

Einfluß von Unordnung auf die optischen
Eigenschaften von Halbleiter-Heterostrukturen

Dissertation

zur

Erlangung des Doktorgrades

der Naturwissenschaften

(Dr. rer. nat.)

von

Bernd Grote

aus Meppen

Marburg/Lahn, November 1999

Vom Fachbereich Physik der Philipps-Universität
als Dissertation am 9.12.1999 angenommen

Erstgutachter : Prof. Dr. S.W. Koch
Zweitgutachter: Prof. Dr. F. Gebhard

Tag der mündlichen Prüfung: 20.12.1999

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	5
2	Maxwell-Halbleiter-Bloch-Gleichungen	10
2.1	Hamiltonian und Bewegungsgleichungen	11
2.2	Formale Lösung der Wellengleichung	17
2.3	Das Exziton im Unordnungspotential	18
2.3.1	Bewegungsgleichung für das Exziton	20
2.3.2	Gemittelte Suszeptibilität	26
2.4	Propagation in Heterostrukturen	29
2.4.1	Quantenfilme als optisch aktive Schichten	29
2.4.2	Strahlende Lebensdauer im Einzelquantenfilm	32
2.4.3	Optisch passive Grenzflächen	35
2.4.4	Konfigurationsmittelung und Observablen	36
3	Unordnung in Mehrfachquantenfilmen	39
3.1	Resonante Rayleigh-Streuung	41
3.2	Vier-Wellen-Mischen	54
3.2.1	Nichtlineare Bewegungsgleichungen	55
3.2.2	Subradiante Moden in Bragg-Strukturen	59
3.2.3	Einfluß der dielektrischen Umgebung	66
4	Unordnung in Mikroresonatoren	71
5	Zusammenfassung	83
A	Polariton-Modell	88
	Literatur	93

Kapitel 1

Einleitung

Mit der zunehmenden Nachfrage nach schnellen optoelektronischen Bauelementen durch die moderne Kommunikationstechnik gewinnen insbesondere Halbleiter-Heterostrukturen an Bedeutung. Durch die Reduzierung der Dimensionalität der aktiven Schichten ist die Oszillatorstärke der Exzitonen gegenüber dem Volumenmaterial enorm erhöht. Bei den dimensionsreduzierten Halbleitern kommt den zweidimensionalen Systemen, Quantenfilmen (QF), eine besondere Bedeutung zu. Die Herstellung von QF hoher Qualität ist durch das Aufwachsen verschiedener Halbleitermaterialien während der Epitaxie vergleichsweise einfach. Durch das Einfügen einer Schicht von Halbleitermaterial mit geringerer Bandkante als das umgebende Barrierenmaterial wirkt in dieser Schicht eine Potentialbarriere auf die Ladungsträger. Dagegen erfordert die Herstellung von Quantendrähten (1-dimensional) oder Quantenpunkten (0-dimensional) besondere Herstellungsverfahren, die oft mit einem Qualitätsverlust verbunden sind. Neben der Erhöhung der Oszillatorstärke des Exzitons im QF führt die Dimensionsreduzierung zu einem Bruch der Translationsinvarianz in Wachstumsrichtung. Die Aufhebung der Impulserhaltung in dieser Richtung eröffnet einen strahlenden Zerfallskanal für die optische Anregung, so daß die Lebensdauer auf Zerfallszeiten von einigen Pikosekunden beschränkt ist [1-4], im Gegensatz zu Nanosekunden im Volumenmaterial.

Wie bei der Dimensionsreduzierung der optisch aktiven Schichten hat auch die Einschränkung der Freiheitsgrade des Lichtfelds drastische Konsequenzen für die optischen Eigenschaften der Heterostruktur. In Mikroresonatoren wird durch aufeinanderfolgende Schichten alternierenden Brechungsindizes eine Dimensionsreduzierung für das Licht erreicht. An Stelle des Kontinuums an Lichtmoden im freien Raum tritt ein diskretes Spektrum von Resonatormoden. Sind die Resonanz des Resonators und des aktiven Materials entartet, so führt die Normalmodenkopplung zu einer Aufspaltung [5]. Neben der Anwendung

dieser Strukturen als einmodige Halbleiterlaser, besteht auch Interesse hinsichtlich grundsätzlicher physikalischer Fragestellungen, wie z.B. die Erhöhung der spontanen Emission [6].

Bei der Herstellung von Halbleiterstrukturen ist ein gewisses Maß an Unordnung nicht zu vermeiden. Diese vermindert i.a. die Güte der Probe hinsichtlich möglicher Anwendungen. Da die Qualitätsanforderungen jedoch von der jeweiligen Anwendung abhängen, ist eine quantitative Erfassung der Unordnung wünschenswert, um die Qualität im Vergleich zum Aufwand zu optimieren. Die Untersuchung dieser Defekte durch direkt abbildende Verfahren, wie z.B. Hochauflösende Transmissionselektronen-Mikroskopie [7], hat den Nachteil, daß die Probe hierzu zerstört werden muß. Daher sind zur Klassifizierung der Güte zerstörungsfreie Methoden erwünscht.

Optische Experimente haben sich als geeignetes Hilfsmittel erwiesen. Hierbei muß aus den Meßergebnissen indirekt auf die vorliegende Form und Stärke der Unordnung geschlossen werden. Es hat sich gezeigt, daß bei nichtlinearen optischen Experimenten, insbesondere dem Vier-Wellen-Mischen (VWM), die Unordnung zu charakteristischen Photonechos führt [8-13]. Schon die Analyse der exzitonischen Linienform und Breite in der linearen Absorption kann Anhaltspunkte über Stärke und Längenskala der Unordnung geben, denn die Fluktuation der effektiven Bandkante äußert sich in einer inhomogenen Verbreiterung der exzitonischen Resonanz [14-18].

Während beim VWM optische Nichtlinearitäten zu einem Signal in eine aus der Transmission und Reflexion abgelenkte Richtung führen, ist es bei der resonanten Rayleigh-Streuung (RRS) das Unordnungspotential selbst, das zu optischen Feldkomponenten in einem endlichen Winkel zur Propagationsachse des Anregungspulses führt. Bei niedrigen Anregungsintensitäten kann die RRS daher als lineares optisches Experiment angesehen werden. Die RRS an Halbleitern ist zu unterscheiden von der Rayleigh-Streuung im ursprünglichen Sinne, welche die elastische Streuung von Licht an einem räumlich inhomogenen System punktförmiger Teilchen beschreibt [19]. Ist das eingestrahlte Licht spektral in der Nähe eines optischen Übergangs, so findet die Streuung verstärkt statt. Im QF bilden zwar die Exzitonen optische Resonanzen, doch erst der Bruch der Translationsinvarianz in der Filmebene durch das Unordnungspotential und die Streuung der Exzitonen in Impulszustände, die an abgelenkte Richtungen des elektrischen Feldes koppeln, führen zu einem nicht verschwindenden RRS-Signal. Da die Exzitonen ausgedehnte quantenmechanische Zustände mit einer Dispersion darstellen, können sie hierbei i.a. nicht als punktförmige Streuer angesehen werden.

Als inverses Streuproblem erfordert die RRS eine adäquates mikroskopisches

Modell, um auf dessen Grundlage experimentelle Befunde interpretieren zu können. Erst dann ist es möglich, aus den gestreuten Signalen auf die Stärke und Form der Unordnung zu schließen. Die bisherigen theoretischen Ansätze hierzu basieren meist auf einer Fernfeldnäherung für das gestreute Feld eines Ensembles punktförmiger, dispersionsloser, resonanter Streuer deren Anwendung durch Annahmen über die Art der Unordnung motiviert wird [20-25]. Durch diese Approximationen sind die berechneten RRS-Signale unabhängig von mikroskopischen Längenskalen. Der Zugang ist schon durch seine Eingangsvoraussetzungen auf bestimmte Grenzfälle eingeschränkt. Es hat sich gezeigt, daß sowohl die quantenmechanische Natur der exzitonischen Bewegung [26] als auch die strahlende Selbstenergie [27] wesentlichen Einfluß auf die RRS-Signale haben. Eine mikroskopische Theorie erfordert daher die Berücksichtigung der wesentlichen Wechselwirkungen im Halbleiter. Während im Grenzfall starker Unordnung, wie z.B. bei amorphen Halbleitern, die Coulombwechselwirkung eine untergeordnete Rolle spielt, ist diese bei schwacher Unordnung auf der gleichen Ebene wie das Unordnungspotential zu behandeln [28]. Das Exziton führt hierbei mit seinem Bohr-Radius eine intrinsische Längenskala im Vergleich zur Korrelationslänge des Unordnungspotentials ein. Bei kleiner Korrelationslänge, Fluktuationen auf Skalen kleiner dem Bohr-Radius des Exzitons, führt die Relativbewegung von Elektron und Loch zu einer Mittelung der Unordnung, so daß die optische Linie schmaler ist als die Varianz des Unordnungspotentials erwarten läßt [14, 15, 17].

Nichttriviale Unordnungseffekte, die über eine inhomogene Verbreiterung der optischen Resonanzen hinausgehen, ergeben sich immer dann, wenn die Unordnung in ein komplexes Wechselspiel mit anderen Quasiteilchenwechselwirkungen des Systems tritt. Die zugehörigen Energieskalen sind hierbei ein Maß dafür, inwieweit sich verschiedene Wechselwirkungen beeinflussen können. In ungeordneten Systemen ist die Coulomb-Wechselwirkung dann zu berücksichtigen, wenn das Unordnungspotential auf Skalen der Bindungsenergie variiert. Eine weitere Energieskala ist durch die Kopplung an das Lichtfeld definiert. Durch die Verbesserung epitaktischer Verfahren ist die Probenqualität in den letzten Jahren weiter gestiegen, so daß Effekte durch die Strahlungskopplung beobachtet werden konnten. In optisch ausgedehnten Volumenhalbleitern, d.h. ausgedehnt im Vergleich zur Wellenlänge des Lichtes, bilden Polaritonen als die Quasiteilchen des gekoppelten Systems aus Exziton und elektrischem Feld die elementare optische Anregung [29]. Propagationseffekte führen hier zu einem Aufbrechen des Pulses und Polariton-Schwebungen [30-34]. Bei Mikroresonatoren ergibt sich in analoger Weise eine polaritonische Aufspaltung durch die Kopplung der Resonatormoden an die exzitonische Resonanz im QF [5]. Für diese Strukturen

wurde eine Verringerung der inhomogenen Linienbreite durch eine polaritonische Mittelung über das Unordnungspotential vorhergesagt [35, 36, 37], die jedoch durch die experimentellen Befunde nicht bestätigt werden konnte [38, 39, 40].

Die Strahlungskopplung bewirkt i.a. eine komplexe Energienormierung der Polaritonen als neue Quasiteilchen gegenüber den Exzitonen. In Mehrfachquantenfilmen (MQF), bei denen durch breite Barrieren bedingt kein Überlapp der elektronischen Wellenfunktionen verschiedener QF besteht, kann die optische Anregung im Gegensatz zu quasistationären Polaritonen im Volumenhalbleiter oder Resonator strahlend zerfallen. Die von einem QF emittierten Felder können in positive oder negative Wachstumsrichtung propagieren und von den anderen QF entweder reabsorbiert, transmittiert oder reflektiert werden [41-44]. Durch die Emission und Reabsorption transversaler Felder werden die exzitonen Zustände in verschiedenen QF untereinander gekoppelt. Die Phasenlage der vor- und rücklaufenden Felder zur optischen Anregung innerhalb der QF ist durch die optische Weglänge zwischen den QF gegeben, die damit die komplexe Energienormierung bestimmt. So formiert sich beispielsweise in Bragg-Strukturen, MQF mit einer Periode von einer halben Wellenlänge an der Exzitonresonanz, eine superradiante Mode, die proportional zur Filmzahl strahlend verbreitert ist. In Anti-Bragg-Strukturen mit einer Periode von einer viertel Wellenlänge des resonant eingestrahlt optischen Feldes ergibt sich auch ein Realteil der strahlenden Renormierung, was zu einer Aufspaltung der Resonanzen führt [45, 46].

Im Rahmen einer semiklassischen Theorie, welche das optische Feld klassisch durch die Maxwellgleichungen, die Dynamik des Ladungsträgersystems quantenmechanisch in einem Dichtematrixformalismus beschreibt, wird in dieser Arbeit der Einfluß verschiedener Formen von Unordnung auf die optischen Eigenschaften von Halbleiter-Heterostrukturen, MQF und QF in Mikroresonatoren, untersucht. Diese Arbeit ist demnach in drei Teile gegliedert. Zunächst werden ausgehend von einem Hamiltonian, der die Gesamtenergie des Systems bestehend aus dem elektronischen Anteil und dem Lichtfeld beschreibt, Heisenberg'sche Bewegungsgleichungen für die Observablen hergeleitet, die als Quelle in die Wellengleichung für das optische Feld eingehen. Durch systematische Approximationen werden dann Bewegungsgleichungen für die Schwerpunktsbewegung des Exzitons im Unordnungspotential hergeleitet. Die für eine konkrete Realisierung der Unordnung erzielte Lösung dieser Bewegungsgleichungen geht in Form einer nichtlokalen Suszeptibilität in die Propagation des optischen Feldes ein, das damit selbstkonsistent mit der Materialdynamik berechnet werden kann.

Zwei Ergebnisteile sind den Resultaten für MQF (Kap. 3) und Mikroresonatoren (Kap. 4) gewidmet. Es zeigt sich, daß sowohl für die Linienbreite und Form

der linearen Spektren, insbesondere jedoch für die RRS-Signale die Längenskala der Unordnung im Vergleich zum Exziton-Bohr-Radius eine bestimmende Rolle spielt (s. Kap. 3.1). Bei gleicher Absorptionslinienbreite führen verschiedene Längenskalen der Unordnung zu signifikanten Änderungen des RRS-Signals. In Kap. 3.2 werden die VWM-Signale von MQF untersucht. Hier ist zur numerischen Auswertung die Beschränkung auf langwellige Unordnungspotentiale notwendig. Die VWM-Signale von ungeordneten Bragg-Strukturen sind geprägt durch die Koexistenz von superradianter und subradianten Moden. Im Gegensatz zur superradianten Mode, deren strahlende Breite durch die kohärente Kopplung erhöht wird, zeichnen sich die subradianten Moden durch eine weitgehend reduzierte strahlende Verbreiterung aus. Im Vergleich mit experimentellen Ergebnissen werden strahlende und nichtstrahlende Zerfallszeiten der optischen Anregung analysiert. Die Untersuchung der linearen optischen Eigenschaften von Mikroresonatoren (s. Kap. 4) zeigen, daß die Kopplung der Resonatormoden durch das Exziton, welches am Unordnungspotential gestreut wird, im intermediären Bereich zwischen den Regimen schwacher und starker Kopplung zu zusätzlichen Signaturen in den Spektren führt. Diese lassen sich nicht durch die alleinige Wechselwirkung des QF mit der fundamentalen Mode des Resonators erklären, sondern erfordern die Berücksichtigung der Impulsstreuung polaritonischer Zustände.

Kapitel 2

Maxwell-Halbleiter-Bloch-Gleichungen

In diesem Kapitel werden Maxwell-Halbleiter-Bloch-Gleichungen (MHBG) hergeleitet, welche die Wechselwirkung eines klassischen Lichtfeldes mit dem optisch induzierten Interbandstrom innerhalb eines ungeordneten QF beschreiben. Die MHBG stellen ein System gekoppelter Differentialgleichungen dar. Dieses beinhaltet einerseits eine Wellengleichung für die Propagation des optischen Feldes, andererseits nichtlokale Halbleiter-Bloch-Gleichungen, die als Heisenberg'sche Bewegungsgleichungen die Ladungsträgerdynamik beschreiben. Durch die Streuung der Ladungsträger am Unordnungspotential koppelt die Materialdynamik nicht nur an die Impulskomponente in Antriegsrichtung des eingestrahlten Feldes, sondern der Interbandstrom induziert Felder, die in abweichende Richtungen propagieren. Daher ist es in Anwesenheit von Unordnung notwendig, den Vektorcharakter der Maxwell-Gleichungen zu berücksichtigen, während die Felder im homogenen System durch eine skalare Wellengleichung beschrieben werden können. Durch geeignete Approximationen werden Bewegungsgleichungen für die Schwerpunktsbewegung des Exzitons im Unordnungspotential aufgestellt, wodurch die optischen Felder als experimentell beobachtbare Größen selbstkonsistent mit der Materialdynamik berechnet werden können.

Es werden exzitonische Einheiten verwendet, $\hbar = m_r = e^2/\epsilon_b = 1$, wobei m_r die reduzierte Masse des Exzitons, e die Elementarladung und ϵ_0 die dielektrische Konstante des Halbleitermaterials ist. Die Lichtgeschwindigkeit im Material c ergibt sich aus der Vakuumlichtgeschwindigkeit c_0 durch $c = c_0/\sqrt{\epsilon_b} = \sqrt{\epsilon_b}/\alpha$, wobei α die Feinstrukturkonstante ist.

2.1 Hamiltonian und Bewegungsgleichungen

In realen Halbleiterstrukturen liegt immer ein gewisses Maß an Unordnung vor. Neben den Formen von Unordnung, die auch vom Volumenhalbleiter her bekannt sind, wie z.B. Gitterdefekte, sind dimensionsreduzierte Strukturen insbesondere durch Fluktuationen der Confinementenergie als Folge von Grenzflächenrauheit oder Legierungsunordnung, der Variation der chemischen Zusammensetzung des Film- oder Barrierenmaterials, betroffen. Die Unordnung führt zu einer effektiven Bandkante, die als Funktion vom Ort variiert, und daher als Unordnungspotential auf die Ladungsträger wirkt. Im Gegensatz zum idealen Halbleiter ist in der Anwesenheit von Unordnung die Translationsinvarianz nicht mehr gegeben. In einer Impulsraumdarstellung führt die Unordnung daher zu einer Streuung der Ladungsträger zwischen verschiedenen Kristallimpulsen. Der Hamiltonian ist nicht mehr diagonal in den entsprechenden Quantenzahlen.

Im Rahmen einer semiklassischen Beschreibung des Halbleiters in Wechselwirkung mit einem optischen Feld wird im Folgenden das elektronische System quantenmechanisch beschrieben, während für das elektromagnetische Feld eine klassische Theorie angewandt wird. Der Hamiltonian läßt sich wie folgt aufteilen:

$$H = H_0 + H_{Cb} + H_{WW} + H_{Feld}. \quad (2.1)$$

Hierbei beschreibt

$$H_0 = \sum_s \int dV \hat{\psi}_s^\dagger(\mathbf{x}) \left(-\frac{\Delta}{2m_0} + V_{Kristall} + V_{Confinement} + U(\mathbf{x}) \right) \hat{\psi}_s(\mathbf{x}) \quad (2.2)$$

die Bewegung der freien Elektronen mit Masse m_0 im gitterperiodischen Kristallpotential $V_{Kristall}$. Die Heisenberg'schen Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren, $\hat{\psi}_s^\dagger(\mathbf{x})$, $\hat{\psi}_s(\mathbf{x})$, wirken auf Elektronen am Ort \mathbf{x} mit Spin s . In einem System reduzierter Dimension erfahren die Ladungsträger durch die höhere Bankante des Barrierenmaterials ein Confinementpotential $V_{Confinement}$. Das Unordnungspotential $U(\mathbf{x})$ repräsentiert den fluktuierenden Teil der Bandkante. Insbesondere bei dimensionsreduzierten Systemen ist das Unordnungspotential durch die Variation des Confinementpotentials als Folge von Legierungsunordnung oder Grenzflächenrauheit gegeben.

Die Energie des transversalen elektromagnetischen Feldes wird durch die klassische Hamiltonfunktion

$$H_{field} = \frac{1}{8\pi} \int dV (\epsilon_b |\mathbf{E}_T|^2 + |\mathbf{B}|^2) \quad (2.3)$$

beschrieben. ϵ_b ist die dielektrische Konstante für das Halbleitermaterial, \mathbf{E}_T das transversale elektrische Feld und \mathbf{B} die magnetische Flußdichte. Der longitudinale

Anteil,

$$H_{Cb} = \frac{1}{2} \sum_{s_1, s_2} \int dV_1 \int dV_2 \hat{\psi}_{s_1}^\dagger(\mathbf{x}_1) \hat{\psi}_{s_2}^\dagger(\mathbf{x}_2) V_{Cb}(\mathbf{x}_1 - \mathbf{x}_2) \hat{\psi}_{s_2}(\mathbf{x}_2) \hat{\psi}_{s_1}(\mathbf{x}_1), \quad (2.4)$$

mit dem Coulomb-Potential $V_{Cb}(\mathbf{x}_1 - \mathbf{x}_2) = e^2/\epsilon_b|\mathbf{x}_1 - \mathbf{x}_2|$ beschreibt die Wechselwirkung der Elektronen untereinander. Mit dem transversalen Vektorpotential \mathbf{A} , definiert durch:

$$\mathbf{E}_T = -\frac{1}{c_0} \partial_t \mathbf{A}, \quad \mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}, \quad (2.5)$$

und dem zugehörigen kanonischen Impuls $\Pi = -\frac{\epsilon_b}{4\pi c_0} \mathbf{E}$, wobei das volle elektrische Feld \mathbf{E} durch

$$\mathbf{E}(\mathbf{x}) = \mathbf{E}_T(\mathbf{x}) - \nabla \sum \int dV' \frac{e \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}') \hat{\psi}(\mathbf{x}')}{\epsilon_b |\mathbf{x} - \mathbf{x}'|} \quad (2.6)$$

gegeben ist, läßt sich der Wechselwirkungsanteil des Hamiltonians schreiben als:

$$H_I = -\frac{e}{2m_0 c_0} \sum_s \int dV \hat{\psi}_s^\dagger(\mathbf{x}) (\mathbf{A} \cdot \mathbf{p} + \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}) \hat{\psi}_s(\mathbf{x}) + \sum_s \int dV \frac{e^2 |\mathbf{A}|^2}{2m_0 c_0^2} \hat{\psi}_s^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\psi}_s(\mathbf{x}). \quad (2.7)$$

Auswertung der Hamilton'schen Bewegungsgleichung $\frac{d}{dt} \Pi = -\frac{\delta H}{\delta \mathbf{A}}$ ergibt eine Wellengleichung für das transversale elektrische Feld:

$$\left(\Delta - \frac{1}{c^2} \partial_t^2 \right) \mathbf{E}_T = \frac{4\pi}{c_0^2} \frac{d}{dt} \langle \mathbf{j}_T \rangle \quad (2.8)$$

Die Wellengleichung kann alternativ auch aus den Maxwell'schen Gleichungen hergeleitet werden [47, 48]. Da die Feldenergie im Hamiltonian enthalten ist, wird durch ein äußeres Laserfeld die Gesamtenergie des Systems nicht geändert. Das System ist im Rahmen dieser Formulierung abgeschlossen. Da das optische Feld nicht als externe zeitabhängige Störung sondern in Form von dynamischen Variablen beschrieben wird, ist der Hamiltonian nicht explizit zeitabhängig und die Gesamtenergie ist erhalten. Das elektrische Feld als dynamische Variable trägt jedoch wie auch die elektronischen Observablen eine implizite Zeitabhängigkeit. Das transversale elektrische Feld wird in Gl. 2.8 durch den makroskopischen transversalen Strom $\langle \mathbf{j}_T \rangle$ getrieben, der die Materialantwort auf die optische Anregung enthält. Der transversale Strom ist gegeben durch:

$$\mathbf{j}_T = \mathbf{j} - \frac{1}{4\pi} \nabla \nabla \int dV' \frac{\mathbf{j}(\mathbf{x}')}{|\mathbf{x} - \mathbf{x}'|}. \quad (2.9)$$

Wobei der gesamte Strom $\mathbf{j} = -c_0 \frac{\delta H_{WW}}{\delta A}$ im Wesentlichen durch den Dipoloperator bestimmt ist [49]:

$$\mathbf{j} = \sum_s \int dV \left(\frac{d}{dt} \hat{\psi}_s^\dagger(\mathbf{x}) e \mathbf{x} \hat{\psi}_s(\mathbf{x}) + \frac{e^2}{m_0 c_0} \hat{\psi}_s^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\psi}_s(\mathbf{x}) \right). \quad (2.10)$$

Im Folgenden wird der zweite Summand vernachlässigt, der mit dem im Bereich der Bandkante eingestrahlten optischen Feld nicht resonante Intrabandübergänge darstellt. Zudem ist dieser Anteil eine Ordnung höher im elektrischen Feld als der Dipolbeitrag.

Um die optische Antwort des elektronischen Systems zu berechnen, ist es notwendig neben der Wellengleichung die Heisenberg'sche Bewegungsgleichung für den Strom, $i \frac{d}{dt} \langle \mathbf{j} \rangle = \langle [H, \mathbf{j}] \rangle + i \langle \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{j} \rangle$ zu berechnen. Die Heisenberg'schen Erzeuger und Vernichter, $\hat{\psi}^\dagger, \hat{\psi}$, den Eigenfunktionen des geordneten Anteils von H_0 entwickelt. Liegt Unordnung vor, so ist die resultierende Impulsraumdarstellung des Hamiltonians nicht mehr diagonal im Kristallimpuls, jedoch bleibt der Vorteil erhalten, daß der Operator der kinetischen Energie ein Multiplikationsoperator statt eines Differentialoperators im Ortsraum ist.

In der "Envelope Function Approximation" für quasi-zweidimensionale Systeme [50] lassen sich die Heisenberg-Operatoren nach dem Produkt aus Einhüllendenfunktionen des n-ten Quantenfilmes $\varphi_\mu^n(z)$ und gitterperiodischen Blochfunktionen $u_{\mu,s,\mathbf{k}_{\parallel} \approx 0}(\mathbf{x})$ entwickelt, die für jeden Wellenvektor ein Orthogonalsystem bezüglich der Ortsabhängigkeit bilden:

$$\hat{\psi}_s(\mathbf{x}) = \frac{1}{L} \sum_{\mu,\sigma,\mathbf{k}_{\parallel},n} u_{\mu,\sigma,\mathbf{k}_{\parallel} \approx 0}(\mathbf{x}) e^{i\mathbf{k}_{\parallel} \mathbf{x}_{\parallel}} \varphi_\mu^n(z) a_{\mu,\sigma,\mathbf{k}_{\parallel}}^n. \quad (2.11)$$

Hierbei liegt die z-Achse in Wachstumsrichtung der Halbleiter-Heterostruktur. Die Koordinaten in der Quantenfilmebene sind durch den Index "//" gekennzeichnet. Die elektronischen Zustände im Band μ werden durch ebene Wellen mit Wellenvektor \mathbf{k}_{\parallel} in der Quantenfilmebene moduliert. Die Summe über die Drehimpulskomponente σ des Gesamtdrehimpulses in Wachstumsrichtung läuft über $\sigma = \pm 1/2, \pm 3/2$ für das Valenzband von schwerem (hh) und leichtem Loch (lh), sowie $\sigma = \pm 1/2$ für das Elektronband.

Für ein Zweibandmodell bestehend aus hh-Valenzband und Elektronband bietet sich der Übergang in das Elektron-Loch-Bild an:

$$a_{c,\sigma,\mathbf{k}_{\parallel}}^n = c_{n,\sigma,\mathbf{k}_{\parallel}}, \quad a_{v,\sigma,\mathbf{k}_{\parallel}}^n = d_{n,\sigma,-\mathbf{k}_{\parallel}}^\dagger \quad (2.12)$$

Mit der Entwicklung Gl. 2.11 ist nun der Hamiltonian im Impulsraum gegeben

durch:

$$\begin{aligned}
H = & \sum_{k,m,\sigma} \left(\epsilon_{\mathbf{k}_{\parallel}}^e c_{\sigma,m,\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} c_{\sigma,m,\mathbf{k}_{\parallel}} + \epsilon_{\mathbf{k}_{\parallel}}^h d_{\sigma,m,-\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} d_{\sigma,m,-\mathbf{k}_{\parallel}} \right) \\
& + \sum_{\sigma,m,\mathbf{k}_{\parallel},\mathbf{k}'_{\parallel}} \left(U_{\mathbf{k}_{\parallel}-\mathbf{k}'_{\parallel}}^{e,m} c_{\sigma,m,\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} c_{\sigma,m,\mathbf{k}'_{\parallel}} - U_{\mathbf{k}_{\parallel}-\mathbf{k}'_{\parallel}}^{h,m} d_{\sigma,m,-\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} d_{\sigma,m,-\mathbf{k}'_{\parallel}} \right) \\
& + \frac{1}{2} \sum_{i,j,\mathbf{k}_{\parallel 1},\mathbf{k}_{\parallel 2},\mathbf{k}_{\parallel 3},\sigma_1,\sigma_2} V_{\mathbf{k}_{\parallel 3}}^{ij} c_{\sigma_1,i,\mathbf{k}_{\parallel 1}+\mathbf{k}_{\parallel 3}}^{\dagger} c_{\sigma_2,j,\mathbf{k}_{\parallel 2}-\mathbf{k}_{\parallel 3}}^{\dagger} c_{\sigma_2,j,\mathbf{k}_{\parallel 2}} c_{\sigma_1,i,\mathbf{k}_{\parallel 1}} \\
& + \frac{1}{2} \sum_{i,j,\mathbf{k}_{\parallel 1},\mathbf{k}_{\parallel 2},\mathbf{k}_{\parallel 3},\sigma_1,\sigma_2} V_{\mathbf{k}_{\parallel 3}}^{ij} d_{\sigma_1,i,\mathbf{k}_{\parallel 1}+\mathbf{k}_{\parallel 3}}^{\dagger} d_{\sigma_2,j,\mathbf{k}_{\parallel 2}-\mathbf{k}_{\parallel 3}}^{\dagger} d_{\sigma_2,j,\mathbf{k}_{\parallel 2}} d_{\sigma_1,i,\mathbf{k}_{\parallel 1}} \\
& - \sum_{i,j,\mathbf{k}_{\parallel 1},\mathbf{k}_{\parallel 2},\mathbf{k}_{\parallel 3},\sigma_1,\sigma_2} V_{\mathbf{k}_{\parallel 3}}^{ij} c_{\sigma_1,i,\mathbf{k}_{\parallel 1}+\mathbf{k}_{\parallel 3}}^{\dagger} d_{\sigma_2,j,\mathbf{k}_{\parallel 2}-\mathbf{k}_{\parallel 3}}^{\dagger} d_{\sigma_2,j,\mathbf{k}_{\parallel 2}} c_{\sigma_1,i,\mathbf{k}_{\parallel 1}} \\
& - \sum_{m,\sigma,\sigma',\mathbf{k}_{\parallel},\mathbf{k}'_{\parallel}} \mathbf{d}_{vc} \mathbf{E}_{T \mathbf{k}_{\parallel}-\mathbf{k}'_{\parallel}}^m c_{\sigma,m,\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} d_{\sigma',m,-\mathbf{k}'_{\parallel}}^{\dagger} + h.a. + H_{field}. \quad (2.13)
\end{aligned}$$

$\epsilon_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{e/h,m}$ ist die Einteilchenenergie im entsprechenden Elektron- (e) oder Lochband (h) des m-ten QF und beschreibt die freie Elektronenbewegung im Potential der Ionenrümpfe. An den Bandkanten kann die Bandstruktur bei direkten Halbleitern durch parabolische Dispersionen genähert werden, $\epsilon_{\mathbf{k}_{\parallel}}^e = E_g + \mathbf{k}_{\parallel}^2/2/m_e$, $\epsilon_{\mathbf{k}_{\parallel}}^h = -\mathbf{k}_{\parallel}^2/2/m_h$, wobei m_e , m_h die effektiven Massen von Elektronen bzw. Löchern sind und E_g die Bandlücke ist.

Um den Unordnungsanteil des Hamiltonians herzuleiten wurde angenommen, daß das Unordnungspotential eine langsam veränderliche Funktion auf der Skala einer Elementarzelle ist. Damit ist die Rotationssymmetrie auf dieser mikroskopischen Skala erhalten und der Unordnungsanteil ist diagonal in den Drehimpulsquantenzahlen. Bezüglich der optischen Eigenschaften hat dies zur Folge, daß verschiedene Polarisationsrichtungen des optischen Feldes nicht durch die Unordnung gekoppelt werden. Elektronen und Löcher werden jedoch zwischen verschiedenen Impulszuständen gestreut. $U_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{e/h,m}$ ist die Fouriertransformation des Unordnungspotentials im Ortsraum zu den verschiedenen Bändern, wobei das Matrixelement mit den Confinementfunktionen des m-ten QF gebildet wird.

Im strikt zweidimensionalen Grenzfall ist das Coulomb-Potential gegeben durch

$$V_{\mathbf{q}_{\parallel}}^{ij} = \frac{2\pi}{\mathcal{A}|\mathbf{q}_{\parallel}|} e^{-q d_{ij}}, \quad (2.14)$$

wobei $d_{ij} = |z_i - z_j|$ den Abstand zwischen dem i-ten und dem j-ten QF bezeichnet. In Dipolnäherung und "Rotating Wave Approximation" [51] koppelt das elektrische Feld am Ort des QF m, gegeben durch das Matrixelement mit den Confinementfunktionen, $\mathbf{E}_{T \mathbf{k}_{\parallel}-\mathbf{k}'_{\parallel}}^m = \langle m | \mathbf{E}_{T \mathbf{k}_{\parallel}-\mathbf{k}'_{\parallel}} | m \rangle$, über das Dipolmatrixelement

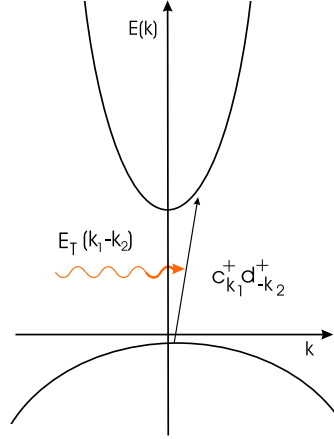


Abbildung 2.1: Schematische Bandstruktur für die hh-Übergänge des niedrigsten Subbandes

\mathbf{d}_{vc} an den entsprechenden Interbandübergang $c_{\sigma,m,\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} d_{\sigma',m,-\mathbf{k}'_{\parallel}}^{\dagger}$ wobei der Impuls $\mathbf{k}_{\parallel} - \mathbf{k}'_{\parallel}$ an die Schwerpunktsbewegung der Interbandkohärenz abgegeben wird. Da mit

$$\mathbf{d}_{cv} = \mu \mathbf{e}_{\sigma\pm} = \pm \mu (\mathbf{e}_x \mp \mathbf{e}_y) = \mathbf{d}_{vc}^* \quad (2.15)$$

nur die hh-Übergänge:

$$\sigma^- : |3/2, 3/2\rangle \longrightarrow |1/2, 1/2\rangle$$

$$\sigma^+ : |3/2, -3/2\rangle \longrightarrow |1/2, -1/2\rangle$$

mit der entsprechenden zirkularen Polarisationsrichtung des optischen Feldes, $\mathbf{E}_T = E^{\sigma^+} \mathbf{e}_{\sigma^+} + E^{\sigma^-} \mathbf{e}_{\sigma^-}$, angeregt werden können, werden im folgenden Heisenberg'sche Bewegungsgleichungen $i\partial_t \langle * \rangle = \langle [*, H] \rangle$ für die Interbandkohärenzen

$$P_{\mathbf{k}_{\parallel}, \mathbf{k}'_{\parallel}}^{m, \sigma^{\mp}} = \langle d_{\pm 3/2, m, -\mathbf{k}'_{\parallel}} c_{\pm 1/2, m, \mathbf{k}_{\parallel}} \rangle \quad (2.16)$$

zu den entsprechenden zirkularen Polarisationsrichtungen des optischen Feldes hergeleitet, um den makroskopischen Strom als Quelle der Wellengleichung Gl. 2.8 zu berechnen. Durch die Streuung an der Unordnung gibt es Beiträge mit Schwerpunktsimpuls $\mathbf{K}_{\parallel} \neq 0$ zum Interbandstrom,

$$\begin{aligned} \mathbf{j}(\mathbf{x}) &= \sum_{\sigma=\sigma^{\pm}} \sum_{m, \mathbf{K}_{\parallel}} j_{\sigma}^m(\mathbf{K}_{\parallel}) e^{i\mathbf{K}_{\parallel}\mathbf{x}_{\parallel}} \varphi_m(z) \mathbf{e}_{\sigma} \\ &= \sum_{\sigma=\sigma^{\pm}} \sum_{m, \mathbf{K}_{\parallel}} \partial_t \sum_{\mathbf{k}_{\parallel}} P_{\frac{m\epsilon}{M}\mathbf{K}_{\parallel}+\mathbf{k}_{\parallel}, \frac{m\mu}{M}\mathbf{K}_{\parallel}-\mathbf{k}_{\parallel}}^{m, \sigma} e^{i\mathbf{K}_{\parallel}\mathbf{x}_{\parallel}} \varphi_m(z) (\mathbf{e}_{\sigma}^* \mathbf{d}_{cv}) \mathbf{e}_{\sigma}, \end{aligned} \quad (2.17)$$

wobei $M = m_e + m_h$. Im Gegensatz zum homogenen Fall sind daher die Bewegungsgleichungen für die Interbandkohärenzen nicht diagonal im Kristallimpuls, sondern erfordern eine nichtlokale Theorie. Die Interbandkohärenzen koppeln an die Elektron- bzw. Lochdichten. Die Struktur der lokalen Halbleiter-Blochgleichungen [51] kann mit Hilfe der Matrizen,

$$\begin{aligned}
(\mathcal{F}_e)_{\mathbf{k}_{//1}, \mathbf{k}_{//2}}^{n, \sigma} &= f_{\mathbf{k}_{//1}, \mathbf{k}_{//2}}^{e, n, \sigma} = \langle c_{\sigma, n, \mathbf{k}_{//1}}^\dagger c_{\sigma, n, \mathbf{k}_{//2}} \rangle \\
(\mathcal{F}_h)_{\mathbf{k}_{//1}, \mathbf{k}_{//2}}^{n, \sigma} &= f_{\mathbf{k}_{//1}, \mathbf{k}_{//2}}^{h, n, \sigma} = \langle d_{\sigma, n, -\mathbf{k}_{//1}}^\dagger d_{\sigma, n, -\mathbf{k}_{//2}} \rangle \\
(\mathcal{P})_{\mathbf{k}_{//1}, \mathbf{k}_{//2}}^{n, \sigma} &= P_{\mathbf{k}_{//1}, \mathbf{k}_{//2}}^{n, \sigma} = \langle d_{\sigma, n, -\mathbf{k}_{//2}} c_{\sigma, n, \mathbf{k}_{//1}} \rangle \\
(\mathcal{P}^*)_{\mathbf{k}_{//1}, \mathbf{k}_{//2}}^{n, \sigma} &= P_{\mathbf{k}_{//1}, \mathbf{k}_{//2}}^{n, \sigma *} = \langle c_{\sigma, n, \mathbf{k}_{//1}}^\dagger d_{\sigma, n, -\mathbf{k}_{//2}}^\dagger \rangle,
\end{aligned} \tag{2.18}$$

erhalten werden. σ nimmt hierbei die Werte σ^+, σ^- für die entsprechenden hh-Interbandkohärenzen und die dazugehörigen Dichten in den Drehimpulszuständen $|3/2, \mp 3/2\rangle$ für die Löcher und $|1/2, \mp 1/2\rangle$ für die Leitungselektronen an. Nach Anwendung eines Hartree-Fock Entkopplungsschemas, welches auf der χ^2 -Ebene noch exakt ist, ergibt sich ein geschlossenes nicht-lineares Differentialgleichungssystem:

$$\begin{aligned}
i\partial_t \mathcal{P} &= (\mathcal{W}_e^T + \mathcal{U}_e) \cdot \mathcal{P} + \mathcal{P} \cdot (\mathcal{W}_h + \mathcal{U}_h) + (\mathcal{F}_e^T \cdot \Omega_R + \Omega_R \cdot \mathcal{F}_h - \Omega_R) \\
i\partial_t \mathcal{F}_e &= \mathcal{F}_e \cdot (\mathcal{W}_e + \mathcal{U}_e^T) - (\mathcal{W}_e + \mathcal{U}_e^T) \cdot \mathcal{F}_e - (\mathcal{P}^+ \cdot \Omega_R^T - \Omega_R^+ \cdot \mathcal{P}^T) \\
i\partial_t \mathcal{F}_h &= \mathcal{F}_h \cdot (\mathcal{W}_h - \mathcal{U}_h^T) - (\mathcal{W}_h - \mathcal{U}_h^T) \cdot \mathcal{F}_h - (\mathcal{P}^{+T} \cdot \Omega_R - \Omega_R \cdot \mathcal{P}^{+T})
\end{aligned} \tag{2.19}$$

Hierbei ist die Matrixmultiplikation bezüglich der Impulsquantenzahlen definiert, $(\mathcal{A} \cdot \mathcal{B})_{\mathbf{k}_{//1}, \mathbf{k}_{//2}} = \sum_{\mathbf{k}'_{//}} (\mathcal{A})_{\mathbf{k}_{//1}, \mathbf{k}'_{//}} (\mathcal{B})_{\mathbf{k}'_{//}, \mathbf{k}_{//2}}$, sowie die Transponierte, $(\mathcal{A}^T)_{\mathbf{k}_{//1}, \mathbf{k}_{//2}} = (\mathcal{A})_{\mathbf{k}_{//2}, \mathbf{k}_{//1}}$. Die Einteilchenenergien $\mathcal{W}_{e/h}$, die verallgemeinerte Rabifrequenz Ω_R und das Unordnungspotential \mathcal{U} im QF n sind gegeben durch:

$$\begin{aligned}
(\mathcal{W}_{e/h})_{\mathbf{k}_{//1}, \mathbf{k}_{//2}}^{n, \sigma} &= \delta_{\mathbf{k}_{//1}, \mathbf{k}_{//2}} \epsilon_{\mathbf{k}_{//1}}^{e, n} - \sum_{\mathbf{k}'_{//} \neq 0} V_{\mathbf{k}'_{//}}^{n, n} f_{\mathbf{k}_{//1} - \mathbf{k}'_{//}, \mathbf{k}_{//2} - \mathbf{k}'_{//}}^{e/h, n, \sigma} \\
&\pm \sum_{\mathbf{k}'_{//}, \sigma', m} V_{\mathbf{k}_{//1} - \mathbf{k}_{//2}}^{n, m} \left(f_{\mathbf{k}'_{//} \pm \mathbf{k}_{//1}, \mathbf{k}'_{//} \pm \mathbf{k}_{//2}}^{e, m, \sigma'} - f_{\mathbf{k}'_{//} \mp \mathbf{k}_{//1}, \mathbf{k}'_{//} \mp \mathbf{k}_{//2}}^{h, m, \sigma'} \right),
\end{aligned} \tag{2.20}$$

$$(\Omega_R)_{\mathbf{k}_{//1}, \mathbf{k}_{//2}}^{n, \sigma} = \mu E_{\mathbf{k}_{//1} - \mathbf{k}_{//2}}^{n, \sigma} + \sum_{\mathbf{k}'_{//} \neq 0} V_{\mathbf{k}'_{//}}^{n, n} P_{\mathbf{k}_{//1} - \mathbf{k}'_{//}, \mathbf{k}_{//2} - \mathbf{k}'_{//}}^{n, \sigma}, \tag{2.21}$$

$$(\mathcal{U}_{e/h})_{\mathbf{k}_{//1}, \mathbf{k}_{//2}}^n = U_{\mathbf{k}_{//1} - \mathbf{k}_{//2}}^{e/h, n}. \tag{2.22}$$

Durch die Streuung der Ladungsträger an der Unordnung werden auch die entsprechenden Komponenten des elektrischen Feldes miteinander gekoppelt. Daher

ist auch bei senkrechtem Einfall des anregenden Laserpulses die Lösung des vollen Vektorproblems notwendig, um zu einer selbstkonsistenten Beschreibung des Systems zu gelangen. Im Gegensatz zum homogenen Fall, der eine skalare Theorie für das optische Feld erlaubt, müssen daher in Anwesenheit von Unordnung Vektor-MHBG gelöst werden.

2.2 Formale Lösung der Wellengleichung

In die Bewegungsgleichungen geht das elektrische Feld am Ort des jeweiligen QF ein. Da neben dem extern eingestrahlt Laserfeld die induzierte Interbandpolarisation zum effektiven Feld beiträgt, wird die Wellengleichung Gl. 2.8 formal gelöst, um zu einer selbstkonsistenten Beschreibung der gekoppelten Dynamik des Ladungsträgersystems und des optischen Feldes zu gelangen.

Nach Fourier-Transformation der Wellengleichung Gl. 2.8 bezüglich der Koordinaten in der Filmebene und der Zeit ergibt sich im Frequenzraum:

$$\left(\partial_z^2 + \frac{\omega^2}{c^2} - \mathbf{K}_\parallel\right) \mathbf{E}_T(\mathbf{K}_\parallel, z, \omega) = -\frac{4\pi i\omega}{c_0^2} \mathbf{j}_T(\mathbf{K}_\parallel, z, \omega) = \Pi(\mathbf{K}_\parallel, z, \omega). \quad (2.23)$$

Mit Hilfe der Green's Funktion des D'Alembert-Operators auf der linken Seite von Gl. 2.23 läßt sich eine partikuläre Lösung angeben [52]:

$$\mathbf{E}_T(\mathbf{K}_\parallel, z, \omega) = \frac{1}{2i\kappa} \int dz' e^{i\kappa|z-z'|} \Pi(\mathbf{K}_\parallel, z, \omega) \quad (2.24)$$

Hierbei ist $\kappa^2 = k^2 - \mathbf{K}_\parallel^2$, $k = \omega/c$ die Projektion des Wellenvektors vom Betrag $k = \omega/c$ auf die Wachstumsrichtung. Die Komponenten in der Filmebene $\mathbf{E}_\parallel = E_x \mathbf{e}_x + E_y \mathbf{e}_y$ und die Komponente des Feldes in Wachstumsrichtung E_z , so daß $\mathbf{E}_T = \mathbf{E}_\parallel + E_z \mathbf{e}_z$, sind neben der homogenen Lösung durch den transversalen Teil des Stromes (Gl.2.9) gegeben:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_\parallel = & -\frac{2\pi i\omega}{c_0^2} \sum_m \left(\frac{1}{i\kappa} e^{i\kappa|z-z_m|} \mathbf{j}_\parallel^m \right. \\ & \left. - \frac{1}{k^2} \mathbf{K}_\parallel \cdot (\mathbf{K}_\parallel \cdot \mathbf{j}_\parallel^m) \left(\frac{1}{i\kappa} e^{i\kappa|z-z_m|} + \frac{1}{K} e^{-K|z-z_m|} \right) \right) \end{aligned} \quad (2.25)$$

$$\begin{aligned} E_z = & -\frac{2\pi\omega}{c_0^2 k^2} \left(\sum_{z_m \leq z} \mathbf{K}_\parallel \cdot \mathbf{j}_\parallel^m (e^{i\kappa(z-z_m)} - e^{-K(z-z_m)}) \right. \\ & \left. - \sum_{z_m > z} \mathbf{K}_\parallel \cdot \mathbf{j}_\parallel^m (e^{-i\kappa(z-z_m)} - e^{K(z-z_m)}) \right), \end{aligned} \quad (2.26)$$

wobei $K = |\mathbf{K}_{\parallel}|$. Während die Komponenten in der Filmebene stetig sind, macht die z -Komponente einen Sprung an der jeweiligen Position der QF $z = z_m$. Bei Beschränkung auf hh-Übergänge verschwindet die z -Komponente des Interbandstromes $j_z = 0$, da $\mathbf{d}_{cv} \mathbf{e}_z = 0$.

Im Allgemeinen ist die optische Wellenlänge λ sehr viel größer als die Dicke des QF L_z . Daher ist die Annahme idealen Confinements der optischen Anregung,

$$\mathbf{j}(\mathbf{K}_{\parallel}, z) = \sum_m \mathbf{j}^m(\mathbf{K}_{\parallel}) \varphi^m(z) \approx \sum_m \mathbf{j}^m(\mathbf{K}_{\parallel}) \delta(z - z_m), \quad (2.27)$$

unkritisch. Korrekturen sind von der Größenordnung $(L_z/\lambda)^2$ [45].

2.3 Das Exziton im Unordnungspotential

Das Problem wechselwirkender Teilchen in einem Unordnungspotential ist ein breites und facettenreiches Gebiet. Sind im homogenen Fall über den Kristall ausgebreitete ebene Wellen Eigenfunktionen des Systems, so führt Unordnung zu zunehmender Lokalisierung der Wellenfunktionen durch kohärente Rückstreuung (Anderson Lokalisierung [53]) oder inkohärente Relaxation in tiefliegende Zustände, wie z.b. in amorphen Halbleitern [54]. Neben der Unordnung sind die Ladungsträger in realen Halbleitern Wechselwirkungsprozessen ausgesetzt. Hierbei spielt die Coulomb-Wechselwirkung der Ladungsträger untereinander eine dominante Rolle. Das Verhalten wechselwirkender Teilchen in einem Unordnungspotential zeichnet sich aus durch eine stärkere Delokalisierung der Wellenfunktion im Vergleich zum wechselwirkungsfreien Fall [55]. Attraktive und repulsive Wechselwirkung wirken bei der Delokalisierung in ähnlicher Weise [56]. Die Lokalisierung des Quasiteilchens wird im Folgenden insbesondere bezüglich der Wechselwirkung mit dem optischen Feld eine Rolle spielen, bedeutet doch die Lokalisierung im Ortsraum eine große Breite des Wellenpaketes im Impuls mit entsprechender Kopplung an verschiedene Komponenten des elektrischen Feldes (s. Kap. 2.4).

Die optischen Eigenschaften von Halbleitern sind bei niedrigen Anregungsintensitäten an der Bandkante dominiert durch das Exziton, welches im Vergleich zum Kontinuum eine große Oszillatorstärke auf einen diskreten Zustand vereint. Dieser Effekt ist in 2D-Systemen noch ausgeprägter als im Volumenmaterial. Neben der Bildung des Exzitons als gebundenes Elektron-Loch-Paar führt die Coulomb-Wechselwirkung bei wachsender Anregungsintensität durch zunehmende Elektron-Elektron-Streuung zu einem Dephasieren der optischen Anregung [57, 58, 47]. Die Verbreiterung des Exzitons ist hierbei homogen und die Oszillatorstärke bleibt über einen großen Ladungsträgerdichtebereich erhalten

[59].

Der Einfluß von Unordnung auf die optischen Eigenschaften von QF, insbesondere die Lage und Form der Exzitonresonanz wurde in der Vergangenheit eingehend untersucht [60-66]. Dies betrifft also das Zusammenspiel von Unordnung und der attraktiven Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern als führender Beitrag bei niedrigen Anregungsintensitäten. Neben einer asymmetrischen Verbreiterung der Exzitonresonanz wird hierbei eine Rotverschiebung des Absorptionsmaximums vorhergesagt [15, 17]. Oft ist in diesem Zusammenhang von einer inhomogenen Verbreiterung die Rede. Dieser Begriff ist jedoch im Sinne eines Ensembles energetisch gegeneinander verschobener optischer Resonanzen, wie es in der Atomphysik durch Doppler-Verschiebung in Gasen oft vorliegt, nur in Grenzfällen auf Halbleitermaterialien anwendbar. Durch das Unordnungspotential wird die effektive Bandkante im Halbleiter ortsabhängig. Neben einer Verschiebung der Resonanzenergien analog zum Ensemble inhomogen verbreiteter atomarer Resonanzen können die Ladungsträger an der Unordnung gestreut werden, wobei die Dispersion des Quasiteilchens eine Rolle spielt. In dieser Hinsicht unterscheidet sich der Festkörper qualitativ vom atomaren System. Die Eigenenergien des ungeordneten Systems sind je nach Form der Unordnung um die ursprüngliche Exzitonresonanz gestreut, wobei auch die Lebensdauer der Zustände durch die Unordnung beeinflusst werden kann.

In diesem Kapitel wird eine Theorie zur Beschreibung optischer Anregung an ungeordneten QF entwickelt, um den Einfluß von Grenzflächenrauheit und Legierungsunordnung auf die optischen Eigenschaften von QF zu untersuchen. Die Unordnung wird hierbei nicht störungstheoretisch behandelt, sondern es werden Observablen für eine konkrete Realisierung berechnet. Als dynamische Variablen werden sowohl der Interbandstrom, der als Summe mikroskopischer Beiträge eine Quelle des elektrischen Feldes bildet, als auch das elektrische Feld selbst beschrieben, das in einem optischen Experiment die beobachtbare Größe darstellt.

Ein in der Literatur häufig verwendeter, alternativer Ansatz ist die Lösung der Zwei-Teilchen-Schrödinger-Gleichung für das Exziton im Unordnungspotential [14, 15, 21, 26]. Durch numerische Simulationen im Ortsraum oder analytische Ergebnisse für Grenzfälle werden die Wellenfunktionen und Energieeigenwerte bestimmt um dann mit Hilfe Fermi's Goldener Regel Übergangsmatrixelemente zu bilden, die eine optische Dichte, d.h. eine Suszeptibilität, definieren. Die Wechselwirkung mit dem optischen Feld wird nicht selbstkonsistent beschrieben. Schon beim SQF wird daher die Strahlungsdämpfung vernachlässigt, die für dimensionsreduzierte Systeme eine intrinsische homogene Verbreiterung der exzitonischen Resonanz darstellt. Dies kann zu unphysikalischen Ergebnissen

führen, wie z.B. eine endliche Streuintensität für $t \rightarrow \infty$ [26]. Die Methode ist insbesondere ungeeignet um MQF zu beschreiben, in denen auch in Anwesenheit von Unordnung die Wechselwirkung über das optische Feld nicht vernachlässigt werden kann [67, 68, 69], sowie realistische SQF Systeme, da die Grenzfläche zwischen dem Halbleitermaterial und der Luft über das optische Feld Einfluß auf die Dynamik nimmt [4].

Die hier vorgestellte Theorie erlaubt durch die simultane Lösung von Wellengleichung und Heisenberg'schen Bewegungsgleichungen die selbstkonsistente Berechnung der Observablen in Anwesenheit von Unordnung. Die dynamischen Variablen, die Quellen des optischen Feldes darstellen, werden direkt berechnet, ohne daß hierfür die Wellenfunktionen bekannt sein müssen.

2.3.1 Bewegungsgleichung für das Exziton

Um die lineare optische Antwort eines QF zu berechnen, wird die Interbandkohärenz bezüglich ihrer Relativbewegung nach Eigenfunktionen der Wanniergleichung [51] $\varphi_\nu(\mathbf{k}_\parallel)$ entwickelt:

$$P_{\frac{m_e}{M}\mathbf{K}_\parallel + \mathbf{k}_\parallel, \frac{m_h}{M}\mathbf{K}_\parallel - \mathbf{k}_\parallel}^{n,\sigma} = \sum_\nu \varphi_\nu(\mathbf{k}_\parallel) P_{\nu, \mathbf{K}_\parallel}^{n,\sigma} \quad (2.28)$$

Unter Vernachlässigung der nichtlinearen Terme für geringe Anregungsintensitäten ergibt sich damit aus Gl. 2.19 für die Schwerpunktsbewegung des Zustandes ν :

$$i\partial_t P_{\nu, \mathbf{K}_\parallel}^{n,\sigma} = \left(\Omega_{\nu, \mathbf{K}_\parallel} - i\gamma_0 \right) P_{\nu, \mathbf{K}_\parallel}^{n,\sigma} + \sum_{\nu', \mathbf{Q}_\parallel} U_{\mathbf{K}_\parallel - \mathbf{Q}_\parallel}^{\nu, \nu'} P_{\nu', \mathbf{Q}_\parallel}^{n,\sigma} - \gamma_\nu^* \mathbf{e}_\sigma^* \mathbf{E}_T^n(\mathbf{K}_\parallel, t) \quad (2.29)$$

Die Oszillation mit der Frequenz $\Omega_{\nu, \mathbf{K}_\parallel} = \frac{\mathbf{K}_\parallel^2}{2M} + E_g - \epsilon_\nu$ ist durch die parabolische Schwerpunktsbewegung des Exzitons gegeben, sowie durch die effektive Bandkante $E_g - \epsilon_\nu$ des entsprechenden Zustandes ν , die schon die mittlere Confinementenergie enthält. Um Wechselwirkung mit anderen Quasiteilchen oder Elektron-Elektron-Streuung Rechnung zu tragen ist hier eine phänomenologische nichtstrahlende Dephasierungsrate γ_0 eingeführt worden. Der Interbandübergang $P_{\nu, \mathbf{K}_\parallel}^{n,\sigma}$ koppelt mit seiner Oszillatorstärke $\gamma_\nu = \mu\varphi_\nu(r=0)$, die neben dem Betrag des Dipolmatrixelementes durch den Überlapp der Loch- und Elektronwellenfunktion bestimmt ist, an die entsprechende zirkulare Feldkomponente $E_T^{n,\sigma}(\mathbf{K}_\parallel, t) = \mathbf{e}_\sigma^* \mathbf{E}_T^n(\mathbf{K}_\parallel, t)$ am Ort des n-ten QF. Das Unordnungspoten-

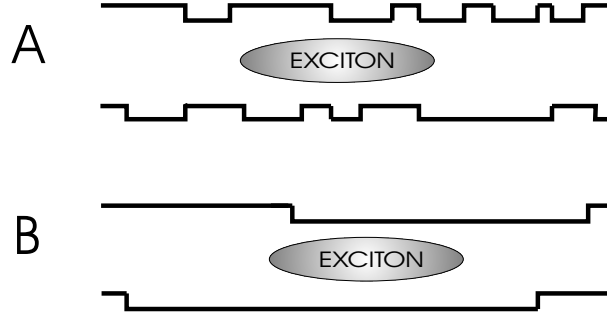


Abbildung 2.2: Exziton im Unordnungspotential, A: kleine Korrelationslänge gegenüber dem Exziton-Bohr-Radius $\lambda_c < a_0$, B: große Korrelationslänge $\lambda_c > a_0$

tial wird durch die Relativbewegung des Exzitons gemittelt:

$$U_{n,\mathbf{Q}_{\parallel}}^{\nu,\nu'} = \sum_{\mathbf{k}_{\parallel}} \varphi_{\nu}^*(\mathbf{k}_{\parallel}) \left(U_{\mathbf{Q}_{\parallel}}^{e,n} \varphi_{\nu'}(\mathbf{k}_{\parallel} - \frac{m_h}{M} \mathbf{Q}_{\parallel}) - U_{\mathbf{Q}_{\parallel}}^{h,n} \varphi_{\nu'}(\mathbf{k}_{\parallel} + \frac{m_e}{M} \mathbf{Q}_{\parallel}) \right) \quad (2.30)$$

Dies ist die Fouriertransformation des aus der Schrödinger-Gleichung für die Schwerpunktsbewegung des Exzitons im Ortsraum [14, 15] bekannten Mittelungsintegrals,

$$U^{\nu,\nu'}(\mathbf{R}_{\parallel}) = \int dA \varphi_{\nu}^* U^{e,n}(\mathbf{R}_{\parallel} + \frac{m_h}{M} \mathbf{r}_{\parallel}) \varphi_{\nu'}(\mathbf{R}_{\parallel}) - \int dA \varphi_{\nu}^*(\mathbf{R}_{\parallel}) U^{h,n}(\mathbf{R}_{\parallel} - \frac{m_e}{M} \mathbf{r}_{\parallel}) \varphi_{\nu'}(\mathbf{R}_{\parallel}), \quad (2.31)$$

mit dem die Polarisierung in Gl. 2.29 gefaltet wird.

Insbesondere bei kurzskaliger Unordnung im Vergleich zum Exziton-Bohr-Radius, $\varphi(\mathbf{r}_{\parallel}) \neq 0$ für $r < a_0$, ergeben sich hierdurch Abweichungen des effektiven zum ungemittelten Unordnungspotential. In optischen Spektren sind bei gleicher Streuung der Bandkantenenergien schmalere Linien bei kurzskaliger als bei langskaliger Unordnung zu erwarten. Berücksichtigt man die Massenverhältnisse in Gl. (2.30), (2.31), so ist die mit der Mittelung durch den inneren Freiheitsgrad des Exzitons verbundene Längenskala eher durch die De Broglie-Wellenlänge des Lochs gegeben, denn i.a. $m_e \ll M$ [70].

Im Frequenzraum kann Gl. (2.29) als Matrixgleichung geschrieben werden. Die gesamte Polarisierung zum Schwerpunktsimpuls \mathbf{K}_{\parallel} im QF n und zur zirkularen Polarisationsrichtung σ ,

$$P_{\mathbf{K}_{\parallel}}^{\sigma,n} = \sum_{\nu} \gamma_{\nu} P_{\nu,\mathbf{K}_{\parallel}}^{\sigma,n} \quad (2.32)$$

ist dann durch eine nichtlokale Suszeptibilität gegeben:

$$P_{\mathbf{K}_{\parallel}}^{\sigma,n}(\omega) = \sum_{\mathbf{Q}_{\parallel}} \chi(\mathbf{K}_{\parallel}, \mathbf{Q}_{\parallel}) \mathbf{e}_{\sigma}^* \mathbf{E}_T^n(\mathbf{Q}_{\parallel}, \omega), \quad (2.33)$$

wobei:

$$\chi(\mathbf{K}_{\parallel}, \mathbf{Q}_{\parallel}) = - \sum_{\nu, \nu'} \left(\delta_{\nu, \nu'} \delta_{\mathbf{K}_{\parallel}, \mathbf{Q}_{\parallel}} - \frac{1}{\Delta\Omega_{\nu, \mathbf{K}_{\parallel}}} U_{n, \mathbf{K}_{\parallel} - \mathbf{Q}_{\parallel}}^{\nu, \nu'} \right)^{-1} \frac{\gamma_{\nu} \gamma_{\nu'}^*}{\Delta\Omega_{\nu, \mathbf{Q}_{\parallel}}} \quad (2.34)$$

$\Delta\Omega_{\nu, \mathbf{K}_{\parallel}} = \omega - \Omega_{\nu, \mathbf{K}_{\parallel}} + i\gamma_0$ ist hier um die nichtstrahlende Dephasierungsrate γ_0 homogen verbreitert. Da die Streuung am Unordnungspotential neben den Unordnungsparametern auch vom energetischen Abstand der beteiligten Zustände abhängt, interagieren hier die nichtstrahlende Lebensdauer der Anregung und die Unordnung in nichttrivialer Weise. Durch die homogene Verbreiterung ist ein energetischer Überlapp der an einem Streuprozess beteiligten Zustände bestimmt.

Bisher wurde bis auf die Annahme der langsamen Veränderlichkeit auf der Skala einer Elementarzelle das Unordnungspotential nicht weiter spezifiziert. Um zu einer möglichst allgemeinen Beschreibung der Unordnung zu gelangen soll das Unordnungspotential durch statistische Angaben wie Korrelationslänge λ_c und Varianz σ^2 charakterisiert werden. Das Unordnungspotential ist hierbei zunächst für die jeweiligen Bänder gegeben. Es wird eine Gauß'sche Korrelationsfunktion $g_n^{\beta, \beta'}(\mathbf{R}_{\parallel}, \mathbf{R}'_{\parallel})$, $\beta \in \{e, h\}$, angenommen:

$$\begin{aligned} g_n^{\beta, \beta'}(\mathbf{R}_{\parallel}, \mathbf{R}'_{\parallel}) &= \langle U^{\beta, n}(\mathbf{R}_{\parallel}) U^{\beta, n}(\mathbf{R}'_{\parallel}) \rangle_{Konf} = \sigma_{e/h}^2 e^{-\lambda_c^2 (\mathbf{R}_{\parallel} - \mathbf{R}'_{\parallel})^2 / 2} \\ &= \tilde{g}^{\beta, \beta'}(\mathbf{R}_{\parallel} - \mathbf{R}'_{\parallel}) \end{aligned} \quad (2.35)$$

insbesondere $\tilde{g}_n^{\beta, \beta'}(0) = \sigma_{\beta}^2 \cdot \langle * \rangle_{Konf}$ bezeichnet hierbei einen Erwartungswert einer Konfigurationsmittelung. Bezüglich der Korrelation zwischen den Bändern, $\beta \neq \beta'$ gilt dann:

$$\tilde{g}^{\beta, \beta'}(\mathbf{R}_{\parallel}) = \begin{cases} 0, & \text{unkorreliert} \\ (-)\sigma_e \sigma_h e^{-\lambda_c^2 \mathbf{R}_{\parallel}^2 / 2}, & \text{(anti-)korreliert} \end{cases} \quad (2.36)$$

Weiterhin ist die Wahrscheinlichkeitsdichte $w_n^{\beta}(\omega)$ ein Maß dafür ob in einem Punkt \mathbf{R}_{\parallel} in der QF-Ebene eine Fluktuation zur Energie ω realisiert ist. Für diese soll im Folgenden eine Gaußverteilung angenommen werden. Wegen der räumlichen Homogenität der Korrelationsfunktion (Gl. (2.35)) hängt diese nicht vom Ort ab:

$$w_n^{\beta}(\omega) = \langle \delta(\omega - U^{\beta, n}(\mathbf{R}_{\parallel})) \rangle_{Konf} = 1 / \sqrt{2\pi\sigma_{\beta}^2} e^{-\omega^2 / \sigma_{\beta}^2 / 2}. \quad (2.37)$$

Falls alle n-Punkt-Korrelationsfunktionen in Produkte aus Zwei-Punkt-Korrelationsfunktionen zerfallen, läßt sich eine konkrete Realisierung von Unordnung in der QF-Ebene darstellen als [17, 18, 37]:

$$U^{\beta,n}(\mathbf{R}_{\parallel}) = \frac{1}{L} \sum_{\mathbf{k}_{\parallel}} \Phi(\mathbf{k}_{\parallel}) \sqrt{\tilde{g}_n^{\beta,\beta}(\mathbf{k}_{\parallel})} e^{i\mathbf{k}_{\parallel}\mathbf{R}_{\parallel}}. \quad (2.38)$$

$g^{\beta,\beta}(\mathbf{K}_{\parallel}, \mathbf{K}'_{\parallel}) = \delta_{\mathbf{K}_{\parallel}, -\mathbf{K}'_{\parallel}} \tilde{g}_n^{\beta,\beta}(\mathbf{K}_{\parallel})$ ist hierbei die Fourier-Transformation von $g_n^{\beta,\beta}(\mathbf{R}_{\parallel}, \mathbf{R}'_{\parallel})$ und enthält die statistische Charakterisierung durch Korrelationslänge und Varianz:

$$\tilde{g}_n^{\beta,\beta}(\mathbf{k}_{\parallel}) = \frac{2\pi}{L^2} (\lambda_c \sigma_{\beta})^2 e^{-\lambda_c^2 \mathbf{k}_{\parallel}^2 / 2}. \quad (2.39)$$

Φ ist eine δ -korrelierte Zufallsfunktion, $\langle \Phi(\mathbf{K}_{\parallel}) \rangle_{Konf} = 0$, $\langle \Phi^*(\mathbf{K}_{\parallel}) \Phi(\mathbf{K}'_{\parallel}) \rangle_{Konf} = \delta_{\mathbf{K}_{\parallel}, \mathbf{K}'_{\parallel}}$, mit Werten auf dem komplexen Einheitskreis. Da das Unordnungspotential im Ortsraum reell ist, muß außerdem gelten $\Phi^*(\mathbf{K}_{\parallel}) = \Phi(-\mathbf{K}_{\parallel})$ ¹.

Der Grenzfall weißen Rauschens $g(\mathbf{R}_{\parallel}, \mathbf{R}_{\parallel}) = \sigma^2 \delta(\mathbf{R}_{\parallel} - \mathbf{R}_{\parallel})$ mit entsprechendem $g(\mathbf{K}_{\parallel}, \mathbf{K}'_{\parallel}) = const.$ wird in Gl. (2.35) für $\lambda_c \rightarrow 0$ erreicht. Da jedoch das Überlappintegral Gl. 2.30 eine endliche Ausdehnung im Impulsraum besitzt, bleibt auch in diesem Grenzfall eine Abhängigkeit des effektiven Unordnungspotentials vom Impulsübertrag erhalten, so daß $U_{\mathbf{K}_{\parallel}}^{\nu,\nu'} = 0$ für $\mathbf{K}_{\parallel} \rightarrow \infty$. Die Faltung des Unordnungspotentials mit dem Überlapp der Wellenfunktionen kann daher als effektive Korrelationsfunktion für die Schwerpunktsbewegung angesehen werden. Der entgegengesetzte Grenzfall wird für $\lambda_c \rightarrow \infty$ realisiert. Mit $g(\mathbf{R}_{\parallel}, \mathbf{R}'_{\parallel}) = \sigma^2$ ist dann die Unordnung diagonal im Impuls $U_{\mathbf{K}_{\parallel} - \mathbf{K}'_{\parallel}}^{\nu,\nu'} = \delta_{\nu,\nu'} \delta_{\mathbf{K}_{\parallel}, \mathbf{K}'_{\parallel}} U_0$ und die Abhängigkeit von der Schwerpunktskoordinate wird parametrisch. Wie bei einem klassischen Teilchen ist die Energie des Exzitons dann durch die potentielle Energie der vorliegenden Unordnungsrealisierung U_0 gegeben. Das Exziton ist derart großen Wachstumsinseln ausgesetzt, daß für seine Bewegung wieder Translationsinvarianz besteht. Als Konsequenz ist auch die Propagation des Lichtfeldes diagonal in der Projektion des Wellenvektors auf die QF-Ebene. Dieser Grenzfall soll hier als klassischer Limes bezeichnet werden.

¹Zeige, daß für die Unordnungsrealisierung Gl. (2.35) gilt:

$$\begin{aligned} \langle U(\mathbf{R}_{\parallel}) U(\mathbf{R}'_{\parallel}) \rangle_{Konf} &= \frac{1}{L^2} \sum_{\mathbf{K}_{\parallel}, \mathbf{K}'_{\parallel}} \langle \Phi(\mathbf{K}_{\parallel}) \Phi(\mathbf{K}'_{\parallel}) \rangle_{Konf} \sqrt{\tilde{g}(\mathbf{K}_{\parallel}) \tilde{g}(\mathbf{K}'_{\parallel})} e^{i(\mathbf{K}_{\parallel}\mathbf{R}_{\parallel} + \mathbf{K}'_{\parallel}\mathbf{R}'_{\parallel})} \\ &= \frac{1}{L^2} \sum_{\mathbf{K}_{\parallel}, \mathbf{K}'_{\parallel}} \delta_{\mathbf{K}_{\parallel}, -\mathbf{K}'_{\parallel}} \tilde{g}(\mathbf{K}_{\parallel}) e^{i\mathbf{K}_{\parallel}(\mathbf{R}_{\parallel} - \mathbf{R}'_{\parallel})} = \tilde{g}(\mathbf{R}_{\parallel} - \mathbf{R}'_{\parallel}) \end{aligned}$$

In die Bewegungsgleichung Gl. (2.29) geht die Differenz der Unordnungspotentiale in den Bändern ein als Variation der Bandkante. Für diese gilt mit Gl. (2.35), (2.36):

$$\begin{aligned} & \langle (U^{e,n}(\mathbf{R}_{\parallel}) - U^{h,n}(\mathbf{R}_{\parallel})) (U^{e,n}(\mathbf{R}'_{\parallel}) - U^{h,n}(\mathbf{R}'_{\parallel})) \rangle_{Konf} \\ &= e^{-(\mathbf{R}_{\parallel} - \mathbf{R}'_{\parallel})^2 / \lambda_c^2 / 2} \begin{cases} \sigma_e^2 + \sigma_h^2 & , \text{unkorreliert} \\ (\sigma_e + \sigma_h)^2 & , \text{antikorreliert} \\ (\sigma_e - \sigma_h)^2 & , \text{korreliert} \end{cases} \end{aligned} \quad (2.40)$$

Da hier insbesondere für dimensionsreduzierte Systeme spezifische Formen von Unordnung, Grenzflächenrauhheit und Legierungsfluktuationen, untersucht werden sollen, werden im folgenden antikorrelierte Unordnungspotentiale für die Bänder angenommen. Die Bandkante fluktuiert dann mit der Varianz $\sigma^2 = (\sigma_e + \sigma_h)^2$, welche die inhomogene Breite von optischen Resonanzen bestimmt. Im Falle von Grenzflächenrauhheit können die Beiträge der Bänder aus der Variation der Filmstärke und den daraus folgenden Fluktuationen der Bandkanten bestimmt werden. Eine Variation $L_z(\mathbf{R}_{\parallel})$ der Filmstärke L_z ergibt in erster Ordnung einer Taylor-Entwicklung der Confinementenergie E_{Conf} um die mittlere Filmstärke \bar{L}_z bei unendlich hohen Barrieren:

$$U^{\beta,n}(\mathbf{R}_{\parallel}) = (L_z(\mathbf{R}_{\parallel}) - \bar{L}_z) \frac{dE_{Conf}}{dL_z} \propto \frac{1}{m_{\beta}}, \quad (2.41)$$

so daß $\sigma_e = m_h/M\sigma$, $\sigma_h = m_e/M\sigma$. Legierungsfluktuationen dagegen wirken sich auf die Höhe des Confinementpotentials aus und geben daher Anlaß, die Unordnung nach dem Bandkantendiskontinuität auf Elektronen und Löcher zu verteilen, $\sigma_e = V_e/\Delta E_g \sigma$, $\sigma_h = V_h/\Delta E_g \sigma$, wobei die Differenz der Bandkantenenergien von QF- und Barrierenmaterial die Summe der Confinementpotentiale in den Bändern $V_{e/h}$ bestimmt, $\Delta E_g = E_g^{Barriere} - E_g^{QF} = V_e + V_h$.

Das effektive Unordnungspotential, das auf die Exzitonen wirkt, ist jedoch nicht allein durch die Unordnungsrealisierung in den Bändern gegeben, sondern wird noch durch die Relativbewegung gemittelt Gl. (2.30). Dies hat insbesondere Konsequenzen für kleine Korrelationslängen. Fig. 2.3 zeigt die Ueberlappintegrale für den Elektron- und den Lochbeitrag zum effektiven Unordnungspotential. Da für GaAs-Parameter [71] $m_e \ll M$ und $m_h \approx M$ fällt der Beitrag durch die Löcher nur sehr langsam mit wachsendem Impulsübertrag ab. Dies hat eine stärkere Lokalisierung der Löcher gegenüber der Leitungselektronen durch die Unordnung zur Folge.

Im effektiven Unordnungspotential, welches in Gl. (2.29), (2.33) eingeht, wird die Abhängigkeit vom Impulsübertrag neben dem Überlappintegral durch die

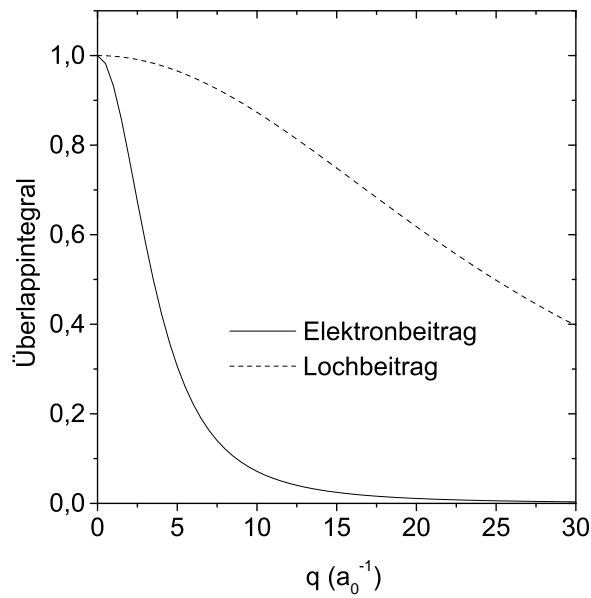


Abbildung 2.3: Überlappintegral $\sum_{\mathbf{k}_{\parallel}} \varphi_{1s}^*(\mathbf{k}_{\parallel}) \varphi_{1s}(\mathbf{k}_{\parallel} \pm \frac{m_e/h}{M} q)$ für den Elektronbeitrag zum effektiven Unordnungspotential (m_h) und den Lochbeitrag (m_e)

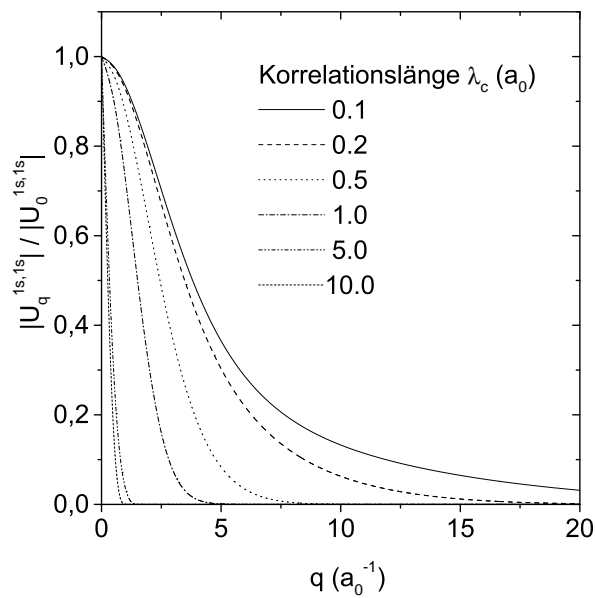


Abbildung 2.4: Betrag des effektiven Unordnungspotentials, das durch die Relativbewegung des Exzitons gemittelt wird

Korrelationsfunktion $\propto \exp(-\lambda_c^2 q^2/2)$ bestimmt. Bei kleiner Korrelationslänge im Vergleich zum Exziton-Bohr-Radius ist diese annähernd konstant, und das Abschneiden bei großem Impulsübertrag erfolgt durch das Überlappintegral. In Fig. 2.4 ist der Betrag des Unordnungspotentials in Abhängigkeit vom übertragenen Impuls für Grenzflächenrauhigkeit dargestellt, d.h. Elektronen und Löcher tragen invers proportional zu ihren Massen bei. Für kleine Korrelationslängen bewirken die Löcher durch ihre Lokalisierung, daß das Unordnungspotential auch für große Werte für den übertragenen Impuls q nicht verschwindet. Dies bedeutet für die Exzitonen Streuung über einen weiten Impulsbereich. Bei großer Korrelationslänge dagegen dominiert die Korrelationsfunktion die Abhängigkeit vom Impuls. Das effektive Unordnungspotential strebt gegen $\delta(q)$ für wachsende Korrelationslänge im Vergleich zum Bohr-Radius des Exzitons. Diese Situation entspricht großen Wachstumsinseln, die zwar jeweils durch die variierenden Filmbreiten verschiedene Übergangsenergien besitzen, jedoch kaum zu einer Streuung der Exzitonen führen. In diesem klassischen Grenzfall, $\lambda_c \rightarrow \infty$, kann das System als ein Ensemble energetisch verschobener idealer Exzitonen beschrieben werden. Die Suszeptibilität spiegelt dann die Verteilungsfunktion für die Potentialfluktuationen wider.

2.3.2 Gemittelte Suszeptibilität

Die lineare optische Antwort des Systems wird durch die Suszeptibilität Gl. (2.34) beschrieben. Ist das System von genügender Größe, so können die Observablen in einem optischen Experiment als selbstmittelnd angesehen werden. Die beobachteten Felder stellen dann schon konfigurationsgemittelte Größen dar. Es gibt jedoch Experimente, die durch geeignete Wahl der Anregungsbedingungen wie z.B. sehr kleiner Strahldurchmesser in einem Fernfeldexperiment oder Nahfeldanregung, sensitiv für die im optisch angeregten Teil der Probe vorhandene Unordnungsrealisierung sind. Die RRS ist ein intrinsisch nicht selbstmittelndes Experiment, da die Abweichung der gestreuten Intensität vom Mittelwert in der gleichen Größenordnung liegt, wie der Erwartungswert selbst [72, 25, 24]. Die Observablen in einem solchen Experiment stellen dann keine konfigurationsgemittelten Größen dar.

Innerhalb der “Linear Dispersion Theory” (LDT) [5] wird die Propagation durch die Lösung einer skalaren Wellengleichung beschrieben, wobei die Materialantwort durch eine gemittelte Suszeptibilität modelliert wird. Diese kann aus gemessenen Spektren gewonnen werden [38] oder es wird phänomenologisch eine Linienform angenommen [73]. Die gemittelte Suszeptibilität kann hier im Rahmen einer mikroskopischen Theorie berechnet werden.

Die konfigurationsgemittelte Polarisation im Ortsraum läßt sich mit Gl. (2.34) schreiben als:

$$\langle P^{\sigma,n}(\mathbf{R}_{\parallel}) \rangle_{Konf} = \int_{L^2} d^2 R' \langle \chi^n(\mathbf{R}_{\parallel}, \mathbf{R}'_{\parallel}) \mathbf{e}_{\sigma}^* \mathbf{E}_T^n(\mathbf{R}'_{\parallel}) \rangle_{Konf} \quad (2.42)$$

Die Reduzierung der Propagation auf ein skalares Problem entspricht in Gl. (2.42) einer Faktorisierung der Konfigurationsmittelung im Sinne eines statistischen Erwartungswertes:

$$\langle P^{\sigma,n}(\mathbf{R}_{\parallel}) \rangle_{Konf} = \int_{L^2} d^2 R' \langle \chi^n(\mathbf{R}_{\parallel}, \mathbf{R}'_{\parallel}) \rangle_{Konf} \langle \mathbf{e}_{\sigma}^* \mathbf{E}_T^n(\mathbf{R}'_{\parallel}) \rangle_{Konf} \quad (2.43)$$

Diese Faktorisierung ist dann exakt, wenn das Feld und die Materialantwort statistisch unabhängige Zufallsvariablen sind. Im Allgemeinen jedoch besitzt das Feld als Folge der Propagationseffekte eine funktionale Abhängigkeit von der induzierten Polarisation, $E = E\{P\}$ und damit von der Suszeptibilität, sowie $P = P\{E\}$. Es bleibt also zu prüfen, inwieweit diese Näherung Gültigkeit besitzt. Für ein selbstmittelndes System $\lambda_c \ll L$, kann die Konfigurationsmittelung durch ein Integral ersetzt werden, $\langle * \rangle_{Konf} \rightarrow \int \frac{d^D x}{L^D} * [17]$. Damit ist mit

$$\int d^2 R' \langle \chi(\mathbf{R}_{\parallel}, \mathbf{R}'_{\parallel}) \rangle_{Konf} = \int d^2 R d^2 R' \chi(\mathbf{R}_{\parallel}, \mathbf{R}'_{\parallel}) = \chi(\mathbf{K}_{\parallel} = 0, \mathbf{K}'_{\parallel} = 0) \quad (2.44)$$

für Propagation in Wachstumsrichtung eine konfigurationsgemittelte Suszeptibilität definiert. Die Streuung der Impulskomponenten des elektrischen Feldes durch die Wechselwirkung mit dem Exziton im Unordnungspotential wird hier in der Propagation vernachlässigt und das optische Feld kann durch eine skalare Wellengleichung für die jeweilige Polarisationsrichtung $\mathbf{e}_{\sigma}^* \langle \mathbf{E}_T \rangle_{Konf}$ beschrieben werden.

Die gemittelte Suszeptibilität kann hier durch Lösen von Gl. (2.34) aus einer mikroskopischen Theorie berechnet werden. Fig. 2.5 zeigt den Imaginärteil der konfigurationsgemittelten Suszeptibilität in Abhängigkeit von der Varianz (a) und der Korrelationslänge (b). Für resonante Anregung am Exziton ist hierbei nur der $1s$ -Zustand berücksichtigt. Bei kleinen Korrelationslängen ergibt sich eine asymmetrische Linienform, mit exponentiellen Flanken. Die niederenergetische Seite fällt dabei steiler ab als die hochenergetische. Unterhalb der mittleren Exzitonenergie tragen insbesondere tiefliegende, lokalisierte Zustände bei. Neben der asymmetrischen Linienform zeigt sich daher eine zunehmende Rotverschiebung des Maximums für zunehmende Unordnungsstärke σ , da sich die Wahrscheinlichkeit für das Vorliegen dieser Zustände erhöht. Die hochenergetische Flanke ist von dem abnehmendem Überlapp ausgedehnter Zustände mit der Beobachtungs- und Anregungsrichtung bei $\mathbf{K}_{\parallel} = 0$ geprägt.

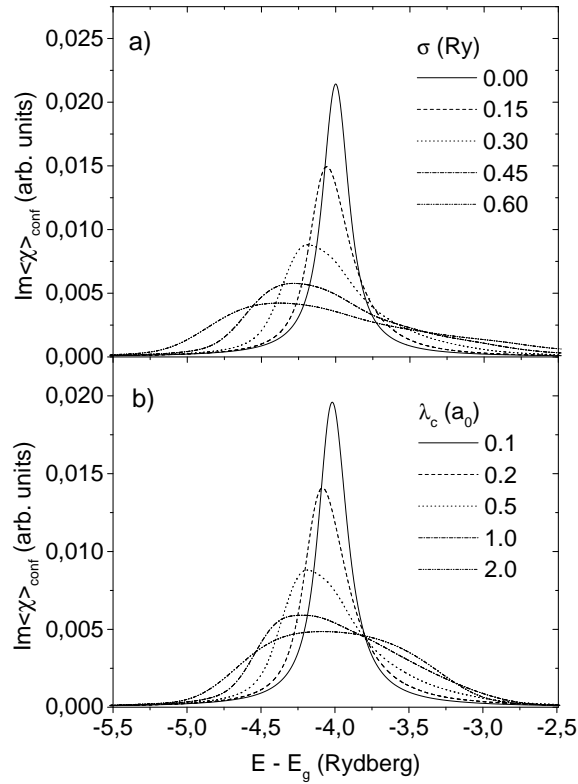


Abbildung 2.5: Imaginärteil der konfigurationsgemittelten Suszeptibilität, a) für wachsende Varianz des Unordnungspotentials σ und $\lambda_c = 0.5 a_0$, b) für zunehmende Korrelationslänge λ_c und fester Varianz $\sigma = 0.30 Ry$

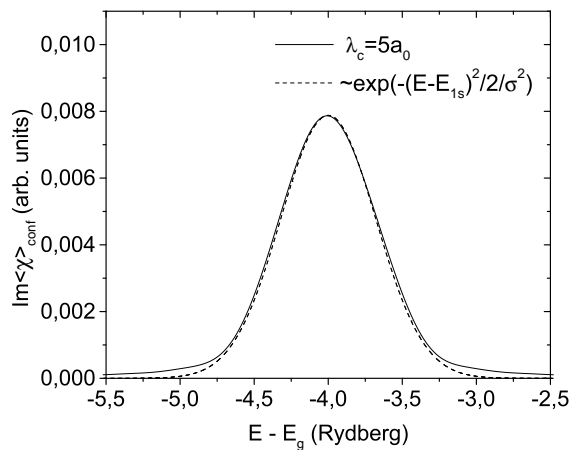


Abbildung 2.6: Imaginärteil der berechneten konfigurationsgemittelten Suszeptibilität im Vergleich zur Suszeptibilität im klassischen Limes und $\gamma_0 \rightarrow 0$

Die Linienbreite der Suszeptibilität verringert sich bei fester Varianz mit abnehmender Korrelationslänge (s. Fig. 2.5b). Während bei großer Korrelationslänge das Exziton ausgedehnten Wachstumsinseln ausgesetzt ist, die einer bestimmten Confinementenergie entsprechen, führt die zunehmende Mittelung durch die Relativbewegung bei abnehmender Korrelationslänge zu einer Abnahme der Linienbreite. Gleichzeitig nimmt die Asymmetrie der Linienform als Signatur der Koexistenz tief lokalisierter und ausgedehnter Zustände zu.

Im klassischen Limes zeigt die Suszeptibilität die Verteilung (vgl. Gl. (2.37)) der Übergangsenergien. Für ein um $\bar{\omega}_{1s}$ Gaussförmig inhomogen verbreitertes Ensemble von 1s-Exzitonen gilt mit $\gamma_0 \rightarrow 0$:

$$\text{Im}\langle\chi(\omega)\rangle_{Konf} = \text{Im}\left(\int \frac{d\omega_{1s}}{\sigma\sqrt{2\pi}} \frac{|\gamma_{1s}|^2 e^{-(\omega_{1s}-\bar{\omega}_{1s})^2/2/\sigma^2}}{\omega + i\gamma_0 - \omega_{1s}}\right) \approx \frac{|\gamma_{1s}|^2}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-(\omega-\bar{\omega}_{1s})^2/2/\sigma^2} \quad (2.45)$$

Dieser Grenzfall ist für die hier gewählten Parameter bei $\lambda_c \geq 5a_0$ schon in guter Näherung erreicht, wie der Vergleich mit der Verteilungsfunktion in Fig. 2.6 zeigt. Die Abweichungen an den Flanken sind auf die homogene Hintergrunddämpfung $\gamma_0 = 0.1Ry$ zurückzuführen, die zu Lorentzförmigen Ausläufern führt. Für Korrelationslängen $\lambda_c \geq 5a_0$ sollte also die Faktorisierung Gl. (2.43) gültig sein, so daß die LDT eine gute Näherung ist.

2.4 Propagation in Heterostrukturen

Um Observablen wie Transmission, Reflexion und Absorption für beliebige Vielschichtstrukturen wie z.B. Mikroresonatoren oder MQF zu berechnen wird in diesem Kapitel eine verallgemeinerte Transfermatrixmethode entwickelt, die dem nichtlokalen Problem in Anwesenheit von Unordnung angepaßt ist.

2.4.1 Quantenfilme als optisch aktive Schichten

Das elektrische Feld Gl. (2.25), (2.26) in der n-ten Barriere kann in vor- und rücklaufende Komponenten zu den Polarisationsrichtungen senkrecht (s) und parallel (p) zur Einfallsebene, die durch die Wachstumsrichtung und die Propagationsrichtung mit dem Wellenvektor \mathbf{K} definiert ist, zerlegt werden,

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_T(\mathbf{K}_{\parallel}, z, \omega) &= \tilde{E}_{n,\mathbf{K}_{\parallel}}^{s,+} e^{i\kappa z} \mathbf{e}_s^+ + \tilde{E}_{n,\mathbf{K}_{\parallel}}^{s,-} e^{-i\kappa z} \mathbf{e}_s^- \\ &+ \tilde{E}_{n,\mathbf{K}_{\parallel}}^{p,+} e^{i\kappa z} \mathbf{e}_p^+ + \tilde{E}_{n,\mathbf{K}_{\parallel}}^{p,-} e^{-i\kappa z} \mathbf{e}_p^-, \end{aligned} \quad (2.46)$$

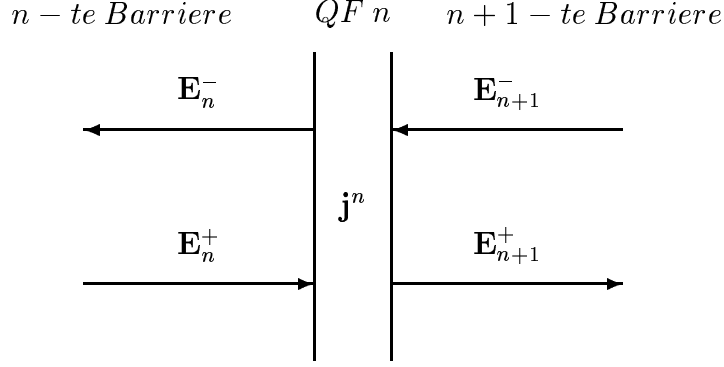


Abbildung 2.7: Vor- und rücklaufende Felder am n-ten QF

die jeweils Lösungen der homogenen Wellengleichung zu Gl. (2.23) darstellen. Hierbei wurden die nicht propagierenden Anteile des elektrischen Feldes $\propto \exp(-K|z - z_m|)$ in Gl. (2.25), (2.26) vernachlässigt, da sie vom QF exponentiell abfallen und nicht zum detektierten Signal im Fernfeld beitragen. Auch die Beiträge $\propto \exp(i\kappa|z - z_m|)$ enthalten evaneszente Moden für $K = |\mathbf{K}_\parallel| > k$, denn $\kappa = \sqrt{k^2 - K^2}$. Diese erfüllen zwar die homogene Wellengleichung für die Propagation innerhalb der Barrieren, tragen jedoch auch im Fernfeld nicht bei. Mit $\mathbf{K} = (K \cos \varphi, K \sin \varphi, \pm \kappa)$ können die Einheitsvektoren für die Polarisationsrichtungen geschrieben werden als:

$$\begin{aligned} \mathbf{e}_p^+ &= (\cos \theta \cos \varphi, \cos \theta \sin \varphi, -\sin \theta) \\ \mathbf{e}_p^- &= (\cos \theta \cos \varphi, \cos \theta \sin \varphi, \sin \theta) \\ \mathbf{e}_s^\pm &= (-\sin \varphi, \cos \varphi, 0), \end{aligned} \quad (2.47)$$

wobei $\cos \theta = \kappa/k$ und $\sin \theta = K/k$, $K = |\mathbf{K}_\parallel|$. An der Position z_n des n-ten QF müssen die Koeffizienten den Stetigkeitsbedingungen

$$\tilde{E}_{n,\mathbf{K}_\parallel}^{s/p,\pm} = \tilde{E}_{n+1,\mathbf{K}_\parallel}^{s/p,\pm} \pm \frac{2\pi\omega}{c_0^2\kappa} e^{\mp i\kappa z_n} \mathbf{e}_{s/p}^\pm \cdot \mathbf{j}_{\mathbf{K}_\parallel}^n \quad (2.48)$$

genügen. Diese Gleichungen beschreiben den Übergang des optischen Feldes von Barriere n durch den QF n zur Barriere n+1.

Da sich der Interbandstrom mit Gl. (2.33), (2.34), (2.28), (2.17) schreiben läßt als:

$$\begin{aligned} \mathbf{j}^n(\mathbf{K}_\parallel, \omega) &= -i\omega \sum_{\sigma} P_{\mathbf{K}_\parallel}^{\sigma,n} \mathbf{e}_\sigma \\ &= -i\omega \sum_{\sigma} \sum_{\mathbf{K}'_\parallel} \chi(\mathbf{K}_\parallel, \mathbf{K}'_\parallel) (\mathbf{e}_\sigma^* \mathbf{E}_T^n(\mathbf{K}'_\parallel, \omega)) \mathbf{e}_\sigma \end{aligned} \quad (2.49)$$

stellt Gl. (2.48) eine Integralgleichungen für die verschiedenen Feldkomponenten dar:

$$\tilde{E}_{n,\mathbf{K}_{\parallel}}^{\gamma,\epsilon} = \tilde{E}_{n+1,\mathbf{K}_{\parallel}}^{\gamma,\epsilon} + \sum_{\mathbf{K}'_{\parallel}} \sum_{\gamma'=s,p} \sum_{\epsilon'=\pm,-} \Gamma_{\gamma,\gamma'}^{\epsilon,\epsilon'}(K, K') \chi(\mathbf{K}_{\parallel}, \mathbf{K}'_{\parallel}) \tilde{E}_{n+1,\mathbf{K}'_{\parallel}}^{\gamma',\epsilon'} \quad (2.50)$$

Hierbei ist $\mathbf{K}_{\parallel} = \{K, \varphi_K\}$, $\varphi_{K,Q} = \varphi_K - \varphi_Q$,

$$\Gamma_{s/p,s/p}^{\pm,\pm}(K, K') = \frac{2\pi k^2}{\epsilon_b} \cdot \begin{cases} -\frac{1}{i\kappa} \cos \varphi_{K,K'}, & (s, s) \\ +\frac{1}{i\kappa} \sin \varphi_{K,K'} \frac{\kappa'}{k}, & (s, p) \\ -\frac{1}{ik} \sin \varphi_{K,K'}, & (p, s) \\ -\frac{1}{ik} \cos \varphi_{K,K'} \frac{\kappa'}{k}, & (p, p) \end{cases} \cdot \begin{cases} -e^{i(\kappa'-\kappa)z_n}, & (+, +) \\ -e^{-i(\kappa'+\kappa)z_n}, & (+, -) \\ +e^{i(\kappa'+\kappa)z_n}, & (-, +) \\ +e^{-i(\kappa'-\kappa)z_n}, & (-, -) \end{cases} \quad (2.51)$$

Diese Gleichungen können mit Hilfe einer Diskretisierung des Impulsraumes als Matrixgleichung formuliert werden [27]. Ist \mathcal{E}_n^{\pm} der Vektor mit den Komponenten $\tilde{E}_{n,\alpha}^{\pm}$ bezüglich des Multiindex $\alpha = \{s/p, \mathbf{K}_{\parallel}\}$, so ergibt sich am QF n eine Übergangsgleichung der Struktur:

$$\begin{pmatrix} \mathcal{E}_n^+ \\ \mathcal{E}_n^- \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \mathcal{S}_n^{++} & \mathcal{S}_n^{+-} \\ \mathcal{S}_n^{-+} & \mathcal{S}_n^{--} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \mathcal{E}_{n+1}^+ \\ \mathcal{E}_{n+1}^- \end{pmatrix} \quad (2.52)$$

Aufgrund der Streuung am Unordnungspotential, das zunächst nur auf die Exzitonen im QF wirkt, führt die nichtlokale Suszeptibilität Gl. (2.34) zu einer Mischung der Feldkomponenten bezüglich des Wellenvektors. Im Einklang mit der Forderung nach Drehimpulserhaltung auf mikroskopischer Skala durch langwellige Unordnung im Vergleich zur Einheitszelle des Kristalls, werden die Polarisationsrichtungen nicht miteinander gekoppelt. Die Vermischung der Polarisationsrichtungen in Gl. (2.50) ist nur scheinbar und resultiert lediglich aus der Wahl der Einheitsvektoren für s/p-Polarisation bezüglich der Ausbreitungsrichtung.

Die in optischen Experimenten zugänglichen Observablen sind von der Probe ausgehende elektromagnetische Feldintensitäten. Obwohl das Exziton durch das Unordnungspotential die Rotationssymmetrie um die Wachstumsrichtung bricht, ist nicht anzunehmen, daß die Felder und damit das gemessene Signal vom Azimutwinkel φ abhängt, $\mathbf{E}_T(\mathbf{K}_{\parallel}, z, \omega) = \mathbf{E}_T(K, z, \omega)$. Die Winkelstreuung in Zustände mit dem gleichen Betrag des Wellenvektors erfolgt im Vergleich zur Streuung zwischen verschiedenen Beträgen instantan [74]. Daher kann die nichtlokale Suszeptibilität $\chi(\mathbf{K}_{\parallel}, \mathbf{K}'_{\parallel})$ durch eine winkelgemittelte Antwortfunktion, $\bar{\chi}(K, K') = \frac{1}{(2\pi)^2} \int d\varphi d\varphi' \chi(K, \varphi, K', \varphi')$, ersetzt werden. Mit der Wahl

$\mathbf{e}_p^+ = \cos \theta \mathbf{e}_x - \sin \theta \mathbf{e}_z$, $\mathbf{e}_p^- = \cos \theta \mathbf{e}_x + \sin \theta \mathbf{e}_z$, $\mathbf{e}_s^\pm = \mathbf{e}_y$ ergibt sich dann aus Gl. (2.50):

$$\tilde{E}_{n,K}^{\gamma,\epsilon} = \tilde{E}_{n+1,K}^{\gamma,\epsilon} + \sum_{K'} \sum_{\epsilon' = +, -} \Gamma_{\gamma}^{\epsilon,\epsilon'}(K, K') \bar{\chi}(K, K') \tilde{E}_{n+1,K'}^{\gamma,\epsilon'} \quad (2.53)$$

mit $\Gamma_{\gamma}^{\epsilon,\epsilon'}(K, K') = \delta_{\gamma,\gamma'} \Gamma_{\gamma,\gamma'}^{\epsilon,\epsilon'}(K, K')$.

2.4.2 Strahlende Lebensdauer im Einzelquantenfilm

Um einige grundlegende Aspekte der strahlenden Kopplung zu diskutieren soll hier Gl. (2.50) für einen SQF gelöst werden, der in einem unendlichen Halbleitermedium eingebettet ist. Der Bruch der Translationsinvarianz in Wachstumsrichtung eröffnet einen strahlenden Zerfallskanal, da die optischen Übergänge mit einem Kontinuum photonischer Zustände wechselwirken können. Strahlende Zerfallszeiten von einigen ps wurden vorhergesagt [1, 2, 3] im Gegensatz zu einigen ns im Volumenmaterial. Allerdings ist die strahlende Zerfallsrate in Halbleiter Heterostrukturen durch die Phasenfaktoren in Gl. (2.50) stark von der Geometrie abhängig, die Renormierung der Exzitonenergie i.a. komplex, d.h. es können energetische Verschiebungen und Verbreiterungen auftreten. In einer Bragg-Struktur z.B., ein MQF der Filmanzahl N mit einer Periode von $\lambda/2$, wobei λ die Wellenlänge des angeregten optischen Übergangs ist, formiert sich als Folge der kohärenten Kopplung eine superradiante Mode, die eine N -fache strahlende Verbreiterung im Vergleich zum SQF besitzt [45]. Die Abhängigkeit der strahlenden Renormierung wurde in der Vergangenheit in linearen und nicht-linearen Experimenten eingehend untersucht, und die theoretischen Vorhersagen bestätigt [46, 75, 76, 77] Aber auch die dielektrische Umgebung, insbesondere die Grenzfläche zwischen der Luft und dem Halbleitermaterial, die bei realen Proben stets vorhanden ist, haben einen Einfluß auf die strahlende Energierenormierung [58, 57, 4]. Durch den großen Brechungsindexunterschied und die daraus resultierende hohe Reflektivität wird ein hoher Anteil der vom QF rücklaufenden Felder mit einer der Dicke der Deckschicht entsprechenden Phase in die Struktur rückgekoppelt, wodurch die strahlende Lebensdauer ähnlich wie bei MQF beeinflusst wird. Daher ist neben den Materialparametern die genaue Geometrie der Struktur wichtig bei der Beschreibung kohärenter Effekte.

In Abwesenheit von Unordnung erhält die Suszeptibilität in Gl. (2.50) die aus der Elliot-Formel [51] bekannte Gestalt:

$$\chi(\mathbf{K}_{\parallel}, \mathbf{K}'_{\parallel}) = \delta_{\mathbf{K}_{\parallel}, \mathbf{K}'_{\parallel}} \chi_{\mathbf{K}_{\parallel}} = -\delta_{\mathbf{K}_{\parallel}, \mathbf{K}'_{\parallel}} \sum_{\nu} \frac{|\gamma_{\nu}|^2}{\Delta \Omega_{\nu, \mathbf{K}_{\parallel}}} \quad (2.54)$$

Am Ort z_1 des SQF werden vor- und rücklaufende Felder der verschiedenen Polarisationsrichtungen durch eine Transfermatrix (vgl. Gl. (2.52)) beschrieben, die sich für den geordneten SQF vereinfacht zu:

$$\begin{pmatrix} \tilde{E}_{1,\mathbf{K}_{\parallel}}^{s/p,+} \\ \tilde{E}_{1,\mathbf{K}_{\parallel}}^{s/p,-} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 + \frac{\Gamma_{rad}^{s/p}}{\Delta\Omega_{\mathbf{K}_{\parallel}}} & \frac{\Gamma_{rad}^{s/p}}{\Delta\Omega_{\mathbf{K}_{\parallel}}} \\ -\frac{\Gamma_{rad}^{s/p}}{\Delta\Omega_{\mathbf{K}_{\parallel}}} & 1 - \frac{\Gamma_{rad}^{s/p}}{\Delta\Omega_{\mathbf{K}_{\parallel}}} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \tilde{E}_{2,\mathbf{K}_{\parallel}}^{s/p,+} \\ 0 \end{pmatrix} \quad (2.55)$$

Hierbei ist bei Beschränkung auf das 1s-Exziton $\Gamma_{rad}^s = \frac{k}{i\kappa}\Gamma_{rad}$, $\Gamma_{rad}^p = \frac{\kappa}{ik}\Gamma_{rad}$ und $\Gamma_{rad} = 2\pi k|\gamma_{1s}|^2/\epsilon_b$ die strahlende Verbreiterung beim SQF für senkrechten Einfall des Feldes².

Als Randbedingung wird hier eine in positive Wachstumsrichtung einfallende linear polarisierte optische Anregung $\tilde{E}_{1,\mathbf{K}_{\parallel}}^{s/p,+}$ angenommen, sowie $\tilde{E}_{2,\mathbf{K}_{\parallel}}^{s/p,-} = 0$, d.h. der QF wird nur von einer Seite aus angeregt. Für die beobachtbaren reflektierten $\tilde{E}_{1,\mathbf{K}_{\parallel}}^{s/p,-}$ und transmittierten Felder $\tilde{E}_{2,\mathbf{K}_{\parallel}}^{s/p,+}$ ergibt sich damit unmittelbar:

$$\tilde{E}_{2,\mathbf{K}_{\parallel}}^{s/p,+} = (S_1^{++})^{-1}\tilde{E}_{1,\mathbf{K}_{\parallel}}^{s/p,+} = \frac{1}{1 + \Gamma_{rad}^{s/p}\chi_{\mathbf{K}_{\parallel}}}\tilde{E}_{1,\mathbf{K}_{\parallel}}^{s/p,+} \quad (2.56)$$

$$\tilde{E}_{1,\mathbf{K}_{\parallel}}^{s/p,-} = S_1^{-+}(S_1^{++})^{-1}\tilde{E}_{1,\mathbf{K}_{\parallel}}^{s/p,+} = -\frac{\Gamma_{rad}^{s/p}\chi_{\mathbf{K}_{\parallel}}}{1 + \Gamma_{rad}^{s/p}\chi_{\mathbf{K}_{\parallel}}}\tilde{E}_{1,\mathbf{K}_{\parallel}}^{s/p,+} \quad (2.57)$$

Die komplexe Verschiebung der Polstellen durch die Strahlungskopplung, $\omega - E_g + \epsilon_{1s} - \frac{\mathbf{K}_{\parallel}^2}{2M} - \Gamma_{rad}^{s/p} = 0$, ist i.a. winkel- und polarisationsabhängig. Hieraus resultieren verschiedene Dispersionen für die s- und die p-Mode:

$$\omega^{s/p} = E_g - \epsilon_{1s} + \frac{\mathbf{K}_{\parallel}^2}{2M} + \Gamma_{rad}^{s/p} \quad (2.58)$$

Fig. 2.8 zeigt die Dispersion von s- und p-Mode für den in unendlichem Halbleitermaterial eingebetteten SQF im Vergleich zur parabolischen Schwerpunktsdispersion des Exzitons für GaAs-Parameter [71]. Bei $K = 0$ werden beide Moden mit Γ_{rad} strahlend gedämpft. Da hier für die nichtstrahlende Hintergrundverbreiterung $\gamma_0 = 0$ gewählt ist, verschwindet der Imaginärteil der Exzitonenergie. Für $K < k$ können beide Moden strahlend zerfallen, während die Dämpfung

²Die strahlende Zerfallsrate kann aus experimentell bestimmbaren Größen bestimmt werden und ist mit Hilfe der Longitudinal-Transversal-Aufspaltung von $\Delta_{LT} = 0.008meV$ für GaAs an der 1s-Exzitonresonanz durch $\Gamma_{rad} = \Delta_{LT} \frac{\hbar k}{4c} \frac{|\varphi_{2D}(r=0)|^2}{|\varphi_{3D}(r=0)|^2} = 0.058meV$ gegeben. In den hier verwendeten Einheiten ist $\Gamma_{rad} = 0.014Ry$. Dieser Wert ist in guter Übereinstimmung mit experimentellen Daten aus Messungen an SQF und Bragg-Strukturen [4].

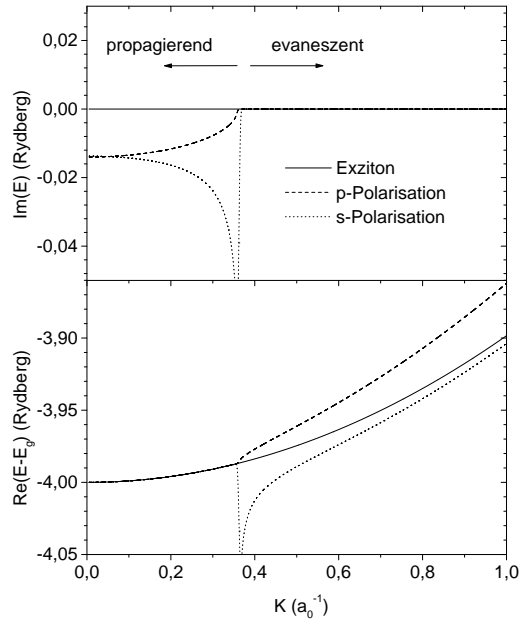


Abbildung 2.8: Real- und Imaginärteil der Dispersion für s- und p-Polarisationsrichtung, sowie die Schwerpunktsdispersion des Exzitons für GaAs-Parameter [71]

für $K > k$ verschwindet. Diese Wellenvektoren koppeln an evaneszente Moden des elektrischen Feldes, die keine Energie aus dem QF transportieren. Die Polstelle der s-Polarisation bei $K = k$ entspricht einer Oberflächenwelle, die sich entlang der QF-Ebene ausbreitet und stark gedämpft ist. Da der Feldvektor der p-Polarisation für $K = k$, $ka_0 = 0.36$ am Exziton, senkrecht zur QF-Ebene steht, gibt es hier keine entsprechende Resonanz, da die Projektion auf das Dipolmoment verschwindet.

Strahlende Verbreiterung und Verschiebung zeigen die Reflexionsspektren in Fig. 2.9 für Anregung des SQF mit s- bzw. p-polarisiertem Licht bei $K = 0.26a_0^{-1}$ im Vergleich zum Spektrum bei senkrechtem Einfall. Wie schon aus Fig. 2.8 zu sehen, besitzt die s-Mode bei endlichem K eine größere strahlende Verbreiterung gegenüber dem senkrechten Einfall, während sich der strahlende Zerfall der p-Mode verringert. Die Verschiebung erfolgt in beiden Fällen zu höheren Energien. Da jedoch bei realen Proben immer eine Grenzfläche zur Luft vorliegt ist es mit herkömmlichen Methoden der Fernfeldspektroskopie nicht möglich, optische Felder mit derart hoher Projektion K des Wellenvektors auf die QF-Ebene anzulegen. Die entsprechenden Komponenten sind in der Luft evaneszent und können nur innerhalb des Halbleitermaterials propagieren. Durch die Streuung der Exzitonen an einem Unordnungspotential können jedoch auch senkrecht propagieren-

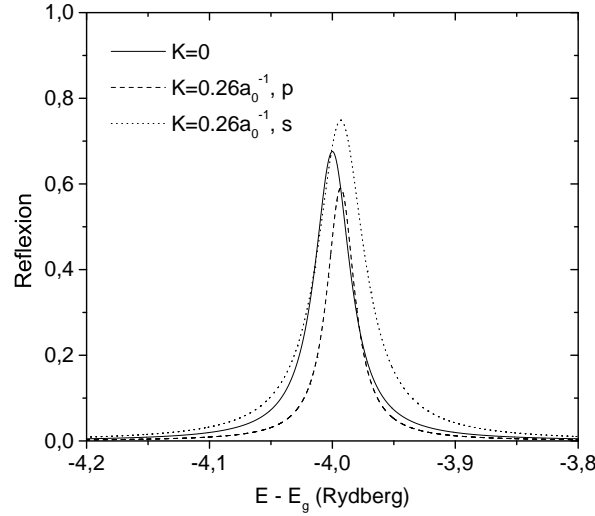


Abbildung 2.9: Reflexionsspektrum eines SQF unter senkrechtem Einfall ($K = 0$) und für s/p-Polarisation unter einem Winkel von 45° ($K = 0.26a_0^{-1}$)

de Felder durch die Wechselwirkung mit dem QF an diese Moden koppeln. Die Nahfeldmikroskopie bietet die Möglichkeit direkt solch hohe Impulskomponenten auf den QF zu bringen [78].

2.4.3 Optisch passive Grenzflächen

Um realistische Systeme zu simulieren, muß auch die Grenzfläche zwischen Luft und Halbleitermaterial mitberücksichtigt werden. Diese kann die optischen Eigenschaften kohärent gekoppelter Halbleiter-Heterostrukturen wesentlich beeinflussen [4]. In Mikroresonatoren werden durch sukzessives Aufwachsen von Halbleiterschichten unterschiedlichen Brechungsindex hochreflektive Spiegel realisiert. Auch hier ist die theoretische Beschreibung der vor- und rücklaufenden Komponenten des optischen Feldes nötig, um zu einer geschlossenen Darstellung zu gelangen.

Die Propagation der optischen Feldkomponenten von einer dielektrischen Schicht n mit Brechungsindex n_n , entsprechender Lichtgeschwindigkeit $c_n = c_0/n_n$ und Projektion auf die Wachstumsrichtung $\kappa_{n,K} = \sqrt{(\omega/c_n)^2 - K^2} = \sqrt{k_n^2 - K^2}$ in die Schicht $n + 1$ mit n_{n+1} , c_{n+1} , $\kappa_{n,K}$ läßt sich ähnlich dem QF (vgl. Gl. (2.52)) als Matrixgleichung formulieren,

$$\begin{pmatrix} \mathcal{E}_n^+ \\ \mathcal{E}_n^- \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \mathcal{T}_n^{++} & \mathcal{T}_n^{+-} \\ \mathcal{T}_n^{-+} & \mathcal{T}_n^{--} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \mathcal{E}_{n+1}^+ \\ \mathcal{E}_{n+1}^- \end{pmatrix}. \quad (2.59)$$

Die Transfermatrix ist gemäß der Fresnel-Formeln [79] diagonal im Wellenvektor und in den Polarisationsrichtungen, $\delta_{\alpha,\alpha'} = \delta_{\mathbf{K}_{\parallel},\mathbf{K}'_{\parallel}} \delta_{s/p,s/p}$:

$$\begin{aligned}
(\mathcal{T}_n^{++})_{\alpha,\alpha'} &= \frac{\delta_{\alpha,\alpha'}}{2\kappa_{n,K}} e^{i(\kappa_{n+1,K} - \kappa_{n,K})z_n} \begin{cases} (\kappa_{n,K} + \kappa_{n+1,K}) & , s \\ (\tilde{n}_n \kappa_{n+1,K} + \kappa_{n,K} / \tilde{n}_n) & , p \end{cases} \\
(\mathcal{T}_n^{+-})_{\alpha,\alpha'} &= \frac{\delta_{\alpha,\alpha'}}{2\kappa_{n,K}} e^{-i(\kappa_{n+1,K} + \kappa_{n,K})z_n} \begin{cases} (\kappa_{n,K} - \kappa_{n+1,K}) & , s \\ (\tilde{n}_n \kappa_{n+1,K} - \kappa_{n,K} / \tilde{n}_n) & , p \end{cases} \\
(\mathcal{T}_n^{-+})_{\alpha,\alpha'} &= \frac{\delta_{\alpha,\alpha'}}{2\kappa_{n,K}} e^{i(\kappa_{n+1,K} + \kappa_{n,K})z_n} \begin{cases} (\kappa_{n,K} - \kappa_{n+1,K}) & , s \\ (\tilde{n}_n \kappa_{n+1,K} - \kappa_{n,K} / \tilde{n}_n) & , p \end{cases} \\
(\mathcal{T}_n^{--})_{\alpha,\alpha'} &= \frac{\delta_{\alpha,\alpha'}}{2\kappa_{n,K}} e^{-i(\kappa_{n+1,K} - \kappa_{n,K})z_n} \begin{cases} (\kappa_{n,K} + \kappa_{n+1,K}) & , s \\ (\tilde{n}_n \kappa_{n+1,K} + \kappa_{n,K} / \tilde{n}_n) & , p \end{cases}
\end{aligned} \tag{2.60}$$

wobei $\tilde{n}_n = n_n / n_{n+1}$.

2.4.4 Konfigurationsmittelung und Observablen

Mit den in den vorigen Kapiteln eingeführten Transfermatrizen können nun Vielschichtstrukturen beschrieben werden. Die in einem optischen Experiment beobachtbaren Felder in der jeweils letzten Schicht in Transmissions- bzw. Reflexionsrichtung ergeben sich aus dem Produkt der Propagationsmatrizen für die verschiedenen Schichten,

$$\mathcal{S} = \prod_j \mathcal{T}_j \prod_i \mathcal{S}_i \prod_{\ell} \mathcal{T}_{\ell}. \tag{2.61}$$

Dieses Produkt kann sowohl Übergänge zwischen Schichten mit unterschiedlichem Brechungsindex beinhalten als auch QF mit optischen Resonanzen. So können die Matrizen \mathcal{T}_i z.B. die Bragg-Reflektoren eines Mikroresonators beschreiben, in dem sich QF (\mathcal{S}_i) befinden. Während die Transfermatrizen für die Grenzflächen zwar von den Brechungsindizes der Materialien, vom Einfallswinkel und von der Polarisationsrichtung abhängen sind sie jedoch diagonal im Wellenvektor. Dagegen führt die Streuung der Exzitonen an der Unordnung zu nicht verschwindenden Nichtdiagonalelementen für die Transfermatrizen der QF. Hierdurch können die optischen Felder am QF abgelenkt werden.

Falls das extern eingestrahle optische Feld \mathcal{E}_1^+ in positive Wachstumsrichtung propagiert und als weitere Randbedingung $\mathcal{E}_N^- = 0$, dann können die transmittier-

ten und reflektierten Felder aus der Produktmatrix Gl. (2.61) berechnet werden:

$$\begin{aligned}\mathcal{E}_N^+ &= \mathcal{S}_{++}^{-1} \cdot \mathcal{E}_1^+ \\ \mathcal{E}_1^- &= \mathcal{S}_{-+} \cdot \mathcal{S}_{++}^{-1} \cdot \mathcal{E}_1^+.\end{aligned}\quad (2.62)$$

Ist das System durch genügende Größe selbstmittelnd, so können die berechneten Felder als Lösung des vollen Vektorproblems schon als gemittelte Variablen angesehen werden. Im Allgemeinen hängen sie jedoch von der gegebenen Unordnungsrealisierung ab. Es werden hier also noch keine Annahmen hinsichtlich einer Konfigurationsmittelung gemacht.

Neben den Unordnungsparametern spielt auch die homogene Linienbreite eine Rolle hinsichtlich der Frage, ob ein ungeordnetes System selbstmittelnd ist. Diese setzt sich aus strahlendem und nichtstrahlendem Beitrag zusammen. Während der strahlende Zerfall durch die Materialparameter und die Geometrie einer Probe bestimmt ist, läßt sich die nichtstrahlende Dephasierungsrate durch die Anregungsbedingungen beeinflussen. Durch geringe Anregungsintensitäten kann das anregungsinduzierte Dephasieren durch Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung unterdrückt werden. Niedrige Temperaturen verringern die Dämpfung aufgrund der Wechselwirkung mit Phononen. Durch die nichtstrahlende Dephasierungsrate γ_0 ist jedoch neben dem Term für die kinetische Energie der Exzitonen eine weitere Energieskala gegeben, mit der das Unordnungspotential in der Bewegungsgleichung Gl. (2.29) verglichen wird.

In der LDT-Näherung kann die skalare Propagation mit Hilfe herkömmlicher 4×4 Transfermatrizen T_j beschrieben werden,

$$S_{LDT} = \prod_j T_j \prod_i \langle \mathcal{S}_i \rangle_{Konf} \prod_\ell T_\ell, \quad (2.63)$$

wobei $\langle \mathcal{S}_i \rangle_{Konf}$ im Wesentlichen durch die konfigurationsgemittelte Suszeptibilität des QF i gegeben ist. Bei senkrechtem Einfall des externen Laserfeldes und linearer Polarisation, $\tilde{E}_{1,\mathbf{K}_\parallel}^{s/p,+} = E_0 \delta_{\mathbf{K}_\parallel,0}$, $\tilde{E}_{1,\mathbf{K}_\parallel}^{p/s,+} = 0$ wird die Komponente mit $\mathbf{K}_\parallel = 0$ der transmittierten (reflektierten) Felder in einem Transmissionsexperiment (Reflexionsexperiment) beobachtet:

$$T^{s/p} = \frac{|\tilde{E}_{N,\mathbf{K}_\parallel=0}^{s/p,+}|^2}{|E_0|^2}, \quad R^{s/p} = \frac{|\tilde{E}_{1,\mathbf{K}_\parallel=0}^{s/p,-}|^2}{|E_0|^2} \quad (2.64)$$

Die Absorption ist dann definiert als $\alpha^{s/p} = 1 - R^{s/p} - T^{s/p}$.

Fig. 2.10a zeigt Reflexionsspektren für einen SQF, der in ein unendliches Halbleitermedium eingebettet ist für senkrechten Einfall des externen Feldes in Abhängigkeit von der Stärke der Unordnung. Wie schon die Suszeptibilität in Fig. 2.5 zeigt, verschiebt sich das Maximum des Spektrums bei Korrelationslängen des

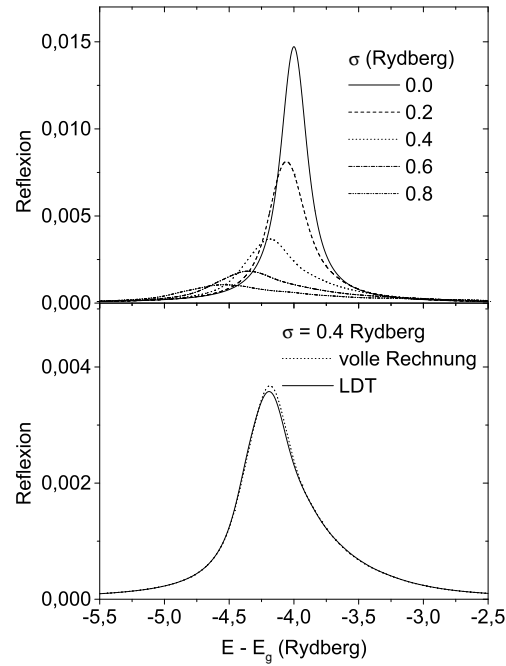


Abbildung 2.10: Reflexionsspektren eines SQF unter senkrechtem Einfall a) in Abhängigkeit von der Varianz des Unordnungspotentials, b) Vergleich mit dem LDT Resultat

Unordnungspotential $\lambda_c < a_0$ zu niedrigeren Energien, während sich die Breite erhöht.

In Fig. 2.10b wird die volle Rechnung mit dem Resultat der LDT-Näherung verglichen. Da sich die Strahlungskopplung im Falle des SQF lediglich in einer strahlenden Verbreiterung auswirkt und keine weiteren Wechselwirkungen über das optische Feld stattfinden, erzielt die LDT gute Übereinstimmung mit dem Ergebnis der Vektorpropagation. Im Folgenden werden jedoch noch Fälle diskutiert, in denen die LDT versagt (s. Kap. 4)

Da \mathcal{S} im Falle eines ungeordneten Systems als Folge der Streuung der Exzitonen am Unordnungspotential nicht verschwindende Nichtdiagonalelemente besitzt, gibt es Komponenten mit $\mathbf{K}_{\parallel} \neq 0$ in Reflexions- und Transmissionsrichtung, die abgebeugte Signale darstellen. Durch die Komponente $\tilde{E}_{N,K}^{s/p,+}$ ($\tilde{E}_{1,K}^{s/p,-}$) ist das RRS-Signal zum Winkel $\sin \theta = K/k$ in Transmissionsgeometrie (Reflexionsgeometrie) gegeben. Da diese nichtdiagonalen Beiträge innerhalb der LDT vernachlässigt werden, ist die LDT ungeeignet RRS-Experimente zu beschreiben.

Kapitel 3

Unordnung in Mehrfachquantenfilmen

Wie in den vorangegangenen Abschnitten schon ausgeführt treten nicht triviale Unordnungseffekte dann auf, wenn die Unordnung in Anwesenheit anderer Wechselwirkungen auf die Quasiteilchen wirkt. Im Zusammenhang mit der Coulomb-Wechselwirkung wurde schon das Beispiel der Unordnungsmittelung durch die Relativbewegung angeführt. Es konnte in der Vergangenheit gezeigt werden, daß die Strahlungskopplung in Mehrfachquantenfilmen (MQF) einen wichtigen Einfluß auf die optischen Eigenschaften hat. Durch den Bruch der Translationsinvarianz in der Wachstumsrichtung können optische Anregungen strahlend zerfallen. Durch diese strahlende Verbreiterung ist die Lebensdauer von optischen Anregungen in QF als Folge der Dimensionsreduzierung begrenzt [1, 2, 3]. Die von den verschiedenen QF transmittierten, reflektierten, oder absorbierten und reemittierten Felder führen zu einer Kopplung der Anregungsdynamik. Während beim SQF eine strahlende Verbreiterung auftritt, bewirkt die kohärente Kopplung in MQF das Auftreten von kollektiven Effekten. Dem Abstand d der QF untereinander kommt hierbei eine besondere Bedeutung zu, da die Periode die Phase bestimmt, mit der die QF über das transversale Feld aneinander koppeln. In typischen MQF mit einer Periode $d \ll \lambda$, wobei λ die Wellenlänge des an der Exzitonresonanz resonant eingestrahlten optischen Feldes ist, zeigt sich eine asymmetrisch verbreiterte Linie, eine Eigenschaft, die üblicherweise auf Unordnung zurückgeführt wird [80, 81] (vgl. Kap. 2.3).

Im Bezug auf die Strahlungskopplung kommt den Bragg-Strukturen, MQF mit einer Periode von einer halben Wellenlänge λ an der Exzitonresonanz, eine besondere Bedeutung zu. Die Ausbildung einer superradianten Mode zeichnet sich durch eine der Filmzahl N proportionalen strahlenden Verbreiterung der Absorptionslinie aus [45, 3]. Neben der superradianten Mode existieren subradiante

Moden, die in der idealen Struktur keine Ankopplung an das Lichtfeld besitzen und deren strahlende Zerfallsrate verschwindet. Da dieser Zustand äußerst phasensensitiv ist, führt die Unordnung hier zu qualitativ neuen optischen Eigenschaften indem sie eine Ankopplung der subradianten Moden an das Lichtfeld bewirkt [67, 68, 69, 13].

Das Wechselspiel von Unordnung und Strahlungskopplung in MQF, insbesondere die Koexistenz von superradianten und subradianten Moden wird im Abschnitt 3.2 anhand von Vier-Wellen-Mischen (VWM) untersucht, sowie die Ergebnisse mit experimentellen Befunden verglichen. Hierzu werden an den Bewegungsgleichungen geeignete Approximationen vorgenommen, um die Berechnung der VWM Signale in Anwesenheit von Unordnung zu ermöglichen. Die nichtlineare experimentelle Methode des VWM zeichnet sich durch die Möglichkeit aus, die homogene Linienbreite von optischen Resonanzen aus dem Abfall des abgebeugten Signals zu ermitteln. Dahingegen ist der Abfall der zeitaufgelösten Signale sowie die Breite von Spektren in linearen optischen Experimenten durch homogene und inhomogene Linienbreite der Resonanz bestimmt.

Neben dem VWM stellt die RRS eine weitere Methode dar, die es ermöglicht, ohne den Hintergrund des Anregungspulses die optischen Eigenschaften von Halbleiterstrukturen in Anwesenheit von Unordnung zu untersuchen. Im Gegensatz zum VWM ist die RRS jedoch ein lineares Experiment, welches die Tatsache ausnutzt, daß erst durch die Streuung der Exzitonen am Unordnungspotential optische Felder aus den gespiegelten Richtungen von Transmission und Reflexion abgebeugt werden. In einem ideal geordneten System dagegen verbietet die Impulserhaltung in der Filmebene eine Kopplung an solche Moden. Als inverses Streuproblem ist die Interpretation experimenteller RRS-Signale insbesondere von einem theoretischen Modell abhängig, auf Grundlage dessen die Beobachtungen interpretiert werden.

Im folgenden Abschnitt wird die hier entwickelte Theorie, die weder auf gewisse Grenzfälle der Unordnung eingeschränkt ist, noch Annahmen über eine Konfigurationsmittelung macht, auf die Berechnung von RRS-Signalen und linearen Spektren von SQF und MQF angewendet. Es zeigen sich signifikante Änderungen in den zeit- und spektral aufgelösten RRS-Signalen bei Variation der Unordnungsparameter, die eine quantitative Analyse der Unordnung durch einen Vergleich von gemessenen und aufgrund des Modells berechneten RRS-Signalen prinzipiell möglich erscheinen lassen. Bei den Simulationen spielen neben den Unordnungsparametern auch die strahlende und nichtstrahlende Dephasierungsrate eine Rolle, die weitere Energieskalen des Systems sind. Durch die Strahlungskopplung gewinnt weiterhin die Probengeometrie Einfluß auf das RRS-Signal.

3.1 Resonante Rayleigh-Streuung

Im Gegensatz zum geordneten QF, bei dem die optisch generierte Polarisation aufgrund der Impulserhaltung in der QF-Ebene nur in die transmittierte und reflektierte Richtung beitragen kann, führt die Streuung der Exzitonen am Unordnungspotential zu Feldkomponenten, die unter einem Winkel zur Einfallsrichtung propagieren. Während die Unordnung in Transmissions- und Reflexionsrichtung zu einer inhomogenen Verbreiterung, Verschiebung des Maximums und zu asymmetrischen Linienformen führt, gibt die RRS direktere Information über das Unordnungspotential, das als Streumechanismus zu den abgebeugten Feldern führt. Daher ist eine weitere Methode, Unordnung in QF zu untersuchen, die Analyse der sekundären Emission [21, 23, 25, 82, 83].

Bei Experimenten zur sekundären Emission wird die Probe durch einen Laserpuls angeregt, wobei die optische Antwort des Materials in einer Richtung detektiert wird, die von der Propagationsrichtung des Eingangspulses abweicht. Das unter einem Winkel abgestrahlte Signal gibt dann Aufschluß über den zugrundeliegenden Streumechanismus. Hierfür kommt in Halbleitern neben der RRS auch die Photolumineszenz (PL) in Frage, bei der die Emission durch das Abklingen der Kohärenz die Vorzugsrichtung verliert, die durch den Anregungspuls gegeben ist. Um aus der sekundären Emission Rückschlüsse auf das zugrundeliegende Unordnungspotential zu ziehen, ist es also experimentell erforderlich, RRS und PL-Streuung (PLS) zu unterscheiden, da stets beide Beiträge vorliegen. Der Begriff der sekundären Emission umfaßt diese beiden Prozesse. Unter der Annahme, daß die PLS im Gegensatz zur kohärenten RRS vollständig inkohärent sei, wurden hierzu verschiedene Methoden vorgeschlagen wie z.B. die Analyse der Polarisationsrichtung der Beiträge [20], interferometrische Ansätze [84, 83, 72] oder Untersuchung der Intensitätsfluktuationen über die Emissionsrichtung [25]. Es konnte jedoch durch eine mikroskopische Theorie, die sowohl die Ladungsträgerdynamik, als auch das photonische System in zweiter Quantisierung auf der Basis eines Dichtematrixformalismus beschreibt, gezeigt werden, daß auch die PL kohärente Eigenschaften besitzt [85]. Experimentell bleibt also die Unterscheidung von PLS und RRS problematisch.

Die Analyse der sekundären Emission stellt ein inverses Problem dar, denn aus den gestreuten Signalen sollen Rückschlüsse auf den zugrundeliegenden Streumechanismus gewonnen werden. Wie in der Kernphysik oder bei der Streuung von Elementarteilchen ist daher ein theoretisches Modell unabdingbar, um zu quantitativen Aussagen gelangen zu können. Die Auswertung experimenteller Befunde ist damit durch die Güte der Theorie beschränkt, mit deren Vorhersagen sie verglichen werden. Auch hinsichtlich der experimentellen Schwierigkeiten bezüglich

der Unterscheidung von PLS und RRS sind theoretische Vorhersagen für beide Prozesse erwünscht. Eine mikroskopische Theorie für die RRS, die ohne Einschränkungen auf Grenzfälle der Unordnung oder Annahmen über Konfigurationsmittelungen Aussagen über experimentell zugängliche Größen macht, existiert zur Zeit meines Wissens jedoch nicht.

Viele Arbeiten der jüngeren Vergangenheit stützen sich auf die Fernfeldnäherung für das RRS-Signal punktförmiger, dispersionsfreier, resonanter Streuer [20, 22, 23, 24, 25]. Die QF-Exzitonen werden hierbei als Ensemble von Lorentz-Oszillatoren phänomenologisch modelliert. Im Rahmen einer parametrischen Ortsabhängigkeit sind die Übergangsenergien durch ein Unordnungspotential gegeneinander verschoben. Der nicht lokale Charakter des Problems wird nicht berücksichtigt. Die Annahme punktförmiger Streuer, die ohne Vorzugsrichtung abstrahlen, setzt voraus, daß die Exzitonen stark lokalisiert sind. Obwohl in einem QF als zweidimensionalem System alle Zustände lokalisiert sind, kann jedoch keine Lokalisierungslänge angegeben werden, die als Abschätzung für alle Zustände gelten kann. Neben energetisch tiefliegenden, auf einzelne Potentialmulden lokalisierten Wellenfunktionen gibt es ausgedehnte, durch Vielfachstreuung schwach lokalisierte Zustände. Diese entfallen aus diesem theoretischen Ansatz durch Vernachlässigung der kinetischen Energie, die im Ortsraum durch den Laplace-Operator die Nichtlokalität ausmacht, gegenüber der potentiellen Energie, die durch das Unordnungspotential am jeweiligen Ort gegeben ist. Daher ist dieses Modell eher für ein Ensemble von Quantenpunkten variierender Größe anwendbar, da hier schon durch das Confinement die Translationsinvarianz in allen Raumrichtungen gebrochen ist und diskrete Energieniveaus vorliegen. Es wird jedoch QF-Exzitonen im Unordnungspotential nicht gerecht. Durch die Dispersion innerhalb der Filmebene und die Ausdehnung der Wellenfunktionen werden systemimmanente Energie- und Längenskalen definiert, die in diesem Ansatz nicht berücksichtigt werden.

Die in diesen Simulationen zur Beschreibung von Experimenten verwendeten Korrelationslängen der Unordnung liegen in der Größenordnung der Lichtwellenlänge [72, 24], die i.a. groß gegen den Exziton-Bohr-Radius ist. Durch Wachstumsunterbrechungen während der Epitaxie kann bei QF zwar erreicht werden, daß die Unordnung auf großen Skalen gegen den Exziton-Bohr-Radius vorliegt, in herkömmlichen Proben ist jedoch ein hohes Maß an Grenzflächenrauhheit auf kleineren Längenskalen vorhanden [86], so daß die quantenmechanische Natur der Exzitonbewegung berücksichtigt werden muß. Durch die numerische Berechnung von exzitonischen Wellenfunktionen im Unordnungspotential wurde ein nicht monotoner Anstieg des RRS-Signals als Konsequenz der Abstoßung quantenmechanischer Niveaus vorhergesagt [26]. Da das optische Feld in diesem Ansatz nicht

selbstkonsistent berechnet wird, ergibt sich eine RRS-Intensität, die für unendliche Zeiten einem endlichen Wert zustrebt. Diese Verletzung der Energieerhaltung resultiert aus der Vernachlässigung der strahlenden Dämpfung, die für QF ein intrinsischer Zerfallskanal für die optische Anregung ist. Da die Strahlungsdämpfung interaktiv in die Dynamik eingreift, wie etwa durch die Existenz strahlender und nichtstrahlender Moden, die durch die Unordnung gekoppelt werden [27], kann sie nicht nachträglich durch eine Zerfallsrate berücksichtigt werden. Nichtstrahlende oder subradiante Moden stellen Komponenten des gekoppelten Systems aus optischem Feld und Exzitonen im ungeordneten QF dar, deren Projektion des Wellenvektors auf die Filmebene mit $K > \omega/c$ außerhalb des Lichtkegels liegt und die somit nicht strahlend zerfallen können.

In diesem Abschnitt wird die hier entwickelte Theorie auf die Untersuchung von RRS an SQF und MQF angewendet. Um RRS-Signale wie auch lineare Spektren in Anwesenheit von Unordnung zu berechnen, wird eine Unordnungskonfiguration für den QF erzeugt. Auf einem diskretisierten Impulsraum kann dann die nichtlokale Suszeptibilität bestimmt werden, die in die Propagation eingeht. Die Systemgröße, gegeben durch die Diskretisierung $\Delta K = 2\pi/L$, mit typischerweise $\Delta K a_0 \leq 0.01$, wird genügend groß gewählt, um repräsentative Resultate zu erzielen. Wie in einem Experiment werden also die beobachtbaren Größen für eine konkret vorliegende Unordnungsrealisierung bestimmt. Die linearen Spektren in Transmission und Reflexion sind für dieses System und die hier verwendeten Unordnungsparameter, sowie nichtstrahlenden Linienbreiten, selbstmittelnd.

Da die Streuung des Erwartungswertes der RRS-Intensität in der gleichen Größenordnung liegt wie der Erwartungswert selbst, ist die RRS ein nicht selbstmittelndes Experiment [72, 25, 24]. Dies bedeutet, daß die experimentellen Observablen keine konfigurationsgemittelten Größen darstellen. Es wurde zwar für RRS-Experimente eine Winkelmittelung vorgeschlagen, um eine Konfigurationsmittelung zu erzielen [26, 87], doch, da, abgesehen von der nicht selbstmittelnden Eigenschaft, die RRS-Signale als Lösung einer Integralgleichung (Gl. (2.62), (2.53)) eine nichtlineare funktionale Abhängigkeit von der Suszeptibilität haben, kann eine Konfigurationsmittelung der Felder nicht auf eine Konfigurationsmittelung der Suszeptibilität zurückgeführt werden.

Im Folgenden sind Ergebnisse, die miteinander verglichen werden, jeweils für die gleiche Unordnungskonfiguration gerechnet. Daher behalten die Aussagen unabhängig von dem nicht selbstmittelnden Charakter der RRS ihre Gültigkeit. Da durch den Einfluß der Strahlungskopplung für MQF modifizierte Ergebnisse zu erwarten sind, die von der vorgegebenen Geometrie und der Anzahl der QF N abhängen, werden zunächst grundlegende Aspekte an einem SQF untersucht, der in ein unendliches Halbleitermedium eingebettet ist.

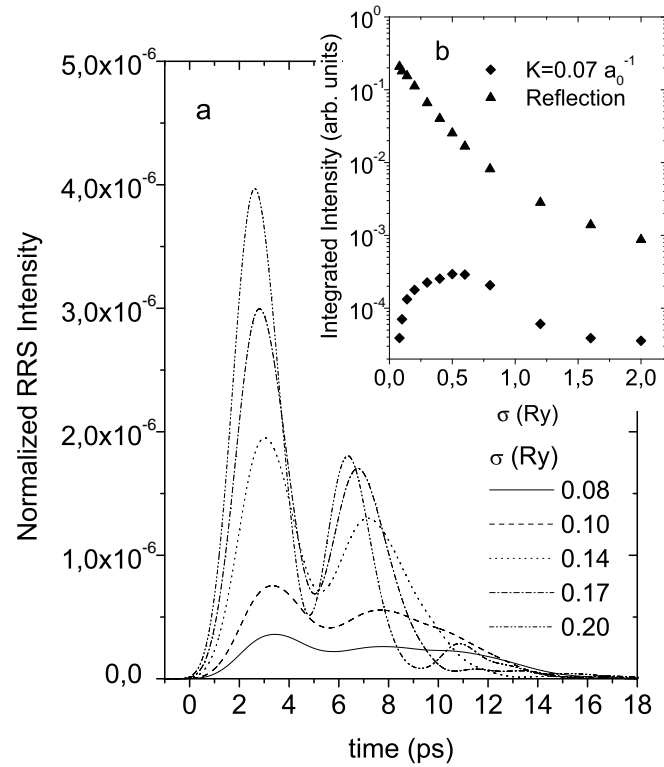


Abbildung 3.1: a) Zeitaufgelöste, normierte RRS-Intensität in Reflexionsgeometrie bei $Ka_0 = 0.07$ für wachsende Amplitude des Unordnungspotentials σ , b) Zeitintegrierte RRS-Intensität zum Wellenvektor $Ka_0 = 0.07$ im Vergleich zum zeitintegrierten reflektierten Signal als Funktion von σ

In Fig. 3.1 sind zeitaufgelöste RRS-Signale von einem SQF für wachsende Varianz des Unordnungspotentials und fester Korrelationslänge $\lambda_c = 0.5a_0$ dargestellt. Die nichtstrahlende Dephasierungsrate beträgt $\gamma_0 = 0.03Ry$. Der mit dem Exziton resonant eingestrahlte Laserpuls $E_{ext}(t) = E_0 \exp(-i\omega_L t - t^2/\Delta t/2)$ der zeitlichen Länge von $\Delta t = 0.5ps$ propagiert hierbei in Wachstumsrichtung. Die RRS-Intensität wird unter einem Winkel $\sin\theta = K/k$, mit $ka_0 = 0.36$ an der Exzitonresonanz in GaAs, gegen die reflektierte Richtung (Reflexionsgeometrie) detektiert. Dargestellt ist die auf die Amplitude des Eingangspulses normierte Intensität in p-Polarisation $I^p(K)/I_0 = |\tilde{E}_{1,K}^p|^2/|E_0|^2$. Aufgrund der Symmetrie dieser SQF-Anordnung unterscheiden sich die Signale nicht von den zum gleichen Winkel gegen die Transmissionsrichtung (Transmissionsgeometrie) gestreuten Intensitäten. Dies gilt nicht mehr für komplexere Strukturen, wie z.B. MQF.

Mit wachsender Unordnung nimmt die gestreute Intensität zunächst zu. Hierbei verschiebt sich das Signalmaximum zu früheren Zeiten. Die Signalform zeigt bei

kleinen Unordnungsstärken eine Doppelpeakstruktur, bei größeren Parametern ergeben sich zusätzlich Oszillationen in der Zeit. Die gestreute Intensität nimmt jedoch nicht monoton mit der Unordnungsstärke zu, sondern fällt für sehr großes σ wie die Reflexion ab (s. Fig. 3.1b).

Durch die Unordnung auf Skalen des Bohr-Radius können die Exzitonen in energetisch tiefen Potentialmulden lokalisiert werden, so daß sich die neuen Eigenzustände über einen weiten Impulsbereich erstrecken. Während die lokalisierten Zustände im niederenergetischen Teil des Spektrums unterhalb der mittleren Exzitonfrequenz liegen [88, 89, 90], schließen sich zu höheren Energien ausgedehnte Zustände an. Diese sind durch Mehrfachstreuung am Unordnungspotential schwach lokalisiert [53]. Delokalisierte Zustände existieren im zweidimensionalen System dagegen nicht. Entsprechend gibt es auch keine Beweglichkeitskante im Sinne eines Phasenübergangs [91]. Operativ kann dennoch eine Beweglichkeitskante gemäß der Art der Lokalisierung definiert werden. So liegen die tief lokalisierten Zustände, die auf eine Potentialmulde eingeschränkt sind, unterhalb dieser Beweglichkeitskante, die sie von den schwach lokalisierten Streuzuständen trennt [92, 93]. Aus spektralem Lochbrennen und RRS-Experimenten ist bekannt, daß die ausgedehnten Zustände eine größere homogene Linienbreite als die lokalisierten Zuständen besitzen [94]. Es wurde ein starker Anstieg der homogenen Linienbreite beobachtet, der hier die Beweglichkeitskante markiert.

Sehr hochenergetische Zustände, die sich ebenen Wellen annähern und sehr weit über die Ebene des QF ausgebreitet sind, tragen nicht zum RRS-Signal bei, da sie den Anregungsimpuls weitgehend erhalten. Damit ein Zustand zum RRS-Signal beitragen kann, muß er sowohl eine nicht verschwindende Projektion auf die Anregungsrichtung, hier $K = 0$, als auch auf die Detektionsrichtung haben. Die Amplitude und Abfallszeit des Signals von diesem Zustand hängt dann von seiner homogenen Breite ab, die durch strahlende und nichtstrahlende Prozesse bestimmt wird.

Mit der Stärke der Unordnung nimmt auch die Streuung der am RRS-Signal beteiligten Zustände in der Energie zu, so daß die RRS-Signale durch zunehmende Interferenz von Oszillationen überlagert sind [25, 78]. Die zunehmende destruktive Interferenz bedingt auch den Rückgang sowohl der reflektierten als auch der gestreuten Intensität bei weiter steigender Stärke der Unordnung. Dies wird in Fig. 3.1b anhand der entsprechenden zeitintegrierten Intensitäten, die gegen die Amplitude des Unordnungspotentials aufgetragen sind, deutlich.

Der Anstieg der RRS-Intensität ist nicht allein durch die inhomogene Verbreiterung gegeben, sondern hängt auch von der homogenen Lebensdauer der beteiligten Zustände ab. Diese setzt sich aus strahlenden und nichtstrahlenden Beiträgen zusammen. Aufgrund ihrer großen Ausdehnung im Impulsraum besitzen

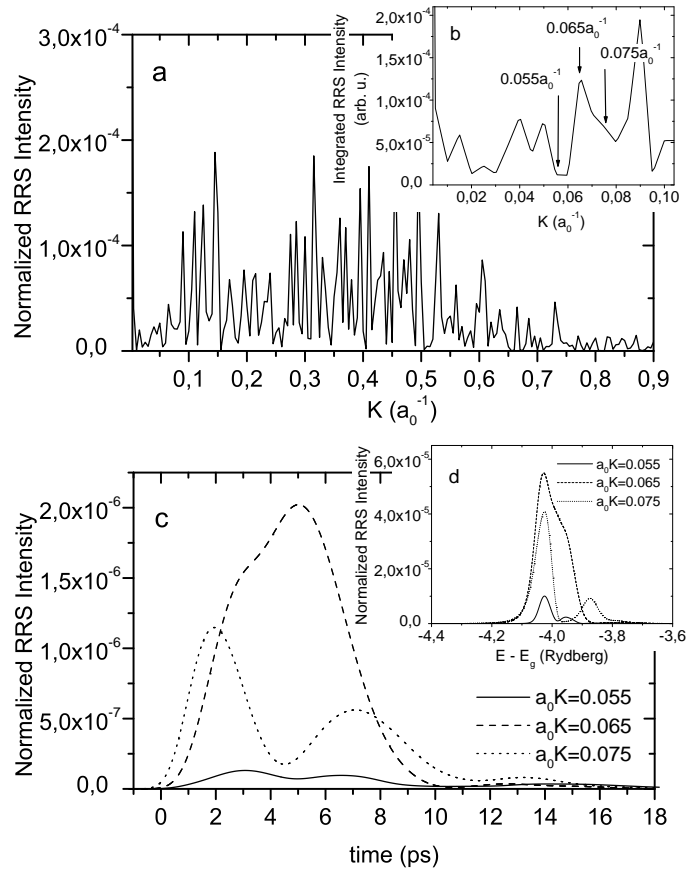


Abbildung 3.2: a: Normierte RRS-Intensität eines SQF in Abhängigkeit von der Wellenzahl in der Schichtebene K in Reflexionsgeometrie auf der mittleren Exzitonresonanz $\omega = \omega_{1s}$, b: Zeitintegrierte RRS-Intensität in Abhängigkeit von der Wellenzahl K , c: Zeitaufgelöstes RRS-Signal in Reflexionsgeometrie, d: Zugehörige RRS-Spektren

die lokalisierten Zustände eine geringe Projektion auf Moden, die innerhalb des Lichtkegels $K < \omega/c$ strahlend zerfallen können, und eine entsprechend geringe Kopplung an das optische Feld. Daher wird das Kurzzeitverhalten des RRS-Signals durch ausgedehnte, strahlende Zustände bestimmt, deren Signal sich mit den Beiträgen der tief lokalisierten, nichtstrahlenden Zustände überlagert. Die Doppelpeakstruktur in den zeitaufgelösten RRS-Signalen erscheint also durch die Koexistenz eines schnell ansteigenden Anteils durch die ausgedehnten Zustände und langsamer Beiträge der lokalisierten Wellenfunktionen, die miteinander interferieren, wobei das Langzeitverhalten durch die stark lokalisierten Zustände dominiert wird.

Die Interferenz kann je nach Beobachtungsrichtung konstruktiv oder destruktiv

sein. Fig. 3.2a zeigt für einen SQF mit Unordnungsparametern $\lambda_c = 0.5a_0$, $\sigma = 0.1Ry$ die an der mittleren Exzitonresonanz in Vorwärtsrichtung gestreute Intensität in Abhängigkeit von der Projektion des Wellenvektors auf die QF-Ebene K . Es zeigen sich starke Fluktuationen der Intensität bei Variation des Beobachtungswinkels, die auch experimentell beobachtet werden [25]. Ein Großteil der nicht in Anregungsrichtung bei $K = 0$ beitragenden Feldkomponenten wird durch die kurze Korrelationslänge des Unordnungspotentials bedingt in subradiante Moden gestreut (hier $a_0K > 0.36$). Die Skala, auf der das RRS-Signal in Abhängigkeit vom übertragenen Impuls nicht verschwindet, ist hierbei durch einen inversen Bohr-Radius gegeben, da bei kurzen Korrelationslänge die effektive Korrelationsfunktion der Unordnung durch das Überlappintegral der beteiligten exzitonischen Zustände dominiert wird (s. Gl. (2.30)).

Das Zeitintegrierte Signal stellt eine über die Fluktuationen in Abhängigkeit von der Zeit gemittelte Größe dar (s. Fig. 3.2b). Bei Variation der Beobachtungsrichtung ergeben sich auch hier Intensitätsfluktuationen. Für drei ausgewählte Wellenzahlen K zu zwei Punkten geringer Intensität, $a_0K = 0.055$ und $a_0K = 0.075$, sowie einem lokalen Intensitätsmaximum, $a_0K = 0.065$ sind in Fig. 3.2c,d zeitaufgelöste bzw. spektral aufgelöste RRS-Signale dargestellt. Die Spektren, die Richtungen geringer Intensität in Fig. 3.2b entsprechen, zeigen als Signatur von destruktiver Interferenz der verschiedenen Beiträge eine Aufspaltung. Bei konstruktiver Überlagerung bleibt eine asymmetrische Linienform des Spektrums erhalten.

Die zeitaufgelösten RRS-Signale (s. Fig. 3.2c) verhalten sich entsprechend. Für die Punkte geringer RRS-Intensität bewirkt die destruktive Interferenz das Ausbilden der schon in Fig. 3.1a beobachteten Doppelpeakstruktur als Konsequenz der destruktiven Überlagerung der Beiträge von tief lokalisierten und ausgedehnten Zuständen, während die Interferenz auf dem lokalen Intensitätsmaximum bei $a_0K = 0.065$ eher konstruktiv ist. Insbesondere die Intensitätsminima der RRS in Abhängigkeit vom Beobachtungswellenvektor erlauben es also, die verschiedenen Beiträge zu analysieren und können daher Aufschluß über die Art der Unordnung geben.

In welchem Maße exzitonische Zustände im Unordnungspotential lokalisiert werden können, hängt neben der Amplitude in erster Linie von der Korrelationslänge des Unordnungspotentials ab. In Fig. 3.3 sind zeitaufgelöste RRS-Intensitäten für Streuung in Rückwärtsrichtung zu $a_0K = 0.07$ in Abhängigkeit von der Korrelationslänge des Unordnungspotential λ_c dargestellt. Hierbei wurde die totale Linienbreite in der Absorption mit $0.13Ry$ FWHM (full width half maximum) konstant gehalten, die eine meßbare Größe ist (s. Fig. 3.3b). Durch Erhöhen der Korrelationslänge geht die asymmetrische Linienform, die den Einfluß der Mitte-

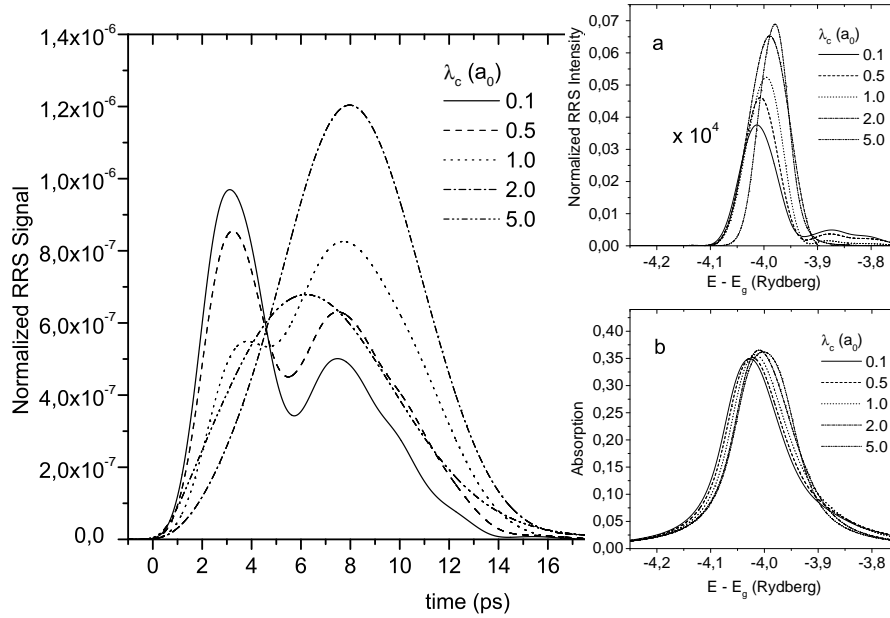


Abbildung 3.3: Zeitaufgelöste RRS-Intensität eines SQF bei $Ka_0 = 0.07$ in Reflexionsgeometrie, a: zugehörige RRS-Spektren, b: Absorptionsspektren

lung durch die Relativbewegung des Exzitons widerspiegelt, in eine symmetrische als Konsequenz der Annäherung an den Grenzfall klassischer Schwerpunktsbewegung des Exzitons.

In den Zeitverläufen der abgebeugten Signale zeigen sich signifikante Unterschiede für verschiedene Korrelationslängen des Unordnungspotentials. Bei kleinen Korrelationslängen $\lambda_c < a_0$ zeigt sich die für die Koexistenz strahlender und subradianter Moden charakteristische Doppelpeakstruktur, die schon in Fig. 3.1, 3.2 beobachtet wurde. Diese verschwindet für wachsende Korrelationslänge zunehmend. Die entsprechenden Spektren in Fig. 3.3a zeigen bei kleinen Korrelationslängen eine Linie leicht unterhalb der mittlere Exzitonübergangsfrequenz, der sich zu höheren Energien ein breiter Ausläufer anschließt. Während diese Linie erhalten bleibt und auf die mittlere Exzitonfrequenz schiebt, nimmt die Oszillatorstärke des hochenergetischen Teils des Spektrums mit zunehmender Korrelationslänge ab.

Die in einzelnen Potentialmulden stark lokalisierten Zustände sind energetisch um die mittlere Exzitonfrequenz gestreut und bilden die steil abfallende niederenergetische Flanke der Absorptionslinie. Zu höheren Energien schließen sich die ausgedehnten Zustände an. Sie bilden den hochenergetischen Ausläufer der

Absorptionslinie. Der Abfall der Absorption wird durch den zunehmend verschwindenden Überlapp der hochenergetischen, ausgedehnten Zustände mit dem Anregungswellenvektor bestimmt. Bei gleicher exzitonischer Linienbreite liegen bedingt durch die Mittelung der Relativbewegung über das Unordnungspotential bei kleinen Korrelationslängen starke Fluktuationen auf kleinen Längenskalen vor. Zu großen Korrelationslängen im Vergleich zum exzitonischen Bohr-Radius dagegen bewirken langwellige Variationen des Unordnungspotential mit geringer Amplitude die gleiche inhomogene Verbreiterung. Die Änderung der Linienform stellt dabei einen Effekt dar, der schlecht quantitativ erfaßt werden kann. Die RRS-Signale ändern sich jedoch qualitativ.

Die Ausdehnung der möglichen Zustände im Impulsraum wird durch die effektive Korrelationsfunktion beschrieben (Gl. 2.30), die neben der Korrelationsfunktion des Unordnungspotentials selbst $\propto \exp(-(\lambda_c K)^2/2)$ den Überlapp der am Streuprozess beteiligten exzitonischen Wellenfunktionen enthält. Bei kleiner Korrelationslänge $\lambda_c < a_0$ ist diese im Wesentlichen durch das Überlappintegral gegeben, das auf der Skala einiger inverser Bohrradien ausgedehnt ist. Dies ermöglicht die Lokalisierung auf einem weiten Bereich von Längenskalen im Ortsraum. Dagegen beschränkt die Gaußkorrelation des Unordnungspotentials den möglichen Grad der Lokalisierung für Korrelationslängen $\lambda_c > a_0$.

Bei kleinen Korrelationslängen existieren tief lokalisierte Zustände neben ausgedehnten. Die tief lokalisierten Zustände sind aufgrund ihres hohen Anteils an Impulskomponenten außerhalb des Lichtkegels subradiant. Energetisch liegen sie je nach Stärke und Längenskala der Unordnung unterhalb oder um die mittlere Exzitonfrequenz. Sie bilden die spektral schmale Linie im RRS-Spektrum. Zu höheren Energien schließt sich ein Kontinuum an ausgedehnten Zuständen an, deren strahlende Verbreiterung mit wachsender Energie und abnehmendem Lokalisierungsgrad zunimmt. Analog zur hochenergetischen Flanke des Absorptionsspektrums fällt der Ausläufer des RRS-Spektrums zu hohen Energien gemäß des mit zunehmender Delokalisierung der beitragenden Zustände abnehmenden Überlapps mit der Anregungsrichtung und der Detektionsrichtung ab.

Zustände, die Überlagerungen von ebenen Wellen darstellen, die dominant auf den Lichtkegel beschränkt sind, können hierbei destruktiv mit subradianten Beiträgen interferieren. Die Streuung in Moden außerhalb des Lichtkegels ist durch die strahlende Kopplung $\Gamma_{K,K'}^{s/p}$, welche die Projektion auf die Wachstumsrichtung $\sqrt{(\omega/c)^2 - K^2}$ enthält, mit einem Phasensprung von $\mp i$ am Rand des Lichtkegels behaftet. Aus Gl. 2.53 ergibt sich für das von einem SQF rückgestreute elektrische Feld bei Anregung mit einer ebenen Welle $\tilde{E}_{1,K}^{\gamma,+} = \delta_K E^0$ in Polarisationsrichtung

γ eine Integralgleichung:

$$\begin{aligned} \tilde{E}_{1,K}^{\gamma,-} &= \sum_{K'} \Gamma_{\gamma}^{-+}(K, K') \bar{\chi}(K, K') (\delta_{K',0} - \bar{\chi}(K', 0) \Gamma_{\gamma}^{++}(K', 0)) E^0 \\ &\quad - \sum_{K', K''} \Gamma_{\gamma}^{-+}(K, K') \bar{\chi}(K, K') \Gamma_{\gamma}^{+-}(K', K'') \bar{\chi}(K', K'') \tilde{E}_{1,K''}^{\gamma,-} \end{aligned} \quad (3.1)$$

Bei Beobachtung in Anregungsrichtung $K = 0$, d.h. bei einem herkömmlichen Reflexionsexperiment dominiert das Diagonalelement $\bar{\chi}(0, 0)$ die optische Antwort das Signal. Daher ist die LDT für den SQF eine gute Näherung. Bei einem RRS-Experiment dagegen wird eine von $K = 0$ abweichende Richtung abgefragt. Insbesondere bei kurzen Korrelationslängen der Unordnung spielen dann Streuprozesse beliebiger Ordnung eine Rolle. Beiträge aus dem Lichtkegel können sich mit subradianten Moden destruktiv oder konstruktiv überlagern. Die genaue Phasenlage hängt vom Beobachtungswinkel (s. Fig. 3.2), sowie von der Unordnungsconfiguration ab.

Für wachsende Korrelationslängen liegen zunehmend ausgedehnte aber flache Potentialmulden vor. Es können nur Zustände die darin lokalisiert sind zum RRS-Signal beitragen. Zu höheren Energien haben die ausgedehnten Zustände keinen genügenden Überlapp mit der Anregungsrichtung und der Detektionsrichtung. Das RRS-Spektrum ist daher zunehmend durch eine einzelne Linie auf der mittleren Exzitonfrequenz gegeben. Die Dynamik des zeitaufgelösten Signals wird bei großen Korrelationslängen allein durch diese Zustände bestimmt, die Doppelpeakstruktur verschwindet mit den Beiträgen der ausgedehnten lokalisierten Zustände. Da jedoch das laterale Confinement durch das Unordnungspotential abnimmt, was sowohl die Höhe, als auch die Längenskala der Potentialmulden angeht, erfahren diese Zustände selbst eine wachsende strahlende Verbreiterung, da sie zunehmend durch Überlagerungen von ebenen Wellen innerhalb des Lichtkegels beschrieben werden können. In Fig. 3.3 kann daher eine Verschiebung des Signalmaximums bei $\lambda_c = 5a_0$ zu früheren Zeiten gegenüber $\lambda_c = 2a_0$ beobachtet werden.

Durch die Wahl der speziellen Geometrie einer Bragg-Struktur kann die strahlende Lebensdauer der optischen Anregung beeinflusst werden. Die kohärente Kopplung der QF durch das elektrische Feld bewirkt hier eine der Filmzahl N proportionale, strahlende Verbreiterung der superradianten Mode [45, 46]. Fig. 3.4 zeigt Reflexionsspektren, RRS-Spektren und zeitaufgelöste RRS-Intensität für eine Bragg-Struktur in Abhängigkeit von der Filmzahl N . Für eine realistische Simulation wurde eine Grenzfläche zwischen dem Halbleitermaterial und der Luft mitberücksichtigt, so daß der Streuwellenvektor von $a_0 K = 0.07$ einem externen Winkel von ca. 45° entspricht. Die Reflektivität und die Breite des Reflexionspektrums wird mit wachsender Filmzahl durch die zunehmende superradiante

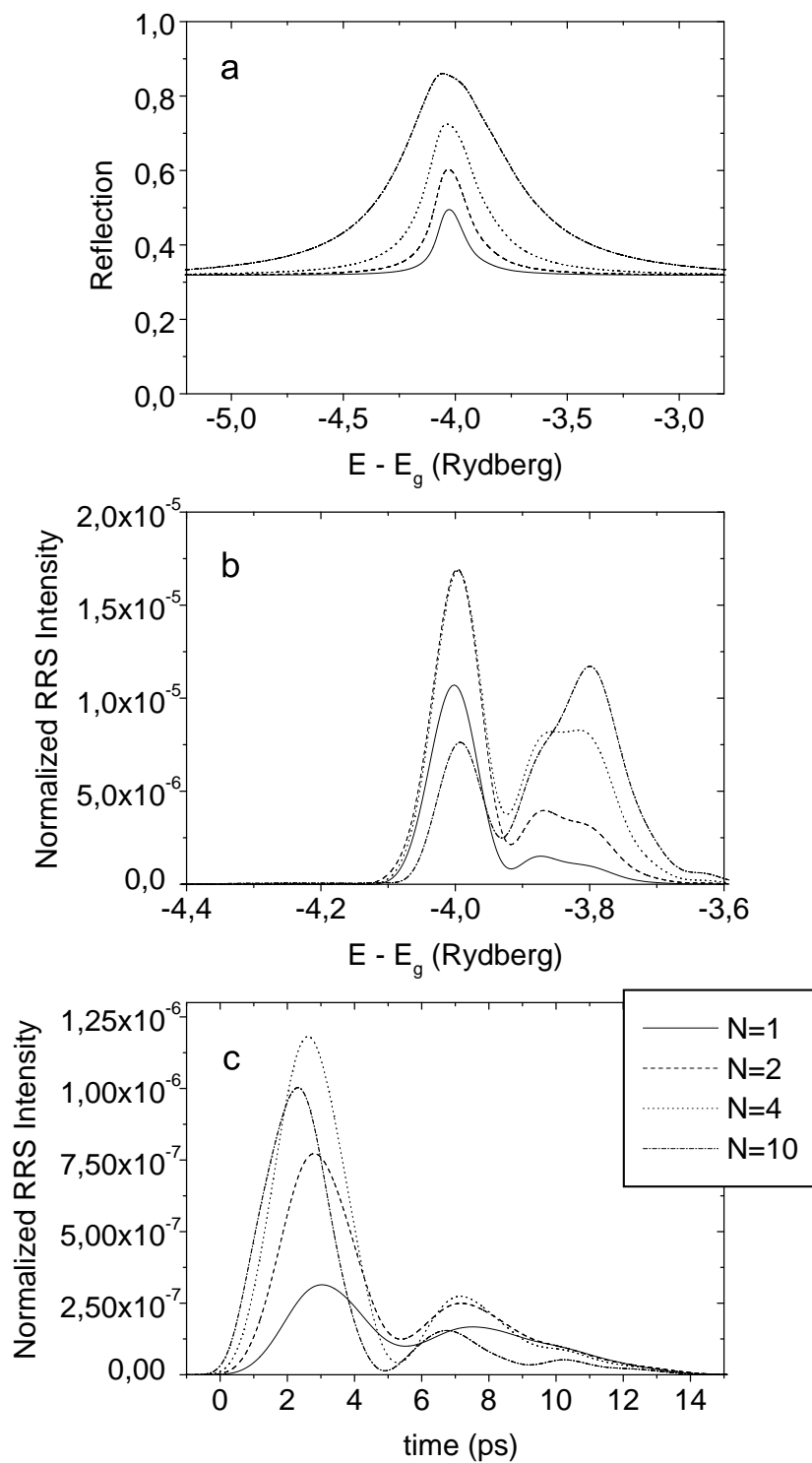


Abbildung 3.4: Reflexionsspektren (a), spektral aufgelöste (b) und zeitaufgelöste (c) RRS-Intensitäten bei $Ka_0 = 0.07$ für wachsende Filmzahl N einer Bragg-Struktur

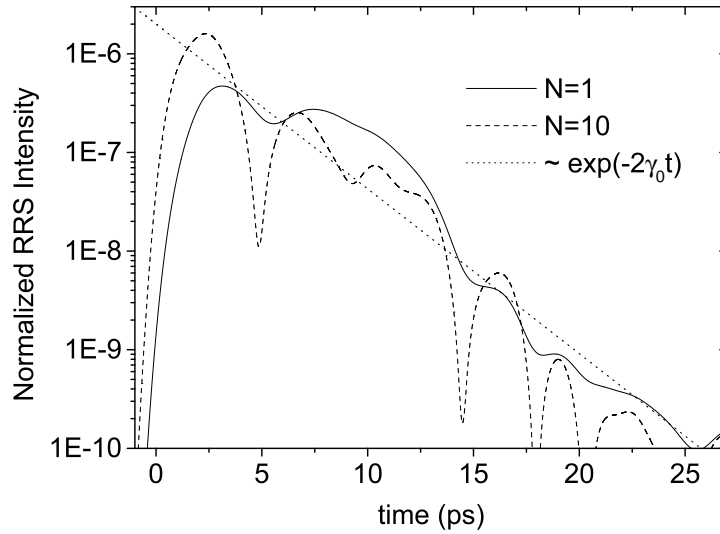


Abbildung 3.5: Zeitaufgelöste RRS-Intensitäten bei $Ka_0 = 0.07$ in Reflexionsgeometrie für $N=1,10$

Kopplung erhöht. Die asymmetrische Linienform für die Unordnungsparameter $\lambda_c = 0.5a_0$, $\sigma = 0.1Ry$ bleibt aber weiterhin sichtbar.

Der Einfluß der superradianten Kopplung auf die spektral und zeitaufgelösten RRS-Intensitäten ist selektiver. Die gesamte Intensität wächst zunächst mit N , nimmt dann jedoch wieder ab. Letzteres trifft nicht für den hochenergetischen Teil des RRS-Spektrums zu. Da die strahlenden Kopplungseffekte von der Projektion der Zustände auf Wellenvektoren im Lichtkegel abhängen, wird das Gewicht der ausgedehnten im Vergleich zu den stark lokalisierten, subradianten Zuständen erhöht, was sich in einer mit der Filmzahl anwachsenden hochenergetischen Seite des RRS-Spektrums niederschlägt. Entsprechend wird die anfängliche Dynamik der zeitaufgelösten Signale mit der Filmzahl beschleunigt. Dagegen ändert sich das Langzeitverhalten, das durch die subradianten Zustände dominiert wird, kaum.

Deutlicher ist das Langzeitverhalten erkennbar bei logarithmischer Darstellung der zeitaufgelösten RRS-Signale. Fig. 3.5 vergleicht die RRS-Intensitäten des SQF mit einer $\lambda/2$ -Deckschicht mit den Signalen der Bragg-Struktur mit $N = 10$ aus Fig. 3.4 mit den Unordnungsparametern $\lambda_c = 0.5a_0$, $\sigma = 0.1Ry$. Die superradiante Kopplung hat in erster Linie Einfluß auf die Kurzzeitdynamik durch Erhöhen der homogenen Verbreiterung der ausgedehnten Zustände. Der Abfall für große Zeiten ($t > 5ps$) ist durch nichtstrahlende Prozesse dominiert. Die Signale fallen gemäß der nichtstrahlenden Dephasierungsrate γ_0 ab. Geringe Abweichungen hiervon sind auf eine kleine strahlende Verbreiterung zurückzuführen, die für eine nicht

verschwindende Ankopplung an das Lichtfeld nötig ist. Der Abfall des Signals ist überlagert von Oszillationen auf einer Zeitskala von $3ps-5ps$, die durch die Aufspaltung der RRS-Spektren in die spektral scharfen subradianten Beiträge und den stark inhomogen verbreiterten Ausläufer strahlender, ausgedehnter Zustände gegeben ist. Während beim SQF allein die stark lokalisierten Zustände subradiante Beiträge liefern, existieren in der Bragg-Struktur durch die Strahlungskopplung der QF untereinander induzierte, weitere subradiante Beiträge der ausgedehnten Zustände [67, 68]. Die Oszillationen des Signals sind daher bei der Bragg-Struktur ausgeprägter als beim SQF.

Die RRS erlaubt also, den nichtstrahlenden Beitrag zum Dephasieren der optischen Anregung zu extrahieren. Dies ist in Einklang mit experimentell beobachteten sehr großen Abfallszeiten von RRS-Signalen, die über der strahlenden Zerfallszeit von ca. $12ps$ für GaAs liegen [87]. Bei bekannter nichtstrahlender Dephasierungsrate und Gesamtlinienbreite einer Probe ist der für das zugrundeliegende Unordnungspotential in Frage kommende Parameterbereich die Varianz und die Korrelationslänge betreffend begrenzt. Eine weitere Variationsmöglichkeit beim Vergleich mit experimentellen RRS-Signalen bietet die Wahl der Korrelationsfunktion der Unordnung. So wurde mit Hilfe des oben beschriebenen phänomenologischen Modells bei Annahme einer exponentiellen Korrelationsfunktion an Stelle einer Gaußkorrelation eine bessere Übereinstimmung von berechneten und gemessenen RRS-Signalen erzielt [24]. Im Bereich kleiner Korrelationslänge im Vergleich zum exzitonischen Bohr-Radius sollte dies jedoch nur eine untergeordnete Rolle spielen, da die effektive Korrelationsfunktion für die Schwerpunktbewegung des Exzitons im Wesentlichen durch das Überlappintegral bestimmt wird.

Neben der Korrelationsfunktion ist in die hier erzielten Ergebnisse die Wahl einer Gaußverteilung als Wahrscheinlichkeitsdichte für die Potentialfluktuationen eingegangen (s. Gl. (2.37)). Auch andere Verteilungsfunktionen sind hier vorstellbar, wie z.B. diskrete Verteilungen unter der Annahme von Monolagenfluktuationen oder die Wahl der QF-Breite als Zufallsvariable, die zu asymmetrischen Verteilungsfunktionen für die Potentialfluktuationen um die mittlere Exzitonfrequenz führt.

Im Rahmen der hier durchgeführten Untersuchung hat sich gezeigt, daß die Analyse der Kurzzeitdynamik zeitaufgelöster RRS-Signale und der RRS-Spektren insbesondere bei Beobachtungsrichtungen geringer Intensität Rückschlüsse über die Koexistenz stark lokalisierter und ausgedehnter Zustände zuläßt. Diese äußern sich in einer Interferenz von strahlenden und subradianten Moden. Da die Lokalisierungseigenschaften neben der Varianz von der Längenskala der Unordnung abhängen, haben sich bei gleicher Gesamtlinienbreite der Absorption als meß-

barer Größe signifikante Unterschiede der RRS-Signale für verschiedene Korrelationslängen ergeben. Bei Gültigkeit der Eingangsannahmen die Korrelationsfunktion und die Wahrscheinlichkeitsdichte der Potentialfluktuationen betreffend erscheint es also möglich, durch den Vergleich von berechneten und gemessenen RRS-Signalen die Unordnung in einer Probe quantitativ in ihren statistischen Parametern zu erfassen. Die Aussagekraft dieses Ansatzes als zerstörungsfreie Charakterisierungsmethode für die Unordnung einer Probe läßt sich jedoch erst durch den Vergleich mit Resultaten anderer Methoden, wie z.B. der Transmissionselektronenmikroskopie [7, 86], belegen, nachdem eine Reihe von gemessenen RRS-Signalen durch die Theorie konsistent reproduziert werden konnten.

Da die Probengeometrie die komplexe Energienormierung durch die Wechselwirkung mit dem Lichtfeld bestimmt, muß auch diese bei der Simulation in einer selbstkonsistenten Formulierung der Propagation und der Materialantwort berücksichtigt werden. Bei herkömmlichen MQF-Proben, bei denen der Abstand der QF d oft im Bereich $d \leq 0.01\lambda$ liegt, können ebenfalls durch die Nähe zur Bragg-Bedingung, die bei $d = 0$ wieder erfüllt ist, ähnliche Kopplungseinflüsse auftreten, wie die hier gezeigten.

3.2 Vier-Wellen-Mischen

In diesem Kapitel wird der Einfluß von Unordnung auf die VWM-Signale von MQF untersucht. Hierbei kommt den Bragg-Strukturen eine besondere Bedeutung zu, denn neben der superradianten Mode existieren subradiante Moden, die in der idealen Struktur keine Ankopplung an das Lichtfeld besitzen und deren strahlende Zerfallsrate verschwindet [45]. In Anwesenheit von Unordnung jedoch können diese Moden des gekoppelten Systems aus Exziton und Lichtfeld in optischen Experimenten sichtbar werden, da die Unterdrückung der subradianten Moden in der idealen Struktur äußerst phasensensitiv ist. In zeitintegrierten VWM-Experimenten wurde ein anfänglicher superradianter Zerfall nachgewiesen [46], doch das Signal fiel nicht über mehrere Größenordnungen ab, wie für die perfekte Bragg-Struktur vorhergesagt, sondern zeigte einen Zweistufenabfall, der auf Unordnung zurückgeführt werden kann [67, 68, 75, 13]. Neben einem Unordnungspotential, das innerhalb der Filme Einfluß auf die optischen Eigenschaften nimmt, bildet bei kohärent gekoppelten MQF eine Fluktuation der Barrierenbreiten, als geometrische Abweichung oder Variation des Brechungsindex, in Folge der phasensensitiven Strahlungskopplung eine neue Form von Unordnung.

Der Zugang des VWM erlaubt in Anwesenheit einer inhomogenen Verbreiterung der Exzitonlinie die Bestimmung der homogenen Linienbreite und gibt damit

Aufschluß auf den strahlenden Zerfall, falls andere Dephasierungsmechanismen ausgeschlossen werden können. Das Wechselspiel von strahlendem Zerfall und anregungsinduziertem Dephasieren wurde in der Vergangenheit schon untersucht. Durch Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung kann die Superradianz in Bragg-Strukturen zunehmend unterdrückt werden indem die Kohärenz zwischen verschiedenen QF zerstört wird [57, 58, 47]. Durch geringe Anregungsintensitäten und tiefe Temperaturen kann jedoch das Dephasieren aufgrund der Wechselwirkung der Elektronen untereinander und der Streuung mit Phononen im Experiment unterdrückt werden, so daß der strahlende Zerfall und Unordnungseinflüsse die optischen Eigenschaften dominieren.

Da die volle Vektorbehandlung des Problems für die Berechnung von VWM-Signalen in Anwesenheit von Unordnung die heutigen numerischen Möglichkeiten sprengt, ist hier neben anderen Näherungen die Beschränkung auf den klassischen Limes großer Korrelationslänge im Vergleich zum Bohr-Radius des Exzitons notwendig. Im Folgenden werden die Bewegungsgleichungen für die nichtlinearen Signale hergeleitet, sowie berechnete Daten mit experimentellen Befunden verglichen. Hierbei spielt neben der Probengeometrie auch die dielektrische Umgebung der QF hinsichtlich der Kopplung durch das transversale Feld eine Rolle. Insbesondere an der Grenzfläche zwischen Luft und Halbleitermaterial wird aufgrund des hohen Brechungsindexunterschieds ein großer Anteil der Felder mit einer der Dicke der Deckschicht d_1 entsprechenden Phase in die Struktur zurückgekoppelt, wodurch die kohärenten optischen Eigenschaften modifiziert werden. Da die Reflektivität von der Polarisationsrichtung der einfallenden Felder abhängt, bieten Experimente unter dem Brewster-Winkel eine ausgezeichnete Möglichkeit, den Einfluß der Deckschicht zu studieren [4].

3.2.1 Nichtlineare Bewegungsgleichungen

Wie in Kap. 2.3 ausgeführt kann im klassischen Grenzfall die Streuung des Exzitons an der Unordnung vernachlässigt werden. Der MQF kann daher als ein Ensemble verschiedener Wachstumsinseln aufgefaßt werden, wobei jeder Insel eine konkrete Realisierung alternierender Film- und Barrierenbreiten zugeordnet wird. In einem optischen Experiment wird durch den einfallenden Laserpuls mit endlichem Strahlradius ($\propto 100 \mu m$,) ein Ensemble von verschiedenen Wachstumsinseln angeregt, so daß die detektierten Signale in Transmissions und Reflexionsgeometrie konfigurationsgemittelte Größen darstellen:

$$I_T(t) = |\langle E_T(t) \rangle_{conf.}|^2, \quad I_R(t) = |\langle E_R(t) \rangle_{conf.}|^2, \quad (3.2)$$

Mit Vernachlässigung der Streuung der Exzitonen reduziert sich das Problem der Vektorpropagation auf die Lösung einer skalaren Wellengleichung für die Polarisationskomponenten und die jeweilige Wachstumsinsel am Ort $\mathbf{R}_{//}$. Für eine halbunendliche Halbleiterprobe mit einer Grenzfläche zur Luft, die durch Transmissions- und Reflexionskoeffizienten t_{vb}, r_{vb} [79] charakterisiert ist, ergibt sich:

$$\begin{aligned}
E(\mathbf{R}_{//}, z, t) = & t_{vb}E_0(\mathbf{R}_{//}, t - z/c) - \frac{2\pi}{c} \sum_m j^m(\mathbf{R}_{//}, t - |z - z_m| \cos \alpha/c) \\
& - r_{bv} \frac{2\pi}{c} \sum_m j^m(\mathbf{R}_{//}, t - |z + z_m| \cos \alpha/c) \\
& + \mathcal{O}(\sin \alpha), \tag{3.3}
\end{aligned}$$

wobei $t_{vb}E_0(\mathbf{R}_{//}, t)$ der durch die Grenzschicht transmittierte externe Laserpuls ist, der in positive Wachstumsrichtung z propagiert. Dieser wird durch die induzierten Interbandströme in den verschiedenen QF renormiert, die zu den optischen Weglängen entsprechenden retardierten Zeitargumenten beitragen. Für kleine Winkel α zwischen der Wachstumsrichtung und dem Wellenvektor des einfallenden Feldes kann die Propagation mit Hilfe einer effektiven optischen Weglänge $|z - z_m| \cos \alpha$ beschrieben werden [46, 49]. Auch bei großen externen Winkeln bleiben die Winkel innerhalb der Probe aufgrund des großen Brechungsindex des Halbleitermaterials klein, denn nach dem Snellius Brechungsgesetz $\sin \alpha_{ex} = n \sin \alpha$. Neben dem direkten Term $\propto j^m(\mathbf{R}_{//}, t - |z - z_m| \alpha/c)$ in Gl. (3.3) mit einem retardierten Zeitargument, das der optischen Weglänge zwischen z und dem QF am Ort z_m entspricht, stellt der Beitrag $\propto r_{bv} j^m(\mathbf{R}_{//}, t - |z + z_m| \alpha/c)$ Komponenten dar, die an der Grenzschicht zur Luft reflektiert wurden. Aufgrund dieser Zeitretardierungen hängt die optische Antwort des MQF von den optischen Weglängen innerhalb der Struktur ab, die aufgrund von Fluktuationen in der Geometrie oder der chemischen Zusammensetzung des Barrierenmaterials variieren kann.

Um die nichtlineare optische Antwort des Materials zu berechnen, muß der Interbandstrom aus mikroskopischen Bewegungsgleichungen ermittelt werden. Der makroskopische Strom im QF $n j^n(\mathbf{R}_{//}, t) = \sum_{\mathbf{K}_{//}} j^n(\mathbf{K}_{//}, t) e^{i\mathbf{K}_{//}\mathbf{R}_{//}}$ wird wie in Kap. 2.3 bezüglich seiner Relativbewegung nach Exzitonwellenfunktionen entwickelt, $j^n(\mathbf{R}_{//}, t) = \partial_t \sum_{\lambda} \gamma_{\lambda} p_{n,\lambda}(\mathbf{R}_{//}, t)$ so daß nun die Schwerpunktsbewegung des Zustandes λ einer Bewegungsgleichung im Ortsraum genügt, die an die kohärente

Besetzung $n_{n,\lambda}(\mathbf{R}_{\parallel}) = f_{n,\lambda}^e(\mathbf{R}_{\parallel}) = f_{n,\lambda}^h(\mathbf{R}_{\parallel})$ koppelt:

$$\begin{aligned} \sum_{\lambda'} \left[\left(i \frac{\partial}{\partial t} + \frac{\Delta_{\mathbf{R}_{\parallel}}}{2M} - \epsilon_{\lambda} + i\gamma_0 \right) \delta_{\lambda\lambda'} - U_{n,\lambda\lambda'}(\mathbf{R}_{\parallel}) \right] p_{n,\lambda'}(\mathbf{R}_{\parallel}, t) = \\ (2\mu n_{n,\lambda}(\mathbf{R}_{\parallel}, t) - \gamma_{\lambda}) E_n(\mathbf{R}_{\parallel}, t) - 2 \sum_{\lambda', \lambda''} c_{\lambda,\lambda',\lambda''} n_{n,\lambda''}(\mathbf{R}_{\parallel}, t) p_{n,\lambda'}(\mathbf{R}_{\parallel}, t) \\ i \frac{\partial}{\partial t} n_{n,\lambda}(\mathbf{R}_{\parallel}, t) = \mu (E_n^*(\mathbf{R}_{\parallel}, t) p_{n,\lambda}(\mathbf{R}_{\parallel}, t) - E_n(\mathbf{R}_{\parallel}, t) p_{n,\lambda}^*(\mathbf{R}_{\parallel}, t)), \end{aligned} \quad (3.4)$$

wobei $E_n(\mathbf{R}_{\parallel}, t) = E(\mathbf{R}_{\parallel}, z_n, t)$,

$$c_{\lambda,\lambda',\lambda''} = \sum_{\mathbf{k}_{\parallel}, \mathbf{k}'_{\parallel}} V_{\mathbf{k}_{\parallel} - \mathbf{k}'_{\parallel}} (\varphi_{\lambda}^*(\mathbf{k}_{\parallel}) \varphi_{\lambda'}(\mathbf{k}_{\parallel}) \varphi_{\lambda''}(\mathbf{k}'_{\parallel}) - \varphi_{\lambda}^*(\mathbf{k}_{\parallel}) \varphi_{\lambda'}(\mathbf{k}'_{\parallel}) \varphi_{\lambda''}(\mathbf{k}_{\parallel})) \quad (3.5)$$

das Coulomb-Matrixelement und

$$U_{n,\lambda\lambda'}(\mathbf{R}) = \int dA \varphi_{\lambda}^*(\mathbf{r}_{\parallel}) \left(U^{n,e}(\mathbf{R}_{\parallel} + \frac{m_h}{M} \mathbf{r}_{\parallel}) - U^{n,h}(\mathbf{R}_{\parallel} - \frac{m_e}{M} \mathbf{r}_{\parallel}) \right) \varphi_{\lambda'}(\mathbf{r}_{\parallel}) \quad (3.6)$$

das effektive Unordnungspotential ist, das durch die Relativbewegung gemittelt wird [14, 15]. Im klassischen Grenzfall $\lambda_c \rightarrow \infty$ geht einerseits das Unordnungspotential über in

$$U_{n,\lambda\lambda'}(\mathbf{R}_{\parallel}) \approx U_n(\mathbf{R}_{\parallel}) \delta_{\lambda\lambda'}, \quad (3.7)$$

wobei $U_n(\mathbf{R}_{\parallel}) + E_g$ die Bandkante im n-ten QF ist, andererseits kann die kinetische Energie gegenüber der potentiellen Energie, die durch die Unordnungsrealisierung bestimmt wird, vernachlässigt werden. Die Ortsabhängigkeit wird daher parametrisch, die optischen Eigenschaften sind durch eine Ensemblemittelung über die gestreuten Bandkantenenergien gegeben [68].

In einem VWM-Experiment besteht das anregende Laserfeld üblicherweise aus zwei um eine Zeitspanne τ gegeneinander verzögerte, mit der Frequenz ω_L spektral entartete Pulse,

$$E_0(t, \mathbf{r}) = E_2 \mathcal{E}(t - \tau) e^{-i(\omega_L(t-\tau) - \mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r})} + E_1 \mathcal{E}(t) e^{-i(\omega_L t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})}, \quad (3.8)$$

die in die Richtungen \mathbf{k}_2 und \mathbf{k}_1 , propagieren. Aufgrund des Bruchs der Symmetrie in Wachstumsrichtung unterscheiden sich i.a. die Signale in Reflexionsgeometrie ($2\mathbf{k}_{2,\parallel} - \mathbf{k}_{1,\parallel}, -2k_{2,z} + k_{1,z}$) und in Transmissionsrichtung, ($2\mathbf{k}_{2,\parallel} - \mathbf{k}_{1,\parallel}, 2k_{2,z} - k_{1,z}$). Innerhalb eines χ^3 -Formalismus werden die Bewegungsgleichungen in dritter Ordnung im angelegten Feld gelöst um die Polarisation dritter Ordnung $P_{(2|1)}^n$ proportional zu $E_2^2 E_1^*$ zu berechnen, die zu den detektierten VWM-Signalen in der Beobachtungsrichtung $\alpha_{(2|1)}$ beiträgt. Um biexzitonische Beiträge zu unterdrücken

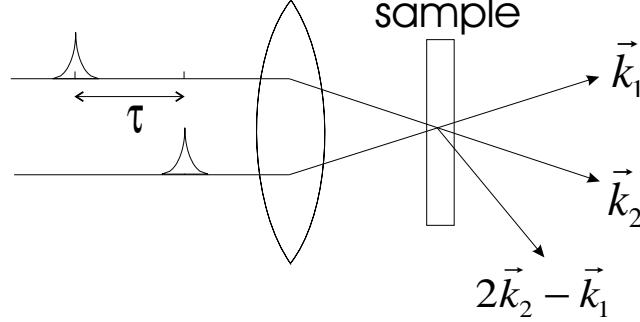


Abbildung 3.6: VWM-Geometrie

wird resonante Anregung des 1s-hh-Übergangs mit zwei kozykular polarisierten Pulsen angenommen. Für genügende Pulslänge wird die Anregung von Kontinuumszuständen vermieden und die numerische Lösung von Gl. (3.4) kann auf das 1s-Exziton beschränkt werden:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} p_n &= -i(\omega_n - i\gamma_0)p_n - iE_n(2\mu n_n - \gamma) \\ \frac{\partial}{\partial t} n_n &= -i\mu(E_n^* p_n - E_n p_n^*) \end{aligned} \quad (3.9)$$

Der Index $\lambda = 1s$ wurde hier unterdrückt, sowie die Schwerpunktskoordinate, in der die Bewegungsgleichungen durch die Beschränkung auf den klassischen Grenzfall diagonal sind. Jedoch hängt die Übergangsenergie $\omega_n(\mathbf{R}_\parallel) = E_g - \epsilon_{1s} + U_n(\mathbf{R}_\parallel)$ von der jeweiligen Unordnungsrealisierung ab, so daß jeder QF ein inhomogen verbreitetes Ensemble von exzitonischen Resonanzen darstellt. Im Falle von Barrierefluktuationen stellt die Position des QF z_n eine Zufallsvariable dar, so daß der Filmabstand zwischen dem n-ten und dem m-ten QF $d_{nm}^- = |z_n - z_m| \cos \alpha$, $d_{nm}^+ = |z_n + z_m| \cos \alpha$ um ihre Mittelwerte \bar{d}_{nm}^\pm gestreut sind. Für den kohärenten Grenzfall wurde der Erhaltungssatz $n_n = |p_n|^2 / \varphi(0)$ verwendet, der für geringe Ladungsträgerdichten gültig ist [51]. Um die retardierten Zeitargumente zu eliminieren, wird die "Slowly Varying Envelope Approximation" (SVEA) [45] in der Zeit angewandt,

$$\frac{\partial}{\partial t} p^n(t - d_{nm}/c) \approx e^{-i\omega_L(t - d_{nm}/c)} \left(-i\omega_L + \frac{\partial}{\partial t} \right) \left(1 + \mathcal{O} \left(\frac{d_{nm}}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right) \right) \tilde{p}^n(t), \quad (3.10)$$

bei der die Ableitung der nach Abspalten der Laserfrequenz langsam veränderlichen Amplitudenfunktion $\tilde{p}_{(2|1)}^n$ gegenüber der schnellen Rotation mit ω_L ver-

nachlässigt wird. Korrekturen durch die Zeitableitung der langsamen Amplitudenfunktion \tilde{p}^n ergeben sich dann, wenn der Anregungspuls der Länge $c\Delta t$ kurz gegen die Ausdehnung der Probe ist, denn dieser bestimmt bei kleinen Zeiten den Aufbau der Polarisation. Bei üblichen Proben ist daher die SVEA eine gute Näherung, da aufgrund der hohen Lichtgeschwindigkeit $d_{nm}/c \ll \Delta t$ für alle n, m .

Die Polarisation dritter Ordnung ist dann in SVEA bestimmt durch:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \tilde{p}_{(2|1)}^n(t) &= -i(\omega_n - \omega_L - i\gamma_0) \tilde{p}_{(2|1)}^n(t) - \Gamma_{rad} \sum_m \left(e^{i\omega_L d_{nm}^-/c} + r_{bv} e^{i\omega_L d_{nm}^+/c} \right) \tilde{p}_{(2|1)}^m(t) \\ &\quad - 2i\mu e^{-i\omega_L((t-\tau)-z_n/c)} \tilde{p}_1^{n*}(t) \tilde{p}_2^n(t) E_2 \mathcal{E}(t-\tau) \\ &\quad + 2\Gamma_{rad} \sum_m \left(e^{i\omega_L d_{nm}^-/c} + r_{bv} e^{i\omega_L d_{nm}^+/c} \right) \tilde{p}_1^{n*}(t) \tilde{p}_2^n(t) \tilde{p}_2^m(t), \end{aligned} \quad (3.11)$$

wobei $\tilde{p}_{(2|1)}^n(t) = e^{i\omega_L t} |\varphi(0)|^{-1} p_{(2|1)}^n(t)$. $\tilde{p}_1^n, \tilde{p}_2^n$ sind die linearen Polarisationen induziert durch die entsprechenden Pulse E_1, E_2 .

Zur Konfigurationsmittelung für das VWM-Signal tragen dann die Felder:

$$\begin{aligned} E_{R,(2|1)}(t, \tau) &= \langle i\Gamma_{rad} t_{bv} \sum_m e^{i\omega_L z_m/c} p_{(2|1)}^m(\omega_n, t, \tau) \rangle_{conf} \\ E_{T,(2|1)}(t, \tau) &= \langle i\Gamma_{rad} \sum_m \left(e^{-\omega_L z_m/c} + r_{bv} e^{i\omega_L z_m/c} \right) p_{(2|1)}^m(\omega_m, t, \tau) \rangle_{conf}, \end{aligned} \quad (3.12)$$

zu den zeitaufgelösten $I_{T/R,(2|1)}(t, \tau) = |E_{T/R,(2|1)}(t, \tau)|^2$, sowie zeitintegrierte VWM-Signale $I_{T/R,(2|1)}(\tau) = \int dt I_{T/R,(2|1)}(t, \tau)$ bei, wobei die Konfigurationsmittelung numerisch durchgeführt wird.

3.2.2 Subradiante Moden in Bragg-Strukturen

In Fig. 3.7 ist das zeitintegrierte VWM-Signal einer $N = 10$ Bragg-Struktur für Barrierendickefluktuationen um $\lambda/2$ und Grenzflächenrauhheit dargestellt. Sowohl die Barrierendicke als auch die Fluktuation der Bandkante genügen einer Gaußverteilung mit Standardabweichung σ_d bzw. σ_E . Beide Formen von Unordnung führen zu einem Zweistufenabfall des Signals. Während der anfängliche Abfall dem superradianten Zustand zugeordnet werden kann, der sich durch N-fache strahlende Verbreiterung auszeichnet, dominieren subradiante Moden das Langzeitverhalten. Diese erhalten durch die unordnungsbedingte Abweichung von der Bragg-Bedingung eine kleine Ankopplung an das optische Feld, ihre strahlende Verbreiterung ist jedoch gering, so daß der Zerfall der Polarisation durch nichtstrahlende Prozesse, repräsentiert durch die phänomenologische Dämpfung γ_0 , dominiert wird. Die homogene nichtstrahlende Linienbreite wurde hier mit

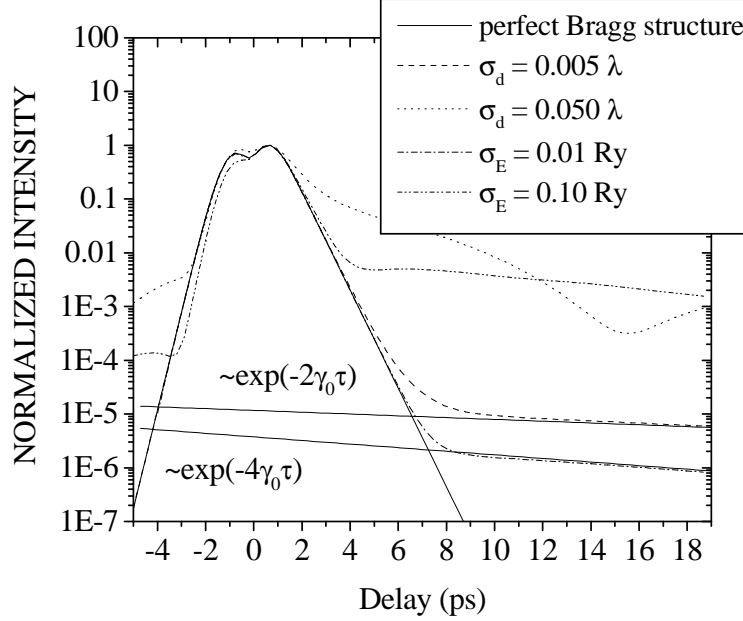


Abbildung 3.7: Zeitintegriertes VWM-Signal einer $N = 10$ Bragg-Struktur in Reflexionsgeometrie für Barrierendickefluktuation (σ_d), sowie für eine inhomogene Verbreiterung σ_E

$\gamma_0 = 0.004 Ry < \Gamma_{rad}$ genügend klein gewählt, um Effekte der Strahlungskopplung untersuchen zu können. Durch den Vergleich mit dem Experiment hat sich gezeigt, daß dieser Wert nicht unrealistisch ist und die Lebensdauer exzitonischer Anregungen in hochwertigen Proben durch den strahlenden Zerfall begrenzt wird [13, 4].

Während im Falle der Barrierendickefluktuationen der Abfall des zeitintegrierten VWM-Signals durch einen freien Induktionszerfall beschrieben wird $I(\tau) \propto \exp(-2\gamma_0\tau)$, führt schon eine geringe inhomogene Verbreiterung zu einem photonechoartigen Abfall $I(\tau) \propto \exp(-4\gamma_0\tau)$ [67, 68]. Im Gegensatz zur superradianten Mode, bei der die kohärente Kopplung die strahlende Verbreiterung erhöht $\Gamma_{rad}^{sup} = N\Gamma_{rad}$, ist diese bei den subradianten Moden stark reduziert, $\Gamma_{rad}^{sub} \ll \Gamma_{rad}$, nicht nur im Vergleich zum superradianten Zustand, sondern auch zur strahlenden Breite des SQF Γ_{rad} . Daher ist die inhomogene Verbreiterung groß gegen die homogene der subradianten Moden $\Gamma_{rad}^{sub} + \gamma_0$, so daß ein Photonecho entstehen kann [8, 95]. Bei einer Bragg-Struktur können also gleichzeitig sowohl ein freier Induktionszerfall durch die Superradianz, die bei geringer gegenseitiger Zeitverzögerung der Pulse τ die nichtlineare Antwort dominiert, als auch ein Photonecho im Langzeitverhalten als Signatur der subradianten Moden beobachtet werden. Das Verhältnis von homogener zu inhomogener Verbreiterung ändert sich hier als Funktion der Zeitverzögerung zwischen den Pulsen. Gleichzeitig bietet eine

Braggstruktur hoher Qualität die experimentelle Möglichkeit durch das Abklingverhalten für großes τ eine Abschätzung für den nichtstrahlenden Beitrag zum Dephasieren γ_0 zu gewinnen.

Für ein hohes Maß an Barrierendickefluktuationen zeigt sich oszillatorisches Verhalten des zeitintegrierten VWM-Signals. Die subradianten Moden des Systems sind durch die Abweichung von der Bragg-Bedingung $\omega_{1s}/c = 2\pi/\lambda$ komplex gegen den superradianten Zustand an der Exzitonresonanz verschoben. Die zu höheren und zu niedrigeren Energien verschobenen Moden interferieren miteinander und führen zu langwelligen Oszillationen des Signals. Die resultierende Aufspaltung ist dabei durch die Kopplungskonstante Γ_{rad} begrenzt. Dahingegen zeigt die inhomogen verbreiterte Braggstruktur exponentielles Verhalten für alle Unordnungsparameter, denn mit der Streuung der Resonanzenergien des Exzitons sind auch die Resonanzen des gekoppelten Systems inhomogen verbreitert. Bei wachsender Unordnung nimmt die strahlende Lebensdauer der subradianten Moden ab, so daß der Abfall des Signals für große Zeitverzögerung zwischen den Anregungspulsen mit zunehmender Unordnung schneller wird (Fig. 3.7,3.8). Hierbei genügt die strahlende Breite der Moden $\Gamma_{rad} \geq \Gamma_{rad}^{sub} \geq 0$. Während im Falle $\Gamma_{rad}^{sub} = 0$ eine perfekte Bragg-Struktur vorliegt, nimmt die strahlende Zerfallsrate mit der inhomogenen Verbreiterung zu, bis die QF durch die Unordnung entkoppelt sind und die strahlende Lebensdauer der Moden der des SQF entspricht.

Fig. 3.8 zeigt diesen Übergang durch den Vergleich der zeitintegrierten VWM-Signale einer Bragg-Struktur mit $N = 10$ und eines SQF für wachsende inhomogene Breite σ_E . Beim SQF beschleunigt sich der Abfall des zeitintegrierten VWM-Signals zunächst mit zunehmender Unordnung. Der freie Induktionszerfall $I(\tau) \propto \exp(-2\gamma_{hom}\tau)$ geht mit zunehmender Unordnung über in ein photonechoartiges Verhalten $I(\tau) \propto \exp(-4\gamma_{hom}\tau)$. Hierbei ist die Zeitkonstante durch die gesamte homogene Breite $\gamma_{hom} = \gamma_0 + \Gamma_{rad}$ durch strahlende und nichtstrahlende Beiträge gegeben. Ist die inhomogene Breite groß gegen die homogene ($\sigma_E \geq 10\gamma_{hom}$) kann der zweite Puls die Zeitentwicklung der verschiedenen Frequenzkomponenten umkehren, so daß ein Photonecho entstehen kann [8]. Im intermediären Bereich, $\sigma_E \approx \gamma_{hom}$ ist ein Übergang zwischen freiem Induktionszerfall und Photonecho im zeitintegrierten VWM-Signal beobachtbar, wie Fig. 3.8b für geringe inhomogene Breite zeigt. Neben diesem Übergang in der Charakteristik des Signals ist eine Zunahme der inhomogenen Breite von einer Verringerung der Signalamplitude begleitet, die auf zunehmende destruktive Interferenz zurückzuführen ist.

Die Bragg-Struktur zeigt in Fig. 3.8 für geringe und moderate Unordnungsparameter den Zweistufenabfall des VWM-Signals, der auf die Koexistenz von superradianten und subradianten Moden hindeutet. Da die strahlende Verbreiterung

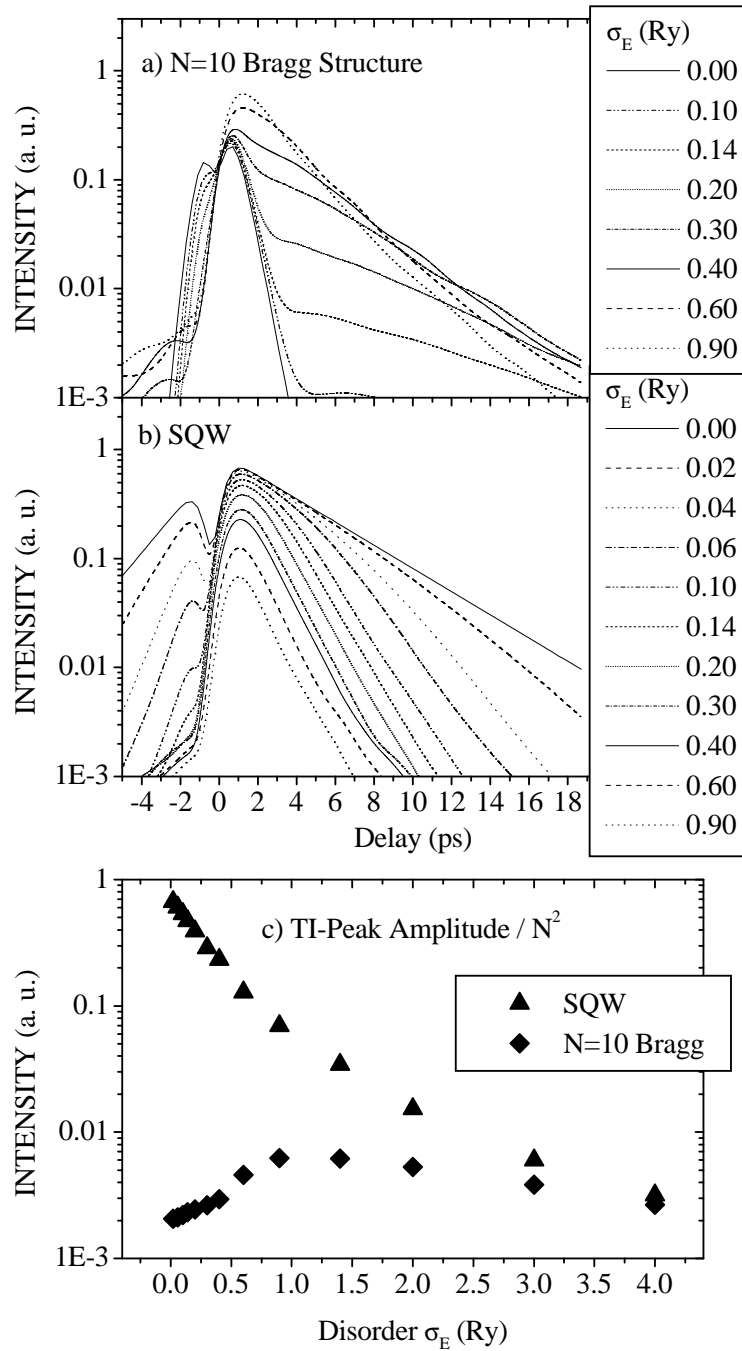


Abbildung 3.8: Zeitintegrierte VWM-Signale in Reflexionsgeometrie einer Bragg-Struktur mit $N = 10$ (a), sowie eines SQF (b) für zunehmende inhomogene Verbreiterung σ_E , c: Maximalamplitude als Funktion der Unordnung

der Komponenten, die bei großem τ beitragen, mit der Unordnung zunimmt, beschleunigt sich der Abfall des Signals für wachsendes σ_E . Gleichzeitig wird durch Unterdrückung der Strahlungskopplung die strahlende Verbreiterung des superradianten Zustandes verringert, bis die QF als bezüglich der Strahlungskopplung separiert betrachtet werden können. In diesem Fall ergibt sich das Gesamtsignal als Summe der Beiträge von N SQF, so daß $I \propto N^2$. Neben der Form des zeitintegrierten VWM-Signals, das zunehmend dem monoexponentiellen Verhalten des SQF gleicht, demonstriert das Verhalten der Signalamplitude der Bragg-Struktur im Vergleich zum SQF diesen Übergang zum ungekoppelten System. Fig. 3.8c zeigt die Signalamplitude der Bragg-Struktur und des SQF als Funktion von der Stärke der Unordnung. Im Gegensatz zum SQF, bei dem die Signalamplitude mit zunehmender inhomogener Breite monoton abnimmt, gibt es bei der Bragg-Struktur zwei konkurrierende Mechanismen, die zu nicht monotonem Verhalten führen. Die Superradianz führt zu einer Verringerung der Signalamplitude im Vergleich zum N^2 -Verhalten, das auf ungekoppelte QF zutrifft. Indem die Unordnung die kohärente Kopplung zunehmend zerstört, wird dieser Effekt unterdrückt, was die Signalamplitude zunächst anwachsen läßt. Schließlich nimmt die Amplitude jedoch als Funktion der Unordnungsstärke aufgrund der zunehmenden destruktiven Interferenz wie beim SQF wieder ab.

Der Übergang zwischen freiem Induktionszerfall und Photonecho in Abhängigkeit von der Zeitverzögerung τ zwischen den Anregungspulsen ist im zeitaufgelösten VWM klar erkennbar. Fig. 3.9 zeigt die entsprechenden Signale für eine Bragg-Struktur mit 10 QF, Fig. 3.10 die gemessenen Signale dazu. Um die gerechneten Ergebnisse mit dem Experiment vergleichen zu können wurde eine Deckschicht von $d_1 = 0.24\lambda$ mitberücksichtigt. Der Einfluß auf die kohärenten optischen Eigenschaften wird im folgenden Abschnitt noch näher untersucht. Die genaue Probengeometrie ist bei der quantitativen Analyse optischer Experimente wichtig, da die Strahlungskopplung sensitiv von den optischen Weglängen innerhalb der Probe abhängt. Bei den theoretischen VWM-Signalen wurde eine inhomogene Verbreiterung des Exziton von $0.2Ry$ angenommen, die in guter Übereinstimmung mit der in einem Photolumineszenzexperiment an dieser Probe gemessenen Linienbreite ist [13, 96].

Die VWM-Experimente wurden in der Gruppe von J. Kuhl am Max Planck Institut für Festkörperforschung in Stuttgart von M. Hübner und D. Ammerlahn durchgeführt. Die Proben wurden bei niedrigen Temperaturen ($8K$) und geringen Intensitäten ($2pJ$) mit zwei kozykular polarisierten, spektral dengenierten Anregungspulse angeregt, um die Wechselwirkung mit Phononen und Ladungsträgerstreuung zu unterdrücken. Die Exzitonendichte lag hierbei in der Größenordnung von $10^9/cm^2$. Die spektrale Breite der $100fs$ -Pulse eines Kerr-Linsen moden-

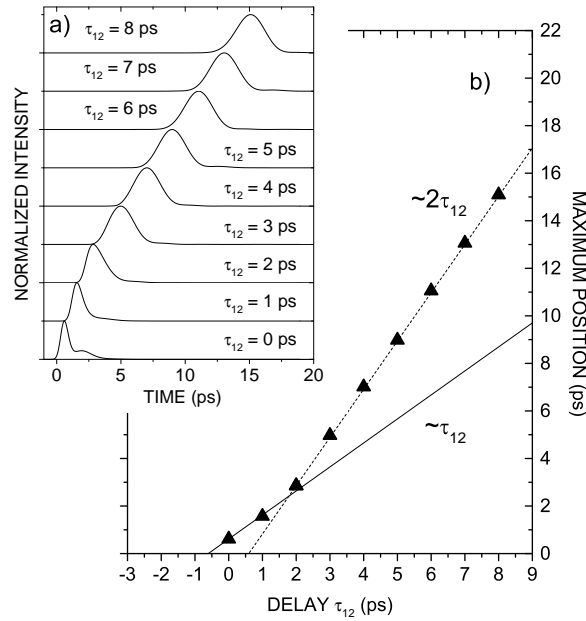


Abbildung 3.9: a: Zeitaufgelöstes VWM-Signal in Reflexionsgeometrie einer $N = 10$ Bragg-Struktur mit $\sigma_E = 0.2Ry$ in Abhängigkeit von der Zeitverzögerung τ zwischen den Anregungspulsen, b: Position des Signalmaximums

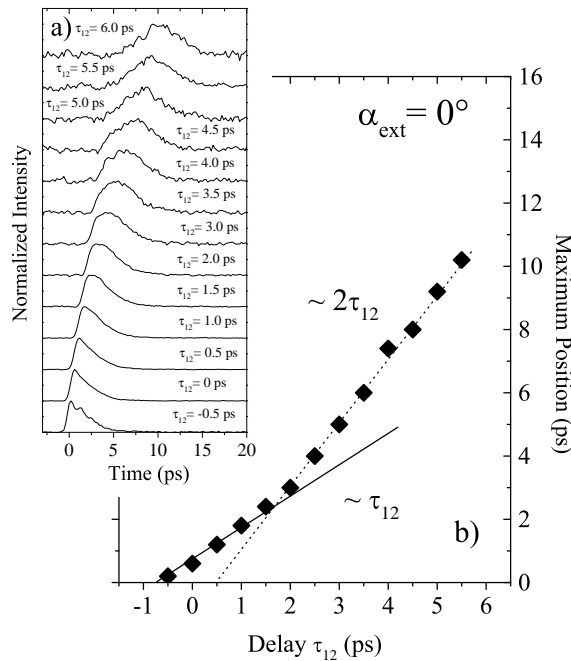


Abbildung 3.10: a: Gemessenes zeitaufgelöstes VWM-Signal in Reflexionsgeometrie einer $N = 10$ Bragg-Probe in Abhängigkeit vom Delay τ , b: Position des Signalmaximums

gekoppelten Ti:Saphir-Lasers wurden durch einen Pulsformer auf $0.8Ry$ begrenzt, wodurch die Anregung freier Ladungsträger bei Anregung des hh-Exzitons vermieden wird. Die Pulslänge beträgt dann etwa $800fs$. Der Winkel zwischen den Anregungspulsen betrug 5° , so daß beide Pulse nahezu senkrecht auf die Probe trafen. Das VWM-Signal in Reflexionsgeometrie wurde mit Hilfe eines $LiIO_3$ -Kristalls mit einem starken $100fs$ -Puls des gleichen Lasers aufkonvertiert, der gleichzeitig die zeitliche Auflösung des Experiments bestimmt.

Die gemessenen Signale werden durch die Theorie gut reproduziert. Bei kleiner Verzögerung τ ist die Signalform in Fig. 3.9, 3.10 noch asymmetrisch als Signatur des freien Induktionszerfalls der superradianten Mode. Nachdem diese abgeklungen ist, dominieren die subradianten Beiträge, die ein Photonecho erzeugen, was sich in der veränderten Signalform niederschlägt. Deutlicher wird der Übergang, wenn man den Zeitpunkt des Signalmaximums gegen die Zeitverzögerung der Anregungspulse aufträgt. Die Signalmaxima liegen zunächst auf einer Geraden $t_{max} \propto \tau$, im subradianten Regime folgen sie dahingegen einer Geraden $t_{max} \propto 2\tau$. Weiterhin ist erkennbar, daß die Maxima der Photonechos gegen $t = 2\tau$ verschoben sind. Im wechselwirkungsfreien Fall sollten sie exakt dort erscheinen. Durch die Strahlungskopplung jedoch gibt es interferierende Beiträge in abgebeugter Richtung. In Gl. 3.11 überlagern sich der Beitrag proportional zum eingestrahnten Pumpimpuls $\propto \tilde{p}_1^{n*}(t)\tilde{p}_2^n(t)E_2\mathcal{E}(t - \tau)$ und die Renormierung durch die kohärente Kopplung $\propto \tilde{p}_1^{n*}\tilde{p}_2^n\tilde{p}_2^m$ destruktiv. Diese destruktive Überlagerung führt auch zu dem lokalen Minimum bei $\tau = 0ps$ in den zeitintegrierten Signalen bei geringer Unordnung (s. Fig. 3.7,3.8).

Der Vorteil des zeitaufgelösten VWM liegt darin, daß die Charakteristik des Signals, freier Induktionszerfall oder Echowhalten, deutlich wird. Das zeitintegrierte Signal erlaubt zwar das einfache Ablesen der Zeitkonstante für den Abfall, jedoch bleibt unbekannt, ob der Abfall einem freien Induktionszerfall oder einem Echowhalten folgt, so daß die homogene Linienbreite noch mit einer Ungenauigkeit von einem Faktor 2 belegt ist. Durch die Analyse der zeitaufgelösten VWM-Signale ist dahingegen die Charakteristik bestimmt. Da für die subradianten Moden $\gamma_{hom} = \gamma_0 + \epsilon\Gamma_{rad}$ mit $\epsilon \ll 1$, konnte damit durch Auswertung des Langzeitverhaltens im zeitintegrierten VWM die nichtstrahlende Zerfallsrate der Polarisation mit $\gamma_0 \leq 0.01Ry$ für diese und vergleichbare Proben abgeschätzt werden [13]. Dieser Wert ist in guter Übereinstimmung mit spektral scharfen Signaturen in VWM-Spektren bei großer Zeitverzögerung zwischen den Anregungspulsen [96]. Auch bei vergleichbar hochwertigen SQF-Proben ist daher die homogene Linienbreite durch den strahlenden Zerfall dominiert.

3.2.3 Einfluß der dielektrischen Umgebung

Wie im vorangegangenen Abschnitt angedeutet, ist die strahlende Lebensdauer von Anregungen keine intrinsische Eigenschaft von QF, sondern hängt von seiner Umgebung innerhalb der Probe ab. Neben der Periodizität in MQF, bei denen die optischen Resonanzen innerhalb der verschiedenen QF zu vor- und rücklaufenden Komponenten innerhalb der Struktur sorgen, die sich mit der Geometrie entsprechenden Phasen überlagern, spielt auch die dielektrische Umgebung eine Rolle. An Grenzschichten zwischen verschiedenen Dielektrika treten ebenfalls Reflexion und Transmission auf. Aufgrund des hohen Brechungsindexunterschied zwischen dem Halbleitermaterial und der Luft hängen die kohärenten optischen Eigenschaften insbesondere von der Reflektivität dieser Grenzfläche und der Dicke der Deckschicht ab, die in realen Proben stets vorliegt. In diesem Abschnitt wird die Abhängigkeit des strahlenden Zerfalls von der Deckschicht näher untersucht. Hierbei wird die Probe unter dem Brewster-Winkel angeregt, so daß Einflüsse der Reflexion an der Halbleiter/Luft Grenzfläche in der Polarisationsrichtung senkrecht zur Einfallsebene sich besonders stark auswirken, während in der p-Polarisation die Reflektivität und damit der Einfluß auf den strahlenden Zerfall verschwindet.

Für den Imaginärteil der strahlenden Energienormierung beim SQF mit einer Deckschicht der Dicke d_1 ergibt sich als effektive Zerfallsrate:

$$\Gamma'_{rad} = \Gamma_{rad} \left(1 + r_{bv} \cos \left(4\pi \frac{d_1}{\lambda} \right) \right), \quad (3.13)$$

während durch den Realteil eine Energieverschiebung bestimmt ist:

$$\Delta\omega = \Gamma_{rad} \left(1 - r_{bv} \sin \left(4\pi \frac{d_1}{\lambda} \right) \right). \quad (3.14)$$

Der Reflexionskoeffizient ist hierbei nicht nur von den Materialparametern abhängig, sondern auch von der Polarisationsrichtung des einfallenden Lichts. Man entnimmt den Formeln, daß die maximale Zerfallsrate bei $d_1 = m\lambda/2$ mit m ganzzahlig auftritt, minimale bei $d_1 = (2m+1)\lambda/4$. Da in die Kopplungskonstante $\Gamma_{rad} \propto |\varphi_{1s}(0)|^2$ der Überlapp der Wellenfunktionen von Elektron und Loch eingehen und i.a. für reale QF endlicher Breite $|\varphi_{1s}^{2D}(0)|^2 \geq |\varphi_{1s}(0)|^2 \geq |\varphi_{1s}^{3D}(0)|^2$ stellt der theoretische Wert von $\Gamma_{rad} = 0.014Ry$ für das ideale 2D-System eine obere Grenze für QF dar.

In Fig. 3.11 sind berechnete und experimentelle zeitintegrierte VWM-Signale für zwei verschiedenen SQF dargestellt. Im Experiment wird das abgebeugte Signal hierbei durch einen langsamen Photodetektor aufintegriert. Bei Anregung unter

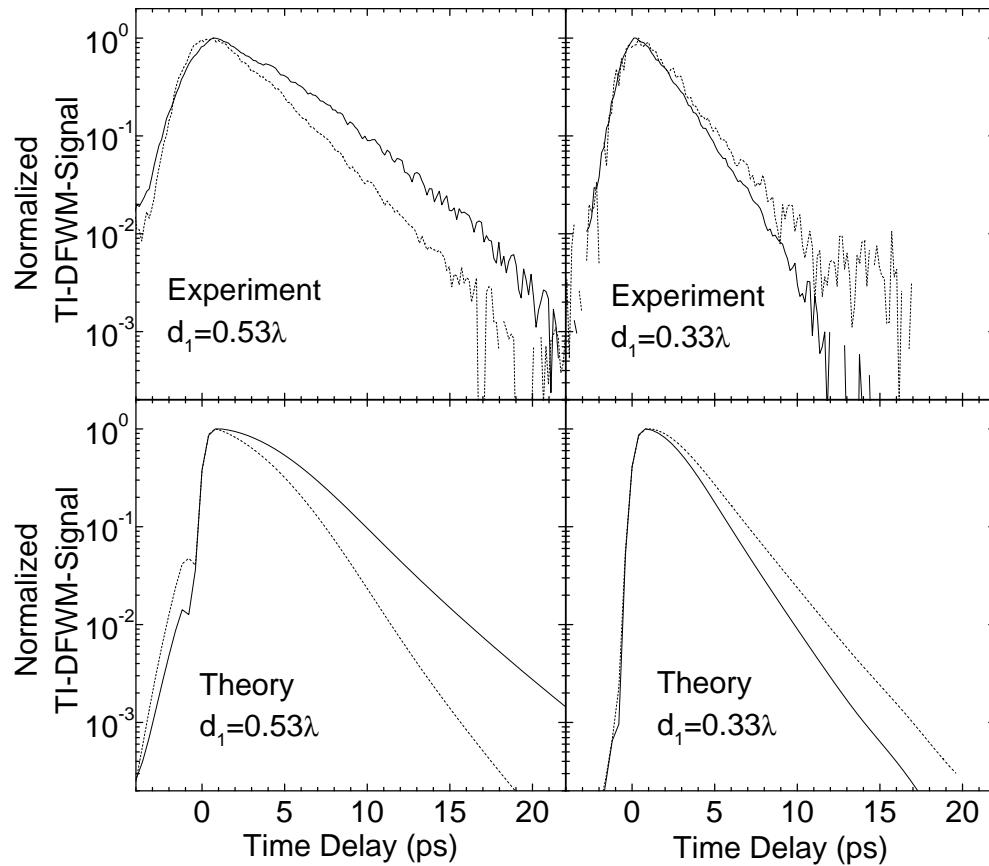


Abbildung 3.11: Gemessenes und berechnetes zeitintegriertes VWM-Signal in Reflexionsgeometrie eines SQF mit $d_1 = 0.53\lambda$, $\sigma_E = 0.07Ry = 0.29meV$ und eines SQF mit $d_1 = 0.33\lambda$, $\sigma_E = 0.11Ry = 0.45meV$ für Anregung unter dem Brewster-Winkel in p-Polarisationsrichtung (durchgezogen) und s-Polarisation (gestrichelt)

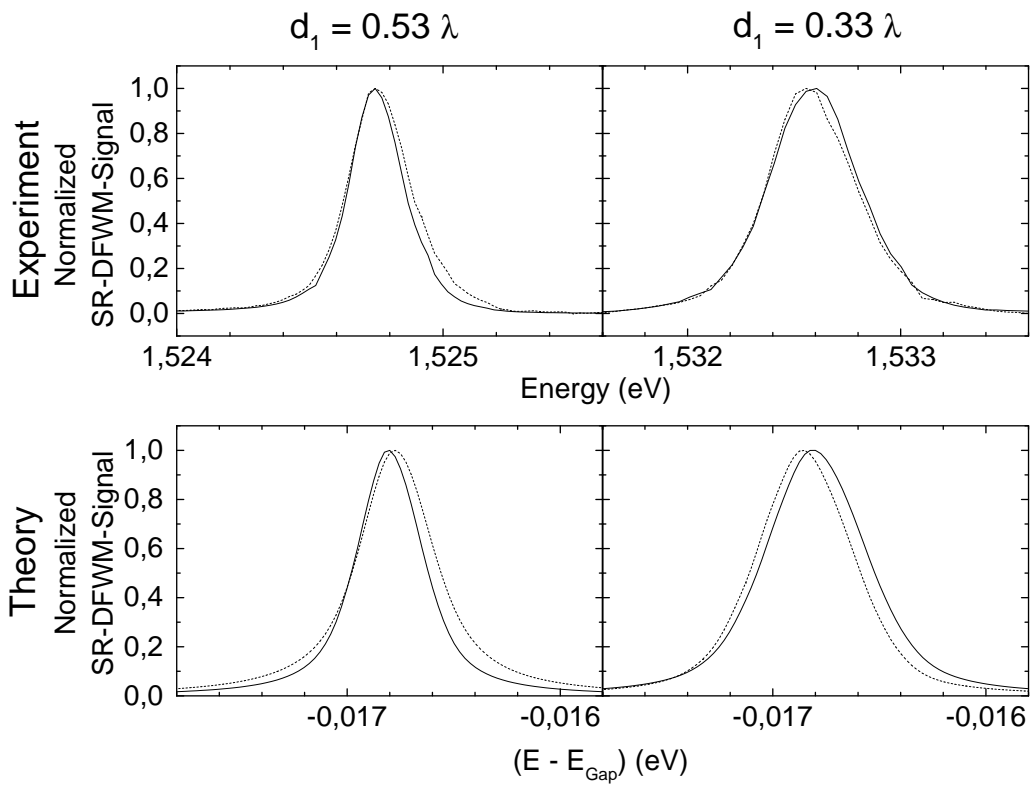


Abbildung 3.12: Gemessene und berechnete VWM-Spektren bei $\tau = 0ps$ eines SQF mit $d_1 = 0.53\lambda$, $\sigma_E = 0.07Ry = 0.29meV$ und eines SQF mit $d_1 = 0.33\lambda$, $\sigma_E = 0.11Ry = 0.45meV$ für Anregung unter dem Brewster-Winkel in p-Polarisationsrichtung (durchgezogen) und s-Polarisation (gestrichelt)

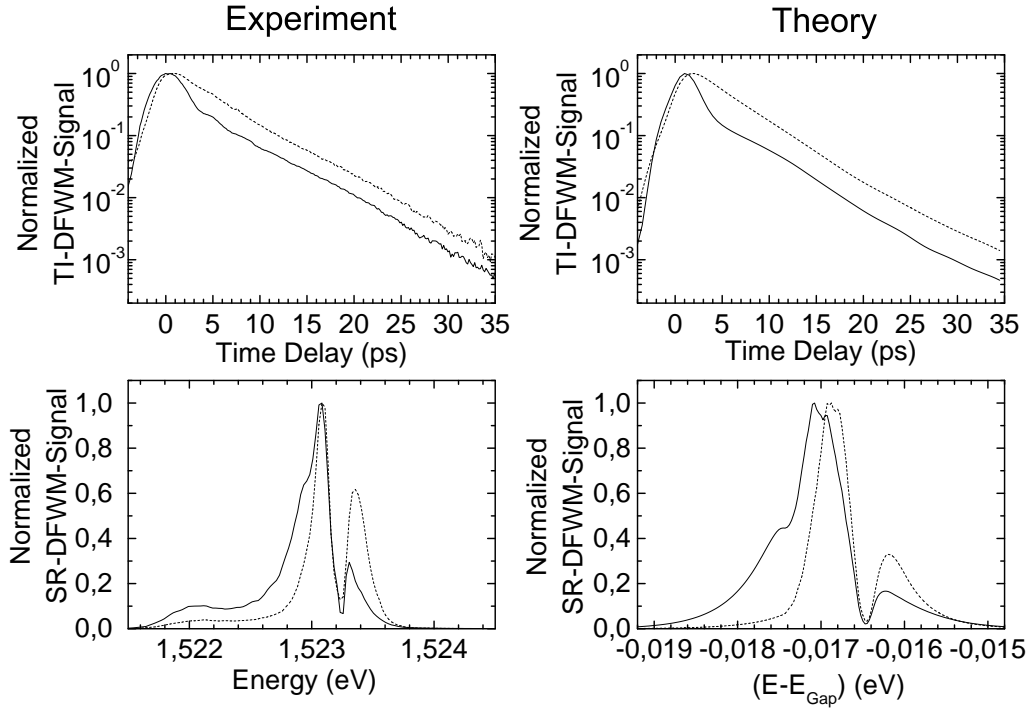


Abbildung 3.13: gemessenes und berechnetes zeitintegriertes VWM-Signal, sowie Spektren bei $\tau = 2ps$ einer Bragg-Struktur mit $N = 10$, $\sigma_E = 0.12Ry = 0.50meV$ bei Anregung unter dem Brewster-Winkel in p-Polarisation (durchgezogen) und s-Polarisation (gestrichelt)

dem Brewster-Winkel ergeben sich signifikante Unterschiede in den Abfallszeiten des Signals in Abhängigkeit von der Polarisationsrichtung. Bei $d_1 = 0.53\lambda$ führt die Reflexion an der Halbleiter/Luft Grenzfläche zu einer Verstärkung des strahlenden Zerfalls, so daß das Signal in s-Polarisation schneller abfällt als in der p-Polarisation, bei der der Einfluß der Deckschicht entfällt. Die zweite Probe mit $d_1 = 0.33\lambda$ zeigt in Einklang mit Gl. (3.13) umgekehrtes Verhalten. Die starke Oberflächenreflexion in der s-Polarisation führt hier zu einem verlangsamten Abfall des Signals im Vergleich zur p-Polarisation.

Neben den Effekten durch die Deckschicht wird hier der Einfluß der Unordnung in den Proben sichtbar. Der lange Übergangsbereich bei kleiner Zeitverzögerung zwischen den Anregungspulsen beim $d_1 = 0.53\lambda$ -QF ist auf die geringe inhomogene Breite von $\sigma_E = 0.07Ry$, die aus Photolumineszenzspektren bekannt ist, im Vergleich zur homogenen Gesamtverbreiterung zurückzuführen, wie schon in Fig. 3.8b beobachtet. Dagegen zeigt die Probe mit $d_1 = 0.33\lambda$ aufgrund ihrer größeren inhomogenen Breite von $\sigma_E = 0.11Ry$ instantan einen photonechoartigen Abfall.

Die Energieverschiebung für die verschiedenen Proben und Polarisati-

onrichtungen werden in den VWM-Spektren deutlich (Fig. 3.12). Diese ergeben sich durch Fourier-Transformation des zeitaufgelösten Signals, $I(\omega) = \int dt I_R(t, \tau) \exp(-i\omega t)$. Die durch Gl. (3.14) vorhergesagten Energieverschiebungen sind sehr klein und liegen nah am Auflösungsvermögen des Spektrometers. Der Vergleich mit den theoretischen Spektren zeigt jedoch, daß die Verschiebung von $\Delta\omega = 0.005Ry$ bei $d_1 = 0.53\lambda$ und $\Delta\omega = 0.009Ry$ bei $d_1 = 0.33\lambda$ der Spektren in s-Polarisation gegenüber der p-Polarisation in die richtige Richtung erfolgen.

Die Argumente für den SQF gelten qualitativ auch für die superradiante Mode der Bragg-Struktur. Durch die N -fache strahlende Verbreiterung erfahren die Effekte jedoch eine Verstärkung. Fig. 3.13 zeigt experimentelle und theoretische zeitintegrierte und spektral aufgelöste VWM-Signale für eine Bragg-Struktur mit $N = 10$. Die Dicke der Deckschicht beträgt hier $d_1 = 0.24\lambda$. Die zeitintegrierten Signale in der p-Polarisation zeigen den schon in Fig. 3.8a zu beobachtenden unordnungsinduzierten Zweistufenabfall ($\sigma_E = 0.12Ry$ Photolumineszenzlinienbreite).

Neben der Unordnung wirkt sich hier auch eine geringe Verstimmung der Struktur gegen die Bragg-Bedingung aufgrund des endlichen Winkels aus [46, 75]. Deutlich ist die Koexistenz von superradiantem Zustand und subradianten Moden zu erkennen. Der Einfluß der Reflexion an der Halbleiter/Luft Grenzschicht führt hier in der s-Polarisation zu qualitativ unterschiedlichem Verhalten. Da aufgrund der großen Reflektivität der Grenzschicht in dieser Polarisationsrichtung ein hoher Anteil der Felder mit einer der optischen Weglänge d_1 entsprechenden Phase von nahezu π in die Struktur zurückgekoppelt wird, kann der superradiante Zerfall durch destruktive Interferenz nachhaltig unterdrückt werden. Dagegen zeigen sich kaum Unterschiede der Polarisationsrichtungen im Langzeitverhalten, da der strahlende Anteil zum Dephasieren bei den subradianten Moden eine eher untergeordnete Rolle spielt.

Die Interpretation der zeitintegrierten Signale findet ihre Entsprechung in den VWM-Spektren. Diese zeigen spektral scharfe, jedoch dominant inhomogen verbreiterte Signaturen der subradianten Moden in beiden Polarisationsrichtungen. Dem Dip in Reflexionsgeometrie entspricht hierbei ein Peak in der Transmission [97]. In der p-Polarisation ist ein spektral breiter Untergrund sichtbar, der aufgrund der Verstimmung ($d = 0.49\lambda$) insbesondere auf der niederenergetischen Seite des Spektrums beiträgt. Dieser verschwindet in der s-Polarisation während die subradianten Beiträge erhalten bleiben.

Kapitel 4

Unordnung in Mikroresonatoren

Lag in den vorangegangenen Abschnitten lediglich eine Dimensionsreduzierung für das Ladungsträgersystem vor, so werden in diesem Kapitel die Konsequenzen einer Dimensionsreduzierung für das Lichtfeld in Anwesenheit von Unordnung untersucht. Durch hochreflektive Spiegel, die aus alternierenden Halbleiterschichten unterschiedlicher Brechungsindizes bestehen, deren Dicke einer viertel Wellenlänge der Exzitonresonanz in der entsprechenden Schicht beträgt (DBR Distributed Bragg-Reflector), werden die Moden des optischen Feldes innerhalb des Resonators in Wachstumsrichtung quantisiert. In der Richtung der Schichtebenen dagegen liegt weiterhin ein Kontinuum von Zuständen zu jeder Mode in Wachstumsrichtung vor, deren spektrale Lage durch die Dispersion des Resonators gegeben ist. Durch die geringen Abmessungen typischer Mikroresonatoren (s. Fig. 4.1) in der Größenordnung der Resonanzwellenlänge sind die Moden in Wachstumsrichtung energetisch stark separiert, so daß der Resonator im spektralen Bereich um das Exziton bezüglich dieser Richtung als einmodig betrachtet werden kann.

Ist ein QF eingeschlossen in einem Mikroresonator, so führt die Licht-Materie-Wechselwirkung zu einer Mischung der Zustände von Exziton und Resonatormode. Die Quasiteilchen des gekoppelten Systems als Linearkombination der ungekoppelten Zustände werden Polaritonen genannt. Die optischen Spektren zeigen eine Aufspaltung in zwei Polaritonenzweige, falls die Kopplung die Lebensdauer von Exziton und Resonatormode übersteigt (Regime starker Kopplung). Ist dies nicht der Fall, so erscheint nur eine Resonanz im Spektrum. Exziton und Resonatormode können noch als gute Eigenzustände angesehen werden (Regime schwacher Kopplung). Das Konzept des Polaritons ist schon vom Volumenhalbleiter her bekannt [29, 98, 99] und wurde zur Anwendung auf QF in Mikroresonatoren erweitert [5, 100, 101, 102].

In den ersten Ansätzen zur theoretischen Beschreibung des Einflusses von Unordnung auf die optischen Eigenschaften von Mikroresonatoren wird das Exziton

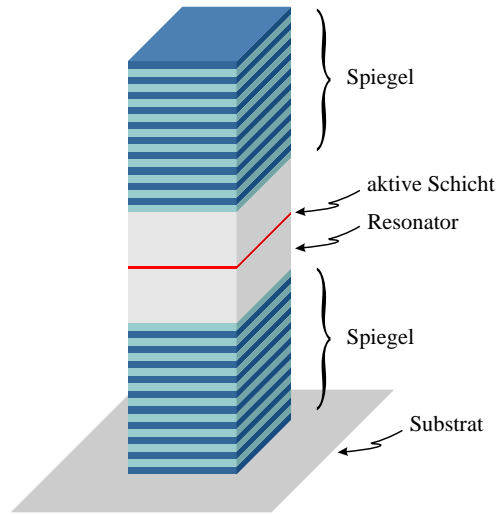


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung eines Mikroresonators mit DBR und einem QF als optisch aktivem Medium

im Unordnungspotential als ein inhomogen verbreitertes Ensemble von optischen Übergängen betrachtet [103, 104]. Dies entspricht dem Grenzfall großer Korrelationslänge des Unordnungspotentials im Vergleich zum Bohr-Radius des Exzitons, der hier schon im Zusammenhang mit VWM an MQF diskutiert wurde (s. Kap. 2.3, 3.2). Die Streuung des Exzitons, d.h. der Bruch der Translationsinvarianz in der QF-Ebene wird hierbei vernachlässigt. Experimentell beobachtete, zeitaufgelöste, lineare Signale [105] konnten mit diesem Modell in ihrem Abfall und Oszillationsverhalten erfolgreich beschrieben werden.

Motiviert durch die Tatsache, daß die Längenskala der Mittelung eines quantenmechanischen Teilchens der Masse m in einem Unordnungspotential mit Fluktuationen auf eine Skala σ mit seiner De Broglie-Wellenlänge $\lambda_{DB} = 1/\sqrt{2m\sigma}$ verknüpft ist, wurde vermutet, daß in Mikroresonatoren Mittelungseffekte in Analogie zur Unordnungsmittelung durch die Relativbewegung des Exzitons auftreten [35, 36, 37]. Hierbei wird für die Photonen im Resonator der Länge L_z eine parabolische Dispersion angenommen, $E(K) \propto \sqrt{(\frac{2\pi}{L_z})^2 + K^2} \approx \frac{2\pi}{L_z} + \frac{L_z}{4\pi} K^2$, mit deren Hilfe eine effektive Masse dem Photon eine effektive Masse zugeordnet wird. Aus den effektiven Massen von Photon und Exziton ergibt sich dann eine Polaronmasse, die durch die Beimischung des Photons im Vergleich zum Exziton reduziert ist. Die parabolische Näherung ist jedoch nur um $K = 0$ gültig, wohingegen bei der Streuung am Unordnungspotential hohe Impulsüberträge eine

Rolle spielen können. Das Modellsystem des idealen Resonators mit phänomenologischer Photonenlebensdauer und parabolischer Dispersion wird der komplexen Modenstruktur realer Mikroresonatoren nicht gerecht.

Es wurden Linienbreiten für hoch- und niederenergetisches Polariton vorhergesagt, die unter der Linienbreite liegen, die eine Konvolution einer Lorentz-Linie der Resonatorlinienbreite mit einer Gaußkurve der inhomogenen Verbreiterung ergeben. Dieser Effekt wurde der Streuung des Polaritons am Unordnungspotential zugeschrieben, der gemäß der Projektion des Polaritons als Linearkombination photonischer und exzitonischer Zustände auf den exzitonischen Unterraum erfolgt. Die experimentellen Befunde jedoch konnten durch die LDT erklärt werden, welche die Streuung der Resonatormoden vernachlässigt. Die Asymmetrie der Polaritonspektren kann als Konsequenz einer asymmetrischen Linienform des Exzitons verstanden werden, wobei der Mikroresonator als spektraler Filter wirkt [38, 40, 39].

In vielen theoretischen Ansätzen wird auf eine selbstkonsistente Beschreibung der Propagation des optischen Feldes durch die DBR verzichtet, wodurch die Resonanzstruktur der Resonatormoden vernachlässigt wird. Statt dessen wird eine homogene Verbreiterung für das photonische System eingeführt, durch die die Verluste bei endlicher Reflektivität der Spiegel berücksichtigt werden sollen [35, 36, 37, 40]. Diese Inkonsistenz beruht auf der Wahl des Resonators als Quantisierungsvolumen für das optische Feld, die ideale Spiegel voraussetzt. Die Ankopplung an ein externes Feld, durch die erst ein optisches Experiment ermöglicht wird, kann dann nur nachträglich durch das Definieren einer Photonlebensdauer im Resonator berücksichtigt werden. Der sogenannte Quasimodenformalismus geht darüber hinaus, indem Bewegungsgleichungen für das externe Feld, das über eine lineare Kopplung an die Resonatorphotonen angreift, und das durch die Photonen getriebene Exziton gelöst werden [104, 106]. Auch in diesem Ansatz wird die Modenstruktur durch die Schichtgeometrie nicht berücksichtigt. Im Rahmen des hier gewählte semiklassischen Ansatzes kann auf einfache Weise durch eine Transfermatrixmethode (s. Kap. 2.4) die Propagation des optischen Feldes durch die verschiedenen Halbleiterschichten beschrieben werden, so daß das Problem der Ankopplung an ein externes Feld nicht auftritt und gleichzeitig die Modenstruktur selbstkonsistent aufgebaut wird. In der linearen Optik, die hier diskutiert wird, ist die semiklassische Theorie dabei äquivalent zur Quantentheorie des Lichtfeldes. Eine Quantentheorie des Lichtfeldes, die ebenfalls der Schichtstruktur gerecht wird, erfordert eine Entwicklung nach den Eigenmoden des Feldes in Anwesenheit des stufenförmigen Brechungsindexprofils der DBR [107, 85].

Weiterhin bleibt die Frage bestehen, ob die Streuung des Exzitons am Unordnungspotential zu signifikanten Effekten in den optischen Spektren von Mikrore-

sonatoren führt. Ist die Dynamik allein durch die fundamentale Mode des Resonators als dominanten Zerfallskanal der optischen Anregung bestimmt, so wäre die LDT uneingeschränkt auf diese Strukturen anwendbar. In diesem Kapitel wird jedoch gezeigt werden, daß die Streuung des Exzitons am Unordnungspotential zu einer Kopplung der Resonatormoden führt, die zusätzliche Signaturen in den Spektren bedingt. Diese Signaturen können mit der LDT nicht reproduziert werden. Die Moden des Resonators wirken nicht rein dissipativ indem sie einen Zerfallskanal für die optische Anregung bieten, sondern führen durch die Wechselwirkung mit dem Exziton im Unordnungspotentials zu neuen Eigenzuständen des Systems. Die optischen Eigenschaften eines QF in einem Mikroresonator können also nicht in Form einer exzitonischen Resonanz verstanden werden, deren optische Antwort durch die DBR spektral gefiltert wird, sondern es müssen polaritonische Effekte im Sinne einer Wechselwirkung des ungeordneten QF mit dem komplexen System an Eigenmoden des Resonators berücksichtigt werden. Die Streuung des Exzitons an der Unordnung, wie auch die Lichtkopplung müssen auf der gleichen Ebene behandelt werden. Dies bedeutet nicht nur die Berücksichtigung der fundamentalen Mode, sondern auch des Kontinuums an höheren Eigenzuständen des Resonators, die sich für $K > 0$ anschließen. Insbesondere für den Übergangsbereich zwischen dem Regime starker und schwacher Kopplung wurde ein Einfluß des strukturierten Kontinuums an Resonatormoden auf die optischen Eigenschaften von Mikroresonatoren vorhergesagt [108].

Eine dritte Resonanz im Polaritonspektrum wurde experimentell schon in Pump-Probe-Experimenten beobachtet [109], die Interpretation als Stark-Triplet eines stark gepumpten Zweiniveausystems ist jedoch einem Halbleitersystem nicht angemessen. Bei hohen Pumpintensitäten spielen Ladungsträgerstreuungsprozesse eine dominante Rolle, die hier vernachlässigt wurden. Durch das Mollow-Spektrum des gepumpten Zweiniveausystems im optischen Resonator wird jedoch ein zentraler Aspekt erfaßt, der auch hier eine Rolle spielen wird. Der dritte Peak entsteht durch die Interferenz von Resonanzen, die sich destruktiv überlagern. Hierdurch werden sehr schmale Linien in den Spektren möglich.

Eine Vielzahl von Effekten beruht auf diesem Mechanismus. Für die Resonanz-Fluoreszenz-Spektren eines Dreiniveaumatoms wurden spektrale Signaturen vorhergesagt, deren Breite um zwei Größenordnungen unter der Lebensdauer der einzelnen angeregten Zustände liegen [110]. Dieser Effekt beruht auf der Quanteninterferenz der angeregten Zustände, die durch eine Kopplung der Übergänge induziert wird. Für ein Dreiniveausystem, bei dem die angeregten Zustände neben dem Grundzustand in einen gemeinsamen zusätzlichen Zustand oder ein gemeinsames Kontinuum zerfallen können, wurde für einen gewisse Frequenz eine durch Quanteninterferenz verschwindende Absorption bei endlicher Emission

vorhergesagt [112, 113]. Hierdurch ist es möglich, ein Laserfeld ohne Inversion zu verstärken [114, 115]. In der Halbleiteroptik liegt häufig eine Situation vor, bei der zwei diskrete Niveaus über ein Kontinuum gekoppelt sind. Dies führt zu sogenannten Fano-Resonanzen [111], die ebenfalls durch die Interferenz der gekoppelten Zustände entstehen. Die dabei entstehenden Linienbreiten können analog zu atomaren Systemen spektral sehr schmal sein [116, 117, 118, 119].

Das hier untersuchte System besteht aus einem QF, der sich in einem GaAs-Resonator der Länge der Resonanzwellenlänge zwischen den Spiegeln aus alternierenden Schichten verschiedenen Halbleitermaterials befindet (s. Fig. 4.1). Da für hohe Spiegelreflektivitäten Materialien mit hohem Brechungsindexunterschied vorteilhaft sind, haben sich in der Praxis GaAs/AlAs-Schichten durchgesetzt, die sich problemlos in dicken Schichten abscheiden lassen, ohne dabei zu hohe Verspannungen aufzubauen. Es werden hier Reflektoren aus 10 Perioden GaAs/AlAs für den oberen Spiegel und 12.5 Perioden für den unteren simuliert. Während sich auf der Unterseite der Probe das Substrat anschließt, befindet sich eine Grenzfläche zur Luft auf der Oberseite. Das Brechungsindexprofil wird hier durch eine reelle Funktion $\epsilon_b(z)$ beschrieben. In dieser Approximation findet keine Absorption innerhalb dieser Schichten statt.

Durch das Brechungsindexprofil existieren verschiedene Bereiche von Moden. Bis zu einem gewissen Wert der Projektion des Wellenvektors auf die Schichtebene können die Moden im gesamten System propagieren. Aufgrund des höheren Brechungsindex des Halbleitermaterials gegenüber der Luft existieren Moden, die nur innerhalb der Probe und dem Substrat propagieren können. Diese geführten Moden sind in der Luft evaneszent. Da der Brechungsindexunterschied der Halbleitermaterialien, aus denen die DBR aufgebaut sind, im Vergleich zum Indexsprung zur Luft relativ gering ist, gibt es ein schmales Intervall von Wellenvektoren, die allein im Resonator propagieren können, nicht jedoch in den AlAs-Schichten. Während der SQF an ein weitgehend flaches Kontinuum an optischen Moden koppelt, ist dieses im Resonator durch die Dimensionsreduzierung stark strukturiert. Dies gilt sowohl für die Modenstärke, als auch für die Energie und Verbreiterung [108].

In Fig. 4.2b sind die Transmissionsspektren des Mikroresonators in Abhängigkeit von der Stärke der Unordnung σ bei einer Korrelationslänge $\lambda_c = 0.5a_0$ und einer nichtstrahlenden Dephasierungsrate von $\gamma_0 = 0.08Ry$ bei senkrechtem Einfall des anregenden Feldes dargestellt. Für $\sigma = 0$ zeigen sich zwei Linien als Folge der Normalmodenkopplung der entarteten Resonanzen von Resonatormode und QF-Exziton. Bei wachsender Unordnung werden die Transmissionslinien von niederenergetischem und hochenergetischem Polaritonenzweig asymmetrisch verbreitert. Bei $K = 0$ ist der hochenergetische Zweig exzitonartig und ändert seine

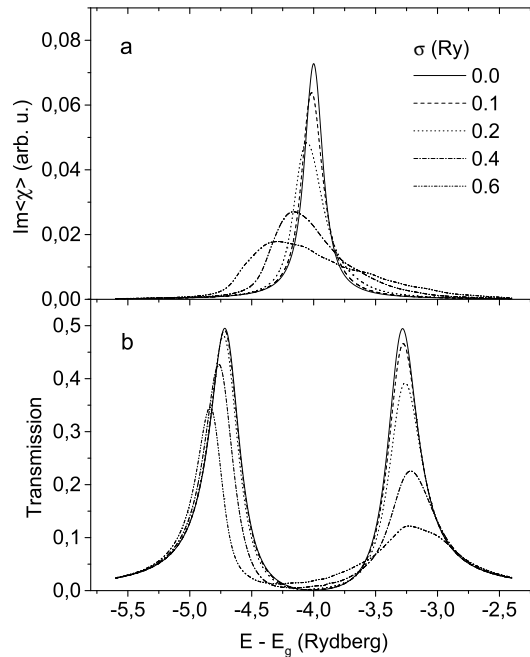


Abbildung 4.2: Imaginärteil der gemittelten Suszeptibilität (a) und Transmissionspektren eines Mikroresonators (b) in Abhängigkeit von der Stärke der Unordnung σ und Korrelationslänge $\lambda_c = 0.5a_0$ bei $\gamma_0 = 0.08Ry$

Charakteristik für wachsendes K in ein lichtartiges Verhalten (s. Fig. 4.4). In der Transmission kann hier also eine stärkere Verbreiterung erwartet werden als beim niederenergetischen Zweig, der bei $K = 0$ lichtfeldartig ist. Die Asymmetrie läßt sich aber auch schon allein aus der Linienform der Suszeptibilität verstehen, die für kurze Korrelationslängen $\lambda_c \leq a_0$ eine steile niederenergetisch Flanke besitzt, während die hochenergetische Seite einen schwächeren Abfall zeigt (s. Fig. 4.2a). Die Asymmetrie des Spektrums kann daher durch die LDT erklärt werden.

In Fig. 4.3 wird die nichtstrahlende Linienbreite, die Streuprozesse mit anderen Quasiteilchens innerhalb des QF repräsentiert, bei Unordnungsparametern $\sigma = 0.6Ry$, $\lambda_c = 0.5a_0$ sukzessiv erhöh. Dargestellt sind die Transmissionspektren der vollen Vektor-Maxwell-Rechnung im Vergleich zur LDT, in welche die gemittelte Suszeptibilität eingeht. Das Erhöhen der Dephasierungsrate hat den Übergang vom Regime starker zu schwacher Kopplung zur Folge. Übertrifft die homogene Verbreiterung des Exzitons die Normalmodenaufspaltung, so erscheint lediglich eine Linie im Transmissionspektrum. In diesem Regime, sowie bei kleinen nichtstrahlenden Dephasierungsraten γ_0 zeigt die LDT gute Übereinstimmung mit der vollen Rechnung. Im intermediären Bereich dagegen erscheint in den Transmissionspektren eine zusätzliche Resonanz, die von der LDT nicht re-

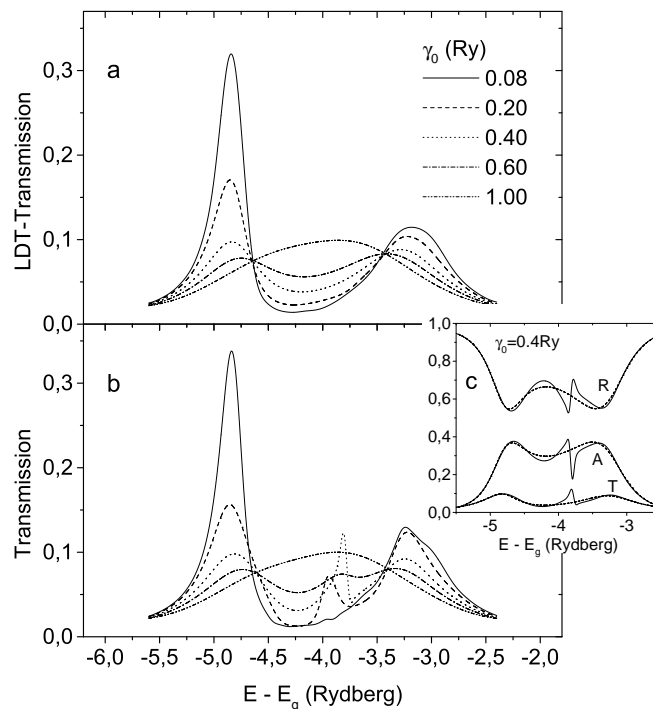


Abbildung 4.3: Transmissionsspektren (b) in Abhängigkeit von der nichtstrahlenden Dephasierungsrate γ_0 bei festen Unordnungsparametern $\sigma = 0.6Ry$, $\lambda_c = 0.5a_0$ im Vergleich zum LDT-Rsultat (a), c: Reflexion (R), Transmission (T) und Absorption (A) mit entsprechenden LDT-Ergebnissen

produziert wird.

In Abwesenheit von Unordnung sind die polaritonischen Zustände bei $K = 0$ Eigenzustände des Systems. Es sind zwei Linien im Transmissionsspektrum sichtbar als Konsequenz der polaritonischen Aufspaltung. Durch die Streuung des Exzitons an der Unordnung koppeln die Moden bei $K = 0$ an Zustände mit $K \neq 0$, denn die Eigenzustände der Schwerpunktsbewegung des Exzitons im Unordnungspotential stellen eine Überlagerung einer Vielzahl ebener Wellen dar, die je nach Stärke der Lokalisierung einer mehr oder weniger breiten Verteilung von Wellenvektoren genügt. Damit sind die Eigenzustände im Unordnungspotential an eine entsprechend breite Verteilung an Resonanzmoden gekoppelt. Über das strukturierte Kontinuum der Resonanzmoden wird daher eine Wechselwirkung der QF-Zustände im Unordnungspotential vermittelt. Dies gilt insbesondere bei kleinen Korrelationslängen im Vergleich zum Exziton Bohr-Radius, bei denen die lokalisierten Zustände eine große Ausdehnung im Impulsraum besitzen können, so daß an sie alle Resonanzmoden gleichermaßen angreifen.

Neben der Amplitude des Unordnungspotential ist durch das nichtstrahlende

Dephasieren eine zweite Energieskala für die Streuung definiert. Sie bestimmt einerseits den energetischen Überlapp möglicher Anfangs- und Endzustände eines Streuprozesses, andererseits wird die Kohärenz der Streuung durch das Dephasieren gestört (s. Gl. 2.33). Durch Erhöhen des nichtstrahlenden Dephasierens wird daher Unordnungsstreuung über einen weiten Energiebereich ermöglicht. Ist das nichtstrahlende Dephasieren, wie auch die inhomogene Breite in der Größenordnung der polaritonischen Aufspaltung, so erscheint eine spektral schmale, zusätzliche Linie durch Interferenz mit dem Kontinuum an geführten und propagierenden Moden. Im Transmissionsspektrum wird daher eine Fano-artige Resonanz sichtbar. Die dispersive Linienform ist in Fig. 4.3c gut erkennbar. Der Anstieg der Transmission ist bei $\gamma_0 = 0.4Ry$, was etwa der halben Normalmodenaufspaltung entspricht, mit einem Rückgang der Absorption und einer erhöhten Reflexion gegenüber dem LDT-Resultat verbunden.

Durch weiteres Erhöhen des nichtstrahlenden Dephasierens geht das System über in das Regime schwacher Kopplung. Gleichzeitig übertrifft die homogene die inhomogene Verbreiterung, so daß sich das System wieder dem geordneten Fall annähert. Damit verschwindet auch die Interferenz zwischen den polaritonischen Zuständen und das Spektrum zeigt nur eine Linie für die entarteten Resonanzen von Resonatormode und QF-Exziton. Der Interferenzeffekt tritt also im Übergangsbereich von starker zu schwacher Kopplung auf.

Das gekoppelte System aus ungeordnetem QF und Resonatormode kann also nicht in Form eines inhomogen verbreiterten Exzitons verstanden werden, das durch die fundamentale Resonatormode als frequenzabhängigen Kanal strahlend zerfallen kann, verstanden werden. Die Strahlungskopplung wirkt nicht rein dissipativ, sondern führt zu komplex renormierten neuen Eigenzuständen. Schon beim SQF führt die Koexistenz von strahlenden und nichtstrahlenden Moden zu Effekten, die jenseits eines rein dissipativen Prozesses liegen. Drastischer sind die Konsequenzen im optischen Resonator, bei dem eine starke Strukturierung des Kontinuums von optischen Zuständen durch die Dimensionsreduzierung vorliegt. Das System kann hier nur in seiner komplexen Modenstruktur verstanden werden. Gerade durch die Streuung der Exzitonen am Unordnungspotential und der daraus folgende Streuung der Resonatormoden gewinnt die Resonanzstruktur der höheren Moden, die durch die Geometrie der aufeinanderfolgenden Halbleiterschichten bestimmt ist, Einfluß auf die optischen Eigenschaften des Systems.

Das Auftreten dieser dritten Resonanz im Polariton Spektrum kann auch in Analogie zur Quanteninterferenz in atomaren Systemen verstanden werden. Die im unordnungsfreien Fall optisch sichtbaren Übergänge sind die polaritonischen Resonanzen vom nieder- und hochenergetischen Zweig. In Anwesenheit von Unordnung sind diese über dunkle Zustände, für $K > 0$ gekoppelt (s. Fig. 4.4).

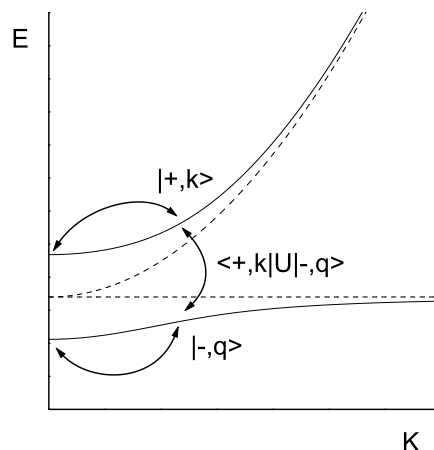


Abbildung 4.4: Schematische Darstellung einer Polaritondispersion mit hochenergetischem (+) und niederenergetischen (-) Zweig

Die Moden für $K > 0$ können nicht direkt angeregt werden. Das einfachste Bild besteht aus jeweils einem subradianten Hilfsniveau für jeden Polaritonenzweig (s. Appendix). Durch die Kopplung der Zustände wird eine Kohärenz zwischen den Polaritonenzweigen induziert, die durch Interferenz zu einer zusätzlichen Resonanz reduzierter Breite im Spektrum führt.

In Fig. 4.5 sind die Transmissionsspektren eines Mikroresonators in Abhängigkeit von der Stärke der Unordnung σ bei einer Korrelationslänge $\lambda_c = 0.5a_0$ und $\gamma_0 = 0.2Ry$ im Vergleich mit dem LDT-Resultat dargestellt. Mit zunehmender Amplitude der Unordnung geht das System über in das Regime schwacher Kopplung in Folge einer inhomogenen Verbreiterung, welche die Normalmodenaufspaltung übertrifft. In Analogie zu Fig. 4.3 zeigen sich die deutlichsten Effekte durch die Interferenz im intermediären Bereich. Neben einer zusätzlichen Linie, die leicht blauverschoben zur Resonator- und Exzitonresonanz erscheint, zeigen sich bei starker Unordnung Strukturen auf der niederenergetischen Transmissionslinie. Für sehr große Unordnung $\sigma = 1.6Ry$ nähert sich das Resultat der vollen Rechnung wieder der LDT-Transmission. Die Interferenzlinie verschwindet im Untergrund der im Regime schwacher Kopplung bei gleicher Energie beitragenden Exziton- und Resonatorresonanz.

Wie bei der RRS hängt die Kopplung der Moden von der Längenskala der Unordnung ab. Fig. 4.6 zeigt Transmissionsspektren eines ungeordneten Mikroresonators in Abhängigkeit von der Korrelationslänge des Unordnungspotentials. Wie in Kap. 3.1 ist hier die Gesamtlinienbreite der Exzitonlinie konstant gehalten (s. Fig. 4.6b). Es zeigt sich, daß die Interferenzlinie stärker bei kurzen Korrelationslängen im Vergleich zum exzitonischen Bohr-Radius auftritt, bei denen Lokalisierung auf

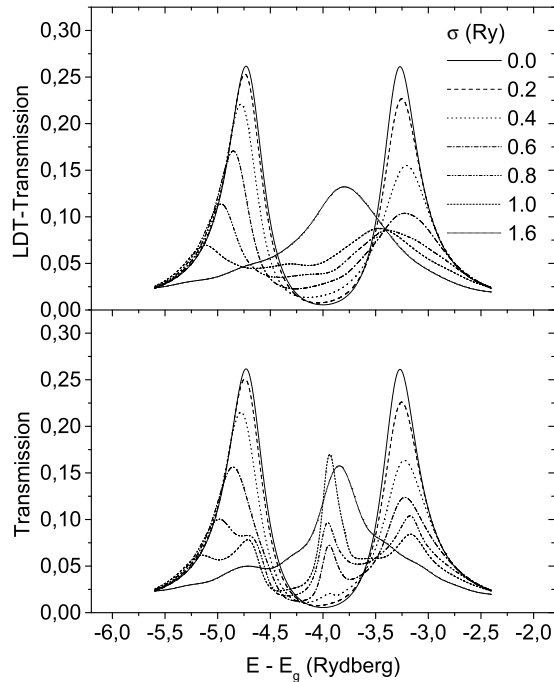


Abbildung 4.5: Transmissionsspektren eines Mikroresonators in Abhängigkeit von der Stärke der Unordnung σ und Korrelationslänge $\lambda_c = 0.5a_0$

allen Längenskalen vorliegt. Damit sind die Zustände im Unordnungspotential im Impulsraum weit ausgedehnt, so daß sie mit gleichem Gewicht an alle Resonatormoden ankoppeln können und der Interferenzeffekt maximal ist. Das Auftreten der Interferenzlinie kann also als ein Hinweis auf eine kurze Korrelationslänge des Unordnungspotentials gelten.

Das RRS-Spektrum des Mikroresonators wird durch nur eine Linie dominiert, die bei der Energie der Interferenzlinie in den linearen Spektren beiträgt (s. Fig. 4.6b). Dieses Verhalten konnte an Mikroresonatoren mit einem Volumenhalbleiter als optisch aktivem Medium schon experimentell beobachtet werden [120]. Die Stärke der Linie nimmt mit wachsender Korrelationslänge ab. Dies zeigt, daß die Streuung der Moden durch die Ankopplung an hohe Impulszustände durch die Unordnung geprägt ist. Für diese Zustände verläuft die Dispersion des niederenergetischen Polaritonzweiges exzitonartig, während die des hochenergetischen Zweiges mit ihrem lichtfeldartigen Charakter stark verstimmt ist. Die Interferenzlinie, wie auch das Maximum des RRS-Spektrums erscheinen daher im spektralen Bereich der ungekoppelten Exzitonresonanz. Bei sehr starker Unordnung wird eine Ankopplung an die stark verstimmtten lichtfeldartigen Zustände für große K ermöglicht, so daß Strukturen auf der niederenergetischen Polaritonlinie erschei-

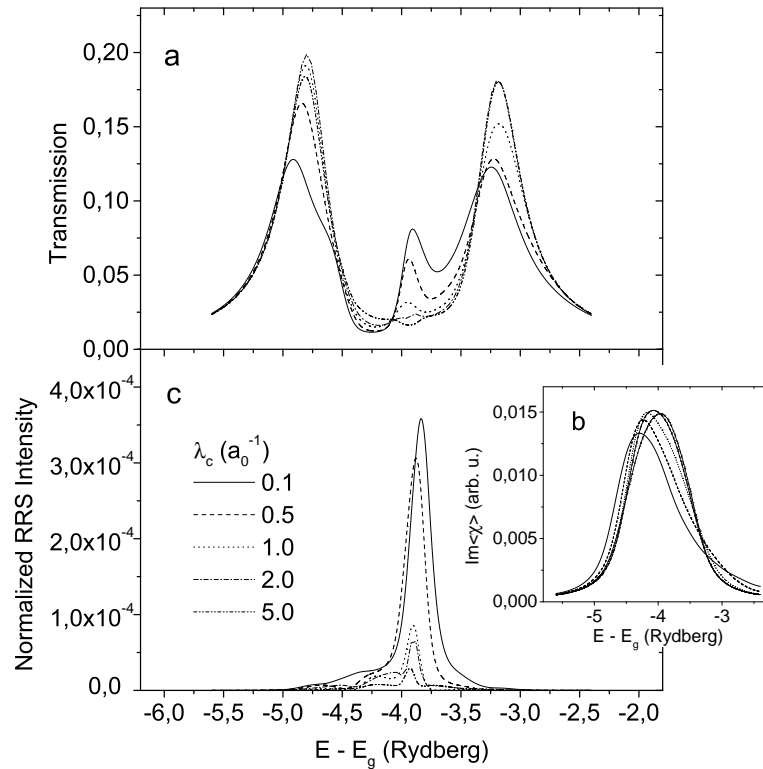


Abbildung 4.6: a: Transmissionsspektren in Abhängigkeit von der Korrelationslänge des Unordnungspotentials λ_c bei konstanter exzitonischer Gesamtlinienebreite von $1.1Ry$ FWHM, b: Imaginärteil der gemittelten Suszeptibilität, c: RRS-Intensität bei $a_0K = 0.05$ in Transmissionsgeometrie bei senkrecht einfallendem externen Feld

nen (s. Fig. 4.5). Dies steht in Einklang mit den Beobachtungen am einfachen Modell im Anhang A, das für geringe Verstimmung der dunklen Niveaus, die das Kontinuum an Moden mit $K > 0$ repräsentieren, zwei zusätzliche Linien vorher-sagt, bei starker Verstimmung jedoch nur eine.

Gerade im Übergangsbereich von starker zu schwacher Kopplung treten in Mikroresonatoren Effekte auf, die nur in Form der optischen Moden des gekoppelten Systems verstanden werden können. In diesem intermediären Regime ist es nicht möglich, die Unordnung als eine Wechselwirkung konsistent zu behandeln und die Kopplung an die Resonatormoden störungstheoretisch. Die LDT entspricht dabei einem Abbruch einer Störungsreihe in der Streuung der Komponenten des optischen Feldes in erster Ordnung, die Streuprozesse der Moden vernachlässigt und nur den im Impuls diagonalen Beitrag berücksichtigt. Auf diese Weise kann die Propagation in Anregungsrichtung durch eine skalare Wellengleichung beschrieben werden.

Liegen die Energieskalen der Unordnung in der gleichen Grössenordnung wie die Normalmodenaufspaltung, so versagt dieser Ansatz. Im Übergangsregime müssen daher die Wechselwirkungen auf der gleichen Ebene berücksichtigt werden, so daß die optischen Eigenschaften durch die Eigenzustände hinsichtlich beider Wechselwirkungen beschrieben werden. Das Erscheinen von Interferenzlinien als Folge der Vermischung von propagierenden und geführten Moden kann daher durch die LDT nicht erklärt werden, die sich auf die fundamentale Mode des Resonators mit $K = 0$ beschränkt. Das Erscheinen von Interferenzlinien im Polaritonspektrum beruht auf einer Kopplung der fundamentalen Resonatormode an höhere Moden durch einen Streumechanismus innerhalb des QF. Wie bei der sekundären Emission, kommt hierbei neben der RRS auch die PLS in Frage. Durch die PLS können also auch zusätzliche Signaturen in Spektren von Mikroresonatoren auftreten [121].

Kapitel 5

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde der Einfluß von Unordnung auf Halbleiter-Heterostrukturen untersucht. Hierbei wurde die Materialdynamik selbstkonsistent mit dem optischen Feld als experimentell beobachtbarer Größe beschrieben. Zusätzlich zur üblicherweise durch Unordnung verursachten inhomogenen Verbreiterung und damit Ausschmieren optischer Resonanzen des homogenen Systems zeigen sich gerade durch die Unordnung induzierte, charakteristische Signaturen in den optischen Signalen der hier untersuchten Strukturen, MQF und Mikroresonatoren. Diese entstehen durch das Wechselspiel der Unordnung mit anderen Quasiteilchenwechselwirkungen im Halbleiter, sowie der Wechselwirkung mit dem optischen Feld.

Es hat sich gezeigt, daß auch bei starker Unordnung ein Einfluß der Strahlungskopplung erhalten bleibt. Dies gilt nicht nur für komplexe Strukturen wie MQF oder Mikroresonatoren, sondern insbesondere auch für den SQF. Während die Ankopplung an das Lichtfeld beim geordneten SQF lediglich als rein dissipativer Prozess zu einem Zerfallskanal für die optische Anregung führt, bewirkt gerade die Streuung des Exzitons am Unordnungspotential eine Ankopplung an subradiante Moden, die außerhalb des Lichtkegels liegen und daher nicht strahlend zerfallen können. Schon beim SQF ist das Kontinuum an Moden, an das die Materialdynamik gekoppelt ist, nicht flach, sondern besitzt aufgrund der Koexistenz propagierender und evaneszenter Moden in Abhängigkeit von der Impulskomponente in der Filmebene eine Strukturierung. Dies erlangt aber erst in Anwesenheit von Unordnung Einfluß auf die optischen Eigenschaften durch die Streuung von Exzitonen in entsprechende Zustände. Aus der Interferenz strahlender und subradianter Beiträge in RRS-Signalen kann auf den Grad der Lokalisierung der beitragenden Zustände und damit auf die Art der Unordnung zurückgeschlossen werden.

Bei kurzen Korrelationslängen im Vergleich zum Bohr-Radius des Exzitons

liegen neben tief lokalisierten Zuständen, die durch ihre große Ausdehnung im Impulsraum dominant an subradiante Moden koppeln, ausgedehnte Wellenfunktionen vor, die eine große Projektion auf Moden im Lichtkegel besitzen. Durch die destruktive Interferenz dieser Moden kann eine Doppelpeakstruktur in der Kurzzeitdynamik zeitaufgelöster RRS-Signale und eine Aufspaltung in den RRS-Spektren beobachtet werden. Die Koexistenz tief lokalisierter und ausgedehnter Zustände spiegelt sich in einer spektral scharfen Linie um die mittlere Exzitonfrequenz und einem breiten Kontinuum an ausgedehnten Zuständen zu höheren Energien wider. Da sich der Grad der Lokalisierung auf die Ankopplung an ein optisches Feld auswirkt, erfahren nur die ausgedehnten Zustände die Superradianz in einer Bragg-Struktur. Dies schlägt sich in einer Erhöhung des hochenergetischen Ausläufers des RRS-Spektrums gegenüber der Linie durch die tief lokalisierten Zustände bei wachsender Filmzahl nieder.

Bei großen Korrelationslängen des Unordnungspotentials gegenüber dem Bohrradius des Exzitons sind die Zustände, die zum RRS-Signal beitragen, in weiten flachen Potentialmulden lokalisiert. Es erscheint nur eine Linie im Bereich der mittleren Exzitonfrequenz im RRS-Spektrum. Bei gleicher Linienbreite in der Absorption zeigen sich signifikante Unterschiede der RRS-Signale in Abhängigkeit von den Unordnungsparametern. Die RRS erweist sich daher als vielversprechende Methode, durch den Vergleich von gemessenen Signalen mit Simulationen eine quantitative Analyse der Unordnung zu ermöglichen. Um den Nachweis hierfür zu erbringen, sind jedoch weitere Untersuchungen notwendig.

Die Koexistenz von subradianten Moden und superradiantem Zustand prägt die optischen Eigenschaften von Bragg-Strukturen. Die kohärente Kopplung der QF über das optische Feld bewirkt eine der Filmzahl proportionalen Reduzierung der strahlenden Lebensdauer der superradianten Mode. Dagegen erlangen subradiante Moden erst in Anwesenheit von Unordnung eine nicht verschwindende Ankopplung an ein externes Feld. Durch die reduzierte strahlende Breite dieser Zustände ist eine Abschätzung des nichtstrahlenden Beitrags zum Dephasieren möglich. Das VWM stellt hierbei die adäquate Methode dar, die homogene Linienbreite der optischen Resonanzen zu ermitteln. Im Vergleich mit experimentellen Befunden konnte gezeigt werden, daß bei sehr hochwertigen QF-Proben die Lebensdauer einer optischen Anregung bei tiefen Temperaturen und geringen Anregungsintensitäten dominant durch den strahlenden Zerfall begrenzt ist. Die strahlende Lebensdauer einer Anregung ist jedoch keine Materialkonstante im eigentlichen Sinne, sondern hängt von der Probengeometrie ab, die auch die dielektrische Umgebung hinsichtlich Grenzflächen einschließt. In MQF ist die Phase, mit der die verschiedenen QF über das Lichtfeld aneinander koppeln und

damit die strahlende Renormierung, durch den Filmabstand bestimmt.

Der freistehende SQF stellt eine Idealisierung dar, die in der Realität nicht existiert. Die einfachste reale Probengeometrie beinhaltet schon eine Grenzfläche zwischen dem Halbleitermaterial und der Luft. Aufgrund des hohen Brechungsindexunterschieds wird ein hoher Anteil der emittierten Felder in die Struktur zurückreflektiert, wodurch die mit der zurückgelegten optischen Weglänge verbundene Phase zu einer komplexen Renormierung der optischen Resonanz hinsichtlich energetischer Position und strahlender Verbreiterung führt. Die Strahlungskopplung kann also nur in Sonderfällen durch eine reine Dissipation berücksichtigt werden. Im Allgemeinen ergeben sich bei selbstkonsistenter Beschreibung der Materialdynamik in Wechselwirkung mit dem optischen Feld neue Quasiteilchen mit komplex renormierten Eigenenergien.

Drastischer sind die Effekte, wenn neben dem Ladungsträgersystem auch das Lichtfeld durch einen optischen Resonator eine Dimensionsreduzierung erfährt. Im Regime starker Kopplung stellen die Polaritonen als Quasiteilchen des gekoppelten Systems aus Resonatormoden und QF-Exziton die elementaren optischen Anregungen dar. Durch die Streuung des Exzitons am Unordnungspotential werden die Moden des Resonators mit Projektionen $K > 0$ des Wellenvektors auf die Schichtebene an die Anregungsrichtung bei $K = 0$ gekoppelt und können mit diesen Moden interferieren. Im Übergangsbereich zwischen den Regimen starker und schwacher Kopplung ergeben sich hierdurch zusätzliche spektral scharfe Resonanzen in den Polaritonspektren. Die RRS-Spektren des Mikroresonators werden dabei dominiert durch diese Interferenzlinien, was ihren Ursprung in einer polaritonischen Impulsstreuung bestätigt. Die Interferenzeffekte treten verstärkt bei kurzen Korrelationslängen des Unordnungspotentials auf, bei denen die Exzitonen über einen weiten Impulsbereich gestreut werden, so daß sie an das gesamte strukturierte Kontinuum von Resonatormoden koppeln.

In den Grenzfällen starker und schwacher Kopplung erzielt die LDT, bei der die Streuung der Moden vernachlässigt wird, für die linearen Spektren Resultate, die eine gute Näherung der vollen Rechnung darstellen. Die Interferenzlinien als Konsequenz der Modenkopplung im intermediären Regime können jedoch nicht reproduziert werden.

Durch die hier durchgeführten Untersuchungen hat sich herausgestellt, daß eine störungstheoretische Behandlung der Kopplung der Materialdynamik an das optische Feld als rein dissipativer Prozess nur in Spezialfällen oder eingeschränkten Parameterbereichen möglich ist. Im Allgemeinen gehen die Effekte durch die Strahlungskopplung über den strahlenden Zerfall optischer Anregungen hinaus. Die Moden des gekoppelten Systems der Ladungsträger und des Lichtfeldes besitzen i.a. komplex renormierte Eigenenergien. Der Einfluß der

Strahlungskopplung wird nicht etwa durch die Unordnung unterdrückt, sondern es ergeben sich gerade durch die Koexistenz strahlender und subradianter Moden interessante, neue optische Eigenschaften des Systems.

Das Wechselspiel mit anderen Quasiteilchenwechselwirkungen stellt in Anwesenheit von Unordnung einen zentralen Aspekt dar. Bei der RRS z.B. ergibt sich durch die Bindung von Elektronen und Löchern zu Exzitonen eine effektive Korrelationsfunktion durch Faltung der Gaußkorrelation des Unordnungspotentials mit dem Überlapp der am Streuprozeß beteiligten exzitonischen Wellenfunktionen. Neben der Korrelationslänge der Unordnung ist damit der exzitonische Bohr-Radius eine weitere systemimmanente Längenskala. Mit diesen Wechselwirkungen verbunden sind die Energieskalen der Bindungsenergie des Exzitons und der Varianz der Unordnung. Weiterhin nimmt die nichtstrahlende Dephasierungsrate einen Einfluß auf die Streuung am Unordnungspotential, indem sie den energetischen Überlapp der beteiligten Streuzustände bestimmt.

Bei Mikroresonatoren konnte sowohl durch die Erhöhung der Unordnungsstärke, als auch durch Verstärken des nichtstrahlenden Dephasierens ein Übergang vom Regime starker Kopplung zum Bereich schwacher Kopplung erzielt werden. Dieser Übergang findet statt, wenn die Energieskala des einen Prozesses, in diesem Fall gegeben durch die Dephasierungsrate bzw. die Unordnungsstärke, die des anderen, hier die polaritonische Aufspaltung, übertrifft. Die Superradianz in Bragg-Strukturen kann erst wirksam unterdrückt werden, wenn die inhomogene Breite größer als die strahlende Breite der superradianten Mode ist. Nichttriviale Effekte ergeben sich aber insbesondere, wenn die Energieskalen der verschiedenen Wechselwirkungen vergleichbar sind.

Die in dieser Arbeit vorgenommene Modellierung nichtstrahlender Dephasierungsprozesse in Form einer phänomenologischen Dämpfungsrate stellt sicherlich eine Näherung dar. Hier würde eine mikroskopische Theorie für die Wechselwirkung der Ladungsträger mit Phononen oder eine nichtlineare Theorie der Materialdynamik, welche die Streuung der Elektronen und Löcher untereinander berücksichtigt, einen Fortschritt erzielen. Insbesondere im Zusammenhang mit dem Problem der sekundären Emission wäre eine Theorie wünschenswert, die sowohl den Einfluß der Streuung der Ladungsträger am Unordnungspotential als auch die PLS konsistent beschreibt. Die klassische Theorie des Lichtfeldes müßte hierzu durch eine Quantentheorie ersetzt werden, um Prozesse der spontanen Emission beschreiben zu können. Eine Erweiterung der Halbleiter-Lumineszenz-Gleichungen [107, 85] auf den ungeordneten Fall scheint zur Zeit jedoch die Möglichkeiten moderner Rechner zu sprengen, da der Bruch der Translationsinvarianz die Dimensionalität des Problems erhöht.

Eine Verallgemeinerung der Theorie für das VWM, die bisher auf Unord-

nungspotentiale mit großer Korrelationslänge im Vergleich zum exzitonischen Bohr-Radius eingeschränkt ist, könnte weitgehende Einsicht in die Lebensdauer optischer Anregungen in Abhängigkeit vom Grad der Lokalisierung und der entsprechenden Ankopplung an strahlende oder subradiante Moden erbringen.

Anhang A

Polariton-Modell

Anhand eines einfachen Modells soll hier die Entstehung einer dritten Resonanz im Polaritonspektrum als Konsequenz der Kopplung verschiedener Moden durch die Unordnung illustriert werden. Die Ankopplung an das Kontinuum an Moden des Resonators mit $K > 0$ wird hierbei durch diskrete, dunkle Niveaus beschrieben, die eine Kopplung der polaritonischen Zustände bei $K = 0$ vermitteln.

Die Bewegungsgleichung für die Schwerpunktsbewegung des QF-Exzitons im Unordnungspotential Gl. (2.29) kann auch aus einem effektiven Hamiltonian mit Exziton-Operatoren $B_{\mathbf{q}_{\parallel}}^{\dagger}, B_{\mathbf{q}_{\parallel}}$ hergeleitet werden (Index für QW und Polarisationsrichtung werden im Folgenden unterdrückt). Das Feld im Mikroresonator als Quantisierungsvolumen wird durch Photonoperatoren $b_{\mathbf{q}_{\parallel}}^{\dagger}, b_{\mathbf{q}_{\parallel}}$ beschrieben. Bei Beschränkung auf den 1s-Zustand und Resonatormoden mit $q_z = 2\pi/L_c = \omega_{\mathbf{q}_{\parallel}=0}^c/c$ läßt sich dann der effektive Hamiltonian schreiben als [36, 37]:

$$H = \sum_{\mathbf{q}_{\parallel}} (\omega_{\mathbf{q}_{\parallel}}^X B_{\mathbf{q}_{\parallel}}^{\dagger} B_{\mathbf{q}_{\parallel}} + \omega_{\mathbf{q}_{\parallel}}^c b_{\mathbf{q}_{\parallel}}^{\dagger} b_{\mathbf{q}_{\parallel}} - ig_{\mathbf{q}_{\parallel}} (B_{\mathbf{q}_{\parallel}}^{\dagger} b_{\mathbf{q}_{\parallel}} + B_{\mathbf{q}_{\parallel}} b_{\mathbf{q}_{\parallel}}^{\dagger})) + \sum_{\mathbf{q}_{\parallel}, \mathbf{q}'_{\parallel}} U_{\mathbf{q}_{\parallel} - \mathbf{q}'_{\parallel}} B_{\mathbf{q}_{\parallel}}^{\dagger} B_{\mathbf{q}'_{\parallel}} \quad (\text{A.1})$$

Die Exziton- und Resonatordispersion sind gegeben durch:

$$\omega_{\mathbf{q}_{\parallel}}^X = \omega_{1s} + \frac{\mathbf{q}_{\parallel}^2}{2M}, \quad \omega_{\mathbf{q}_{\parallel}}^c = \sqrt{\omega_0^c + c\mathbf{q}_{\parallel}^2} \quad (\text{A.2})$$

Durch eine Hopfield-Transformation in das Polaritonbild $p = \beta^X B + \beta^c b$ kann das geordnete System, $\tilde{U}_{\mathbf{q}_{\parallel}, \mathbf{q}'_{\parallel}}^{i, i'} = 0$, diagonalisiert werden,

$$H_p = \sum_{\mathbf{q}_{\parallel}, i} \Omega_{i, \mathbf{q}_{\parallel}} p_{i, \mathbf{q}_{\parallel}}^{\dagger} p_{i, \mathbf{q}_{\parallel}} + \sum_{\mathbf{q}_{\parallel}, \mathbf{q}'_{\parallel}, i, i'} \tilde{U}_{\mathbf{q}_{\parallel}, \mathbf{q}'_{\parallel}}^{i, i'} p_{i, \mathbf{q}_{\parallel}}^{\dagger} p_{i', \mathbf{q}'_{\parallel}}, \quad (\text{A.3})$$

so daß die neuen Eigenenergien durch die Polaritondisperion für den niederenergetischen, $i = 1$, und den hochenergetischen Polaritonzweig $i = 2$ bestimmt sind:

$$\Omega_{i,\mathbf{q}_{\parallel}} = \frac{1}{2}(\omega_{\mathbf{q}_{\parallel}}^X + \omega_{\mathbf{q}_{\parallel}}^c) \pm \frac{1}{2}\sqrt{(\omega_{\mathbf{q}_{\parallel}}^X - \omega_{\mathbf{q}_{\parallel}}^c)^2 + 4g_{\mathbf{q}_{\parallel}}^2}. \quad (\text{A.4})$$

In Anwesenheit von Unordnung werden die Polaritonen jedoch gemäß ihrer Projektion auf den exzitonischen Unterraum, die durch den Hopfield-Koeffizienten β^X gegeben ist, zwischen verschiedenen Impulsen, aber auch zwischen den Polaritonzweigen gestreut:

$$\tilde{U}_{\mathbf{q}_{\parallel},\mathbf{q}'_{\parallel}}^{i,i'} = \beta_{i,\mathbf{q}_{\parallel}}^X U_{\mathbf{q}_{\parallel}-\mathbf{q}'_{\parallel}} \beta_{i',\mathbf{q}'_{\parallel}}^X \quad (\text{A.5})$$

In das effektive Unordnungspotential geht also neben der Mittelung durch das Exziton auch eine Gewichtung durch das Polariton mit seiner Dispersion ein. Die Hopfield Koeffizienten sind gegeben durch:

$$\beta_{j,\mathbf{q}_{\parallel}}^X = \sqrt{\frac{\Omega_{j,\mathbf{q}_{\parallel}} - \omega_{\mathbf{q}_{\parallel}}^c}{2\Omega_{j,\mathbf{q}_{\parallel}} - \omega_{\mathbf{q}_{\parallel}}^c - \omega_{\mathbf{q}_{\parallel}}^X}}, \quad \beta_{j,\mathbf{q}_{\parallel}}^c = \pm i \sqrt{\frac{\Omega_{j,\mathbf{q}_{\parallel}} - \omega_{\mathbf{q}_{\parallel}}^X}{2\Omega_{j,\mathbf{q}_{\parallel}} - \omega_{\mathbf{q}_{\parallel}}^c - \omega_{\mathbf{q}_{\parallel}}^X}} \quad (\text{A.6})$$

Nun genügt das Polariton einer Bewegungsgleichung:

$$i\partial_t p_{i,\mathbf{q}_{\parallel}} = \Omega_{i,\mathbf{q}_{\parallel}} p_{i,\mathbf{q}_{\parallel}} + \sum_{\mathbf{q}'_{\parallel},i'} \tilde{U}_{\mathbf{q}_{\parallel},\mathbf{q}'_{\parallel}}^{i,i'} p_{i',\mathbf{q}'_{\parallel}} - \delta_{\mathbf{q}_{\parallel}} \gamma_c \beta_{i,\mathbf{q}_{\parallel}}^c E^0. \quad (\text{A.7})$$

Da die optische Antwort auf eine externe Störung berechnet werden soll, wird das Polariton gemäß seinem lichtfeldartigen Charakter an ein äußeres Feld E^0 linear gekoppelt. Die Kopplungskonstante γ_c beschreibt die Verluste des Resonators und ist durch die Reflektivität der Spiegel gegeben. Im Rahmen eines Quasimodenformalismus koppelt das Exziton nur an die Resonatormoden [104]. Über die Verluste des Resonators treibt das externe Feld die Resonatormoden, wobei die genaue Struktur der DBRs nicht berücksichtigt wird. Das Feld außerhalb des Resonators kann dann selbstkonsistent mit der Materialantwort berechnet werden. Im Frequenzraum ergibt sich analog zum Kap. 2.3 eine Matrixgleichung:

$$\sum_{i',\mathbf{q}'_{\parallel}} \left(\delta_{i,i'} \delta_{\mathbf{q}_{\parallel},\mathbf{q}'_{\parallel}} (\omega - \Omega_{i,\mathbf{q}_{\parallel}}) - \tilde{U}_{\mathbf{q}_{\parallel},\mathbf{q}'_{\parallel}}^{i,i'} \right) p_{i',\mathbf{q}'_{\parallel}} = -\gamma_c \delta_{\mathbf{q}_{\parallel}} \beta_{i,\mathbf{q}_{\parallel}}^c E^0 \quad (\text{A.8})$$

Die optische Antwort ist durch die Projektion auf den photonartigen Anteil der strahlenden Polaritonen bei $q = 0$ bestimmt, die an das externe Feld koppeln. Durch:

$$F(\omega) = \sum_{i=1,2} i\beta_{i,0}^c \gamma_c p_{i,0} / E^0 \quad (\text{A.9})$$

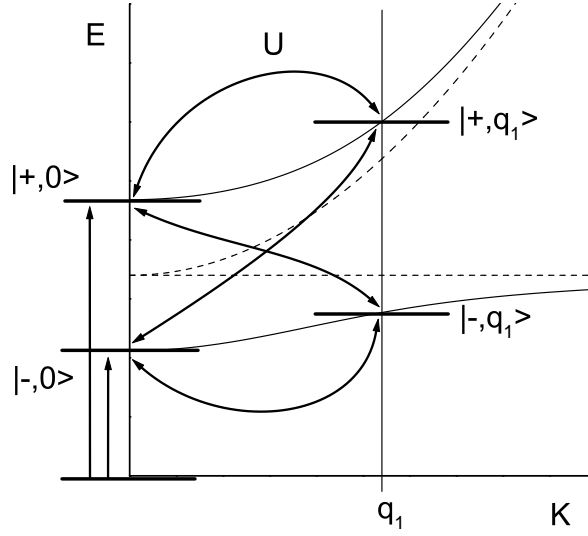


Abbildung A.1: Schematische Darstellung des Dreiniveausystems mit zwei zusätzlichen dunklen Niveaus bei q_1

kann also eine lineare Antwortfunktion für den Resonator definiert werden. Um zu einem analytischen Ergebniss zu gelangen, werden hier bei der Lösung von Gl. (A.8) neben den Zuständen bei $q = 0$ nur zwei weitere Zustände für q_1 berücksichtigt, so daß das System mit kontinuierlicher Dispersion in ein Dreiniveausystem mit jeweils einem zusätzlichen Hilfsniveau für die Polaritonzweige übergeht (s. Fig. A.1). Die Polaritonzustände bei q_1 haben keine Ankopplung an das externe Feld. Dies entspricht in einer realen Struktur den geführten Moden oder Moden, die nicht in der Anregungsrichtung beitragen. Für die Kopplung der Niveaus muß aufgrund der Symmetrieeigenschaften des Unordnungspotentials gelten: $\tilde{U}_{0,q_1}^{i,i'} = (\tilde{U}_{q_1,0}^{i,i'})^*$. Mit verschwindenden Diagonalelementen im Impuls, $\tilde{U}_{q,q}^{i,i'} = 0$, kann daher in diesem stark vereinfachten Modell die Kopplung durch eine komplexe Zahl σ definiert werden, $\tilde{U}_{0,q_1}^{i,i'} = \beta_0^X \sigma \beta_{q_1}^X$. Da das Polariton nur mit seinem exzitonischen Anteil nichtstrahlenden Dephasierungsprozessen unterliegt, können diese durch eine Dämpfungskonstante γ_0 in der Diagonalelementen bezüglich Impuls und Polaritonzweig $\tilde{U}_{0,0}^{i,i} = U_{q_1,q_1}^{i,i} = -i\gamma_0$, berücksichtigt werden. Die lineare Antwortfunktion ist dann durch die inverse 4×4 -Matrix zu Gl. (A.8) bestimmt.

Fig. A.2 zeigt den Imaginärteil der linearen Antwortfunktion $F(\omega)$ als Lösung von Gl. (A.8) für das Fünfniveausystem, das durch zwei Punkte im Impulsraum, $q = 0$, $q = q_1$ festgelegt ist. Die strahlenden Zustände bei $q = 0$, an die ein äußeres Feld angreifen kann koppeln über die komplexe Konstante σ entsprechend ihres exzitonischen Anteils an die dunklen Niveaus bei q_1 . Da die Energie dieser Hilfs-

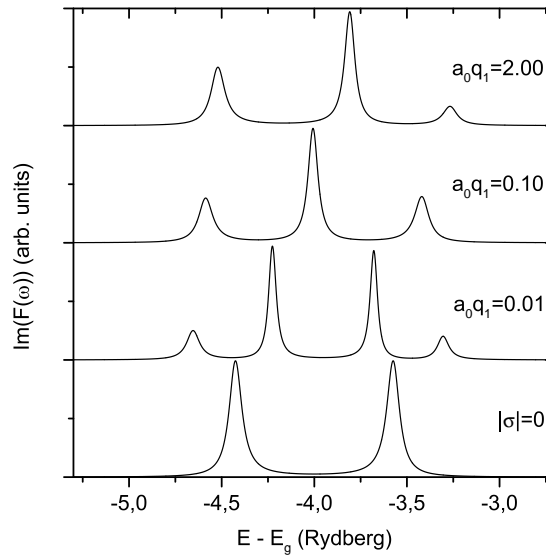


Abbildung A.2: Imaginärteil der linearen Antwortfunktion $F(\omega)$ des Fünfniveausystems für variierende Lage q_1 der dunklen polaritonischen Zustände

niveaus über die Polaritondispersion von der Wellenzahl abhängt, ergeben sich unterschiedliche Resultate je nach Lage der dunklen Zustände. Bei $q_1 a_0 = 0.01$ sind sie quasi entartet mit den Polaritonen bei $q = 0$. Es kommt daher zu einer Aufspaltung beider Polaritonenzweige entsprechend der Stärke der Kopplung. Das Spektrum zeigt daher vier Resonanzen. Weil die Polaritonen nur mit ihrem exzitonen Anteil nichtstrahlenden Dephasierungsprozessen unterliegen, können diese zusätzlichen Interferenzlinien sehr schmal sein. Die Dispersion des hochenergetischen Polaritonenzweiges folgt für wachsendes q zunehmend der Photondispersion, die stark ansteigt. Der photonartige dunkle Zustand wird mit hohem q_1 somit stark verstimmt gegenüber den strahlenden Niveaus bei $q = 0$. Durch diese starke Verstimmung liegt daher zunehmend nur das exzitonen Hilfsniveau vor, dessen Lage durch die Annäherung der Dispersion des niederenergetischen Zweiges an die Exzitondispersion schwächer von der Wellenzahl abhängt. Es erscheint nur eine zusätzliche Resonanz, die nur schwach mit der Lage des exzitonen Hilfsniveaus zu höheren Energien schiebt.

In Fig. A.3 ist die Lage der subradianten Übergänge festgehalten bei variierender Kopplungsstärke σ . Mit zunehmender Kopplungsstärke erhöht sich der Einfluss des photonartigen Hilfsniveaus. Da dieses einem geringeren Dephasieren unterliegt verringert sich die Linienbreite der Interferenzlinie. Gleichzeitig stoßen sich die Polaritonischen Zustände mit wachsender Kopplung zunehmend in der Energie ab, was aus störungstheoretischen Überlegungen leicht einsichtig ist.

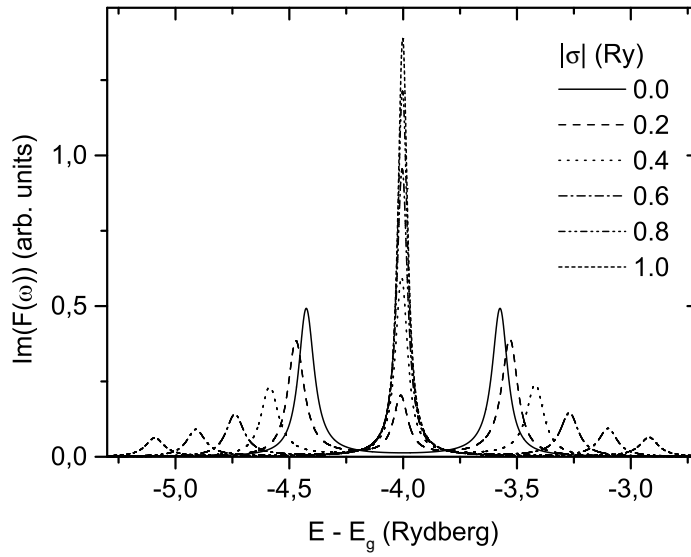


Abbildung A.3: Imaginärteil der linearen Antwortfunktion $F(\omega)$ des Fünfniveausystems für wachsende Kopplungsstärke $|\sigma|$

Dieses Modell ist natürlich in seiner Anwendbarkeit auf reale Strukturen stark eingeschränkt. Die parabolische Dispersion für die Resonatorphotonen vernachlässigt die Resonanzstruktur des Mikroresonators, die von der speziellen Geometrie der aufeinanderfolgenden Schichten abhängt. Die Lage der zusätzlichen Niveaus ist nicht diskret, sondern kontinuierlich. Das Modell vermag jedoch das Erscheinen zusätzlicher, spektral schmaler Linien im Polaritonsspektrum durch eine Interferenz mit nichtstrahlenden Zuständen qualitativ zu erklären.

Literaturverzeichnis

- [1] E. Hanamura, *Phys. Rev. B* **38**, 1228 (1988)
- [2] L.C. Andreani, F. Tassone, F. Bassani, *Solid State Comm.* **77**, 641 (1991)
- [3] E.L. Ivchenko, A.I. Nesvizhskii, S. Jorda, *Phys. Sol. State* **36**, 1156 (1994)
- [4] D. Ammerlahn, B. Grote, S.W. Koch, J. Kuhl, M. Hübner, R. Hey, K. Ploog, erscheint in *Phys. Rev. B* **61** (2000)
- [5] C. Weisbuch, M. Nishioka, A. Ishikawa, Y. Arakawa, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 3314 (1992)
- [6] H. Yokoyama, K. Nishi, T. Anan, H. Yamada, S.D. Brorson, E.P. Ippen, *Appl. Phys. Lett.* **57** 2814 (1990)
- [7] A. Ourmazd, W.T. Tsang, J.A. Rentschler, D.W. Taylor, *Appl. Phys. Lett.* **50**, 1417 (1987)
- [8] M. Lindberg, R. Binder, S.W. Koch, *Phys. Rev. A* **45**, 1865 (1992)
- [9] C. Lonsky, P. Thomas, A. Weller, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 652 (1989)
- [10] D. Bennhardt, P. Thomas, A. Weller, M. Lindberg, S.W. Koch, *Phys. Rev. B* **43**, 8934 (1991)
- [11] U. Siegner, D. Weber, E.O. Göbel, D. Bennhardt, V. Heuckeroth, R. Saleh, S.D. Baranovskii, P. Thomas, H. Schwab, C. Klingshirn, J.M. Hvam, V.G. Lyssenko, *Phys. Rev. B* **46**, 4564 (1992)
- [12] M. Koch, D. Weber, J. Feldmann, E.O. Göbel, T. Meier, A. Schulze, P. Thomas, S. Schmitt-Rink, K. Ploog, *Phys. Rev. B* **47**, 1532 (1993)
- [13] M. Hübner, J. Kuhl, B. Grote, T. Stroucken, S.W. Koch, R. Hey, K. Ploog, *Solid State Comm.* **108**, 787 (1998)

- [14] S.D. Baranovskii, A.L. Efros, *Sov. Phys. Semicond.* **12** 1328 (1978)
- [15] R. Zimmermann, *Phys. Stat. Sol.* **173** , 129 (1992)
- [16] R. Zimmermann, *J. Lum.* **60/61**, 346 (1994)
- [17] S. Glutsch, F. Bechstedt, *Phys. Rev. B* **50** , 7733 (1994)
- [18] S. Glutsch, D.S. Chemla, F. Bechstedt, *Phys. Rev. B* **54**, 11592 (1996)
- [19] Lord Rayleigh (J.W. Strutt), *Philos. Mag.* **47**, 375 (1899)
- [20] H. Stolz, D. Schwarze, W. von der Osten, G. Weimann, *Phys. Rev. B* **47**, 9669 (1993)
- [21] R. Zimmermann, *Nuovo Cimento Soc. Ital. Fis.* **17D**, 1801 (1995)
- [22] H. Stolz, "Time-Resolved Light Scattering from Excitons", Springer Verlag, Berlin (1994)
- [23] S. Haacke, R.A. Taylor, R. Zimmermann, I. Bar-Joseph, B. Deveaud, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 2228 (1997)
- [24] A.V. Shchegrov, D. Birkedal, J. Shah, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 1391 (1999)
- [25] W. Langbein, J.M. Hvam, R. Zimmermann, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1040 (1999)
- [26] V. Savona, R. Zimmermann, *Phys. Rev. B* **60**, 4928 (1999)
- [27] D.S. Citrin, *Phys. Rev. B* **54**, 14572 (1996)
- [28] F. Jahnke, M. Koch, T. Meier, J. Feldmann, W. Schäfer, P. Thomas, S.W. Koch, E.O. Göbel, H. Nickel, *Phys. Rev. B* **50**, 8114 (1994)
- [29] J.J. Hopfield, *Phys. Rev.* **112**, 1555 (1958)
- [30] P.A. Harten, A. Knorr, J.P. Lolofoff, F. Brown de Colstoun, S.G. Lee, R. Jin, E.M. Wright, G. Khitrova, H.M. Gibbs, S.W. Koch, N. Peyghambarian, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 852 (1992)
- [31] S.W. Koch, A. Knorr, R. Binder, M. Lindberg, *Phys. Stat. Sol. (b)* **173**, 177 (1992)
- [32] J. Aaviksoo, J. Kuhl, K. Ploog, *Phys. Rev. A* **44**, 5353 (1991)
- [33] T. Mishina, Y. Masumoto, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 2785 (1993)

- [34] D. Fröhlich, A. Kulik, B. Uebbing, A. Mysyrowicz, V. Langer, H. Stolz, W. von der Osten, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 2343 (1991)
- [35] P. Kinsler, D.M. Whittaker, *Phys. Rev. B* **54**, 4988 (1996)
- [36] D.M. Whittaker, P. Kinsler, T.A. Fisher, M.S. Skolnick, A. Armitage, A.M. Afshar, M.D. Sturge, J.S. Roberts, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 4792 (1996)
- [37] V. Savona, C. Piermarocchi, A. Quattropani, F. Tassone, P. Schwendimann, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 4470 (1997)
- [38] C. Ell, J. Prineas, T.R. Nelson, Jr. , S. Park, H.M. Gibbs, G. Khitrova, S.W. Koch, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4795 (1998)
- [39] A.V. Kavokin, *Phys. Rev. B* **57**, 3757 (1998)
- [40] D.M. Whittaker, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4791 (1998)
- [41] G. Manzke, K. Henneberger, *Phys. Stat. Sol. (b)* **147**, 733 (1988)
- [42] A. Knorr, T. Stroucken, A. Schulze, A. Girndt, S.W. Koch, *Phys. Stat. Sol. (b)* **188**, 473 (1995)
- [43] T. Stroucken, C. Anthony, A. Knorr, P. Thomas, S.W. Koch, *Phys. Stat. Sol. (b)* **188**, 539 (1995)
- [44] T. Stroucken, A. Knorr, C. Anthony, A. Schulze, P. Thomas, S. W. Koch, M. Koch, S. T. Cundiff, J. Feldmann, E. O. Göbel, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 2391 (1995)
- [45] T. Stroucken, A. Knorr, P. Thomas, S.W. Koch, *Phys. Rev. B* **53**, 2026 (1996)
- [46] M. Hübner, J. Kuhl, T. Stroucken, A. Knorr, S.W. Koch, R. Hey, K. Ploog, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 4199 (1996)
- [47] S. Haas, Dissertation, Philipps Universität Marburg (1998)
- [48] F. Jahnke, Habilitationsschrift, Philipps Universität Marburg (1996)
- [49] T. Stroucken, Dissertation, Philipps Universität Marburg (1996)
- [50] G. Bastard, "Wave Mechanics applied to Semiconductor Heterostructures", Les Editions de Physique, France (1988)

- [51] H. Haug, S.W. Koch, "Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors", World Scientific, Singapore, 3. Auflage (1994)
- [52] J.D. Jackson, "Klassische Elektrodynamik", 2. Auflage, de Gruyter Berlin/New York (1983)
- [53] P.W. Anderson, *Phys. Rev.* **109**, 1492 (1958)
- [54] H. Overhof, P. Thomas, "Electronic Transport in Amorphous Hydrogenated Semiconductors" , Volume 114 of Springer Tracts in Modern Physics, Springer New York (1989)
- [55] D.L. Shepelyansky, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 2607 (1994)
- [56] D. Brinkmann, Dissertation, Philipps Universität Marburg (1998)
- [57] S. Haas, T. Stroucken, M. Hübner, J. Kuhl, B. Grote, A. Knorr, F. Jahnke, S.W. Koch, R. Hey, K. Ploog, *Phys. Rev. B* **57**, 14860 (1998)
- [58] M. Hübner, J. Kuhl, S. Haas, T. Stroucken, S.W. Koch, R. Hey, K. Ploog, *Solid State Commun.* **105**, 105 (1998)
- [59] F. Jahnke, M. Kira, S.W. Koch, G. Khitrova, E.K. Lindmark, T.R. Nelson, Jr., D.V. Wick, J.D. Berger, O. Lyngnes, H.M. Gibbs, K. Tai, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 5257 (1996)
- [60] E.O. Göbel, K. Ploog, *Progr. Quant. Electr.* **14**, 289 (1990)
- [61] S.D. Baranovskii, U. Doerr, P. Thomas, A. Naumov, W. Gebhardt, *Phys. Rev. B* **48**, 17149 (1993)
- [62] R.F. Kopf, E.F. Schubert, T.D. Harris, R.S. Becker, *Appl. Phys. Lett.* **58**, 631 (1991)
- [63] E.O. Göbel, K. Leo, T.C. Damen, J. Shah, S. Schmitt-Rink, W. Schäfer, J.F. Müller, K. Köhler, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1801 (1990).
- [64] J. Singh, K.K. Bajaj, *Appl. Phys. Lett.* **48**, 1077 (1986)
- [65] S. Glutsch, F. Bechstedt, *Superlattices and Microstructures* **15**, 2666 (1990)
- [66] R. Zimmermann, *J. Crystal Growth* **101**, 346 (1990)
- [67] B. Grote, T. Stroucken, A. Knorr, S.W. Koch, *Phys. Stat. Sol. (a)* **164**, 467 (1997)

- [68] B. Grote, T. Stroucken, S. Haas, P. Thomas, S.W. Koch, *Phys. Stat. Sol. (b)* **205**, 209 (1998)
- [69] L.C. Andreani, G. Panzarini, A. Kavokin, M.R. Vladimirova, *Phys. Rev. B* **57**, 4670 (1998)
- [70] S.D. Baranovskii, U. Doerr, P. Thomas, A. Naumov, W. Gebhardt, *Phys. Rev. B* **48**, 17149 (1993)
- [71] Es wurden GaAs-Parameter verwendet: $\Delta_{LT} = 0.08 \text{ meV}$, $\epsilon_{0,\text{GaAs}} = 12.9$, $1 Ry = 4.2 \text{ meV}$, $E_g = 1.52 \text{ eV}$, $m_e = 0.063 m_0$, $m_h = 0.450 m_0$, sowie für die DBR: $\epsilon_{0,\text{AlAs}} = 9.7$
- [72] D. Birkedal, J. Shah, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 2372 (1998)
- [73] J. J. Baumberg, A. P. Heberle, A. V. Kavokin, M. R. Vladimirova, K. Köhler, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 3567 (1998)
- [74] T. Freixanet, B. Sermage, J. Bloch, J.Y. Marzin, R. Planel, *Phys. Rev. B* **60**, R8509 (1999)
- [75] M. Hübner, J. Kuhl, B. Grote, T. Stroucken, S. Haas, A. Knorr, S.W. Koch, G. Khitrova, H. Gibbs, *Phys. Stat. Sol. b* **206**, 333 (1998)
- [76] T. Stroucken, S. Haas, B. Grote, S.W. Koch, M. Hübner, D. Ammerlahn, J. Kuhl, *Festkörperprobleme/Advances in Solid State Physics* **38**, Ed. B. Kramer, Vieweg, Braunschweig/Wiesbaden (1998)
- [77] J. Kuhl, M. Hübner, D. Ammerlahn, T. Stroucken, B. Grote, S. Haas, S.W. Koch, G. Khitrova, H.M. Gibbs, R. Hey, K. Ploog, *Festkörperprobleme/Advances in Solid State Physics* **38**, Ed. B. Kramer, Vieweg, Braunschweig/Wiesbaden (1998)
- [78] B. Hanewinkel, A. Knorr, P. Thomas, S.W. Koch, *Phys. Rev. B* **60**, 8975 (1999)
- [79] M. Wolf, E. Wolf, "Principles of Optics", Pergamon Press, Oxford (1970)
- [80] T. Stroucken, A. Knorr, S.W. Koch, *Optics & Photonics News* **6** (12), 10 (1995)
- [81] A. Knorr, S. Hughes, T. Stroucken, S. W. Koch, *Chem. Phys.* **210**, 27 (1996)
- [82] H. Wang, J. Shah, T.C. Damen, L.N. Pfeiffer *Phys. Rev. Lett.* **74** 3065 (1995)

- [83] M. Woerner, J. Shah, *Phys. Rev. Lett.* **81** 4208 (1998)
- [84] M. Gurioli, F. Bogani, S. Ceccherini, M. Colocci, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 3205 (1997)
- [85] M. Kira, F. Jahnke, S.W. Koch, *Phys. Rev. Lett.* **82**,3544 (1999)
- [86] C.A. Warwick, W.Y. Jan, A. Ourmazd, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 2666 (1990)
- [87] N. Garro, M.J. Snelling, S.P. Kennedy, R.T. Phillips, K.H. Ploog, *Phys. Rev. B* **60**, 4497 (1999)
- [88] T. Takagahara, *Phys. Rev. B* **32**, 7013 (1985)
- [89] H. Wang, M. Jiang, D.G. Steel, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 1255 (1990)
- [90] M.D. Webb, S.T. Cundiff, D.G. Steel, *Phys. Rev. B* **43**, 12658 (1991)
- [91] N.F. Mott, E.A. Davis, "Electronic Processes in Noncrystalline Materials", 2nd edition, Oxford University Press, New York (1997)
- [92] A.V. Kavokin, *Phys. Rev. B* **50**, 8000 (1994)
- [93] U. Jahn, M. Ramsteiner, R. Hey, H.T. Grahn, E. Runge, R. Zimmermann, *Phys. Rev. B* **56** R4387 (1997)
- [94] J. Hegarty, L. Goldner, M.D. Sturge, *Phys. Rev. B* **30**, 7346 (1984)
- [95] H. Schneider, K. Ploog, *Phys. Rev. B* **49** , 17050 (1994)
- [96] M. Hübner, Dissertation, Max-Planck-Institut für Festkörperforschung, Stuttgart (1997)
- [97] D. Ammerlahn, J. Kuhl, M. Hübner, B. Grote, T. Stroucken, S.W. Koch, G. Khitrova, H. Gibbs, *Ultrafast Phenomena XI*, Eds. T. Elsaesser, J.G. Fujimoto, D.A. Wiersma, W. Zinth, Springer, Berlin (1998)
- [98] J.J. Hopfield, D.J. Thomas, *Phys. Rev. Lett.* **15**, 22 (1965)
- [99] V.M. Agranovich, O.A. Dobovskii, *JETP Lett.* **3**, 223 (1966)
- [100] R. Houdré, C. Weisbuch, R.P. Stanley, U. Oesterle, P. Pellandini, M. Illegems, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 2043 (1994)
- [101] L.C. Andreani, *Phys. Lett. A* **192**, 99 (1994)
- [102] L.C. Andreani, G. Panzarini, *Nuovo Cimento* **17D**, 1211 (1995)

- [103] R. Houdré, R.P. Stanley, M. Ilegems, *Phys. Rev. A* **53**, 2711 (1996)
- [104] V. Savona, C. Weisbuch, *Phys. Rev. B* **54**, 10835 (1996)
- [105] T.B. Norris, J.K. Rhee, C.Y. Sung, Y. Arakawa, M. Nishioka, C. Weisbuch, *Phys. Rev. B* **50**, 14663 (1994)
- [106] S.M. Barnett, P.M. Radmore, *Opt. Comm.* **68**, 364 (1988)
- [107] M. Kira, F. Jahnke, J.D. Berger, D.V. Wick, T.R. Nelson, Jr., G. Khitrova, H.M. Gibbs, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5170 (1997)
- [108] V. Savona, F. Tassone, C. Piermarocchi, A. Quattropani, P. Schwendimann, *Phys. Rev. B* **53**, 13051 (1996)
- [109] F. Quochi, G. Bongiovanni, A. Mura, J.L. Staehli, B. Deveaud, R.P. Stanley, U. Oesterle, R. Houdre, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4733 (1998)
- [110] P. Zhou, S. Swain, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3995 (1996)
- [111] U. Fano, *Phys. Rev.* **124**, 1866 (1961)
- [112] S.E. Harris, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 1033 (1989)
- [113] S.E. Harris, J.J. Macklin, *Phys. Rev. A* **40**, 4135 (1989)
- [114] A.S. Zibrov, M.D. Lukin, D.E. Nikonov, L. Hollberg, V.L. Velichansky, H.G. Robinson, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1499 (1995)
- [115] G.G. Padmabandu, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 2053 (1996)
- [116] K. Maschke, P. Thomas, E.O. Göbel, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 2646 (1991)
- [117] D.Y. Oberli, G. Böhm, G. Wimmann, J.A. Brum, *Phys. Rev. B* **49**, 5757 (1994)
- [118] S. Glutsch, U. Siegner, M.-A. Mycek, D.S. Chemla, *Phys. Rev. B* **50**, 17009 (1994)
- [119] T. Meier, A. Schulze, P. Thomas, H. Vaupel, K. Maschke, *Phys. Rev. B* **51**, 13977 (1995)
- [120] M. Gurioli, F. Bogani, S. Ceccherini, M. Colocci, F. Beltram, L. Sorba, *Phys. Rev. B* **59**, R5316 (1999)
- [121] M. Kira, persönliche Mitteilung

Danksagung

Allen an der Entstehung dieser Arbeit direkt oder indirekt Beteiligten möchte ich an dieser Stelle meinen herzlichsten Dank aussprechen. Die gute Atmosphäre in der Arbeitsgruppe der Theoretischen Halbleiterphysik hat durch die Schaffung günstiger Rahmenbedingungen wesentlich zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen.

Mein Dank gilt in erster Linie meinem Doktorvater Prof. Dr. Stephan W. Koch für die gute Betreuung meiner Arbeit. Weiterhin möchte ich mich bei den an diesem Projekt im weiteren Sinne beteiligten aktuellen und ehemaligen Mitarbeitern bedanken, Dr. T. Warncke, mit der eine gute Zusammenarbeit bestand, die sich inzwischen jedoch ihrem Nachwuchs widmet, Dr. Stefan Haas, der sich jetzt voll auf die Betreuung von Rechnern konzentriert, Dr. Andreas Knorr und Prof. Dr. Peter Thomas für gelegentliche, fruchtbare Diskussionen, ebenso wie Dr. Mackillo Kira.

Prof. Dr. F. Gebhard danke ich für die Erstellung des Zweitgutachtens.

Die vielen interessanten Messungen von Dr. Martin Hübner und Dirk Ammerlahn in der Gruppe von Dr. J. Kuhl am Max-Planck-Institut für Festkörperforschung in Stuttgart haben immer wieder für einen anregenden Austausch gesorgt, für den ich mich bedanke.

Bei Dr. Dirk Brinkmann und Ralf Eichmann möchte ich mich bedanken, die mir angenehme Zimmergenossen waren und sich um die Pflege der Rechner verdient gemacht haben. Bei meinen Freunden Gerald, Armin, Monika und Petra bedanke ich mich für viele Abende der Ablenkung von physikalischen Problemen und Sorgen. Meiner Freundin Kris danke ich für die Geduld, mit der sie in Tucson auf mich wartet. Meiner Familie und meinen Eltern sei Dank für ihre moralische und finanzielle Unterstützung während meines Studiums und dieser Arbeit, ohne die dieses nicht möglich gewesen wäre.