & \begin{array}{ccc|c} a & & & \\ & a & & \\ & & \ddots & \\ & & & 0 \end{array} & \begin{array}{ccc|c} & & & \\ & & \ddots & \\ & & & \ddots & \\ & & & & 0 \end{array} \\ \begin{array}{ccc|c} a & & & 0 \\ & a & & \\ & & \ddots & \\ & & & \ddots & \\ & & & & a_{2,1} & a \\ & & & & a_{2,2} & \ddots \\ & & & & & \ddots & a \\ & & & & & & a_{2,N} \\ & & & & & & 0 \end{array} & \begin{array}{ccc|c} & & & \\ & & \ddots & \\ & & & \ddots & \\ & & & & \ddots & \\ & & & & & \ddots & \\ & & & & & & a \\ & & & & & & a_{2,N} \\ & & & & & & 0 \end{array} \\ \begin{array}{ccc|c} & & & \\ & & \ddots & \\ & & & \ddots & \\ & & & & \ddots & \\ & & & & & \ddots & \\ & & & & & & a \\ & & & & & & a \end{array} & \begin{array}{ccc|c} & & & \\ & & \ddots & \\ & & & \ddots & \\ & & & & \ddots & \\ & & & & & \ddots & \\ & & & & & & a \\ & & & & & & 0 \end{array} \\ \begin{array}{ccc|c} & & & 0 \\ & & & \\ & & \ddots & \\ & & & \ddots & \\ & & & & \ddots & \\ & & & & & \ddots & \\ & & & & & & a_{N,1} & a \\ & & & & & & a_{N,2} & \ddots \\ & & & & & & & \ddots & a \\ & & & & & & & & a_{N,N} \end{array} \end{bmatrix} \quad (1.24)$$

¹⁶Alle nicht gesetzten Einträge sind identisch Null.

Mit den Produkt-Basisvektoren für die exakten Eigenzustände, die den Zweiteilchen-Hilbertraum $\mathcal{H}^{(2)}$ aufspannen

$$\psi_{i,j}^{\text{produkt,S,A}} = \begin{bmatrix} \phi_i^{1(1)} \phi_j^{1(2)} \pm \phi_j^{1(1)} \phi_i^{1(2)} \\ \phi_i^{1(1)} \phi_j^{2(2)} \pm \phi_j^{1(1)} \phi_i^{2(2)} \\ \phi_i^{1(1)} \phi_j^{3(2)} \pm \phi_j^{1(1)} \phi_i^{3(2)} \\ \vdots \\ \phi_i^{1(1)} \phi_j^{N(2)} \pm \phi_j^{1(1)} \phi_i^{N(2)} \\ \hline \phi_i^{2(1)} \phi_j^{1(2)} \pm \phi_j^{2(1)} \phi_i^{1(2)} \\ \phi_i^{2(1)} \phi_j^{2(2)} \pm \phi_j^{2(1)} \phi_i^{2(2)} \\ \vdots \\ \phi_i^{2(1)} \phi_j^{N(2)} \pm \phi_j^{2(1)} \phi_i^{N(2)} \\ \hline \vdots \\ \hline \phi_i^{N(1)} \phi_j^{1(2)} \pm \phi_j^{N(1)} \phi_i^{1(2)} \\ \vdots \\ \phi_i^{N(1)} \phi_j^{N(2)} \pm \phi_j^{N(1)} \phi_i^{N(2)} \end{bmatrix} \quad \begin{array}{l} n = 1 \quad m = 1, \dots, N \\ \hline n = 2 \quad m = 1, \dots, N \\ \hline \vdots \\ \hline n = N \quad m = 1, \dots, N \end{array}$$

Analog lässt sich auch die stationäre Schrödingergleichung mit den oben eingeführten diskreten Größen schreiben als:

$$\begin{aligned} \mathbf{H} \sum_{i,j} c_{i,j} \psi_{i,j}^{\text{produkt,S}} &= E \sum_{i,j} c_{i,j} \psi_{i,j}^{\text{produkt,S}} \\ \text{oder} \quad \mathbf{H} \sum_{i,j} d_{i,j} \psi_{i,j}^{\text{produkt,A}} &= E \sum_{i,j} d_{i,j} \psi_{i,j}^{\text{produkt,A}} \end{aligned}$$

Die zeitliche Entwicklung eines Zweiteilchen-Systems wird damit bestimmt durch die Wirkung des diskreten Hamiltonoperators (1.24) auf die Zustände im hier endlichen, N^2 -dimensionalen Zweiteilchen-Hilbertraum. Die Eigenwerte und Eigenzustände des vollen Zweiteilchen-Problems lassen sich durch Lösen des Eigenwertproblems für die Matrix (1.24) berechnen. Der Hamiltonoperator (1.24) ist hier angegeben für Berechnungen mit starren Randbedingungen, bei denen die Zweiteilchen-Wellenfunktion direkt außerhalb des diskretisierten Gebietes verschwindet, also $\psi^{0,m} = \psi^{N+1,m} = \psi^{n,0} = \psi^{n,N+1} = 0$. Bei diesen Randbedingungen muss man darauf achten, dass bestimmte Koeffizienten in der Hamiltonmatrix verschwinden müssen, und zwar die für $m = 0$ und $m = N + 1$ (in der Matrix rot gekennzeichnete Einträge). Die Koeffizienten für $n = 0$ und $n = N + 1$ sind automatisch nicht mehr in dieser Hamiltonmatrix enthalten.¹⁷

¹⁷Für Berechnungen mit periodischen Randbedingungen muss man darauf achten, dass das diskretisierte Gebiet jeweils beim Überschreiten der Intervallgrenzen periodisch auf der anderen Seite fortgesetzt wird. Es verschwinden dann keine Koeffizienten mehr, sondern $a_{N+1,m} \rightarrow a_{1,m}$, $a_{n,N+1} \rightarrow a_{n,1}$, $a_{1-1,m} \rightarrow a_{N,m}$ und $a_{n,1-1} \rightarrow a_{n,N}$.

Die Orthogonalität der Eigenvektoren ist erfüllt, weil die diskrete Hamiltonmatrix (1.24) hermitesch ist, ihre Normiertheit auf dem diskretisierten Intervall wird gewährleistet durch:¹⁸

$$1 = d^2 \cdot \sum_{n=1, m=1}^N |\psi^{n,m}|^2$$

Die Dimension der diskreten Hamiltonmatrix und der Zustandsvektoren lässt sich verringern, indem man die Symmetrie der Zustände berücksichtigt. Es gilt, wie in Kapitel 1.3 erläutert:

$$\psi(x_1, x_2) = \psi(x_2, x_1) \quad \text{oder} \quad \psi(x_1, x_2) = -\psi(x_2, x_1)$$

Die Tatsache, dass auch die Zustände des vollen, wechselwirkenden Zweiteilchen-Systems vollständig symmetrisch oder antisymmetrisch sind, lässt sich ausnutzen, um den numerischen Aufwand bei der Berechnung der Zeitentwicklung und der Bestimmung der Eigenwerte und Eigenvektoren stark zu verringern. Die Zeitentwicklung des Zweiteilchen-Systems verläuft ausschließlich auf einem der beiden Teilräume, je nachdem welche Symmetrie der gewählte Anfangszustand erfüllt. Das Eigenwertproblem zerfällt in zwei unabhängig voneinander lösbare Eigenwertprobleme halb so großer Dimension auf den jeweiligen Teilräumen. Die Genauigkeit der numerischen Ergebnisse ist nur beschränkt durch den Rechenaufwand, der beim Zweiteilchen-Problem in einer Dimension noch recht gut zu handhaben ist, aber zumindest in zwei Dimensionen ganz erheblich werden kann.¹⁹ Die Anzahl der Diskretisierungsschritte geht wie oben erwähnt wie $(N)^{2D}$ in die Dimension des Problems ein. Hier wird der Hamiltonoperator aber in voller Allgemeinheit berücksichtigt. Bis auf die Diskretisierung, und die Vernachlässigung von direkten Wechselwirkungen verursacht durch den Spin der Elektronen, sind die auf diese Weise durchgeführten Rechnungen exakt; es werden alle Zweiteilchen-Effekte berücksichtigt, die in anderen Modellen²⁰ teilweise vernachlässigt werden.

¹⁸Mit den $\psi^{n,m}$ ist hier die diskretisierte, aber ansonsten (auf dem endlichen Hilbertraum) exakte Zweiteilchen-Wellenfunktion bezeichnet, jeweils an den Aufpunkten n und m , nicht zu verwechseln mit den reinen Produktzuständen aus Einteilchen-Wellenfunktionen.

¹⁹Zu den besonderen numerischen Methoden, die hier verwendet wurden, siehe Anhang B.1.

²⁰Siehe Kapitel 1.5 zum Hubbard-Modell.

1.5 Hubbard-Modell

1.5.1 Grundlagen

Das Hubbard-Modell ist ein bereits über mehrere Jahrzehnte intensiv untersuchtes Modell der theoretischen Festkörperphysik. Es wurde ursprünglich von J. Hubbard vorgeschlagen als möglichst einfaches und übersichtliches Modell, um kollektiven Magnetismus von Bandlektronen in Übergangsmetallen zu beschreiben. In Übergangsmetallen ist das Phänomen des kollektiven Bandmagnetismus zurückzuführen auf die Existenz der 3d-Bänder. Hierbei handelt es sich im Allgemeinen um energetisch schmale Bänder, also um Bänder, in denen die Elektronen eine starke Tendenz zur Lokalisierung an den Gitterplätzen zeigen. Um dieser Lokalisierung der Elektronen in möglichst einfacher Form gerecht werden zu können, wird der Modell-Hamiltonoperator direkt bezüglich einer Basis im Ortsraum an den Gitterplätzen $\vec{R}$ lokalisierter Einteilchen-Zustände, den Wannier-Zuständen $w(\vec{r} - \vec{R})$, angegeben. Er hat in zweiter Quantisierung die Form:^{21,22}

$$\mathbf{H} = E_0 \sum_{\vec{R}\sigma} c_{\vec{R}\sigma}^\dagger c_{\vec{R}\sigma} + t \sum_{\vec{R}\sigma} \sum_{\vec{\Delta} n.N.} c_{\vec{R}\sigma}^\dagger c_{\vec{R}+\vec{\Delta}\sigma} + U \sum_{\vec{R}} c_{\vec{R}\uparrow}^\dagger c_{\vec{R}\uparrow} c_{\vec{R}\downarrow}^\dagger c_{\vec{R}\downarrow} \quad (1.25)$$

Hierbei erzeugen bzw. vernichten die $c_{\vec{R}\sigma}^\dagger$ bzw. $c_{\vec{R}\sigma}$ gerade ein Elektron mit Spin σ am Gitterplatz $\vec{R}$ in einem lokalisierten Wannier-Zustand. Diese Darstellung des Hubbard-Hamiltonoperators stellt das Modell in seiner einfachsten Form dar. $\vec{R}$ bezeichnet alle möglichen Gittervektoren und σ die möglichen Spineinstellungen. Es wird jeweils nur ein elektronischer Zustand im Ortsraum pro Gitterplatz (also zwei inkl. Spin) angenommen. Die Existenz mehrerer elektronischer Bänder im Festkörper wird vernachlässigt, um ein möglichst einfaches Modell zu erhalten. Das „Hüpf-Matrixelement“ t gibt die Übergangsamplitude²³ der Elektronen zu nächsten Nachbar-Gitterplätzen (n.N.) an, direkte Übergänge zu weiter entfernten Gitterplätzen werden aufgrund der starken Lokalisierung der Wannier-Zustände vernachlässigt. Außerdem wird nur eine gitterplatzdiagonale Wechselwirkung, das Hubbard- U , zwischen den Elektronen angenommen. Um diese vereinfachende Annahme rechtfertigen zu können, muss man sich statt der langreichweitigen Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Elektronen eine durch innere „Core“-Elektronen abgeschirmte Wechselwirkung vorstellen. Die in Gleichung (1.25) vorkommenden Matrixelemente lassen sich mit den oben aufgeführten Näherungen folgendermaßen aus den Wannier-Zuständen und dem Hamiltonoperator $\mathbf{H} = H_0 + H_{WW}$ in erster Quantisierung²⁴ berechnen:

$$\begin{aligned} E_0 &= \int d^3r w^*(\vec{r} - \vec{R}) \left(-\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_{\vec{r}}^2 + v(\vec{r}) \right) w(\vec{r} - \vec{R}) \\ t &= \int d^3r w^*(\vec{r} - \vec{R}) \left(-\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_{\vec{r}}^2 + v(\vec{r}) \right) w(\vec{r} - \vec{R} + \vec{\Delta} n.N.) \\ U &= \int d^3r' \int d^3r w^*(\vec{r} - \vec{R}) w^*(\vec{r}' - \vec{R}) V(\vec{r}, \vec{r}') w(\vec{r}' - \vec{R}) w(\vec{r} - \vec{R}) \end{aligned}$$

²¹ Siehe [Czychołł, 1999], Seite 118

²² Es soll auch hier keine explizite Spinabhängigkeit des Hamiltonoperators vorliegen.

²³ Da die Wannier-Zustände im Gegensatz zu Bloch-Zuständen keine Eigenzustände zum elektronischen Einteilchen-Hamiltonoperator im Kristall bilden, treten die Übergangsamplituden t zu nächsten Nachbar-Gitterplätzen gerade als Nicht-Diagonalelemente der Hamiltonmatrix bezüglich der Wannier-Basis auf.

²⁴ H_0 bezeichnet den reinen Einteilchen-Anteil des elektronischen Vielteilchen-Hamiltonoperators in Ortsdarstellung $H_0 = \sum_i -\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_i^2 + v(\vec{r}_i)$ und H_{WW} den Zweiteilchen-Anteil $H_{WW} = \frac{1}{2} \sum_{i,j} V(\vec{r}_i, \vec{r}_j)$.

Eine einfache Erweiterung zu diesem Modell ist die Annahme, dass die Elektronen nicht nur einer gitterplatzdiagonalen Wechselwirkung unterliegen, sondern auch mit Elektronen auf nächsten Nachbar-Gitterplätzen wechselwirken. Der Hamiltonoperator dieses erweiterten Hubbard-Modells ist dann:

$$\begin{aligned} \mathbf{H} = E_0 \sum_{\vec{R}\sigma} c_{\vec{R}\sigma}^\dagger c_{\vec{R}\sigma} + t \sum_{\vec{R}\sigma} \sum_{\vec{\Delta} n.N.} c_{\vec{R}\sigma}^\dagger c_{\vec{R}+\vec{\Delta}\sigma} + U \sum_{\vec{R}} c_{\vec{R}\uparrow}^\dagger c_{\vec{R}\uparrow} c_{\vec{R}\downarrow}^\dagger c_{\vec{R}\downarrow} \\ + \frac{1}{2} V \sum_{\vec{R}\vec{\Delta} n.N.} \sum_{\sigma\sigma'} c_{\vec{R}\sigma}^\dagger c_{\vec{R}\sigma} c_{\vec{R}+\vec{\Delta}\sigma'}^\dagger c_{\vec{R}+\vec{\Delta}\sigma'} \end{aligned}$$

Als weitere Ergänzung können auch mehrere mögliche Einteilchen-Zustände pro Gitterplatz in einem sogenannten Mehrband-Hubbard-Modell berücksichtigt werden. Die Berücksichtigung mehrerer Bänder im Rahmen des Hubbard-Modells entspricht tatsächlich eher den physikalischen Gegebenheiten der d -Bänder in Übergangsmetallen, die nicht nur einfach entartet sind, wie es in Gleichung (1.25) vorausgesetzt worden ist. Deshalb ist es nicht verwunderlich, dass es sich bei der Untersuchung des Mehrband-Hubbard-Modells herausgestellt hat, dass es leichter ist in diesem kollektiven Bandmagnetismus nachzuweisen als im einfachsten Einbandmodell.

In allen bis jetzt angegebenen Hamiltonoperatoren zum Hubbard-Modell ist der Spin explizit berücksichtigt, in dieser Arbeit wird er jedoch nur in Form der Symmetrie der Zweiteilchen-Zustände berücksichtigt. Es ist dann automatisch gewährleistet, dass sich die Teilchen in einem antisymmetrischen Zustand nicht am gleichen Gitterplatz aufhalten können. Es ergibt sich damit automatisch die korrekte Statistik für Fermionen, wie sie hier ausschließlich behandelt werden. Die Symmetrie des Anfangszustandes kann gewählt werden und wird sich nach Kapitel 1.3 während der gesamten Zeitentwicklung nicht verändern. Der Hubbard-Hamiltonoperator im Einbandmodell erhält dann speziell für ein Zweielektron-System folgende Gestalt:

$$\mathbf{H} = E_0 \sum_{\vec{R}} b_{\vec{R}}^\dagger b_{\vec{R}} + t \sum_{\vec{R}} \sum_{\vec{\Delta} n.N.} b_{\vec{R}}^\dagger b_{\vec{R}+\vec{\Delta}} + \frac{U}{2} \sum_{\vec{R}} (b_{\vec{R}}^\dagger b_{\vec{R}} - 1) b_{\vec{R}}^\dagger b_{\vec{R}}$$

Die hier eingeführten Erzeuger und Vernichter genügen keinen Fermionen-Kommutatorrelationen mehr, da insbesondere für einen symmetrischen Ortsraumzustand der Besetzungszahl-Operator $b_{\vec{R}}^\dagger b_{\vec{R}} = n_{\vec{R}}$ die Eigenwerte 0, 1 oder 2 haben kann. Die korrekte Statistik für Fermionen wird hier nur gewährleistet über die Symmetrie der Zustände im Ortsraum. Für einen antisymmetrischen Ortsraumzustand kann $n_{\vec{R}}$ nur die Eigenwerte 0 oder 1 haben, weil die beiden Elektronen sich dann nicht am gleichen Gitterplatz aufhalten können. Speziell für die im Ortsraum antisymmetrischen Zustände tritt mit den hier behandelten Hamiltonoperatoren zunächst nur eine einfache Entartung der Zustände auf, die dreifache Triplett-Entartung entsteht erst durch die explizite Berücksichtigung der möglichen Spinzustände, siehe dazu Tabelle 1.1 auf Seite 11. Für die in den folgenden Kapiteln durchzuführenden Berechnungen zu Zweielektron-Systemen werden der Vollständigkeit halber noch explizit die verwendeten Hubbard-Hamiltonoperatoren in einer und in zwei Dimensionen angegeben:

1D, N Gitterplätze:

$$\mathbf{H}_{\text{hubb}}^{1D} = E_0 \sum_i b_i^\dagger b_i + t \sum_{i,\delta=\pm 1} b_i^\dagger b_{i+\delta} + \frac{U}{2} \sum_i (b_i^\dagger b_i - 1) b_i^\dagger b_i$$

$i = 1, \dots, N$ nummeriert dabei alle N Gitterplätze durch.

2D, $N \times N$ Gitterplätze:

$$\mathbf{H}_{\text{hubb}}^{2D} = E_0 \sum_{i,j} b_{i,j}^\dagger b_{i,j} + t \sum_{i,j,\delta=\pm 1} \left[b_{i,j}^\dagger b_{i+\delta,j} + b_{i,j}^\dagger b_{i,j+\delta} \right] + \frac{U}{2} \sum_{i,j} \left(b_{i,j}^\dagger b_{i,j} - 1 \right) b_{i,j}^\dagger b_{i,j}$$

$i = 1, \dots, N, j = 1, \dots, N$ nummerieren dabei alle N Gitterplätze in jeweils einer Dimension durch.

1.5.2 Hamiltonmatrix für die numerischen Berechnungen

Wie wir im vorherigen Kapitel gesehen haben, entspricht die Darstellung des Hamiltonoperators bezüglich einer Zweiteilchen-Basis im Rahmen des Hubbard-Modells auf einem endlichen Gitter bereits einer Matrix. Dieser operiert per Definition auf einem diskreten Gitter lokalisierter Zustände im Ortsraum. Im Gegensatz zu Kapitel 1.4, wo die Diskretisierung als zusätzliche Näherung eingeführt werden musste, um das Zweiteilchen-Problem im Ortsraum numerisch behandeln zu können. Für zwei Teilchen auf einem eindimensionalen Hubbard-Gitter sieht die Darstellung des Hamiltonoperators unter Berücksichtigung starrer Randbedingungen folgendermaßen aus:²⁵

$$\mathbf{H} = \begin{bmatrix} \begin{array}{ccc|ccc} U & t & & & & \\ t & 0 & \ddots & & & \\ & \ddots & \ddots & t & & \\ & & & t & 0 & \\ \hline t & & & 0 & t & \\ & t & & & U & \ddots \\ & & \ddots & & \ddots & t \\ \hline & & & & & t & 0 \\ & & & & & & \ddots \\ & & & & & & & t \\ & & & & & & & & U \end{array} & \begin{array}{ccc|ccc} t & & & & & \\ & t & & & & \\ & & \ddots & & & \\ & & & t & & \\ \hline 0 & t & & & & \\ & t & U & \ddots & & \\ & & \ddots & \ddots & t & \\ \hline & & & & & t & 0 \\ & & & & & & \ddots \\ & & & & & & & t \\ & & & & & & & & U \end{array} & \begin{array}{ccc|ccc} & & & & & \\ & & & & & \\ & & & & & \\ & & & & & \\ \hline & & & & & \\ & & & & & \\ & & & & & \\ \hline & & & & & \\ & & & & & \\ & & & & & \\ \hline & & & & & \\ & & & & & \\ & & & & & \end{array} & \begin{array}{ccc|ccc} & & & & & \\ & & & & & \\ & & & & & \\ & & & & & \\ \hline & & & & & \\ & & & & & \\ & & & & & \\ \hline & & & & & \\ & & & & & \\ & & & & & \end{array} & \begin{array}{ccc|ccc} & & & & & \\ & & & & & \\ & & & & & \\ & & & & & \\ \hline & & & & & \\ & & & & & \\ & & & & & \\ \hline & & & & & \\ & & & & & \\ & & & & & \end{array} & \begin{array}{ccc|ccc} & & & & & \\ & & & & & \\ & & & & & \\ & & & & & \\ \hline & & & & & \\ & & & & & \\ & & & & & \\ \hline & & & & & \\ & & & & & \\ & & & & & \end{array} & \begin{array}{ccc|ccc} & & & & & \\ & & & & & \\ & & & & & \\ & & & & & \\ \hline & & & & & \\ & & & & & \\ & & & & & \\ \hline & & & & & \\ & & & & & \\ & & & & & \end{array} \end{array} + 2E_0 \cdot \mathbf{1} \quad (1.26)$$

Dieser hat eine ganz ähnliche Gestalt wie der diskretisierte Zweiteilchen-Hamiltonoperator in Ortsdarstellung, siehe (1.24). Hier allerdings ermöglicht der kinetische Beitrag zum Hubbard-Hamiltonoperator, das Hubbard- t , die Bewegung eines Elektrons von einem Gitterplatz zu einem benachbarten; außerdem ist die Wechselwirkung, das Hubbard- U , nur gitterplatzdiagonal im Gegensatz zur vollen Coulomb-Wechselwirkung im Ortsraum in (1.24).

²⁵ $\mathbf{1}$ steht hier für die Einheitsmatrix, alle nicht gesetzten Einträge sind identisch Null.

Der Spin der identischen Teilchen ist wieder nur in Form der Symmetrie der Zustände berücksichtigt. Es können also durch Wahl geeigneter Anfangszustände auch hier Singulett- und Triplett-Zustände realisiert werden, da sich die Symmetrie der Zustände während der Zeitentwicklung durch Anwenden des Hamiltonoperators nach Kapitel 1.3 nicht ändern kann. Die Wechselwirkung der Elektronen untereinander kann in diesem Modell in einem im Ortsraum antisymmetrischem Zustand sowieso keine Rolle spielen, da die Teilchen sich bereits durch das Pauli-Prinzip nicht am gleichen Gitterplatz aufhalten können. Die Wechselwirkung wird aber gerade nur gitterplatzdiagonal angenommen. Zum Vergleich mit entsprechenden symmetrischen Zuständen, insbesondere ohne Wechselwirkung, wird aber auch das zeitliche Verhalten solcher Zustände untersucht. Der Hamiltonoperator ist hier nur für starre Randbedingungen in Gleichung (1.26) angegeben, für periodische Randbedingungen muss berücksichtigt werden, dass auch direkte Übergänge der Teilchen vom Rand des betrachteten Gitters zum jeweils gegenüberliegenden Rand möglich sind. Diese periodische Fortsetzung des Gitters führt dann zu zusätzlich auftretenden kinetischen Termen t im Hamiltonoperator. Für Berechnungen auf einem zweidimensionalen Hubbard-Gitter muss der hier nur als Beispiel dargestellte Hamiltonoperator entsprechend erweitert werden, was insbesondere durch die kinetischen Beiträge der beiden Elektronen auf eine Matrix mit fünf besetzten Nebendiagonalen führt.

1.5.3 Analytische Lösung für zwei Elektronen auf 1D-Hubbard-Gitter

Die analytische Lösung des Hubbard-Modells für zwei Elektronen in einer Dimension wird hier nicht im Detail durchgeführt, diese ist ausführlich in [Yosida, 1996] dargestellt. Allerdings wird hier die Lösung unter anderen Randbedingungen durchgeführt, um die analytischen Ergebnisse vollständig mit den numerisch berechneten vergleichen zu können. Deshalb wird nur auf die wesentlichen Abweichungen in der hier durchgeführten Lösung gegenüber der dort beschriebenen eingegangen, zur Herleitung der Gleichungen (1.27 a), (1.27 b), (1.28) und (1.29) siehe [Yosida, 1996].

Die Betrachtung von zwei Elektronen auf einem eindimensionalen Hubbard-Gitter mit nur einem nicht entarteten Einteilchen-Zustand im Ortsraum pro Gitterplatz²⁶ führt auf folgendes Gleichungssystem zur Bestimmung der möglichen Lösungen des Systems:

$$2t [F(n+1) + F(n-1)] \cos(K/2) = EF(n) \quad \text{für } n \neq 0 \quad (1.27 \text{ a})$$

$$2t [F(1) + F(-1)] + UF(0) = EF(0) \quad \text{für } n = 0 \quad (1.27 \text{ b})$$

n steht hier abkürzend für die Relativkoordinate zwischen den beiden Elektronen, also $n = R_n - R_m$, wobei R_m und R_n die Gitterplätze bezeichnen, wo sich diese aufhalten. Es werden N Gitterplätze angenommen (N ungerade), d.h. die Relativkoordinate n zwischen den Elektronen kann unter periodischen Randbedingungen folgende Werte annehmen: $n = 0, \pm 1, \dots, \pm(N-1)/2$. $K = k_1 + k_2$ bezeichnet den Impuls der Schwerpunktbewegung der beiden Elektronen. Die möglichen Eigenzustände des Systems sind mit den Lösungen des Gleichungssystems (1.27 a), (1.27 b) über die folgende Gleichung gegeben:

$$\psi(r_1, r_2) = \sum_{m,n} \Gamma(R_m, R_n) w(r_1 - R_m) w(r_2 - R_n) \quad (1.28)$$

²⁶Der Spin der Elektronen wird hier wieder nicht explizit berücksichtigt, sondern nur über die Symmetrie der Lösungen im Ortsraum.

mit

$$\Gamma(R_m, R_n) = e^{iK(R_m+R_n)/2} F(R_m - R_n) \quad (1.29)$$

Hier bezeichnen $w(r_1 - R_m)$ und $w(r_2 - R_n)$ die Wannier-Zustände, in denen sich die Teilchen an den Gitterplätzen aufhalten können. Für die konkrete Auswertung dieser Gleichungen wird hier, um die Wellenfunktionen grafisch darstellen zu können, $w(r_i - R_j) = \delta_{r_i, R_j}$ angenommen. Die Wannier-Zustände werden dabei als konstant über der j -ten Gitterzelle und sonst identisch Null angenommen. r_i wird nur dafür benutzt, um die Gitterzelle anzugeben, in denen sich ein Teilchen befindet, die räumliche Variation der Wannier-Zustände über den Gitterzellen wird aber vernachlässigt.²⁷ Je nach Symmetrie der gesuchten Lösung muss gelten $\Gamma(R_n, R_m) = \pm \Gamma(R_m, R_n)$, damit die Zweiteilchen-Wellenfunktion insgesamt symmetrisch oder antisymmetrisch wird. Andererseits wird hier mit periodischen Randbedingungen gearbeitet, es muss also gelten:

$$\Gamma(R_n + N, R_m) = \Gamma(R_n, R_m + N) = \Gamma(R_n, R_m)$$

Das bedeutet aber auch, dass unter vorgegebenen Randbedingungen und je nach Symmetrie von F und Γ nach Gleichung (1.29) bestimmte Quantisierungsbedingungen an den Impuls K der Schwerpunktbewegung gestellt werden müssen, was seine möglichen Werte ergibt. Die verschiedenen Möglichkeiten der Symmetrien der einzelnen Faktoren, und die daraus unter den hier gewählten Randbedingungen möglichen gequantelten Werte für den Schwerpunktimпульs K sind in Tabelle 1.2 zusammengestellt.

	Symmetrie unter Teilchenvert.	$F(n)$ unter period. Randbedingungen	Eigenenergie	$\phi(\alpha)$ oder α	Schwerpunkt-Impuls K	l
(1)	$F(n) = F(-n)$	$F(n+N) = +F(n)$	Gl. (1.30)	ϕ_+ in Gl. (1.31)	$K = \frac{4\pi}{N}l$	$l = 0, 1, \dots$
(2)	$F(n) = F(-n)$	$F(n+N) = -F(n)$	Gl. (1.30)	ϕ_- in Gl. (1.31)	$K = \frac{2\pi}{N}(2l+1)$	$l = 0, 1, \dots$
(3)	$F(n) = -F(-n)$	$F(n+N) = +F(n)$	Gl. (1.32)	$\alpha = \frac{\pi}{N}2l$	$K = \frac{4\pi}{N}l$	$l = 0, 1, \dots$
(4)	$F(n) = -F(-n)$	$F(n+N) = -F(n)$	Gl. (1.32)	$\alpha = \frac{\pi}{N}(2l+1)$	$K = \frac{2\pi}{N}(2l+1)$	$l = 0, 1, \dots$

Tabelle 1.2: Zusammenfassung der Symmetrien und Lösungen zum Zweiteilchen-Problem im 1D-Hubbard-Modell unter periodischen Randbedingungen

Lösungen zu symmetrischer Ortswellenfunktion: $F(n) = F(-n)$ (Fälle (1) und (2) in Tabelle 1.2)

Um eine symmetrische Ortswellenfunktion unter Teilchenvertauschung als Lösung von (1.27 a) und (1.27 b) zu erhalten reicht es offensichtlich, folgende Bedingung an $F(n)$ zu stellen: $F(n) = F(-n)$. Wir machen nun den Ansatz $F(n) = \sin(\alpha n + \phi)$ für $n \neq 0$, mit noch zu bestimmenden α und ϕ , um Gleichungssystem (1.27 a), (1.27 b) zu lösen. Aufgrund der periodischen Randbedingungen muss zusätzlich gelten $F(n+N) = \pm F(n)$, woraus sich jeweils die möglichen, in Tabelle 1.2 angegebenen Werte für K nach Gleichung (1.29) ergeben, je nachdem, ob der Faktor $e^{iKN/2}$ gleich $+1$ oder -1 ist. Für die Energie des Systems folgt durch Einsetzen des Ansatzes in Gleichung (1.27 a):

$$E = 4t \cos \alpha \cos(K/2) \quad (1.30)$$

²⁷Diese Annahme ist natürlich alles andere als realitätsnah, wurde hier aber zweckmäßig für die Darstellung der Ergebnisse verwendet. Die kontinuierlichen Farbverläufe in den Abbildungen 1.2 a und 1.2 b sind nur Folge der Interpolation der Farbverläufe durch die Software, die zur Darstellung verwendet wurde.

wobei α noch nach folgender transzendenter Gleichung zu bestimmen ist:²⁸

$$\sin \alpha \cot \phi_{\pm} = -\frac{U}{4t} \quad \text{mit} \quad \phi_{\pm}(\alpha) = \arctan \left[\frac{\sin(\alpha N) \mp \sin \alpha}{\pm \cos \alpha - \cos(\alpha N)} \right] \quad (1.31)$$

Lösungen zu antisymmetrischer Ortswellenfunktion: $F(n) = -F(-n)$ (Fälle (3) und (4) in Tabelle 1.2)

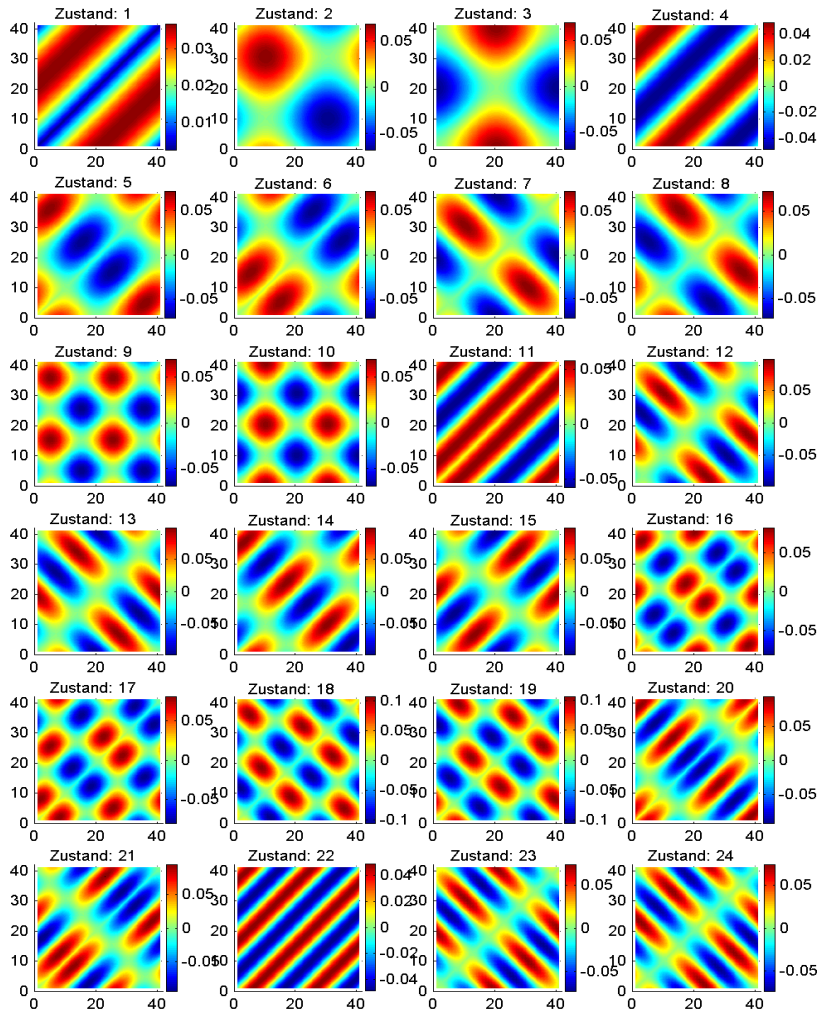
Die Lösungen dieses Modells für antisymmetrische Ortswellenfunktionen unter Teilchenvertauschung sind natürlich einfacher, weil das gitterplatzdiagonale Hubbard- U schon aus Symmetriegründen nicht zur Wirkung kommt, es sich also um ein wechselwirkungsfreies System handelt. Für die Lösungen kann folgender Ansatz gemacht werden: $F(n) = \sin(\alpha n)$. Um die periodischen Randbedingungen zu erfüllen, muss zusätzlich gelten: $F(n+N) = \pm F(n)$. Daraus ergeben sich mit den Gleichungen (1.27a), (1.27b) und (1.29) die möglichen Werte für α und K , wie sie in Tabelle 1.2 nachzulesen sind. Die Energieeigenwerte sind auch hier wieder gegeben durch:

$$E = 4t \cos \alpha \cos(K/2) \quad (1.32)$$

In Abbildung 1.2a sind die analytischen Ergebnisse für die niedrigsten Eigenzustände und -energien im Vergleich zu den entsprechenden numerischen Ergebnissen aus Abbildung 1.2b dargestellt, mit $U = 12,7 \text{ eV}$ und $t = -2,97 \text{ eV}$. Die rein numerisch berechneten Eigenwerte und Eigenzustände wurden durch Diagonalisierung des Hamiltonoperators zum Hubbard-Modell ebenfalls mit entsprechenden periodischen Randbedingungen wie in der analytischen Rechnung berechnet.

Der Vergleich der Abbildungen 1.2a und 1.2b zeigt, dass die numerisch berechneten Zustände zu nicht entarteten Eigenenergien exakt mit den Ergebnissen der analytischen Rechnung übereinstimmen, evtl. bis auf das Vorzeichen. Bei Zuständen zu entarteten Eigenenergien ist die Übereinstimmung augenscheinlich nicht so gut. Das liegt daran, dass bei der numerischen Diagonalisierung des Hamiltonoperators innerhalb der verschiedenen energetisch entarteten Unterräume numerisch irgendwelche Linearkombinationen der analytisch berechneten Eigenzustände gefunden werden. Mit der zusätzlichen Bedingung, dass diese Zustände orthogonal zueinander sind und somit den entsprechenden Unterraum aufspannen, was für beliebig viele verschiedene Linearkombinationen zu erfüllen ist. Bei zweifacher Entartung der Zustände hat das unter den hier verwendeten periodischen Randbedingungen zur Folge, dass die numerisch bestimmten Zustände senkrecht zur Achse konstanter Schwerpunktkoordinaten verschoben erscheinen, wobei sich aber die Symmetrie der Lösungen nicht verändert. Bei höherer energetischer Entartung gibt es in dem höher dimensional Unterraum viele Möglichkeiten zueinander orthogonale Zustände als Linearkombination irgendwelcher Basiszustände zu bilden, die den Unterraum aufspannen, und in der grafischen Darstellung eine sehr unterschiedliche Struktur aufweisen (vgl. hierzu die Zustände 12 bis 15 in den Abbildungen 1.2a und 1.2b). Deshalb stimmen die numerisch berechneten energetisch entarteten Zustände in Abbildung 1.2b grafisch nicht mit den entsprechenden analytischen aus Abbildung 1.2a überein. Die numerisch berechneten Eigenenergien sind aber offensichtlich alle mit den analytisch berechneten identisch.

²⁸Welche der beiden Funktionen $\phi_{\pm}$ zu verwenden ist, hängt vom Impuls K der Schwerpunktbewegung ab und ist Tabelle 1.2 zu entnehmen.



Zustand	Eigenwert [E_{Ryd}]
1	-0,87233
2	-0,86955
3	-0,86955
4	-0,86443
5	-0,86276
6	-0,86276
7	-0,86211
8	-0,86211
9	-0,85430
10	-0,85430
11	-0,85359
12	-0,84917
13	-0,84917
14	-0,84917
15	-0,84917
16	-0,84357
17	-0,84357
18	-0,84251
19	-0,84251
20	-0,83479
21	-0,83479
22	-0,83392
23	-0,83167
24	-0,83167

Abbildung 1.2 a:

Analytisch berechnete Eigenzustände und -energien für zwei Elektronen im 1D-Hubbard-Modell für $N = 41$, Farbskala: $\psi(R_n, R_m)$

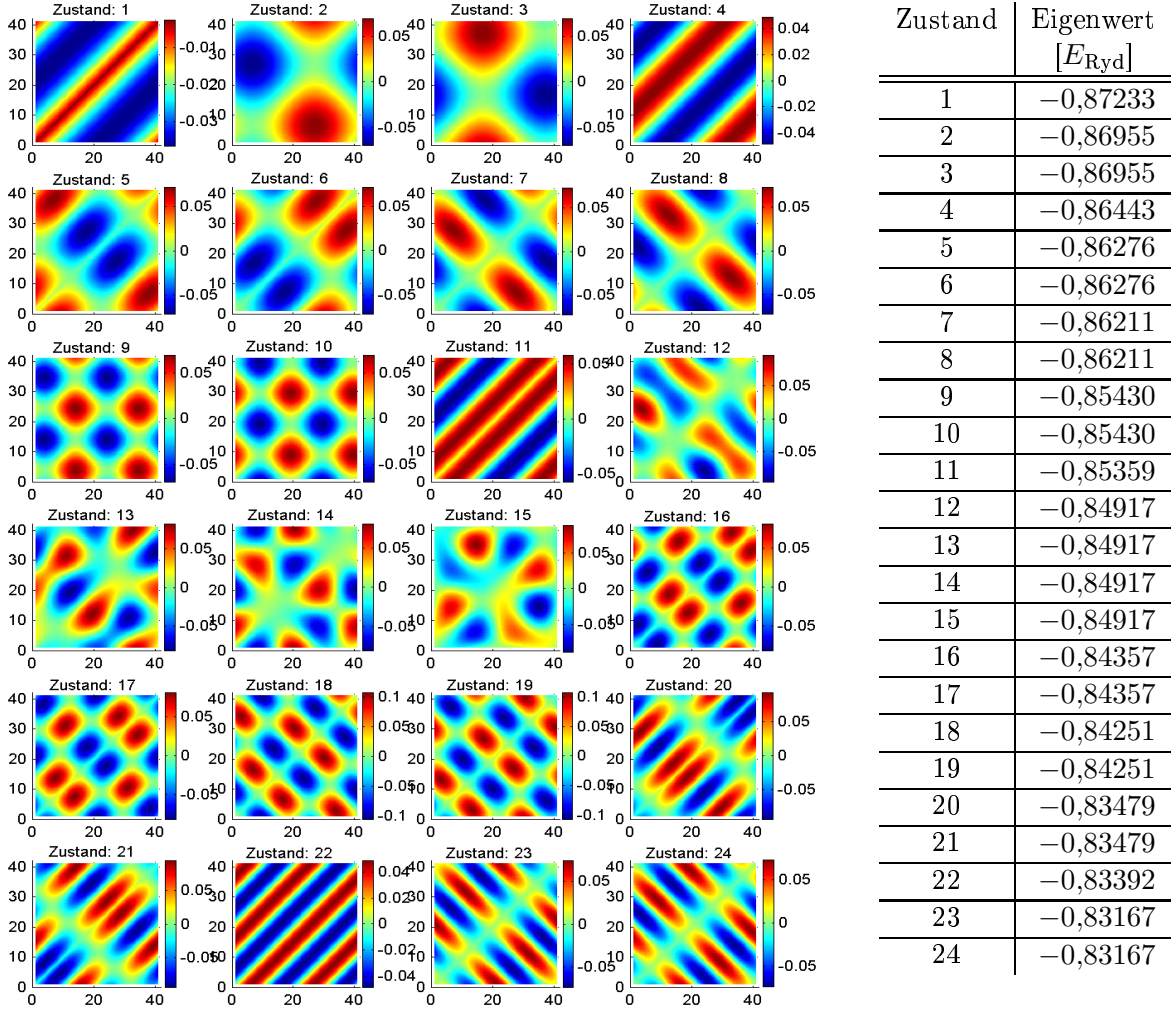


Abbildung 1.2b:

Numerisch berechnete Eigenzustände und -energien für zwei Elektronen im 1D-Hubbard-Modell für $N = 41$, Farbskala: $\psi(R_n, R_m)$

2 Zeitentwicklung von Zweielektronen-Systemen

2.1 Grundlagen

In diesem Kapitel werden zunächst ein paar allgemeine Informationen bezüglich der Interpretation der in den folgenden Kapiteln abgebildeten Ergebnisse zusammengestellt. In einem eindimensionalen System lassen sich die berechneten Zweiteilchen-Wellenfunktionen als dreidimensionale Grafik darstellen.¹ Es wird in diesen Grafiken nur das Betragsquadrat der im Allgemeinen komplexen Wellenfunktionen dargestellt.² Um in einem zweidimensionalen System die Zweiteilchen-Wellenfunktion grafisch noch anschaulich darstellen zu können, muss die Information allerdings auf die Teilchendichte reduziert werden, die bei den Berechnungen im Ortsraum folgendermaßen aus der normierten Wellenfunktion $\psi(x_1, y_1, x_2, y_2)$ berechnet wird:

$$n(x, y) = \int |\psi(x_1, y_1, x, y)|^2 dx_1 dy_1 + \int |\psi(x, y, x_2, y_2)|^2 dx_2 dy_2$$

oder im diskreten Hubbard-Modell, wo die Teilchendichte nur auf die einzelnen Gitterplätze (k, l) bezogen wird:

$$n(k, l) = \sum_{n_1, m_1} |\psi(n_1, m_1, k, l)|^2 + \sum_{n_2, m_2} |\psi(k, l, n_2, m_2)|^2$$

Hierbei nummerieren die n_i, m_i die Gitterplätze durch, mit i als Teilchenindex. Aus der Teilchendichte ergeben sich wiederum dreidimensionale Grafiken, um die berechneten Ergebnisse anschaulich darzustellen. Optisch kann man anhand dieser Grafiken das zeitliche Verhalten von zweidimensionalen Zweiteilchen-Systemen untersuchen – es geht aber natürlich durch die Reduktion der gesamten Wellenfunktion auf die Teilchendichte auch ein gewisser Gehalt an Information verloren. In den Abbildungen der folgenden Kapitel wird zum Teil die dritte Dimension nur farbig wiedergegeben, in jeder Grafik kommt immer die volle hier verwendete Farbskala zum Einsatz, um alle vorkommenden Funktionswerte darzustellen. Bei dieser Art der Darstellung ändert sich die Skala der „z-Achse“ im Allgemeinen von Teilbild zu Teilbild, es sollte demnach nicht direkt versucht werden die Funktionswerte anhand der Farben zwischen den einzelnen Teilbildern innerhalb einer Abbildung zu vergleichen. Zu jedem Teilbild ist jeweils die entsprechende Farbskala mit dargestellt.

Um die Bahnen der einzelnen Teilchen verfolgen zu können, wird in den folgenden Berechnungen zum Teil die quantenmechanische Ununterscheidbarkeit der Teilchen vernachlässigt. Beobachtet man die zeitliche Entwicklung eines Zweiteilchen-Systems aus einem reinen Produktzustand (ohne Symmetrisierung oder Antisymmetrisierung) heraus, erscheint es sinnvoll über die Erwartungswerte für die einzelnen Teilchenkoordinaten die klassischen Bahnen der Teilchenbewegung zu verfolgen, und anhand dieser den Einfluss der Wechselwirkung auf die zeitliche Dynamik eines solchen Systems zu untersuchen.

¹Dabei wird im Allgemeinen die dritte Dimension der Grafiken durch den Einsatz von Farbe dargestellt oder zumindest verdeutlicht.

²Symmetrische und antisymmetrische Zustände unter Teilchenvertauschung lassen sich nach Bildung des Betragsquadrates der Wellenfunktionen nicht mehr durch Spiegelung an der Symmetrieachse in den folgenden Abbildungen unterscheiden.

Die Erwartungswerte der Teilchenkoordinaten werden dabei folgendermaßen berechnet:

$$\begin{aligned}\langle x_i \rangle &= \int \psi^*(x_1, y_1, x_2, y_2) x_i \psi(x_1, y_1, x_2, y_2) dx_1 dy_1 dx_2 dy_2 \\ \langle y_i \rangle &= \int \psi^*(x_1, y_1, x_2, y_2) y_i \psi(x_1, y_1, x_2, y_2) dx_1 dy_1 dx_2 dy_2\end{aligned}$$

Eine solche Betrachtung der „Positionen“ der Teilchen ist natürlich nur sinnvoll, solange noch stark im Raum lokalisierte Wellenfunktionen der Teilchen existieren und die konstruierten Anfangszustände noch nicht zu weit auseinander gelaufen sind. Außerdem sollte man bei diesen Darstellungen im Auge behalten, dass die quantenmechanische Ununterscheidbarkeit identischer Teilchen vernachlässigt wird, der Einfluss der Symmetrie der Zustände auf die Zeitentwicklung also nicht berücksichtigt ist. Für die Berechnungen im Ortsraum in einer und zwei Dimensionen wird in den folgenden Berechnungen die Stärke der Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Elektronen variiert. Diese Variation erfolgt durch die Multiplikation der Coulomb-Wechselwirkung in den numerischen Berechnungen mit einem Faktor κ :

$$\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 (|\vec{x}_1 - \vec{x}_2| + \mu)} \longrightarrow \kappa \cdot \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 (|\vec{x}_1 - \vec{x}_2| + \mu)}$$

Für $\kappa = 1$ erhält man also die reale Stärke der Coulomb-Wechselwirkung zwischen zwei Elektronen, allerdings für ein durch den Parameter μ „abgeschnittenes“ Coulomb-Potential³.

2.2 Kontrolle der numerischen Implementierung

In diesem Kapitel wird zunächst die numerische Implementierung des in Kapitel 1.2 beschriebene SOD-Algorithmus untersucht. Dazu wird als erstes Beispiel die Propagation eines eindimensionalen, elektronischen Einteilchen-Wellenpaketes unter dem Einfluss einer rechteckigen Potentialbarriere grafisch dargestellt, und die numerisch berechnete Transmission des Elektrons durch die Barriere mit dem analytischen Ergebnis verglichen. Analytisch lässt sich der Transmissionskoeffizient $T(E)$ für eine ebene Teilchenwelle der Energie E durch eine rechteckige Potentialbarriere der Höhe $V_0 > E$ und der Breite $2a$ nach folgender Formel berechnen:⁴

$$\begin{aligned}T(k) &= \frac{1}{1 + (1 + \varepsilon^2/4) \sinh^2 2ka} \\ \text{mit } \varepsilon &= \frac{\kappa}{k} - \frac{k}{\kappa}, \quad k = \sqrt{\frac{2m_e E}{\hbar^2}}, \quad \kappa = \sqrt{\frac{2m_e (V_0 - E)}{\hbar^2}}\end{aligned} \quad (2.1)$$

Der Potentialverlauf ist schematisch in Abbildung 2.1 dargestellt. Numerisch wird allerdings die Transmission eines Gauß'schen Wellenpaketes

$$\psi(x) = \frac{1}{(2\pi\Delta^2)^{1/4}} e^{-(x-x_0)^2/(4\Delta^2)} e^{-ik_0(x-x_0)} \quad (2.2)$$

durch die Potentialbarriere betrachtet.

³Siehe dazu die Erläuterungen auf Seite 13.

⁴Siehe [Schwabl, 1998]

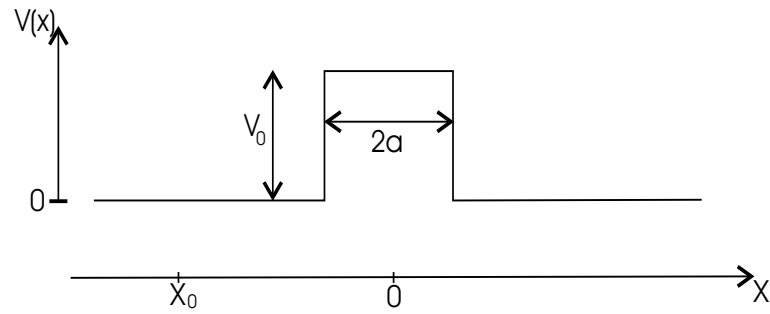


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung der rechteckigen Potentialbarriere

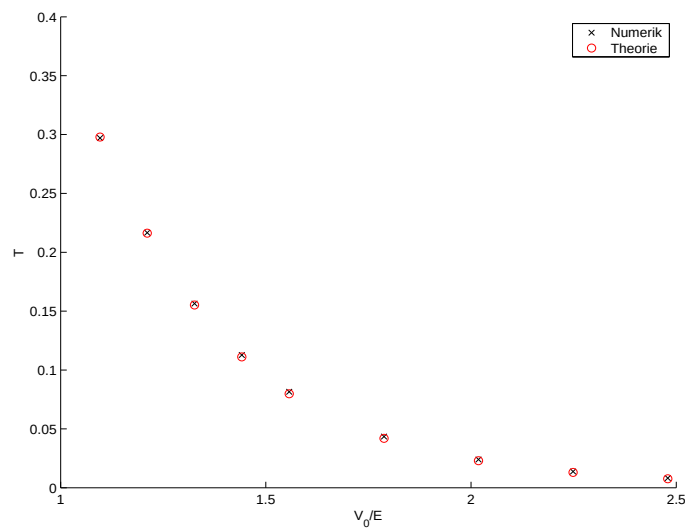


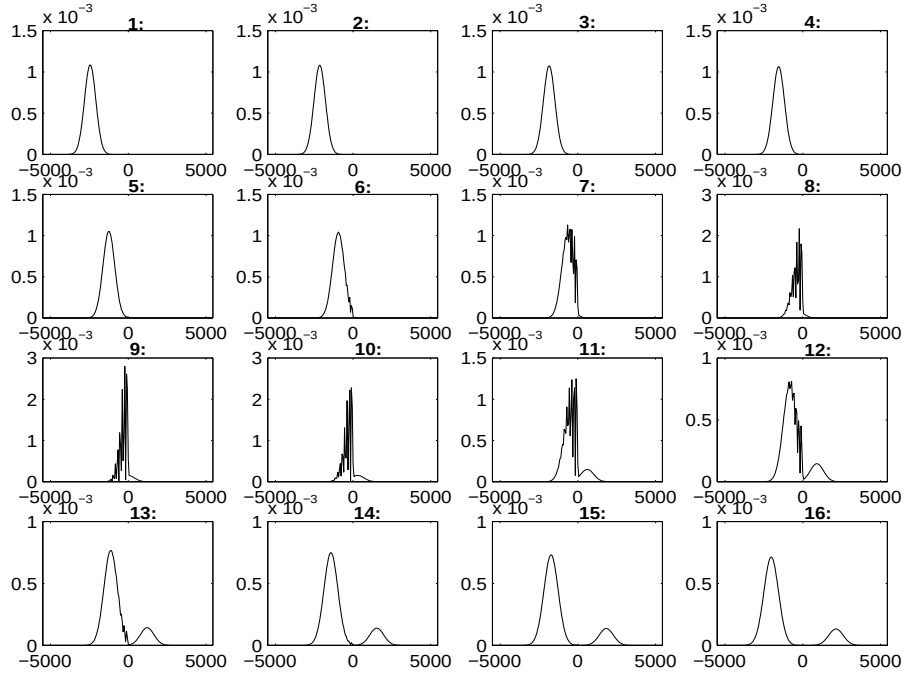
Abbildung 2.2:

Transmission T eines elektronischen Wellenpaketes durch eine Potentialbarriere in Abhängigkeit von V_0/E , $2a = 110a_0$

Deshalb wird in der analytischen Rechnung der Transmissionskoeffizient nach Gleichung (2.1) berechnet, aber als gewichtete Summe über alle Transmissionskoeffizienten ebener Wellen, die in einem der numerischen Rechnung entsprechenden Gauß'schen Wellenpaket enthalten sind:

$$T = \int_{-\infty}^{\infty} dk |\psi(k)|^2 T(k) \quad \text{mit} \quad \psi(k) = \left(\frac{2\Delta^2}{\pi} \right)^{1/4} e^{-\Delta^2(k-k_0)^2} e^{ikx_0} \quad (2.3)$$

Der so analytisch berechnete Transmissionskoeffizient ist in Abbildung 2.2 dem aus der numerischen Simulation für einige V_0/E -Werte gegenübergestellt. Bei dem Vergleich dieser Ergebnisse muss berücksichtigt werden, dass die Potentialbarriere für die numerische Rechnung mit wenigen Stützstellen im Ortsraum konstruiert wurde. Trotzdem ist nur eine sehr geringe Abweichung der Ergebnisse voneinander in Abbildung 2.2 zu erkennen. Exemplarisch ist die Transmission des Wellenpaketes für $V_0/E \approx 1,326$ in Abbildung 2.3 dargestellt. Ein „Aus-einanderlaufen“ des Wellenpaketes kann hier aufgrund der kurzen Zeitskala kaum beobachtet werden.



Abbildungung 2.3:

Streuung eines eindimensionalen Einteilchen-Wellenpaketes an einer Potentialbarriere, X -Achse: $x[a_0]$, Y -Achse: $|\psi(x)|^2$, Zeit zwischen den Teilbildern 24,3 fs, $V_0/E \approx 1,326$, $2a = 110a_0$

Als zweites Beispiel wird nun noch das Verhalten eines Zweiteilchen-Systems in zwei Dimensionen ausgehend von einem bekannten Anfangszustand untersucht. Dieses Beispiel wird noch einmal bestätigen, dass die numerische Integration der zeitabhängigen Schrödingergleichung sinnvolle und korrekte Ergebnisse liefert. Hierzu wird diesmal der Anfangszustand konstruiert als Linearkombination aus den niedrigsten beiden symmetrischen Eigenzuständen $|1_{\text{symm}}\rangle$ und $|2_{\text{symm}}\rangle$ des Systems.

$$|\psi(0)\rangle = a_{1_{\text{symm}}}(0) |1_{\text{symm}}\rangle + a_{2_{\text{symm}}}(0) |2_{\text{symm}}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} |1_{\text{symm}}\rangle + \frac{1}{\sqrt{2}} |2_{\text{symm}}\rangle \quad (2.4)$$

Ausgehend von diesem Zustand kann die zeitliche Entwicklung des Systems dann nach Gleichung (1.10) analytisch berechnet werden und ist somit vergleichbar mit dem numerischen Ergebnis. Dazu ist sowohl die zeitliche Entwicklung der Teilchendichte des Systems in den Abbildungen 2.4a und 2.4b dargestellt, als auch das zeitliche Verhalten der Entwicklungskoeffizienten aus Gleichung (2.4) in der numerischen Berechnung in Abbildung 2.4c. Deren Betrag $|a_{1_{\text{symm}}}(t)|$ und $|a_{2_{\text{symm}}}(t)|$ sollte nach Kapitel 1.1 konstant bleiben, was hier als Kontrolle der numerischen Implementierung und für den SOD-Algorithmus verwendet werden kann. In Abbildung 2.4c lässt sich eine kleine⁵ periodische Schwankung der $|a_{n_{\text{symm}}}(t)|$ um ihren Sollwert $1/\sqrt{2}$ erkennen. Bis auf diese kleinen numerisch bedingten Schwankungen ist der SOD-Algorithmus aber tatsächlich als stabiler Algorithmus zur Berechnung der Zeitentwicklung der

⁵Man beachte, dass die Schwankungen nur von der Größenordnung $1 \cdot 10^{-7}$ sind.

zeitabhängigen Schrödingergleichung geeignet.⁶ Anhand der grafischen Darstellung der Zeitentwicklung der Teilchendichte im System in den Abbildungen 2.4 a und 2.4 b lässt sich kein Unterschied zwischen analytischer und numerischer Lösung erkennen.

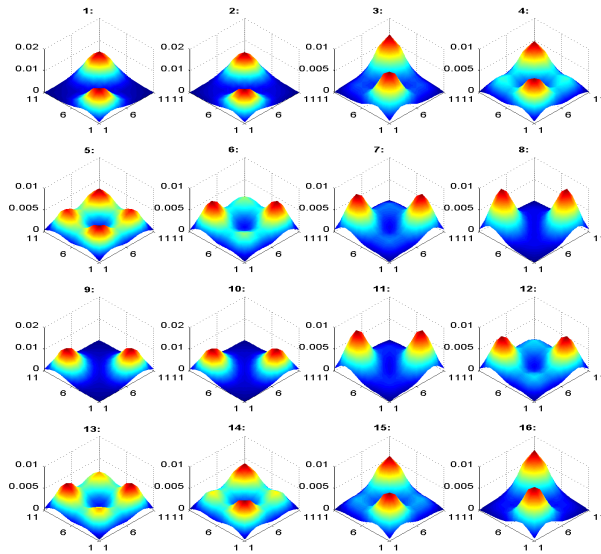


Abbildung 2.4a:

Analytisch berechnetes Zeitverhalten, X(Y)-Achse: $x(y)[2,5 a_0]$, Z-Achse und Farbskala: $n(x, y)$, Zeit zwischen den Teilbildern 0,91 fs, $\kappa = 1$

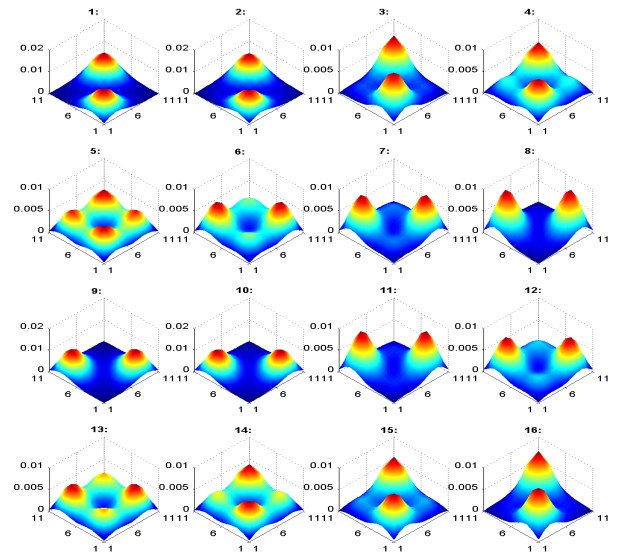


Abbildung 2.4b:

Numerisch berechnetes Zeitverhalten, X(Y)-Achse: $x(y)[2,5 a_0]$, Z-Achse und Farbskala: $n(x, y)$, Zeit zwischen den Teilbildern 0,91 fs, $\kappa = 1$

Zum Vergleich ist in Abbildung 2.5 die Zeitentwicklung der $|a_{n_{\text{symm}}}(t)|$ dargestellt, allerdings berechnet mit einem Runge-Kutta-Verfahren vierter Ordnung, wie es auf Seite 9 beschrieben wurde. Es ist deutlich zu erkennen, dass hier der Betrag der Entwicklungskoeffizienten $|a_{n_{\text{symm}}}(t)|$ nicht nur um den Sollwert $1/\sqrt{2}$ oszilliert, sondern die Werte stetig kleiner werden. Diese stetige Abnahme findet für das hier gewählte Beispiel auf einer deutlich kleineren Skala statt als die Oszillationen im SOD-Verfahren. Dieses Verhalten führt bei langen Laufzeiten aber dazu, dass die Norm des Anfangszustandes nicht erhalten bleibt. Außerdem sind nach langen Laufzeiten auch Zustände im System enthalten, die in dem gewählten Anfangszustand nicht enthalten waren. Eine Behandlung dieses Beispiels mit dem Euler-Verfahren, vgl. Gleichung (1.11) auf Seite 7, führt sogar für sehr viel kleinere Zeitschritte als beim SOD-Verfahren zu numerisch instabilem Verhalten. Dabei setzen sich nach sehr kurzer Zeit Zustände im System durch, die in dem konstruierten Anfangszustand ursprünglich nicht enthalten waren.

Nachdem in diesem Kapitel zumindest exemplarisch der SOD-Algorithmus erfolgreich getestet worden ist, wird er im folgenden Kapitel auf verschiedene Beispielsysteme angewandt. Es handelt sich hierbei um ein- und zweidimensionale Zweielektronen-Systeme, anhand derer insbesondere der Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung auf die zeitliche Dynamik der Systeme untersucht wird.

⁶Obwohl hier, in den Abbildungen 2.4 a, 2.4 b und 2.4 c, die Zeitentwicklung nur bis zu einer maximalen Zeit von ca. 15 fs dargestellt ist, liefert der SOD-Algorithmus auch für sehr lange Zeitentwicklungen das gleiche periodisch wiederkehrende Verhalten der Koeffizienten $|a_{n_{\text{symm}}}(t)|$ und ergibt unter Beachtung des Stabilitätskriteriums (1.14) keine numerischen Instabilitäten für Systeme mit hermiteschem Hamiltonoperator.

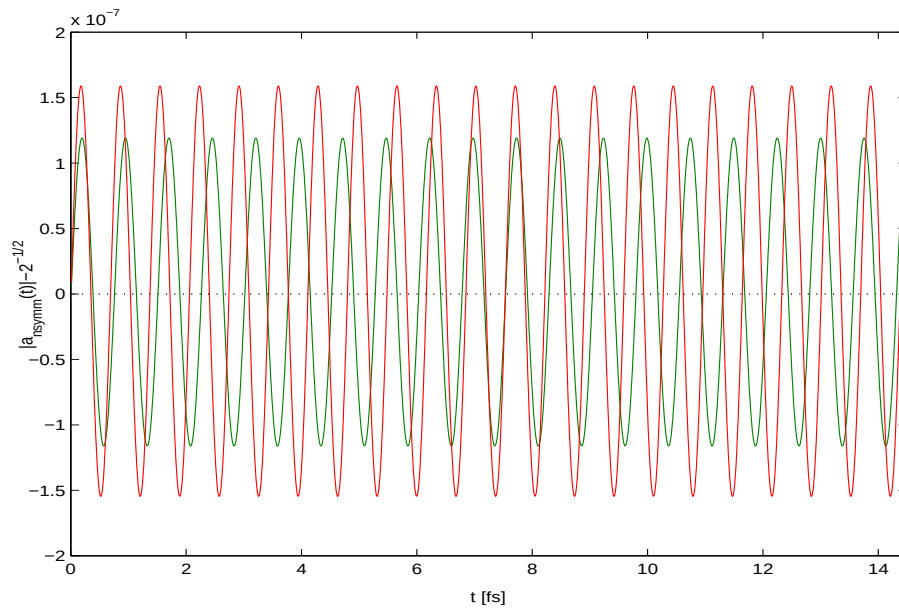


Abbildung 2.4c:

Zeitentwicklung der Entwicklungskoeffizienten aus Gleichung (2.4), berechnet mit dem SOD-Algorithmus (1.13), siehe die Beschreibung im Text

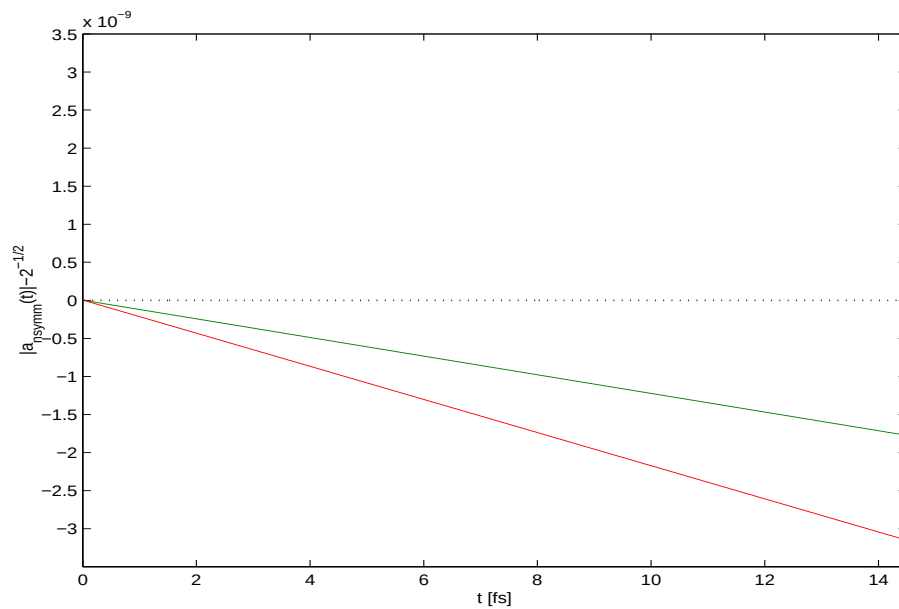


Abbildung 2.5:

Zeitentwicklung der Entwicklungskoeffizienten aus Gleichung (2.4), berechnet mit dem Runge-Kutta-Verfahren vierter Ordnung (1.15), siehe die Beschreibung im Text

2.3 Zeitentwicklung ein- und zweidimensionaler Zweielektronen-Systeme

Nachdem in Form von Beispielen die Implementierung des SOD-Algorithmus zur numerischen Integration der zeitabhängigen Schrödingergleichung im letzten Kapitel untersucht worden ist, kann nun in den folgenden beiden Kapiteln die Berechnung der Zeitentwicklung eines Zweiteilchen-Systems in einer und in zwei Dimensionen im Ortsraum und im Rahmen des Hubbard-Modells erfolgen.

2.3.1 Coulomb-Streuung von zwei Elektronen im Ortsraum

Zunächst wird hier anhand von grafischen Darstellungen die Streuung von zwei Elektronen in einer Dimension in Abhängigkeit der Stärke der Wechselwirkung untersucht. Dazu ist in den Abbildungen 2.6 a, 2.6 b und 2.6 c die berechnete zeitliche Entwicklung von zwei sich aufeinander zu bewegendenden elektronischen Wellenpaketen für unterschiedlich starke Wechselwirkung zwischen den beiden Elektronen dargestellt. In einer Dimension sind Berechnungen für zwei Elektronen mit ausreichend vielen Stützstellen möglich (hier 200), um Wellenpakete für beide Teilchen zu konstruieren und z.B. auch gezielt einen externen Potentialverlauf vorzugeben. In dem hier gezeigten Beispiel wird außer den starren Randbedingungen aber kein externes Potential berücksichtigt, um die Beobachtungen auf den Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung zu konzentrieren. Es wird hier die Coulomb-Streuung von zwei elektronischen Gauß'schen Wellenpaketen mit gleichem Energieschwerpunkt und gleicher räumlicher Breite in einer Dimension simuliert, d.h die Zweiteilchen-Wellenfunktion zur Zeit $t = 0$ lässt sich folgendermaßen schreiben:⁷

$$\begin{aligned}\psi(x_1, x_2) &= \frac{1}{\sqrt{2}} [\phi_1(x_1)\phi_2(x_2) \pm \phi_2(x_1)\phi_1(x_2)] \\ \text{mit } \phi_1(x) &= \left[\frac{1}{2\pi\Delta^2} \right]^{1/4} e^{-(x-a)^2/(4\Delta^2)} e^{-ik_0(x-a)} \\ \text{und } \phi_2(x) &= \left[\frac{1}{2\pi\Delta^2} \right]^{1/4} e^{-(x-b)^2/(4\Delta^2)} e^{ik_0(x-b)}\end{aligned}$$

Hierbei bezeichnen a und b jeweils die Positionen der Maxima (Schwerpunkte) der Wellenpakete im Ortsraum zum Zeitpunkt $t = 0$, die so gewählt werden, dass sich die Wellenpakete mit den Impulsen k_0 und $-k_0$ aufeinander zu bewegen. Δ gibt die räumliche Breite der Wellenpakete an und damit auch automatisch die enthaltenen Energien um den Energieschwerpunkt, der durch $E_0 = \frac{\hbar^2 k_0^2}{2m_e}$ bestimmt wird.⁸

In Abbildung 2.6 a ist keine Wechselwirkung zwischen den Elektronen enthalten, weshalb sich die beiden Wellenpakete ungehindert durcheinander hindurch bewegen können. Mit Wechselwirkung kann man erkennen, dass in Abbildung 2.6 c durch die stärkere Abstoßung der Elektronen untereinander der minimale Abstand der Wellenpakete etwas größer ist als in Abbildung 2.6 b. Ein „Auseinanderlaufen“ der Wellenpakete mit der Zeitentwicklung ist in den hier gezeigten Abbildungen aufgrund der kurzen Zeitskalen noch nicht zu beobachten, ließe sich aber mit der gleichen Methode bei anderer Wahl der Parameter natürlich ebenfalls simulieren.

⁷Mit + oder – je nach Symmetrie des Ortsraumzustandes, wobei in diesem Beispiel nur der symmetrische Ortsraumzustand weiter untersucht wird.

⁸Ein Gauß'sches Wellenpaket mit zentralem Impuls k_0 und Breite 2Δ in Ortsdarstellung ist ein Gauß'sches Wellenpaket in k -Darstellung mit Maximum (Schwerpunkt) bei $k = k_0$ und Breite $1/\Delta$, siehe auch Seite 29.

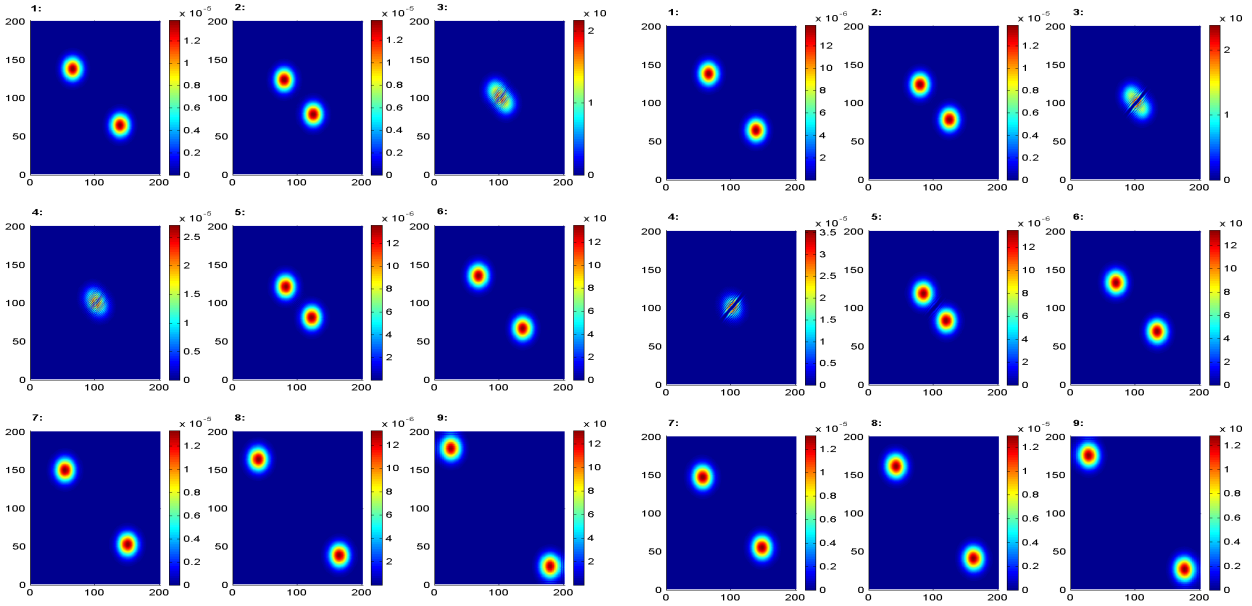


Abbildung 2.6 a:

Propagation von zwei elektronischen Wellenpaketen in einer Dimension ohne Wechselwirkung, $X_1(X_2)$ -Achse: $x_1(x_2)[55 a_0]$, Farbskala: $|\psi(x_1, x_2)|^2$, Zeit zwischen den Teilbildern 45 fs

Abbildung 2.6 b:

Streuung von zwei elektronischen Wellenpaketen in einer Dimension, $\kappa = 1$, $X_1(X_2)$ -Achse: $x_1(x_2)[55 a_0]$, Farbskala: $|\psi(x_1, x_2)|^2$, Zeit zwischen den Teilbildern 45 fs

Als nächstes wird die Bewegung und Streuung von zwei Elektronen aneinander in zwei Dimensionen im Ortsraum betrachtet. Aufgrund des numerischen Aufwandes können hier nur Systeme mit bis zu 20 Diskretisierungsschritten pro Ortskoordinate behandelt werden. Dieses kleine Gitter im Ortsraum erlaubt keine Konstruktion von Wellenpaketen zur Darstellung der Teilchen mehr. Es ergibt sich daraus die Schwierigkeit, den beiden Elektronen eine bestimmte Bewegungsrichtung über die Wahl des Anfangszustandes zu geben. Hierfür können allerdings die durch die numerische Behandlung eingeführten starren Randbedingungen ausgenutzt werden. Als Anfangszustand konstruiert man dazu einen Zustand, in dem sich die beiden Teilchen in jeweils einer Ecke des diskretisierten Gebietes aufhalten. Es resultiert in der weiteren Zeitentwicklung zunächst eine gerichtete Bewegung der beiden Elektronen aus den Ecken heraus, da eine Bewegung in die andere Richtung aufgrund der speziellen Randbedingungen nicht möglich ist. Daraus lässt sich durch einen geeignet gewählten Anfangszustand eine Situation konstruieren, in der sich die beiden Teilchen zunächst aufeinander zu bewegen und dann aneinander gestreut werden.

Die gesamte zeitliche Entwicklung dieses Systems wird natürlich in hohem Maße durch die für die numerische Behandlung eingeführten Randbedingungen bestimmt, ermöglicht aber die Untersuchung und Visualisierung der Streuung von zwei Elektronen in zwei Dimensionen aneinander. Es kann auch hier die Stärke der Coulomb-Wechselwirkung variiert werden und die Symmetrie der Wellenfunktionen unter Teilchenvertauschung, siehe hierzu die Abbildungen 2.7 a, 2.7 b und 2.7 c. In Abbildung 2.7 a (ohne Wechselwirkung) ist zu erkennen, dass die beiden Elektronen ungehindert durcheinander zu den gegenüberliegenden Ecken laufen. Ihre Bewegung wird nur durch die Randbedingungen bestimmt. In Abbildung 2.7 b sieht man, dass ein deutlicher Anteil der Wellenfunktionen beim „Aufeinandertreffen“ der Elektronen in der Mitte

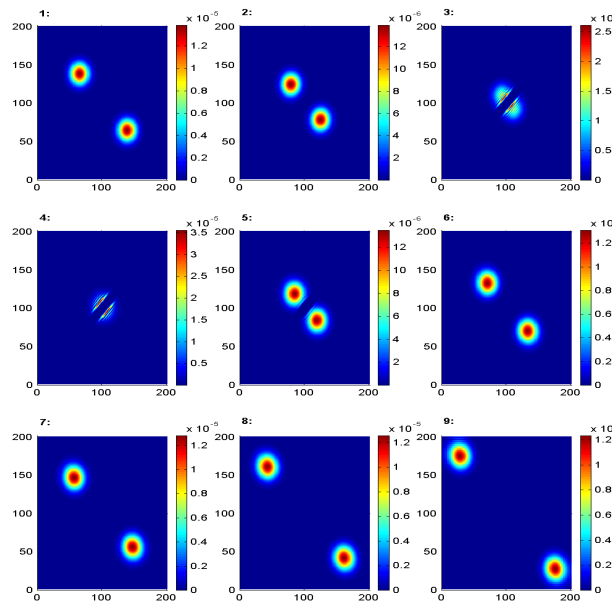


Abbildung 2.6 c:

Streuung von zwei elektronischen Wellenpaketen in einer Dimension $\kappa = 3$, $X_1(X_2)$ -Achse: $x_1(x_2)[55 a_0]$, Farbskala: $|\psi(x_1, x_2)|^2$, Zeit zwischen den Teilbildern 45 fs

des diskretisierten Gebietes durch die Coulomb-Wechselwirkung zu den Seiten gestreut wird. Der gestreute Anteil ist bei gleicher Coulomb-Wechselwirkung deutlich geringer, wenn man als Anfangszustand einen antisymmetrischen Ortsraumzustand wählt. Aufgrund dessen, dass die Aufenthaltswahrscheinlichkeit für beide Elektronen am selben Ort im antisymmetrischen Fall bereits aus Symmetriegründen verschwindet, kommt die abstoßende Coulomb-Wechselwirkung zwischen ihnen weniger zur Wirkung, wie der Vergleich der Abbildungen 2.7 b und 2.7 c zeigt.

Zur Unterstützung der Interpretation der grafisch dargestellten Ergebnisse wird hier in einigen Beispielrechnungen die quantenmechanische Unterscheidbarkeit von Elektronen fallen gelassen, um ihre Bahnen anhand von Trajektorien verfolgen zu können, was ja gerade ihre Unterscheidbarkeit voraussetzt. Diese Art der Darstellung ermöglicht eine sehr anschauliche Beobachtung der Teilchenbewegung und bestätigt die naheliegende Interpretation der zeitlichen Entwicklung der Teilchendichten. Aus quantenmechanischer Sicht muss dazu natürlich ein wesentlicher Effekt, nämlich die Ununterscheidbarkeit identischer Teilchen, vernachlässigt werden. Zumindest anhand der folgenden Beispiele trägt diese Art der Darstellung aber sicherlich zur Interpretation der Ergebnisse bei.

In den Abbildungen 2.8 a, 2.8 b und 2.8 c ist bei den Berechnungen jeweils die Stärke der Wechselwirkung verändert worden. Ohne Wechselwirkung beeinflussen sich die beiden Elektronen bei ihrer Bewegung nicht, diese wird ausschließlich aus dem gewählten Anfangszustand heraus von den starren Randbedingungen bestimmt. In Abbildung 2.8 b mit schwacher Coulomb-Wechselwirkung ist anhand der Bewegungsbahnen schon eine deutliche Abstoßung der Elektronen untereinander zu beobachten, die in Abbildung 2.8 c durch weitere Steigerung der Wechselwirkung noch verstärkt wird. Die Umkehr der Bewegungsrichtungen der beiden Elektronen an den Rändern des Gebietes entsteht wieder durch ihre Reflexion an den starren Rändern.

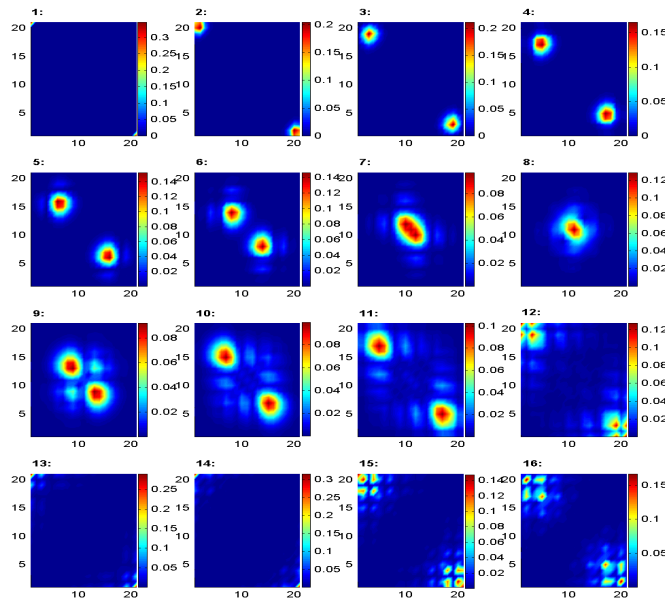


Abbildung 2.7 a:

Streuung von zwei Elektronen in zwei Dimensionen, $\kappa = 0$, X(Y)-Achse: $x(y)[1,7a_0]$, Farbskala: $n(x, y)$, Zeit zwischen den Teilbildern 0,13 fs

Durch die insgesamt relativ lange Laufzeit ist deutlich ein Auseinanderlaufen der Teilchendichten zu beobachten. Am Ende der Berechnungen ist die Teilchendichte an den meisten Stellen des diskretisierten Gebietes ungleich Null. Man kann dann eigentlich nicht mehr von im Ort lokalisierten Elektronen sprechen.

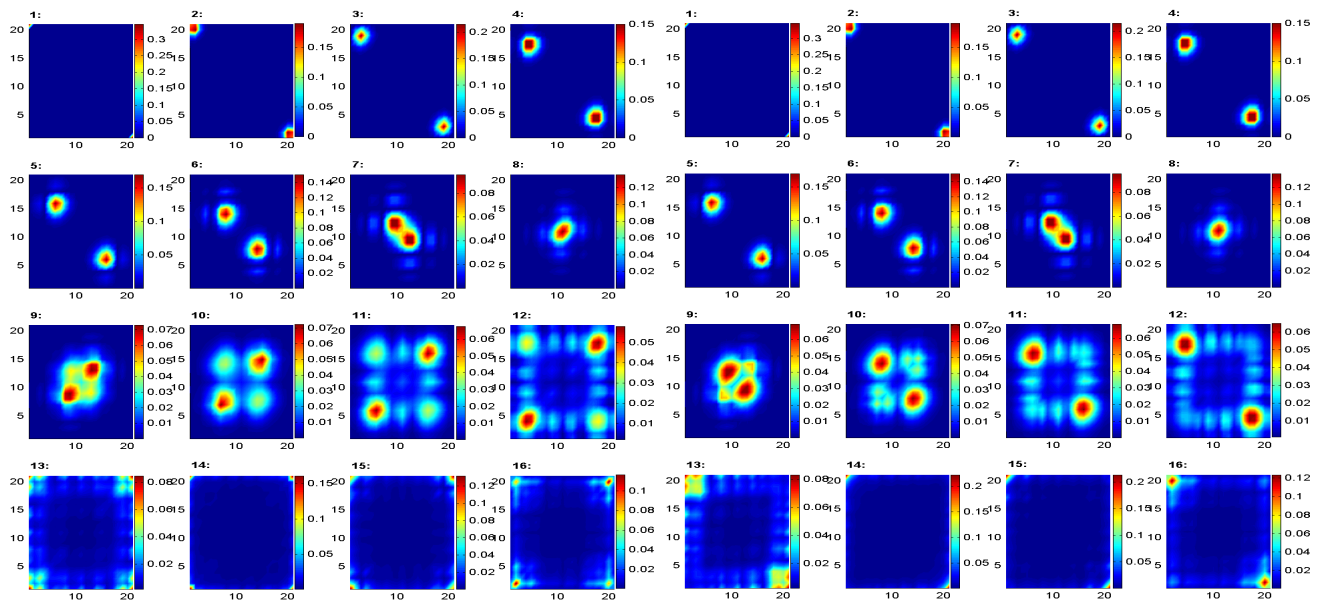
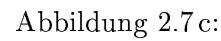


Abbildung 2.7 b:

Streuung von zwei Elektronen in zwei Dimensionen, $\kappa = 2$, symmetrische Wellenfunktion, X(Y)-Achse: $x(y)[1,7 a_0]$, Farbskala: $n(x, y)$, Zeit zwischen den Teilbildern 0,13 fs



Streuung von zwei Elektronen in zwei Dimensionen, $\kappa = 2$, antisymmetrische Wellenfunktion, X(Y)-Achse: $x(y)[1,7 a_0]$, Farbskala: $n(x, y)$, Zeit zwischen den Teilbildern 0,13 fs

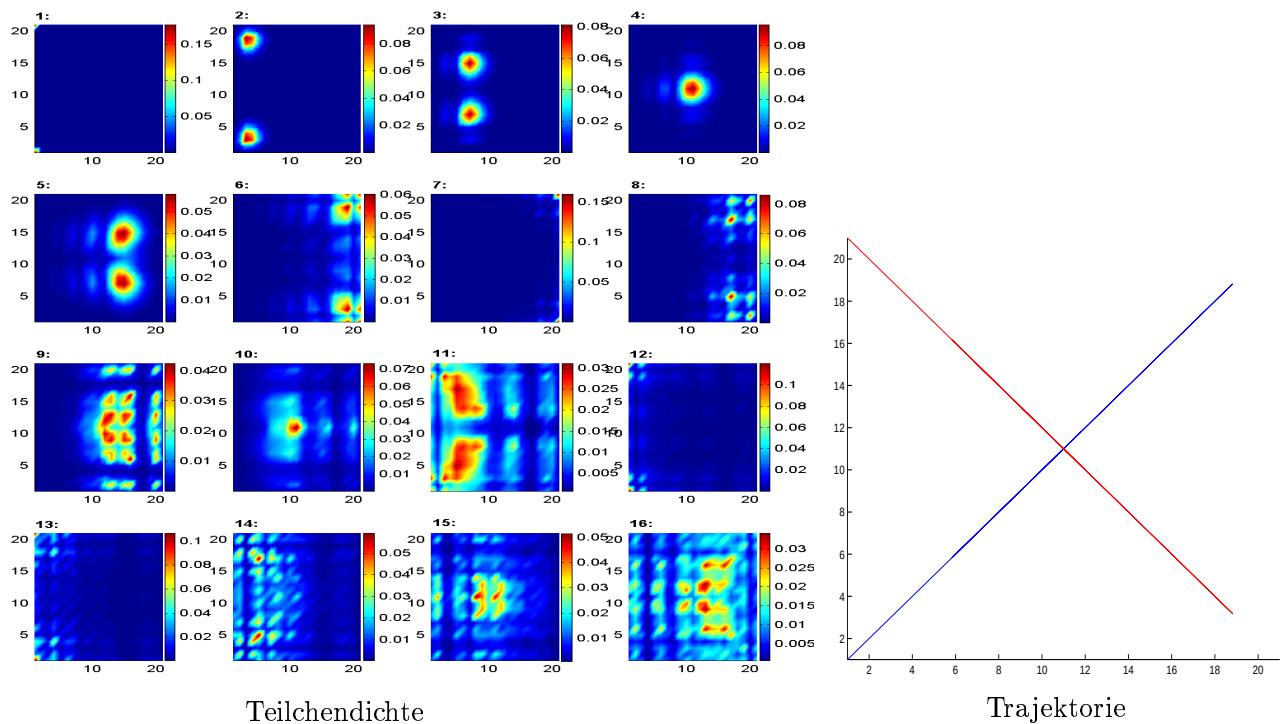


Abbildung 2.8 a:

Streuung von zwei „unterscheidbaren Elektronen“ in zwei Dimensionen, $\kappa = 0$, X(Y)-Achse: $x(y)[2,0a_0]$, Farbskala: $n(x, y)$, Zeit zwischen den Teilbildern 0,37 fs

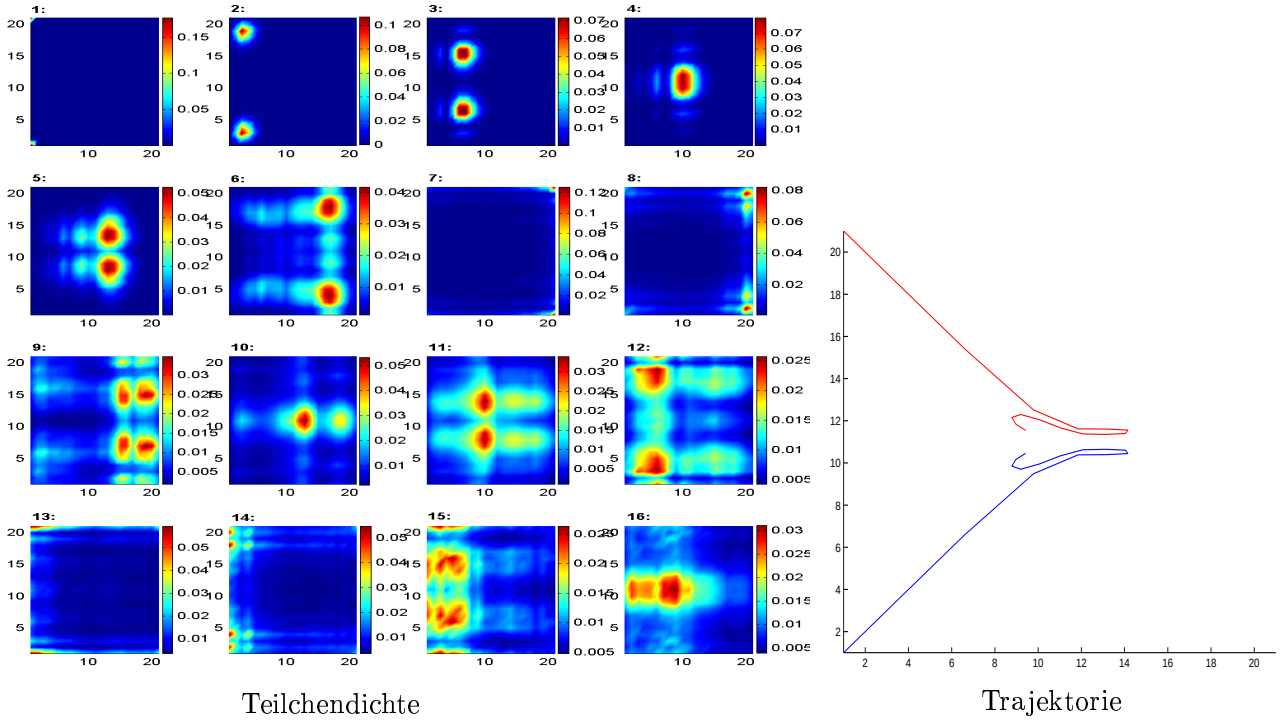


Abbildung 2.8 b:

Streuung von zwei „unterscheidbaren Elektronen“ in zwei Dimensionen, $\kappa = 2$, X(Y)-Achse: $x(y)[2,0 a_0]$, Farbskala: $n(x, y)$, Zeit zwischen den Teilbildern 0,37 fs

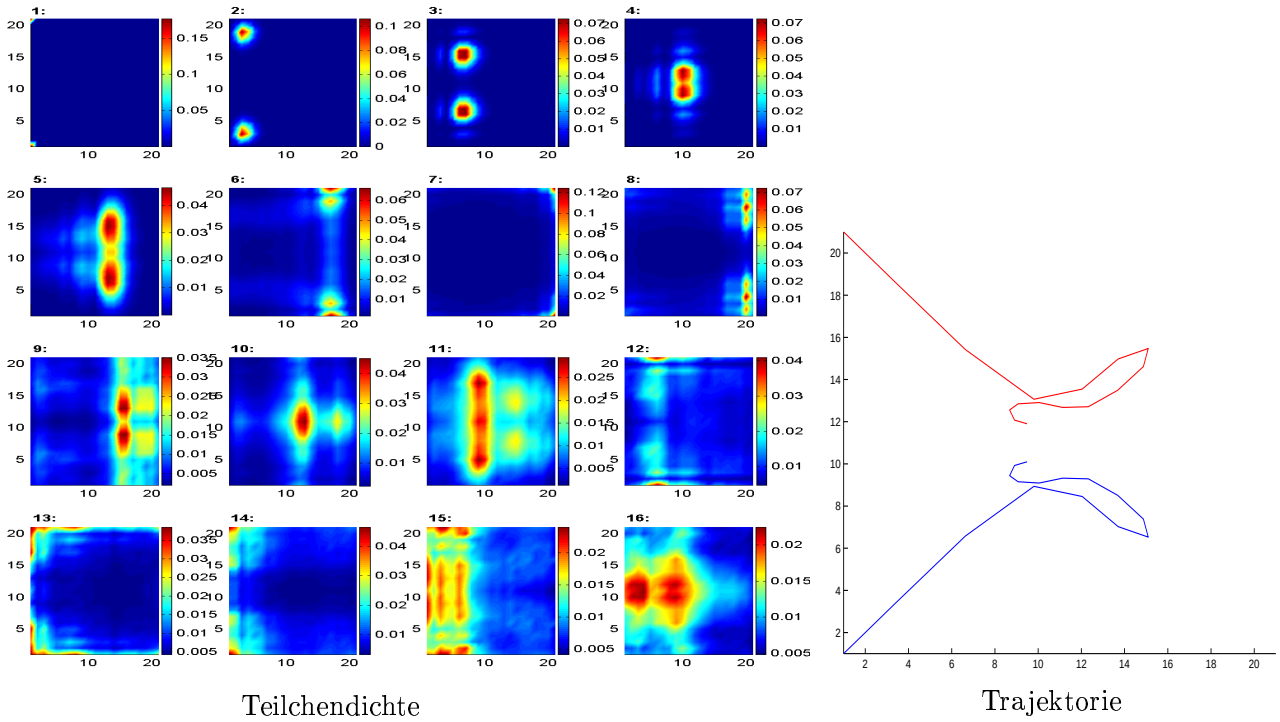


Abbildung 2.8 c:

Streuung von zwei „unterscheidbaren Elektronen“ in zwei Dimensionen, $\kappa = 4$, X(Y)-Achse: $x(y)[2,0 a_0]$, Farbskala: $n(x, y)$, Zeit zwischen den Teilbildern 0,37 fs

2.3.2 Zeitentwicklung von Zweielektronen-Zuständen im Hubbard-Modell

In Kapitel 1.5.3 ist gezeigt worden, dass sich das Zweiteilchen-Problem auf einem eindimensionalen Hubbard-Gitter bis auf die Bestimmung der Lösungen einer transzendenten Gleichung für die Energieeigenwerte und Eigenzustände analytisch lösen lässt. Hier wird nun noch einmal anhand dieser bekannten Lösungen für das Zweielektronen-Problem die analytische Zeitentwicklung ausgehend von einer Linearkombination aus symmetrischen Eigenzuständen zu $k = 0$

$$|\psi(t=0)\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|1\rangle_{k=0}^{\text{symm}} + |2\rangle_{k=0}^{\text{symm}})$$

mit der daraus resultierenden, numerisch berechneten Zeitentwicklung verglichen. Die analytische Lösung des Problem ist bekannt:

$$|\psi(t)\rangle = a_1(t) |1\rangle_{k=0}^{\text{symm}} + a_2(t) |2\rangle_{k=0}^{\text{symm}} = \frac{e^{\frac{i}{\hbar}\varepsilon_1 t}}{\sqrt{2}} |1\rangle_{k=0}^{\text{symm}} + \frac{e^{\frac{i}{\hbar}\varepsilon_2 t}}{\sqrt{2}} |2\rangle_{k=0}^{\text{symm}} \quad (2.5)$$

Es wird hier noch einmal die Konstanz des Betrages der Entwicklungskoeffizienten $|a_n(t)|$ in Abbildung 2.9 a gezeigt. Außerdem werden hier die Phasen $\phi_n = \frac{\varepsilon_n}{\hbar}t$ der Entwicklungskoeffizienten $a_n(t)$ mit denen aus der analytischen Lösung verglichen. Dazu ist in Abbildung 2.9 a die Differenz

$$\Delta\phi_n = \phi_n^{\text{analytisch}} - \phi_n^{\text{numerisch}} \quad (2.6)$$

von analytisch berechneter Phase zu dem numerischen Ergebnis über den Zeitverlauf dargestellt:

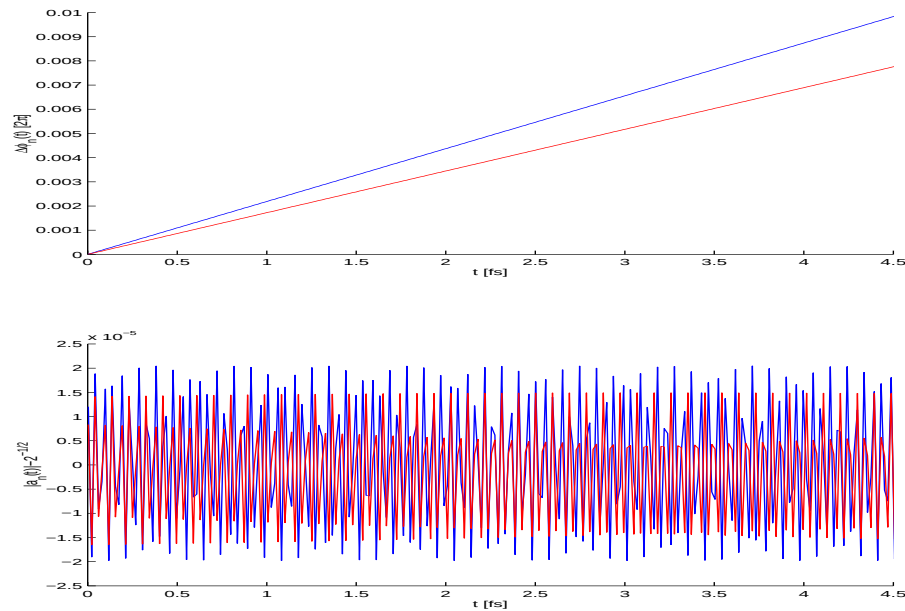


Abbildung 2.9 a: Vergleich zwischen analytischer und numerischer Rechnung, obere Abbildung: Phasenunterschied nach Gleichung (2.6), untere Abbildung: Betrag der Entwicklungskoeffizienten $|a_n(t)| - \frac{1}{\sqrt{2}}$ aus Gleichung (2.5) in der numerischen Berechnung.

Es ist zu erkennen, dass der verwendete Algorithmus auch hier wieder gute Ergebnisse liefert und die numerische Zeitentwicklung sich nur unwesentlich von der analytisch berechneten unterscheidet. Über einen Zeitraum von ca. 5 fs mit ca. 1300 Zeitschritten ist die Phasendifferenz $\Delta\phi_n$ (Abb. 2.9 a oben) weniger als $2\pi/100$, und der Betrag der Entwicklungskoeffizienten $|a_n(t)|$ (Abb. 2.9 a unten) oszilliert mit einer Amplitude von ca. $2 \cdot 10^{-5}$ um seinen Sollwert $1/\sqrt{2}$. Um bessere Ergebnisse zu erhalten, ist es möglich die Diskretisierung in der Zeit feiner zu wählen, da die Abweichungen gegenüber dem analytischen Ergebnis nur durch die diskreten Zeitschritte entstehen. Die Zeitentwicklung der entsprechenden Zustände ist in den Abbildungen 2.9 b und 2.9 c dargestellt. Anhand der Grafiken lässt sich tatsächlich kein Unterschied zwischen analytischer und numerischer Zeitentwicklung erkennen.

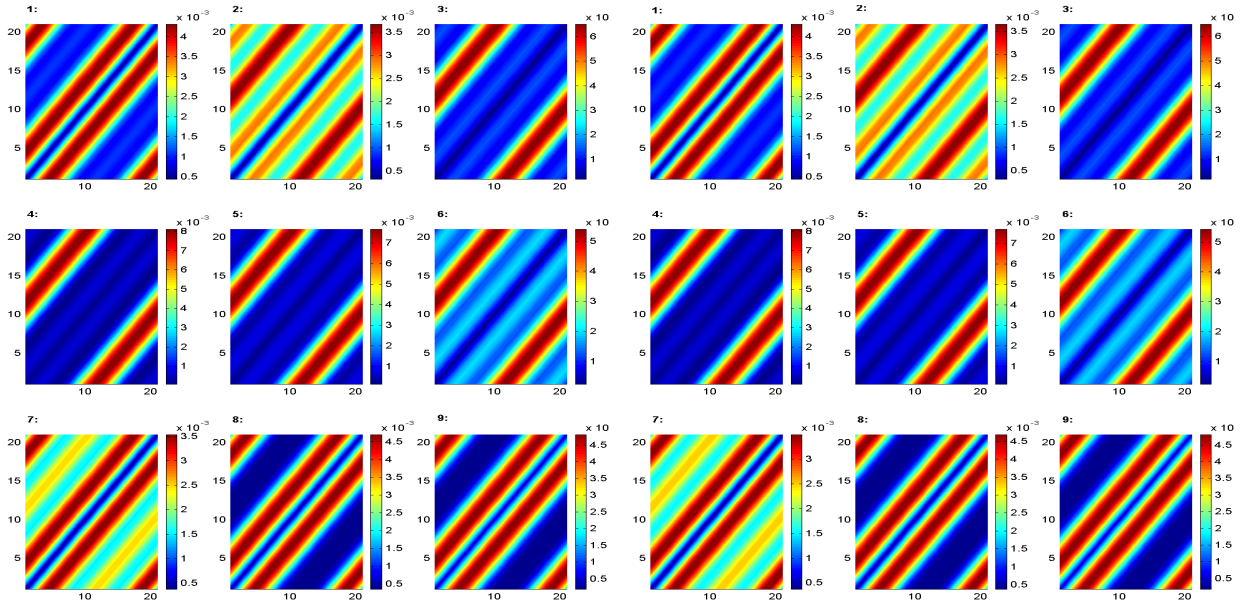


Abbildung 2.9 b:

Analytisch berechnete Zeitentwicklung eines Zweiteilchen-Systems im 1D Hubbard-Modell, Zeit zwischen den Teilbildern 0,53 fs, Farbskala: $|\psi(R_n, R_m)|$

Abbildung 2.9 c:

Numerisch berechnete Zeitentwicklung eines Zweiteilchen-Systems im 1D Hubbard-Modell, Zeit zwischen den Teilbildern 0,53 fs, Farbskala: $|\psi(R_n, R_m)|$

Nachdem die numerische Berechnung mit der analytischen für dieses Modell verglichen worden ist, wird jetzt unter starren Randbedingungen veranschaulicht werden, dass sich zwei Elektronen auf einem 1D-Hubbard-Gitter in einem symmetrischen Ortsraumzustand aufgrund des gitterplatzdiagonalen Hubbard- U nur mit geringer Wahrscheinlichkeit am gleichen Gitterplatz aufhalten. Sie gehen sich also sozusagen in der zeitlichen Entwicklung des Systems aus dem Weg. Dieses Verhalten ist in Abbildung 2.10 b ausgehend von einem Zustand, in dem nur zwei Gitterplätze besetzt sind, dargestellt. Im Vergleich dazu ist das Verhalten des gleichen Systems ohne Wechselwirkung in Abbildung 2.10 a zu sehen. Es lässt sich erkennen, dass mit Wechselwirkung die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der beiden Elektronen auf der Symmetrieachse der Grafiken, also wenn sich beide Elektronen am gleichen Gitterplatz befinden, deutlich geringer bleibt als ohne Wechselwirkung.

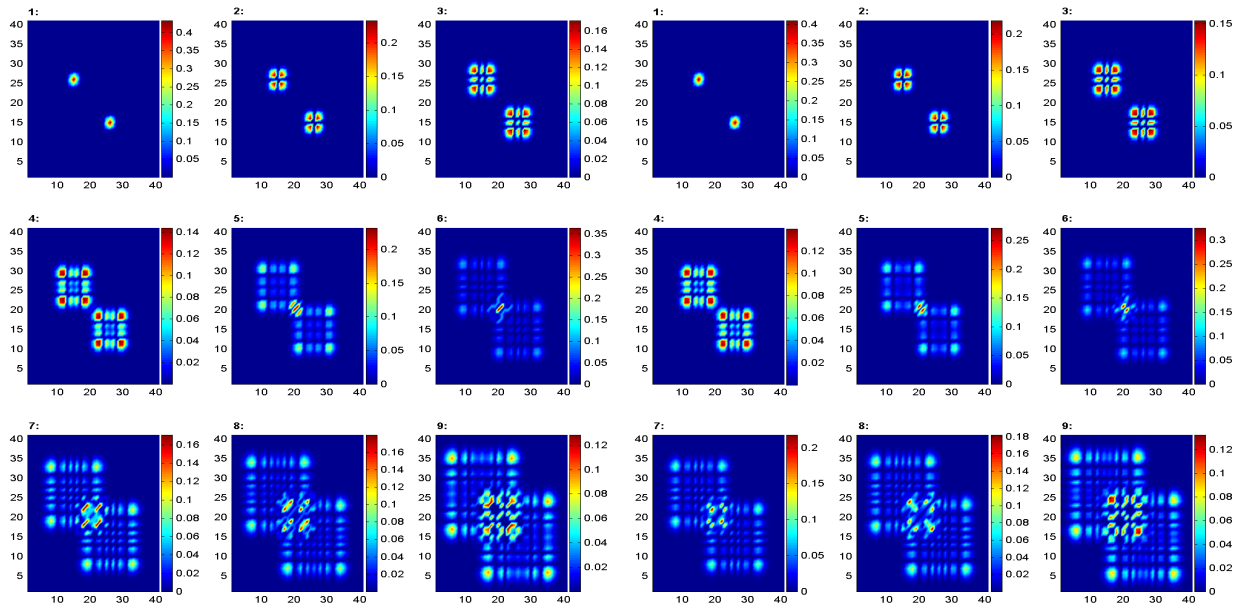


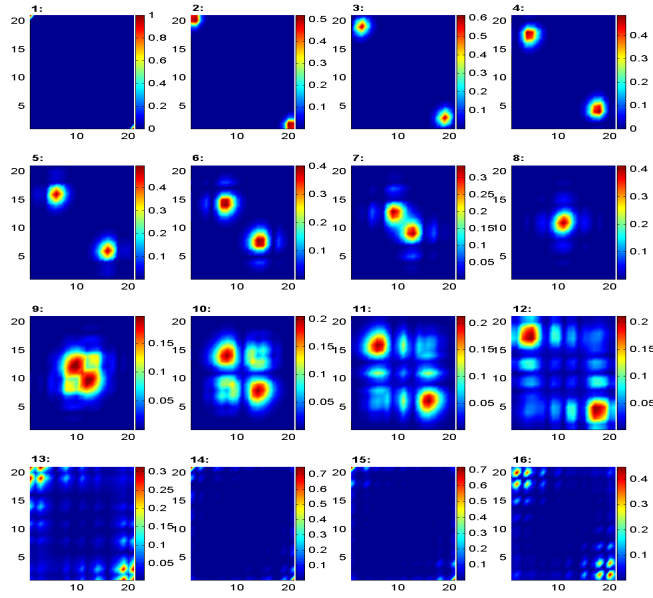
Abbildung 2.10 a:

Zeitentwicklung von zwei Elektronen auf einem 1D-Hubbard-Gitter, $U = 0,0 \text{ eV}$, Zeit zwischen den Teilbildern 0,37 fs, Farbskala: $|\psi(k, l)|^2$

Abbildung 2.10 b:

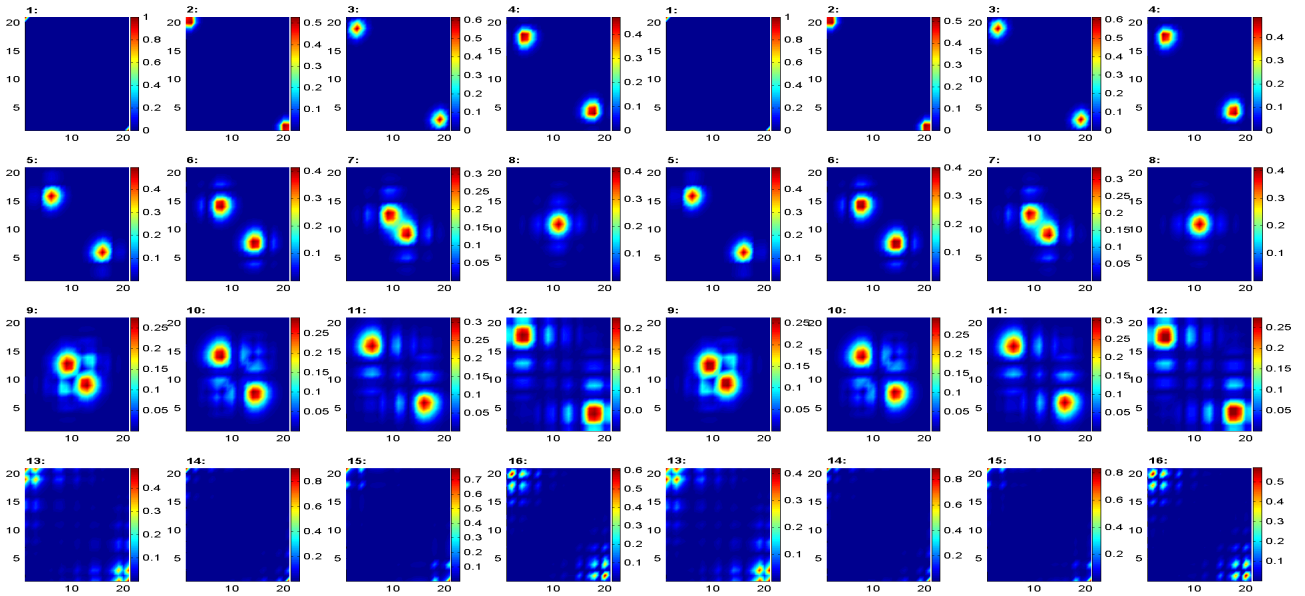
Zeitentwicklung von zwei Elektronen auf einem 1D-Hubbard-Gitter, $U = 10,9 \text{ eV}$, Zeit zwischen den Teilbildern 0,37 fs, Farbskala: $|\psi(k, l)|^2$

Als letzte Anwendung der oben entwickelten Methoden auf das Hubbard-Modell wird nun die Zeitentwicklung zweier Elektronen auf einem zweidimensionalen Hubbard-Gitter beobachtet. Dazu ist in den Abbildungen 2.11 a, 2.11 b und 2.11 c die zeitliche Entwicklung eines Zustandes mit zwei in den Ecken besetzten Gitterplätzen abgebildet; in Abbildung 2.11 a zunächst mit Wechselwirkung, mit Hubbard- $U \neq 0$, dazu im Vergleich in Abbildung 2.11 b ohne Wechselwirkung, mit Hubbard- $U = 0$. Mit $U \neq 0$ ist auch hier eine Streuung von Anteilen der Elektronen zu den Seiten zu beobachten, allerdings ein relativ zu den Berechnungen im Ortsraum geringer Anteil, weil hier die Wechselwirkung zwischen den Elektronen nur gitterplatzdiagonal wirksam ist. In Abbildung 2.11 c ist die Zeitentwicklung eines zu den Abbildungen 2.11 a und 2.11 b entsprechenden Systems gezeigt, jedoch ausgehend von einem antisymmetrischen Ortsraumzustand. Hier zeigt der Vergleich mit Abbildung 2.11 b, dass die Wechselwirkung unwirksam ist, wie man es erwarten würde, denn die Teilchen können sich bereits schon aus Symmetriegründen nicht am gleichen Gitterplatz aufhalten, die Wechselwirkung ist in diesem Modell aber gerade gitterplatzdiagonal angenommen worden.



Abbildungung 2.11 a:

Zeitentwicklung von zwei Elektronen auf einem 2D-Hubbard-Gitter, symmetrisch, $U = 4 \text{ eV}$, Zeit zwischen den Teilbildern $0,86 \text{ fs}$, Farbskala: $n(k, l)$



Abbildungung 2.11 b:

Zeitentwicklung von zwei Elektronen auf einem 2D-Hubbard-Gitter, symmetrisch, $U = 0 \text{ eV}$, Zeit zwischen den Teilbildern $0,86 \text{ fs}$, Farbskala: $n(k, l)$

Abbildungung 2.11 c:

Zeitentwicklung von zwei Elektronen auf einem 2D-Hubbard-Gitter, antisymmetrisch, $U = 4 \text{ eV}$, Zeit zwischen den Teilbildern $0,86 \text{ fs}$, Farbskala: $n(k, l)$

3 Exziton-Polaritonen

3.1 Motivation zur Betrachtung von Exziton-Polaritonen

Dieses Kapitel beschäftigt sich mit den linearen optischen Eigenschaften eines direkten Halbleiters¹ im Bereich der Bandlückenenergie. Dazu wird in Kapitel 3.2.1 die lineare Antwort, die Suszeptibilität, eines zweikomponentigen Elektronensystems² auf ein äußeres optisches Feld in Dipolnäherung berechnet. Es zeigt sich dabei, dass die lineare Antwort eines solchen Systems auf ein optisches elektromagnetisches Feld durch die inhomogene Exziton-Gleichung beschrieben wird. Im Rahmen des Exziton-Bildes können damit die linearen optischen Eigenschaften eines Halbleiters in einem effektiven Zweiteilchen-Bild beschrieben werden. Hierbei wird allerdings vorerst die Modifikation der elektromagnetischen Felder durch die im Medium erzeugte makroskopische Polarisierung vernachlässigt. Bei starker Kopplung der elektromagnetischen Felder an die Ladungsträger des Mediums, hier also gerade im Bereich der Exziton-Resonanzenergien, ist eine gemeinsame Behandlung der Ladungsträger des Mediums und der elektromagnetischen Felder notwendig. Diese Methode ergibt mit den möglichen gemeinsamen Exziton-Photon-Zuständen des Systems bessere Ergebnisse im Vergleich mit Experimenten. Sie führt zu der Einführung neuer Quasiteilchen, den sogenannten Polaritonen, um die möglichen Ausbreitungsmoden der elektromagnetischen Felder im Medium unter starker Kopplung an dessen Ladungsträger zu beschreiben. In Kapitel 3.2.3 wird das Konzept der Polaritonen speziell für Exziton-Polaritonen genauer vorgestellt. Im dreidimensionalen, unendlich ausgedehnten Kristall lassen sich die Lösungen der inhomogenen Exziton-Gleichung nach den bekannten, wasserstoffartigen Lösungen der entsprechenden homogenen Gleichung, der Wannier-Gleichung, entwickeln. Für den Imaginärteil der Suszeptibilität des Systems folgt daraus gerade die sogenannte 3D-Elliott-Formel. Im dreidimensionalen Kristall ist weitgehend eine analytische Analyse der optischen Eigenschaften des beschriebenen Systems im Exziton-Bild möglich.

In Kapitel 3.3 wird ein räumlich inhomogenes System betrachtet, in dem die Beweglichkeit der Exzitonen in einer Raumdimension, der z -Richtung, eingeschränkt ist, und eine „freie Bewegung“ der Exzitonen im Kristall nur noch in der x - y -Ebene möglich ist. Aus dieser speziellen Geometrie ergeben sich Randbedingungen, die dazu führen, dass sich die Lösungen der inhomogenen Exziton-Gleichung nicht mehr durch wasserstoffartige Zustände entwickeln lassen. Deshalb ist hier keine analytische Beschreibung der optischen Eigenschaften des Systems mehr möglich. Um die optischen Eigenschaften eines solchen Systems trotzdem berechnen zu können, wird die inhomogene Exziton-Gleichung für diese spezielle Geometrie einer Halbleiterprobe numerisch gelöst. Das geschieht selbstkonsistent zusammen mit den Maxwell-Gleichungen, die die Propagation der optischen Felder durch die dünne, typischerweise einige Exziton-Bohr-Radien dicke Probe beschreiben. Alternativ dazu gibt es verschiedene Ansätze zusätzliche Randbedingungen an die makroskopische Polarisierung im Medium zu stellen.³ Die hier durchgeführte Berechnung von Transmissionsspektren auf mikroskopischer Ebene im Polaritonen-Bild führt jedoch im Vergleich zu an entsprechenden dünnen Halbleiterschichten experimentell gewonnenen Spektren zu sehr viel besseren Ergebnissen, siehe [Schneider et al., 2001].

¹ Als Beispiel wird in den folgenden Kapiteln speziell Gallium-Arsenid (GaAs) betrachtet.

² Berücksichtigt werden dabei nur ein Valenz- und ein Leitungsband. Um das elektronische Vielteilchen-Problem lösen zu können, wird die Hartree-Fock-Näherung verwendet.

³ Für Details siehe Kapitel 3.3.1.

In den folgenden Kapiteln werden zunächst die notwendigen theoretischen Grundlagen zur Beschreibung von Exziton-Polaritonen in unendlich ausgedehnten, dreidimensionalen Kristallen zusammengestellt. Darauf aufbauend wird in Kapitel 3.3 die Theorie entwickelt, um Exziton-Polaritonen in der oben angesprochenen, speziellen Geometrie in dünnen Halbleiterschichten beschreiben zu können. Zunächst wird dazu vereinfachend in Kapitel 3.3.1 ein Modell vorgestellt, mit dem näherungsweise die Transmission einer elektromagnetischen Welle durch eine dünne Halbleiterschicht berechnet werden kann. Im Rahmen dieses Modells wird der räumlichen Inhomogenität des Systems allerdings nur durch Randbedingungen an die makroskopische Polarisierung im Medium Rechnung getragen. Speziell werden hier die ursprünglich von Pekar eingeführten zusätzlichen Randbedingungen verwendet, bei denen die Annahme darin besteht, dass die makroskopische Polarisierung an den Oberflächen des Mediums gerade verschwindet. Für die Suszeptibilität des Systems und für die Polariton-Ausbreitungsmoden werden dabei weiterhin die für den Volumenkristall gefundenen Lösungen verwendet. Genaugenommen entsprechen aber die möglichen exzitonischen Zustände in einer dünnen Schicht nicht mehr denen im Volumenkristall. Deswegen ist es notwendig die optischen Eigenschaften des Systems direkt ausgehend von der inhomogenen Exziton-Gleichung zu untersuchen. Auf mikroskopischer Ebene können dann die korrekten Randbedingungen direkt an die Exziton-Übergangsamplitude gestellt werden. Dazu wird in den Kapiteln 3.3.2, 3.3.3 und 3.3.4 eine voll mikroskopische Theorie vorgestellt, um optische Transmissionsspektren durch dünne Halbleiterschichten zu berechnen. Der Vergleich der mit den unterschiedlichen Theorien berechneten Ergebnisse wird zeigen, für welche Probenparameter die Verwendung der makroskopischen, Pekar'schen Randbedingungen zu sinnvollen Ergebnissen führt.

3.2 Exziton-Polaritonen im Volumenkristall

3.2.1 Licht-Materie-Wechselwirkung in Kristallen

Der Hamiltonoperator für Elektronen im kristallinen Festkörper im elektromagnetischen Feld hat in Dipolnäherung allgemein folgende Gestalt:

$$\mathbf{H} = H_0 + H_{\text{Coulomb}} + H_{\text{Dipol}} \quad (3.1)$$

Die Dipolnäherung, bei der nur eine schwache Änderung der elektromagnetischen Felder über einer Elementarzelle angenommen wird, lässt sich im optischen Spektralbereich leicht rechtfertigen, weil hier die Wellenlängen etwa um einen Faktor 1000 größer sind als typische Gitterkonstanten im Kristall. Einen endlichen, wenn auch kleinen, Photonenimpuls $\vec{q}$ erhält man in diesem Bild nur, wenn man annimmt, dass das optische Feld zwar über einer Elementarzelle konstant ist, aber auf einer größeren Längenskala, also von Gitterzelle zu Gitterzelle, variiert.

Für die folgende Herleitung der Exziton-Gleichung wird nur ein Zweibandsystem, bestehend aus einem Valenz- und einem Leitungsband, betrachtet. Um diese Vereinfachung zu rechtfertigen wird hier zunächst die für optische Übergänge im Energiebereich der fundamentalen Bandlücke interessante Bandstruktur von GaAs am Γ -Punkt betrachtet. Hierbei handelt es sich um ein Leitungsband mit Gesamtdrehimpuls-Quantenzahl $j = \frac{1}{2}$ und ein Valenzband mit Spin-Bahn-Kopplung mit Gesamtdrehimpuls-Quantenzahl $j = \frac{3}{2}$. Die möglichen Zustände werden nun unterschieden durch m_j , die Quantenzahl der z -Komponente des Gesamtdrehimpulses. Die Struktur des Valenzbandes spaltet auf in Zustände mit unterschiedlichen effektiven Massen, in sogenannte Light-Hole-Zustände (LH) mit $m_j = \pm\frac{1}{2}$ und Heavy-Hole-Zustände (HH) mit $m_j = \pm\frac{3}{2}$. Im idealen, dreidimensionalen GaAs-Kristall sind HH- und LH-Zustände am Γ -Punkt, also für $\vec{k} = 0$, energetisch entartet. Durch experimentell bedingte Verspannungen der eigentlich kubischen GaAs-Kristallstruktur wird diese energetische Entartung jedoch aufgehoben, wie es z.B. in dem in [Schneider et al., 2001] beschriebenen Experiment der Fall ist. Wenn die Resonanzenergien zwischen LH-Zuständen und Leitungsband und die zwischen HH-Zuständen und Leitungsband durch solche Verspannungen deutlich voneinander getrennt liegen, scheint es sinnvoll vereinfachend nur ein System aus einem Leitungsband und einem der LH- oder HH-Valenzbänder zu betrachten. Diese Vereinfachung lässt sich rechtfertigen, wenn die Wellenlänge des externen optischen Feldes so gewählt wird, dass es nur zu resonanten Übergängen zwischen den hier ausgewählten Bändern kommen kann. Somit können alle anderen Bänder in diesem Spektralbereich zur Beschreibung der optischen Eigenschaften des Festkörpers näherungsweise vernachlässigt werden. Alle nicht resonanten Kopplungen der elektromagnetischen Felder an den Festkörper werden nur über einen Hintergrund-Brechungsindex n_{bg} berücksichtigt. Es wird deshalb im Folgenden nur ein in dieser Weise vereinfachtes System betrachtet, in dem nur $m_j = \pm\frac{1}{2}$ -Zustände im Leitungsband (c) und $m_j = \pm\frac{3}{2}$ -Zustände im Valenzband (v) betrachtet werden. Nur die Betrachtung realistischerer Systeme mit mehreren Bändern bringt sicherlich im Vergleich zum Experiment zufrieden stellende Ergebnisse, bei der Beobachtung optischer Phänomene treten dabei physikalisch aber keine neuen Effekte auf im Vergleich zum Zweibandsystem. Voraussetzung bleibt allerdings, dass die Bänder an dem $\vec{k}$ -Punkt, an dem die Interbandübergänge betrachtet werden, energetisch ausreichend weit auseinander liegen. Als weitere Vereinfachung werden im folgenden nur $\vec{k}$ -unabhängige Dipolmatrixelemente zwischen den betrachteten Bändern angenommen.⁴

⁴Zur Diskussion der $\vec{k}$ -Abhängigkeit des Dipolmatrixelementes für optische Interbandübergänge in direkten Halbleitern siehe [Haug/Koch, 1993], Seite 73.

Diese Annahme lässt sich insbesondere rechtfertigen, da sich die folgenden Betrachtungen mit optischen Interbandübergängen im Zentrum der Brillouin-Zone beschäftigen. Im einzelnen lassen sich die Summanden des Hamiltonoperators (3.1) bzgl. der Blochbasis und für das beschriebene Zweibandmodell in zweiter Quantisierung ausdrücken als:⁵

$$\begin{aligned}
H_0 &= \sum_{\mathbf{k}} \left[E_{\mathbf{k}}^c c_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}} + E_{\mathbf{k}}^v v_{\mathbf{k}}^\dagger v_{\mathbf{k}} \right] \\
H_{\text{Coulomb}} &= \frac{1}{2V} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}', \vec{q}} V_q \left[c_{\mathbf{k}+\vec{q}}^\dagger c_{\mathbf{k}'-\vec{q}}^\dagger c_{\mathbf{k}'} c_{\mathbf{k}} + v_{\mathbf{k}+\vec{q}}^\dagger v_{\mathbf{k}'-\vec{q}}^\dagger v_{\mathbf{k}'} v_{\mathbf{k}} + 2c_{\mathbf{k}+\vec{q}}^\dagger v_{\mathbf{k}'-\vec{q}}^\dagger v_{\mathbf{k}'} c_{\mathbf{k}} \right], \quad V_q = \frac{e^2}{\varepsilon_0 |\vec{q}|^2} \\
H_{\text{Dipol}} &= - \sum_{\mathbf{k}, \vec{q}} \left[\vec{d}_{c,v}^s c_{\mathbf{k}}^\dagger v_{\mathbf{k}-\vec{q}} + \vec{d}_{c,v}^{s*} v_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}-\vec{q}} \right] \vec{E}_{\vec{q}} \quad \text{mit} \quad \vec{d}_{c,v}^s = \frac{1}{\Omega_i} \int d^3r u_{c,\vec{k}=0}^{s*}(\vec{r}) e \vec{r} u_{v,\vec{k}=0}^s(\vec{r})
\end{aligned}$$

Hierbei fasst $\mathbf{k} = \{\vec{k}, s\}$ die Quantenzahlen des Systems, außer des Bandindex zusammen, und die $c_{\mathbf{k}}^\dagger$, $c_{\mathbf{k}}$, $v_{\mathbf{k}}^\dagger$ und $v_{\mathbf{k}}$ bezeichnen die Erzeuger und Vernichter zu den elektronischen Einteilchen-Zuständen in Valenz(v)- und Leitungs(c)-Band mit Impuls $\vec{k}$ und der Quantenzahl s , die die z -Komponente des Gesamtdrehimpulses für Valenz- und Leitungsband symbolisiert. Die Quantenzahl s kann für beide Bänder die möglichen Werte $s = \uparrow$ oder $s = \downarrow$ annehmen, wobei gerade $s = \uparrow \hat{=} m_j = \frac{1}{2}$ und $s = \downarrow \hat{=} m_j = -\frac{1}{2}$ für das Leitungsband und $s = \uparrow \hat{=} m_j = \frac{3}{2}$ und $s = \downarrow \hat{=} m_j = -\frac{3}{2}$ für das betrachtete Valenzband ist. In dem Term H_{Dipol} , der die Dipolkopplung der Elektronen an das elektrische Feld beschreibt, ist hier nur der Interbandbeitrag berücksichtigt, ein weiterer Summand, der Intrabandbeitrag, wird für die folgenden Betrachtungen vernachlässigt, was meist in guter Näherung möglich ist. Es ist bereits verwendet worden, dass für optische Übergänge in Dipolnäherung hier die Auswahlregeln $\Delta m_j = \pm 1$ gelten, wodurch nur noch die Übergänge $v_{-\frac{3}{2}} \rightarrow c_{-\frac{1}{2}}$ und $v_{\frac{3}{2}} \rightarrow c_{\frac{1}{2}}$ möglich sind. Außerdem wurde benutzt, dass nur die Nicht-Diagonalelemente des Dipoloperators ungleich null sind:

$$\begin{pmatrix} \vec{d}_{c,c}^s & \vec{d}_{c,v}^s \\ \vec{d}_{v,c}^s & \vec{d}_{v,v}^s \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & \vec{d}_{c,v}^s \\ \vec{d}_{c,v}^{s*} & 0 \end{pmatrix}$$

Berücksichtigt man zunächst zur Vereinfachung nur den $\vec{q} = 0$ -Beitrag des elektromagnetischen Feldes, also $\vec{E}_{\vec{q}=0} \hat{=} \vec{E}$, ergibt sich eine $\mathbf{k}$ -diagonale Dichtematrix für dieses Zweibandsystems in Blochbasis, welche für jeden $\mathbf{k}$ -Punkt die folgende Gestalt hat:

$$\rho^{\mathbf{k}} = \begin{pmatrix} \langle c_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}} \rangle & \langle v_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}} \rangle \\ \langle c_{\mathbf{k}}^\dagger v_{\mathbf{k}} \rangle & \langle v_{\mathbf{k}}^\dagger v_{\mathbf{k}} \rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} f_{\mathbf{k}}^c & \psi_{\mathbf{k}} \\ \psi_{\mathbf{k}}^* & f_{\mathbf{k}}^v \end{pmatrix}$$

mit den Besetzungsfunktionen $f_{\mathbf{k}}^c$ und $f_{\mathbf{k}}^v$ für Leitungs- und Valenzband und der Übergangsamplitude $\psi_{\mathbf{k}}$ vom Valenz- ins Leitungsband. Mit Hilfe der Dichtematrix lassen sich alle Erwartungswerte von Operatoren berechnen. Für die makroskopische Polarisation des Systems folgt als Erwartungswert des Dipoloperators:

$$\vec{P}(t) = \langle \vec{d} \rangle(t) = \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}} \sum_{i,j} \rho_{ij}^{\mathbf{k}}(t) \vec{d}_{ij}^s = \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}} \left[\psi_{\mathbf{k}}(t) \vec{d}_{c,v}^{s*} + \psi_{\mathbf{k}}^*(t) \vec{d}_{c,v}^s \right] \quad (3.2)$$

⁵ Auch in Dipolnäherung muss hier im Allgemeinen ein kleiner, aber endlicher Impuls $\vec{q}$ des elektromagnetischen Feldes berücksichtigt werden.

Die zeitliche Entwicklung der makroskopischen Polarisierung lässt sich mit Hilfe von Bewegungsgleichungen für die Dichtematrixelemente berechnen. Die Heisenberg-Bewegungsgleichungen für einen beliebigen, nicht explizit zeitabhängigen Operator $A(t)$ lauten:

$$\frac{d}{dt}A(t) = \dot{A}(t) = \frac{i}{\hbar}[\mathbf{H}, A(t)]$$

Damit sind dann die Bewegungsgleichungen für die Dichtematrixelemente:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\psi_{\mathbf{k}} &= \frac{d}{dt}\langle v_{\mathbf{k}}^{\dagger} c_{\mathbf{k}} \rangle = \langle \dot{v}_{\mathbf{k}}^{\dagger} c_{\mathbf{k}} + v_{\mathbf{k}}^{\dagger} \dot{c}_{\mathbf{k}} \rangle \\ &= \frac{i}{\hbar} (E_{\mathbf{k}}^v - E_{\mathbf{k}}^c) \psi_{\mathbf{k}} - \frac{i}{\hbar} \vec{d}_{c,v}^s \vec{E} (f_{\mathbf{k}}^c - f_{\mathbf{k}}^v) \\ &\quad + \frac{i}{\hbar} \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}', \vec{q}} V_q \left(-\langle v_{\mathbf{k}'+\vec{q}}^{\dagger} v_{\mathbf{k}-\vec{q}}^{\dagger} v_{\mathbf{k}'} c_{\mathbf{k}} \rangle + \langle v_{\mathbf{k}+\vec{q}}^{\dagger} c_{\mathbf{k}'-\vec{q}}^{\dagger} c_{\mathbf{k}'} c_{\mathbf{k}} \rangle + \langle v_{\mathbf{k}}^{\dagger} c_{\mathbf{k}'+\vec{q}}^{\dagger} c_{\mathbf{k}+\vec{q}} c_{\mathbf{k}'} \rangle - \langle v_{\mathbf{k}}^{\dagger} v_{\mathbf{k}'+\vec{q}}^{\dagger} v_{\mathbf{k}'} c_{\mathbf{k}+\vec{q}} \rangle \right) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}f_{\mathbf{k}}^c &= -\frac{d}{dt}f_{\mathbf{k}}^v = \frac{d}{dt}\langle c_{\mathbf{k}}^{\dagger} c_{\mathbf{k}} \rangle = \langle \dot{c}_{\mathbf{k}}^{\dagger} c_{\mathbf{k}} + c_{\mathbf{k}}^{\dagger} \dot{c}_{\mathbf{k}} \rangle \\ &= -\frac{i}{\hbar} \vec{d}_{c,v}^{s*} \vec{E} \psi_{\mathbf{k}} + \frac{i}{\hbar} \vec{d}_{c,v}^s \vec{E} \psi_{\mathbf{k}}^* \\ &\quad + \frac{i}{\hbar} \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}', \vec{q}} V_q \left(-\langle c_{\mathbf{k}'+\vec{q}}^{\dagger} c_{\mathbf{k}-\vec{q}}^{\dagger} c_{\mathbf{k}'} c_{\mathbf{k}} \rangle + \langle c_{\mathbf{k}+\vec{q}}^{\dagger} v_{\mathbf{k}'-\vec{q}}^{\dagger} v_{\mathbf{k}'} c_{\mathbf{k}} \rangle + \langle c_{\mathbf{k}}^{\dagger} c_{\mathbf{k}'+\vec{q}}^{\dagger} c_{\mathbf{k}+\vec{q}} c_{\mathbf{k}'} \rangle - \langle c_{\mathbf{k}}^{\dagger} v_{\mathbf{k}'+\vec{q}}^{\dagger} v_{\mathbf{k}'} c_{\mathbf{k}+\vec{q}} \rangle \right) \end{aligned}$$

An dieser Stelle lässt sich erkennen, dass sich in allgemeinsten Form keine geschlossenen Bewegungsgleichungen zur Bestimmung der Dichtematrixelemente ergeben. Über die Bewegungsgleichungen werden Erwartungswerte für zwei Erzeugungs- oder Vernichtungs-Operatoren an Erwartungswerte von vier Operatoren gekoppelt. Bei der Berechnung der Bewegungsgleichungen von den Erwartungswerten von vier Operatoren, würden diese an solche mit sechs Operatoren gekoppelt, usw. Die einfachste, an dieser Stelle mögliche Näherung ist die Hartree-Fock-Näherung. Diese entspricht einer Faktorisierung der Erwartungswerte von vier Operatoren in ein Produkt aus Erwartungswerten von jeweils einem Erzeugungs- und einem Vernichtungs-Operator, also nur noch zwei Operatoren. Dabei werden jeweils unter Berücksichtigung der Kommutatorrelationen für Fermionen-Operatoren alle möglichen Kombinationen zugelassen:

$$\langle a_l^{\dagger} b_{l'}^{\dagger} c_j d_{j'} \rangle \approx \langle a_l^{\dagger} d_{j'} \rangle \langle b_{l'}^{\dagger} c_j \rangle - \langle a_l^{\dagger} c_j \rangle \langle b_{l'}^{\dagger} d_{j'} \rangle$$

Mit der Random-Phase-Approximation $\langle a_{\mathbf{k}}^{\dagger} b_{\mathbf{k}'} \rangle = \langle a_{\mathbf{k}}^{\dagger} b_{\mathbf{k}'} \rangle \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}$ folgt dann z.B. als Näherung eines Erwartungswertes von vier Operatoren mit der Hartree-Fock-Faktorisierung:⁶

$$\langle c_{\mathbf{k}'+\vec{q}}^{\dagger} c_{\mathbf{k}-\vec{q}}^{\dagger} c_{\mathbf{k}'} c_{\mathbf{k}} \rangle \approx \langle c_{\mathbf{k}'+\vec{q}}^{\dagger} c_{\mathbf{k}} \rangle \langle c_{\mathbf{k}-\vec{q}}^{\dagger} c_{\mathbf{k}'} \rangle \delta_{\mathbf{k}'+\vec{q},\mathbf{k}} - \langle c_{\mathbf{k}'+\vec{q}}^{\dagger} c_{\mathbf{k}'} \rangle \langle c_{\mathbf{k}-\vec{q}}^{\dagger} c_{\mathbf{k}} \rangle \delta_{\vec{q},0}$$

⁶Der hier auftretende, divergente ($\vec{q} = 0$)-Beitrag zur Coulomb-Wechselwirkung wird im Festkörper durch die positive Hintergrund-Ladung der Ionenrümpfe gerade kompensiert, weil insgesamt Ladungsneutralität im Festkörper vorliegt.

Im Rahmen der Hartree-Fock-Näherung ergeben sich daraus geschlossene Bewegungsgleichungen für die Dichtematrixelemente, die sogenannten Halbleiter-Blochgleichungen:⁷

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi_{\mathbf{k}} &= (\varepsilon_{\mathbf{k}}^c - \varepsilon_{\mathbf{k}}^v) \psi_{\mathbf{k}} - (f_{\mathbf{k}}^c - f_{\mathbf{k}}^v) \Omega_{\mathbf{k}} \\ i\hbar \frac{\partial}{\partial t} f_{\mathbf{k}}^c &= \Omega_{\mathbf{k}}^* \psi_{\mathbf{k}} - \Omega_{\mathbf{k}} \psi_{\mathbf{k}}^* = -i\hbar \frac{\partial}{\partial t} f_{\mathbf{k}}^v \\ \text{mit } \Omega_{\mathbf{k}} &= \vec{d}_{c,v}^s \vec{E} + \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \psi_{\mathbf{k}'} \\ \text{und } \varepsilon_{\mathbf{k}}^a &= E_{\mathbf{k}}^a - \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} (f_{\mathbf{k}'}^a - \delta_{a,v}) \quad \text{mit } a = \{c, v\} \end{aligned}$$

Man erhält für jedes $\mathbf{k}$ optische Blochgleichungen als Bewegungsgleichungen der Dichtematrixelemente; hier sind aber die Übergangsamplitude $\psi_{\mathbf{k}}$ und die Besetzungsfunktionen $f_{\mathbf{k}}^{c,v}$ zu verschiedenen $\vec{k}$ -Punkten durch die Coulomb-Wechselwirkung aneinander gekoppelt. Es treten hier die durch die Wechselwirkung renormierte Rabi-Energie $\Omega_{\mathbf{k}}$ und die renormierte Leitungs- und Valenzbandstruktur $\varepsilon_{\mathbf{k}}^c$ und $\varepsilon_{\mathbf{k}}^v$ auf. Der Term $\delta_{a,v}$ in den renormierten Energien $\varepsilon_{\mathbf{k}}^a$ wird hier eingeführt damit im Grundzustand des Systems, also ohne angeregte Elektronen im Leitungsband, die renormierten Energien $\varepsilon_{\mathbf{k}}^a$ gerade der ursprünglichen Einteilchen-Bandstruktur $E_{\mathbf{k}}^a$ entsprechen. Im Elektron-Loch-Bild lauten die Halbleiter-Blochgleichungen:

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi_{\mathbf{k}} &= (\varepsilon_{\mathbf{k}}^e + \varepsilon_{\mathbf{k}}^h) \psi_{\mathbf{k}} - (1 - f_{\mathbf{k}}^e - f_{\mathbf{k}}^h) \Omega_{\mathbf{k}} \\ i\hbar \frac{\partial}{\partial t} f_{\mathbf{k}}^e &= i\hbar \frac{\partial}{\partial t} f_{\mathbf{k}}^h = \Omega_{\mathbf{k}}^* \psi_{\mathbf{k}} - \Omega_{\mathbf{k}} \psi_{\mathbf{k}}^* \\ \text{mit } \Omega_{\mathbf{k}} &= \vec{d}_{c,v}^s \vec{E} + \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \psi_{\mathbf{k}'} \quad \text{und} \quad \varepsilon_{\mathbf{k}}^{e,h} = E_{\mathbf{k}}^{e,h} - \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} f_{\mathbf{k}'}^{e,h} \end{aligned}$$

Die $E_{\mathbf{k}}^{e,h}$ enthalten die volle Bandstruktur des Systems im Grundzustand. Die Hartree-Fock-Näherung, in deren Rahmen hier das elektronische System des Festkörpers beschrieben wird, hat zur Folge, dass in den oben angegebenen Halbleiter-Blochgleichungen bestimmte Vielteilchen-Effekte, wie Streuprozesse, Abschirmung und Korrelationen höherer Ordnung, nicht mehr enthalten sind. Diese lassen sich jedoch zum Teil nachträglich auf phänomenologischer Ebene wieder einführen; die Abschirmung über eine statische Dielektrizitätskonstante ε in der Coulomb-Wechselwirkung und Relaxation über eine phänomenologische Dämpfung $i\gamma$ in den Bewegungsgleichungen, siehe Gleichungen (3.4) und (3.5).

Die Halbleiter-Blochgleichungen enthalten allerdings auch nichtlineare optische Effekte. Um sich auf die lineare Optik für niedrige Feldstärken bzw. Anregungsdichten zu beschränken, muss gelten $\frac{\partial}{\partial t} f_{\mathbf{k}}^{e,h} = 0$, weil eine zeitliche Änderung der Besetzungsfunktionen bereits mindestens quadratisch im elektrischen Feld $\vec{E}$ ist. Mit den Anfangsbedingungen⁸ $f_{\mathbf{k}}^e(t=0) = 0$ und $f_{\mathbf{k}}^h(t=0) = 0$ für die Elektron- und Loch-Besetzungsfunktionen erhält man dann die linearisierte Form der Halbleiter-Blochgleichungen, die inhomogene Exziton-Gleichung:⁹

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi_{\mathbf{k}}^{(1)} = (E_{\mathbf{k}}^e + E_{\mathbf{k}}^h) \psi_{\mathbf{k}}^{(1)} - \vec{d}_{c,v}^s \vec{E} - \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \psi_{\mathbf{k}'}^{(1)} \quad (3.3)$$

⁷Für die hier eingeführten Coulomb-Matrixelemente gilt $V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} = V_{\vec{k}\vec{k}'} \delta_{ss'} = \frac{e^2}{\varepsilon_0 |\vec{k} - \vec{k}'|^2} \delta_{ss'}$, weil die Coulomb-Wechselwirkung spinunabhängig ist.

⁸Diese Wahl der Anfangsbedingungen beschreibt gerade das System im Grundzustand, in dem keine ins Leitungsband angeregten Elektronen vorliegen und damit auch keine Löcher „angeregt“ sind.

⁹Die einzige dynamische Größe, die in dieser Näherung die Reaktion des Mediums auf das externe elektrische Feld beschreibt, ist die Elektron-Loch-Übergangsamplitude $\psi_{\mathbf{k}}^{(1)}$.

Der Index (1) an der Übergangsamplitude, der die Linearität im elektrischen Feld symbolisiert, wird im Folgenden wieder fallengelassen, weil nur noch lineare optische Eigenschaften betrachtet werden. Als zusätzliche Näherung wird an dieser Stelle vereinfachend die Effektive-Masse-Näherung benutzt, was sich rechtfertigen lässt, weil im Folgenden nur optische Interbandübergänge im Zentrum der Brillouin-Zone beschrieben werden, außerdem wird die effektive Masse als isotrop¹⁰ angenommen:

$$E_{\mathbf{k}}^{e,h} = \frac{E_{\text{Gap}}}{2} + \frac{\hbar^2}{2m_{e,h}^*} k^2$$

Es sei an dieser Stelle erwähnt, dass die Effektive-Masse-Näherung nur zur Beschreibung von Elektronen und Löchern verwendet werden kann, die sich weitgehend frei mit den effektiven Massen m_e^* und m_h^* durch den Kristall bewegen können. An dieser Stelle wird also eine Näherung gemacht, die nur für sogenannte Wannier-Mott-Exzitonen gültig ist, deren Exziton-Bohr-Radius eine Ausdehnung des Exzitons über einige Gitterplätze im Kristall zulässt. Diese Beschreibung ist für Frenkel-Exzitonen, die stark innerhalb einer Gitterzelle lokalisiert sind, nicht möglich.

Im Folgenden wollen wir die Betrachtungen auf eine Komponente der Übergangsamplitude beschränken. Die Polarisation des anregenden elektrischen Feldes $\vec{E}(\omega)$ wird dazu so gewählt, dass gerade $\vec{d}_{c,v}^\uparrow \vec{E}(\omega) = 0$ und $\vec{d}_{c,v}^\downarrow \vec{E}(\omega) = d_{c,v} E(\omega)$ sind. Dadurch genügt es ab jetzt nur noch die $(\psi_{\vec{k}}^\downarrow \hat{=} \psi_{\vec{k}})$ -Komponente der Exziton-Übergangsamplitude zu betrachten, da die $\psi_{\vec{k}}^\uparrow$ -Komponente nicht durch das speziell gewählte optische Feld angeregt wird. Aus Gleichung (3.3) folgt dann nach Fouriertransformation in der Zeit t :¹¹

$$\boxed{t \longrightarrow \omega} \quad (\hbar\omega + i\gamma - E_k) \psi_{\vec{k}}(\omega) + \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}'} V_{\vec{k}\vec{k}'} \psi_{\vec{k}'}(\omega) = -d_{c,v} E(\omega) \quad (3.4)$$

mit $E_k = E_k^e + E_k^h = E_{\text{Gap}} + \frac{\hbar^2 k^2}{2\mu^*}$ mit $\frac{1}{\mu^*} = \frac{1}{m_e^*} + \frac{1}{m_h^*}$

Und durch Fouriertransformation in Wellenvektor $\vec{k}$ folgt daraus die inhomogene Exziton-Gleichung in Ortsdarstellung zur Bestimmung der Interband-Polarisation. Dabei handelt es sich um eine effektive Zweiteilchen-Schrödingergleichung, die die Relativbewegung von Elektron und Loch beschreibt:

$$\boxed{\vec{k} \longrightarrow \vec{r}} \quad \left[\hbar\omega + i\gamma - E_{\text{Gap}} + \frac{\hbar^2}{2\mu^*} \nabla_{\vec{r}}^2 + V(\vec{r}) \right] \psi(\vec{r}, \omega) = -d_{c,v} E(\omega) \delta(\vec{r}) \quad (3.5)$$

mit $\frac{1}{\mu^*} = \frac{1}{m_e^*} + \frac{1}{m_h^*}$ und $V(\vec{r}) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon|\vec{r}|}$

Hier wurde wiederum ein isotropes und insbesondere $\vec{k}$ -unabhängiges Dipolmatrixelement angenommen.

¹⁰Genaugenommen widerspricht eine isotrope effektive Masse der Annahme, dass die energetische Entartung zwischen LH- und HH-Valenzband am Γ -Punkt durch eine Verspannung im Kristall aufgehoben ist, sie wird der Übersichtlichkeit aber trotzdem verwendet. Physikalische Effekte gehen dadurch im Folgenden nicht verloren.

¹¹Der „kleine“ Imaginärteil $i\gamma$ ist hier auch notwendig, um das kausale Verhalten des Systems zu gewährleisten. Er wird aber, wenn er phänomenologisch eingeführt einer Dämpfung im System entsprechen soll, nicht als verschwindend klein angenommen.

Die Lösungen dieser inhomogenen Differentialgleichung lassen sich nach den bekannten Lösungen der zugehörigen homogenen Gleichung, der sogenannten Wannier-Gleichung

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\mu^*} \nabla^2 - V(\vec{r}) + E_{\text{Gap}} - i\gamma \right] \psi_\nu(\vec{r}) = (E_\nu + E_{\text{Gap}} - i\gamma) \psi_\nu(\vec{r})$$

entwickeln:

$$\psi(\vec{r}, \omega) = \sum_\nu b_\nu(\omega) \psi_\nu(\vec{r})$$

Die Lösungen $\psi_\nu(\vec{r})$ der Wannier-Gleichung entsprechen den Eigenfunktionen des Wasserstoffatoms mit effektiven Parametern für die Elektron-Loch-Massen und die statische Dielektrizitätskonstante ε – sowohl für die gebundenen als auch für die Streuzustände. Die hier auftretende Exziton-Bindungsenergie E_1 wird im Folgenden als Einheit der Energie $E_B^x \hat{=} E_1$ verwendet, und der Exziton-Bohr-Radius a_0^x als Längeneinheit, siehe dazu auch Anhang A.1. Nach Einsetzen dieser Entwicklung in die inhomogene Exziton-Gleichung und Bestimmung der Entwicklungskoeffizienten lässt sich die Lösung der inhomogenen Exziton-Gleichung angeben:

$$\psi(\vec{r}, \omega) = -d_{c,v} E(\omega) \sum_\nu \psi_\nu^*(\vec{r}=0) \frac{1}{\hbar\omega + i\gamma - E_{\text{Gap}} - E_\nu} \psi_\nu(\vec{r}) \quad (3.6)$$

Für die makroskopische Polarisation folgt dann nach Gleichung (3.2):

$$\begin{aligned} P(\omega) &= \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}} \left[d_{c,v}^* \psi_{\vec{k}}(\omega) + d_{c,v} \psi_{\vec{k}}^*(\omega) \right] \\ &= -|d_{c,v}|^2 E(\omega) \sum_\nu |\psi_\nu(\vec{r}=0)|^2 \left[\frac{1}{\hbar\omega + i\gamma - E_{\text{Gap}} - E_\nu} - \frac{1}{\hbar\omega + i\gamma + E_{\text{Gap}} + E_\nu} \right] \end{aligned}$$

Hier wurde die Fouriertransformierte der Übergangsamplitude verwendet:

$$\begin{aligned} \psi_{\vec{k}}(\omega) &= \int d^3r e^{i\vec{k}\vec{r}} \psi(\vec{r}, \omega) \\ \text{und damit} \quad \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}} \psi_{\vec{k}}(\omega) &= \int d^3r \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}} e^{i\vec{k}\vec{r}} \psi(\vec{r}, \omega) = \psi(\vec{r}=0, \omega) \end{aligned}$$

Das heißt, die optische Suszeptibilität (lineare Antwort auf optische Felder) für e^-h -Paar-Anregungen ist damit:

$$\chi(\omega) = -|d_{c,v}|^2 \sum_\nu |\psi_\nu(\vec{r}=0)|^2 \left[\frac{1}{\hbar\omega + i\gamma - E_{\text{Gap}} - E_\nu} - \frac{1}{\hbar\omega + i\gamma + E_{\text{Gap}} + E_\nu} \right] \quad (3.7)$$

Hierbei ist der zweite Summand in Gleichung (3.7) ein nicht resonanter Anteil für positive Frequenzen $\omega > 0$ und meist klein, weshalb er in den folgenden Betrachtungen vernachlässigt wird. Aus dem Imaginärteil von $\chi(\omega)$ ergibt sich die Absorption des Mediums und aus dem Realteil der Brechungsindex, jedenfalls der Beitrag, der durch Anregung von Elektron-Loch-Paaren verursacht wird. Es werden hier nicht nur die gebundenen Elektron-Loch-Zustände berücksichtigt, sondern auch alle Kontinuumszustände, die ebenfalls wesentlich durch die Coulomb-Wechselwirkung beeinflusst werden. Die Kontinuumszustände sind jetzt nicht mehr die

Zustände freier Teilchen, in Effektiver-Masse-Näherung ebene Wellen, sondern die Streuzustände des Wasserstoffatoms mit effektiven Parametern, in Ortsdarstellung die sogenannten Konfluenten Hypergeometrischen Funktionen. Die Oszillatorstärken der jeweiligen Übergänge werden bestimmt durch das Dipolmatrixelement $|d_{c,v}|^2$ und $|\psi_\nu(\vec{r} = 0)|^2$, die Wahrscheinlichkeit Elektron und Loch am selben Ort bzw. in der selben Gitterzelle zu finden. Daraus folgt direkt, dass in Dipolnäherung nur s -artige Exziton-Zustände an optische Felder koppeln, weil für alle anderen Drehimpuls-Komponenten $|\psi_\nu(\vec{r} = 0)|^2 = 0$ gilt. Explizites Ausrechnen des Imaginärteils von Gleichung (3.7) ergibt mit den bekannten Wasserstoff-Zuständen die sogenannte 3D-Elliott-Formel:

$$\text{Im } \chi^{3D}(\omega) = -\frac{|d_{c,v}|^2}{a_0^3} \left[\sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^3} \delta(\hbar\omega - E_{\text{Gap}} - E_n^{3D}) + \frac{1}{4E_B} \Theta(\Delta) \frac{e^{\frac{\pi}{\sqrt{\Delta}}}}{\sinh \frac{\pi}{\sqrt{\Delta}}} \right] \quad (3.8)$$

mit $\Delta = \hbar\omega - E_{\text{Gap}}$

Ohne endliche Dämpfung erwartet man unter Berücksichtigung der Exzitonen unterhalb der Bandlückenenergie diskrete Absorptionslinien, entsprechend dem gebundenen Wasserstoff-Spektrum mit effektiven Parametern. Ab der Bandlückenenergie folgt ein kontinuierliches Einsetzen der Absorption des Festkörpers durch exzitonische Interband-Polarisation. Allerdings ist der Absorptionskoeffizient des Kontinuums im Exzitonen-Bild nicht mehr proportional zur Einteilchen-Zustandsdichte, und insbesondere durch die Coulomb-Wechselwirkung stark überhöht, siehe [Yu/Cardona, 1999].

Bisher haben wir uns in diesem Kapitel mit einem vereinfachten System beschäftigt, weil der endliche Impuls $\vec{q}$ des elektromagnetischen Feldes vernachlässigt worden ist. Endlicher Impuls des Feldes führt aber gerade dazu, dass $\vec{E}_{\vec{q} \neq 0}$ -Fourierkomponenten des elektrischen Feldes in der Herleitung der inhomogenen Exziton-Gleichung mitberücksichtigt werden müssen. Bei der Anregung eines Exzitons wird auf dieses der endliche Impuls $\vec{q}$ des Photons übertragen. Dieser Impuls $\vec{q}$ des Feldes führt in dem unendlich ausgedehnten, dreidimensionalen Kristall zu einer Schwerpunktbewegung des Exzitons. Unter Berücksichtigung endlicher Impulse $\vec{q}$ folgt gerade die inhomogene Exziton-Gleichung in k -Darstellung in Relativ- und Schwerpunktkoordinaten:¹²

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi_{\vec{k}, \vec{q}} = \left(E_k^e + E_k^h + E_{\vec{q}}^X \right) \psi_{\vec{k}, \vec{q}} - d_{c,v} E_{\vec{q}} - \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}'} V_{\vec{k}\vec{k}'} \psi_{\vec{k}', \vec{q}}$$

bzw. in Ortsdarstellung mit Effektiver-Masse-Näherung:

$$\left[\hbar\omega + i\gamma - E_{\text{Gap}} + \frac{\hbar^2}{2\mu^*} \nabla_{\vec{r}}^2 + \frac{\hbar^2}{2M^*} \nabla_{\vec{R}}^2 + V(\vec{r}) \right] \psi(\vec{r}, \vec{R}, \omega) = -d_{c,v} E(\vec{R}, \omega) \delta(\vec{r}) \quad (3.9)$$

Die entsprechende homogene Wannier-Gleichung lautet unter Berücksichtigung der Schwerpunktbewegung:

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2\mu^*} \nabla_{\vec{r}}^2 - \frac{\hbar^2}{2M^*} \nabla_{\vec{R}}^2 - V(\vec{r}) \right] \Phi(\vec{r}, \vec{R}) = E_{\text{ges}} \Phi(\vec{r}, \vec{R}) \quad (3.10)$$

¹² $E_{\vec{q}}^X$ bezeichnet hier die Energie der Schwerpunktbewegung des Exzitons, in Effektiver-Masse-Näherung:

$E_{\vec{q}}^X = \frac{\hbar^2 q^2}{2M^*}$ mit $M^* = m_e^* + m_h^*$.

In einem dreidimensionalen Kristall lassen sich aber Relativ- und Schwerpunktbewegung voneinander separieren, weil dann als einzige Randbedingung die Normierbarkeit der Wellenfunktionen gestellt werden muss, analog zum Wasserstoffatom. Dadurch werden die folgenden beiden Eigenwertgleichungen gegeben:

$$\begin{aligned} \left[-\frac{\hbar^2}{2\mu^*} \nabla_{\vec{r}}^2 - V(\vec{r}) + E_{\text{Gap}} - i\gamma \right] \psi_{\nu}(\vec{r}) &= (E_{\nu} + E_{\text{Gap}} - i\gamma) \psi_{\nu}(\vec{r}) \\ \left[-\frac{\hbar^2}{2M^*} \nabla_{\vec{R}}^2 \right] \phi_q(\vec{R}) &= E_q^X \phi_q(\vec{R}) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{mit} \quad E_{\text{ges}} &= E_{\nu} + E_{\text{Gap}} + E_q^X = E_{\nu} + E_{\text{Gap}} + \frac{\hbar^2 q^2}{2M^*} \\ \text{und} \quad \Phi(\vec{r}, \vec{R}) &= \phi_q(\vec{R}) \psi_{\nu}(\vec{r}) = \frac{1}{V} e^{-i\vec{q}\vec{R}} \psi_{\nu}(\vec{r}) \end{aligned}$$

Für den dreidimensionalen Kristall ergibt sich daraus direkt der für positive Frequenzen ω resonante Beitrag zu der nun q -abhängigen Suszeptibilität des Systems:

$$\chi(q, \omega) = -|d_{c,v}|^2 \sum_{\nu} |\psi_{\nu}(\vec{r}=0)|^2 \left[\frac{1}{\hbar\omega + i\gamma - E_{\text{Gap}} - E_{\nu} - \frac{\hbar^2 q^2}{2M^*}} \right] \quad (3.11)$$

Im idealisierten, dreidimensionalen Kristall liefert die Exziton-Schwerpunktbewegung also nur einen additiven Beitrag $\frac{\hbar^2 q^2}{2M^*}$ zum Resonanznenner der Suszeptibilität des Systems. Für ein System mit endlicher räumlicher Ausdehnung lässt sich aber die Gleichung (3.10) nicht mehr durch Separation von Schwerpunkt- und Relativbewegung lösen, da diese dann über die notwendigen, je nach Geometrie des Kristalls speziellen, Randbedingungen gekoppelt sind. Eine analytische Lösung des Problems und eine analytische Angabe der Suszeptibilität des Systems sind dann im Allgemeinen nicht mehr möglich. Die veränderten optischen Eigenschaften einer Halbleiterschicht mit in einer Raumrichtung endlicher Ausdehnung werden deshalb in Kapitel 3.3 numerisch untersucht.

3.2.2 Die Exziton-Gleichung im Volumenkristall

Im letzten Kapitel ist die 3D-Elliott-Formel (3.8) mit den bekannten Wasserstoff-Eigenzuständen analytisch angegeben worden. In diesem Kapitel wird zunächst vorbereitend auf die späteren Berechnungen die inhomogene Exziton-Gleichung (3.4) im dreidimensionalen, unendlich ausgedehnten Kristall in Effektiver-Masse-Näherung in Abhängigkeit der Anregungsfrequenz numerisch gelöst. Daraus ergibt sich mit endlicher Dämpfung der Imaginärteil der Suszeptibilität des Systems ohne Schwerpunktimпульs, also für $\vec{q} = 0$. Im unendlich ausgedehnten Kristall hat die zu betrachtende inhomogene Exziton-Gleichung (3.4) für die Elektron-Loch-Übergangsamplitude $\psi_{\vec{k}}(\omega)$ mit einer kleinen, phänomenologisch eingeführten Dämpfung $i\gamma$ folgende Gestalt:

$$\begin{aligned} (\hbar\omega - E_k + i\gamma) \psi_{\vec{k}}(\omega) + \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}'} V_{\vec{k}\vec{k}'} \psi_{\vec{k}'}(\omega) &= -d_{c,v} E(\omega) \\ \text{mit} \quad E_k &= E_{\text{Gap}} + \frac{\hbar^2 k^2}{2\mu^*} \quad \text{mit} \quad \frac{1}{\mu^*} = \frac{1}{m_e^*} + \frac{1}{m_h^*} \end{aligned} \quad (3.12)$$

Man erhält für diskret liegende $\vec{k}$ -Vektoren eine Matrixgleichung zur Bestimmung der Übergangsamplitude bei vorgegebenem externen E -Feld. Es wird hier wieder ein isotropes und insbesondere $\vec{k}$ -unabhängiges Dipolmatrixelement verwendet. Um die Symmetrie der Gleichung (3.12) ausnutzen zu können, ist es zweckmäßig diese in Kugelkoordinaten zu transformieren. Die in Effektiver-Masse-Näherung eingesetzte Bandstruktur ist bereits nur von $|\vec{k}|$ abhängig, hat also Kugelsymmetrie. Der winkelabhängige Teil der Übergangsamplitude lässt sich nach der vollständigen Basis der Kugelflächen-Funktionen $Y_{lm}(\theta, \phi)$ entwickeln:

$$\psi_{\vec{k}}(\omega) = \sum_{l,m} Y_{lm}(\theta, \phi) \psi_{lm}(k, \omega)$$

Durch Einsetzen dieser Entwicklung in (3.12) und bezüglich der neuen Basis, mit den Coulomb-Matrixelementen $V_{ll'mm'}(k, k')$, ergibt sich nach kurzer Rechnung zur Beschreibung der Übergangsamplitude die Exziton-Gleichung in Kugelkoordinaten:¹³

$$(\hbar\omega - E_k + i\gamma)\psi_{lm}(k, \omega) + \int_0^\infty dk' \sum_{l'm'} V_{ll'mm'}(k, k') \psi_{l'm'}(k', \omega) = -d_{c,v} E(\omega) \delta_{l,0} \delta_{m,0} \quad (3.13)$$

mit den Coulomb-Matrixelementen

$$V_{ll'mm'}(k, k') = \frac{k'^2}{(2\pi)^3} \int d\theta d\phi \int d\theta' d\phi' Y_{lm}^*(\theta, \phi) \sin(\theta) V(\vec{k}, \vec{k}') Y_{l'm'}(\theta', \phi') \sin(\theta')$$

Die Berechnung der Coulomb-Matrixelemente liefert:¹⁴

$$V_{ll'mm'}(k, k') = V_{lm}(k, k') \delta_{ll'} \delta_{mm'}$$

Das heißt die Coulomb-Wechselwirkung koppelt keine verschiedenen l - und m -Komponenten. Der treibende Term in Gleichung (3.13) ist nur ungleich Null für $l = 0$ und $m = 0$. Daher genügt es die Gleichung (3.13) vereinfachend nur für $\psi_{l=0,m=0}(k, \omega)$ zu betrachten, weil eine Anregung der anderen Komponenten nicht erfolgt. Ausführen der Winkelintegrationen im Coulomb-Potential liefert unter dieser Annahme die zu lösende Exziton-Gleichung in Kugelkoordinaten

$$(\hbar\omega - E_k + i\gamma)\psi_{00}(k, \omega) + \int_0^\infty dk' V_{00}(k, k') \psi_{00}(k', \omega) = -d_{cv} E(\omega)$$

mit den Coulomb-Matrixelementen:

$$V_{00}(k, k') = \frac{e^2}{4\pi^2\epsilon_0} \frac{k'}{k} \ln \left| \frac{k+k'}{k-k'} \right| \quad (3.14)$$

Aus dieser Matrixgleichung kann nun die Übergangsamplitude in Abhängigkeit der Frequenz ω berechnet werden, woraus sich in Kugelkoordinaten die Suszeptibilität $\chi_{00}(\omega)$ des Systems über die makroskopische Polarisierung ergibt.

¹³In diesem Kapitel werden in üblicher Weise für die Berechnungen alle $\vec{k}$ -Summen in ein dreidimensionales k -Integral überführt $\frac{1}{V} \sum_{\vec{k}} \rightarrow \frac{1}{(2\pi)^3} \int d^3k$.

¹⁴Siehe Anhang A.2

Bei deren Berechnung reicht jetzt natürlich die Berücksichtigung von $\psi_{00}(k, \omega)$ aus, weil andere Komponenten durch den treibenden Term $d_{c,v}E(\omega)\delta_{l,0}\delta_{m,0}$ nicht angeregt werden:

$$P_{00}(\omega) = \frac{1}{2\pi^2} \int_0^\infty dk k^2 d_{cv}^* \psi_{00}(k, \omega)$$

Mit dem externen E -Feld folgt dann die Suszeptibilität:

$$\chi_{00}(\omega) = \frac{P_{00}(\omega)}{E(\omega)} \quad (3.15)$$

Die in Kapitel 3.3 gewählte Symmetrie zur Lösung der inhomogenen Exziton-Gleichung entspricht der von Zylinderkoordinaten. Auch wenn dort das Problem in einer der drei Dimensionen im Ortsraum diskretisiert wird, wird hier vorbereitend die Gleichung (3.12) in Zylinderkoordinaten im k -Raum gelöst. Dazu lässt sich der vom Azimutal-Winkel abhängige Teil der Übergangsamplitude entwickeln nach:

$$\psi_{\vec{k}}(\omega) = \sum_m \psi_m(k_{||}, k_z, \omega) e^{im\phi}$$

Zur Berechnung der Coulomb-Matrixelemente siehe Anhang A.2. Es erfolgt auch hier keine Kopplung verschiedener m -Komponenten durch die Coulomb-Wechselwirkung, wodurch eine Betrachtung der $m = 0$ -Komponente der Übergangsamplitude $\psi_0(k_{||}, k_z, \omega)$ ausreicht. Nach Ausführen der Winkelintegration im Coulomb-Matrixelement ergibt sich dann die Exziton-Gleichung in Zylinderkoordinaten:

$$(\hbar\omega - E_k + i\gamma)\psi_0(k_{||}, k_z, \omega) + \int_{-\infty}^{\infty} dk_z \int_0^\infty dk_{||} k_{||} V_0(k_{||}, k'_{||}, k_z, k'_z) \psi_0(k'_{||}, k'_z, \omega) = -d_{c,v}E(\omega)$$

mit den Coulomb-Matrixelementen:

$$V_0(k_{||}, k'_{||}, k_z, k'_z) = \frac{e^2}{4\pi^2\epsilon_0} \frac{1}{\sqrt{[k_{||}^2 + k'^2_{||} + (k_z - k'_z)^2]^2 - (2k_{||}k'_{||})^2}} \quad (3.16)$$

Die Polarisation berechnet sich in Zylinderkoordinaten aus der Übergangsamplitude folgendermaßen:

$$P_0(\omega) = \frac{1}{(2\pi)^2} \int_{-\infty}^{\infty} dk_z \int_0^\infty dk k d_{cv}^* \psi_0(k, \omega)$$

Daraus lässt sich wiederum die Suszeptibilität des Systems nach Gleichung (3.15) berechnen. Der Absorptionskoeffizient des Systems ist direkt proportional zum Imaginärteil der Suszeptibilität, welcher in den Abbildungen 3.1 a und 3.1 b in Kugel- und Zylinderkoordinaten berechnet dargestellt ist.

Die leichten Abweichungen der beiden Darstellungen sind nur numerischer Natur. Der Rechenaufwand bei der Lösung in Zylinderkoordinaten ist sehr viel höher, weil dort zwei Koordinaten diskretisiert werden müssen, die Ergebnisse stimmen dadurch nicht ganz so gut mit den Erwartungen überein. Insbesondere wird in Abbildung 3.1 b der Übergang in das Kontinuum aufgrund der begrenzten Anzahl an Stützstellen für die Diskretisierung nicht so gut wiedergegeben wie in Abbildung 3.1 a. Die Singularität in dem „Coulomb-Integral“ wurde in beiden Fällen numerisch gehoben, siehe dazu Anhang B.3.

Kugelkoordinaten:

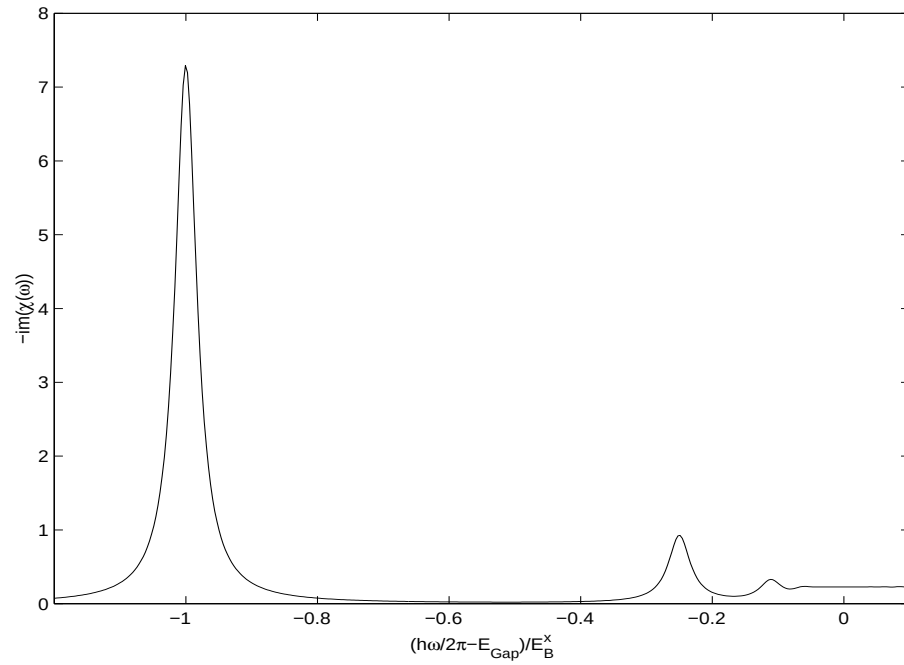


Abbildung 3.1 a: Negativer Imaginärteil der Suszeptibilität, in Kugelkoordinaten berechnet

Zylinderkoordinaten:

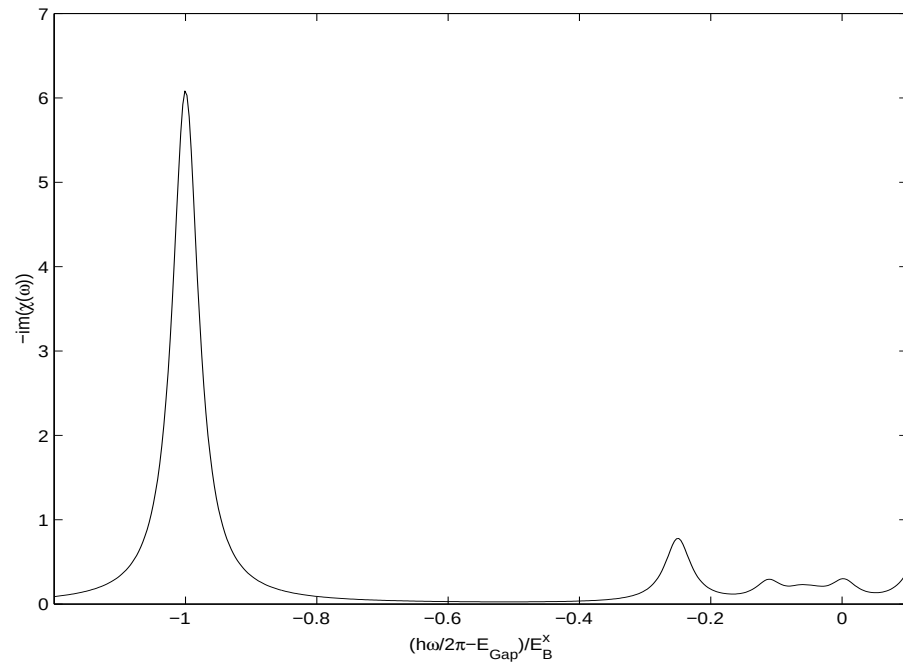


Abbildung 3.1 b: Negativer Imaginärteil der Suszeptibilität, in Zylinderkoordinaten berechnet

3.2.3 Das Exziton-Polariton im Volumenkristall

Als Polaritonen im Allgemeinen bezeichnet man die Quasiteilchen der Ausbreitung elektromagnetischer Wellen (Photonen) in Materie unter starker Kopplung an die Ladungsträger (Anregungen) des Systems. Exziton-Polaritonen sind nun speziell die Quasiteilchen der Ausbreitung elektromagnetischer Wellen im Energiebereich exzitonischer Resonanzen. In Halbleitern mit direkter Bandlücke besteht im Allgemeinen eine starke Kopplung zwischen den Exzitonen im Kristall und den Photonen eines einfallenden Lichtfeldes. Um dieser starken Kopplung Rechnung zu tragen, ist eine Analyse der optischen Eigenschaften des Kristalls im Polaritonen-Bild notwendig, eine störungstheoretische Behandlung reicht oft nicht aus, weil die Kopplung nicht mehr als „schwach“ einzustufen ist. Deshalb ist es notwendig neue Quasiteilchen, die Photon- und Exziton-Eigenschaften vereinigen, zu betrachten, die Exziton-Polaritonen.¹⁵ Diese sind oft hilfreich, um die beobachteten optischen Eigenschaften von Halbleitern für geringe Anregungsleistung zu verstehen. Es werden hier zunächst die optischen Eigenschaften des Systems aus Sicht der klassischen Elektrodynamik beschrieben. Am Ende dieses Kapitels wird ein Einblick gegeben in eine voll quantenmechanische Beschreibung der Polaritonen, wobei dabei die Einführung der Polaritonen direkt am Hamiltonoperator des Systems in zweiter Quantisierung durchgeführt wird.

In Kapitel 3.2.1 haben wir den durch Exzitonen verursachten, resonanten Beitrag zur Suszeptibilität eines Volumenkristalls berechnet, siehe Gleichung (3.11):

$$\chi(q, \omega) = -|d_{cv}|^2 \sum_{\nu} \frac{|\psi_{\nu}(\vec{r}=0)|^2}{\hbar\omega + i\gamma - E_{\text{Gap}} - E_{\nu} - \frac{\hbar^2 q^2}{2M^*}}$$

Beschränkt man sich auf den Beitrag des 1s-Exzitons, folgt für die Suszeptibilität:

$$\chi(q, \omega) = -\frac{|d_1|^2}{\hbar\omega - E_1 - E_{\text{Gap}} - \frac{\hbar^2 q^2}{2M^*} + i\gamma}$$

mit $|d_1|^2 = \frac{|d_{cv}|^2}{\pi a_0^3}$. Hierbei wurde die bekannte Grundzustands-Wellenfunktion

$$\psi_1(\vec{r}) = \frac{2}{\sqrt{4\pi}} \left(\frac{1}{a_0^3} \right)^{3/2} \cdot e^{-\frac{r}{a_0}}$$

des Exzitons verwendet. Die dimensionslose, q -abhängige dielektrische Funktion lautet damit unter expliziter Berücksichtigung der 1s-Exziton-Resonanz:

$$\varepsilon(q, \omega) = n_{bg}^2 + \frac{\chi(q, \omega)}{\varepsilon_0} = n_{bg}^2 - \frac{1}{\varepsilon_0} \frac{|d_1|^2}{\hbar\omega - E_1 - E_{\text{Gap}} - \frac{\hbar^2 q^2}{2M^*} + i\gamma}$$

Eine elektromagnetische Welle, die sich im Medium ausbreitet, muss damit der fouriertransformierten, homogenen Wellengleichung genügen:¹⁶

$$\left[\frac{\omega^2}{c_0^2} \varepsilon(q, \omega) - q^2 \right] E(q, \omega) = 0$$

¹⁵ Diese Arbeit beschäftigt sich ausschließlich mit Exziton-Polaritonen, weshalb in diesem Kapitel das allgemeine Konzept der Polaritonen speziell auf die Beschreibung von Exziton-Polaritonen angewandt wird.

¹⁶ Siehe [Haug/Koch, 1993]

Für eine propagierende Lösung muss der Ausdruck in den Klammern verschwinden, woraus sich folgende biquadratische Gleichung in q ergibt:

$$(\omega - cq)(\omega + cq) \left(\omega - \frac{E_1 + E_{\text{Gap}} + i\gamma}{\hbar} - \frac{\hbar q^2}{2M^*} \right) = \frac{\omega^2 |d_1|^2}{\varepsilon_0 n_{bg}^2 \hbar} \quad (3.17)$$

Daraus folgen zwei komplexe Lösungen $q(\omega)$ für die möglichen Ausbreitungsmoden elektromagnetischer Wellen unter Kopplung an das Medium:

$$q_{1,2}^2(\omega) = \frac{1}{2} (q_{bg}^2 + q_x^2) \pm \sqrt{\frac{1}{4} (q_{bg}^2 - q_x^2)^2 + \kappa} \quad (3.18)$$

mit den Abkürzungen:

$$\begin{aligned} q_{bg}^2 &= \frac{\omega^2}{c_0^2} n_{bg}^2 \\ q_x^2 &= \frac{2M^*}{\hbar^2} (\hbar\omega - E_1 - E_{\text{Gap}} + i\gamma) \\ \kappa &= \frac{\omega^2 2M^*}{c_0^2 \hbar^2 \varepsilon_0} |d_1|^2 \end{aligned}$$

Die Zweige der Exziton-Polariton-Dispersion (3.18) sind in Abbildung 3.2 für typische Parameter dargestellt, wie sie in den folgenden Kapiteln für GaAs verwendet wurden¹⁷.

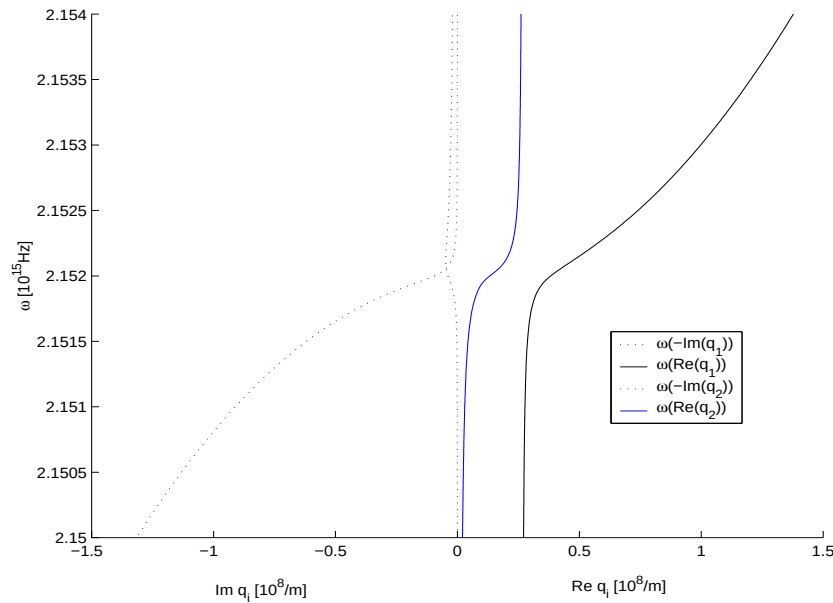


Abbildung 3.2:

Exziton-Polariton-Dispersion mit endlicher Dämpfung und räumlicher Dispersion, 1s-Exziton-Resonanz bei $\frac{E_1 + E_{\text{Gap}}}{\hbar} \approx 2,152 \cdot 10^{15}$ Hz

Hierbei beschreibt der Realteil der q_i eine sich im Medium ausbreitende Welle, wogegen der Imaginärteil der q_i die Stärke der Dämpfung im Medium angibt.

¹⁷Siehe Tabelle 3.1 auf Seite 74

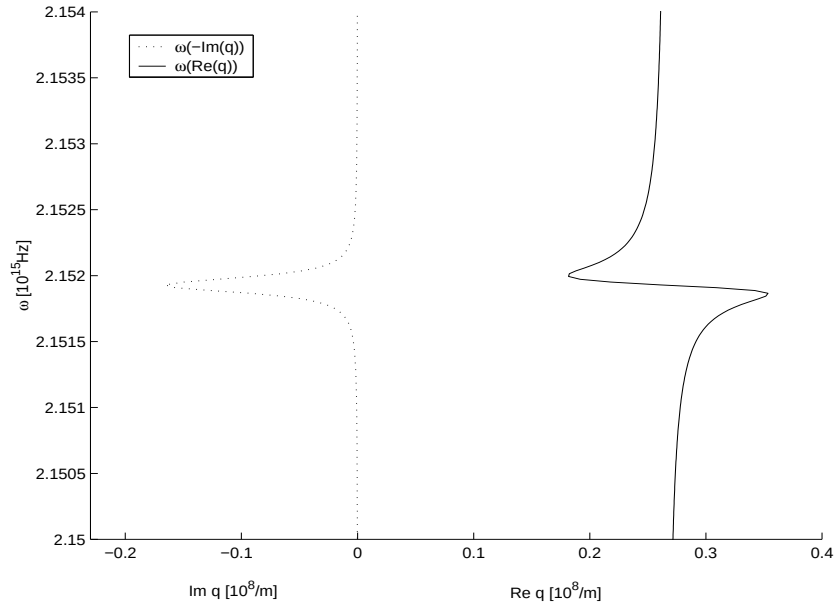


Abbildung 3.3:

Exziton-Polariton-Dispersion mit Dämpfung aber ohne räumliche Dispersion, 1s-Exziton-Resonanz bei $\frac{E_1 + E_{\text{Gap}}}{\hbar} \approx 2,152 \cdot 10^{15} \text{ Hz}$

Mit einer endlichen Dämpfung im Medium ist Energiedissipation verbunden, und damit nur eine endliche Eindringtiefe einer elektromagnetischen Welle in das Medium. Man erkennt in Abbildung 3.2, dass im Bereich der Exziton-Resonanz zwei Ausbreitungsmoden für elektromagnetische Wellen im Medium existieren. Ohne Berücksichtigung der räumlichen Dispersion, also $\varepsilon(q, \omega) \rightarrow \varepsilon(\omega)$, ist die Dispersion der Exziton-Polaritonen in Abbildung 3.3 dargestellt, allerdings immer noch mit endlicher Dämpfung γ . Der Vergleich der Abbildungen 3.2 und 3.3 zeigt, dass die räumliche Dispersion offensichtlich dazu führt, dass um die 1s-Exziton-Resonanz zwei Ausbreitungsmoden für elektromagnetische Wellen im Medium existieren. Ohne Berücksichtigung räumlicher Dispersion und ohne endliche Dämpfung γ entsteht sogar eine Frequenzlücke oberhalb der Resonanz, innerhalb derer keine Ausbreitung elektromagnetischer Wellen im Medium möglich ist, diese verschwindet bereits mit endlicher Dämpfung. Die Dämpfung ist im Allgemeinen frequenzabhängig, hier wird aber nicht näher auf die mikroskopischen Mechanismen eingegangen, weshalb sie phänomenologisch als Konstante eingeführt wird.¹⁸

Im folgenden Kapitel werden die optischen Eigenschaften von Exzitonen in einem in einer Dimension räumlich inhomogenen Medium untersucht. Die räumliche Inhomogenität des Systems macht es notwendig die exzitonische Übergangsamplitude in der eingeschränkten Raumrichtung in Abhängigkeit der Elektron- und Loch-Koordinaten zu untersuchen. Das führt unter Berücksichtigung der Randbedingungen auf mikroskopischer Ebene automatisch zu räumlich nicht konstanten optischen Eigenschaften, also zu räumlicher Dispersion. Eine Reduktion der Analyse der Übergangsamplitude auf die Elektron-Loch-Relativbewegung ist nicht mehr möglich, die Schwerpunktbewegung muss explizit mit in Betracht gezogen werden. Die Übergangsamplitude wird deshalb in der räumlich inhomogenen Richtung im Ortsraum betrachtet. Eine

¹⁸Eine Konstante Dämpfung $i\gamma$ führt automatisch zu lorentzförmiger Absorption um die Exziton-Resonanzen.

Fouriertransformation wie in einem unendlich ausgedehnten System in dieser Raumrichtung ist durch die speziellen Randbedingungen nicht mehr möglich. Die Dämpfung wird allerdings weiterhin als konstant angenommen und nicht durch im Allgemeinen frequenzabhängige mikroskopische Mechanismen begründet. Diese Annahme lässt sich recht gut für tiefe Temperaturen rechtfertigen, weil dann näherungsweise auf die Berücksichtigung komplizierter Streuvorgänge der Exziton-Polaritonen mit optischen Phononen im Medium verzichtet werden kann.

Zum Abschluss dieses Kapitels folgt nun noch eine quantenmechanische Betrachtung des gekoppelten Exziton-Photon-Systems im Medium. Dazu müssen zunächst in zweiter Quantisierung Erzeuger und Vernichter für Exzitonen konstruiert werden. Es werden dazu Elektron- und Loch-Erzeuger bzw. -Vernichter eingeführt. Die Operatoren $a_{\vec{k}}^\dagger, a_{\vec{k}}$ ($b_{\vec{k}}^\dagger, b_{\vec{k}}$) erzeugen bzw. vernichten gerade ein Elektron (Loch) mit Impuls $\vec{k}$ ($-\vec{k}$) im Leitungs- bzw. Valenzband. Daraus lassen sich nun Exziton-Erzeuger und -Vernichter konstruieren:

$$B_{\nu, \vec{q}}^\dagger = \sum_{\vec{k}, \vec{k}'} \langle \vec{k}, -\vec{k}' | \nu, \vec{q} \rangle a_{\vec{k}}^\dagger b_{\vec{k}'}^\dagger \quad \text{und} \quad B_{\nu, \vec{q}} = \sum_{\vec{k}, \vec{k}'} \langle \nu, \vec{q} | \vec{k}, -\vec{k}' \rangle b_{\vec{k}'} a_{\vec{k}} \quad (3.19)$$

Die so eingeführten Exziton-Operatoren erzeugen bzw. vernichten gerade ein Exziton im Zustand ν mit Impuls $\vec{q}$, also im Zustand $|\nu, \vec{q}\rangle$, wenn $|\vec{k}, -\vec{k}'\rangle$ den Zustand $a_{\vec{k}}^\dagger b_{\vec{k}'}^\dagger |0\rangle$ bezeichnet. Die Entwicklungskoeffizienten sind in Effektiver-Masse-Näherung im dreidimensionalen Kristall gegeben durch:

$$\begin{aligned} \langle \vec{k}, -\vec{k}' | \nu, \vec{q} \rangle &= \left(\langle \nu, \vec{q} | \vec{k}, -\vec{k}' \rangle \right)^* = \int d^3r d^3r' \langle \vec{k}, -\vec{k}' | \vec{r}, \vec{r}' \rangle \langle \vec{r}, \vec{r}' | \nu, \vec{q} \rangle \\ &= \int d^3r d^3r' e^{-i\vec{k}\vec{r}} e^{i\vec{k}'\vec{r}'} e^{i\vec{q}\vec{R}} \psi_\nu(\vec{r} - \vec{r}') \end{aligned}$$

mit der Schwerpunktkoordinate des Exzitons $\vec{R} = \frac{m_e^* \vec{r} + m_h^* \vec{r}'}{m_e^* + m_h^*}$ und mit der Wellenfunktion $\psi_\nu(\vec{r} - \vec{r}')$ der Elektron-Loch-Relativbewegung. Nach kurzer Rechnung folgt daraus:

$$\langle \vec{k}, -\vec{k}' | \nu, \vec{q} \rangle = \left(\langle \nu, \vec{q} | \vec{k}, -\vec{k}' \rangle \right)^* = \delta \left(\vec{q} - (\vec{k} - \vec{k}') \right) \cdot \psi_\nu \left(\vec{q} \cdot \frac{m_h^*}{m_e^* + m_h^*} + \vec{k}' \right)$$

Hierbei ist $\psi_\nu(\vec{k})$ die fouriertransformierte Wellenfunktion der Elektron-Loch-Relativbe-

Unter Berücksichtigung der Anschlussbedingungen für das elektrische Feld und der zusätzlichen Randbedingungen ergibt sich das zu lösende Gleichungssystem:

$$E_{\text{left}}(z_1, \omega) = E_{\text{mat}}(z_1, \omega) : \quad e^{iq_l z_1} + E_r(\omega)e^{-iq_l z_1} = \sum_{p=1,2} E_p^+(\omega)e^{iq_p z_1} + E_p^-(\omega)e^{-iq_p z_1} \quad (3.25 \text{ a})$$

$$\frac{\partial E_{\text{left}}(z, \omega)}{\partial z} \Big|_{z_1} = \frac{\partial E_{\text{mat}}(z, \omega)}{\partial z} \Big|_{z_1} : \quad iq_l e^{iq_l z_1} - iq_l E_r(\omega)e^{-iq_l z_1} = \sum_{p=1,2} iq_p E_p^+(\omega)e^{iq_p z_1} - iq_p E_p^-(\omega)e^{-iq_p z_1} \quad (3.25 \text{ b})$$

$$E_{\text{mat}}(z_2, \omega) = E_{\text{right}}(z_2, \omega) : \quad E_t(\omega)e^{iq_r z_2} = \sum_{p=1,2} E_p^+(\omega)e^{iq_p z_2} + E_p^-(\omega)e^{-iq_p z_2} \quad (3.25 \text{ c})$$

$$\frac{\partial E_{\text{mat}}(z, \omega)}{\partial z} \Big|_{z_2} = \frac{\partial E_{\text{right}}(z, \omega)}{\partial z} \Big|_{z_2} : \quad iq_r E_t(\omega)e^{iq_r z_2} = \sum_{p=1,2} iq_p E_p^+(\omega)e^{iq_p z_2} - iq_p E_p^-(\omega)e^{-iq_p z_2} \quad (3.25 \text{ d})$$

$$P(z_1, \omega) = 0 : \quad \sum_{p=1,2} \chi(q_p, \omega) [E_p^+(\omega)e^{iq_p z_1} + E_p^-(\omega)e^{-iq_p z_1}] = 0 \quad (3.25 \text{ e})$$

$$P(z_2, \omega) = 0 : \quad \sum_{p=1,2} \chi(q_p, \omega) [E_p^+(\omega)e^{iq_p z_2} + E_p^-(\omega)e^{-iq_p z_2}] = 0 \quad (3.25 \text{ f})$$

Aus der Lösung dieses Gleichungssystems in Abhängigkeit der Frequenz ω folgt

$$R(\omega) = 1 - T(\omega) = 1 - |E_t(\omega)|^2$$

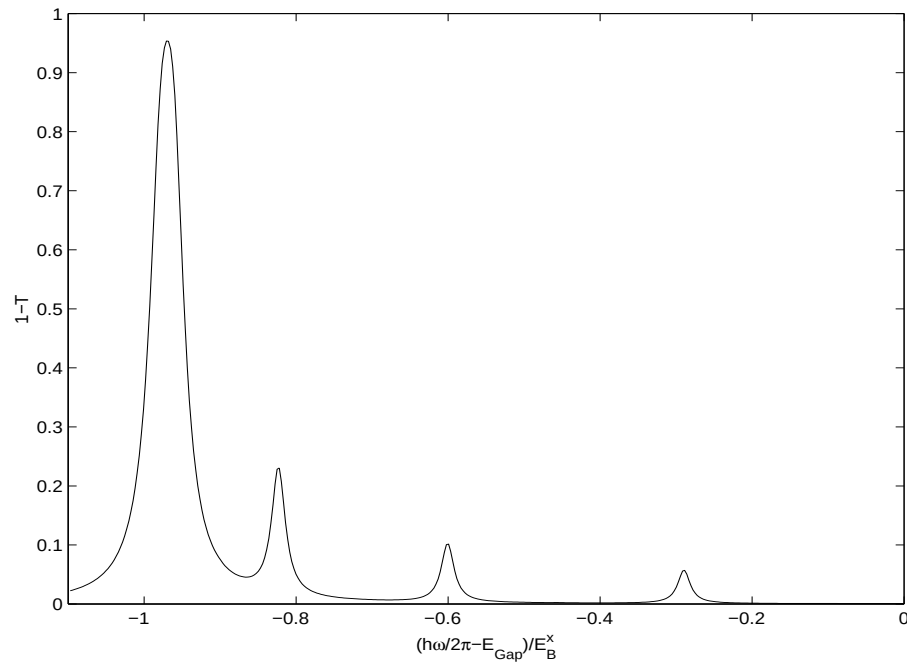
die Reflexion an der Schicht. In Abbildung 3.4 ist ein aus diesem Gleichungssystem für eine Schichtdicke von $L = 10 \text{ a}\ddot{\text{o}}$ berechnetes Spektrum dargestellt. Verwendet wurden dafür die GaAs-Parameter aus Tabelle 3.1 auf Seite 74.

Die hier eingeführten zusätzlichen Randbedingungen an die makroskopische Polarisation entsprechen gerade Randbedingungen an die Exziton-Schwerpunktbewegung. Für die Exziton-Schwerpunktbewegung führen die hier gestellten Randbedingungen zu stehenden Wellen in z -Richtung, also zu den möglichen quantisierten Zuständen für ein Teilchen der Masse M^* in einem Potentialtopf der Breite L mit unendlich hohen Wänden. Für die möglichen Energieeigenwerte des Exzitons in der Schicht ergibt sich damit in diesem Modell:²⁴

$$E_n^x = E_B^x + E_{\text{Gap}} + \frac{\hbar^2}{2M^*} q_n^2 \quad \text{mit} \quad q_n = \frac{\pi}{L} n \quad \text{mit} \quad n = 1, 2, \dots \quad (3.26)$$

Dabei entspricht E_B^x der Exziton-Bindungsenergie wie im Volumenkristall, da die Relativbewegung als unbeeinflusst von den Randbedingungen angenommen wird.

²⁴Die hier eingeführten zusätzlichen Randbedingungen führen zu einer Quantisierung der Schwerpunktbewegung mit den möglichen, im Gegensatz zum Volumenkristall jetzt diskreten Wellenzahlen $q_n = \frac{\pi}{L} n$.



Abbildungung 3.4:

Reflexion mit Pekar'schen Randbedingungen für eine Probendicke $L = 10 a_0^x$, zu den verwendeten GaAs-Parametern siehe Tabelle 3.1 auf Seite 74

Die Quantisierung der Schwerpunktbewegung in z -Richtung führt im Transmissionsspektrum 3.4 zu zusätzlichen Peaks auf der hochenergetischen Seite des $1s$ -Exzitons. Betrachtet man nur die möglichen exzitonischen Zustände in der Schicht, müssten die Exziton-Resonanzen bei den nach Gleichung (3.26) gegebenen Eigenenergien der Exzitonen liegen. Bei starker Kopplung an das Medium ist aber eine Betrachtung im Polariton-Bild notwendig, woraus sich dann das in Abbildung 3.4 dargestellte Spektrum ergibt, in dem die Resonanzpeaks etwas zu höheren Energien gegenüber den exzitonischen Energieeigenwerten in Gleichung (3.26) verschoben sind.

In diesem Kapitel haben wir ein Modell aufgestellt, mit dem sich Transmissionsspektren durch dünne Halbleiterschichten unter expliziter Berücksichtigung der $1s$ -Exziton-Resonanz berechnen lassen. Man sollte sich aber bewusst sein, dass hier die Lösungen der Exziton-Gleichung im Volumenkristall verwendet wurden. Die für die Beschreibung des Systems notwendigen Randbedingungen wurden nur phänomenologisch als sogenannte zusätzliche Randbedingungen an die makroskopische Polarisation gestellt. Eine korrekte Beschreibung des betrachteten Systems erhält man erst durch Einführung von mikroskopischen Randbedingungen, die direkt an die Exziton-Übergangsamplitude gestellt werden. Diese genügt der inhomogenen Exziton-Gleichung (3.9). Die Übergangsamplitude verschwindet gerade dann, wenn entweder Elektron oder Loch die Oberfläche erreichen:

$$\psi(\vec{r}_e, \vec{r}_h)|_{\vec{r}_e=\vec{r}_{\text{OF}}} = \psi(\vec{r}_e, \vec{r}_h)|_{\vec{r}_h=\vec{r}_{\text{OF}}} = 0$$

Die mikroskopische Beschreibung der Propagation von Exziton-Polaritonen durch eine dünne Halbleiterschicht erfolgt deshalb im nächsten Kapitel.

3.3.2 Mikroskopische Theorie

In diesem Kapitel wird eine mikroskopische Theorie entwickelt, um die Polariton-Propagation durch eine Halbleiterschicht beschreiben zu können. Dazu wird im Folgenden beschrieben, wie für die hier speziell gewählte Probengeometrie die inhomogene Exziton-Gleichung selbstkonsistent zusammen mit den Maxwell-Gleichungen gelöst werden kann. Die Exziton-Übergangsamplitude genügt nach Kapitel 3.2.1 folgender Bewegungsgleichung:

$$\left[i\hbar \frac{\partial}{\partial t} - E_{Gap} + \frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_{\vec{r}_e}^2 + \frac{\hbar^2}{2m_h} \nabla_{\vec{r}_h}^2 + V(|\vec{\rho}|) \right] \psi(\vec{r}_e, \vec{r}_h) = -\vec{d}_{c,v} \vec{E}(\vec{r}, t) \delta(\vec{\rho}) \quad (3.27)$$

mit $\vec{\rho} = \vec{r}_e - \vec{r}_h$ und $\vec{r} = (\vec{r}_e + \vec{r}_h)/2$ und dem lokalen Dipolmatrixelement $\vec{d}_{c,v}(\vec{\rho}) = \vec{d}_{c,v} \delta(\vec{\rho})$. Es werden hier die vollen Elektron- und Loch-Koordinaten berücksichtigt, weil sich Relativ- und Schwerpunktbewegung mit den speziell gewählten Randbedingungen nicht mehr in allen Raumrichtungen durch einen Produktansatz voneinander separieren lassen. Es wird hier, wie bereits in Kapitel 3.3.1, ein idealisiertes System betrachtet, wie es sich aber in entsprechender Weise auch experimentell realisieren lässt. Es handle sich um ein Medium, das in x - und y -Richtung unendlich ausgedehnt angenommen wird, und in z -Richtung räumlich beschränkt ist, d.h. um eine Halbleiterschicht von der Dicke einiger Exziton-Bohr-Radien in der x - y -Ebene. Ein in der x - y -Ebene homogenes optisches elektromagnetisches Feld wird in z -Richtung auf die Probe eingestrahlt:

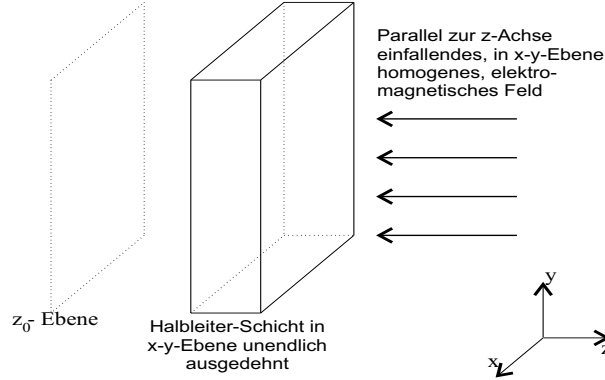


Abbildung 3.5: Abbildung zur Geometrie der Simulation

Daraus ergibt sich eine Rotationsinvarianz und eine Translationsinvarianz des Systems in der x - y -Ebene, zumindest für die Beschreibung des optischen Feldes und für die Bandstruktur, die hier nur in Effektiv-Masse-Näherung und als isotrop in der Nähe des Γ -Punktes angenommen wird. In der x - y -Ebene ist weiterhin eine Separation der Gleichung (3.27) in Relativ- und Schwerpunktkoordinaten möglich, nicht aber in z -Richtung, wo die Elektron- und Loch-Koordinaten (z_e, z_h) getrennt betrachtet werden müssen:

$$\psi(\vec{r}_e, \vec{r}_h) = \psi(\vec{r}_{e\perp} - \vec{r}_{h\perp}, z_e, z_h) e^{i\vec{q}_\perp \vec{R}_\perp} = \psi(\vec{\rho}_\perp, z_e, z_h) e^{i\vec{q}_\perp \vec{R}_\perp}$$

Es findet in der hier gewählten Geometrie keine Schwerpunktbewegung der Exzitonen in der x - y -Ebene statt, da das elektromagnetische Feld nur einen Impuls in z -Richtung bei der Anregung der Exzitonen auf diese überträgt, also $|\vec{q}_\perp| = 0$.

Es ist nun zweckmäßig Gleichung (3.27) in der x - y -Ebene bezüglich der Elektron-Loch-Relativkoordinate Fourier zu transformieren. Dazu wird in geeigneter Weise die Übergangsamplitude eingeführt als:

$$\psi(\vec{k}_\perp; z_e, z_h) = \int d^2\rho_\perp e^{i\vec{k}_\perp \vec{\rho}_\perp} \psi(\vec{\rho}_\perp, z_e, z_h)$$

Aufgrund der Rotationsinvarianz in der gewählten Geometrie in der x - y -Ebene ist es sinnvoll $\vec{k}_\perp$ durch Betrag $|\vec{k}_\perp|$ und Winkel $\phi_\perp$ auszudrücken: $\vec{k}_\perp = |\vec{k}_\perp| \cdot e^{i\phi_\perp}$. Für die Übergangsamplitude folgt daraus die Entwicklung:

$$\psi(\vec{k}_\perp; z_e, z_h) = \sum_m \psi_m(k_\perp, z_e, z_h) e^{im\phi_\perp}$$

Die transformierte Bewegungsgleichung für die Elektron-Loch-Übergangsamplitude lässt sich dann schreiben als:²⁵

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi_0(k_\perp, z_e, z_h, t) = \left[E_{Gap} + i\gamma + \frac{\hbar^2}{2\mu^*} k_\perp^2 - \frac{\hbar^2}{2m_e^*} \frac{\partial^2}{\partial z_e^2} - \frac{\hbar^2}{2m_h^*} \frac{\partial^2}{\partial z_h^2} \right] \psi_0(k_\perp, z_e, z_h, t) \quad (3.28)$$

$$- \int_0^\infty dk'_\perp k'_\perp V(k_\perp, k'_\perp, |z_e - z_h|) \psi_0(k'_\perp, z_e, z_h, t) - d_{cv} E(z, t) \delta(z_e - z_h)$$

$$\text{mit} \quad V(k_\perp, k'_\perp, |z_e - z_h|) = \frac{e^2}{8\pi^2 \varepsilon_0 n_{bg}^2} \int_0^{2\pi} d\phi_\perp \frac{e^{-|\vec{k}_\perp - \vec{k}'_\perp| |z_e - z_h|}}{|\vec{k}_\perp - \vec{k}'_\perp|}$$

$$\text{und} \quad |\vec{k}_\perp - \vec{k}'_\perp| = \sqrt{k_\perp^2 + k'^2_\perp - 2k_\perp k'_\perp \cos \phi_\perp}$$

An diese Bewegungsgleichung können auf mikroskopischer Ebene Randbedingungen an die Exziton-Übergangsamplitude in z -Richtung gestellt werden; sie muss immer dann identisch Null sein, wenn entweder die Elektron- oder die Loch- z -Koordinate der Oberfläche des Mediums entspricht. Hier wurde angepasst an die gewählte Geometrie das eingestrahlte elektromagnetische Feld als zirkular polarisierte, in z -Richtung propagierende Welle gewählt. Damit lassen sich $\vec{E}$ - und $\vec{B}$ -Feld beschreiben durch $\vec{E}(\vec{r}, t) = E(z, t) \vec{e}_+$ und $\vec{B}(\vec{r}, t) = B(z, t) i\vec{e}_+$, mit $\vec{e}_+ = \frac{1}{\sqrt{2}} (\vec{e}_x + i\vec{e}_y)$. Ohne freie Ladungen im Medium und einer relativen Permeabilität $\mu_r = 1$ führt dieser Ansatz dann auf die eindimensionalen Maxwell-Gleichungen im Medium, siehe dazu Anhang B.2:

$$n_{bg}^2(z) \frac{\partial}{\partial t} E(z, t) = -c_0^2 \frac{\partial}{\partial z} B(z, t) - \frac{1}{\varepsilon_0} \frac{\partial}{\partial t} P(z, t) \quad (3.29 \text{ a})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} B(z, t) = -\frac{\partial}{\partial z} E(z, t) \quad (3.29 \text{ b})$$

Hierbei bezeichnet n_{bg} den im betrachteten Frequenzbereich nicht resonanten Hintergrund-Brechungsindex des Mediums. Der Hintergrund-Brechungsindex wird in den folgenden Berechnungen innerhalb des Mediums, in dem die Exzitonen lokalisiert sind, genauso angenommen wie außerhalb. Dadurch ist es möglich zusätzlich an den Grenzflächen auftretende Reflexionen der elektromagnetischen Felder zu vermeiden, und sich auf die durch polaritonische Effekte verursachte optische Dispersion im Medium zu konzentrieren.

²⁵ Hier ist wiederum nur die $m = 0$ -Komponente der Übergangsamplitude berücksichtigt worden, weil das treibende optische Feld aufgrund seiner Homogenität in der x - y -Ebene nur eine $m = 0$ -Komponente enthält. Es werden keine $m \neq 0$ -Komponenten der Übergangsamplitude angeregt, da diese nicht durch die Coulomb-Wechselwirkung aneinander gekoppelt werden.

Der resonante Beitrag der Exziton-Übergangsamplitude zur makroskopischen Polarisation lässt sich analog zu den Ausführungen in Kapitel 3.2.1 in dieser Geometrie aus der Exziton-Übergangsamplitude folgendermaßen berechnen:

$$P(z, t) = 2\pi \int_0^\infty dk_\perp k_\perp d_{cv}^* \psi_0(k_\perp, z, z, t) \quad (3.30)$$

Hier ist wieder das lokale Dipolmatrixelement verwendet worden. Für Berechnungen im Rahmen einer mikroskopischen Theorie ist es erforderlich die Exziton-Gleichung (3.28) zusammen mit den Maxwell-Gleichungen (3.29 a) und (3.29 b) selbstkonsistent numerisch zu lösen. Dazu wird die Kopplung des Mediums an die Maxwell-Gleichungen, also der Quellterm für die elektromagnetischen Felder über die makroskopische Polarisation (3.30) berechnet, wobei das elektrische Feld als treibender Term in die inhomogene Exziton-Gleichung (3.28) eingeht. Das Schema der Selbstkonsistenz-Schleife in Abbildung 3.6 stellt die Abfolge der notwendigen Rechenschritte noch einmal übersichtlich zusammen.

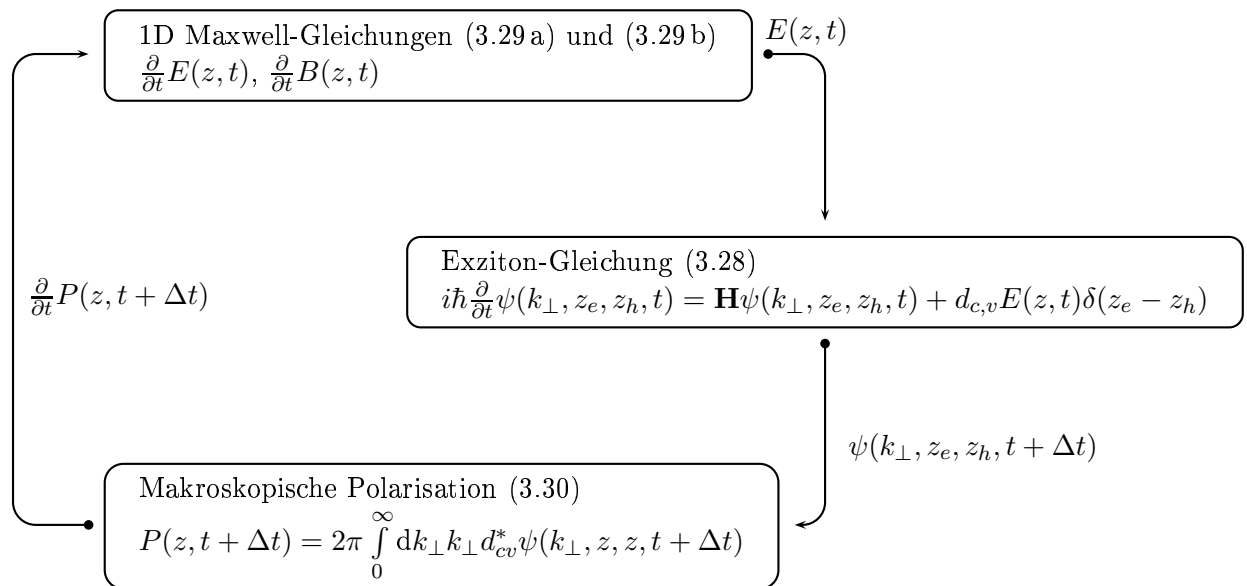


Abbildung 3.6: Schematische Darstellung der Selbstkonsistenz-Schleife

Mit den zusammengestellten Gleichungen lassen sich die Exziton-Polariton-Propagation und die optischen Eigenschaften des Mediums unter den hier mikroskopischen Randbedingungen in Abhängigkeit der Zeit berechnen. Die entsprechenden Größen in Abhängigkeit der Frequenz folgen daraus durch Fouriertransformation. Mit der konkreten numerischen Implementierung wird sich das Kapitel 3.3.3 beschäftigen. Die Auswertung der berechneten Ergebnisse folgt dann in Kapitel 3.3.4.

3.3.3 Numerische Umsetzung

In diesem Kapitel wird auf die numerische Umsetzung der Gleichungen (3.28), (3.29 a), (3.29 b) und (3.30) des vorherigen Kapitels eingegangen. Simuliert wird hier folgende Situation, um die Transmission elektromagnetischer Wellen durch das Medium zu berechnen. Mit einem kurzen (einige 10 fs), gaußförmigen „Licht“-Puls²⁶ wird eine Polarisierung im Medium angeregt, die durch die phänomenologisch eingeführte Dämpfung γ ($0,04 \text{ meV} \hat{=} 15,7 \text{ ps}$) in Gleichung (3.28) mit der Zeit unter Emission elektromagnetischer Strahlung wieder zerfällt. Hinter der Probe wird an einem festen Ort z_0 die Zeitentwicklung des elektrischen Feldes $E(t, z_0)$ beobachtet, bis die Polarisierung im Medium vollständig abgeklungen ist (nach ca. 100 ps). Aus der Fouriertransformation $E_{\text{out}}(\omega)$ des zeitlich abklingenden elektrischen Feldes $E(t, z_0)$ lässt sich dann unter Berücksichtigung des Frequenzspektrums des Anregungspulses $E_{\text{in}}(\omega)$ die Transmission $T(\omega)$ durch die Probe berechnen:

$$T(\omega) = \left(\frac{|E_{\text{out}}(\omega)|}{|E_{\text{in}}(\omega)|} \right)^2$$

Die inhomogene Exziton-Gleichung, die formal einer Zweiteilchen-Schrödingergleichung, wie sie in den Kapiteln 1 und 2 behandelt worden ist, für die Elektron-Loch-Übergangsamplitude entspricht, wird nach dem in Kapitel 1.2 beschriebenen SOD-Schema numerisch integriert. Anders als in den vorherigen Kapiteln verursacht hier die Dämpfung γ ein zeitliches Abklingen der Elektron-Loch-Übergangsamplitude. Durch die Einführung der Dämpfung γ ist der Hamiltonoperator dieses Systems nicht mehr streng hermitesch, was zu einer Instabilität des SOD-Verfahrens führt.

Beobachtet man die oben beschriebene Zeitentwicklung der Exziton-Gleichung sehr lange, ist ein auf numerische Artefakte zurückzuführendes Anwachsen der Polarisierung des Mediums zu beobachten, obwohl γ zu Beginn der Berechnungen tatsächlich als Dämpfung ein Abklingen der Polarisierung verursacht. Deshalb ist es notwendig die Berechnungen vor Auftreten dieser Instabilität zu beenden, was im Allgemeinen aber möglich ist, weil die Polarisierung zunächst ausreichend stark abklingt, um eine Fouriertransformation des zeitabhängigen E -Feldes durchführen zu können, bevor sie durch die numerischen Ungenauigkeiten wieder anzuwachsen beginnt. Ein weiterer Unterschied ist, dass die Gleichung (3.28) hier nur in einer Raumdimension diskretisiert werden muss, die einzelnen $k_{\perp}$ -Komponenten der Übergangsamplitude aber über die Coulomb-Wechselwirkung gekoppelt sind. Durch die Fouriertransformierte Coulomb-Wechselwirkung sind im Gegensatz zu den diskretisierten Hamiltonoperatoren des Kapitels 1.4 im Allgemeinen mehr Matrixelemente der Hamiltonmatrix ungleich Null, sie ist also nicht mehr ganz so „dünn besetzt“, es werden hier aber volle dreidimensionale Berechnungen durchgeführt. Der Rechenaufwand stellt sich aufgrund der Diskretisierung von Elektron- und Loch- z -Koordinate und der Diskretisierung der $k_{\perp}$ -Komponente als erheblich heraus. Deshalb sind die im Folgenden dargestellten Ergebnisse alle mit einer Ortsauflösung von ca. $0,2 a_0^x$ berechnet worden. Das entspricht bei einer maximalen Probendicke von $10 a_0^x$ maximal 50 Stützstellen im Ortsraum. Außerdem wurden für alle Berechnungen 30 Gauß'sche Quadraturpunkte zur Diskretisierung von $k_{\perp}$ verwendet, die unterhalb von $4/a_0^x$ angeordnet sind. Die Beschränkung auf $k_{\perp}$ -Werte unterhalb von $4/a_0^x$ verhindert eine korrekte numerische Berechnung der

²⁶Für die Erzeugung einer in z -Richtung einfallenden elektromagnetischen Welle ist in der 1D-Maxwell-Gleichung (3.29 a) eine externe Stromdichte außerhalb des Mediums hinzugefügt worden, die zu Beginn der jeweiligen Rechnung ein gaußförmiges Wellenpaket als Anregungspuls generiert.

optischen Eigenschaften deutlich oberhalb der Bandkante, die gebundenen und bandkanten-nahen Zustände können aber näherungsweise richtig beschrieben werden. Die gebundenen und niedrigen ungebundenen Exziton-Zustände variieren im Ortsraum nur langsam, was in der x - y -Ebene eine näherungsweise Entwicklung dieser Zustände nach ebenen Wellen mit kleinen Wellenzahlen $k_{\perp}$ ermöglicht.

Das Schema nach dem die Zeitentwicklung der Exziton-Gleichung numerisch berechnet wird sieht hier aufgrund ihrer Inhomogenität folgendermaßen aus (vergleiche Kapitel 1.2):

$$|\psi(t + \delta t)\rangle = |\psi(t - \delta t)\rangle - 2\frac{i}{\hbar} [\mathbf{H} |\psi(t)\rangle + \phi(t)] \delta t \quad (3.31)$$

wobei $\phi(t)$ die zeitabhängige Inhomogenität bezeichnet, also hier die Kopplung an das zeitabhängige elektrische Feld. Parallel zur Exziton-Gleichung müssen zu jedem Zeitschritt die ein-dimensionalen Maxwell-Gleichungen (3.29 a) und (3.29 b) gelöst werden. Zur Diskretisierung dieser gekoppelten partiellen Differentialgleichungen wird die in Anhang B.2 ausführlich beschriebene Methode der Charakteristiken verwendet. Dabei erfolgt die Diskretisierung entlang der Charakteristiken, also entlang der Lichtgeraden, um die Ausbreitung elektromagnetischer Wellen korrekt beschreiben zu können. Die Schrittweiten bei der Diskretisierung in Ort und Zeit sind dadurch gekoppelt über: $\Delta z = \frac{c_0}{n_{bg}} \Delta t$. Das heißt, durch die Diskretisierung des Ortsraums ist die Länge der Zeitschritte bereits vorgegeben. Bei einer Ortsauflösung von ca. $0,2 a_0^x$ für die Exziton-Gleichung resultieren daraus sehr kleine Zeitschritte $\ll 1$ fs, wodurch sich sehr lange Rechenzeiten für eine Zeitentwicklung von insgesamt ca. 100 ps ergeben würden. Nach dem Stabilitätslimit des SOD-Verfahrens (3.31) für die inhomogene Exziton-Gleichung könnten die Zeitschritte allerdings in der Größenordnung von 1 fs gewählt werden. Außerdem ist zwar für die korrekte Behandlung der Exziton-Bewegung eine hohe Ortsauflösung erforderlich; um an die Maxwell-Gleichungen ausreichend Informationen aus dem Medium übertragen zu können, reichen dagegen etwa 10 Stützstellen innerhalb des Mediums. Die optischen elektromagnetischen Felder variieren auf der Längenskala von $1 a_0^x$ nur wenig, im Gegensatz zur Exziton-Wellenfunktion, für die ein feines Ortsraster von ca. $0,2 a_0^x$ verwendet wurde. Andererseits sind kleine Zeitschritte erforderlich, um die Propagation der elektromagnetischen Wellen korrekt beschreiben zu können, die Veränderung der Polarisierung im Medium spielt sich aber auf einer sehr viel größeren Zeitskala ab. Nach Elimination der explizit in Gleichung (3.28) auftretenden Bandlückenenergie liegen die typischen exzitonischen Eigenenergien in der Größenordnung einiger meV. Die Frequenzen für die Zeitentwicklung der Exziton-Übergangsamplitude und somit der makroskopischen Polarisierung ergeben sich daraus nach Gleichung (1.10) auf Seite 7.

Diese Betrachtungen lassen es sinnvoll erscheinen für die Diskretisierung der Maxwell-Gleichungen und der Exziton-Gleichung unterschiedliche Orts- und Zeitraster zu wählen. In guter Näherung kann dadurch die Polarisierung des Mediums über mehrere Zeitschritte für die Maxwell-Gleichungen als konstant angesehen werden (ca. 1 fs lang), während die Polarisierung des Mediums bei der Kopplung an die elektromagnetischen Felder über mehrere Stützstellen der Exziton-Gleichung (für eine Probendicke von $10 a_0^x$ etwa über ein Intervall von $1 a_0^x$) im Ortsraum gemittelt wird. Durch diese Entkopplung des Orts- und Zeitrasters für die Behandlung der beiden gekoppelten, partiellen Differentialgleichungen (1D-Maxwell-Gleichungen und inhomogene Exziton-Gleichung), ist es möglich den numerischen Aufwand bei den Berechnungen deutlich zu reduzieren, ohne dass sich die Näherungen im Ergebnis sichtlich bemerkbar machen.

3.3.4 Mikroskopische Theorie vs. Pekars ABCs

Zunächst werden hier Ergebnisse vorgestellt, die mit der mikroskopischen Theorie zur Beschreibung der Polariton-Propagation durch dünne Halbleiterschichten, wie in Kapitel 3.3.2 beschrieben, berechnet wurden. Anschließend beschäftigt sich dieses Kapitel mit dem Vergleich der Ergebnisse, berechnet mit den makroskopischen Pekar'schen Randbedingungen aus Kapitel 3.3.1 mit den Ergebnissen der mikroskopischen Theorie. Es sei erwähnt, dass es nicht Ziel dieser Arbeit ist, den direkten Vergleich zwischen theoretischen und experimentellen Ergebnissen herzustellen. Dafür sei auf [Schneider et al., 2001] verwiesen, wo anhand eines Beispiels die gute Übereinstimmung theoretischer Ergebnisse, die mit der oben beschriebenen mikroskopischen Methode berechnet wurden, mit dem Experiment gezeigt wird.

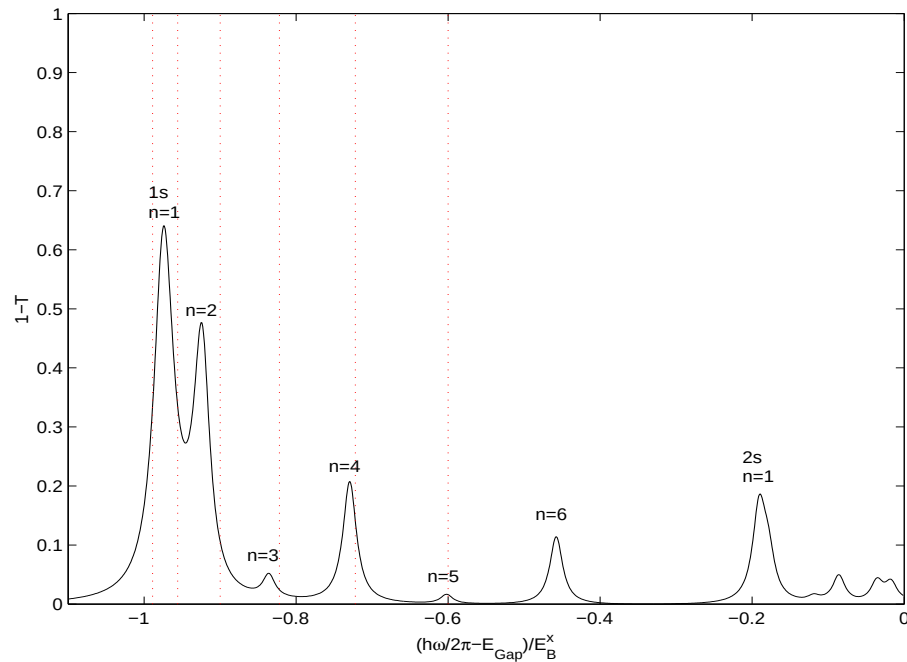
Im Folgenden wird mit für die theoretischen Betrachtungen idealisierten Proben gearbeitet, als Beispielmateriale mit GaAs, mit Schichtdicken zwischen $10a_0^x$ und $2a_0^x$. In Proben dieser Dicken lassen sich die durch die räumliche Lokalisierung der Exzitonen in einer dünnen Schicht herbeigeführten Effekte auf theoretischer Ebene gut beobachten. Es handelt sich bei der Wahl der Dicken weder um näherungsweise unendlich ausgedehnte, dreidimensionale Festkörper, noch kann man bereits von annähernd zweidimensionalen Festkörpern sprechen. In den hier durchgeführten Berechnungen wird zudem nur die Interband-Polarisation zwischen einem Leitungs- und einem Valenzband betrachtet, wobei jeweils isotrope effektive Massen für Elektron und Loch angenommen werden. Einflüsse einer möglichen Verspannung der kubischen GaAs-Gitterstruktur im Experiment werden nicht berücksichtigt werden. Die effektiven Materialparameter für die folgenden Berechnungen sind in Tabelle 3.1 zusammengestellt.

effektive Loch-Masse	m_h^*/m_e	0,457
effektive Elektron-Masse	m_e^*/m_e	0,067
Dipolkopplung	$d_{c,v}[nm]/e$	0,5
Hintergrund-Brechungsindex	n_{bg}	3,71
Bandlückenenergie	$E_{Gap}[eV]$	1,42

Tabelle 3.1: Verwendete Materialparameter für *GaAs*

In Abbildung 3.7 ist das optische Transmissionsspektrum einer $10a_0^x$ dicken Probe dargestellt, berechnet mit der mikroskopischen Theorie. Es ist deutlich zu erkennen, dass neben dem etwas zu höheren Energien verschobenen 1s-Exziton weitere Peaks in dem berechneten Spektrum auftreten. Durch die Lokalisierung in z -Richtung handelt es sich bei dem Ergebnis offensichtlich nicht mehr um ein wasserstoffähnliches Exziton-Spektrum, sondern es tritt eine zusätzliche Quantisierung der Energieniveaus auf. Als einfachste Näherung könnte man annehmen, dass trotz der speziellen Randbedingungen weiterhin eine Separation der Exziton-Bewegung durch einen einfachen Produktansatz in Relativ- und Schwerpunktbewegung möglich ist. Das heißt, das Exziton wird in dieser Näherung als punktförmiges Teilchen betrachtet, wodurch der Einfluss der Randbedingungen auf die Elektron-Loch-Relativbewegung vernachlässigt werden kann. Die durch die Randbedingungen in z -Richtung möglichen quantisierten Eigenenergien der Exziton-Schwerpunktbewegung erhält man dann entsprechend zu denen eines Teilchens im Potentialtopf der Breite $L = 10a_0^x$, mit unendlich hohen Barrieren und mit der Gesamtmasse $M^* = m_e^* + m_h^*$ des Exzitons:

$$E_n = \frac{\hbar^2 \pi^2 n^2}{2M^* L^2} \quad \text{mit} \quad n = 1, 2, \dots$$

Abbildung 3.7: Reflexion für $10 a_0^x$ Probendicke

Unter Berücksichtigung der Bindungsenergie des Exzitons durch die Relativbewegung erhält man die Positionen, an denen man nach dieser einfachen Abschätzung zusätzliche Peaks im Spektrum erwarten würde, vergleiche dazu auch Kapitel 3.3.1:

$$E_n^x = E_B^x + E_{\text{Gap}} + \frac{\hbar^2 \pi^2 n^2}{2M^* L^2} \quad \text{mit } n = 1, 2, \dots \quad (3.32)$$

Bezeichnung der Resonanz	Pos. im Spektrum	Pos. nach Gl. (3.32) mit $L = 10 a_0^x$	eff. Probendicke nach Gl. (3.32) $L^*[a_0^x]$	eff. Probendicke nach Pekar $L^*[a_0^x]$
$1s, n = 1$	-0,974	-0,989	6,53	7,20
$1s, n = 2$	-0,925	-0,956	7,69	7,40
$1s, n = 3$	-0,836	-0,900	7,81	7,75
$1s, n = 4$	-0,729	-0,822	8,10	8,05
$1s, n = 5$	-0,602	-0,722	8,35	8,30
$1s, n = 6$	-0,458	-0,600	8,59	8,55
$2s, n = 1$	-0,190	-0,239	4,30	—

Tabelle 3.2: Position der Exziton-Resonanzen im Spektrum in Abbildung 3.7

Die nach dieser einfachen Gleichung berechneten möglichen Eigenenergien des Exzitons sind in Tabelle 3.2 (Spalte 3) zusammengestellt, und als vertikale Linien mit in das Spektrum in Abbildung 3.7 eingetragen. Man sieht jedoch deutlich, dass diese Linien nicht mit den entsprechenden Peaks im Spektrum zusammenfallen. Für diese einfache Abschätzung ist gerade die endliche räumliche Ausdehnung der Exzitonen vernachlässigt worden. Will man die Positionen der Peaks nach Gleichung (3.32) erklären, muss man die tatsächliche Probendicke durch effektive Potentialtopfbreiten L^* anpassen.

Die Potentialtopfbreiten, die jeweils notwendig sind um, die zusätzlichen Peaks im Spektrum nach Gleichung (3.32) anzupassen, sind mit in Tabelle 3.2 (Spalte 4) eingetragen. Die Relativbewegung von Elektron und Loch führt in dieser Betrachtungsweise dazu, dass die tatsächliche Probendicke effektiv dünner zu sein scheint, genaugenommen ist aber keine Separation von Relativ- und Schwerpunktbewegung möglich, da diese über die Randbedingungen gekoppelt sind. Die getrennte Betrachtung sollte nur zur Interpretation der Spektren dienen. Als Bestätigung, dass diese Art der Interpretation zumindest qualitativ zu sinnvollen Annahmen führt, ist in Abbildung 3.8 die Polarisation des Mediums bei stationärer Anregung der Probe mit monochromatischen elektromagnetischen Feldern bei den Resonanzpeaks im Spektrum der Abbildung 3.7 dargestellt.

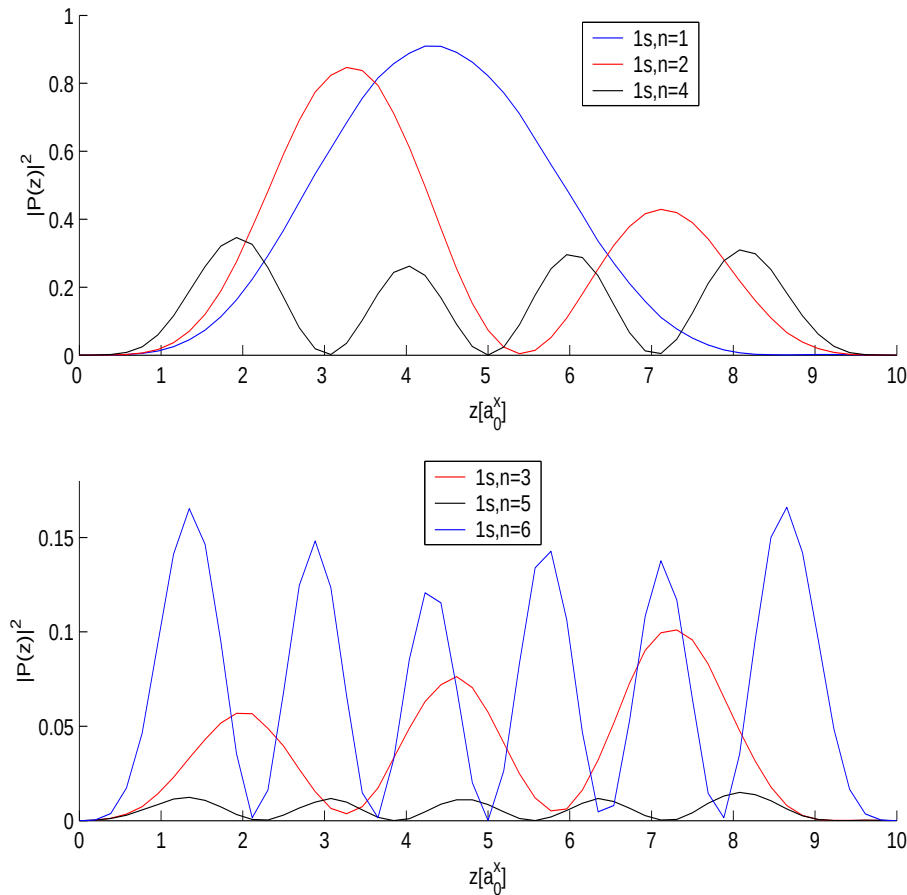


Abbildung 3.8: Stationäre Polarisation bei den Resonanzfrequenzen für $10 a_0^x$ Probendicke

Bei einer einfachen Quantisierung der Schwerpunktbewegung im Potentialtopf würden sich als mögliche Zustände im Topf stehende Sinuswellen ergeben. In Abbildung 3.8 lässt sich nun qualitativ erkennen, dass sich je nach Anregungsfrequenz stationär Polarisationen des Mediums einstellen, die am Rand der Probe verschwinden und unterschiedlich viele „Nullstellen“ im Inneren der Probe aufweisen.²⁷

²⁷Die hier dargestellten, stationären Polarisationen im Medium zeigen offensichtlich keine völlig symmetrische Struktur bezüglich der Probenmitte bei $z = 5 a_0^x$, die Anregungssituation ist aber auch nicht symmetrisch. Das anregende Feld wird in negativer z -Richtung auf die Probe eingestrahlt.

Diese Ergebnisse stützen qualitativ die oben aufgeführte näherungsweise Interpretation einer Quantisierung der Exziton-Schwerpunktbewegung im Potentialtopf. Interessant ist jedoch, dass in der Nähe der Oberflächen Bereiche auftreten, in denen kaum eine Polarisation des Mediums möglich ist. Dieses Phänomen ist darauf zurückzuführen, dass es sich bei einem Exziton um ein räumlich ausgedehntes „Teilchen“ handelt, und somit die Relativbewegung mit in Betracht gezogen werden muss. Die Elektron-Loch-Übergangsamplitude verschwindet, wenn Elektron oder Loch die Oberfläche der Probe erreichen. Anhand dieser Beobachtung wird verständlich, warum die Ergebnisse der einfachen Quantisierung der Schwerpunktbewegung mit effektiv kleineren Probendicken an das volle berechnete Spektrum angepasst werden konnten. Es lässt sich anhand der mikroskopischen Theorie erkennen, dass die unter den hier speziell gewählten Randbedingungen nur noch näherungsweise mögliche Separation der Relativ- von der Schwerpunktbewegung die Einführung polarisationsfreier Oberflächenschichten, sogenannter Dead-layer²⁸, nahelegt.

Das in Abbildung 3.7 dargestellte Spektrum wird nun verglichen mit dem in Kapitel 3.3.1 mit der Einführung makroskopischer Randbedingungen gewonnenen Spektrum in Abbildung 3.4 auf Seite 67. Diese beiden Spektren wurden mit den gleichen Probenparametern berechnet. Es lässt sich jedoch nur wenig Übereinstimmung der beiden Ergebnisse erkennen. Für die Berechnung mit makroskopischen Randbedingungen wurde aber gerade vorausgesetzt, dass es näherungsweise möglich ist, Relativ- und Schwerpunktbewegung der Exzitonen zu separieren, und dass die Relativbewegung von den Randbedingungen unbeeinflusst bleibt. Es erscheint deshalb sinnvoll, nach den eben aus der mikroskopischen Rechnung gewonnenen Erkenntnissen, zusätzlich zu der Einführung makroskopischer Randbedingungen mit einer effektiv dünneren Probendicke L^* statt der tatsächlichen Probendicke L zu arbeiten, die gerade um die Dead-layer-Dicke d an den Oberflächen verringert ist, also mit $L^* = L - 2d$.²⁹ Ein mit einer effektiven Probendicke von $7,2a_0^x$ berechnetes Spektrum ist in Abbildung 3.9 dargestellt. Der Vergleich mit der mikroskopischen Rechnung in Abbildung 3.7 zeigt jetzt eine sehr viel bessere Übereinstimmung³⁰, zumindest werden Position und Struktur der Hauptresonanz im Spektrum recht gut wieder gegeben.

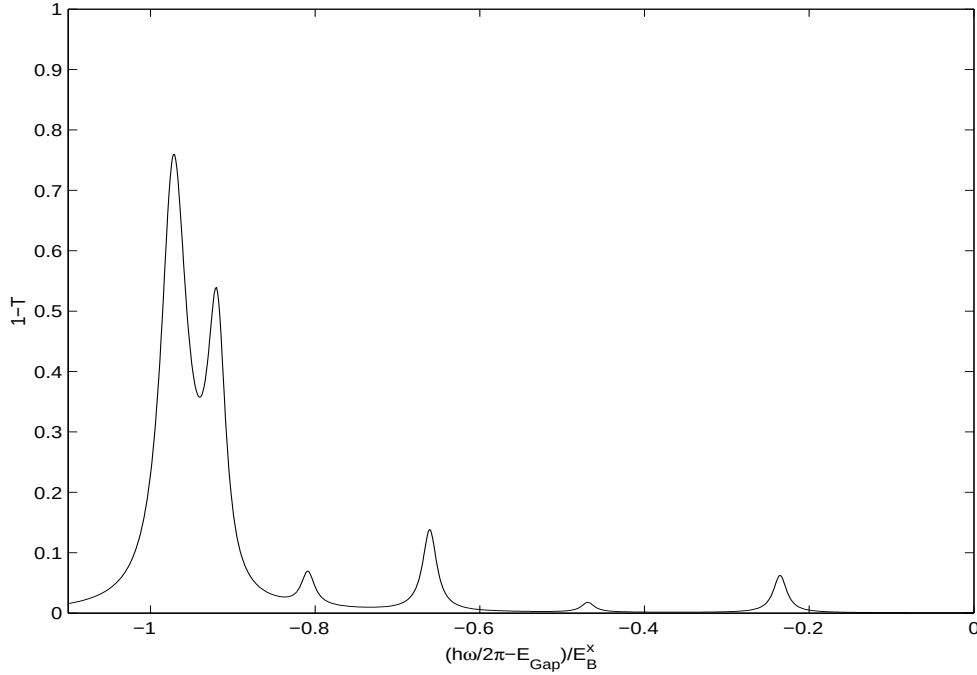
Die phänomenologische Rechnung mit effektiv verringerten Probendicken ist in der Lage, für die hier gewählten Probenparameter die auf mikroskopischer Ebene berechneten Ergebnisse teilweise korrekt wiederzugeben. Es lässt sich dagegen auch erkennen, dass die Positionen der Peaks zu höherem n von der makroskopischen Rechnung mit der hier gewählten effektiven Probendicke von $7,2a_0^x$ nicht richtig wiedergegeben werden, sie sind zu weit zu hohen Energien verschoben. Genaugenommen muss man für jeden dieser Zustände unterschiedliche Dead-layer-Dicken betrachten, auch für Peaks, die alle dem $1s$ -Exziton zugeordnet werden können. Es ergeben sich zu dem $1s$ -Exziton nicht zu allen quantisierten Zuständen die gleichen Probendicken. Die polarisationsarmen Schichten in Oberflächennähe werden für die höheren Quantenzahlen n dünner, wie auch der Vergleich mit Abbildung 3.8 zeigt.

Wenn man die Pekar'schen Randbedingungen verwenden will, ist es sinnvoll anhand der damit berechneten Transmissionsspektren die notwendigen effektiven Probendicken zu bestimmen, indem man jeweils die Peakpositionen dem mikroskopisch berechneten Spektrum anpasst.

²⁸Oberflächenschichten, die kaum Polarisierbarkeit durch optische Felder zeigen, aufgrund der Verarmung an Exzitonen, werden in der Literatur als Dead-layer bezeichnet.

²⁹Mit der phänomenologischen Einführung von Dead-layer-Schichten wird in dem makroskopischen Modell gerade der endlichen räumlichen Ausdehnung der Exzitonen Rechnung getragen.

³⁰Es können hier natürlich nur Peaks verglichen werden, die dem $1s$ -Exziton zugeordnet werden können, da nur dieses in der makroskopischen Berechnung berücksichtigt wurde.



Abbildungung 3.9:

Reflexion mit Pekar'schen Randbedingungen für eine effektive Probendicke von $7,2 a_0^x$

Die effektiven Probendicken, die sich daraus für das hier gewählte Beispiel ergeben, sind mit in Tabelle 3.2 (Spalte 5) eingetragen. Offensichtlich ergibt sich eine deutliche Abweichung gegenüber den nach Gleichung (3.32) berechneten effektiven Probendicken. Besonders ausgeprägt ist dieser Effekt für die $n = 1$ -Resonanz. Erstens reagiert für diese die effektive Probendicke besonders sensibel auf eine leichte Verschiebung der Resonanz, außerdem ist die Kopplung des exzitonischen Zustandes an das optische Feld für den Hauptpeak am stärksten. Dadurch wird die Tatsache besonders deutlich sichtbar, dass eine Behandlung des Systems im Polaritonbild notwendig ist, also eine gemeinsame Behandlung von Exzitonen und elektromagnetischem Feld. Die Positionen der Resonanzen werden dann nicht mehr ausschließlich durch die Energieeigenwerte des exzitonischen Problems bestimmt, sondern genau genommen durch die gemeinsame Polaritondispersion von Exzitonen und elektromagnetischem Feld. In den Berechnungen mit den Pekar'schen Randbedingungen werden die Polaritoneffekte berücksichtigt, die zu einer leichten Verschiebung der Resonanzen im Gegensatz zum reinen exzitonischen Eigenwertproblem führen, wie es in der hier gemachten Näherung nach Gleichung (3.32) berechnet wurde. Möchte man die effektiven Probendicken verwenden, um mit den Pekar'schen Randbedingungen Spektren zu berechnen, ist es sinnvoll auch die effektiven Probendicken anhand dieser abzulesen, wie es in den folgenden Kapiteln geschehen wird.

Nach Gleichung (3.32) muss für das $2s$ -Exziton sogar eine effektive Probendicke von nur $4,3 a_0^x$ angenommen werden, um die Position des Peaks im Spektrum zu erklären, was mit der größeren räumlichen Ausdehnung des $2s$ -Exzitons gegenüber dem $1s$ -Exziton zusammen hängt. Dadurch wird für das $2s$ -Exziton allerdings bereits die Gültigkeit der Dead-layer-Approximation überschritten, wie wir in Kapitel 3.3.5 sehen werden. Darin wird der Zusammenhang zwischen Dead-layer-Dicke und Probendicke untersucht. Außerdem wird untersucht, für welche Probendicken man noch sinnvolle Ergebnisse der Berechnungen mit Pekar'schen Randbedingungen erwarten kann.

3.3.5 Gültigkeit der Dead-layer-Approximation

In diesem Kapitel wird untersucht, für welche Probendicken die im letzten Kapitel eingeführte Dead-layer-Approximation zu physikalisch sinnvollen Ergebnissen führt. Dabei wird näherungsweise die Exziton-Relativ- und -Schwerpunktbewegung separiert in Verbindung mit der Einführung von polarisationsfreien Dead-layern an den Probenoberflächen. In der Abbildung 3.10 sind dazu zunächst die Transmissionsspektren, berechnet mit der mikroskopischen Theorie, für unterschiedliche Probendicken dargestellt. Mit abnehmender Probendicke ist dabei eine

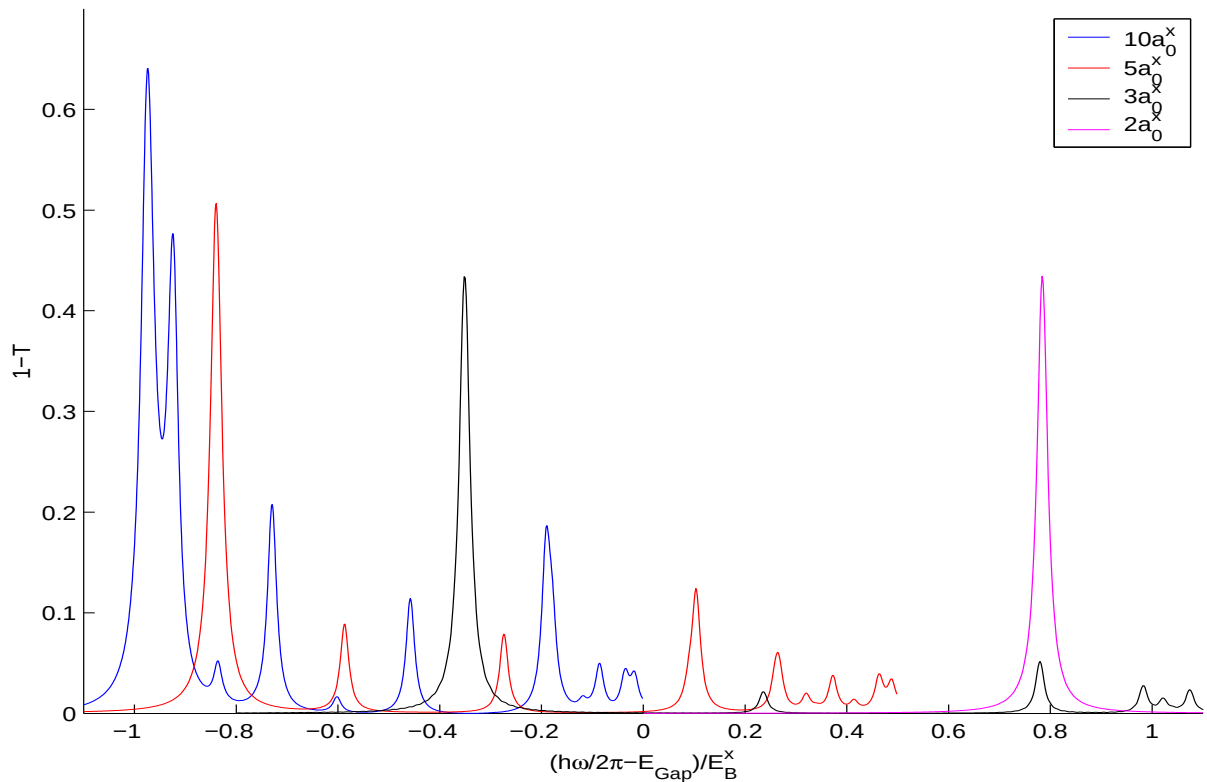


Abbildung 3.10: Reflexion für unterschiedliche Probendicken

deutliche Verschiebung der $1s, n = 1$ -Resonanz zu höheren Energien zu erkennen, verursacht durch die in den dünnen Proben zunehmend stärkere räumliche Lokalisierung der Exzitonen in z -Richtung. Dieser „Quantum-Size-Effekt“ lässt sich mit der Quantisierung der Schwerpunktbewegung nicht erklären. Beispielsweise für eine Probendicke von $2a_0^x$ liegt der $n = 1$ -Peak, mit Pekar’schen Randbedingungen berechnet bei $-0,724$, wogegen er nach der mikroskopischen Theorie in Abbildung 3.10 etwa bei $+0,8$ liegt. Für zu dünne Proben ist offensichtlich eine Separation von Schwerpunkt- und Relativbewegung nicht einmal mehr näherungsweise möglich, wie es aber die Verwendung von Pekar’schen Randbedingungen voraussetzt. Es ist für dünne Proben notwendig tatsächlich die Bewegung von Elektron und Loch unter dem Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung in der Schicht zu betrachten, wie es gerade in der mikroskopischen Theorie geschieht.

Zur zusätzlichen Illustration dessen, dass die Modellbildung, die uns im vorigen Kapitel auf die Dead-layer-Approximation geführt hat, für zu dünne Proben keine physikalisch sinnvollen Ergebnisse mehr liefert, wird im folgenden Abschnitt speziell noch einmal eine Schicht der Dicke $5a_0^x$ betrachtet.

Im Transmissionsspektrum in Abbildung 3.11 sind dazu die ersten drei Exziton-Resonanzpeaks dargestellt. Deren genaue Positionen sind in Tabelle 3.3 (Spalte 2) aufgeführt. Die Positionen im Spektrum und die effektiven Probendicken, die man durch einfache Quantisierung der Schwerpunktbewegung nach Gleichung (3.32) erhält, sind in den Spalten 3 und 4 der Tabelle 3.3 zusammengestellt. Die entsprechenden effektiven Probendicken, die sich mit Pekar'schen Randbedingungen ergeben, sind in Spalte 5 angegeben, wobei sich diese hier fast nicht von denen in Spalte 4 unterscheiden. Die starke Kopplung zwischen Exzitonen und elektromagnetischem Feld beeinflusst hier aufgrund der deutlichen Separation der einzelnen Peaks die Peakpositionen im Spektrum kaum.

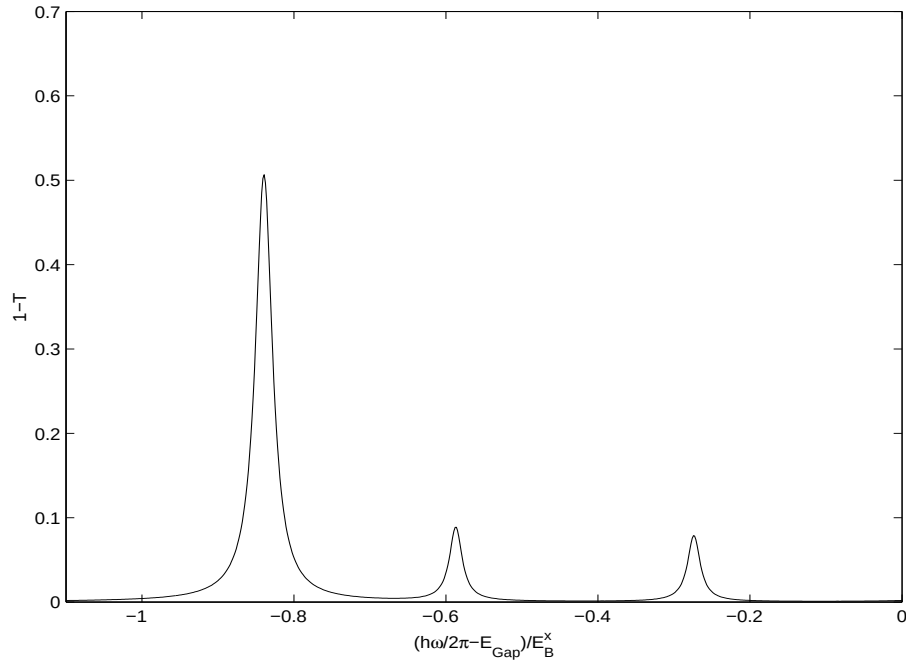


Abbildung 3.11: Reflexion für $5 a_0^x$ Probendicke

Bezeichnung der Resonanz	Pos. im Spektrum	Pos. nach Gl. (3.32) mit $L = 5 a_0^x$	eff. Probendicke nach Gl. (3.32) $L^*[a_0^x]$	eff. Probendicke nach Pekar $L^*[a_0^x]$
$1s, n = 1$	-0,839	-0,956	2,63	2,62
$1s, n = 2$	-0,587	-0,822	3,28	3,26
$1s, n = 3$	-0,274	-0,600	3,71	3,70

Tabelle 3.3: Position der Exziton-Resonanzen im Spektrum in Abbildung 3.11

Die mit den verschiedenen Ansätzen berechneten effektiven Probendicken in Tabelle 3.3, basierend auf der Quantisierung der Schwerpunktbewegung, sind offensichtlich sehr viel geringer als man sie aus der Polarisierung bei den Resonanzfrequenzen in Abbildung 3.12 abschätzen würde. Das heißt es, ist genaugenommen die Grundlage der Modellbildung, die uns zu der Einführung von polarisationarmen Oberflächenschichten bzw. zu der Betrachtung von effektiven Probendicken geführt hat, verloren gegangen.

Die Separation von Schwerpunkt- und Relativbewegung ist für zu dünne Proben nicht einmal mehr näherungsweise möglich, durch die Randbedingungen existiert eine starke Kopplung der Relativ- und Schwerpunktbewegung. Die Positionen der $n = 1$ -Peaks stimmen mit abnehmender Probendicke immer weniger mit der Quantisierung der Schwerpunktbewegung überein.

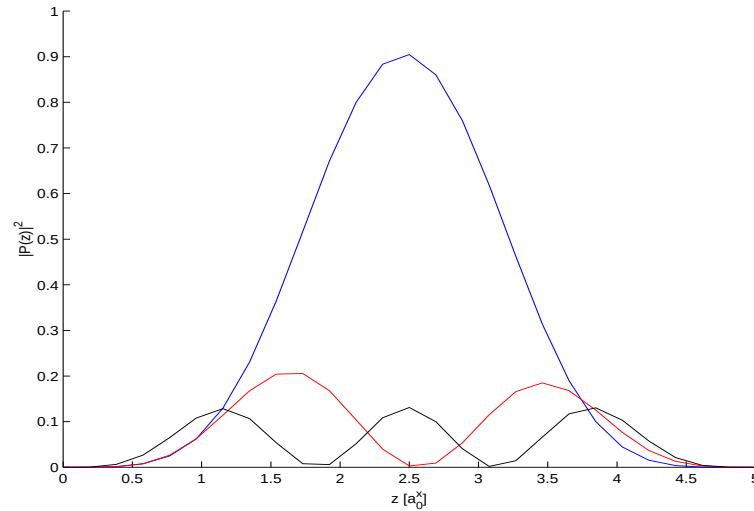


Abbildung 3.12: Stationäre Polarisation bei den Resonanzfrequenzen für $5a_0^x$ Probendicke

Abschließend wird nun noch kurz auf die Oszillatorstärken der einzelnen Peaks in den Spektren in Abhängigkeit der Probendicke eingegangen. Betrachtet man das Transmissionsspektrum für eine Probendicke von $10a_0^x$ in Abbildung 3.7 auf Seite 75, ist deutlich zu erkennen, dass im Gegensatz zu denen zu geraden n die Peaks zu ungeraden n nur sehr schwach in Erscheinung treten. Dagegen ist dieses Verhalten in Abbildung 3.11 für eine Probendicke von $5a_0^x$ nicht zu beobachten. Das Phänomen ist bereits in [Tuffigo et al., 1988] und [Tredicucci et al., 1993] experimentell beobachtet worden. Ob Peaks zu geraden oder ungeraden n oder beide deutlich im Spektrum beobachtet werden können, hängt direkt mit der Probendicke zusammen. Die Dicke der Probe bestimmt die Struktur der exzitonischen Zustände und darüber wie stark diese an das optische Feld koppeln.

Aus der einfachen Quantisierung der Schwerpunktbewegung, d.h. unter Vernachlässigung der Kopplung von Schwerpunkt- und Relativbewegung über die Randbedingungen, erhält man stehende Sinuswellen in z -Richtung für die Schwerpunktbewegung. Aus diesem Modell ergeben sich dann die folgenden Auswahlregeln für die entsprechenden Resonanzpeaks im Spektrum: für $k_{ph}L = 2\pi, 4\pi, \dots$ verschwinden die Peaks zu geraden n , für $k_{ph}L = \pi, 3\pi, \dots$ verschwinden die zu ungeraden n , und für $k_{ph}L = \pi/2, 3\pi/2, \dots$ sind Peaks zu geraden und ungeraden n gleichermaßen sichtbar.³¹ $k_{ph} = 2\pi/\lambda$ bezeichnet die Wellenzahl des anregenden optischen Feldes. Diese Auswahlregeln können nur für Proben ausreichender Dicke angewandt werden, in Verbindung mit entsprechender Berücksichtigung von Dead-layern über effektive Probendicken. Die hier untersuchten Proben haben eine maximale Dicke von $10a_0^x$. Diese Probendicke ist geringer als eine viertel Wellenlänge der anregenden optischen Felder, weshalb mit den oben aufgeführten Auswahlregeln hier keine Aussage über die Stärke der Peaks im Spektrum getroffen werden kann. Offensichtlich beobachtet man aber auch für dünne Proben einen direkten Zusammenhang der Oszillatorstärken der Peaks mit der Probendicke.

³¹Siehe [Tuffigo et al., 1988]

3.3.6 Dead-layer-Dicke in Abhängigkeit von μ^*/M^*

Um mit Pekar'schen Randbedingungen optische Transmissionsspektren durch dünne Halbleiterschichten berechnen zu können, ohne auf eine mikroskopische Beschreibung der Exzitonen eingehen zu müssen, ist es wie wir gesehen haben notwendig, phänomenologisch die Existenz polarisationsarmer Oberflächenschichten, den sogenannten Dead-layern, einzuführen. Dabei ist es wichtig möglichst die richtige Dead-layer-Dicke als phänomenologischen Parameter mit in die Rechnung zu integrieren. Die Existenz der Dead-layer ist auf die endliche räumliche Ausdehnung der Exzitonen um ihren Schwerpunkt zurückzuführen. Deshalb wird in diesem Kapitel anhand von mikroskopischen Rechnungen die korrekte Dead-layer-Dicke bestimmt, in Abhängigkeit von dem Verhältnis zwischen reduzierter, effektiver Masse μ^* der Exzitonen und ihrer effektiven Schwerpunktmasse M^* . Ausgehend von einem einfachen, naiven Bild, in dem man sich Elektron und Loch als kleine Kugeln vorstellt und das ganze Exziton als feste Kugel, wird hier die qualitative Abhängigkeit der Dead-layer-Dicke von dem Verhältnis μ^*/M^* zunächst deutlich gemacht. Die Abbildung 3.13 veranschaulicht in diesem einfachen Bild die Bewegung von Elektron und Loch bezüglich des Schwerpunktes des Systems.

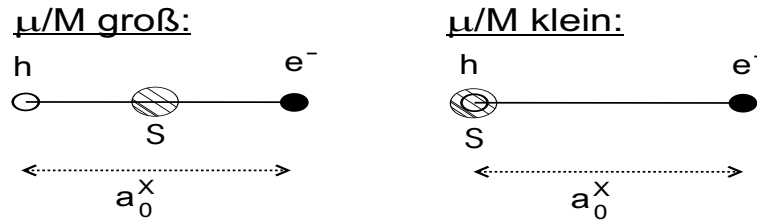


Abbildung 3.13: Naives Kugelmodell des Exzitons

Anhand dieser Abbildung erwartet man, mit der Vorstellung des Exzitons als feste Kugel, dass sich der Schwerpunkt für großes Verhältnis μ^*/M^* dichter an die Oberfläche bewegen kann als für ein kleines μ^*/M^* -Verhältnis. Um die Abhängigkeit der Dead-layer-Dicke in Abhängigkeit von μ^*/M^* anhand der mikroskopischen Berechnungen zu untersuchen, wurden diese für verschiedene μ^*/M^* -Verhältnisse durchgeführt, wobei ansonsten die GaAs-Parameter aus Tabelle 3.1 beibehalten wurden.³² Als maximales Verhältnis wurde dabei $\mu^*/M^* = 0,25$ angenommen, was gerade gleichen Elektron- und Loch-Massen entspricht.

Die Positionen der ersten vier 1s-Exziton-Resonanzen in den mikroskopisch berechneten Spektren wurden in Rechnungen mit Pekar'schen Randbedingungen durch Variation der angenommenen Dead-layer-Dicke angepasst. Die sich daraus ergebenden Dead-layer sind in Abbildung 3.14 dargestellt. Die Rechnungen wurden hier alle für Probendicken von $10a_0^x$ durchgeführt. Qualitativ lässt sich sofort die Abhängigkeit der Dead-layer-Dicke von μ^*/M^* , die man aus dem naiven Kugelmodell erwarten würde, bestätigen. Die Dead-layer werden breiter für abnehmendes μ^*/M^* -Verhältnis. Quantitativ ist dieses Verhalten aber sehr viel stärker ausgeprägt als in der naiven Vorstellung. Für gleiche Elektron-Loch-Massen erhält man zwar in etwa einen Dead-layer von $0,5a_0^x$, dieser wächst jedoch für kleine μ^*/M^* stärker an, als es das Kugelmodell erwarten ließ. Außerdem sieht man, dass die Dead-layer-Dicke für $\mu^*/M^* = 0,25$ nahezu gleich ist für die ersten vier Exziton-Resonanzen, wogegen es mit kleiner werdendem

³²Es war hier zusätzlich notwendig die phänomenologisch eingeführte Dämpfung an die jeweilige Exziton-Bindungsenergie entsprechend anzupassen, sowie die Dipolkopplung d_{cv} , um die Spektren auswerten zu können.

μ^*/M^* immer wichtiger wird unterschiedliche Dead-layer anzunehmen, um die verschiedenen Exziton-Resonanzen mit den Pekar'schen Randbedingungen reproduzieren zu können. Die hier noch einmal deutlich werdende Tatsache, dass es oft notwendig ist für jeden Peak in den berechneten Spektren unterschiedliche Dead-layer annehmen zu müssen, lässt daran zweifeln, dass es sich hierbei um ein sinnvolles Konzept handelt. Zumindest für die hier verwendeten Probenparameter scheint die Verwendung von zusätzlichen Randbedingungen auf makroskopischer Ebene nur sinnvoll zu sein, um Spektren zu interpretieren, in denen die Struktur der Exziton-Resonanzen experimentell nur für wenige n aufgelöst werden kann. Um die Position der Peaks zu höheren n korrekt wiedergeben zu können, ist sicherlich die Verwendung von einem konstanten Dead-layer für die hier gewählten GaAs-Parameter³³ eine ziemlich schlechte Näherung.

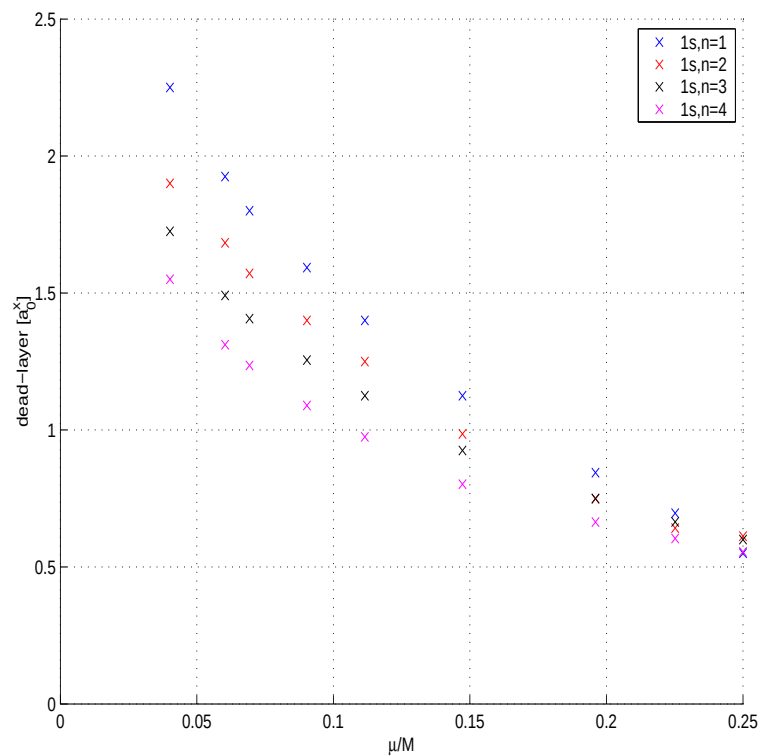
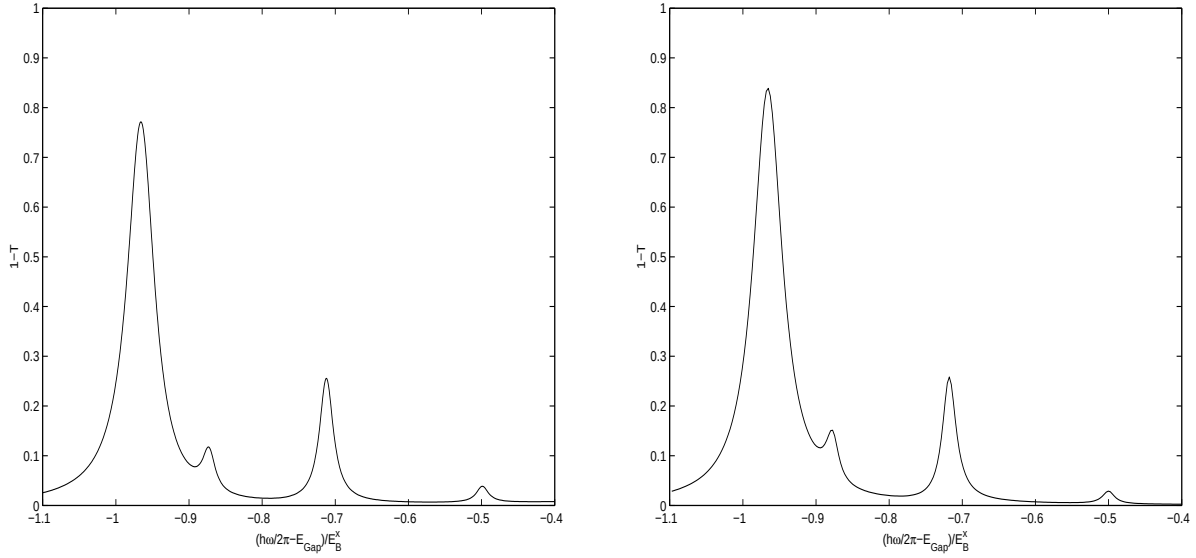


Abbildung 3.14: Dead-layer-Dicke in Abhängigkeit von μ^*/M^*

In [Combescot et al., 2001] findet man einen aktuellen theoretischen Ansatz, um die Abhängigkeit der Dead-layer-Dicke von dem μ^*/M^* -Verhältnis der Exzitonen zu berechnen. Unter der Verwendung der Born-Oppenheimer-Näherung wird dazu näherungsweise die Relativ- von der Schwerpunktbewegung des Exzitons entkoppelt. Das dazu verwendete Verfahren ist jedoch beschränkt auf die Betrachtung des Exziton-Grundzustandes in einer Halbleiterschicht. Deshalb ergeben sich damit nur die notwendigen Dead-layer, um den $n = 1$ -Peak in den berechneten Spektren zu betrachten. Wie die Abbildung 3.14 zeigt, ist es aber je nach μ^*/M^* -Verhältnis notwendig unterschiedliche Dead-layer für die verschiedenen n -Zustände zu betrachten. Die in [Combescot et al., 2001] berechneten Dead-layer für den Grundzustand sind in guter qualitativer und quantitativer Übereinstimmung mit den in Abbildung 3.14 dargestellten Ergebnissen für den $n = 1$ -Zustand.

³³Für GaAs ist $\mu^*/M^* \approx 0,11$.



Mikroskopische Rechnung

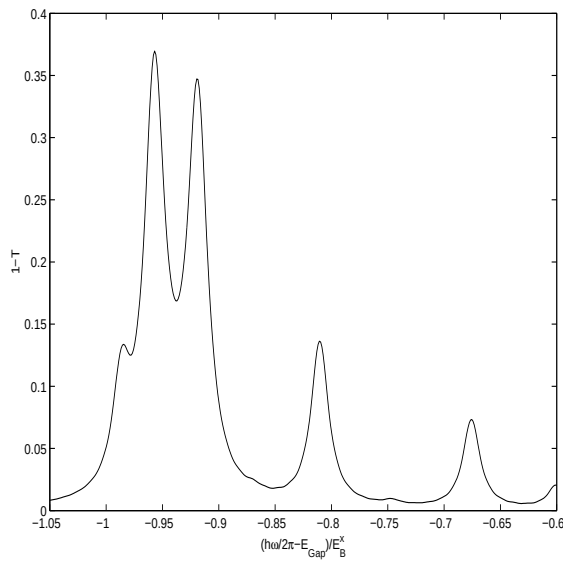
Pekar'sche Randbedingungen

Abbildung 3.15 a:

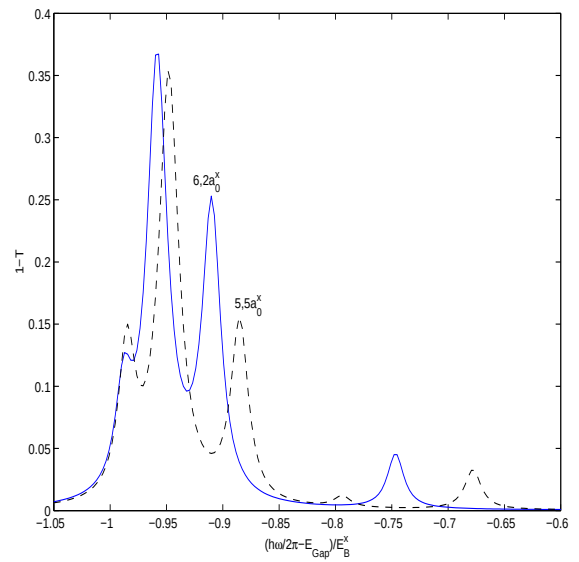
Vergleich von mikroskopischen mit Pekar'schen Randbedingungen mit konstantem Dead-layer für $\mu^*/M^* = 0,25$, $\gamma = 0,16 \text{ meV}$, $d_{cv} = 0,25 \text{ nm} \cdot e$

In den Abbildungen 3.15 a und 3.15 b ist zur Illustration der Vergleich zwischen zwei mikroskopisch berechneten Spektren mit dem jeweiligen Pekar'schen Ergebnis mit konstantem Dead-layer dargestellt.

Es ist deutlich zu erkennen, dass in Abbildung 3.15 a für $\mu^*/M^* = 0,25$ die Näherung eines konstanten Dead-layers sehr viel besser zu rechtfertigen ist als für Abbildung 3.15 b mit $\mu^*/M^* = 0,04$. In dem Pekar'schen Spektrum der Abbildung 3.15 b ist mit zwei unterschiedlichen Dead-layer-Dicken das Spektrum berechnet worden. In der gestrichelten Kurve wurde die Position des $n = 1$ -Peaks der mikroskopischen Rechnung angepasst, für die durchgezogene Kurve die des $n = 2$ -Peaks. Offensichtlich kann keine der beiden dargestellten Kurven das Ergebnis auch nur näherungsweise reproduzieren, es war für dieses Beispiel mit Pekar'schen Randbedingungen nicht möglich das mikroskopische Spektrum zufrieden stellend wiederzugeben. Insbesondere die Struktur der Peaks zu größeren n wird im Pekar'schen Spektrum falsch dargestellt. In Abbildung 3.15 a dagegen ist es mit konstantem Dead-layer gut möglich das Ergebnis der mikroskopischen Rechnung mit Pekar'schen Randbedingungen zu reproduzieren. Dabei wird sowohl die Position der hier dargestellten Resonanzen gut wiedergegeben wie auch deren Struktur.



Mikroskopische Rechnung



Pekar'sche Randbedingungen

Abbildung 3.15 b:

Vergleich von mikroskopischen mit Pekar'schen Randbedingungen mit konstantem Dead-layer für $\mu^*/M^* = 0,04$, $\gamma = 0,0133 \text{ meV}$, $d_{cv} = 0,5 \text{ nm} \cdot e$

3.3.7 Eigenwertproblem des Exzitons in einer Halbleiterschicht

In diesem Kapitel wird eine alternative Möglichkeit betrachtet, die Dicke von Dead-layern aus einer mikroskopischen Theorie zu berechnen. Es wird dazu nicht die Dynamik der Polariton-Propagation durch das Medium betrachtet, sondern es wird das exzitonische Eigenwertproblem in einer Halbleiterschicht gelöst. Die in Kapitel 3.3.2 betrachtete inhomogene Exziton-Gleichung (3.28) hat formal die Gestalt einer inhomogenen zeitabhängigen Schrödingergleichung:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(t) = \mathbf{H} \psi(t) + \phi(t)$$

Aufgrund der endlichen Schichtdicke führt die diskrete numerische Umsetzung dieser Gleichung auch hier auf einen diskreten Hamiltonoperator in Form einer Matrix. Um die möglichen Exziton-Resonanzen zu berechnen, ist es möglich das Eigenwertproblem dieser Hamiltonmatrix zu lösen. Als Eigenvektoren findet man dabei gerade die Lösungen der entsprechenden homogenen Differentialgleichung. Beschränkt man sich dabei auf die niedrigsten Eigenwerte und Eigenvektoren, erhält man gerade das Eigenwertspektrum der gebundenen Exziton-Zustände und deren Wellenfunktionen in der Schicht. Bei diesen Berechnungen ist in voller Allgemeinheit die Bewegung von Elektron und Loch innerhalb der Schicht berücksichtigt worden.

Ausgehend von der Annahme, dass sich Elektron-Loch-Relativ- und -Schwerpunktbewegung näherungsweise trotz der speziellen Randbedingungen voneinander separieren lassen, waren wir in Kapitel 3.3.2 zu folgender Gleichung für die möglichen Exziton-Eigenenergien in der Schicht gelangt:

$$E_n^x = E_B^x + E_{\text{Gap}} + \frac{\hbar^2 \pi^2 n^2}{2M^* L^2} \quad \text{mit } n = 1, 2, \dots \quad (3.33)$$

Im Rahmen des Dead-layer-Konzeptes ist es nun möglich, über die Annahme effektiver Probendicken $L^* = L - 2d$, die Energieeigenwerte aus Gleichung (3.33) an die Eigenwerte aus der Lösung des vollen Exziton-Eigenwertproblems in der Schicht anzupassen. Für die gleichen Parameter wie im vorigen Kapitel ergibt sich daraus die in Abbildung 3.16 dargestellte Abhängigkeit der notwendigen Dead-layer-Dicke von dem μ^*/M^* -Verhältnis. Bis jetzt sind in den hier durchgeführten Berechnungen der Dead-layer die Polariton-Effekte vernachlässigt worden. Diese sind allerdings auch in der Pekar'schen Theorie enthalten. Für die Berechnung der korrekten Dead-layer-Dicken, die in die Pekar'schen Berechnungen eingehen, sollte demnach die reine Betrachtung des exzitonischen Eigenwertproblems genügen. Natürlich stellt sich hier weiterhin die Frage, ob die Pekar'sche Theorie in Verbindung mit Dead-layern in der Lage ist die mikroskopische Berechnung der Spektren zu ersetzen, da genaugenommen nur diese die volle Information des Problems enthalten.

Aus den Eigenzuständen lässt sich die Polarisierung des Mediums berechnen, wenn ausschließlich bei den Eigenenergien resonant angeregt würde. Diese ist in Abbildung 3.17 für zwei unterschiedliche μ^*/M^* -Verhältnisse jeweils für die niedrigsten drei Exziton-Zustände dargestellt. Daran lässt sich erkennen, dass für $\mu^*/M^* = 0,04$ die polarisationsfreien Oberflächenschichten tatsächlich deutlich größer sind als für $\mu^*/M^* = 0,25$, also gemäß der berechneten μ^*/M^* -Abhängigkeit des Dead-layers, vergleiche dazu die Abbildungen 3.14 und 3.16.

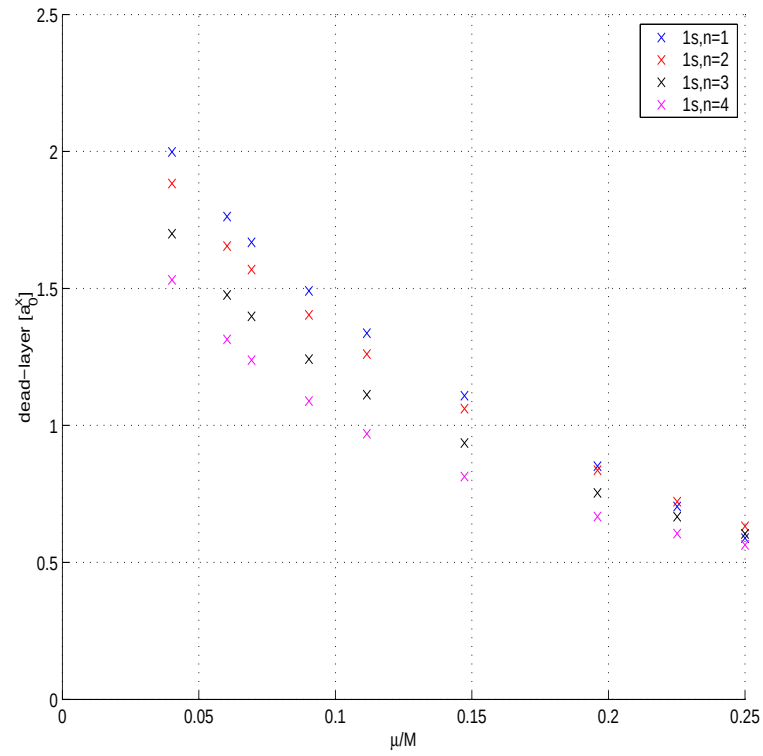
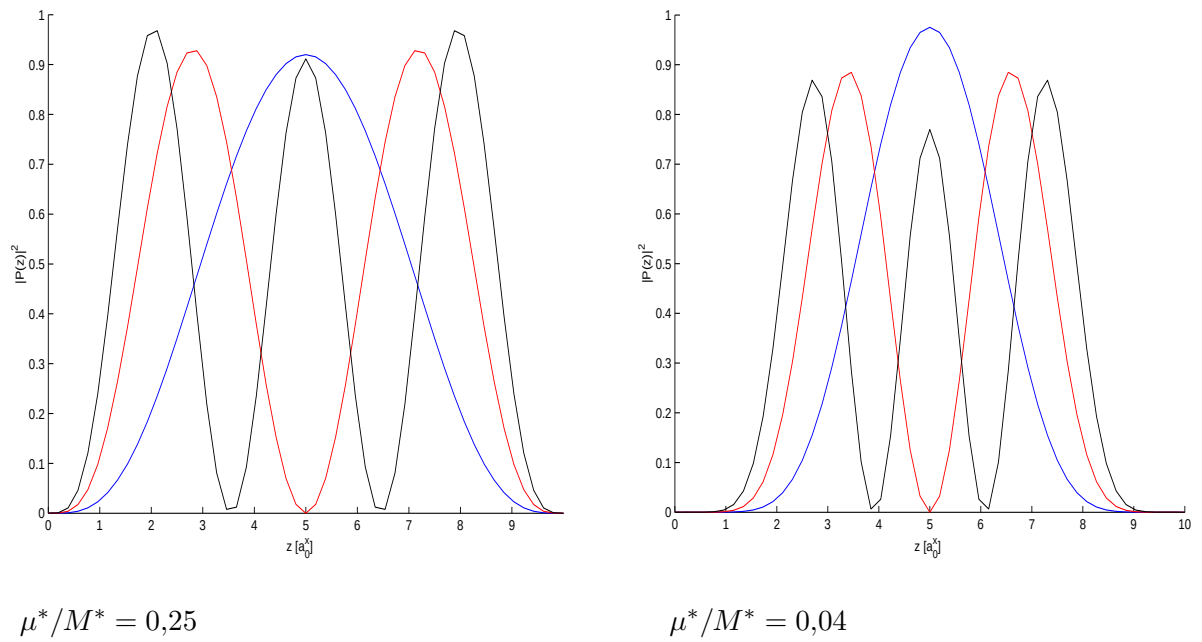
Abbildung 3.16: Dead-layer-Dicke in Abhängigkeit von μ^*/M^* 

Abbildung 3.17: „Polarisation“ aus den Eigenvektoren nach Gleichung (3.30) berechnet

4 Rekapitulation und Ausblick

In dieser Arbeit haben wir verschiedene Aspekte der zeitabhängigen Schrödingergleichung für wechselwirkende Elektronensysteme untersucht. Ein wichtiger Punkt war dabei zunächst einen geeigneten Algorithmus zu finden, um die Zeitabhängigkeit numerisch integrieren zu können. Dabei hat sich der SOD-Algorithmus (1.13) als besonders effizient erwiesen. Dieser erhält ausgehend von einem geeigneten Anfangszustand die Norm der Zustände und die Energie des Systems. Angewandt wurde dieser Algorithmus auf ausgewählte Ein- und Zweiteilchen-Systeme, wobei in letzteren insbesondere der Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Teilchen auf die Zeitentwicklung beobachtet werden konnte. Für die konkrete Umsetzung sind dazu diskretisierte Hamiltonoperatoren und Zweiteilchen-Zustände in Kapitel 1.4 im Ortsraum sowie in Kapitel 1.5 auf einem endlichen Hubbard-Gitter aufgestellt worden. Darauf aufbauend wurden in Kapitel 2 Berechnungen für beide Systeme sowohl in einer als auch in zwei Dimensionen durchgeführt. Für die ausgewählten Beispiele war es außerdem möglich den Einfluss der Symmetrie der Zweiteilchen-Zustände auf die Zeitentwicklung des Systems zu beobachten. Anhand von dreidimensionalen Farbgrafiken konnte die zeitliche Entwicklung der untersuchten ein- und zweidimensionalen Systeme in sehr anschaulicher Weise dargestellt werden.

In Kapitel 3 sind die zu Beginn dieser Arbeit gewonnenen Kenntnisse zur Integration der zeitabhängigen Schrödingergleichung auf die inhomogene Exziton-Gleichung, die formal einer inhomogenen Zweiteilchen-Schrödingergleichung entspricht, angewandt worden. Durch selbst-konsistente Lösung dieser Gleichung zusammen mit den Maxwell-Gleichungen war es möglich die Lichtfeld-Exziton-Dynamik bei der Lichtpropagation durch dünne Halbleiterproben zu beschreiben, siehe Kapitel 3.3.2. Daraus haben sich dann optische Transmissionsspektren durch dünne, typischerweise einige Exziton-Bohrradien dicke Halbleiterschichten berechnen lassen. Im Bereich der exzitonischen Resonanzen ergeben sich im Vergleich zum Volumenkristall zusätzliche Resonanzen in Folge der räumlichen Lokalisierung der Exzitonen in einer Dimension. Im Rahmen dieser mikroskopischen Theorie zur Beschreibung der Exzitonen konnten die notwendigen Randbedingungen auf mikroskopischer Ebene direkt an die Exziton-Übergangsamplitude gestellt werden.

Die Ergebnisse dieser Berechnungen wurden mit denen einer makroskopischen Theorie zur Beschreibung der Exzitonen in dünnen Schichten verglichen, wie sie aufgrund ihres relativ geringen Aufwandes in den letzten Jahrzehnten vielfach verwendet wurde. Im Rahmen dieser makroskopischen Theorie werden die bekannten Ergebnisse, die in den Kapiteln 3.2.1, 3.2.2 und 3.2.3 dieser Arbeit zusammengestellt sind, für Exzitonen im Volumenkristall ohne mikroskopische Betrachtungen verwendet. Der endlichen räumlichen Ausdehnung der Halbleiterschichten in einer Dimension und der damit verbundenen räumlichen Dispersion im Medium wird dabei ohne mikroskopische Rechtfertigung nur durch zusätzliche Randbedingungen Rechnung getragen, die phänomenologisch an die makroskopische Polarisierung im Medium gestellt werden, vergleiche Kapitel 3.3.1. Für die zusätzlichen Randbedingungen sind hier speziell Pekar'sche Randbedingungen untersucht worden. In Kapitel 3.3.4 hat der Vergleich mit den Ergebnissen der mikroskopischen Theorie gezeigt, dass die zusätzliche phänomenologische Integration von sogenannten Dead-layer-Schichten an den Probenoberflächen in Verbindung mit Pekar'schen Randbedingungen zu besseren Ergebnissen führt als die ausschließliche Verwendung Pekar'scher Randbedingungen. Es hat sich dabei aber auch herausgestellt, dass die Ansätze auf makroskopischer Ebene nur teilweise zu zufrieden stellenden Ergebnissen führen.

Abschließend ist deshalb untersucht worden, für welche Probenparameter die Berechnungen mit Pekar'schen Randbedingungen in Verbindung mit Dead-layer-Schichten überhaupt sinnvolle Resultate ergeben können. Dazu ist in Kapitel 3.3.5 die Abhängigkeit der Ergebnisse von der Schichtdicke untersucht worden. Dabei hat sich herausgestellt, dass mit einem makroskopischen Ansatz nur halbwegs zufrieden stellende Ergebnisse für ausreichend dicke Proben erzielt werden können, für dünne Proben verlieren sie gänzlich ihre Gültigkeit. In Kapitel 3.3.6 wurden die notwendigen Dead-layer-Schichten, um die makroskopische Theorie erfolgreich verwenden zu können, in Abhängigkeit vom Verhältnis zwischen reduzierter effektiver Masse μ^* der Exzitonen und ihrer effektiven Schwerpunktmasse M^* bestimmt. Dabei hat sich heraus gestellt, dass für großes μ^*/M^* -Verhältnis die Pekar'schen Randbedingungen durchaus zu guten Ergebnissen im Vergleich zu der mikroskopischen Theorie führen, wogegen sie für kleines μ^*/M^* -Verhältnis nicht einmal näherungsweise in der Lage sind die Ergebnisse der mikroskopischen Theorie zu reproduzieren.

Über die hier auf theoretischer Ebene durchgeführten Untersuchungen hinaus, wäre ein direkter Vergleich mit einer Reihe von experimentell gewonnenen Ergebnissen interessant. Es könnte daran untersucht werden, unter welchen Umständen es möglich ist, basierend auf makroskopischen Ansätzen, Exzitonen in dünnen Halbleiterschichten näherungsweise korrekt zu beschreiben. Außerdem könnte eingehend untersucht werden, ob die mikroskopische Theorie tatsächlich in der Lage ist die experimentellen Beobachtungen umfassend wiederzugeben. Es wäre sinnvoll an Proben unterschiedlicher Dicke aufgenommene Transmissionsspektren mit den theoretischen Ergebnissen zu vergleichen. Darüber hinaus wären Untersuchungen an unterschiedlichen Materialsystemen sicherlich aufschlussreich.

Anhang

A Allgemeines

A.1 Verwendete Einheiten

Alle in dieser Arbeit verwendeten Formeln sind im SI-Einheitensystem angegeben. Im ersten Teil (Kapitel 1 und 2 dieser Arbeit) werden als natürliche Einheiten für Längen der Wasserstoff-Bohrradius und für Energien die Wasserstoff-Rydbergenergie verwendet:¹

$$a_0 = \frac{\varepsilon_0 \hbar^2}{\pi m_e e^2} \approx 0,52917 \text{ \AA} \quad E_{\text{Ryd}} = \frac{m_e e^4}{8 \varepsilon_0 \hbar^2} \approx 13,605 \text{ eV}$$

Das Kapitel 3 beschäftigt sich mit Exzitonen, die sich analog zum Wasserstoffatom mit effektiven Parametern beschreiben lassen. Die natürliche Einheit für eine Länge ist dort der Exziton-Bohr-Radius:²

$$a_0^x = a_0 \cdot \varepsilon \frac{m_e}{\mu^*}$$

Die natürliche Einheit für Energien ist die Exziton-Bindungsenergie:

$$E_B^x = E_{\text{Ryd}} \cdot \frac{\mu^*}{m_e} \frac{1}{\varepsilon^2}$$

Hierbei ist $\mu^* = \frac{m_e^* m_h^*}{m_e^* + m_h^*}$ die reduzierte effektive Masse eines Exzitons und $\varepsilon = n_{bg}^2$ die Hintergrund-Dielektrizitätskonstante im Medium.

A.2 Coulomb-Matrixelemente in Kugel- und Zylinderkoordinaten

Für die Berechnungen in Kapitel 3.2.2 ist es notwendig die Matrixelemente der Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektron und Loch in Kugelkoordinaten

$$V_{ll'mm'}(k, k') = \frac{k'^2}{(2\pi)^3} \int d\theta d\phi \int d\theta' d\phi' Y_{lm}^*(\theta, \phi) \sin(\theta) V(\vec{k}, \vec{k}') Y_{l'm'}(\theta', \phi') \sin(\theta') \quad (\text{A.1})$$

zu berechnen. Hierbei ist es nützlich zunächst das Wigner-Eckart-Theorem zu verwenden. Wie in [Cohen-Tannoudji, 1977] gezeigt wird, gilt für die Matrixelemente eines skalaren Operator A :

$$\langle k, l, m | A | k', l', m' \rangle = A_l(k, k') \delta_{ll'} \delta_{mm'}$$

Hierbei ist ein skalarer Operator ein Operator der mit dem Drehimpuls-Operator des zu betrachtenden Systems vertauscht. In Analogie zum Wasserstoffatom ist klar, dass die hier zu betrachtende Coulomb-Wechselwirkung mit dem Bahndrehimpuls des Systems vertauscht, da $V(\vec{k}, \vec{k}') = V(|\vec{k} - \vec{k}'|)$. Deshalb gilt hier für die Coulomb-Matrixelemente in Gleichung (A.1):

$$V_{ll'mm'}(k, k') = V_{lm}(k, k') \delta_{mm'} \delta_{ll'}$$

¹Siehe z.B. [Demtröder, 1996]

²Siehe z.B. [Ashcroft/Mermin, 1976]

Hiermit ist bestätigt, dass die Coulomb-Wechselwirkung keine verschiedenen m, l -Komponenten der Übergangsamplitude $\psi_{lm}(k)$ in der inhomogenen Exziton-Gleichung (3.13) miteinander koppelt. Mit den Betrachtungen in Kapitel 3.2.2, nach denen nur die $m = 0, l = 0$ -Komponente der Exziton-Übergangsamplitude durch die Kopplung an das elektromagnetische Feld angeregt wird, reicht es also aus, hier nur das Matrixelement $V_{00}(k, k')$ der Coulomb-Wechselwirkung zu berechnen:

$$\begin{aligned} V_{00}(k, k') &= \frac{e^2}{(2\pi)^3 \varepsilon_0} \frac{k'^2}{4\pi} \int d\theta' d\phi' \int d\theta d\phi \frac{\sin \theta \sin \theta'}{|\vec{k} - \vec{k}'|^2} = \frac{e^2 k'^2}{4\pi^2 \varepsilon_0} \int_0^\pi d\theta' \frac{\sin \theta'}{k^2 + k'^2 - 2kk' \cos \theta'} \\ &= \frac{e^2 k'^2}{4\pi^2 \varepsilon_0} \int_{-1}^{+1} dz \frac{1}{k^2 + k'^2 - 2kk'z} = \frac{e^2}{4\pi^2 \varepsilon_0} \frac{k'}{k} \ln \left| \frac{k + k'}{k - k'} \right| \end{aligned}$$

In Kapitel 3.2.2 werden außerdem noch die Coulomb-Matrixelemente in Zylinderkoordinaten benötigt, deren Berechnung im Folgenden durchgeführt wird:

$$\begin{aligned} V_{mm'}(k_{||}, k'_{||}, k_z, k'_z) &= \frac{e^2}{(2\pi)^4 \varepsilon_0} \int_0^{2\pi} d\phi' \int_0^{2\pi} d\phi \frac{e^{-im\phi} e^{im'\phi'}}{|\vec{k} - \vec{k}'|^2} \\ &= \frac{e^2}{(2\pi)^4 \varepsilon_0} \int_0^{2\pi} d\phi e^{-i(m-m')\phi} \int d\phi' \frac{e^{im'\phi'}}{k_{||}^2 + k'_{||}^2 - 2k_{||}k'_{||} \cos \phi' + (k_z - k'_z)^2} \\ &= \delta_{mm'} \frac{e^2}{(2\pi)^3 \varepsilon_0} \int_0^{2\pi} d\phi' \frac{e^{im'\phi'}}{k_{||}^2 + k'_{||}^2 - 2k_{||}k'_{||} \cos \phi' + (k_z - k'_z)^2} \end{aligned}$$

Es zeigt sich hier, dass auch in Zylinderkoordinaten keine unterschiedlichen m -Komponenten der Übergangsamplitude $\psi_m(k_{||}, k_z)$ durch die Coulomb-Wechselwirkung gekoppelt werden, weil $V_{mm'}(k_{||}, k'_{||}, k_z, k'_z) = V_m(k_{||}, k'_{||}, k_z, k'_z) \delta_{mm'}$ gilt. Da die Kopplung an das anregende elektromagnetische Feld wieder nur eine $m = 0$ -Komponente enthält, reicht im weiteren die Betrachtung des Matrixelement $V_0(k_{||}, k'_{||}, k_z, k'_z)$. Mit

$$\begin{aligned} \int_0^{2\pi} dx \frac{1}{a - \cos x} &= 2 \int_{-1}^{+1} \frac{dz}{\sqrt{1-z^2}} \frac{1}{a-z} = 2 \int_{-1}^{+1} \frac{dz}{\sqrt{(1-z^2)(a-z)^2}} \quad \text{siehe [Bronstein, 1991]} \\ &= \frac{2\pi}{\sqrt{a^2-1}} \end{aligned}$$

folgt für dieses:

$$V_0(k_{||}, k'_{||}, k_z, k'_z) = \frac{e^2}{4\pi^2 \varepsilon_0} \frac{1}{\sqrt{[k_{||}^2 + k'_{||}^2 + (k_z - k'_z)^2]^2 - (2k_{||}k'_{||})^2}}$$

A.3 Parameter zu den Abbildungen

Parameter zu den Berechnungen im Ortsraum:

Abb.Nr.	Gesamtbreite [a ₀]	Disk- intervalle	Wechsel- wirkung	Δt zw. Bildern [fs]	Dimension	Bemerkung
2.3	11000	1000	–	24,30	1	Einteilchen-Wellenpaket
2.4 a	25	10	1	0,91	2	analytisch
2.4 b	25	10	1	0,91	2	numerisch (SOD)
2.4 c	–	–	–	–	–	Koeff. Abb. 2.4 b SOD
2.5	–	–	–	–	–	Koeff. RK 4. Ordng.
2.6 a	11000	200	0	45,00	1	symmetrisch
2.6 b	11000	200	1	45,00	1	symmetrisch
2.6 c	11000	200	3	45,00	1	symmetrisch
2.7 a	34	20	0	0,13	2	symmetrisch
2.7 b	34	20	2	0,13	2	symmetrisch
2.7 c	34	20	2	0,13	2	antisymmetrisch
2.8 a	40	20	0	0,37	2	klassisch
2.8 b	40	20	2	0,37	2	klassisch
2.8 c	40	20	4	0,37	2	klassisch

Parameter zu den Berechnungen im Hubbard-Modell:

Abb.Nr.	E_0 [eV]	t [eV]	U [eV]	Zahl der Gitterpl. pro Dimension	Δt zw. Bildern [fs]	Dimension	Bemerkung
1.2 a	0,0	–2,97	12,7	41	–	1	analytisch
1.2 b	0,0	–2,97	12,7	41	–	1	numerisch
2.9 a	–	–	–	–	–	–	Koeff. Abb. 2.9 b,c
2.9 b	0,0	–2,97	12,7	21	0,53	1	analytisch
2.9 c	0,0	–2,97	12,7	21	0,53	1	numerisch
2.10 a	–1,088	–1,088	0,0	41	0,37	1	symmetrisch
2.10 b	–1,088	–1,088	10,9	41	0,37	1	symmetrisch
2.11 a	–0,68	–0,68	4,0	21	0,86	2	symmetrisch
2.11 b	–0,68	–0,68	0,0	21	0,86	2	symmetrisch
2.11 c	–0,68	–0,68	4,0	21	0,86	2	antisymmetrisch

Parameter zu den Berechnungen zum Exziton-Polariton:

Abb.Nr.	Proben- dicke [a ₀]	Dämpfung γ [meV]	Dipolkopplung $r_{c,v}$ [nm]/e	N_z	$k_{\perp} N$	Bemerkung
3.2	–	0,04	0,5	–	–	GaAs-Par., Tabelle 3.1
3.3	–	0,0	0,5	–	–	GaAs-Par., Tabelle 3.1
3.4	10,0	0,04	0,5	–	–	GaAs-Par., Tabelle 3.1
3.7	10,0	0,04	0,5	50	30	GaAs-Par., Tabelle 3.1
3.8	10,0	0,04	0,5	50	30	GaAs-Par., Tabelle 3.1
3.9	7,2	0,04	0,5	–	–	GaAs-Par., Tabelle 3.1
3.10	10, 5, 3, 2	0,04	0,5	50, 26, 16, 12	30	GaAs-Par., Tabelle 3.1
3.11	5,0	0,04	0,5	26	30	GaAs-Par., Tabelle 3.1
3.12	5,0	0,04	0,5	26	30	GaAs-Par., Tabelle 3.1
3.14	10,0	variabel	variabel	50	30	GaAs, e^- -Masse variiert
3.15 a	10,0	0,16	0,25	50	30	GaAs-Par., $\mu^*/M^* = 0,25$
3.15 b	10,0	0,0133	0,5	50	30	GaAs-Par., $\mu^*/M^* = 0,04$
3.16	10,0	–	–	50	30	GaAs, e^- -Masse variiert
3.17	10, 10	–	–	50	30	GaAs-Par., $\mu^*/M^* = 0,25$, $\mu^*/M^* = 0,04$

B Anhang zur Numerik

B.1 Allgemeines zu verwendeten numerischen Methoden

Im ersten Teil dieser Arbeit hat die Diskretisierung der Zweiteilchen-Schrödingergleichung in Ortsdarstellung und die Berechnungen zum Zweiteilchen-Hubbard-Modell numerisch den Umgang mit sehr großen, dünn besetzten Matrizen erfordert. Zweckmäßig ist es dafür nur die Einträge dieser Matrizen, die ungleich Null sind, in sogenannten Sparse-Matrizen abzuspeichern. Dieses Vorgehen spart sehr viel Arbeitsspeicher und auch bei der Matrix-Vektor-Multiplikation (für die Anwendung der Hamiltonoperatoren auf die Zweiteilchen-Zustände) unnötige Multiplikationen mit Nullen. In diesem Teil ist Matlab, welches das Arbeiten mit Sparse-Matrizen unterstützt, insbesondere für die grafischen Darstellungen zum Einsatz gekommen. Außerdem wurde eine geeignete Sparse-Matrix-Klasse unter C++ geschrieben, um dessen Geschwindigkeitsvorteile gegenüber Matlab ausnutzen zu können. Eigenwerte und zugehörige Eigenvektoren von sehr großen Matrizen können mit der Methode „Implicitly-Restarted-Arnoldi-Method“ nach bestimmten Kriterien, z.B. größter Imaginärteil o.ä., berechnet werden. Bei der Berechnung der Coulomb-Integrale in Kapitel 3 sind Gauß'sche Quadraturpunkte zum Einsatz gekommen, mit deren Hilfe und mit dem in Anhang B.3 beschriebenen Verfahren die Berechnung der Integrale trotz Singularität im Integranden möglich war.

B.2 Diskretisierung der 1D-Maxwell-Gleichungen

Eine Methode eine partielle Differentialgleichung für die numerische Lösung zu diskretisieren ist die Methode der Charakteristiken.³ Wie sich zeigen wird, handelt es sich dabei für die Maxwell-Gleichungen gerade um die Lichtgerade. Mit Hilfe ihrer Charakteristiken lässt sich eine partielle Differentialgleichung überführen in eine gewöhnliche Differentialgleichung. Speziell für die Maxwell-Gleichungen muss dann beachtet werden, dass folgender Zusammenhang zwischen der Weite der Diskretisierungsschritte in Ort und Zeit besteht: $\Delta z = \Delta t \cdot c$, wobei $c = \frac{c_0}{n_{bg}}$ die Lichtgeschwindigkeit im Medium ist. Für die eindimensionalen Maxwell-Gleichungen (3.29 a) und (3.29 b) wird die Diskretisierung mit der Methode der Charakteristiken konkret im folgenden Abschnitt durchgeführt. Diese Methode der Diskretisierung hat den Vorteil, dass es nur noch notwendig ist, numerisch eine gewöhnliche Differentialgleichung zu behandeln. Desweiteren birgt sie für die in dieser Arbeit durchgeführten Rechnungen den Vorteil, dass an den Rändern des diskretisierten Gebietes keine Reflexionen der Felder auftreten, sondern die Wellen sozusagen aus dem Gebiet heraus laufen und verschwinden. Das Verfahren vermeidet, dass aufgrund der Notwendigkeit eines endlichen Diskretisierungsintervalles numerische Artefakte in Form von ungewollten Reflexionen der E - und B -Felder auftreten.

³Für Details zu dieser Methode, die über die Diskretisierung der eindimensionalen Maxwell-Gleichungen hinaus gehen siehe [Ames, 1992].

HERLEITUNG DER DISKREten VARIANTE DER 1D-MAXWELL-GLEICHUNGEN:

Die makroskopischen Maxwell-Gleichungen lauten mit einer relativen Permeabilität $\mu_r = 1$ und ohne freie Ladungen $\rho_{\text{frei}} = 0$:

$$\begin{aligned}\vec{\nabla} \vec{E} &= 0 \\ \vec{\nabla} \vec{B} &= 0 \\ \text{rot } \vec{B} &= \mu_0 \vec{j} + \mu_0 \varepsilon_0 \varepsilon_r \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \mu_0 \frac{\partial \vec{P}}{\partial t} \\ \text{rot } \vec{E} &= -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}\end{aligned}$$

Für eine elektromagnetische Welle, die in z -Richtung propagiert und zirkular polarisiert ist, wird hier folgender Ansatz gemacht, wie es dem zu beschreibenden Modell entspricht:

$$\begin{aligned}\vec{E}(\vec{r}, t) &= E(z, t) \vec{e}_+ = E(z, t) \frac{1}{\sqrt{2}} (\vec{e}_x + i \vec{e}_y) \\ \vec{B}(\vec{r}, t) &= B(z, t) i \vec{e}_+ = B(z, t) \frac{i}{\sqrt{2}} (\vec{e}_x + i \vec{e}_y)\end{aligned}$$

Damit sind die ersten beiden Maxwell-Gleichungen automatisch erfüllt. Mit den Annahmen $\vec{j} = j(z, t) \vec{e}_+$ und $\vec{P} = P(z, t) \vec{e}_+$ ergeben sich dann folgende eindimensionale Maxwell-Gleichungen für die skalaren Größen $E(z, t)$ und $B(z, t)$:

$$n_{bg}^2(z) \frac{\partial E(z, t)}{\partial t} = -c_0^2 \frac{\partial B(z, t)}{\partial z} - \frac{1}{\varepsilon_0} \left(j(z, t) + \frac{\partial P(z, t)}{\partial t} \right) \quad (\text{B.1 a})$$

$$\frac{\partial B(z, t)}{\partial t} = -\frac{\partial E(z, t)}{\partial z} \quad (\text{B.1 b})$$

mit der Lichtgeschwindigkeit im Medium: $c = \frac{c_0}{n_{bg}} = \frac{1}{\sqrt{\mu_0 \varepsilon_0 \varepsilon_r}} = \frac{1}{n_{bg}} \frac{1}{\sqrt{\mu_0 \varepsilon_0}}$. Um die explizit auftretende Bandlückenenergie E_{Gap} aus der Exziton-Gleichung (3.28) zu eliminieren, werden alle dynamischen Größen $X(z, t)$ einer Transformation $X(z, t) = e^{-i\omega_0 t} \tilde{X}(z, t)$ unterzogen, mit $\omega_0 = E_{Gap}/\hbar$. Die dem Betrag nach große Bandlückenenergie würde nach dem Stabilitätskriterium (1.14) auf Seite 8 unnötig kleine Zeitschritte erfordern, um die Exziton-Gleichung numerisch zu lösen. Es findet hier ein Übergang in ein „rotierendes Bild“ statt. Die eindimensionalen Maxwell-Gleichungen lauten nach dieser Transformation (der Übersichtlichkeit halber ohne Orts- und Zeitargumente):⁴

$$\frac{\partial \tilde{E}}{\partial t} + \frac{c_0^2}{n_{bg}^2} \frac{\partial \tilde{B}}{\partial z} = -\tilde{J} + i\omega_0 \tilde{E} \quad \text{mit} \quad \tilde{J} = \frac{1}{\varepsilon_0 n_{bg}^2} \left(\tilde{j} + \frac{\partial \tilde{P}}{\partial t} - i\omega_0 \tilde{P} \right) \quad (\text{B.2 a})$$

$$\frac{\partial \tilde{B}}{\partial t} + \frac{\partial \tilde{E}}{\partial z} = i\omega_0 \tilde{B} \quad (\text{B.2 b})$$

Um nun dieses System von partiellen Differentialgleichungen numerisch lösen zu können, wird hier die Methode der Charakteristiken⁵ verwendet.

⁴Im Folgenden wird die explizite Kennzeichnung der transformierten Größen durch $\tilde{X}$ der Übersichtlichkeit halber wieder fallen gelassen.

⁵Siehe [Ames, 1992]

Dazu fasst man zunächst die Gleichungen (B.2 a) und (B.2 b) für die dynamischen Größen $E \rightarrow u$ und $B \rightarrow v$ als Gleichungen (B.3 a) und (B.3 b) eines Gleichungssystems auf. Die beiden Gleichungen (B.3 c) und (B.3 d) sind dabei die vollständigen Differentiale der zu betrachtenden Größen, mit den Bezeichnungen $z \rightarrow x$, $t \rightarrow y$:

$$au_x + dv_y = f_1 \quad (\text{B.3 a})$$

$$bu_y + cv_x = f_2 \quad (\text{B.3 b})$$

$$u_x dx + u_y dy = du \quad (\text{B.3 c})$$

$$v_x dx + v_y dy = dv \quad (\text{B.3 d})$$

mit $u_x = \frac{\partial u}{\partial x}$, $u_y = \frac{\partial u}{\partial y}$, $v_x = \frac{\partial v}{\partial x}$, $v_y = \frac{\partial v}{\partial y}$ und $a = b = d = 1$, $c = \frac{c_0^2}{n_{bg}^2}$, $f_2 = -J + i\omega_0 E$, $f_1 = i\omega_0 B$. Fasst man diese vier Gleichungen als lineares Gleichungssystem in u_x , u_y , v_x , v_y auf, lässt es sich mit der Koeffizientenmatrix A umschreiben in:

$$\begin{pmatrix} a & 0 & 0 & d \\ 0 & b & c & 0 \\ dx & dy & 0 & 0 \\ 0 & 0 & dx & dy \end{pmatrix} \begin{pmatrix} u_x \\ u_y \\ v_x \\ v_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} f_1 \\ f_2 \\ du \\ dv \end{pmatrix}$$

Die Lösung des Gleichungssystems für $\det A = 0$ definiert eine charakteristische Gleichung der partiellen DGL mit der sich diese in eine gewöhnliche DGL umschreiben lässt:⁶

$$\det A = 0 \rightarrow ac(dy)^2 - bd(dx)^2 = 0$$

$$\rightarrow \frac{dx}{dy} = \pm \sqrt{\frac{ac}{bd}} = \pm \frac{c_0}{n_{bg}} = F_{\pm}(x) \quad (\text{B.4})$$

Die charakteristische Gleichung beschreibt hier gerade die Lichtgerade der Wellenausbreitung. Daraus folgt, dass die Lösung in einem Punkt R (am Ort x_R zur Zeit t_R) nur von Lösungen an Orten $x_P < x_R < x_Q$ zur Zeit $y_P = y_Q$ abhängen kann, siehe dazu Abbildung B.1.

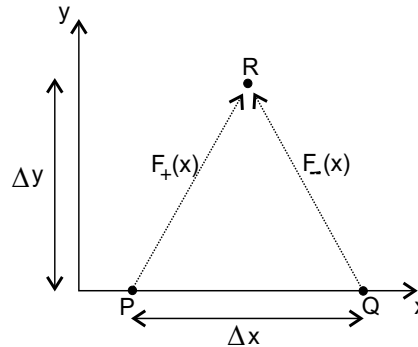


Abbildung B.1: Darstellung des diskretisierten Raum-Zeit-Gebietes

⁶Es wird hier ein optisch homogenes Medium betrachtet, es ist aber mit einem ortsabhängigen Hintergrund-Brechungsindex $n_{bg} = n_{bg}(x)$ auch möglich die eindimensionalen Maxwell-Gleichungen im optisch inhomogenen Medium entsprechend zu diskretisieren.

Die Ausbreitung der elektromagnetischen Wellen erfolgt gerade gemäß der beiden Lösungen der charakteristischen Gleichung $F_{\pm}(x)$. Wenn $\det A = 0$ gilt, dann sind die Spaltenvektoren von A linear abhängig, siehe [Bronstein, 1991]. Man kann nun als spezielle Linearkombination dreier dieser Spalten die Inhomogenität betrachten, woraus sich ein neues Gleichungssystem ergibt, das immer noch linear abhängig ist und der charakteristischen Gleichung B.4 genügt. Es folgt dann:

$$\det \begin{pmatrix} f_1 & 0 & 0 & d \\ f_2 & b & c & 0 \\ du & dy & 0 & 0 \\ dv & 0 & dx & dy \end{pmatrix} = 0$$

Unter Benutzung der charakteristischen Gleichung (B.4) erhält man daraus:

$$dv + G_{\pm}du + H_{\pm}dy = 0 \quad \text{mit} \quad G_{\pm} = \frac{b}{c}F_{\pm} \quad \text{und} \quad H_{\pm} = -\left(\frac{f_1}{d} + \frac{f_2}{c}F_{\pm}\right)$$

Gleichung (B.1 a) und (B.1 b) können nun als gewöhnliche Differentialgleichungen gemäß der charakteristischen Gleichung diskretisiert werden, siehe [Ames, 1992] und vergleiche Abbildung B.1 zu der Bezeichnung der Aufpunkte P , Q , R in der diskretisierten Raum-Zeit:

$$x_R - x_P = \frac{1}{2} [F_+(R) + F_+(P)] \Delta y \quad (\text{B.5 a})$$

$$x_R - x_Q = \frac{1}{2} [F_-(R) + F_-(Q)] \Delta y \quad (\text{B.5 b})$$

$$v_R - v_P + \frac{1}{2} [G_+(R) + G_+(P)] (u_R - u_P) + \frac{1}{2} [H_+(R) + H_+(P)] \Delta y = 0 \quad (\text{B.5 c})$$

$$v_R - v_Q + \frac{1}{2} [G_-(R) + G_-(Q)] (u_R - u_Q) + \frac{1}{2} [H_-(R) + H_-(Q)] \Delta y = 0 \quad (\text{B.5 d})$$

Für die eindimensionalen Maxwell-Gleichungen sind die eingeführten Abkürzungen:

$$\begin{aligned} G_{\pm} &= \frac{b}{c} = \pm \frac{c_0}{n_{bg}} \\ H_{\pm} &= -\left(\frac{f_1}{d} + \frac{f_2}{c}F_{\pm}\right) = -i\omega_0 v \pm \frac{n_{bg}}{c_0}(J - i\omega_0 u) \end{aligned}$$

Aus den Gleichungen (B.5 c) und (B.5 d) ergeben sich damit die Felder am Punkt R :

$$\begin{aligned} v_R - v_P + (u_R - u_P) \frac{n_{bg}}{c_0} + \frac{\Delta y}{2} \left[\frac{n_{bg}}{c_0} J_R - i\omega_0 \frac{n_{bg}}{c_0} u_R - i\omega_0 v_R \right] + \frac{\Delta y}{2} H_+(P) &= 0 \\ v_R - v_Q - (u_R - u_Q) \frac{n_{bg}}{c_0} + \frac{\Delta y}{2} \left[-\frac{n_{bg}}{c_0} J_R + i\omega_0 \frac{n_{bg}}{c_0} u_R - i\omega_0 v_R \right] + \frac{\Delta y}{2} H_-(Q) &= 0 \end{aligned}$$

bzw. zusammengefasst:

$$v_R \left(1 - i\omega_0 \frac{\Delta y}{2}\right) + u_R \left(1 - i\omega_0 \frac{\Delta y}{2}\right) \frac{n_{bg}}{c_0} = v_P + u_P \frac{n_{bg}}{c_0} - \frac{\Delta y}{2} \left[\frac{n_{bg}}{c_0} J_R + H_+(P) \right] \quad (*)$$

$$v_R \left(1 - i\omega_0 \frac{\Delta y}{2}\right) - u_R \left(1 - i\omega_0 \frac{\Delta y}{2}\right) \frac{n_{bg}}{c_0} = v_Q - u_Q \frac{n_{bg}}{c_0} + \frac{\Delta y}{2} \left[\frac{n_{bg}}{c_0} J_R - H_-(Q) \right] \quad (**)$$

$$(*) - (**) \quad 2u_R \left(1 - i\omega_0 \frac{\Delta y}{2}\right) \frac{n_{bg}}{c_0} = v_P + u_P \frac{n_{bg}}{c_0} - v_Q + u_Q \frac{n_{bg}}{c_0} - \Delta y J_R \frac{n_{bg}}{c_0} - \frac{\Delta y}{2} [H_+(P) - H_-(Q)]$$

$$(*) + (**) \quad 2v_R \left(1 - i\omega_0 \frac{\Delta y}{2}\right) = v_P + u_P \frac{n_{bg}}{c_0} + v_Q - u_Q \frac{n_{bg}}{c_0} - \frac{\Delta y}{2} [H_+(P) + H_-(Q)]$$

Einsetzen der übrigen $H_{\pm}$ -Terme liefert:

$$2u_R \left(1 - i\omega_0 \frac{\Delta y}{2}\right) \frac{n_{bg}}{c_0} = (v_P - v_Q) \left(1 + \frac{\Delta y}{2} i\omega_0\right) + (u_P + u_Q) \left(1 + \frac{\Delta y}{2} i\omega_0\right) \frac{n_{bg}}{c_0} - \frac{\Delta y}{2} (2J_R + J_P + J_Q) \frac{n_{bg}}{c_0}$$

$$2v_R \left(1 - i\omega_0 \frac{\Delta y}{2}\right) = (v_P + v_Q) \left(1 + \frac{\Delta y}{2} i\omega_0\right) + (u_P - u_Q) \left(1 + \frac{\Delta y}{2} i\omega_0\right) \frac{n_{bg}}{c_0} - \frac{\Delta y}{2} (J_P - J_Q) \frac{n_{bg}}{c_0}$$

Die Gleichungen (B.5 a) und (B.5 b) ergeben:

$$x_R - x_P = \frac{c_0}{2} \left(\frac{1}{n_{bg}} + \frac{1}{n_{bg}} \right) \Delta y$$

$$x_Q - x_R = \frac{c_0}{2} \left(\frac{1}{n_{bg}} + \frac{1}{n_{bg}} \right) \Delta y$$

Es folgt also gerade wieder die charakteristische Gleichung in diskreter Form:

$$\Delta x = x_R - x_P = x_Q - x_R = \frac{c_0}{n_{bg}} \Delta y$$

Für die diskrete Form der eindimensionalen Maxwell-Gleichungen wurden folgende Bezeichnungen benutzt:

$$\begin{array}{lll} R = t_{n+1}, z_j & & u_R = E_j^{n+1} \quad v_R = B_j^{n+1} \\ P = t_n, z_{j-1} & \rightarrow & u_P = E_{j-1}^n \quad v_P = B_{j-1}^n \\ Q = t_n, z_{j+1} & & u_Q = E_{j+1}^n \quad v_Q = B_{j+1}^n \end{array}$$

Daraus ergibt sich die endgültige Form der diskretisierten, eindimensionalen Maxwell-Gleichungen, die für die numerischen Berechnungen zum Einsatz gekommen ist:

$$\begin{aligned} E_j^{n+1} &= \frac{1}{2} \frac{c_0}{n_{bg}} \frac{\eta}{\eta^*} (B_{j-1}^n - B_{j+1}^n) + \frac{1}{2} \frac{\eta}{\eta^*} (E_{j-1}^n + E_{j+1}^n) - \frac{\Delta t}{4} \frac{1}{\eta^*} (2J_j^{n+1} + J_{j-1}^n + J_{j+1}^n) \\ B_j^{n+1} &= \frac{1}{2} \frac{\eta}{\eta^*} (B_{j-1}^n + B_{j+1}^n) + \frac{1}{2} \frac{n_{bg}}{c_0} \frac{\eta}{\eta^*} (E_{j-1}^n - E_{j+1}^n) - \frac{\Delta t}{4} \frac{n_{bg}}{c_0} \frac{1}{\eta^*} (J_{j-1}^n - J_{j+1}^n) \\ \text{mit } \eta &= 1 + i\omega_0 \frac{\Delta t}{2} \quad \text{und} \quad J = \frac{1}{\varepsilon_0 n_{bg}^2} \left(j + \frac{\partial P}{\partial t} - i\omega_0 P \right) \end{aligned}$$

Hierbei bezeichnet der Index n die Zeitpunkte der diskretisierten Zeit und der Index j die diskret liegenden Stützstellen im Ortsraum.

B.3 Numerische Hebung der Singularität im Coulomb-Integral

In allgemeiner Form lässt sich eine hebbare Singularität im Integranden folgendermassen numerisch behandeln. Das zu berechnende Integral habe folgende Form:

$$f(k) = \int dk' V(k, k') g(k')$$

wobei $V(k, k')$ bei $k = k'$ eine Singularität besitzt. Dann lässt sich das Integral folgendermaßen zerlegen in einen Summanden ohne Singularität, und einen zweiten Summanden, der weiterhin für $k = k'$ singulär ist:

$$\begin{aligned} f(k) &= \int dk' V(k, k') g(k') = \int dk' \underbrace{V(k, k') [g(k') - g(k)\alpha(k, k')]}_{\text{regulärer Ausdruck für } k=k'} \\ &\quad + g(k) \int dk' \underbrace{V(k, k') \alpha(k, k')}_{\text{weiterhin singulär für } k=k'} \\ \text{mit } \alpha(k, k') &= 1 \quad \text{für } k = k' \end{aligned}$$

Der Trick besteht nun in einer geschickten Wahl von $\alpha(k, k')$, so dass sich das letzte Integral, das die Singularität enthält, entweder analytisch berechnen lässt, oder aber $\alpha(k, k')$ für $k \neq k'$ schnell genug abfällt (also als konvergenzerzeugender Faktor wirkt), um das Integral über einen kleinen Bereich um die Singularität numerisch ausrechnen zu können. Am besten wählt man als Stützstellen für die Integration dabei Gauß'sche Quadraturpunkte dicht um die Singularität. Ein Beispiel, für das eine analytische Berechnung des letzten Integrals möglich ist, ist das „Coulomb-Integral“ in drei Dimensionen in Kugelkoordinaten nach Integration über die Winkel, aus Gleichung (3.14). Hier ist eine besonders günstige Wahl:

$$\alpha(k, k') = \frac{4k^4}{(k^2 + k'^2)^2} \quad (\text{B.6})$$

Für die Berechnung des singulären Integrals kann dann folgender analytischer Ausdruck benutzt werden:

$$\frac{1}{\pi} \int dk' \frac{4k^4}{(k^2 + k'^2)^2} \frac{k'}{k} \ln \frac{|k + k'|}{|k - k'|} = k$$

Diese Wahl der Funktion $\alpha(k, k')$ führt zwar in Zylinderkoordinaten mit dem Coulomb-Potential aus Gleichung (3.16) nicht zu einem analytisch berechenbaren Ausdruck, wird dort aber trotzdem ähnlich angesetzt:

$$\alpha(k, k') = \frac{4 \left(k_{\parallel}^2 + k_z^2 \right)^4}{\left(\left(k_{\parallel}^2 + k_z^2 \right)^2 + \left(k_{\parallel}'^2 + k_z'^2 \right)^2 \right)^2}$$

Dabei erhält die spezielle Wahl die Symmetrie der Lösung, die ja eigentlich Kugelsymmetrie hat, analog zu (B.6). Für die ebenfalls nur numerisch mögliche Berechnung des Integrals in Gleichung (3.28) wird auch ein analoger Ansatz für die konvergenzerzeugende Funktion gewählt:

$$\alpha(k_{\perp}, k'_{\perp}) = \frac{4k_{\perp}^4}{(k_{\perp}^2 + k_{\perp}'^2)^2}$$

Literatur

- [Ames, 1992] William F. Ames. *Numerical Methods for Partial Differential Equations*. 3rd Edition, Computer Science and Scientific Computing, Academic Press Inc., San Diego, 1992
- [Ashcroft/Mermin, 1976] N. W. Ashcroft, N. D. Mermin. *Solid State Physics*. Saunders College Publishing, 1976
- [Bronstein, 1991] I. N. Bronstein, K. A. Semendjajew. *Taschenbuch der Mathematik*. 1991
- [Cohen-Tannoudji, 1977] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. Laloë. *Quantum Mechanics*. Volume II, Wiley-Interscience, 1977
- [Combescot et al., 2001] M. Combescot, R. Combescot, B. Roulet, Eur. Phys. J. B 23 (2001): 139-151
- [Czycholl, 1999] G. Czycholl. *Theoretische Festkörperphysik I und II*. Skript, 1999, Universität Bremen
- [Demtröder, 1996] W. Demtröder. *Experimentalphysik 3, Atome, Moleküle und Festkörper*. Springer-Verlag, 1996
- [Haug/Koch, 1993] H. Haug, S. W. Koch. *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors*. 2nd Edition, World Scientific Publishing, 1993
- [Henneberger, 1998] K. Hennberger. Phys. Rev. Lett. 80 (1998): 2889
- [Klingshirn, 1997] C. F. Klingshirn. *Semiconductor Optics*. Springer Study Edition, Springer-Verlag, 1997
- [Leforestier et al., 1991] C. Leforestier, R. H. Bisseling, C. Cerjan, M. D. Feit, R. Friesner, A. Guldborg, A. Hammerich, G. Jolicard, W. Karrlein, H. -D. Meyer, N. Lipkin, O. Roncero, R. Kosloff. Journal of Computational Physics 94 (1991): 59
- [Numerical Recipes, 1988] W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, B. P. Flannery. *Numerical Recipes in C*. 1988
- [Pekar, 1958] S. I. Pekar. Sov. Phys. JETP 6 (1958): 785
- [Schneider et al., 2001] H. C. Schneider, F. Jahnke, S. W. Koch, J. Tignon, T. Hasche, D. S. Chemla. Phys. Rev. B 63 (2001): 45202
- [Schwabl, 1997] F. Schwabl. *Quantenmechanik II*. Springer Verlag, 1997
- [Schwabl, 1998] F. Schwabl. *Quantenmechanik I*. 5. Auflage, Springer Verlag, 1998
- [Ting et al., 1975] C. S. Ting, M. J. Frankel, J. L. Birman. Solid State Commun. 17 (1975): 1285
- [Tredicucci et al., 1993] A. Tredicucci, Y. Chen, F. Bassani, J. Massies, C. Deparis, G. Neu. Phys. Rev. B 47 (1993): 10348

- [Tuffigo et al., 1988] H. Tuffigo, R. T. Cox, N. Magnea, Y. Merle d'Aubigné, A. Millon. Phys. Rev. B 37(1988): 4310
- [Yosida, 1996] Kei Yosida. *Theory of Magnetism*. Springer Series in Solid-State Sciences 122, 1996
- [Yu/Cardona, 1999] P. Y. Yu, M. Cardona. *Fundamentals of Semiconductors, Physics and Material Properties*. 2nd Edition, Springer-Verlag, 1999

Danksagung

Für die gute Betreuung und Unterstützung bei meiner interessanten Arbeit bedanke ich mich in erster Linie bei Prof. Dr. Gerd Czycholl. Darüber hinaus möchte ich mich bei Prof. Dr. Frank Jahnke für die hilfreiche Unterstützung bedanken.

Weiter bedanke ich mich bei der Arbeitsgruppe Theoretische Festkörperphysik, und insbesondere bei Claas Grenzebach und Michael Buck für die oft hilfreichen Diskussionen.

Außerdem gilt mein Dank meiner Freundin Katrin, die mich während meines gesamten Studiums begleitet und mir in vielfältiger Hinsicht den richtigen Ausgleich für die viele Arbeit gegeben hat.

Nicht unerwähnt bleiben dürfen meine Eltern Heide und Uwe Schumacher, die mir mein Studium ermöglicht haben.
