

Theorie der Nahfeldoptik
mesoskopischer Halbleiter

Dissertation

zur

Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften

(Dr. rer. nat.)

von

Bernd Hanewinkel

aus Paderborn

Marburg/Lahn, Juni 1999

Vom Fachbereich Physik der Philipps-Universität
als Dissertation am 07.07.1999 angenommen.

Erstgutachter : Prof. Dr. P. Thomas
Zweitgutachter: Prof. Dr. W. Rühle

Tag der mündlichen Prüfung: 14.07.1999

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	5
1.1	Grundlagen der Nahfeldoptik	5
1.2	Nahfeldoptik an Halbleitern	7
2	Theoretische Grundlagen	10
2.1	Der mikroskopische Hamiltonoperator	11
2.2	Der gemittelte Hamiltonoperator	13
2.3	Verfeinerung des Hamiltonoperators	15
2.3.1	Das Confinement	15
2.3.2	Der Spin der Elektronen	15
2.4	Lineare Optik in Dipol- und RWA-Näherung	16
2.4.1	Dynamik der Polarisierung	16
2.4.2	Dynamik der Besetzungsdichten	19
2.4.3	Starkes Confinement	19
2.5	Lineare Optik jenseits der Dipolnäherung	21
3	Anwendungen	23
3.1	Das Modell	23
3.2	Anregung durch die Apertur	25
3.2.1	Ideale Apertur im Vakuum	25
3.2.2	Eine Apertur über der Halbleiteroberfläche	28
3.3	Detektion durch eine Apertur	32
3.4	Nahfeldoptik lokalisierter Exzitonen	36
3.4.1	Beschreibung gebundener Exzitonen	36
3.4.2	Homogene Umgebung	40
3.4.3	Inhomogen Umgebung: Oberflächen	42

3.4.4	Inhomogene Umgebung: Die Apertur	45
3.4.5	Nahfeld-Spektren eines Quantenpunkt-Dipols	46
3.4.6	Nahfeld-Spektren eines Quantenpunkt-Quadrupols	48
3.4.7	Vergleich eines Dipolübergangs mit einem Quadrupolübergang	49
3.4.8	Ausgedehnte und lokalisierte Zustände	51
3.5	Anregung von Leicht- und Schwerlochexzitonen im Quantenfilm . . .	51
3.6	Dipolübergänge zweiter Ordnung und Quadrupolübergänge	55
3.7	Optische Wellenpakete	58
3.7.1	Polaritonen	59
3.7.2	Der Quantenfilm unter einer Oberfläche	63
3.7.3	Räumlich-zeitliche Dynamik eines exzitonischen Wellenpaketes	65
3.7.4	Einfluß von Unordnung	67
3.7.5	Die optische Detektion des Wellenpaketes	70
4	Zusammenfassung	72
A	Die Greensche Funktion des elektromagnetischen Feldes	75
A.1	Darstellung im homogenen System	75
A.2	Darstellung der Greenschen Funktion in geschichteten Strukturen . .	78
A.3	Der quasistatische Grenzfall	80
B	Numerische Lösung der Maxwell-Gleichungen	81
	Literatur	82

Kapitel 1

Einleitung

1.1 Grundlagen der Nahfeldoptik

Bei einem gewöhnlichen Mikroskop ist die Auflösung durch Beugungseffekte begrenzt. Für die kleinste mit der Objektivlinse beleuchtete Fläche läßt sich nach dem Rayleigh-Kriterium ein Durchmesser von

$$\Delta = \frac{1.22\lambda}{N_A}, \quad (1.1)$$

angeben. λ bezeichnet die Wellenlänge des Lichts und N_A ist die numerische Apertur des Mikroskops. Δ kann als minimaler Abstand zweier Objekte, die mit dem Mikroskop aufgelöst werden können, interpretiert werden. Praktisch führt dies zu einer maximalen Auflösung, die im Bereich von $\lambda/2$ liegt. Dies ist ungefähr ein halber Mikrometer bei einer Wellenlänge, die der fundamentalen Bandlücke von Galliumarsenid (GaAs) entspricht. Das Rayleigh-Kriterium läßt sich im Fernfeld anwenden, wenn der Abstand der Linse zum Objekt groß gegen die Wellenlänge ist. Bringt man dagegen eine Sonde, z. B. ein strahlendes Teilchen mit einer Ausdehnung, die klein gegen die Wellenlänge ist, in die unmittelbare Umgebung der Probe, dann kann die Intensitätsverteilung des Lichts auf einer wesentlich kürzeren Skala variieren. Optische Verfahren, die dies ausnutzen, werden unter dem Begriff Nahfeldoptik zusammengefaßt; verknüpft mit einer Abtastung einer Oberfläche in einem Rasterverfahren spricht man von Scanning Near-Field Optical Microscopy (SNOM oder NSOM). Ein solches Konzept ist zuerst im Mikrowellenbereich realisiert worden [1], wobei eine Auflösung von $\lambda/60$ erreicht wurde. Seit den frühen Achtzigern ist die

Technik im optischen Spektralbereich angewendet worden [2, 3] wo schon früh eine Auflösung von 20 nm gelang [4]. Bezüglich der Anwendung in der Halbleiterspektroskopie ist besonders die Realisierung bei tiefen Temperaturen wichtig [5].

Im allgemeinen kann zwischen Verfahren, bei denen die Nahfeldsonde über die Oberfläche bewegt wird (SNOM) und stationären Verfahren unterschieden werden. Letztere sind z. B. durch Aperturen mit Durchmessern unter 50nm in auf die Probe aufgedampften Metallfilmen realisiert worden [6]. Eine andere Möglichkeit ist es, ein kleines Streuobjekt, wie ein Metallpartikel oder sogar ein Molekül, auf einer Oberfläche zu positionieren [7]. Stationäre Verfahren sind mit einem geringeren experimentellen Aufwand verbunden, Rastertechniken sind natürlich vielseitiger anwendbar.

In SNOM Experimenten werden häufig optische Fasern [5] oder auch AFM-Cantilever [8] benutzt. Mit den letzteren können simultan Informationen über optische und topographische Eigenschaften der Probe aufgenommen werden. Optische Fasern werden durch Erhitzen und unter Zug [5] oder durch Ätzverfahren [9] zugespitzt bis auf einen Spitzendurchmesser von ca. 50 nm. In den meisten Fällen werden die Fasern metallisch bedampft, so daß nur in der Spitze eine Apertur bleibt. Das Metall führt das Licht in der Faser durch die Apertur. Für kleine Durchmesser kann sich das Licht jedoch nicht mehr in der Faser ausbreiten, was zu einer starken Reflexion bzw. Absorption in der Faserspitze führt, so daß die Transmission vergleichsweise gering ist [10].

Die Apertur kann einerseits zur lokalen Anregung des Halbleiters genutzt werden verbunden mit einer Detektion im Fernfeld, oder die Probe wird von einer ebenen Welle angeregt und die Nahfeldsonde wird eingesetzt, um das Feld lokal zu detektieren. Die Kombination dieser beiden Verfahren, lokal anregen und lokal detektieren, hat bei metallbedampften Spitzen den Nachteil, daß sie mit einem hohen Intensitätsverlust verbunden ist, da das Licht zweimal die Apertur durchqueren muß. In Verbindung mit unbedampften Faserspitzen ist dieses Konzept jedoch angewendet worden (Internal Reflexion SNOM), und eine Auflösung im Bereich unterhalb der Lichtwellenlänge ist experimentell realisiert [11, 12] und theoretisch modelliert worden [13]. Es zeigt sich, daß der Einfluß der Topographie der Probe beachtet werden muß [14] und daß eine Auflösung jenseits der Beugungsgrenze nur erreicht wird, falls die Polarisationsrichtungen von Anregung und Detektion senkrecht aufeinander ste-

hen. Außerdem ist das Signal sensitiv auf Veränderungen im Brechungsindex, wie z. B. auf Kanten zwischen homogenen Bereichen unterschiedlicher Brechungsindizes.

Aus dieser kurzen Diskussion wird ersichtlich, daß zum Verständnis von Nahfeldspektren die theoretische Beschreibung erheblich beitragen muß. Insbesondere die komplexe Feldverteilung und die Wechselwirkung zwischen Nahfeldsonde und Probe verlangen sorgfältige theoretische Modellierung.

1.2 Nahfeldoptik an Halbleitern

SNOM ist eine vielversprechende Technik für die Untersuchung von Halbleiterheterostrukturen. Obwohl unterschiedliche Verfahren angewendet werden und somit unterschiedliche Auflösungen erreicht werden, kann man sagen, daß üblicherweise eine Auflösung im Bereich von einigen 10 bis 100nm erreicht wird. Im Bereich des Halbleiters ist dies die mesoskopische Skala, zumindest eine Größenordnung über der atomaren Struktur, jedoch deutlich unterhalb der Abmessungen des makroskopischen Objektes. Im letzten Jahrzehnt hat die Strukturierung von Halbleitern auf der mesoskopischen Skala zu einer Vielzahl von neuen Anwendungen und Verbesserungen von Halbleiterbauelementen geführt. Besonders Strukturen mit reduzierter Dimensionalität wie Quantenfilme (QW), Quantendrähte (QWI) und Quantenpunkte (QD) sind untersucht und in optoelektronischen Bauteilen implementiert worden [15]. Diese Strukturen haben Eigenschaften, die von einer großen Zahl von Atomen bestimmt werden und so die kristalline Bandstruktur des Materials widerspiegeln. Auf der anderen Seite werden durch zusätzliche effektive mesoskopische Potentiale die Materialeigenschaften modifiziert, was zum Confinement der Ladungsträger auf der mesoskopischen Längenskala führt. Besonders das Zusammenspiel von mesoskopischer Strukturierung und der Coulomb-Wechselwirkung führt zu neuen Eigenschaften, z. B. der Verstärkung der optischen Antwort von niederdimensionalen Halbleitern im Vergleich zum Volumenmaterial [16].

Aufgrund der hohen Auflösung kann man in der Nahfeldspektroskopie das räumliche Analogon zur Ultrakurzzeitspektroskopie sehen. In diesem Bereich hat es die Verfügbarkeit von kurzen optischen Pulsen (bis zu 10 fs und weniger) und den dazugehörigen Meßverfahren ermöglicht, die kohärente Dynamik im Halbleitermaterial zu untersuchen. Insbesondere die Kombination von SNOM mit zeitaufgelösten Mes-

sungen sollte weitere Einblicke in die räumlich zeitliche Dynamik von Anregungen im Halbleiter ermöglichen [17, 18].

Bei der Untersuchung von optischen Halbleiterkomponenten wie z. B. Dioden oder Lasern liefert SNOM direkte Informationen über die optischen Eigenschaften. Das ist ein Vorteil gegenüber anderen Raster-Sonden-Techniken, z. B. Raster-Kraft-Mikroskopie, die zwar eine höhere Auflösung ermöglichen, aber eher die Struktur des Materials abtasten. SNOM ist bei in-situ Messungen an elektrooptischen Bauelementen wie Dioden, Wellenleitern [19] und Lasern [20] angewandt worden und liefert Informationen über Modenstruktur oder räumlich aufgelöste Emissionscharakteristik.

Im Grundlagenbereich sind insbesondere die optischen Eigenschaften von dimensionsreduzierten Strukturen wie Quantenfilme, Quantendrähte und Quantenpunkte untersucht worden. Besonders Quantenpunkte sind Gegenstand nahfeldoptischer Untersuchungen [21, 22, 6, 23]. Aufgrund des dreidimensionalen Confinements der Ladungsträger haben sie diskrete Spektren wie atomare Systeme [24]. Im Unterschied zu einem Ensemble von atomaren Systemen, das im Prinzip aus identischen Teilchen besteht, die sich nur durch eine unterschiedliche Umgebung (z. B. in einer Kristallmatrix) bzw. durch ihre Geschwindigkeit (z. B. in einem Gas) unterscheiden, variieren QDs i. allg. in Größe, Form und Komposition. Ein optisches Spektrum liefert dann nur Informationen über die gemittelten Eigenschaften; die Spektren sind inhomogen verbreitert. Es ist daher wünschenswert, die Anregung stark zu fokussieren, um ein möglichst kleines Ensemble von Quantenpunkten anzuregen. Dies ist in sogenannter μ PL [25] und in nahfeldoptischen Verfahren [6] erreicht worden. In diesem Zusammenhang sind Linienform, Feinstruktur und sogar Hyperfeinstruktur [6] untersucht worden, wie auch der Einfluß von magnetischen Feldern [26].

Die Untersuchung von ein- und zweidimensionalen Strukturen (QWs, QWIs) kann i. allg. in Untersuchung ihrer intrinsischen Eigenschaften, z. B. Transportdynamik in Richtung der Translationsinvarianz [17, 27], und in lokale Untersuchungen von Abweichungen von der idealen Struktur unterschieden werden. Hier ist insbesondere die Oberflächenrauigkeit von Quantenfilmen untersucht worden. Die optischen Eigenschaften lassen Rückschlüsse auf die mesoskopische Materialstruktur zu, die i. allg. oberflächensensitiven Verfahren nicht zugänglich sind, da die Strukturen unter einer Deckschicht liegen.

Die meisten SNOM Experimente sind bisher als PL- oder PLE-Messungen durchgeführt worden, bei denen die Nahfeldsonde entweder die Probe anregt oder die Lumineszenz sammelt. Zusätzlich ist diese Technik zeitaufgelöst, in Kombination mit nichtlinearen Anregungen oder in Kombination mit magnetischen Feldern angewandt worden.

In dieser Arbeit wird die kohärente Anregung eines Halbleiters an der exzitonischen Resonanz untersucht. Dazu werden Materialgleichungen hergeleitet, die die Dynamik der exzitonischen Polarisation in der Nahfeldkonfiguration beschreiben (Kap. 2). In Kapitel 3 wird diese Theorie auf ein Modellsystem angewendet, bei dem sich über der Halbleiteroberfläche eine dünne Metallschicht befindet, die eine Apertur mit einem Durchmesser, der klein gegen die Wellenlänge des Lichts ist, hat. Die Dynamik des elektromagnetischen Feldes in dieser Konfiguration wird in den Abs. 3.2 und 3.3 untersucht. Die folgenden Abschnitte beschäftigen sich mit der Beschreibung der Anregung von gebundenen Exzitonen (Abs. 3.4), der Diskussion von Auswahlregeln bei der Anregung eines Quantenfilmes (Abs. 3.5) und bei der Anregung von Übergängen mit verschwindendem Dipolmatrixelement (Abs. 3.6). Außerdem wird die Untersuchung des optischen Transports von Exzitonen in der Nahfeldkonfiguration diskutiert (Abs. 3.7).

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen

In diesem Abschnitt wird eine mikroskopische Theorie dargestellt, die die optische Antwort eines Halbleiters auf eine optische Nahfeldanregung beschreibt. Ein externes elektromagnetisches Feld, erzeugt mit einem Laser, regt dabei den Halbleiter in der Nahfeldkonfiguration an. Die induzierte Polarisierung ist wiederum eine Quelle der elektromagnetischen Felder. Die Materialgleichungen, die die optische Antwort des Halbleiters beschreiben, sind also selbstkonsistent mit den Maxwell'schen Gleichungen zu lösen. Die linearen und lokalen Anteile der optischen Antwort des Halbleiters und der Nahfeldsonde können dabei von einer dielektrischen Funktion $\varepsilon(r)$ beschrieben werden. Für die resonanten Anregungen an der Bandkante des Halbleiters werden quantenmechanische Bewegungsgleichungen hergeleitet. Diese Gleichungen beinhalten die speziellen Bedingungen der optischen Nahfeldanregung: hohe Lokalisierung der Anregung, starke Feldgradienten, verschiedene Polarisationskomponenten des einfallenden Lichts. Man kann daher annehmen, daß nichtlokale und anisotrope Eigenschaften berücksichtigt werden müssen. Durch die hohen Feldgradienten können in einer Multipolentwicklung der Wechselwirkung zwischen den elektrischen Feldern und dem Halbleiter Beiträge höherer Ordnung wichtig werden.

Im allgemeinen wird ein quantenmechanisches System vollständig durch seinen Hamiltonoperator charakterisiert. Die Dynamik der Observablen ergibt sich dann aus den Heisenberg-Bewegungsgleichungen. Im folgenden wird der Hamiltonoperator für das System aus Halbleiter und elektromagnetischem Feld diskutiert.

2.1 Der mikroskopische Hamiltonoperator

Die Dynamik eines Systems aus geladenen Teilchen im elektromagnetischen Feld wird durch den Hamiltonoperator in minimaler Kopplung bestimmt [29]. Er kann in folgende Bestandteile zerlegt werden:

$$H = H_0 + H_{conf} + H_f + H_C + H_I . \quad (2.1)$$

H_0 beschreibt die Bewegung der Elektronen im periodischen Gitterpotential, H_{conf} beinhaltet zusätzliche Confinementpotentiale, die z. B. durch räumliche Variationen der Legierung des Halbleiters verursacht werden. H_f ist der Hamiltonoperator des freien elektromagnetischen Feldes, H_C und H_I beschreiben die Wechselwirkung zwischen elektrischem Feld und den geladenen Teilchen, die i. allg. in die Wechselwirkung über das skalare Potential in H_C und über das Vektorpotential in H_I zerlegt wird.

Im Formalismus der zweiten Quantisierung wird H nach fermionischen Teilchenoperatoren $a_{\lambda\mathbf{k}}, a_{\lambda\mathbf{k}}^\dagger$ entwickelt, die die Erzeugung und Vernichtung von Elektronen in den Einteilchen-Bloch-Zuständen

$$|\lambda\mathbf{k}\rangle = \frac{1}{\sqrt{V}} u_{\lambda\mathbf{k}}(r) e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \quad (2.2)$$

des Kristallgitters beschreiben. Die Blochfunktionen sind Eigenzustände des Einteilchen-Hamiltonoperators $\frac{\mathbf{p}^2}{2m_0} + V_0$, wobei V_0 das Gitterpotential, \mathbf{p} den Impulsoperator und m_0 die freie Masse des Elektrons bezeichnet. Die Eigenenergien von H_0 werden mit $\varepsilon_{\lambda\mathbf{k}}$ bezeichnet, wobei \mathbf{k} den Wellenvektor und λ den Bandindex bezeichnen.

Da H_0 die freie Dynamik der Elektronen im Kristall beschreibt, ist er diagonal in der Darstellung durch Bloch-Zustände:

$$H_0 = \sum_{\lambda\mathbf{k}} \varepsilon_{\lambda\mathbf{k}} a_{\lambda\mathbf{k}}^\dagger a_{\lambda\mathbf{k}} . \quad (2.3)$$

Der Anteil des Hamiltonoperators H_{conf} , der das Confinement beschreibt, wird in Abs. 2.3.1 diskutiert. Die drei verbleibenden Teile des Hamiltonoperators beinhalten das elektromagnetische Feld. Hier kann man zwischen der resonanten Antwort des Systems an der Bandkante und den nicht resonanten Anteilen unterscheiden. Letztere werden durch eine dielektrische Funktion $\epsilon(\mathbf{r})$ zusammengefaßt und im folgenden

als Hintergrundpolarisation des Materials bezeichnet. Die Funktion $\epsilon(\mathbf{r})$ beschreibt sowohl die nichtresonante Polarisation im Halbleiter als auch die dielektrischen (bzw. metallischen) Eigenschaften der Nahfeldsonde. Die Dynamik des elektromagnetischen Feldes im Hintergrundmaterial kann in den Hamiltonoperator des freien Feldes mit einbezogen werden [30]. Die Eichung des Vektorpotentials wird so gewählt werden, daß \mathbf{A} die verallgemeinerte Coulomb-Bedingung erfüllt:

$$\nabla \cdot (\epsilon \mathbf{A}) = 0 . \quad (2.4)$$

In diesem Fall ist das Skalarpotential ϕ eine Funktion der Ladungsdichte:

$$-\nabla \cdot (\epsilon \nabla \phi) = 4\pi \rho . \quad (2.5)$$

In einem homogenen Medium ($\epsilon(\mathbf{r}) = \epsilon_0$) vereinfacht sich diese Beziehung zur Laplacegleichung, deren Lösung durch das Coulomb-Integral bestimmt wird:

$$\phi(\mathbf{r}) = \frac{1}{\epsilon_0} \int \frac{\rho(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d^3 r' . \quad (2.6)$$

Im allgemeinen kann das Skalarpotential als Funktional der Ladungsdichte geschrieben werden:

$$\phi(\mathbf{r}) = \int V_C(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \rho(\mathbf{r}') d^3 r' , \quad (2.7)$$

wobei $V_C(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ das Potential am Ort \mathbf{r} einer punktförmigen Ladung am Ort \mathbf{r}' ist. Aufgrund von Grenzflächen kann $V_C(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ Bildladungen beinhalten, so daß die Randbedingungen für die elektromagnetischen Felder an den Oberflächen erfüllt sind. Typischerweise werden diese Effekte wichtig, falls sich die Ladungen in unmittelbarer Nähe zur Grenzfläche befinden. Für eine Anregung an der exzitonischen Resonanz ist dabei der Exziton-Bohrradius der charakteristische Abstand.

In zweiter Quantisierung ist die Coulomb-Wechselwirkung gegeben durch:

$$H_C = \frac{1}{2} \sum V_{\mathbf{k}_1 \mathbf{k}_2 \mathbf{k}_3 \mathbf{k}_4}^{\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3 \lambda_4} a_{\lambda_1 \mathbf{k}_1}^\dagger a_{\lambda_2 \mathbf{k}_2}^\dagger a_{\lambda_4 \mathbf{k}_4} a_{\lambda_3 \mathbf{k}_3} , \quad (2.8)$$

wobei die Coulomb-Matrixelemente bestimmt sind durch:

$$V_{\mathbf{k}_1 \mathbf{k}_2 \mathbf{k}_3 \mathbf{k}_4}^{\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3 \lambda_4} = \frac{1}{V^2} \int d^3 r d^3 r' u_{\lambda_1 \mathbf{k}_1}^*(\mathbf{r}) u_{\lambda_2 \mathbf{k}_2}^*(\mathbf{r}') V_C(\mathbf{r}, \mathbf{r}') u_{\lambda_3 \mathbf{k}_3}(\mathbf{r}) u_{\lambda_4 \mathbf{k}_4}(\mathbf{r}') \\ \times e^{-i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{r}} e^{-i(\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_4) \cdot \mathbf{r}'} . \quad (2.9)$$

Im folgenden werden die elektrodynamischen Felder klassisch behandelt, was für die Beschreibung von kohärenten Phänomenen angemessen ist. Die Hamiltonschen Gleichungen ergeben dann eine Bewegungsgleichung für das Vektorpotential:

$$-\nabla \times \nabla \times \mathbf{A} - \frac{\epsilon(\mathbf{r})}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{A} = -\frac{4\pi}{c} \langle \mathbf{j}_t \rangle \quad (2.10)$$

wobei $\langle \mathbf{j}_t \rangle$ den transversalen Strom bezeichnet, der definiert ist durch:

$$\begin{aligned} \mathbf{j}_t &= -c \left(\frac{\delta H}{\delta \mathbf{A}} \right)_t \\ &= - \left(\sum u_{\lambda_1 \mathbf{k}_1}^* (\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}} \left(-\frac{e}{m_0} \mathbf{p} + \frac{e^2}{m_0 c} \mathbf{A} \right) u_{\lambda_2 \mathbf{k}_2} (\mathbf{r}) e^{i\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}} a_{\lambda_1 \mathbf{k}_1}^\dagger a_{\lambda_2 \mathbf{k}_2} \right)_t . \end{aligned} \quad (2.11)$$

Damit ergeben sich die eichinvarianten Bewegungsgleichungen für die elektrischen und magnetischen Felder:

$$\begin{aligned} \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= -\frac{1}{c_0} \partial_t \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) \\ \nabla \times \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) &= \frac{\epsilon(\mathbf{r})}{c_0} \partial_t \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \frac{4\pi}{c_0} \mathbf{j}(\mathbf{r}, t) . \end{aligned} \quad (2.12)$$

Diese Gleichungen bestimmen die Dynamik der vollen elektromagnetischen Felder \mathbf{E} und \mathbf{B} (transversal und longitudinal), angeregt durch die resonanten Ströme \mathbf{j} unter Berücksichtigung der nichtresonanten Polarisation, die durch $\epsilon(\mathbf{r})$ beschrieben wird.

2.2 Der gemittelte Hamiltonoperator

Der Hamiltonoperator Gl. (2.1) beschreibt das System auf der mikroskopischen Ebene, also auf einer Skala, die durch die Ausdehnung der Elementarzelle beschrieben wird. Selbst bei einer optischen Nahfeldanregung ist es aber angebracht anzunehmen, daß die externen Felder auf einer mesoskopischen Skala variieren, über der Elementarzelle dagegen nur schwach veränderlich sind. Man kann daher die Felder auf der Skala der Elementarzelle mitteln und Bewegungsgleichungen bezüglich dieser gemittelten Felder aufschreiben. Dieser Zugang ist insbesondere auch deshalb sinnvoll, weil in Systemen mit Wannier-Exzitonen die Coulomb-Wechselwirkung ebenfalls zu Zuständen führt, die sich über viele Elementarzellen erstrecken. Unter diesen Bedingungen sei das Potential ϕ (und analog das Vektorpotential \mathbf{A}) genähert durch:

$$\phi(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{k}} \phi(\mathbf{k}) e^{-i\mathbf{k}\mathbf{x}} , \quad (2.13)$$

wobei die Summe nur über die erste Brillouin Zone (BZ) läuft, höhere Fourierkomponenten sind vernachlässigt. In Ortsraum entspricht dies einer Mittelung über der Elementarzelle. In diesem Fall erfüllt die Fouriertransformierte die Relation

$$\phi(\mathbf{k}) = \frac{1}{V} \int e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} \phi(\mathbf{r}) d^3r = \frac{\Omega_0}{V} \sum_{\mathbf{R}} \phi(\mathbf{R}) e^{i\mathbf{k}\mathbf{R}}, \quad (2.14)$$

wobei \mathbf{R} nur Gitterpunkte bezeichnet und Ω_0 das Volumen der Elementarzelle ist. Mit diesem Vorgehen läßt sich der Hamiltonoperator schreiben als:

$$\begin{aligned} H = & \sum_{\mathbf{k}\lambda} \varepsilon_{\lambda\mathbf{k}} a_{\lambda\mathbf{k}}^\dagger a_{\lambda\mathbf{k}} \\ & + \frac{1}{2} \sum_{\lambda\mathbf{k}} \frac{4\pi e^2}{V |\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_3|^2} \langle \lambda_1 \mathbf{k}_1 | \lambda_3 \mathbf{k}_3 \rangle \langle \lambda_2 \mathbf{k}_2 | \lambda_4 \mathbf{k}_4 \rangle \\ & \quad \times a_{\lambda_1 \mathbf{k}_1}^\dagger a_{\lambda_2 \mathbf{k}_2}^\dagger a_{\lambda_4 \mathbf{k}_4} a_{\lambda_3 \mathbf{k}_3} \\ & - \frac{1}{c_0 m_0} \sum_{\lambda\mathbf{k}} (\langle \lambda_1 \mathbf{k}_1 | \mathbf{p} + \mathbf{q} | \lambda_2 \mathbf{k}_2 \rangle \mathbf{A}_{\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1} \\ & \quad - \frac{e}{2c_0} \langle \lambda_1 \mathbf{k}_1 | \lambda_2 \mathbf{k}_2 \rangle \mathbf{A}_{\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1}^2) a_{\lambda_1 \mathbf{k}_1}^\dagger a_{\lambda_2 \mathbf{k}_2}, \end{aligned} \quad (2.15)$$

wobei die Klammern das Integral über die Elementarzelle bezeichnen:

$$\langle \lambda_1, \mathbf{k}_1 | \lambda_2, \mathbf{k}_2 \rangle = \frac{1}{\Omega_0} \int_{\Omega_0} u_{\lambda_1 \mathbf{k}_1}^*(\mathbf{r}) u_{\lambda_2 \mathbf{k}_2}(\mathbf{r}) d^3r. \quad (2.16)$$

Die gemittelten Ladungs- und Stromdichten ergeben sich analog aus den mikroskopischen Ausdrücken Gl. (2.11):

$$\begin{aligned} \rho(\mathbf{R}) &= \frac{e}{V} \sum_{\lambda_1, \lambda_2, \mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2} e^{-i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2)\mathbf{R}} \langle \lambda_1 \mathbf{k}_1 | \lambda_2 \mathbf{k}_2 \rangle a_{\lambda_1 \mathbf{k}_1}^\dagger a_{\lambda_2 \mathbf{k}_2} \\ \mathbf{J}(\mathbf{R}) &= \frac{e}{V m_0} \sum_{\lambda_1, \lambda_2, \mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2} e^{-i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2)\mathbf{R}} (\langle \lambda_1 \mathbf{k}_1 | \mathbf{p} | \lambda_2 \mathbf{k}_2 \rangle \\ & \quad + \langle \lambda_1 \mathbf{k}_1 | \mathbf{k}_2 - \frac{e}{c_0} \mathbf{A}(\mathbf{R}) | \lambda_2 \mathbf{k}_2 \rangle) a_{\lambda_1 \mathbf{k}_1}^\dagger a_{\lambda_2 \mathbf{k}_2}. \end{aligned} \quad (2.17)$$

Man kann zeigen, daß die so bestimmten Ströme und Ladungen die Kontinuitätsgleichung erfüllen.

An dieser Stelle sind noch die Integrale über der Einheitszelle auszuwerten. Die Entwicklung der Blochfunktionen um den Γ -Punkt führt zu einer Multipolentwicklung der Wechselwirkung. Für ein einfaches Modellsystem mit nichtentarteten Zuständen im Zentrum der BZ ergibt sich entsprechend der $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ Theorie [16] die Entwicklung bis zur ersten Ordnung:

$$|\lambda \mathbf{k} \rangle = |\lambda 0 \rangle + \frac{\hbar}{m_0} \sum_{\eta \neq \lambda} \frac{|\eta \rangle \mathbf{k} \cdot \langle \eta | \mathbf{p} | \lambda \rangle}{E_\lambda - E_\eta} \quad (2.18)$$

2.3 Verfeinerung des Hamiltonoperators

Im vorherigen Abschnitt sind die Grundlagen der Theorie beschrieben worden. Für eine realistische Beschreibung von Halbleiterheterostrukturen sind der Spin der Elektronen wie auch die Confinementpotentiale zu berücksichtigen.

2.3.1 Das Confinement

Durch die Veränderung der Legierung von Halbleitern wird die Bandstruktur modifiziert. In vielen Fällen kann dies durch zusätzliche Potentiale $V_\lambda(R)$ berücksichtigt werden, die die ortsabhängige Verschiebung des Bandes λ angeben [31]. Der zugehörige Teil des Hamiltonoperators H_{conf} ist demnach gegeben durch:

$$H_{conf} = \sum_{\lambda \mathbf{k}_1 \mathbf{k}_2} \int V_\lambda(\mathbf{R}) e^{-i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2)\mathbf{R}} a_{\lambda \mathbf{k}_1}^\dagger a_{\lambda \mathbf{k}_2} d^3 R . \quad (2.19)$$

2.3.2 Der Spin der Elektronen

Wenn man den Spin Index mit in dem Bandindex zusammenfaßt, $\lambda = (\tilde{\lambda}, s)$, und definiert:

$$|\lambda \mathbf{k} \rangle = |\tilde{\lambda}, \mathbf{k} \rangle |s \rangle \quad (2.20)$$

und

$$\langle \lambda_1, \mathbf{k}_1 | \lambda_2, \mathbf{k}_2 \rangle = \frac{1}{\Omega_0} \int_{\Omega_0} u_{\tilde{\lambda}_1 \mathbf{k}_1}^*(\mathbf{r}) u_{\tilde{\lambda}_2, \mathbf{k}_2} d^3 r \langle s_1 | s_2 \rangle, \quad (2.21)$$

dann beinhalten obige Resultate auch die Beschreibung des Spins.

Zur realistischen Beschreibung von Halbleiterstrukturen ist allerdings die Berücksichtigung der Spin-Bahn-Wechselwirkung wichtig. In diesem Fall sind die Zustände nach ihrem Gesamtdrehimpuls zu klassifizieren. In einem Halbleiter mit Zinkblende-Kristallstruktur ist das Valenzband bei $\mathbf{k} = 0$ p-artig, es resultiert aus Elektronen mit dem Bahndrehimpuls $l = 1$. Zusammen mit dem Spin haben diese Elektronen einen Gesamtdrehimpuls von $j = 3/2$ oder $j = 1/2$. Die Zustände mit $j = 1/2$ sind zu niedrigeren Energien verschoben aufgrund der Spin-Bahn-Wechselwirkung. Die Zustände zum Gesamtdrehimpuls $j = 3/2$ sind im Zentrum der BZ entartet im Volumenmaterial. Für $\mathbf{k} \neq 0$ ist die Entartung allerdings aufgehoben, was durch die unterschiedlichen effektiven Massen der $j_z = 3/2$ (schweres Loch) und der $j_z = 1/2$ (leichtes Loch) Bänder beschrieben wird.

Die Berücksichtigung des Spins modifiziert auch die Resultate für die Entwicklung der Blochfunktionen Gl. 2.18. Die Störung ist durch ein verallgemeinertes Moment Π gegeben, das Effekte der Spin-Bahn-Wechselwirkung beinhaltet:

$$\mathbf{\Pi} = \mathbf{p} + \frac{\hbar}{4m_0c^2}(\boldsymbol{\sigma} \times \nabla V(\mathbf{r})) . \quad (2.22)$$

Bei der Entwicklung der Blochfunktionen in $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ Theorie ist entartete Störungstheorie anzuwenden. Die Störung mischt die entarteten Zustände aber nicht, und die Korrektur in erster Ordnung wird nur durch die entfernten Bänder verursacht [32]:

$$|\lambda \mathbf{k} \rangle = |\lambda 0 \rangle + \frac{\hbar}{m_0} \sum_{E_\eta \neq E_\lambda} \frac{|\eta \rangle \langle \eta | \mathbf{\Pi} | \lambda \rangle}{E_\lambda - E_\eta} \quad (2.23)$$

Ein zusätzliches Confinement-Potential hebt die Entartung am Γ -Punkt auf und führt zu modifizierten effektiven Massen, die i. allg. nicht isotrop sind (vgl. Abb. 3.12). Für höhere Wellenvektoren treten Effekte wie Bandabstoßung auf, die nicht mehr in der Näherung einer effektiven Masse zu beschreiben sind.

2.4 Lineare Optik in Dipol- und RWA-Näherung

2.4.1 Dynamik der Polarisation

Die allgemeine Darstellung wird hier auf ein Zwei-Band-Modell beschränkt, es werden nur Terme berücksichtigt, die in der Rotating Wave Approximation (RWA) beitragen. Bei der Entwicklung der Bloch-Funktionen Gl. (2.18) werden nur die führenden Terme mitgenommen, was einer Dipolentwicklung auf der Elementarzelle entspricht. In diesem Fall ist der Hamiltonoperator für die Wechselwirkung mit dem elektromagnetischen Feld gegeben durch:

$$H_I = -\frac{1}{c_0 m_0} \sum_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2} e^{-i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{R}} \mathbf{p}_{vc} \cdot \mathbf{A}(\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1) a_{v\mathbf{k}_1}^\dagger a_{c\mathbf{k}_2} + h.c. \quad (2.24)$$

In gleicher Näherung ergeben sich für die Ladungen und Ströme folgende Ausdrücke:

$$\begin{aligned} \rho(\mathbf{R}) &= \frac{e}{V} \sum_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2} i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{d}_{vc} e^{-i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{R}} a_{v\mathbf{k}_1}^\dagger a_{c\mathbf{k}_2} + h.c. \\ \mathbf{j}(\mathbf{R}) &= \frac{e}{Vm_0} \sum_{\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2} \mathbf{p}_{vc} e^{-i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{R}} a_{v\mathbf{k}_1}^\dagger a_{c\mathbf{k}_2} + h.c. , \end{aligned} \quad (2.25)$$

wobei $\mathbf{d}_{vc} = \langle v | \mathbf{e}r | c \rangle$ und $\mathbf{p}_{vc} = \langle v | \mathbf{p} | c \rangle$ das Dipol- und das Impulsmatrixelement genommen bei $\mathbf{k} = 0$ bezeichnen.

Die Coulomb-Matrixelemente sind dann gegeben durch:

$$V_{\mathbf{k}_1 \mathbf{k}_2 \mathbf{k}_3 \mathbf{k}_4}^{\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3 \lambda_4} = V_{\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_3} \delta_{\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_4} \\ \times (e^2 \delta_{\lambda_1 \lambda_3} \delta_{\lambda_2 \lambda_4} + (\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{d}_{\lambda_1 \lambda_3} (\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{d}_{\lambda_2 \lambda_4}) \quad (2.26)$$

Der erste Term beschreibt die Monopol-Monopol-Wechselwirkung, er führt z. B. zur Bildung des Exzitons. Der zweite Term beschreibt die Dipol-Dipol-Wechselwirkung, die Monopol-Dipol-Wechselwirkung trägt in RWA nicht bei.

Nachdem nun alle Beiträge im Hamiltonoperator spezifiziert sind, können für beliebige Operatoren O Heisenbergsche Bewegungsgleichungen

$$\dot{O} = i/\hbar [H, O] \quad (2.27)$$

aufgeschrieben werden. Der Strom (2.25), der in den Maxwell'schen Gleichungen als Quelle auftritt, wird bestimmt durch die Nichtdiagonalelemente der Einteilchen-Dichte-Matrix:

$$P_{\mathbf{k}_1 \mathbf{k}_2}^{vc} = \langle a_{v\mathbf{k}_1}^\dagger a_{c\mathbf{k}_2} \rangle . \quad (2.28)$$

Da diese Größe die Polarisation bestimmt, wird sie im folgenden als Interbandpolarisation bezeichnet oder als Interbandkohärenz, um sie von der makroskopischen Polarisation zu unterscheiden. Die Bewegungsgleichungen für $P_{\mathbf{k}_1 \mathbf{k}_2}^{vc}$ führen auf das Hierarchieproblem, sie koppeln an Korrelationen höherer Ordnung. Geschlossene Gleichungen erhält man in der Hartree-Fock-Näherung [16], die exakt in linearer Ordnung im Feld ist:

$$-i\dot{P}_{\mathbf{k}_1 \mathbf{k}_2}^{vc} = (\epsilon_{v\mathbf{k}_1} - \epsilon_{c\mathbf{k}_2}) P_{\mathbf{k}_1 \mathbf{k}_2}^{vc} \\ + \sum_{\mathbf{q}} V_{\mathbf{q}} P_{\mathbf{k}_1 - \mathbf{q} \mathbf{k}_2 - \mathbf{q}}^{vc} \\ + \mathbf{d}_{cv} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \\ + \sum_{\mathbf{q}} (V_v(\mathbf{k}_1 - \mathbf{q}) P_{\mathbf{q} \mathbf{k}_2}^{vc} - V_c(\mathbf{q} - \mathbf{k}_2) P_{\mathbf{k}_1 \mathbf{q}}^{vc}) \quad (2.29)$$

In dieser Gleichung koppelt die Interbandpolarisation an das totale elektrische Feld $\mathbf{E} = \mathbf{E}_l + \mathbf{E}_t$. Das ergibt sich aus Beiträgen aus H_I , die an das transversale Feld koppeln ($\mathbf{E}_t \approx -i\omega \mathbf{A}$ in Slowly Varying Envelope Approximation (SVEA)) und Beiträgen aus H_C , die an das longitudinale Feld koppeln.

Im nächsten Schritt kann zu Schwerpunkts- und Relativkoordinaten übergegangen werden. Dazu wird der Schwerpunktimпульs \mathbf{Q} und der Relativimpuls \mathbf{q} definiert:

$$\mathbf{Q} = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 \quad (2.30)$$

$$\mathbf{q} = \frac{m_e}{M}\mathbf{k}_1 + \frac{m_h}{M}\mathbf{k}_2, \quad (2.31)$$

wobei m_e und m_h die Elektronmasse und die Lochmasse bezeichnen und $M = m_e + m_h$ die Exzitonmasse ist. Mit diesen Definitionen ist die Bewegungsgleichung gegeben durch:

$$\begin{aligned} -i\dot{P}^{vc}(\mathbf{q}, \mathbf{Q}) &= (-\epsilon_{gap} - \epsilon_{\mathbf{q}} - \epsilon_{\mathbf{Q}})P^{vc}(\mathbf{q}, \mathbf{Q}) \\ &+ \sum_{\mathbf{q}'} V_{\mathbf{q}'} P^{vc}(\mathbf{q} - \mathbf{q}', \mathbf{Q}) \\ &+ \mathbf{d}_{cv} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{Q}) \\ &+ \sum_{\mathbf{Q}'} (V_v(\mathbf{Q}') P^{vc}(\mathbf{q} - \frac{m_e}{M}\mathbf{Q}', \mathbf{Q} - \mathbf{Q}') \\ &\quad - V_c(\mathbf{Q}') P^{vc}(\mathbf{q} + \frac{m_h}{M}\mathbf{Q}', \mathbf{Q} - \mathbf{Q}')) , \end{aligned} \quad (2.32)$$

wobei ϵ_{gap} das Bandlücke und $\epsilon_{\mathbf{q}}$ und $\epsilon_{\mathbf{Q}}$ die Energie der Relativbewegung und der Schwerpunktbewegung sind. Gl. 2.32 zeigt, daß die Fourierkomponente des elektrischen Felds zum Wellenvektor \mathbf{Q} an den Schwerpunktimпульs der Exziton koppelt.

Um gebundene Elektron-Loch-Paare zu beschreiben, kann Gl. 2.32 nach Lösungen der Wannier-Gleichung entwickelt werden:

$$P^{vc}(\mathbf{q}, \mathbf{Q}) = \sum P_{\alpha}(\mathbf{Q})\varphi_{\alpha}(\mathbf{q}), \quad (2.33)$$

Beschränkt man sich auf die Beschreibung des $1s$ Zustandes und vernachlässigt die Kopplung an andere Niveaus, ergibt sich nach einer Transformation in den Ortsraum:

$$\begin{aligned} -i\hbar\partial_t P_{1s}^{vc}(\mathbf{R}, t) &= (-\epsilon_{1s} + \frac{\hbar^2\Delta_{\mathbf{R}}}{2M} - V(\mathbf{R}))\mathbf{P}_{1s}^{vc}(\mathbf{R}, t) \\ &+ \varphi_{1s}^*(\mathbf{r} = 0)\mathbf{d}_{cv} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R}, t), \end{aligned} \quad (2.34)$$

wobei das Potential $V(\mathbf{R})$ gegeben ist durch [33]:

$$V(\mathbf{R}) = \int d^3r \varphi_{1s}^2(\mathbf{r}) \left(U^c(\mathbf{R} - \frac{m_v}{M}\mathbf{r}) + U^v(\mathbf{R} - \frac{m_c}{M}\mathbf{r}) \right). \quad (2.35)$$

Gl. 2.34 beschreibt die lineare, kohärente Dynamik von Exziton in einem Volumenhalbleiter unter dem Einfluß von statischen Potentialen U^v und U^c . Die Gleichung ist jedoch nur gültig, wenn die Ankopplung an die anderen exzitonischen Zustände vernachlässigt werden kann.

2.4.2 Dynamik der Besetzungsdichten

Im vorherigen Abschnitt sind die Bewegungsgleichungen für die Polarisation in linearer Ordnung abgeleitet worden. Die Besetzungsdichten für Elektronen und Löcher

$$f_{\mathbf{k}_1\mathbf{k}_2}^e = \langle a_{c\mathbf{k}_1}^\dagger a_{c\mathbf{k}_2} \rangle \quad (2.36)$$

$$f_{\mathbf{k}_1\mathbf{k}_2}^h = 1 - \langle a_{v\mathbf{k}_1}^\dagger a_{v\mathbf{k}_2} \rangle \quad (2.37)$$

werden in linearer Ordnung nicht angeregt. Berechnet man die Bewegungsgleichungen in zweiter Ordnung im elektrischen Feld (χ^2), kann folgender Erhaltungssatz gezeigt werden [34]:

$$\frac{d}{dt} f_{\mathbf{k}_1\mathbf{k}_2}^e = \frac{d}{dt} \sum_{\mathbf{k}} P_{\mathbf{k}_1\mathbf{k}}^{cv} P_{\mathbf{k}\mathbf{k}_2}^{vc} \quad (2.38)$$

$$\frac{d}{dt} f_{\mathbf{k}_1\mathbf{k}_2}^h = \frac{d}{dt} \sum_{\mathbf{k}} P_{\mathbf{k}_1\mathbf{k}}^{vc} P_{\mathbf{k}\mathbf{k}_2}^{cv}. \quad (2.39)$$

Nimmt man an, daß zu frühen Zeiten (vor der optischen Anregung) keine Polarisation und Besetzungsdichte vorlag, dann gilt die Gleichheit nicht nur zwischen den Ableitungen sondern auch zwischen den Größen selbst.

Falls nur der $1s$ Zustand des Exzitons angeregt wird, führt eine Faktorisierung analog zu Gl. 2.33 und eine Transformation in den Ortsraum zu Gleichungen für die räumliche Elektronen- und Lochdichte:

$$f^{e/h}(\mathbf{R}) = \frac{M^2}{2m_{h/e}^2} \int d^3r \left| P_{1s}^{vc}(\mathbf{R} + \mathbf{r}) \varphi\left(\mp \frac{M}{m_{h/e}} \mathbf{r}\right) \right|^2. \quad (2.40)$$

Die Besetzung wird bestimmt durch das Quadrat der Interbandpolarisation, gefaltet mit dem Quadrat der Wellenfunktion des Exzitons. Die Verteilung von Elektron und Loch entspricht ihrer Verteilung im Exziton, die durch die unterschiedlichen Massen bestimmt wird. Gl. 2.40 legt es nahe, die Größe

$$n_X(\mathbf{R}) = |P_{1s}^{vc}(\mathbf{R})|^2 \quad (2.41)$$

als Exzitonendichte zu interpretieren.

2.4.3 Starkes Confinement

In diesem Abschnitt wird die Diskussion auf Systeme mit starkem Quanten-Confinement ausgedehnt. In diesem Fall ist es günstig, die Bewegungsgleichung (2.29)

in den Ortsraum zu transformieren. Leitungs- und Valenzband haben eine parabolische Dispersion mit effektiven Massen m_e und m_h . Φ sei definiert als die Fouriertransformierte von P^{vc} , $\Phi(r_h, r_e) = FT\{P^{vc}(\mathbf{k}_1, -\mathbf{k}_2)\}$. Dann genügt Φ einer Zweiteilchen-Schrödingergleichung:

$$\begin{aligned}
-i\hbar\partial_t\Phi(\mathbf{r}_h, \mathbf{r}_e, t) &= \left(-\varepsilon_{gap} + \frac{\hbar^2\Delta_h}{2m_h} + \frac{\hbar^2\Delta_e}{2m_e}\right)\Phi(\mathbf{r}_h, \mathbf{r}_e, t) \\
&+ V_{Cb}(r_e, r_h)\Phi(\mathbf{r}_h, \mathbf{r}_e, t) \\
&- (V_c(\mathbf{r}_e) + V_h(\mathbf{r}_h))\Phi(\mathbf{r}_h, \mathbf{r}_e, t) \\
&+ \mathbf{d}^{vc} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}_e, t)\delta(\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h).
\end{aligned} \tag{2.42}$$

Aus dieser Gleichung folgt die Näherung Gl. (2.34) nur, wenn die Potentiale V_c und V_h schwach sind im Vergleich zur Bindungsenergie des Exzitons oder wenn sie langreichweitig sind. In einer Halbleiterheterostruktur von verringerter Dimensionalität kann man unterscheiden zwischen dem starken Confinement, das die Dynamik der Ladungsträger beschränkt auf eine Ebene oder entlang einer Achse und zwischen zusätzlichen statischen Potentialen, die möglicherweise im Limes von Gl. (2.34) behandelt werden können. Um einen QW zu beschreiben, sei ein starkes Confinement-Potential in der z -Richtung angenommen. Falls die Breite des Confinements klein gegen den Exziton-Bohrradius ist, kann die z -Abhängigkeit im Coulomb-Potential vernachlässigt werden, und die Dynamik wird durch das zweidimensionale Coulomb-Potential bestimmt. In diesem Fall kann auch die Bewegung in der Quantenfilmebene von der Bewegung in z -Richtung separiert werden, was zu Subbändern führt, die zu unterschiedlichen Zuständen von Elektronen und Löchern im Confinement-Potential $V_\lambda(z)$ gehören. Die Dynamik in der Quantenfilmebene wird dann durch eine Gleichung beschrieben, die sich von Gl.(2.34) nur dadurch unterscheidet, daß die Variable \mathbf{R} auf die Ebene des Quantenfilms beschränkt ist, und φ_{1s}^* die Wellenfunktion des zweidimensionalen Exzitons ist. Die Ankopplung an das elektromagnetische Feld ist gegeben durch $\mathbf{d}_{vc} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R}, t)|\xi(z)|^2$, wobei $\xi(z)$ das Confinement von Elektronen und Löchern beschreibt. Da das elektromagnetische Feld auf der Skala der Wellenlänge variiert, kann $|\xi(z)|^2$ durch eine δ -Funktion angenähert werden.

2.5 Lineare Optik jenseits der Dipolnaherung

Da bei einer Anregung im optischen Nahfeld die elektromagnetischen Felder sehr stark raumlich variieren konnen, wird die Ankopplung an hohere Multipolmomente bei der Entwicklung der Wechselwirkung wichtig. Hier sind die Entwicklungen auf zwei Skalen zu unterscheiden: (i) auf der Skala der Elementarzelle und (ii) auf der Skala der mesoskopischen Struktur. In diesem Abschnitt wird die Entwicklung uber der Elementarzelle diskutiert; in einer Halbleiterstruktur deren Ausdehnung klein gegen die Wellenlange des Lichtes ist, kann jedoch auch die gesamte optische Antwort wieder in Multipole entwickelt werden. So kann in einer mesoskopischen Struktur z. B. ein ubergang zwischen Bandern mit nichtverschwindendem Dipolmatrixelement dipolverboten sein. Ein Beispiel hierfur wird in Abs. 3.4.6 diskutiert.

Auf der Skala der Elementarzelle erhalt man eine Ankopplung an hohere Multipolmomente, wenn man die Entwicklung der Blochfunktionen bis zur ersten Ordnung (Gl. (2.18) fur nichtentartete Bander) mitnimmt. Bei resonanter Anregung am Exziton ist der Strom Gl. (2.17) dann gegeben durch:

$$\mathbf{j}(\mathbf{R}, t) = \frac{\partial}{\partial t} \sum_{\lambda\gamma} \left[\mathbf{d}_{\lambda_1\lambda_2} + (\nabla_{\mathbf{r}} + \xi_{\lambda_2}^{\lambda_1\lambda_2} \nabla_{\mathbf{R}}) \cdot \hat{\mathbf{B}}_{\lambda_1\lambda_2}^{\lambda_1} + \hat{\mathbf{B}}_{\lambda_1\lambda_2}^{\lambda_2} \cdot (\nabla_{\mathbf{r}} - \xi_{\lambda_1}^{\lambda_1\lambda_2} \nabla_{\mathbf{R}}) \right] \varphi_{\gamma\mathbf{r}=0}^{\lambda_1\lambda_2} P_{\gamma}^{\lambda_1\lambda_2}(\mathbf{R}, t). \quad (2.43)$$

Hier sind folgende Definitionen gebraucht worden:

$$\xi_{\lambda_1}^{\lambda_1\lambda_2} = \frac{m_{\lambda_1}}{m_{\lambda_1} + m_{\lambda_2}} \quad \text{und} \quad \xi_{\lambda_2}^{\lambda_1\lambda_2} = \frac{m_{\lambda_2}}{m_{\lambda_1} + m_{\lambda_2}}, \quad (2.44)$$

die Matrizen $\hat{\mathbf{B}}_{\lambda_1\lambda_2}^{\lambda}$ haben die Eintrage:

$$B_{\lambda_1\lambda_2}^{\alpha\beta\lambda} = e \sum_v \frac{\langle \lambda_1 | p^{\alpha} | v \rangle \langle v | p^{\beta} | \lambda_2 \rangle}{m_0^2 (\varepsilon_{\lambda_1} - \varepsilon_{\lambda_2}) (\varepsilon_{\lambda} - \varepsilon_v)}. \quad (2.45)$$

Gl. 2.43 beinhaltet Beitrage von dipolerlaubten ubergangen, beschrieben durch die Dipol Matrixelemente $\mathbf{d}_{\lambda_1\lambda_2}$ und Terme hoherer Ordnung, die durch die Zweiphotonenabsorptionskoeffizienten $\hat{\mathbf{B}}_{\lambda_1\lambda_2}^{\lambda_1}$ und $\hat{\mathbf{B}}_{\lambda_1\lambda_2}^{\lambda_2}$ [36] bestimmt werden. Sie konnen als Quadrupol bzw. magnetische Dipolbeitrage interpretiert werden. Die Terme hoherer Ordnung haben zwei Beitrage: der erste ist bestimmt durch die Interbandkoharenz und die Ableitung der Exziton-Wellenfunktion $\mathbf{r} = 0$. Dieser Term tragt nur fr p-Exzitonen bei. Der Zweite Beitrag ist proportional zum raumlichen Gradienten der

Interbandpolarisation und zum Wert der Exzitonwellenfunktion an der Stelle $\mathbf{r} = 0$. Dieser Term trägt nur für s-Exzitonen bei.

Mit den gleichen Näherungen wie im vorherigen Abschnitt (RWA, SVEA, lineares Regime) ergibt sich die Bewegungsgleichung für die Interbandkohärenz zu:

$$\begin{aligned}
 -i\partial_t P_\gamma^{vc}(\mathbf{R}, t) &= \left(-\varepsilon_\gamma - \frac{\Delta_R}{2M^{cv}} + V(\mathbf{R})\right) P_\gamma^{vc}(\mathbf{R}, t) + \varphi_{\gamma\mathbf{r}=0}^* \mathbf{d}_{vc} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R}, t) + \\
 &\left[\left(\nabla_{\mathbf{r}} - \xi_{\lambda_1}^{\lambda_1\lambda_2} \nabla_{\mathbf{R}}\right) \varphi_{\gamma\mathbf{r}=0}^* \cdot \hat{\mathbf{B}}_{cv}^c + \hat{\mathbf{B}}_{cv}^v \cdot \left(\nabla_{\mathbf{r}} + \xi_{\lambda_2}^{\lambda_1\lambda_2} \nabla_{\mathbf{R}}\right) \varphi_{\gamma\mathbf{r}=0}^* \right] \mathbf{E}(\mathbf{R}, t).
 \end{aligned}
 \tag{2.46}$$

Die Kopplung an das elektromagnetische Feld ist also nicht nur über das Dipolmatrixelement gegeben, sondern auch über die Zweiphotonenabsorptionskoeffizienten. Es gibt Beiträge, die an das elektrische Feld koppeln und Beiträge, die an dessen Ableitungen koppeln. Die Struktur ist ähnlich wie im Ausdruck für den Strom: p-Exzitonen koppeln an das elektrische Feld, s-Exzitonen koppeln an dessen Ableitungen. Ihre relativer Beitrag ist daher abhängig von der Skala, auf der die Felder variieren. Im Abschnitt 3.6 wird am Beispiel des Cu_2O die Anregung dieser Zustände im Nahfeld diskutiert.

Kapitel 3

Anwendungen

In diesem Kapitel werden Anwendungen der oben dargestellten Theorie diskutiert. Dabei wird ein einfaches Modellsystem betrachtet, bei dem sich über der Oberfläche des Halbleiters eine Metallschicht mit einer Apertur befindet. Details dieser Konfiguration werden in Abs. 3.1 diskutiert. Zum Verständnis der optischen Antwort dieses Systems wird das Problem in verschiedene Teilaspekte zerlegt: In Abs. 3.2 wird die Feldverteilung unter der Apertur bei Anregung durch eine ebene Welle untersucht. Die resonanten Quellen bleiben an dieser Stelle noch unberücksichtigt. Im folgenden Abschnitt (Abs. 3.3) wird die Detektion diskutiert. Die Quellen unter der Apertur erzeugen elektromagnetische Felder, deren Transformation ins Fernfeld diskutiert wird. Die Resultate werden angewendet auf die Beschreibung von Exzitonen, die in einem Potential lokalisiert sind (Abs. 3.4) und auf die Untersuchung von Auswahlregeln (Abs. 3.5 und 3.6). Schließlich wird die Anregung und Detektion eines optischen Wellenpaketes, das die raum-zeitliche Dynamik von Exzitonen in einem Quantenfilm beschreibt, diskutiert (Abs. 3.7).

3.1 Das Modell

In vielen Nahfeldexperimenten werden Aperturen in metallischen Filmen, z.B. an der Spitze einer gezogenen Glasfaser, genutzt, um eine stark fokussierte Feldverteilung zu erzeugen [37, 38]. Auch Konfigurationen, in denen der Halbleiter direkt mit einer dünnen Metallschicht bedampft ist, und dann durch Ätzen ein Loch erzeugt wird, sind für Nahfeldexperimente eingesetzt worden [6, 25]. Um einen solchen Aufbau zu

modellieren, sei angenommen, daß eine ebene elektromagnetische Welle senkrecht auf einen idealen metallischen Film fällt und an einer zirkularen Apertur, die sich im Film befindet, gestreut wird. Die Apertur bildet die Nahfeldsonde, unter der die Halbleiterprobe plaziert ist (vgl. Abb. 3.1). Wir diskutieren den Fall, daß die Apertur

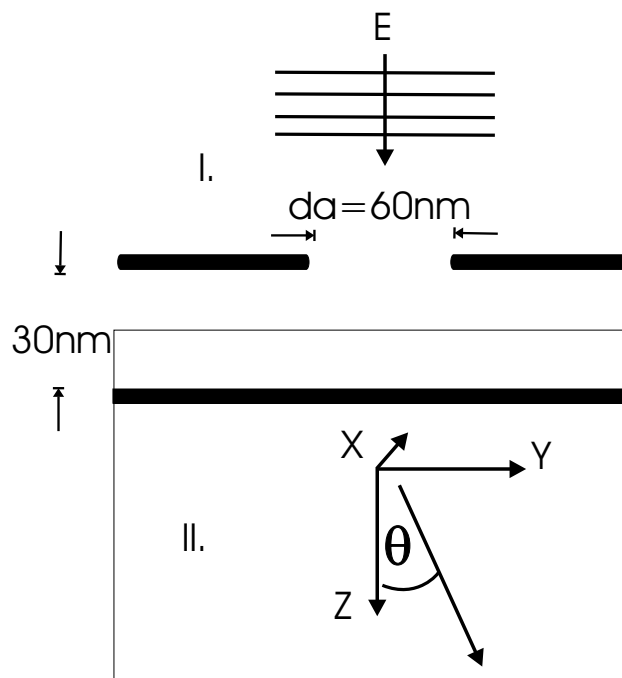


Abbildung 3.1: Modell der Konfiguration, die hier untersucht wird. Eine Apertur in einem metallischen Film befindet sich über einer Halbleiteroberfläche. Der Halbleiter wird durch die Apertur optisch angeregt mit einer ebenen Welle, die sich in Richtung der z -Achse ausbreitet. Betrachtet werden eine dreidimensionale Geometrie, bei der die Apertur kreisförmig ist, und eine zweidimensionale Geometrie, bei der die Apertur ein Spalt ist, der sich unendlich in x -Richtung erstreckt. Sowohl die kreisförmige Apertur als auch der Spalt haben einen Durchmesser von $d_a = 60 \text{ nm}$.

einen Durchmesser von 60 nm hat und sich 10 nm über der Halbleiteroberfläche befindet. Die mit der Anregung resonanten Strukturen, z. B. ein Quantenfilm oder ein Ensemble von Quantenpunkten, befinden sich 30 nm unter der Apertur bzw. 20 nm unter der Oberfläche des Halbleiters. Diese Abstände sind alle klein gegen die Wellenlänge des anregenden Lichts, die für eine Anregung an der fundamentalen Bandkante von GaAs $\lambda = 826 \text{ nm}$ beträgt.

Im Abschnitt (3.7) wird eine zweidimensionale Konfiguration untersucht, in der die kreisförmige Apertur durch einen Spalt ersetzt ist, der ebenfalls eine Breite von 60 nm hat, sich aber in der x -Richtung unendlich erstreckt.

Um die angegebene Situation zu untersuchen, werden die Maxwell'schen Gleichungen (2.12) für die elektrischen und magnetischen Felder $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ und $\mathbf{B}(\mathbf{r}, t)$ gelöst. Die exzitonische Polarisation wird durch das elektrische Feld getrieben und geht wiederum als Quellen in die Gleichungen ein. Die nichtresonante Polarisation wird durch eine dielektrische Funktion $\varepsilon(\mathbf{r})$ repräsentiert, die im Halbleiter (GaAs) $\varepsilon = 12$ beträgt. Für die Dynamik der resonanten Polarisation werden folgende Parameter angenommen: transversal-longitudinal-splitting $\Delta = 0.08 \text{ meV}$, $m_e = 0.067 m_0$ und $m_h = 0.46 m_0$. Auf dem Metall haben die Felder die üblichen Randbedingungen zu erfüllen: die an der Metalloberfläche tangentialen Komponente des elektrischen Felds und die normale Komponente des magnetischen Felds verschwinden. Numerisch werden die Gleichungen mit einem Finite-Differenzen-Verfahren in Ort und Zeit gelöst (vgl. Anhang B).

3.2 Anregung durch die Apertur

3.2.1 Ideale Apertur im Vakuum

In diesem Abschnitt wird die Streuung einer einfallenden ebenen Welle an einer Apertur in einer idealen Metallebene untersucht. Die Welle breitet sich in Richtung der z -Achse aus, die Metallfläche liegt in der xy -Ebene. Bei dieser Konfiguration kann man für kleine Aperturen analytische Lösungen für die Feldverteilung innerhalb der Apertur angeben [41]. Bei der Behandlung dieses Randwertproblems für das elektromagnetische Feld ist insbesondere die richtige Berücksichtigung der Randwerte für die Felder an der Kante der Apertur wichtig. Die Feldkomponente, die senkrecht auf der Kante steht, divergiert, was an den idealisierten Eigenschaften des Metalls liegt. Eine Entwicklung der Feldverteilung für kleine Aperturen in dem Parameter a/λ , wobei a der Radius der Apertur und λ die Wellenlänge des einfallenden Lichts ist, ergibt in führender Ordnung:

$$\frac{E_x}{E_0} = -\frac{8ik}{3\pi} \left(\sqrt{a^2 - \rho^2} + \frac{\rho^2}{2\sqrt{a^2 - \rho^2}} \cos^2 \varphi \right)$$

$$\begin{aligned}\frac{E_y}{E_0} &= -\frac{8ik}{3\pi} \frac{\rho^2}{2\sqrt{a^2 - \rho^2}} \cos \varphi \sin \varphi \\ \frac{E_z}{E_0} &= 0.\end{aligned}\quad (3.1)$$

ρ und φ bezeichnen Zylinderkoordinaten bezüglich der des Mittelpunktes der Apertur. Die einfallende elektromagnetische Welle ist in Richtung der x -Achse polarisiert und hat die Amplitude E_0 . Das elektrische Feld divergiert am Rande der Apertur $\rho = a$ für $\varphi = 0$, also in der Richtung der Polarisation des einfallenden Lichts. Die elektrische Feldstärke im Zentrum der Apertur ist um einen Faktor $8ka/3\pi \approx ak$ kleiner als die Amplitude des einfallenden Felds. Dies deutet an, daß für kleine Aperturen die Transmission nicht nur durch die Fläche der Apertur bestimmt ist, sondern zusätzlich limitiert ist. Dies ist ein Unterschied zur Kirchhoffschen Beugungstheorie, bei der i. allg. das Feld in der Apertur gleich dem einfallenden Feld gesetzt wird [28].

Das magnetische Feld in der Apertur ist gegeben durch:

$$\begin{aligned}\frac{H_x}{H_0} &= 0 \\ \frac{H_y}{H_0} &= 1 \\ \frac{H_z}{H_0} &= -\frac{4}{\pi} \frac{\rho}{\sqrt{a^2 - \rho^2}} \sin \varphi.\end{aligned}\quad (3.2)$$

In der Mitte der Apertur ist das Verhältnis von magnetischem Feld zu elektrischem Feld um einen Faktor $H_y/E_x \approx ka$ verstärkt, was u. U. eine Bedeutung für die Spektroskopie magnetischer Materialien hat.

Im übrigen Raum sind die elektrischen Felder eindeutig durch die Feldverteilung in der Apertur bestimmt:

$$\mathbf{E}_{ap}(\mathbf{r}) = \pm \frac{1}{2\pi} \nabla \times \int_{ap} (\mathbf{e}_z \times \mathbf{E}(\mathbf{r}')) \frac{e^{ik|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} d^2r', \quad (3.3)$$

wobei die Integration nur über die Fläche der Apertur läuft. Hinter dem Schirm ($z > 0$) gilt das obere Vorzeichen und das gesamte Feld ist durch Gl. (3.3) bestimmt. Vor dem Schirm ist das gesamte Feld die Summe aus dem einfallenden Feld, dem Feld, das vom Metall bei geschlossener Apertur reflektiert wird, und von dem Feld, das von der Apertur gestreut wurde. Letzteres ist durch Gl. (3.3) mit dem unteren Vorzeichen bestimmt. Der Ausdruck Gl. (3.3) kann im Fernfeld entwickelt werden. Mit der Näherung $|\mathbf{r} - \mathbf{r}'| \approx \mathbf{r} - \mathbf{r}' \cdot \mathbf{r}/|\mathbf{r}|$ ergibt sich, daß die Felder, die durch eine

kleine Apertur erzeugt werden, bestimmt werden durch einen elektrischen Dipol \mathbf{p} , der entlang der z -Achse ausgerichtet ist, und durch einen magnetischen Dipol \mathbf{m} , der in der Ebene des Metalls liegt:

$$\mathbf{p} = \frac{\mathbf{e}_z}{4\pi} \int_{ap} (\mathbf{r}' \cdot \mathbf{E}_{tan}(\mathbf{r}')) d^2r' \quad (3.4)$$

$$\mathbf{m} = \frac{1}{2\pi ik} \int_{ap} (\mathbf{e}_z \times \mathbf{E}_{tan}(\mathbf{r}')) d^2r', \quad (3.5)$$

wobei \mathbf{E}_{tan} die Komponente des elektrischen Feldes tangential zum Metallfilm bezeichnet. Man kann also annehmen, daß ein einfallendes Feld in der Apertur Streufelder erzeugt, die im Fernfeld einem magnetischen Dipol und einem elektrischen Dipol entsprechen:

$$\mathbf{E}_{dip}(\mathbf{r}) = k^2 \left((\mathbf{n} \times \mathbf{p}) \times \mathbf{n} + (3\mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{p}) - \mathbf{p}) \left(\frac{1}{r^2} - \frac{ik}{r} \right) \right) \frac{e^{ikr}}{r} \quad (3.6)$$

$$\mathbf{E}_{mag}(\mathbf{r}) = -k^2 (\mathbf{n} \times \mathbf{m}) \frac{e^{ikr}}{r} \left(1 - \frac{1}{ikr} \right), \quad (3.7)$$

mit $\mathbf{n} = \mathbf{r}/r$. In Transmission (Region II) werden die elektrischen Felder durch \mathbf{m} und \mathbf{p} nach Gl. (3.6,3.7) bestimmt, in Reflexion sind die Quellen durch $-\mathbf{m}$ und $-\mathbf{p}$ gegeben.

Man kann bei der Diskussion der Feldverteilung drei Bereiche unterscheiden [42]: (i) den Nahbereich unter der Apertur ($r < d_a$), in dem das Feld nicht durch die Momente beschrieben werden kann, (ii) das Fernfeld ($r \gg \lambda$), in dem nur die strahlenden Anteile, die mit einer Abstandsabhängigkeit von $1/r$ abfallen, berücksichtigt werden müssen und (iii) einen Zwischenbereich, in dem alle Terme der Gl. (3.6,3.7) berücksichtigt werden müssen. Bei der Anregung mit einer ebenen Welle, die sich in z -Richtung ausbreitet, ergibt sich die Feldverteilung in der Apertur nach Gl. (3.1), damit verschwindet das elektrische Dipolmoment der Apertur, und das magnetische Moment Gl. (3.4) ist gegeben durch:

$$\mathbf{m} = -\frac{4}{3\pi} a^3 \mathbf{e}_y. \quad (3.8)$$

In diesem Fall wirkt die Apertur im Fernfeld wie ein magnetischer Dipol, dessen abgestrahlte Leistung gegeben ist durch:

$$s = \frac{c}{8\pi} \int \mathbf{E} \times \mathbf{H}^* = \frac{c}{8\pi} \frac{64}{27\pi} k^4 a^6. \quad (3.9)$$

Dies ist ungefähr um einen Faktor $(ka)^4$ kleiner als der Energiefluß der einfallenden Welle durch eine Fläche, die der der Apertur entspricht.

Die Kombination von optischer Nahfeldspektroskopie mit der Anregung durch kurze Pulse verspricht eine interessante Methode zu sein. Deshalb soll der Einfluß der Apertur auf die Pulsform hier kurz diskutiert werden. Gl. (3.1) zeigt, daß die Feldverteilung zentral unter der Apertur eine lineare Abhängigkeit von der Frequenz des einfallenden Lichts hat. In Zeitbereich bedeutet dies, daß der transmittierte Strahl die Summe aus dem einfallenden Strahl und einem Term, der proportional zur Ableitung der Einhüllenden des Pulses ist, ist. Die Veränderung des Pulses ist dabei proportional zum Verhältnis von Pulsdauer zur Periodenlänge des Lichts. Für Pulsängen im Bereich von 100 fs wird die Pulsform also nur schwach verändert, im Bereich von einigen Prozent.

Daß die Apertur kaum Einfluß auf die Pulsform des transmittierten Lichts hat, hängt damit zusammen, daß die Metallschicht unendlich dünn ist. Man kann Modifikationen für Aperturen mit einer endlichen Dicke erwarten. Im Fall einer sehr dicken Schicht kann man sich die Apertur wie einen Wellenleiter vorstellen. Dies führt zu einem starken Abfall der Transmission im Bereich des cut offs, d.h. wenn die Wellenlänge keine propagierende Mode in dem Wellenleiter mehr erlaubt. Effekte dieser Art sind z.B. für die Streuung von Terahertz-Strahlung an dicken Aperturen beobachtet worden [43].

Die Ergebnisse, die soweit diskutiert worden sind, beinhalten nur die Wirkung der Apertur im Vakuum, es sind keine weiteren Quellen oder inhomogene Dielektrika einbezogen worden. (vgl. Abb. 3.1). Die Einbeziehung des Halbleiters führt zu Modifikationen. Wenn wir annehmen, daß im Bereich der Reflexion (Bereich I in Abb. 3.1) das Medium homogen ist, dann ist Gl. (3.3) weiterhin anwendbar, um das reflektierte Feld aus der Feldverteilung in der Apertur zu bestimmen.

3.2.2 Eine Apertur über der Halbleiteroberfläche

Im folgenden wird die Feldverteilung in ihren zirkularen Komponenten diskutiert. Dies entspricht den Auswahlregeln für die Anregung von Interbandübergängen im Halbleiter (vgl. Abs. 3.5). Die Ergebnisse sind numerisch mit der FDTD Methode bestimmt worden (vgl. Anhang). Das einfallende Feld ist σ^+ polarisiert, monochromatisch mit einer Photonenenergie von $\hbar\omega = 1.5eV$ (Energie der exzitonischen Resonanz in GaAs). Berechnet werden die Komponenten des elektrischen Feldes

$|E^j(\mathbf{R}, z)|$ für die stationäre Feldverteilung 30 nm unter der Apertur. Der Index $j = +, -, z$ bezieht sich dabei auf die Komponenten bzgl. der zirkularen Basis: $\sigma^\pm = \frac{1}{\sqrt{2}}(1, \pm i, 0)$ und $\sigma^z = (0, 0, 1)$. σ^z ist die Komponente in Ausbreitungsrichtung des einfallenden Strahls, und σ^\pm sind die zirkularen Komponenten in der Ebene der Metallfläche. Der Halbleiter befindet sich 10 nm unter der Apertur, die resonante exzitonische Polarisation wird hier noch nicht berücksichtigt. Abb. 3.2 zeigt die

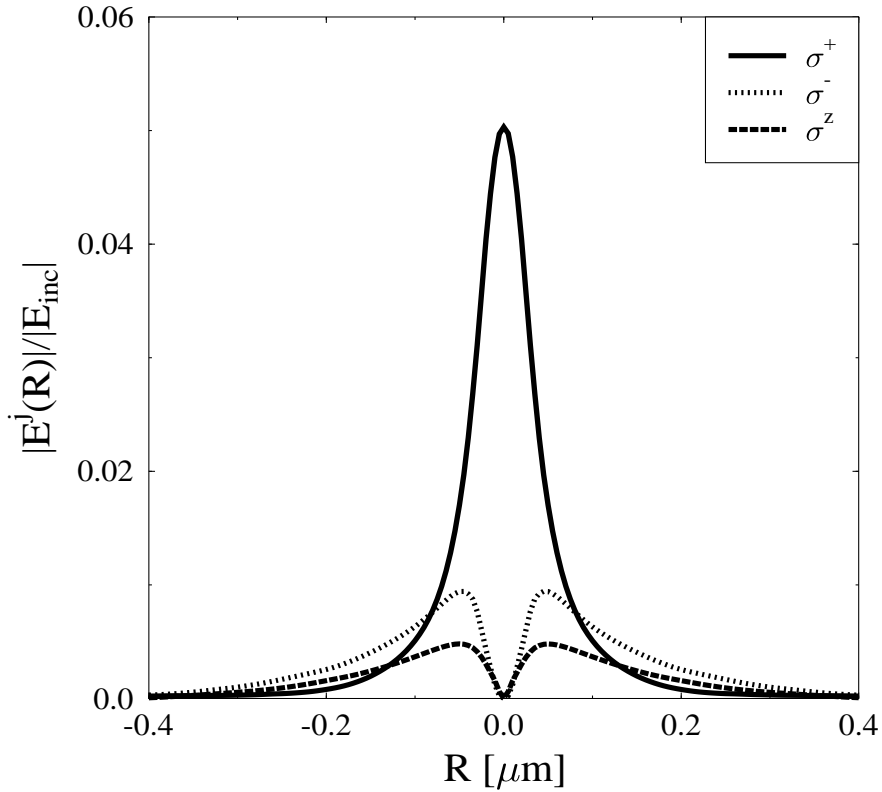


Abbildung 3.2: Das elektrische Feld in einer Ebene des dielektrischen Hintergrundmaterials (Dielektrizitätskonstante $\varepsilon = 12$) $z = 30$ nm unter der Apertur. Der Abstand zwischen Apertur und Material ist $d_m = 10$ nm. Wegen der Anregung mit σ^+ polarisiertem Licht, ist der Betrag der Felder rotationssymmetrisch in der x, y -Ebene.

berechnete Feldverteilung, normiert auf das einfallende Feld. Das Maximum der σ^+ -Komponente des transmittierten Feldes liegt zentral unter der Apertur ($R = 0 \mu\text{m}$), und ist um einen Faktor 0.05 kleiner als die Amplitude des einfallenden Lichts.

Durch die Streuung des Lichtes an der Apertur entstehen außerdem Feldkomponenten in σ^- und σ^z Richtung. Diese Komponenten verschwinden direkt unter der Apertur und haben ihre Maxima am Rande der Apertur, das Intensitätsmaximum ist also ringförmig. Das Verhältnis der σ^+ Komponente zu den unter der Apertur neu entstehenden Komponenten ist also stark ortsabhängig. Im Zentrum dominiert die σ^+ -Komponente, aber für Abstände größer als 80 nm bzw. 120 nm vom Zentrum der Apertur dominieren die neuen Komponenten die Feldverteilung.

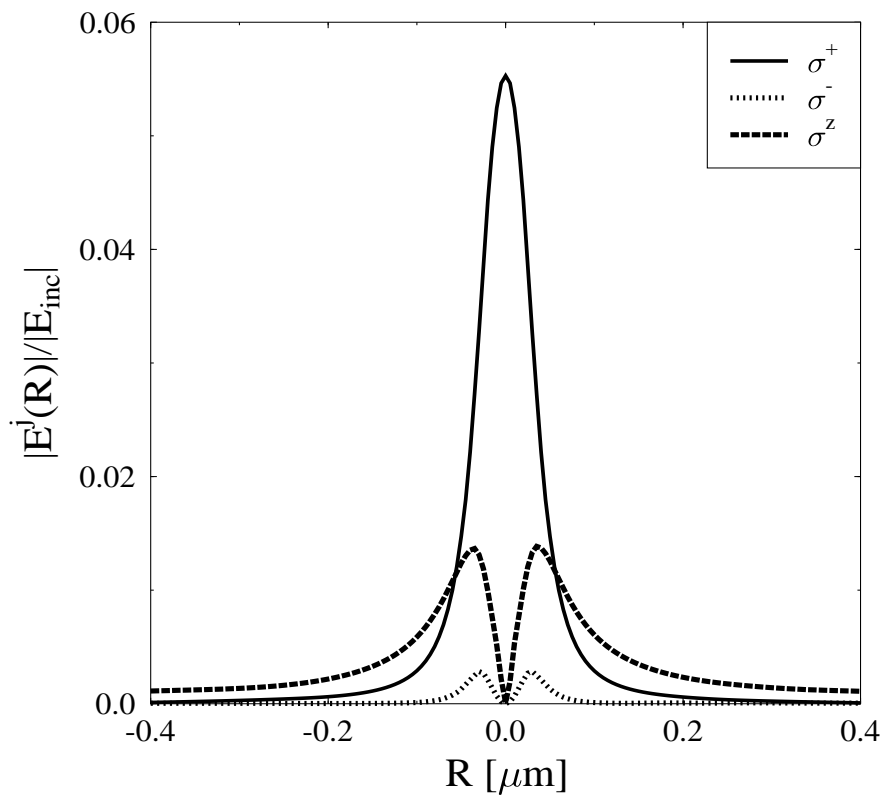


Abbildung 3.3: Stationäre elektrische Feldverteilung unter der Apertur in der (x, y) -Ebene $z = 30\text{nm}$ unter der Apertur. Neben der Feldkomponente in Richtung der Polarisierung des einfallenden Lichtes entstehen unter der Apertur auch Feldkomponenten in anderen Richtungen.

Um den Einfluß der Hintergrundpolarisation des Halbleiters abzuschätzen zeigt Abb. 3.3 die Feldverteilung unter der Apertur im Vakuum. Die Kurven haben eine ähnlich Form, jedoch gibt es einige wichtige Unterschiede. Die σ^+ -Komponente ist kaum

beeinflusst vom Halbleiter, aber die relative Stärke der σ^- - und der σ^z -Komponente ist im Vakuum deutlich anders als im Halbleiter. Die σ^- -Komponente ist im Halbleiter deutlich stärker ausgeprägt, wohingegen die σ^z -Komponente abgeschwächt ist im Vergleich zum Vakuum. Das liegt einmal daran, daß beim Übergang Vakuum Halbleiter die Feldkomponenten tangential zur Oberfläche (hier σ^+ und σ^-) stetig sind, wohingegen die Normalenkomponente einen Sprung um den Faktor ε macht. Das führt zur Abschwächung der σ^z Komponente im Halbleitermaterial. Die Anhebung der σ^- Komponente kann folgendermaßen verstanden werden: Die σ^- Komponente ist vergleichsweise stark unter dem Rande der Apertur lokalisiert. Damit einher geht ein starker Anteil an evaneszenten Moden, die in Ausbreitungsrichtung exponentiell abfallen. Nun erlaubt der Halbleiter, aufgrund seiner höheren Dielektrizität eine Propagation von Moden, die stärker lokalisiert sind, d.h. die σ^- Komponente wird im Halbleiter nicht so stark ausgedämpft. Das gilt auch für die σ^z Komponente, bei der der Sprung an der Oberfläche letzteren Effekt überkompensiert. Im allgemeinen kann man also schließen, daß der dielektrische Hintergrund des Halbleiters einen wichtigen Einfluß auf die Feldverteilung hat und nicht vernachlässigt werden kann.

Um die Auflösung, die mit der Apertur zu erzielen ist, zu diskutieren, zeigt Abb. 3.4a. die Breite (FWHM) der Intensitätsverteilung des transmittierten σ^+ polarisierten Lichts als Funktion des Abstands hinter der Apertur. Für die Apertur im Vakuum bleibt die Breite der Verteilung unter der Apertur für kleine Abstände ($z \leq 30\text{nm}$) nahezu konstant, was andeutet, daß die volle Auflösung bis zu einem Abstand, der ungefähr dem Aperturradius entspricht, erhalten bleibt. Für größere Abstände wächst die Breite der Verteilung annähernd linear, so daß bei $z = 100\text{nm}$ die Breite ungefähr doppelt so groß ist wie direkt unter der Apertur. Der Halbleiterhintergrund führt für kleine Abstände ($z \leq 30\text{nm}$) nicht zu einer Verbreiterung, aufgrund von Interferenzeffekten kann es sogar zu einer leichten Verstärkung der Fokussierung kommen. Für größere Abstände ist eine Verringerung der Auflösung um ca. 10 – 20% zu erwarten. Dramatischer als die Aufweitung des Strahls scheint der Abfall des Intensitätsmaximums für die Anregung zu sein. Abb. 3.4b zeigt, daß die Intensität kurz hinter der Apertur für kleine Abstände ($z \leq 30\text{nm}$) exponentiell (für Vakuum) abnimmt, mit ca. einer Größenordnung auf 30 nm. Für größere Abstände ist ein Übergang in das Strahlungsfeld eines magnetischen Dipols zu erwarten (vgl. Diskussion in Abschnitt 3.2.1), das mit $1/r$ abfällt. Im Halbleiter fällt die Intensität für große Abstände weniger stark ab. Dies liegt daran, daß der höhere

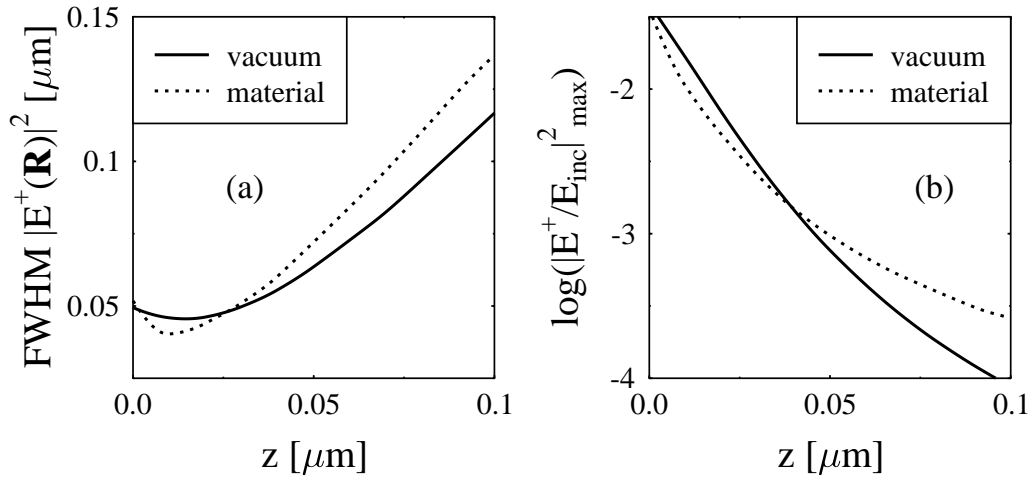


Abbildung 3.4: (a) Breite (FWHM) der Intensitätsverteilung als Funktion des Abstands zur Apertur für Vakuum und Dielektrikum mit $\varepsilon = 12$. (b) Maximum der Intensität der σ^+ -Komponente.

Brechungsindex stärker lokalisierten Moden erlaubt, ins Fernfeld zu propagieren.

3.3 Detektion durch eine Apertur

Bisher wurde die Transformation des einfallenden Lichts in das Nahfeld unter der Apertur untersucht. Im folgenden wird der umgekehrte Vorgang untersucht, die Propagation der Felder von Anregungen unter der Apertur in das Fernfeld. Dies ist das Problem der Detektion einer Quelle mit der Apertur. Im Fernfeld in Region I (vgl. Abb. 3.1) kann das Feld durch einen elektrischen Dipol und einen magnetischen Dipol beschrieben werden, die in der Apertur von den resonanten Quellen erzeugt werden. Um diese Anregung zu beschreiben, wird eine Transmissionsfunktion definiert, die die induzierten Momente mit den resonanten Quellen verknüpft. Da diese Relation linear ist, kann man schreiben:

$$m_{\text{ind}}^i(\omega) = \sum_j \int t^{ij}(\mathbf{r}, \omega) P^j(\mathbf{r}, \omega) d^3r, \quad (3.10)$$

wobei sich die Indizes $i, j = +, -, z$ auf die Komponenten bezüglich der zirkularen Basis beziehen. Um die Notation zu vereinfachen, bezeichne m^i , $i = 1..3$ das Tripel

(m^+, m^-, p^z) . Das durch einen punktförmigen Dipol $\mathbf{P}(\mathbf{r}') = \delta(\mathbf{r}' - \mathbf{r})\mathbf{e}^j p_0$, der sich an der Stelle \mathbf{r} befindet und in Richtung j zeigt, induzierte Moment m_{ind}^i ist dann gegeben durch $t^{ij}(r, \omega)p_0$. t^{ij} ist also ein Maß für das Verhältnis der Stärke von induziertem Moment zu anregendem Dipolmoment. Im folgenden wird $t^{ij}(x, z)$ als für $z = 30\text{nm}$ als Funktion des transversalen Abstands x von Dipol zur Apertur untersucht. Abb. 3.5(a) zeigt die Transmissionsfunktion für die Apertur im Vakuum. Die

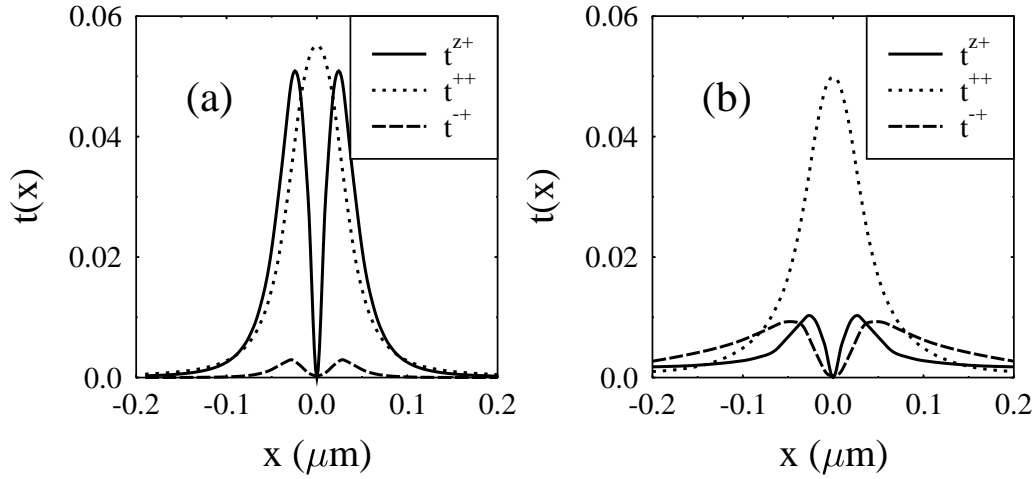


Abbildung 3.5: Transmissionsfunktion t , die die Anregung von Momenten in der Apertur durch eine punktförmige Quelle am Ort x , 30nm unter der Apertur beschreibt. Der Dipol ist σ^+ polarisiert. (a) im Vakuum, (b) im Halbleiterhintergrund

induzierten Momente haben Maxima, die um einen Faktor 0.05 kleiner sind als der anregende Dipol. Dieses Verhältnis entspricht ungefähr dem, das für das Verhältnis von transmittiertem zu einfallendem Feld (vgl. Abb. 3.3) berechnet wurde. Das induzierte magnetische Moment m^+ hat ein einzelnes Maximum, das eine Breite von 80 nm hat. Das induzierte elektrische Dipolmoment erreicht eine ähnliche Stärke, hat aber zwei Maxima, jeweils am Rande der Apertur. Der Anteil des m^- Momentes hat eine ähnliche räumliche Struktur, ist aber um eine Größenordnung kleiner. Abb. 3.5(b) zeigt die induzierten Momente unter Berücksichtigung des Halbleiterhintergrunds. Die Kurven haben ähnliche Form, nur das induzierte Moment p^z ist deutlich schwächer und das magnetische Moment m^- ist verstärkt im Vergleich zum Vakuum. Wenn man die Graphen für die Transmissionsfunktion mit den Kurven für die Feldverteilung unter der Apertur vergleicht, stellt man fest, daß die Paare $(m^+$,

E^+), (m^-, E^-) und (p^z, E^z) sehr ähnlich sind. Das kann folgendermaßen erklärt werden: Die Feldverteilung des elektrischen Feldes unter der Apertur bei Anregung mit einer ebenen Welle ist ähnlich der Feldverteilung eines magnetischen Dipols. Nun ist das elektrische Feld eines magnetischen Dipols gleich dem magnetischem Feld eines elektrischen Dipols [28]. Unter der Annahme, daß die Apertur wie ein magnetischer Dipol an das magnetische Feld der Dipolquelle koppelt, ergibt sich auch für die Transmissionsfunktion eine Verteilung, die dem magnetischem Feld einer Dipolquelle ähnelt.

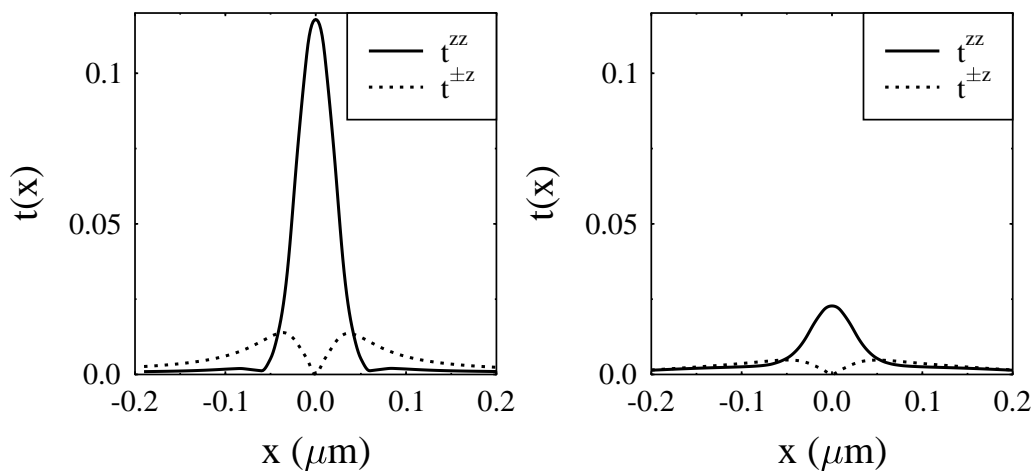


Abbildung 3.6: Transmissionsfunktion für einen Dipol, der in Richtung der z -Achse orientiert ist. (a) im Vakuum, (b) im Halbleiter

Abb. 3.6.a und 3.6.b zeigen die induzierten Momente für eine Quelle, die in z -Richtung polarisiert ist im Vakuum bzw. im Halbleiter. In beiden Fällen ist die Anregung des elektrischen Dipolmoments in der Apertur dominant. Die Anregung der magnetischen Momente ist um eine Größenordnung schwächer. Aufgrund der Symmetrie werden m^+ und m^- gleich angeregt. Die Hintergrundpolarisation führt im Fall des Halbleiters zu einer erheblich schwächeren Anregung der Momente als im Vakuum.

Das Fernfeldsignal ergibt sich aus dem angeregten elektrischen Dipolmoment und dem magnetischem Dipolmoment nach den Gl. (3.4) und (3.5). Die Momente haben unterschiedliche Abstrahlcharakteristik. Beide Momente strahlen nicht in die Richtung, in der sie orientiert sind. Da das elektrische Dipolmoment, das in der Apertur

induziert wird, in Richtung der z -Achse zeigt, strahlt es also hauptsächlich in Richtung der Metallebene, wohingegen das magnetische Moment, das in der Metallebene liegt, auch in die z -Richtung strahlen kann. Man kann also, indem man die Position des Detektors verändert, den Beitrag der beiden Momente verändern. Insbesondere bei Detektion in Richtung der z -Achse trägt nur das magnetische Dipolmoment zum Signal bei.

Im folgenden ist der Fall der Detektion unter einem kleinen Winkel zur z -Achse diskutiert. Der Detektor sei so plaziert, daß auf ihn nicht das Licht, das vom Schirm reflektiert wird und in Richtung der z -Achse läuft, einfällt, sondern nur das Licht, das an der Apertur gestreut wurde. Man kann dann eine Reflexion definieren, die die relative Veränderung der reflektierten Intensität durch die resonanten Quellen bezeichnet. Da das reflektierte Licht proportional zum Quadrat der Momente ist, ist die Reflexion \mathcal{R} gegeben durch:

$$\mathcal{R} = \left(\frac{|\mathbf{m}_0 + \mathbf{m}_{ind}|}{|\mathbf{m}_0|} \right)^2, \quad (3.11)$$

wobei \mathbf{m}_0 das durch die externe Anregung erzeugte Moment ist und \mathbf{m}_{ind} das Moment bezeichnet, das durch die resonanten Quellen induziert ist. Bei Anregung mit σ^+ polarisiertem Licht hat m_0 nur eine nichtverschwindende m_0^+ Komponente. Nimmt man weiter an, daß das induzierte Moment \mathbf{m}_{ind} klein ist im Vergleich zu \mathbf{m}_0 , vereinfacht sich Gl. (3.11) zu:

$$\mathcal{R} = 1 + \frac{m_{ind}^+}{m_0^+}. \quad (3.12)$$

In diesem Fall ist das reflektierte Signal also proportional zum induzierten Moment m_0^+ .

Um die Anregung mit einer metallbedampften Glasfaserspitze zu diskutieren, sei das gleiche Modell wie oben angenommen. In diesem Fall wird nur Licht in die Faser eingekoppelt, das unter Totalreflexion an der Grenzfläche zwischen Kern und Mantel der Faser reflektiert wird. Für eine einmodige Faser ist das im allgemeinen Licht, das nahezu streifend auf die Oberfläche einfällt, da der Unterschied im Brechungsindex an der Oberfläche sehr gering ist. Dieses Licht läuft nahezu parallel zur z -Achse. Man kann daher annehmen, daß in diesem Fall die Strahlung des magnetischen Moments erheblich besser in die Faser einkoppelt wird und das reflektierte Signal dominiert.

3.4 Nahfeldoptik lokalisierter Exzitonen

Lokalisierte exzitonische Zustände, z.B. in Ensembles von Quantenpunkten, haben i. allg. unterschiedliche optische Resonanzen. Deswegen sind optische Spektren dieser Strukturen inhomogen verbreitert und die optischen Eigenschaften des Einzelsystems bleiben verborgen. Gerade QD haben aufgrund des dreidimensionalen Confinements der Ladungsträger scharfe optische Resonanzen, vergleichbar mit atomaren Systemen. Um sie zu untersuchen, sind entweder hohe Anforderungen an die Präparation gestellt, z. B. die Präparation einzelner bzw. hinreichend verdünnter Strukturen. Nahfeldoptische Methoden bieten sich aufgrund der lokalen Anregung an zur Untersuchung dieser Systeme.

Dieser Abschnitt ist folgendermaßen gegliedert: Zuerst wird allgemein die Beschreibung lokalisierter Exzitonen präsentiert (Abs. 3.4.1), dann wird die Linienform der optischen Übergänge im homogenen Hintergrund diskutiert (Abs. 3.4.2). In Abs. 3.4.3 werden Modifikationen durch eine Oberfläche berücksichtigt, und in Abs. 3.4.4 wird der Einfluß der Apertur untersucht. Die sich ergebenden optischen Spektren, die in einem Nahfeld-Experiment bestimmt werden können, werden in den darauf folgenden Abschnitten diskutiert: für einen dipolerlaubten Übergang in Abs. 3.4.5, einen dipolverbotenen Übergang in Abs. 3.4.6 und ein vergleichendes Beispiel in Abs. 3.4.7. In Abs. 3.4.8 werden schließlich auch ausgedehnte exzitonische Zustände berücksichtigt.

3.4.1 Beschreibung gebundener Exzitonen

Im folgenden werden exzitonische Zustände in einem ungeordneten Volumenhalbleiter und in einem Quantenfilm untersucht. Das Unordnungspotential kann durch eine räumlich inhomogene Legierungskomposition oder, im Fall des Quantenfilmes, durch Oberflächenrauigkeit zustande kommen. Es sei angenommen, daß das Potential schwach im Vergleich zur Exzitonen-Bindungsenergie ist (bzw. langreichweitig ist), so daß die unterschiedlichen exzitonischen Zustände entkoppeln und eine Beschränkung auf das $1s$ -Exziton möglich ist. In diesem Fall wird die Dynamik der exzitonischen Polarisation beschrieben durch Gl. (2.34) mit einem effektiven Unordnungspotential, das durch Gl. (2.35) definiert ist. Wir untersuchen Situationen, in denen einzelne Exzitonen in individuellen Potentialminima gebunden sind und

effektive Quantenpunkte bilden. In diesem Fall ist es sinnvoll, Gl. (2.34) nach den stationären Eigenlösungen zu entwickeln:

$$P_{1s}^{vc}(\mathbf{R}, \mathbf{t}) = \sum_{\mu} a_{\mu}(t) \psi_{\mu}(\mathbf{R}). \quad (3.13)$$

Die Funktionen $\psi_{\mu}(\mathbf{R})$ sind die Eigenfunktionen für die Schwerpunktbewegung im ungeordneten Potential. Formal ergeben sich ähnliche Gleichungen für die Beschreibung des Volumenmaterials und eines Quantenfilmes. Die einzigen Unterschiede sind, daß im dreidimensionalen Fall ψ eine Lösung der dreidimensionalen Schrödingergleichung ist (normiert auf das Volumen), im zweidimensionalen Fall ist ψ das Produkt aus einer Lösung der zweidimensionalen Schrödingergleichung (normiert auf die Fläche) und einer Einhüllenden, die das Confinement der Ladungsträger senkrecht zum QW beschreibt.

In beiden Fällen ist lauten dann die Bewegungsgleichungen für die Entwicklungskoeffizienten:

$$\dot{a}_{\mu}(t) = -i\omega_{\mu}a_{\mu} - \Gamma^{int}a_{\mu} + i\varphi(\mathbf{r} = 0)\mathbf{d}_{vc} \cdot \int \psi_{\mu}^*(\mathbf{R})\mathbf{E}(\mathbf{R}, t) d^3R, \quad (3.14)$$

wobei Γ^{int} ein intrinsisches Dephasieren der Polarisation, z.B. durch Phononen beschreibt. Im Frequenz-Raum wird Gl. (3.14) gelöst durch:

$$a_{\mu}(\omega) = -\frac{\varphi(\mathbf{r} = 0)\mathbf{d}_{vc} \cdot \int \psi_{\mu}^*(\mathbf{R})\mathbf{E}(\mathbf{R}, t) d^3R}{\omega - \omega_{\mu} + i\Gamma^{int}} \quad (3.15)$$

Die Besetzung des Zustandes ψ_{μ} ergibt sich aus Gl. (2.41) zu:

$$n_{\mu} = a_{\mu}^*(t)a_{\mu}(t), \quad (3.16)$$

und die makroskopische Polarisation \mathcal{P} ist gegeben durch:

$$\begin{aligned} \mathcal{P}(\mathbf{R}) &= \sum_{\mu} \mathbf{P}_{\mu}(\mathbf{R}) \\ &= |\varphi_{1s}(\mathbf{r} = 0)|^2 \mathbf{d}_{vc} \otimes \mathbf{d}_{vc} \left(\frac{\psi_{\mu}(\mathbf{R}) \int \psi_{\mu}^*(\mathbf{R}')\mathbf{E}(\mathbf{R}') d^3R'}{\omega - \omega_{\mu} + i\Gamma^{int}} + c.c.(-\omega) \right) \end{aligned} \quad (3.17)$$

Gleichung (3.15) zeigt, daß spektraler und räumlicher Überlapp zwischen dem elektrischen Feld und einem exzitonischen Zustand ψ_{μ} bestehen muß, um ihn anzuregen. Die entsprechende Suszeptibilität ist nicht lokal, da die räumliche Verteilung der Polarisation vom Zustand ψ_{μ} bestimmt wird und nur indirekt durch das einfallende Feld.

Falls das elektromagnetische Feld näherungsweise konstant über dem Zustand ist, erhält man die bekannten (Fernfeld-) Auswahlregeln, so wird z. B. kein Zustand mit ungerader Parität angeregt. Im Fall der Nahfeldanregung dagegen, kann das elektromagnetische Feld auf deutlich kürzeren Skalen variieren, was die Auswahlregeln für optische Übergänge modifizieren kann und verbotene Übergänge erlaubt.

Durch die lokale Anregung wird die Untersuchung einzelner Quantenpunkte möglich. Daher soll im folgenden das Spektrum eines einzelnen Exzitons untersucht und die möglichen Modifikationen, die durch die Nahfeldkonfiguration bedingt sind, diskutiert werden. Um die Wechselwirkung über das elektromagnetische Feld zu beschreiben, ist es nützlich, die Greensche Funktion (den Feldpropagator) $\hat{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ für das elektrische Feld einzuführen [44]. Sie genügt der Gleichung

$$(\nabla^2 - \nabla\nabla \cdot + k^2 \varepsilon(\mathbf{r}))\hat{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \hat{\delta}(\mathbf{r} - \mathbf{r}'). \quad (3.18)$$

Die dyadische δ -Funktion ist dabei gegeben durch: $\hat{\delta}(\mathbf{r}) = \delta(\mathbf{r}) \sum \delta_{ij} \mathbf{e}_i \otimes \mathbf{e}_j$. Die Greensche Funktion beschreibt das elektromagnetische Feld, das von einem punktförmigen Dipol erzeugt wird. Da sowohl das elektromagnetische Feld als auch der Dipol durch Vektoren dargestellt werden, wird der lineare Zusammenhang durch eine 3×3 Dyade vermittelt (vgl. die ausführliche Diskussion in Anhang A). $G^{ij}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$ beschreibt die Komponente i des elektromagnetischen Feldes am Ort \mathbf{r} , erzeugt von einem oszillierenden Dipol mit Kreisfrequenz ω , der in Richtung j zeigt und sich am Ort \mathbf{r}' befindet. Im homogenen Medium ($\varepsilon = const.$) ist die Greensche Funktion gegeben durch:

$$\hat{\mathbf{G}}_{ij}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = -(\delta_{ij} + \frac{1}{n^2 k^2} \partial_i \partial_j) \frac{\exp(ink|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|)}{4\pi|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \quad (3.19)$$

Mit Hilfe der Greenschen Funktion ist das elektrische Feld, das von einem Zustand ψ_μ erzeugt wird, gegeben durch:

$$\mathbf{E}_\mu(\mathbf{r}) = -4\pi k^2 \int \hat{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') (\varphi_{1s}(\mathbf{r} = 0) \mathbf{d}_{vc} a_\mu \psi_\mu(\mathbf{r}') + c.c.) d^3 r'. \quad (3.20)$$

Berücksichtigt man die Wechselwirkung über das elektromagnetische Feld, modifiziert sich die Bewegungsgleichung für die Entwicklungskoeffizienten a_μ in folgender Weise:

$$\begin{aligned} \sum_\nu \left(\delta_{\mu\nu} + \frac{\Sigma_{\mu\nu}}{\omega - \omega_\mu + i\Gamma^{int}} \right) a_\nu \\ = -\frac{\varphi_{1s}(0) \mathbf{d}_{vc} \int \psi^*(\mathbf{R}) \mathbf{E}_{ap}(\mathbf{R}) d^3 R}{\omega - \omega_\mu + i\Gamma^{int}}, \end{aligned} \quad (3.21)$$

wobei \mathbf{E}_{ap} das externe Feld bezeichnet, d.h. das Feld ohne Berücksichtigung der resonanten Quellen. Die Kopplung über das Strahlungsfeld zwischen zwei Zuständen wird beschrieben durch

$$\Sigma_{\mu\nu} = -4\pi k^2 |\varphi|^2 \int \int \psi_\mu(\mathbf{r})^* \mathbf{d}_{vc} \cdot \hat{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \cdot \mathbf{d}_{vc} \psi_\nu(\mathbf{r}') d^3r d^3r'. \quad (3.22)$$

Falls die Kopplung schwach ist und nur die Diagonalelemente von Σ berücksichtigt werden, erhält man folgenden Ausdruck für die Amplituden

$$a_\mu = -\frac{\varphi \mathbf{d}_\mu \cdot \int \psi_\mu^*(\mathbf{R}) \mathbf{E}(\mathbf{R}) d^3R}{\omega - \omega_\mu + i\Gamma^{int} + \Sigma_{\mu\mu}}. \quad (3.23)$$

Die Greensche Funktion variiert spektral i. allg. auf der Skala der Wellenlänge, falls nicht ein spezielles Design (wie z.B. in einem Resonator) zu sehr schmalen optischen Resonanzen führt. Wenn wir annehmen, daß die intrinsische Linienbreite schmal ist, (z.B. kleiner als 1 meV oder 1nm als Funktion der Wellenlänge) ist es eine gute Näherung, die Greensche Funktion als konstant über der Linienbreite anzusetzen. In diesem Fall ergibt sich aus Gl. 3.23 wieder eine Lorentzsche Linienform, allerdings mit modifizierter Resonanz und Breite. Der Realteil der Selbstwechselwirkung $\Re(\Sigma_{\mu\mu})$ ist verknüpft mit einer Verschiebung der Resonanz:

$$\delta\omega_\mu = -\Re(\Sigma_{\mu\mu}). \quad (3.24)$$

Für einen Zustand ψ_μ , dessen Ausdehnung klein ist im Vergleich zur Wellenlänge des Lichts, wird diese Verschiebung hauptsächlich durch die Wechselwirkung über den longitudinalen Teil des elektromagnetischen Feldes erzeugt, denn dieser Anteil divergiert für kleine Abstände am stärksten (vgl. Anhang A). Im allgemeinen hängt die Verschiebung für nicht sphärische Zustände auch von der Polarisationsrichtung ab. Die Selbstwechselwirkung über das longitudinale Feld ist daher auch zur Erklärung von Polarisationsabhängigkeiten in den PL und PLE Spektren von Quantenpunkten herangezogen worden [6].

Der Imaginärteil der Selbstwechselwirkung $\Im(\Sigma_{\mu\mu})$ beschreibt die Strahlungsdämpfung der Polarisation. Sie ist gegeben durch:

$$\Gamma_\mu^{rad} = \Im(\Sigma_{\mu\mu}). \quad (3.25)$$

Die nichtdiagonalen Anteile von Σ beschreiben die Strahlungskopplung zwischen unterschiedlichen exzitonischen Zuständen. Effekte wie Superradianz, wie sie z. B.

für atomare Systeme oder Vielfach-Quantenfilme beobachtet wurden [45], werden durch diese Wechselwirkung beschrieben. Für eine starke Wechselwirkung müssen die exzitonischen Zustände spektralen Überlapp haben. Zerfallen die exzitonischen Zustände aber hauptsächlich strahlend, so sind die Linienbreiten sehr klein (vgl. die Diskussion im nächsten Abschnitt). In einem Ensemble von Quantenpunkten, dessen inhomogene Linienbreite deutlich größer ist als die homogene Linienbreite der einzelnen exzitonischen Zustände, kann also nur ein geringer Anteil der Quantenpunkte untereinander über das Strahlungsfeld wechselwirken. Effizienteres Koppeln ist u. U. möglich über ein weiteres Quasi-Teilchen, z.B. das Phonon im Förster-Prozeß [46]. Hier übernimmt das Phonon einen Teil der Energie, und eine Kopplung zwischen nichtresonanten Übergängen ist möglich. Für die Beschreibung der kohärenten Dynamik beschränke ich mich daher im folgenden auf den diagonalen Anteil der Selbstwechselwirkung.

3.4.2 Homogene Umgebung

In diesem Abschnitt wird die strahlende Linienbreite von Exzitonen in einer homogenen Umgebung ($\epsilon = \text{const}$) diskutiert. Für kleine Quantenpunkte ($nk d \ll 1$ für den Durchmesser d), läßt sich die Greensche Funktion für den homogenen Fall, Gl. (3.19), entwickeln (vgl. Anhang A), und als Strahlungsdämpfung ergibt sich [47]:

$$\Gamma^{rad} = \frac{2}{3} n k^3 d^2 |\varphi|^2 \left| \int \psi_\mu(\mathbf{r}) d^3 r \right|^2 . \quad (3.26)$$

Dieses Resultat entspricht dem, was man aus quantenoptischen Rechnungen für atomare Systeme erhält [48], wenn man $d^2 |\varphi|^2 \left| \int \psi_\mu(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \right|^2$ mit dem Quadrat des Dipolübergangselements des atomaren Übergangs identifiziert. In Bezug auf die Kopplung an das Strahlungsfeld verhalten sich also Quantenpunkte sehr ähnlich wie atomare Systeme. Die Strahlungsdämpfung (Gl. 3.26) hängt stark von der Ausdehnung des Zustandes ψ_μ ab und liegt für einen GaAs-Quantenpunkt mit 40nm Durchmesser im Bereich von 200ps . Gl. (3.26) läßt sich nur anwenden, wenn eine Beschränkung auf das $1s$ -Exziton möglich ist, d.h. die Ausdehnung des Zustandes sollte größer als der Exziton-Bohrradius sein.

Ein Vergleich der Strahlungsdämpfung für einen zweidimensionalen exzitonischen Zustand $\psi_2(x, y)$ in einem QW und einen dreidimensionalen Zustand im Volumen-

material $\psi_3(x, y, z)$ ergibt:

$$\frac{\Gamma_2}{\Gamma_3} = \frac{1}{8a_0} \frac{|\int \psi_2(x, y) dx dy|^2}{|\int \psi_3(x, y, z) dx dy dz|^2}. \quad (3.27)$$

Falls beide Zustände in transversaler Richtung ähnliche Form haben und der dreidimensionale Zustand in der dritten Dimension eine Ausdehnung l_z , hat man näherungsweise:

$$\frac{\Gamma_2}{\Gamma_3} \approx \frac{l_z}{8a_0}. \quad (3.28)$$

Für kleine Zustände ($l_z < 8a_0$) ist die Strahlungsdämpfung des zweidimensionalen Systems größer. Dies liegt an der höheren Wahrscheinlichkeit, Elektron und Loch am selben Ort zu finden, als im dreidimensionalen System.

Vergleichen wir Zustände mit gleicher Form, aber unterschiedlicher Ausdehnung:

$$\psi_1(\mathbf{r}) = \tilde{\psi}(\mathbf{r}) \text{ und } \psi_2(\mathbf{r}) = \alpha^{d/2} \tilde{\psi}(\alpha \mathbf{r}), \quad (3.29)$$

die beide normiert seien. Der Exponent $d = 2, 3$ bezeichnet die Dimension des Exzitons. Gl. (3.26) zeigt, daß

$$\Gamma_2^{rad} = \frac{1}{\alpha^d} \Gamma_1^{rad}. \quad (3.30)$$

Für kleine Zustände ist also die Strahlungsdämpfung proportional zum Volumen des Zustandes (bzw. zur Fläche beim Quantenfilm-Exziton).

Abb. (3.7) zeigt die berechnete Strahlungsdämpfung für lokalisierte Exzitonen in einer sphärischen Potentialmulde mit Radius \mathbf{R} in einem Quantenfilm. Die Potentialmulde kann durch eine lokale Verbreiterung des Quantenfilms verursacht sein. Hier sind auch exzitonische Zustände berücksichtigt, für die die Relation $nkR < 1$ nicht mehr erfüllt ist. Für kleine Radii ist der quadratische Anstieg der Strahlungsdämpfung mit dem Radius erkennbar (Einfügung in Abb. (3.7)). Für größere Zustände konvergiert die Dämpfung gegen $\Gamma \approx 0.1ps^{-1}$, was der Strahlungsdämpfung des Quantenfilms entspricht. Der Phasenfaktor $exp(ink|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|)$ in der Greenschen Funktion führt zu den leichten Oszillationen auf der Kurve, wenn die Ausdehnung des Zustandes auf der Skala der Wellenlänge variiert.

Experimentelle Untersuchungen an Quantenpunkten werden häufig als PL und PLE Messungen durchgeführt. Hier sind Lebensdauern im Bereich von einigen Pikosekunden bis zu Nanosekunden gefunden worden. Diese Lebensdauern beschreiben den Zerfall der Exzitonendichte; im kohärenten Grenzfall ergibt sich aus Gleichung

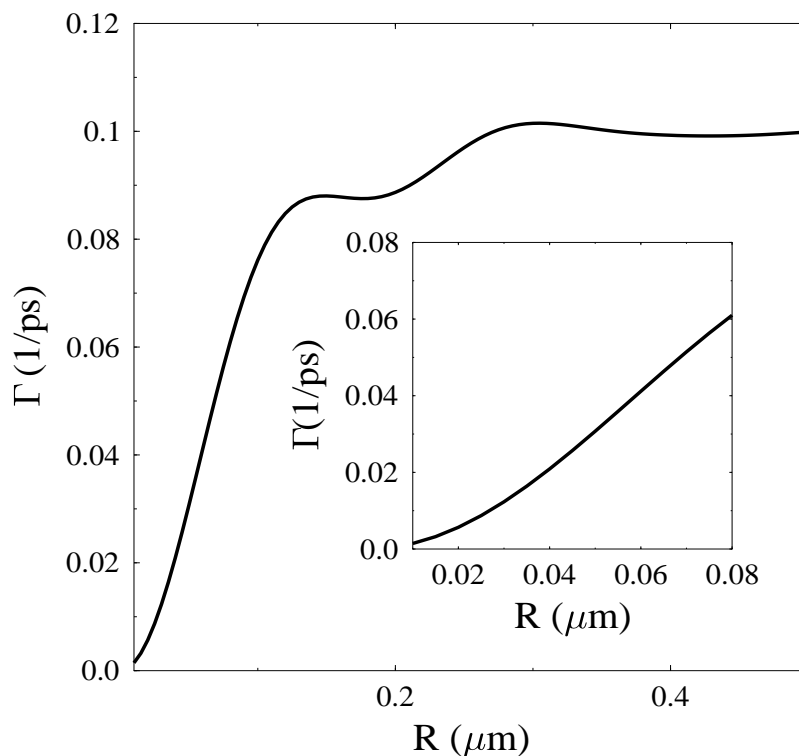


Abbildung 3.7: Strahlende Linienbreite von QW Exzitonen in einer kreisförmigen Potentialmulde mit Radius R .

(3.16), daß die Dichte doppelt so schnell wie die Polarisation zerfällt. Unsere Resultate sind in grober Übereinstimmung mit experimentellen Resultaten [6].

3.4.3 Inhomogen Umgebung: Oberflächen

In diesem Abschnitt wird der Einfluß einer Oberfläche auf die Lebensdauer von Exzitonen untersucht. Da in der Nahfeldspektroskopie der Abstand zwischen Nahfeldsonde und untersuchtem Objekt klein gegen die Wellenlänge sein sollte, liegen in geeigneten Proben die Strukturen nahe unter der Oberfläche. Falls auf die Probe ein Metallfilm aufgedampft ist, in dem sich eine Apertur befindet, muß eine Grenzfläche zwischen Halbleiter und Metall berücksichtigt werden. Im allgemeinen können die Grenzflächen zu einem benachbarten Medium durch die entsprechende Green-

sche Funktion beschrieben werden (vgl. Anhang A.2). Für ein ideales Metall, auf dessen Oberfläche die tangentialen Komponenten des elektromagnetischen Feldes verschwinden, kann das gesamte Feld durch die Einführung von Bildladungen bestimmt werden. Das gesamte Feld eines Dipols ist dann die Summe aus dem Feld des Dipols im homogenen Medium und aus dem Feld des Bilddipols. Für einen Dipol, der parallel zur Oberfläche liegt, ist der Bilddipol antiparallel ausgerichtet; für einen Dipol, der senkrecht auf der Metallfläche steht, ist die Ausrichtung des Bilddipols parallel. Dementsprechend überlagern sich die Felder bei einem Dipol, der sich in geringem Abstand zur Metallfläche befindet, destruktiv im Fall der Ausrichtung parallel zur Oberfläche und konstruktiv im Fall der senkrechten Ausrichtung. Demzufolge ist bei paralleler Ausrichtung eine verringerte Ankopplung an das elektromagnetische Feld zu erwarten, was einer verringerten Strahlungsdämpfung entspricht. Für die senkrechte Ausrichtung gilt das umgekehrte. Von einem realen Metall wird das elektromagnetische Feld allerdings nicht nur reflektiert, sondern wegen der endlichen Eindringtiefe kommt es auch zur Absorption. Diese sollte die Lebensdauer verringern. Um alle Effekte konsistent zu behandeln, wird hier das Metall durch eine dielektrische Funktion beschrieben ($\varepsilon = (2.8 + 8.45i)^2$) [49]. Die Reflexion an einer dielektrischen Grenzfläche läßt sich im quasistatischen Grenzfall wieder durch Bildladungen beschreiben (vgl. Anhang A.3), diese Näherung ist nur dann zulässig, wenn $2nkd < 1$, wobei d den Abstand der Dipolquelle von der Grenzfläche angibt. Für GaAs mit $\varepsilon = 12$ ist schon für $d = 20nm$ die Relation $2nkd = 1$ erfüllt, so daß die quasistatische Näherung für die Beschreibung vieler Proben nicht ausreicht. Die Greensche Funktion muß dann durch eine Modenentwicklung bestimmt werden, bei der für alle Moden ein Reflexionskoeffizient bestimmt wird [44]. Hier müssen auch evaneszente Moden berücksichtigt werden (vgl. Anhang A.2). Dies Verfahren führt zu Integraldarstellungen der Greenschen Funktion, wie sie zuerst von Sommerfeld zur Berechnung von Strahlungsfeldern von Dipolantennen über dem Erdboden oder über Wasser genutzt worden sind. Die folgenden Resultate sind durch numerische Integration dieser Integrale bestimmt worden. Abb. (3.8) zeigt die Lebensdauer eines strahlenden Dipols in GaAs ($\varepsilon = 12$) vor einer Grenzfläche zum Metall ((a.) und (b.)) bzw. zum Vakuum ((b.) und (d.)). Die Orientierung des Dipols ist Senkrecht zur Oberfläche in (a) und (c), parallel zur Oberfläche in (b) und (d). Die Lebensdauer ist normiert auf die strahlende Lebensdauer t_0 im homogenen Material. Zum Vergleich ist ein ideales Metall und Aluminium gezeigt. Für Abstände größer als

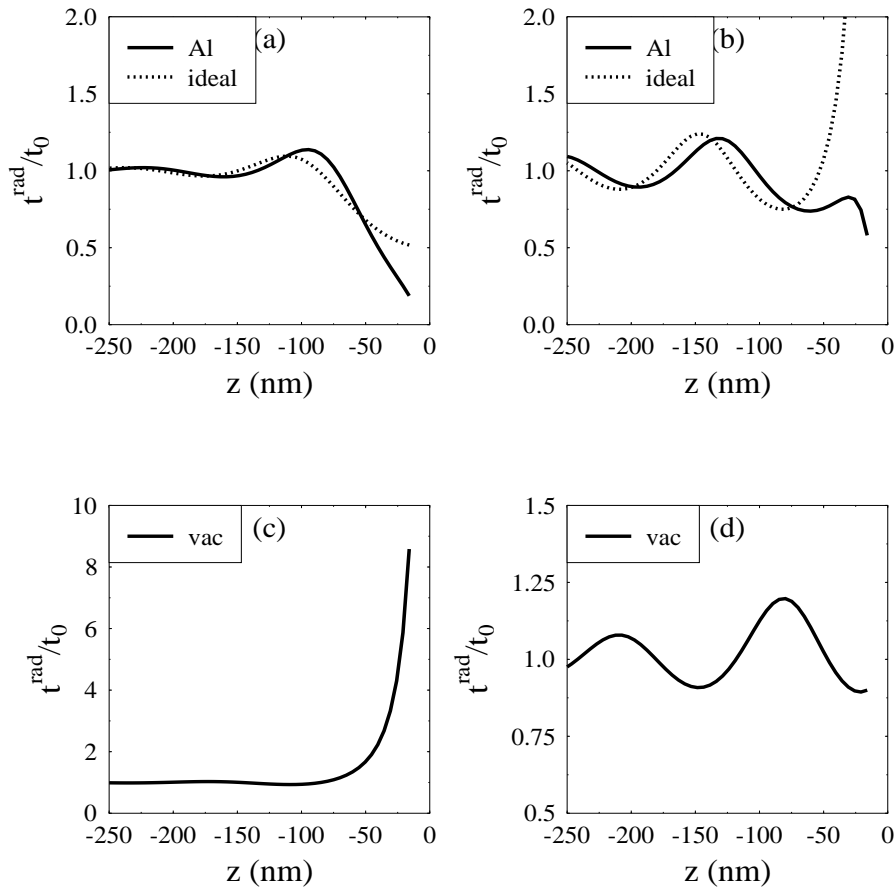


Abbildung 3.8: Strahlende Lebensdauer eines Dipols vor einer Oberfläche als Funktion des Abstands. In (a.) und (b.) wird eine Metalloberfläche untersucht, in (c.) und (d.) eine Oberfläche zum Vakuum. Die Orientierung des Dipols ist senkrecht zur Oberfläche in (a) und (c), parallel zur Oberfläche in (b) und (d). Die Lebensdauer ist normiert auf die strahlende Lebensdauer im homogenen Material.

50nm sind die Abweichungen von der homogenen Lebensdauer t_0 gering. Sie zeigen Oszillationen, die von der Phase des reflektierten Lichts am Ort des Dipols abhängen und daher der halben Wellenlänge des Lichts in GaAs entsprechen. Die Oszillationen sind ausgeprägt, falls die Ausrichtung des Dipols parallel zur Oberfläche ist ((b) und (d)), für senkrechte Polarisation sind sie vergleichsweise schwach. Dies liegt daran,

daß ein Dipol nicht in die Richtung, in die er ausgerichtet ist, abstrahlt. Ein Dipol, der senkrecht zur Oberfläche ausgerichtet ist, tritt also für größere Abstände nur in schwache Wechselwirkung mit der Oberfläche. Im Nahfeld gilt diese Beziehung nicht, und für beide Orientierungen sind deutliche Abweichung von der Lebensdauer t_0 zu beobachten. Vor einer Aluminium-Oberfläche kommt es zu einer Verringerung der Lebensdauer auf ca. 0.5 bei einem Abstand von 20nm. Nur das Modell eines idealen Metalls zeigt eine Erhöhung der Lebensdauer für parallele Polarisierung. Bei der Halbleiter-Vakuum Grenzfläche sind die Abweichungen von der homogenen Lebensdauer im Fall der parallelen Polarisierung relativ gering, wohingegen es bei senkrechter Polarisierung zu einem starken Anstieg der Lebensdauer kommt. Dies ergibt sich für kleine Abstände von der Grenzfläche auch aus der quasistatischen Näherung (vgl. Anhang A.3).

3.4.4 Inhomogene Umgebung: Die Apertur

Im allgemeinen kann das elektromagnetische Feld einer Strahlungsquelle vor einer Metallfläche mit einer Apertur zerlegt werden in das Feld, das bei geschlossener Apertur vorliegen würde und in die Korrekturen, die durch die Apertur verursacht werden. In diesem Abschnitt werden numerische Resultate für den Einfluß der Apertur auf die Linienbreite und auf die Resonanzfrequenz bestimmt [39]. Die Abb. 3.9 (a) und (b) zeigen die Veränderung der Strahlungsdämpfung und der Resonanzenergie für eine Dipolquelle durch den Einfluß der Apertur. Die Konfiguration entspricht der Abb. 3.1, der Dipol befindet sich 30 nm unter dem Metall und 20 nm unter der Halbleiteroberfläche. Die Dipole sind in x - bzw. y -Richtung polarisiert, sie liegen auf der x -Achse in verschiedenem Abstand y zum Zentrum der Apertur. Für große transversale Abstände zur Apertur ($|y| > 100\text{nm}$) ist die Strahlungsdämpfung kaum von der Apertur beeinflusst und entspricht dem Resultat vor einer Oberfläche, in diesem Fall ist die Dämpfung um einen Faktor 0.45 kleiner als im homogenen Fall. Zentral unter der Apertur dagegen ist die Linienbreite um ca. 10% größer, was auf einen reduzierten Einfluß des Metalls zurückgeführt werden kann. Abb. 3.9(b) zeigt die Verschiebung der Resonanzfrequenz bezüglich der Resonanz im homogenen Medium. Sie ist normiert auf die Linienbreite im homogenen Medium. Aufgrund der Oberfläche ist die Resonanz um ca. zwei Drittel der Linienbreite verschoben, zentral unter der Apertur verringert sich dieser Wert auf knapp eine halbe Linienbreite.

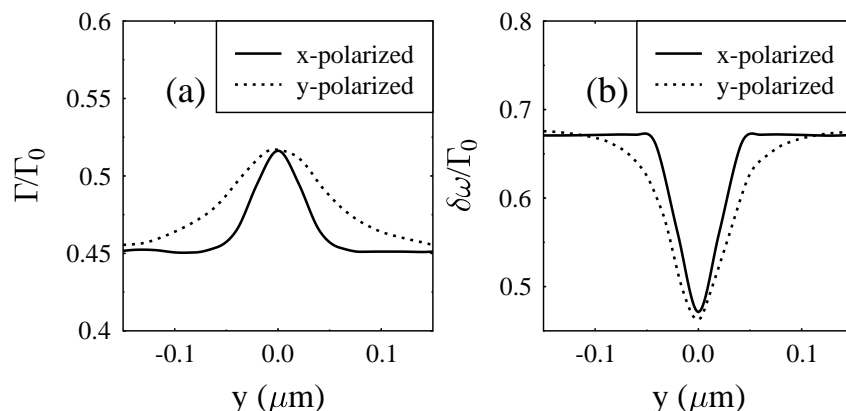


Abbildung 3.9: Strahlende Linienbreite (a) und Verschiebung der Resonanz (b) einer Dipolquelle unter der Apertur. Die Größen sind normiert auf die Linienbreite Γ_0 in homogenen Material (GaAs). Die Verschiebung ist relativ zur Resonanz im homogenen Material definiert. Der Dipol befindet sich $z = 30\text{nm}$ unter der Apertur auf der y -Achse. Die Polarisation ist in Richtung der x - bzw. y -Achse orientiert.

Auch hier scheint unter der Apertur der Einfluß der Oberfläche verringert zu sein, so daß die Resonanz näher an dem Wert für die homogene Umgebung liegt.

Falls der Dipol zentral unter der Apertur liegt, ist aufgrund der Symmetrie der Einfluß der Apertur unabhängig von der Polarisationsrichtung des Dipols. Insbesondere trifft das Resultat auch für eine zirkular polarisierte Quelle bei $y = 0$ zu. Insgesamt ist der räumliche Einfluß der Apertur stärker lokalisiert falls der Dipol senkrecht steht auf der Scan-Richtung.

3.4.5 Nahfeld-Spektren eines Quantenpunkt-Dipols

Im allgemeinen ist die Polarisation, die durch die Anregung eines exzitonischen Zustandes, Gl. (3.17), induziert wird, anisotrop und nicht lokal. Falls jedoch die Ausdehnung des Zustandes klein gegen die Wellenlänge des Lichts ist, kann die optische Antwort nach Multipolen entwickelt werden. Diese Multipolentwicklung findet auf der Skala der mesoskopischen Struktur statt und sollte von der Multipolentwicklung auf der Elementarzelle, die im Abschnitt 2.5 diskutiert wird, unterschieden werden. In führender Ordnung koppelt die Polarisation an das elektromagnetische Feld im

Mittelpunkt $\mathbf{r} = \mathbf{r}_0$ eines Zustandes. Dann kann eine effektive Suszeptibilität definiert werden, die die induzierte Gesamtpolarisation zum einfallenden elektrischen Feld in Beziehung setzt:

$$\mathbf{p} = \hat{\chi}_{eff} \mathbf{E}_{ap}(\mathbf{r}_0). \quad (3.31)$$

Nach Gl. (3.17) ergibt sich die effektive Suszeptibilität χ_{eff} durch:

$$\hat{\chi}_{eff} = |\varphi_{1s}(\mathbf{r} = 0)|^2 \mathbf{d}_{vc} \otimes \mathbf{d}_{vc} \left(\frac{|\int \psi_{\mu}(\mathbf{r}') d\mathbf{r}'|^2}{\omega - \omega_{\mu} + i\Gamma^{int} + \Sigma_{\mu\mu}} + c.c.(-\omega) \right).$$

Das reflektierte elektromagnetische Feld kann über die in der Apertur induzierten Momente ausgedrückt werden. Diese Momente können in einen Teil, der ohne die Anregung der resonanten Quellen vorliegt, \mathbf{m}_0 , und in das durch die exzitonische Polarisation induzierte Moment \mathbf{m}_{ind} aufgeteilt werden. Mit dem anregenden Feld \mathbf{E}_{ap} , der exzitonischen Polarisation (3.31) und den induzierten Momenten bestimmt durch Gl.(3.10) ergibt sich die in Gl. (3.12) definierte Reflexion als:

$$\mathcal{R} = 1 + \frac{(\hat{t}(\mathbf{r}_0) \hat{\chi}_{eff} \mathbf{E}_{ap}(\mathbf{r}_0))^+}{m_0^+} + c.c. . \quad (3.32)$$

Da \hat{t} ein Tensor ist, der auch nichtverschwindende Nichtdiagonalelemente hat, können i. allg. alle Polarisationsrichtungen zur Reflexion beitragen.

Im Fall einer Anregung am Schwerloch-Exziton entsteht keine Polarisation in z-Richtung (vgl. Diskussion der Auswahlregeln in Abs. 3.5). Außerdem sind die Matrixelemente \hat{t}^{+-} und die Feldkomponenten \mathbf{E}_{ap}^- klein (vgl. Abb. 3.2 und Abb. 3.10). In diesem Fall wird die Reflexion hauptsächlich bestimmt durch

$$\mathcal{R} = 1 + \frac{t^{++}(\mathbf{r}_0) \chi_{eff}^{++} E_{ap}^+(\mathbf{r}_0)}{m_0^+} + c.c. . \quad (3.33)$$

Sie ist proportional zu dem Produkt aus anregendem Feld E_{ap}^+ und der Transmissionsfunktion t^{++} . Beide haben ihr Maximum zentral unter der Apertur (vgl. Abb. 3.2 und 3.5.b). Abhängig von der Phase der Funktionen t^{++} , m_0^+ und E^+ kann es zu einem konstruktiven oder destruktiven Überlagern der Momente \mathbf{m}_0 und \mathbf{m}_{ind} kommen. Für die hier untersuchte Konfiguration hat die Phase des Ausdrucks $t^{++} E^+ / m_0^+$ nahezu keine transversale Abhängigkeit, und $t^{++} E^+ / m_0^+ +$ ist eine negative reelle Zahl. Damit ist die Reflexion gegeben durch:

$$\mathcal{R} = 1 - 2 \left| \frac{t^{++}(\mathbf{r}_0) E_{ap}^+(\mathbf{r}_0)}{m_0^+} \right| \Re(\chi_{eff}^+) \quad (3.34)$$

Als Funktion der Frequenz wird \mathcal{R} bestimmt durch die effektive Suszeptibilität χ_{eff}^+ , da die anderen Faktoren vergleichsweise schwach frequenzabhängig sind. Da χ_{eff}^+ die Wechselwirkung mit der Apertur beinhaltet, ergibt sich, daß die Resonanz abhängig von der Relativposition von lokalisiertem Zustand und Apertur etwas verschoben ist bzw. modifizierte Linienbreite hat. (vgl. Abb 3.9). Die Linienform ist gegeben durch den Realteil der Suszeptibilität, hat also dispersiven Charakter. Die Stärke der Resonanz wird dahingegen von der Transmissionsfunktion und vom einfallenden Feld bestimmt, so daß Exzitonen, die zentral unter der Apertur liegen, das Signal dominieren.

3.4.6 Nahfeld-Spektren eines Quantenpunkt-Quadrupols

Falls das Integral $\int \psi_\mu(\mathbf{r}') d\mathbf{r}'$ verschwindet, trägt der exzitonische Zustand ψ_μ in Dipolnäherung nicht zur Reflexion bei. In diesem Fall ist es wichtig, die nächsthöheren Multipolmomente zu berücksichtigen, die an Ableitungen des elektrischen Feldes koppeln. Im allgemeinen kann man diese Ableitungen in ihren symmetrischen und antisymmetrischen Anteil zerlegen. Der antisymmetrische Anteil läßt sich durch $\nabla \times \mathbf{E}$ ausdrücken und ist aufgrund der Maxwell'schen Gleichungen mit dem magnetischen Feld verknüpft. Dies führt zu einer magnetischen Suszeptibilität, die die optische Antwort auf das anregende magnetische Feld beschreibt. Ähnlich kann man eine Quadrupol-Suszeptibilität für die Kopplung an den symmetrischen Teil von $\nabla \mathbf{E}$ bestimmen. Formal jedoch können diese beiden Anteile gleich behandelt werden. In diesem Sinn wird ein verallgemeinertes Quadrupol-Moment definiert:

$$\hat{\mathbf{Q}} = \int d\mathbf{R} \mathbf{R} \otimes \mathcal{P}(\mathbf{R}), \quad (3.35)$$

dessen Ankopplung an die Ableitungen des elektrischen Feldes durch eine effektive Suszeptibilität $\hat{\chi}_{eff}$ beschrieben wird:

$$\hat{\mathbf{Q}} = \hat{\chi}_{eff} \nabla \mathbf{E}_{ap}. \quad (3.36)$$

Nach Gl. (3.17) ist $\hat{\chi}_{eff}$ gegeben durch:

$$\begin{aligned} \hat{\chi}_{eff} &= |\varphi_{1s}(\mathbf{r} = 0)|^2 \int \psi_\mu(\mathbf{R}) \mathbf{R} d\mathbf{R} \otimes \mathbf{d}_{vc} \otimes \mathbf{d}_{vc} \otimes \int \psi_\mu(\mathbf{R}) \mathbf{R} d\mathbf{R} \\ &\times \left(\frac{1}{\omega - \omega_\mu + i\Sigma_{\mu\mu}} + c.c.(-\omega) \right). \end{aligned} \quad (3.37)$$

In Analogie zum vorhergehenden Abschnitt kann das reflektierte Signal ausgedrückt werden durch die Transmissionsfunktion und das anregende Feld:

$$\mathcal{R} = 1 + \frac{(\nabla \hat{t}(\mathbf{r}_0) \hat{\chi}_{eff} \nabla \mathbf{E}_{ap}(\mathbf{r}_0))^+}{m_0^+} + c.c. \quad (3.38)$$

Im Gegensatz zur Anregung eines dipolerlaubten Überganges, Gl. (3.32), wird hier die Reflexion bestimmt durch die Ableitungen des anregenden Feldes und die Ableitungen der Transmissionsfunktion.

Zur Interpretation von Gl. (3.32) und (3.38) wird im folgenden ein einfaches Beispiel diskutiert.

3.4.7 Vergleich eines Dipolübergangs mit einem Quadrupolübergang

Betrachten wir als ein typisches Beispiel die Anregung eines Exzitons in einer Potentialfluktuation in einem Quantenfilm. Das Potential sei als Kasten mit unendlich hohen Barrieren angenommen. In diesem Fall ist der tiefste Zustand für die Schwerpunktbewegung eines Exzitons gegeben durch:

$$\psi_0 = \frac{2}{l} \cos\left(\frac{\pi}{l}x\right) \cos\left(\frac{\pi}{l}y\right), \quad (3.39)$$

und einer der ersten angeregten Zustände ist:

$$\psi_1 = \frac{2}{l} \sin\left(\frac{2\pi}{l}x\right) \cdot \cos\left(\frac{\pi}{l}y\right) \quad (3.40)$$

Der Zustand ψ_1 hat ein verschwindendes Dipolmoment und im Fall einer Fernfeld-Anregung mit einer ebenen Welle, die sich in Richtung der z -Achse ausbreitet, würde er weder in Dipol- noch in Quadrupolnäherung angeregt. Bei einer Nahfeldanregung hingegen werden i. allg. beide Zustände einen Beitrag zur Reflexion haben. Für eine Anregung mit σ^+ -polarisiertem Licht und einer Anregung am Schwerloch-Exziton ist die relative Stärke der beiden Beiträge zum reflektierten Signal gegeben durch:

$$\frac{\mathcal{R}_1 - 1}{\mathcal{R}_0 - 1} = \frac{(\partial_x t^{++})(\partial_x E_{ap}^+)}{t^{++} E_{ap}^+} \frac{\int \psi_1(\mathbf{r}) x d\mathbf{r}}{\int \psi_0(\mathbf{r}) d\mathbf{r}}. \quad (3.41)$$

Der Untergrund der Reflexion durch die Streuung an der Apertur ist hier jeweils abgezogen. Der erste Faktor auf der rechten Seite von Gl. 3.41 ist eine Größe, die nur

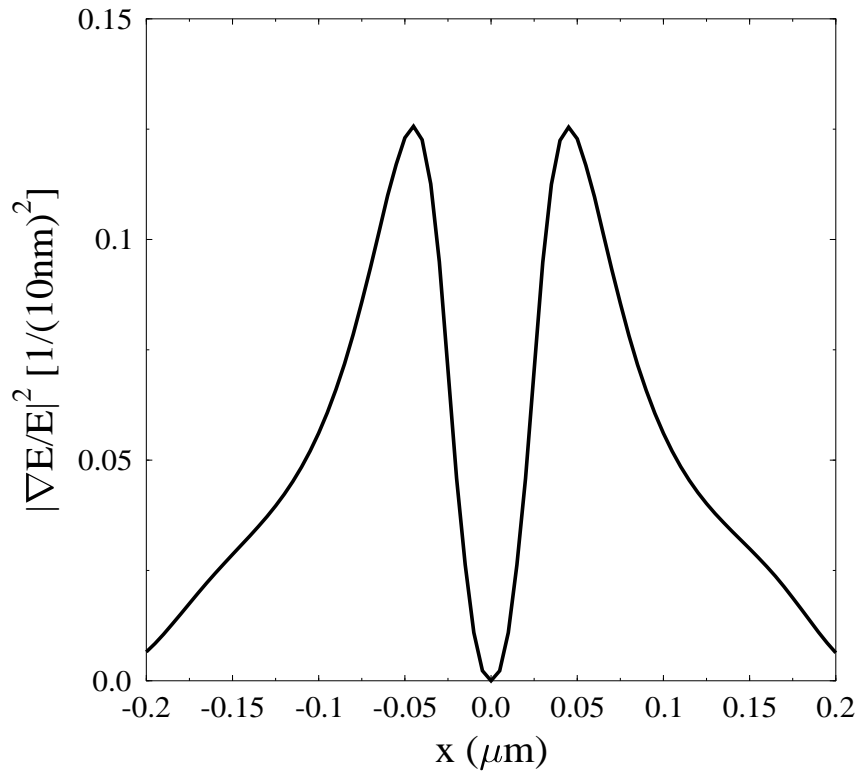


Abbildung 3.10: Verhältnis der Ableitung des elektrischen Feldes zum Betrag des Feldes für die σ^+ -Komponente entlang der x -Achse unter der Apertur.

durch die Geometrie der Apertur bestimmt ist. Sie beschreibt die relative Veränderung des Feldes unter der Apertur. Abb. 3.10 zeigt diese Größe als Funktion des Abstands auf der x -Achse bei $z = 30\text{nm}$ unter der Apertur. Das Verhältnis der Ableitung des elektrischen Feldes zum Feld selbst hat seine Maxima unter den Rändern der Apertur bei $x = \pm 50\text{nm}$. Im Zentrum verschwindet es aufgrund der Rotationssymmetrie. Der Beitrag des angeregten Zustandes ist also maximal unter den Rändern der Apertur.

Der zweite Faktor auf der rechten Seite von Gl. (3.41) hängt nur von den betrachteten exzitonischen Zuständen ab und ist verknüpft mit der Quadrat der Ausdehnung der Zustände. Für die hier betrachteten Zustände Gl. (3.39) und (3.40) ist dieser Faktor gegeben durch $l^2/16$. Für eine Potentialmulde mit einer Ausdehnung von $l = 30\text{nm}$ ergibt sich damit ein Beitrag des angeregten Zustandes zur Reflexion,

der maximal 10% vom dipolerlaubten Zustand ausmacht. Allgemein ergibt sich ein starker Beitrag des dipolverbotenen Zustandes, wenn das einfallende Feld auf der Skala der Ausdehnung der Zustände variiert. Im Unterschied zu atomaren Systemen, deren Ausdehnung sehr klein gegen die Apertur ist, sind bei Halbleiterstrukturen, die auf der mesoskopischen Skala variieren, Beiträge höherer Ordnung ausgeprägt.

3.4.8 Ausgedehnte und lokalisierte Zustände

I. allg. tragen nicht nur lokalisierte sondern auch ausgedehnte Zustände zur optischen Antwort bei, z.B. in einem Quantenfilm mit schwacher Unordnung. Für die ausgedehnten Zustände ist eine Klassifizierung nach Multipolmomenten nicht sinnvoll.

Als Beispiel wird ein Quantendraht in einem Quantenfilm betrachtet in einer zweidimensionalen Konfiguration (vgl. Abschnitt 3.1). Die Anregung erfolgt durch eine spaltförmig Apertur, die sich in Richtung des Quantendrahtes erstreckt. Die Polarisation des einfallenden Lichts ist ebenfalls in Richtung des Spalts orientiert (TE-Modus). Das Metall ist direkt auf die Halbleiteroberfläche aufgedampft. Abb. 3.11 zeigt das Spektrum der Polarisation $|P(y, \omega)|^2$ als Funktion des Abstands zwischen Quantendraht und Apertur. Die Frequenz ω_0 bezeichnet das Bandgap am Ort des Quantendrahtes, das wiederum $1/\text{ps}$ kleiner ist als im umgebenden Quantenfilm. Bei $\Delta y = 0$ ist hauptsächlich der im Quantenfilm gebundene Zustand sichtbar. Für größer werdende Abstände wird der Beitrag des gebundenen Zustandes kleiner, und die exzitonischen Zustände im Quantenfilm bestimmen das Spektrum.

3.5 Anregung von Leicht- und Schwerlochexzitonen im Quantenfilm

In nanostrukturierten Halbleitern führt das Confinement der Ladungsträger i. allg. zu einer Reduzierung der Symmetrie. Dadurch können anisotrope optische Eigenschaften des Materials induziert werden. Da eine Nahfeldsonde das einfallende Licht streut, entstehen Komponenten des elektrischen Feldes in Richtungen unterschiedlich zur Polarisationsrichtung des einfallenden Strahls. Man kann daher annehmen,

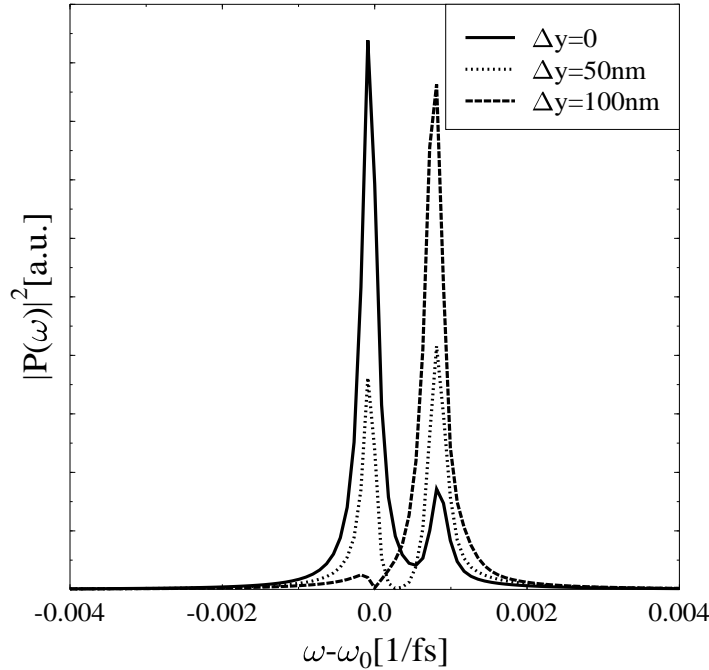


Abbildung 3.11: Nahfeld-Anregung eines Quantendrahtes, eingebettet in einem Quantenfilm. Δy bezeichnet den Abstand zwischen Draht und Apertur, bei $\Delta y = 0$ befindet sich der 60nm breite Draht zentral unter der Apertur.

daß ein anisotropes Material sich unter einer Anregung durch ein optisches Nahfeld anders verhält als in einer Fernfeldanregung. In diesem Sinn kann man von modifizierten Auswahlregeln reden.

Dies wird am Beispiel der Anregung eines Quantenfilms diskutiert. Durch das Confinement-Potential ist die Bewegung der Ladungsträger auf die Ebene des Quantenfilms beschränkt. Die exzitonischen Übergänge resultieren aus der Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektronen im s -artigen Leitungsband und Löchern im p -artigen Valenzband. Im Zentrum der BZ können die Zustände nach dem Gesamtdrehimpuls j klassifiziert werden (vgl. Abs. 2.3.2). Als Folge des Confinements ist die Entartung der Loch-Zustände $|j = 3/2, m_j = \pm 1/2\rangle$ und $|j = 3/2, m_j = \pm 3/2\rangle$ bei $\mathbf{k} = 0$ aufgehoben, und die zugehörigen optischen Übergänge, das Leichtlochexzi-

ton und das Schwerlochexziton, sind spektral getrennt. In der Dipolnäherung werden die optischen Übergänge durch die Dipolmatrixelemente bestimmt, die gegeben sind durch:

$$\mathbf{d}_{m_j^v m_j^c} = \frac{1}{\Omega_0} \int dV u_{m_j^v}^*(\mathbf{r}) \mathbf{e} \mathbf{r} u_{m_j^c}(\mathbf{r}), \quad (3.42)$$

wobei $u_{m_j^v}$ und $u_{m_j^c}$ die Blochfunktionen von Valenz- und Leitungsband bei $k = 0$ sind ($m_j^v = \pm\frac{1}{2}, \pm\frac{3}{2}, m_j^c = \pm\frac{1}{2}$). Das Integral ist über der Elementarzelle genommen. Die dipolerlaubten Übergänge sind in Abb. 3.12 skizziert. Übergänge mit

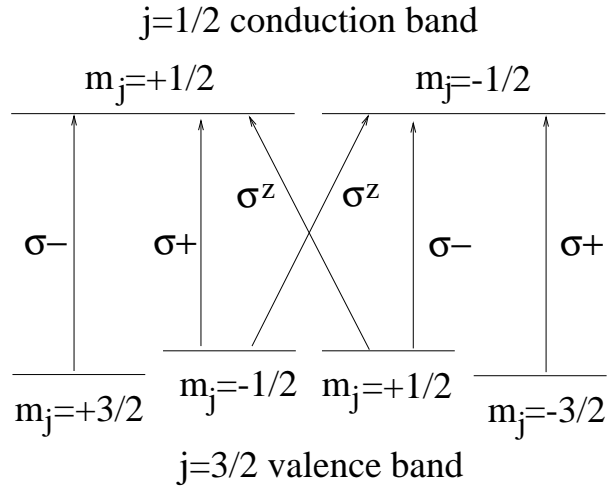


Abbildung 3.12: Dipolerlaubte Übergänge in einem GaAs-Quantenfilm mit p-artigem Valenzband und s-artigem Leitungsband.

$\Delta m_j = \pm 1$ werden durch σ^\pm - polarisiertes Licht angeregt, wohingegen Übergänge mit $\Delta m_j = 0$ durch z -polarisiertes Licht angeregt werden. Seien die Dipolmatrixelemente der Schwerlochübergänge (Leichtlochübergänge) mit hh (lh) bezeichnet, dann sind die nichtverschwindenden Übergangsmatrixelemente gegeben durch: $d_{hh}^\pm = d_{cv} \sigma^\pm$, $d_{lh}^\pm = \frac{1}{\sqrt{3}} d_{cv} \sigma^\pm$, und $d_{lh}^z = \sqrt{\frac{2}{3}} d_{cv} \sigma^z$ [31]. Die Matrixelemente zeigen, daß Schwerlochübergänge nur durch σ^\pm polarisiertes Licht angeregt werden können, wohingegen Leichtlochübergänge durch alle Polarisationsrichtungen angeregt werden. Da die zugehörigen exzitonischen Resonanzen nicht entartet sind, beeinflusst die vektorielle Struktur der elektrischen Feldverteilung unter der Nahfeldsonde die Spektren. Ähnliche Studien für Quantenpunkte sind in Referenz [50] durchgeführt worden.

Abb. 3.13 zeigt numerische Resultate für die optische Anregung des Quantenfilms am

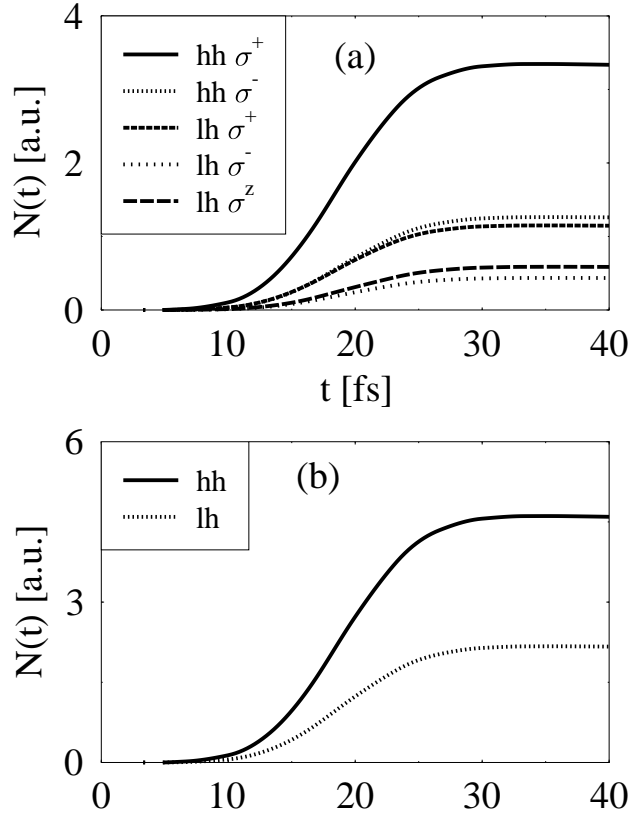


Abbildung 3.13: Anzahl der angeregten Schwer- und Leichtlohexzitonen als Funktion der Zeit. Angeregt ist mit einem σ^+ -polarisierten Gausschen Puls der Länge 10 fs. (a) Anregung von Schwer- und Leichtlohexzitonen getrennt nach den möglichen Übergängen; (b) Gesamtzahl der Schwerlohexzitonen verglichen mit den Leichtlohexzitonen

Exziton in der Konfiguration Abb. 3.1. Der Einfluß der Hintergrundpolarisation im Halbleiter wurde hierbei berücksichtigt. Der einfallende Strahl ist zeitlich gaußförmig und hat eine Länge von $10 fs$. Die Länge des Pulses ist so kurz gewählt, um die numerische Integrationszeit kurz zu halten; dies ist aber nicht relevant für die Resultate, solange der Puls kurz genug ist um beide exzitonischen Resonanzen spektral zu überdecken. Gezeigt ist die Zahl der angeregten Exzitonen $N_\nu \equiv \int d^2 \mathbf{R}_\parallel |P_\nu^{vc}(\mathbf{R}_\parallel)|^2$ für die verschiedenen Übergänge ν , wobei das Integral über einen Ausschnitt von $1 \mu m \times 1 \mu m$ über den Quantenfilm verläuft.

Die Zahl der angeregten σ^+ polarisierten Schwerlohexzitonen verhält sich zur Zahl der Leichtlohexzitonen mit der gleichen Polarisation wie 3:1, da die entsprechenden Dipolmomente sich wie $\sqrt{3} : 1$ verhalten. Dies ist auch das Ergebnis, das man bei der Anregung mit einer zirkular polarisierten, ebenen Welle, die sich in Richtung der z -Achse ausbreitet, erwartet. Für die entsprechenden σ^- -Komponenten erhält man das gleiche Verhältnis. Die σ^z -Komponente wird dagegen nur am leichten Loch angeregt. Summiert man alle Komponente auf (Abb. 3.13 b), so erhält man ein Verhältnis von Schwerloch- zu Leichtlohexzitonen von ungefähr 2 : 1, was deutlich von dem Wert 3 : 1 für die Fernfeldanregung abweicht. Ähnliche Rechnungen in einem Medium mit kleinerem Hintergrundbrechungsindex als GaAs zeigen eine noch deutlichere Hervorhebung der Leichtlochübergänge [35].

3.6 Dipolübergänge zweiter Ordnung und Quadrupolübergänge

In diesem Abschnitt wird die Nahfeldanregung von Interbandübergängen eines Halbleiters mit verschwindendem Dipolmatrixelement diskutiert. Ein Beispiel hierfür sind die 1s/2p Exzitonenübergänge in Kupferoxidul (Cu_2O) [52]. Da der Dipolbeitrag zur Polarisation in Gl. 2.43 verschwindet, werden die Beiträge höherer Ordnung in der Multipolentwicklung der Wechselwirkung, wie die Dipolübergänge zweiter Ordnung und die Quadrupolübergänge, wichtig [51]. Die entsprechende Bewegungsgleichung für die exzitonsche Polarisation ist in Gl. 2.46 abgeleitet worden. P_ν^{vc} wird bestimmt durch das elektrische Feld am Ort des Quantenfilms $\mathbf{E}(\mathbf{R})|_{z=z_0}$ und dessen räumliche Ableitungen $\nabla_{\mathbf{R}}\mathbf{E}(\mathbf{R})|_{z=z_0}$. Der Term, der an das elektrische Feld koppelt, ergibt nur für p-Exzitonen einen nichtverschwindenden Beitrag, dieser Term beschreibt die Dipolübergänge zweiter Ordnung. Der nächste Beitrag in Gl. 2.46 hängt von den räumlichen Ableitungen des Feldes ab. Er beschreibt die Anregung von s-Exzitonen durch Quadrupolübergänge. Bei einer Fernfeldanregung ist der Beitrag der Quadrupolübergänge im Vergleich zu den Dipolübergängen zweiter Ordnung schwach. Ihr Verhältnis wird bestimmt durch das Verhältnis von exzitonschem Bohrradius zu Wellenlänge des Lichts, das i. allg. sehr klein ist. In Fall einer Anregung im Nahfeld kann das elektrische Feld aber auf deutlich kürzeren Skalen variieren, so daß die Quadrupolübergänge stärker gewichtet werden. Man erwartet also, daß in der

Nahfeldkonfiguration die s-Exzitonen im Vergleich zu den p-Exzitonen stärker ausgeprägt sind. Da das 1s-Exziton und das 2p-Exziton spektral getrennt sind, sollte dies direkt am Verhältnis dieser beiden Resonanzen ablesbar sein. Für eine qualitative Abschätzung der Anzahl der angeregten Exzitonen sei angenommen, dass alle Einträge in den Zweiphotonenmatrizen gleich sind. Dann ergibt sich das Verhältnis von p-Exzitonen zu s-Exzitonen als:

$$\begin{aligned} \frac{N_p}{N_s} &= \frac{|P_{2p}^{vc}|^2}{|P_{1s}^{vc}|^2} \\ &\simeq \frac{\int d^2\mathbf{R}_{\parallel} \left| \sum_{j=1}^3 \partial_{x_j} \varphi_{2p}(\mathbf{r}) \right|_{\mathbf{r}=0}^2 \cdot \left| \sum_{j=1}^3 E^j(\mathbf{R}) \right|_{z=z_0}^2}{\int d^2\mathbf{R}_{\parallel} \left| \varphi_{1s}(\mathbf{r}) \right|_{\mathbf{r}=0}^2 \cdot \left| \nabla_{\mathbf{R}} \mathbf{E}(\mathbf{R}) \right|_{z=z_0}^2}. \end{aligned} \quad (3.43)$$

Da die Ableitung der 2p-Wellenfunktion gegeben ist durch:

$$\left[\nabla_r \varphi_{2p}(\mathbf{r}) \right]_{\mathbf{r}=0} = \frac{1 - \sqrt{2}i}{\sqrt{2^5 a_B^2}} \varphi_{1s}(0),$$

ergibt sich für Gl.(3.43):

$$\frac{N_p}{N_s} = \frac{3}{2^5 a_B^2} \frac{\int d^2\mathbf{R}_{\parallel} \left| \sum_{j=1}^3 E^j(\mathbf{R}) \right|_{z=z_0}^2}{\int d^2\mathbf{R}_{\parallel} \left| \nabla_{\mathbf{R}} \mathbf{E}(\mathbf{R}) \right|_{z=z_0}^2}. \quad (3.44)$$

Hier bezeichnet a_B den Bohrradius des Exzitons in Cu_2O , $a_B \simeq 1nm$. Die Integration wird in der folgenden numerischen Auswertung über eine Fläche von $1\mu m \times 1\mu m$ in der (x, y) -Ebene ausgeführt. Diskutiert werden eine dünne Schicht Cu_2O im Vakuum und eine dünne Schicht eingebettet in ein nichtresonantes Hintergrundmaterial ($\varepsilon = 7$). Abb. 3.14 zeigt die Anzahl der angeregten Exzitonen für diese beiden Konfigurationen als Funktion des Abstands zwischen Apertur und der dünnen Schicht. Je näher die Schicht sich unter der Apertur befindet, desto kleiner wird das Verhältnis N_p/N_s . Die s-Exzitonen, die an die räumlichen Ableitungen des elektrischen Feldes koppeln, werden also stärker hervorgehoben. Im Fall einer dünnen Schicht im Vakuum wird das Verhältnis unter der Apertur ungefähr $N_p/N_s \approx 1$, wohingegen für große Abstände von der Apertur ($z = 150nm$) das Verhältnis auf $N_p/N_s \approx 500$ ansteigt. Im Fernfeld, bei einer Anregung durch eine ebene Welle, kann man abschätzen: $\frac{N_p}{N_s} = \frac{3}{2^5 a_B^2 k_0^2} \approx 700$, wobei k_0 der Wellenvektor im Vakuum ist. Unter Berücksichtigung eines Brechungsindex verringert sich dieses Verhältnis erheblich. Nahe unter der Apertur ist N_p/N_s ungefähr wie im Vakuum. Für

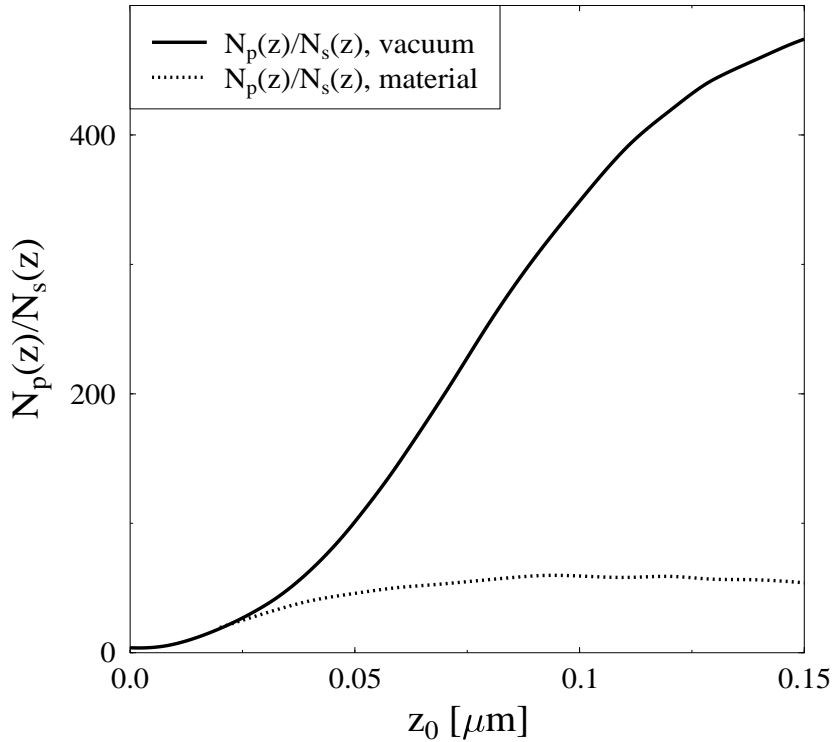


Abbildung 3.14: Verhältnis von p-Exzitonen zu s-Exzitonen als Funktion des Abstands zwischen Apertur und Halbleiter, für eine dünne Schicht Cu_2O in Vakuum und in dielektrischem Hintergrundmaterial ($\varepsilon = 7$). Mit abnehmendem Abstand sind die Quadrupolübergänge stärker hervorgehoben als die Dipolübergänge zweiter Ordnung.

($z = 150\text{nm}$) ist das Verhältnis jedoch nur $N_p/N_s \approx 60$. Im Fernfeld erwartet man einen Wert von $\frac{N_p}{N_s} = \frac{3}{2^5 a_B^2 k^2} \approx 100$ bei der Anregung mit einer ebenen Welle. Dieser Wert ist um einen Faktor ε kleiner, als im Vakuum. Das liegt an der kürzeren Wellenlänge des Lichts im Material, so daß der Gradient des Feldes in Ausbreitungsrichtung größer ist. In einem Medium mit hohem Brechungsindex treten daher die s-Exzitonen auch bei einer Fernfeldanregung stärker hervor, und die Modifikation durch die Apertur ist geringer.

3.7 Optische Wellenpakete

In diesem Abschnitt wird die Anwendung nahfeldoptischer Methoden zur Untersuchung von optischen Transportphänomenen in Halbleitern diskutiert. Formal ist der Transport mit einer nichtlokalen Suszeptibilität $\chi(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t - t')$ verknüpft, die Polarisation gegeben durch

$$P(\mathbf{r}, t) = \int \chi(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t - t') E(\mathbf{r}', t') d\mathbf{r}' dt' , \quad (3.45)$$

d.h. auch an Punkten mit verschwindender Anregung wird eine Polarisation erzeugt.

Mikroskopisch ist der Transport durch die Dynamik von Elektron-Loch-Paaren induziert. Ein Puls, der kurz im Vergleich zu den Streuraten ist, regt eine kohärente Superposition von Zuständen an, ein optisches Wellenpaket. Auf kurzen Zeitskalen sollte dies Wellenpaket den ballistischen (freien) Transport von Ladungsträgern im Halbleiter beschreiben. Auf längeren Skalen führt Streuung der Ladungsträger, z.B. an Phononen oder an Unordnungspotentialen zu einem Übergang zu einem diffusiven oder sogar subdiffusiven Regime.

Unterschieden werden muß zwischen der Anregung von Elektron-Loch-Paaren oberhalb der Bandkante und der Anregung von gebundenen Elektron-Loch-Paaren (z.B. 1s-Exzitonen). Für gebundene Paare wird die Relativbewegung beschrieben durch die wasserstoffartigen Eigenfunktionen der Schrödingergleichung mit Coulomb-Potential. Das elektromagnetische Feld koppelt an die Schwerpunktbewegung der Exzitonen, der Impulsübertrag wird durch den Wellenvektor des Lichts bestimmt. Bei freien Elektron-Loch-Paaren dagegen wird die Relativbewegung bestimmt durch den Energie-Übertrag auf das Paar, also durch den Spektralen Abstand der Anregung im Vergleich zur Bandkante. Erste experimentelle Untersuchungen zeigen hier einen diffusiven Transport auf Zeitskala von Nanosekunden [17]. Abweichungen vom diffusiven Transport sind theoretisch beschrieben [54] und mit beugungsbegrenzter Optik beobachtet worden [55].

Für gebundene Elektron-Loch-Paare dagegen läßt sich die kohärente Dynamik nicht auflösen. Das liegt daran, daß der vom Photon übertragene Impuls sehr klein ist. Bei einer Anregung der Quantenfilm-Exzitonen durch eine Mikroskopoptik ist typischerweise ein Durchmesser des Beleuchtungspunktes von $a = 1 \mu\text{m}$ zu erreichen. Die darin enthaltenen Transversalimpulse lassen sich qualitativ mit \hbar/a abschätzen.

Für $M = 0.5m_0$ beträgt die entsprechende Geschwindigkeit $\hbar/aM \approx 0.2\mu\text{m}/\text{ns}$, was einer Dynamik auf der Zeitskala von Nanosekunden entspricht.

Mit einer Nahfeldanregung ist eine Anregung, die um eine Größenordnung stärker fokussiert ist, möglich. Für einen Durchmesser von 50 nm erhält man eine Geschwindigkeit von $4\text{nm}/\text{ps}$, so daß sich die Form eines angeregten Wellenpaketes auf einer Pikosekundenskala verändert [54], in diesem Fall sollte für hochwertige Proben eine kohärente Dynamik beobachtbar sein.

Im allgemeinen muß die Streuung der Ladungsträger berücksichtigt werden. Besonders die Oberflächenrauigkeit des Quantenfilms führt zu einem effektiven Unordnungspotential für die exzitonische Polarisierung [56]. Mit obigen Parametern läßt sich die typische kinetische Energie der Exzitonen zu $\hbar^2/2Ma^2 \approx 0.03\text{meV}$ abschätzen. Das deutet an, daß schon bei sehr geringer Unordnung die Dynamik der Polarisierung beeinflusst wird.

In diesem Abschnitt wird die Nahfeldoptische Anregung eines exzitonischen Wellenpaketes diskutiert in der in Abb. 3.1 gezeigten Konfiguration diskutiert. Hier jedoch für den zweidimensionalen Fall einer streifenförmigen Apertur, die sich in x -Richtung unendlich erstreckt und in y -Richtung eine Breite von 60nm hat. Der Abstand von Halbleiteroberfläche zum Metall ist $d_i = 0$ gewählt, was einer direkten Bedampfung der Probe entspricht. In dieser Geometrie sind zwei unabhängige lineare Polarisierungen möglich. Bei externer Anregung mit Licht, das in Richtung des Spalts (x -Richtung) polarisiert ist, sind auch die Streufelder in Richtung der x -Achse polarisiert (TE). Bei Anregung mit Licht, das in y -Richtung polarisiert ist, entstehen unter der Apertur auch elektrische Feldkomponenten, die in die Richtung der z -Achse zeigen. In diesem Fall steht das Magnetfeld senkrecht zur z -Achse (TM). Die Anregung mit zirkular polarisiertem Licht ist nicht sinnvoll, da die Apertur aufgrund ihrer Asymmetrie TE- und TM-Moden unterschiedlich transmittiert und damit die zirkularen Eigenschaften des einfallenden Lichts zerstört.

3.7.1 Polaritonen

In diesem Abschnitt werden die Eigenschaften von Exziton-Polaritonen untersucht und ihre Dispersionsrelation formuliert. Formal kann die Diskussion an Abschnitt 3.4 angeschlossen werden, in dem die Anregung von Eigenzuständen ψ_μ der Bewegungs-

gleichung (2.34) für die Interbandpolarisation $P_{1s}^{vc}(\mathbf{R}, t)$ diskutiert wurde. In einem idealen Quantenfilm sind die Eigenzustände der Bewegungsgleichung ebene Wellen, die durch ihren Transversalimpuls $\mu = \mathbf{Q}$ charakterisiert werden. In Analogie zu der Diskussion in Abschnitt 3.4 führt die Wechselwirkung mit dem elektromagnetischen Feld zu einer Selbstwechselwirkung Σ , die die Lebensdauer und die Resonanzfrequenz der Exzitonen modifiziert. Im Unterschied zur Diskussion von lokalisierten Zuständen führt die Kopplung an das elektromagnetische Feld jedoch nicht zu einer Kopplung der Exzitonzustände untereinander. Dies macht das Konzept gekoppelter Moden von elektromagnetischem Feld und Exziton, dem Polariton, sinnvoll. Die Selbstwechselwirkung Σ , wie sie in Abschnitt 3.4 definiert wurde, kann demnach als die Abweichung der Dispersion des Polaritons von der des Exzitons interpretiert werden.

Die Bewegungsgleichung für die Polarisation in der Impulsdarstellung ist in Gl. (2.32) abgeleitet worden. Aus den Maxwell'schen Gleichungen erhält man die Wellengleichung für das elektromagnetische Feld:

$$(\partial_z^2 + \kappa^2)\mathbf{E} - (i\mathbf{Q} + \mathbf{e}_z\partial_z)(i\mathbf{Q} + \mathbf{e}_z\partial_z) \cdot \mathbf{E} = -4\pi k_0^2 \mathbf{P}, \quad (3.46)$$

wobei $k_0 = \omega/c_0$ den Wellenvektor im Vakuum bezeichnet, \mathbf{Q} die Komponente in der Ebene des Quantenfilms und $\kappa = \sqrt{n^2 k_0^2 - Q^2}$ die z -Komponente des Wellenvektors. $n = \sqrt{\epsilon}$ ist der Hintergrundbrechungsindex, der die nichtresonante Polarisation im Halbleiter repräsentiert. Betrachten wir TE und TM polarisierte Moden, so stehen für die TE Anregung die Polarisation und auch das elektrische Feld immer senkrecht auf ihren Gradienten. Diese Felder sind also quellenfrei, und der zweite Term auf der linken Seite von Gl. 3.46 verschwindet.

$$(\partial_z^2 + \kappa^2)\mathbf{E}^{TE} = -4\pi k_0^2 \mathbf{P}. \quad (3.47)$$

Bei TM Anregung ergibt sich aus dem Coulombschen Gesetz für einen räumlich konstanten Brechungsindex:

$$\nabla \cdot \mathbf{E}^{TM} = -\frac{4\pi}{n^2} \nabla \cdot \mathbf{P}. \quad (3.48)$$

Einsetzen von Gl. (3.48) in Gl. (3.46) ergibt für die TM Moden:

$$\begin{aligned} (\partial_z^2 + \kappa^2)\mathbf{E}^{TM} &= -\frac{4\pi}{n^2}(\kappa^2 \mathbf{P} + \partial_z^2(\mathbf{P} \cdot \mathbf{e}_z)\mathbf{e}_z \\ &+ i(\mathbf{Q} \cdot \partial_z \mathbf{P})\mathbf{e}_z + i\mathbf{Q}\partial_z(\mathbf{P} \cdot \mathbf{e}_z)) \end{aligned} \quad (3.49)$$

Im folgenden betrachten wir den Fall, daß das Dipolmatrixelement keine z -Komponente hat, wie es z.B. für die Schwerlochübergänge beim GaAs Quantenfilm der Fall ist. Dann hat die Polarisation keine Komponente in z -Richtung ($\mathbf{P} \cdot \mathbf{e}_z = 0$).

Die Lösungen der Wellengleichungen (3.47) und (3.49) können gegeben werden durch:

$$\mathbf{E}(\mathbf{Q}, z, \omega) = \frac{1}{2i\kappa} \int dz' e^{-i\kappa(z-z')} \mathbf{f}(z') \quad (3.50)$$

mit der Inhomogenität $\mathbf{f}(z)$. Die Lösung für die Komponenten in der Ebene des Quantenfilms sind für TE und TM Moden gegeben durch:

$$E^{TE}(Q, z, \omega) = 2\pi i \frac{k_0^2}{\kappa} e^{i\kappa|z|} P(Q, \omega) \quad (3.51)$$

$$E^{TM}(Q, z, \omega) = 2\pi i \frac{\kappa}{n^2} e^{i\kappa|z|} P(Q, \omega) \quad (3.52)$$

Für $Q > nk_0$ ($\kappa^2 < 0$) wird die z -Komponente des Wellenvektors κ imaginär, und E^{TE} und E^{TM} nehmen exponentiell in z -Richtung ab. Diese Moden sind evaneszent und transportieren keine Energie senkrecht in Richtung der z -Achse. Gleichungen (3.51) und (3.52) zeigen, daß die Komponente \mathbf{Q} der Polarisation nur an die entsprechende Komponente des elektrischen Feldes koppelt. Dies ist eine Folge der Translationsinvarianz des Systems in transversaler Richtung: Exzitonen mit Transversalimpuls \mathbf{Q} koppeln nur an Photonen mit dem gleichen Impuls.

Einsetzen der Ausdrücke für das elektrische Feld (3.51) und (3.52) am Ort des Quantenfilms ($z = 0$) in Gl. (2.34) ergibt die Dispersionsrelation für die gekoppelte transversale Dynamik von Polarisation und elektromagnetischem Feld: das 2d-Exziton-Polariton [57]. Vernachlässigt man die nichtresonanten Anteile von P^{vc} , ist die Dispersionsrelation des Polaritons gegeben durch:

$$\omega^{TE} = \omega_{1s} + \frac{\hbar Q^2}{2M} - i\Gamma \frac{nk_0}{\kappa} \quad (3.53)$$

$$\omega^{TM} = \omega_{1s} + \frac{\hbar Q^2}{2M} - i\Gamma \frac{\kappa}{nk_0}. \quad (3.54)$$

wobei $\omega_{1s} = \varepsilon_{1s}/\hbar$. $\Gamma = 2\pi k_0^2 |d_{vc}\varphi(0)|^2/n$ bezeichnet die strahlende Linienbreite des Quantenfilmes. Abb. 3.15 zeigt den Real- und den Imaginärteil der Dispersionsrelation, d.h. die Energie und Linienbreite der Polaritonen. Für Exzitonen (ohne die Wechselwirkung über das elektromagnetische Feld) ist die Energie durch die Schwerpunktbewegung bestimmt, d.h. parabelförmig im Impulsraum. Der Imaginärteil verschwindet, da ohne weitere Wechselwirkung kein Zerfall möglich ist. Wird die

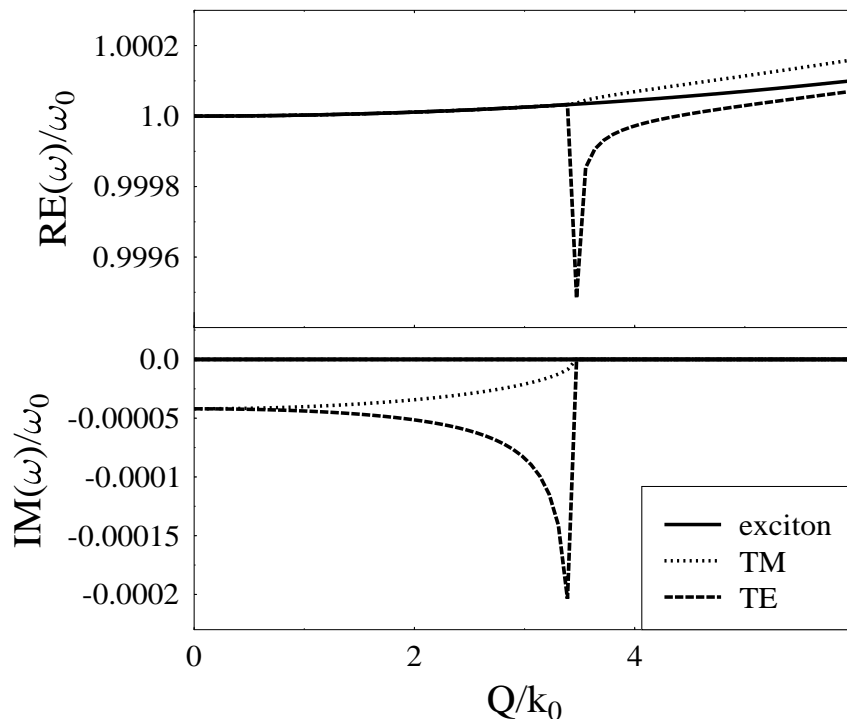


Abbildung 3.15: Real- und Imaginärteil der Dispersionsrelation von Exziton-Polaritonen in einem Quantenfilm. Das Hintergrundmaterial ist unendlich ausge dehnt.

Wechselwirkung mit dem elektrischen Feld berücksichtigt, sind die Polaritonen mit $Q < nk_0$ gedämpft (endlicher Imaginärteil der Dispersion), wohingegen die Moden mit $Q > nk_0$ nicht strahlend zerfallen. Das liegt daran, daß Exzitonen mit einem Moment $Q > nk_0$ an evaneszente Moden des elektromagnetischen Feldes koppeln. Diese Moden transportieren aber keine Energie senkrecht zur Quantenfilmebene und können somit nicht zum Zerfall beitragen. Für $Q > nk_0$ führt das elektromagnetische Feld lediglich zu einer Verschiebung der Resonanzenergie. Für $Q = 0$ fallen die Dispersionskurven von TE und TM Moden zusammen, der Imaginärteil der Dispersion entspricht hier der strahlenden Linienbreite des Quantenfilmes bei einer Anregung mit einer ebenen Welle, die sich in z -Richtung ausbreitet. Aufgrund der Symmetrie ist die Polarisationsrichtung in diesem Fall unerheblich. Der strahlende Zerfall führt zu Verbreiterung der Resonanz, die für GaAs $\Gamma \approx 1/10ps$ beträgt (Parameter in Abs. 3.1). Die Dispersionskurve für TM Moden ist relativ glatt, wohingegen die

TE Moden eine Resonanz bei $Q \approx nk_0$ haben. Da die Gruppengeschwindigkeit die Ableitung der Dispersion nach dem Wellenvektor ist, deutet dies eine sich schnell ausbreitende Mode an, die allerdings auch stark gedämpft ist.

3.7.2 Der Quantenfilm unter einer Oberfläche

In diesem Abschnitt wird der Einfluß einer Oberfläche auf die Polarisation im Quantenfilm diskutiert. Wie im Fall der lokalisierten Exzitonen (Abs. 3.4) führt die Oberfläche zu einer modifizierten Lebensdauer und Resonanz der ausgedehnten Exzitonzustände. Das elektrische Feld beim Quantenfilm ist die Summe aus dem Feld ohne Grenzfläche (Gl. (3.51) bei $z = 0$) und dem reflektierten Feld

$$E_B = E(1 + r e^{i\kappa(2\Delta z)}). \quad (3.55)$$

Δz bezeichnet hier den Abstand zwischen Quantenfilm und Oberfläche und r bezeichnet den Reflexionskoeffizienten an der Grenzfläche. Die Reflexion hängt ab von der Komponente des Wellenvektors in der Quantenfilmebene Q und von der Polarisationsrichtung und ist gegeben durch die Fresnelschen Formeln:

$$r^{TE} = \frac{\kappa - \kappa_b}{\kappa + \kappa_b} \quad (3.56)$$

$$r^{TM} = \frac{n_b \kappa - n \kappa_b}{n_b \kappa + n \kappa_b}. \quad (3.57)$$

In diesen Gleichungen bezeichnen n und n_b die (Hintergrund-) Brechungsindizes von Halbleiter und angrenzendem Medium und κ und $\kappa_b = \sqrt{n_b^2 k_0^2 - Q^2}$ sind die entsprechenden z -Komponenten des Wellenvektors. Abb. 3.16 zeigt die Dispersionsrelation für die TM Moden für eine Halbleiter-Vakuum Grenzfläche ($n_b = 1$) und für eine Metallbeschichtung bei $\Delta z = 30nm$. Das Metall ist hier zum Vergleich ideal mit $n_b = \infty$ beschrieben, als auch mit Aluminium Parametern ($n_b = 2.5 + 8.5i$). Bei einer Halbleiter-Vakuum Grenzfläche gibt es eine ungedämpfte Mode, die sich schnell ausbreitet bei $Q \approx k_0$. Diese Mode entsteht durch die Totalreflexion des elektromagnetischen Feldes bei $Q > k_0$. Bei $r \exp(i\kappa 2\Delta z) = -1$ ist die Interferenz von reflektiertem und unreflektiertem Feld am Quantenfilm destruktiv, so daß die Mode nicht gedämpft ist.

Bei einer idealen Metallbeschichtung ($r = -1$) ist die Dämpfung der Moden ähnlich zum freien Fall (ohne Grenzfläche). Allerdings ist für alle Moden (außer $Q \approx 0$) die

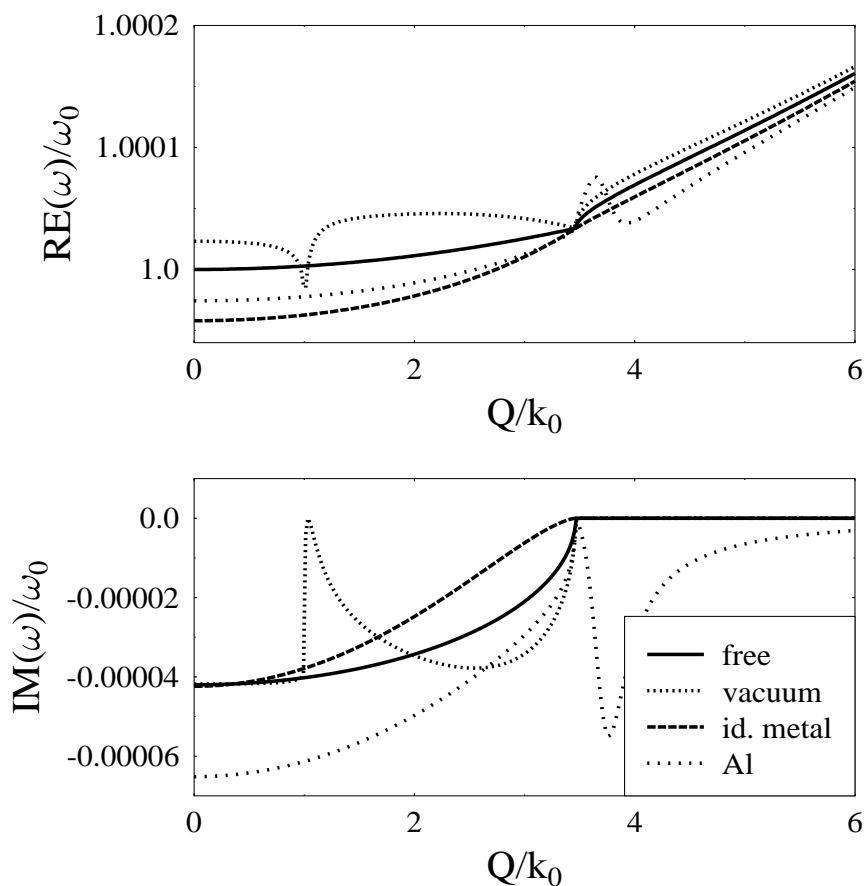


Abbildung 3.16: Real- und Imaginärteil der Dispersionsrelation des Exziton-Polariton (TM), falls sich der Quantenfilm 30 nm vor einer Grenzfläche befindet.

Dämpfung vor der Metallfläche etwas schwächer. Dies kann erklärt werden dadurch, daß am Metall das elektrische Feld verschwindet ($E = 0$) und so die Wechselwirkung der Exzitonen mit dem elektrischen Feld abgeschwächt wird. Für Aluminium dagegen ergibt sich eine stärkere Dämpfung der Polarisation als im Fall ohne Grenzfläche. Hier kann das elektrische Feld in das Metall eindringen und wird absorbiert. Dies führt zu einem schnelleren Zerfall der Polarisation. Insbesondere sind auch die Moden mit ($Q > nk_0$) gedämpft. Dieses Ergebnis für die freien Exzitonen ist ganz analog zu dem Ergebnis für die gebundenen Exzitonen in Abs. 3.4.3.

Beim Realteil gibt es einen wichtigen Unterschied zwischen den Dispersionsrelationen ohne Grenzfläche und mit Grenzfläche (Abb. 3.15). Im ersterem Fall ist die

Resonanz für $Q < nk_0$ nicht verschoben und entspricht der parabolischen Dispersion für das wechselwirkungsfreie Exziton. Im zweiten Fall ist auch für $Q < nk_0$ die Resonanz verschoben, im speziellen auch bei $Q = 0$, was auch in Fernfeldoptik zu beobachten ist. Bei $Q = 0$ ist die Verschiebung bestimmt durch den Imaginärteil des reflektierten Feldes $-\Gamma(\mathfrak{S}(r \exp(i\kappa(2\Delta z)))$, was von der Größenordnung der strahlenden Linienbreite $\hbar\Gamma = 50\mu eV$ ist.

Insgesamt hängen die hier diskutierten Dispersionsrelationen aufgrund des Phasenfaktors $\exp(i\kappa(2\Delta z))$ natürlich stark vom Abstand zwischen Quantenfilm und Oberfläche ab, deshalb können die hier gezeigten Kurven nur einen repräsentativen Überblick über die Effekte geben.

3.7.3 Räumlich-zeitliche Dynamik eines exzitonischen Wellenpaketes

In diesem Abschnitt wird die Dynamik eines Wellenpaketes, das durch eine schmale Apertur angeregt wird, untersucht. Ein Wellenpaket wird durch die Superposition von verschiedenen Zuständen (\mathbf{Q}, ω) erzeugt. Diese Superposition wird durch die Anregung mit einem kurzen optischen Puls in der Nahfeldkonfiguration erreicht. Die folgenden Ergebnisse sind numerisch durch die Integration der Maxwell'schen Gleichungen und der Materialgleichungen bestimmt worden (vgl. Anhang B). Diskutiert wird die zweidimensionale Konfiguration (Abb. 3.1), wobei sich das Metall (hier ideal modelliert) direkt auf der Oberfläche befindet. Angeregt ist mit einem kurzen Laserpuls (100 fs, TM), der spektral an der Resonanz des Schwerlochexzitons zentriert ist.

Abb. 3.17 zeigt die Dynamik der exzitonischen Dichte $n_X(y) = |P_{1s}^{\nu c}(y)|^2$ (vgl. 2.41) für verschiedene Zeiten nach der Anregung. Die anfänglich angeregte Dichte ($t = 2$ ps) entspricht der Intensitätsverteilung des anregenden Feldes unter der Apertur (vgl. Nebenbild in Abb. 3.17), die Dichte hat ein Maximum unter der Apertur. Anfänglich zerfällt die Dichte sehr stark, es bilden sich zwei Maxima die sich aus dem Fokus der Apertur herausbewegen. Verstanden werden kann diese Dynamik mit Blick auf die oben diskutierte Dispersionsrelation des Polaritons. Durch die Nahfeldanregung wird ein breites Spektrum von Polaritonen angeregt, die Breite im Wellenvektorraum entspricht in etwa dem inversen Aperturdurchmesser. Die

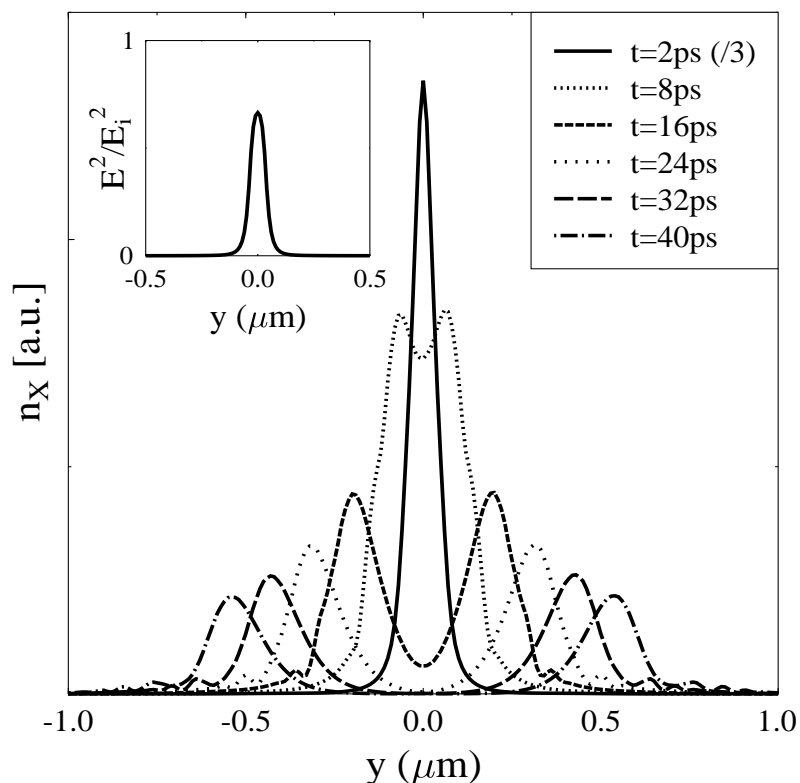


Abbildung 3.17: Räumlich-zeitliche Dynamik der Exzitonendichte nach einer Anregung durch die Apertur mit einem 100 fs Puls. Das Nebenbild zeigt die Intensität des elektrischen Feldes am Quantenfilm bei resonanter cw-Anregung.

Anteile der exzitonischen Polarisation mit $Q < nk_0$ zerfallen auf einer Zeitskala, die durch die strahlende Lebensdauer bestimmt ist. Für $Q > nk_0$ kann die Polarisation nicht zerfallen und zurück bleibt eine Verteilung, die um $Q \approx \pm nk_0$ ihre Maxima hat. Diese beiden Maxima führen zu zwei Maxima der Dichte, die sich mit einer Gruppengeschwindigkeit $v_g \approx \hbar nk_0/M = 6\text{nm/ps}$ bewegen.

Um ein Wellenpaket in dieser Form zu erzeugen, ist es notwendig daß durch den einfallenden Lichtpuls Exzitonen mit $Q > nk_0$ erzeugt werden. Dies ist mit einer Fernfeldanregung nicht möglich, d.h. bei dem hier diskutierten Wellenpaket handelt es sich um einen Nahfeldeffekt.

3.7.4 Einfluß von Unordnung

Reale Quantenfilme enthalten immer eine gewisse Unordnung, die durch Fluktuationen in der Legierungszusammensetzung oder durch Oberflächenrauigkeit zustande kommt. Der Einfluß dieser zusätzlichen Potentiale auf die Dynamik des exzitonen Wellenpaketes wird in diesem Abschnitt diskutiert. Qualitativ sind signifikante Einflüsse zu erwarten, wenn die Stärke der Unordnung im Bereich der kinetischen Energie der Exzitonen liegt. Da die Dispersionsrelation der Exzitonen sehr flach ist, sollte man Effekte selbst für sehr hochwertige Proben erwarten. Bei einem typischen Impuls von $\hbar nk_0$ ist die kinetische Energie durch $50\mu eV$ gegeben, liegt also im Bereich der strahlenden Linienbreite. Dieses Argument zeigt, daß die Resultate, die für den idealen Quantenfilm präsentiert wurden, nur in Quantenfilmen, die dominant strahlungsverbreitert sind, erwartet werden können.

Wie in Abs. (2.4) diskutiert, wird die Unordnung durch ein effektives Potential $V(\mathbf{R})$ (Gl. 2.35) beschrieben, das die Mittelung der mikroskopischen Unordnung durch das Exziton enthält. Im folgenden wird, um die Symmetrie in Richtung des Spaltes zu erhalten, angenommen, daß die Unordnung auf die y -Richtung beschränkt ist (vgl. Abb. 3.1). Für verspannte Strukturen kann dies eine vernünftige Annahme sein [6]. Es sei angenommen, daß die Unordnung einer Gaußschen Verteilung mit einer Korrelationslänge von $8nm$ genügt. Die Breite der Verteilung $\hbar\Delta$ wird im Bereich der kinetischen Energie des Exzitons variiert. Die Unordnung wird durch Gl. (2.34) mit dem Potential (2.35) exakt beschrieben; im Unterschied zur Modellierung durch eine Ratengleichung ist insbesondere auch die mögliche Lokalisierung von Exzitonen beinhaltet.

Abb. 3.18 zeigt die Verteilung der Exzitonendichte 20 ps nach der Anregung für verschiedene Stärken der Unordnung. Selbst für schwache Unordnung ($\Delta = 3\Gamma$, wobei Γ die strahlende Linienbreite ist) ist die Exzitonendichte signifikant vom lokalen Potential beeinflusst. Die Ausdehnung des Wellenpaketes entspricht allerdings noch näherungsweise dem idealen geordneten Fall. Für stärkere Unordnung $\Delta = 10\Gamma$ (0.5 meV) ist die Ausbreitung des Wellenpaketes deutlich geringer, ein größerer Teil der Exzitonen bleibt in diesem Fall unter der Apertur. Die Dichte weist starke räumliche Schwankungen auf, die von der speziellen (zufälligen) Wahl des Unordnungspotentials abhängen. Hier wurde nicht über verschiedene Unordnungen gemittelt. Dies entspricht dem nahfeldoptischen Experiment, bei dem auch nur eine kleine Fläche

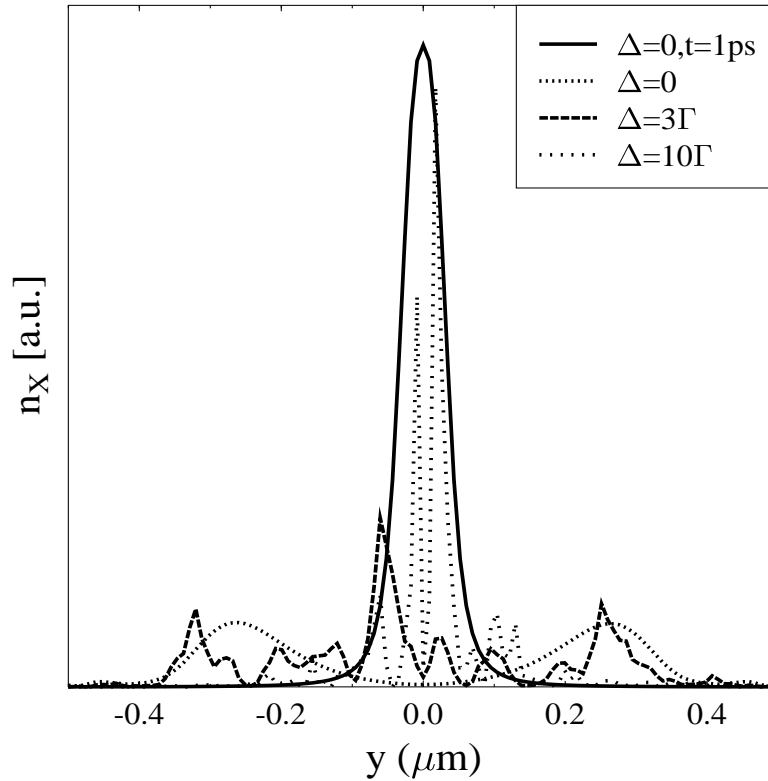


Abbildung 3.18: Die Exzitonendichte 20 ps nach der Anregung mit einem kurzen Puls für unterschiedliche Stärke der Unordnung Δ . Die durchgezogene Linie zeigt als Referenz die Exzitonendichte kurz nach der Anregung ($t=1$ ps) in einem geordneten Quantenfilm.

der Probe ausgeleuchtet wird und das Spektrum von der zufälligen Realisierung der Unordnung abhängt. Dies ist ein Unterschied zur Fernfeldanregung, bei der i. allg. zur Beschreibung der Spektren über verschiedene Realisierungen der Unordnung gemittelt wird, da eine große Fläche vom einfallenden Licht ausgeleuchtet wird.

Ein quantitatives Bild der Ausbreitung erhält man durch die Analyse der mittleren quadratischen Abweichung (Mean-Square-Displacement, MSD) der Verteilung:

$$\text{MSD} = \frac{1}{N(t)} \int dx n(x, t) x^2. \quad (3.58)$$

Für eine freie, ballistische Bewegung hat das MSD eine quadratische Abhängigkeit von der Zeit. Für diffusiven Transport ist die Abhängigkeit linear. Falls es zur

Lokalisierung der Exzitonen kommt, sollte das MSD schwächer anwachsen oder sogar konstant werden. In einem eindimensionalen System sollte jedes Wellenpaket nach genügend langer Zeit lokalisiert werden aufgrund der erhöhten Rückstreuungswahrscheinlichkeit (Anderson-Lokalisierung) [59]. Fig. 3.19 zeigt das MSD als Funktion

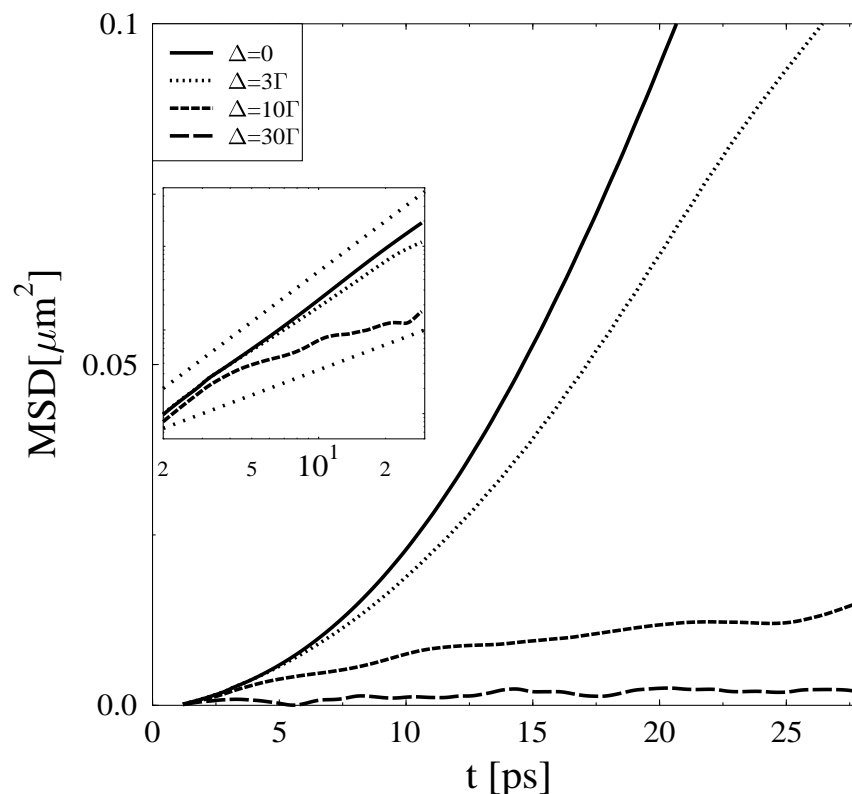


Abbildung 3.19: Zeitliche Entwicklung des MSD (Mean-Square-Displacement) nach einer Anregung mit einem kurzen Puls für unterschiedliche Stärke der Unordnung Δ . Der Anfangswert ($0.008 \mu\text{m}^2$) ist abgezogen. Das Nebenbild zeigt auf einer doppelt logarithmischen Skala den Übergang von linearer zu quadratischer Zeitabhängigkeit.

der Zeit für verschiedene Stärken des Unordnungsparameters Δ . Das Nebenbild zeigt die Kurven auf einem doppelt logarithmischen Maßstab, auf dem die ballistische Dynamik einer Gerade mit Steigung 2 und die diffusive Dynamik einer Gerade mit der Steigung 1 entspricht. Diese beiden Geraden sind zum Vergleich mit eingezeichnet (gepunktete Linien). Auf der Pikosekenskala, die hier untersucht wird, sind für verschiedene Stärken der Unordnung alle drei Regime zu beobachten. Im idealen

Fall für $\Delta = 0$ gibt es keine Unordnung, und das MSD hat eine rein quadratische Zeitabhängigkeit. Aber auch bei $\Delta = 3\Gamma$ ist die Dynamik näherungsweise ballistisch, erst für Zeiten um 10 ps nach dem Puls treten deutliche Abweichungen von der rein quadratischen Abhängigkeit auf. Allerdings kann auf dieser Zeitskala nicht von einem Übergang zur diffusiven Bewegung gesprochen werden. Bei einer Unordnung der Breite $\Delta = 10\Gamma$ ergibt sich nach ca. 4 ps ein Übergang von quadratischer zu linearer Zeitabhängigkeit des MSD also ein Übergang vom ballistischen zum diffusiven Regime. Zu späteren Zeiten ($t > 10$ ps) nimmt das MSD schwächer als linear zu, hier beginnt die Lokalisierung der Exzitonen eine Rolle zu spielen. Für größere Unordnung $\Delta = 30\Gamma$ kommt es auf der Pikosekundenzeitskala zur Lokalisierung der Exzitonen. Mit wachsender Unordnung nehmen natürlich auch die Fluktuationen auf den Kurven zu, die durch die spezielle Realisierung des Potentials bedingt sind.

3.7.5 Die optische Detektion des Wellenpaketes

In diesem Abschnitt wird diskutiert, wie sich die Dynamik der exzitonischen Dichte optisch detektieren läßt. Für die dreidimensionale Konfiguration ist in Abs. 3.3 das reflektierte Signal diskutiert worden. Es wird bestimmt durch die Anregung von elektrischem und magnetischem Dipol in der Apertur. Diese sind über die Transmissionsfunktion, Gl. (3.10), mit der Polarisation unter der Apertur verknüpft. Dominiert wird die Transmissionsfunktion von dem Beitrag t^{++} (vgl. Abb. 3.5), der die Anregung der m^+ -Komponente des magnetischen Moments durch die σ^+ -Komponente der Polarisation beschreibt. Diese Funktion hat ihr Maximum direkt unter der Apertur. Es ist deshalb anzunehmen, daß das reflektierte Signal von der Polarisation direkt unter der Apertur bestimmt wird. Dies läßt sich analog auch im zweidimensionalen Fall erwarten. Abb. 3.20 zeigt das Quadrat des magnetischen Momentes, das in der Apertur angeregt wird, als Funktion der Zeit. Es ist proportional zum reflektierten Signal entsprechend der Diskussion in Abs. 3.3. Zum Vergleich ist $P(Q=0)^2$ auch angegeben. Bei Anregung durch eine ebene Welle in Fernfeldkonfiguration ist $P(Q=0)^2$ proportional zur Intensität, die an einem Detektor registriert wird, der auf der z -Achse plaziert ist. $P(Q=0)^2$ zerfällt exponentiell mit der halben strahlenden Lebensdauer der Polarisation in Anwesenheit der metallischen Ebene, hier mit einer Zeitkonstante von $t = 5$ ps. Aus Abb. 3.20 ist ersichtlich, daß das reflektierte Signal schneller abklingt, es kann durch einen exponentiellen Zerfall mit

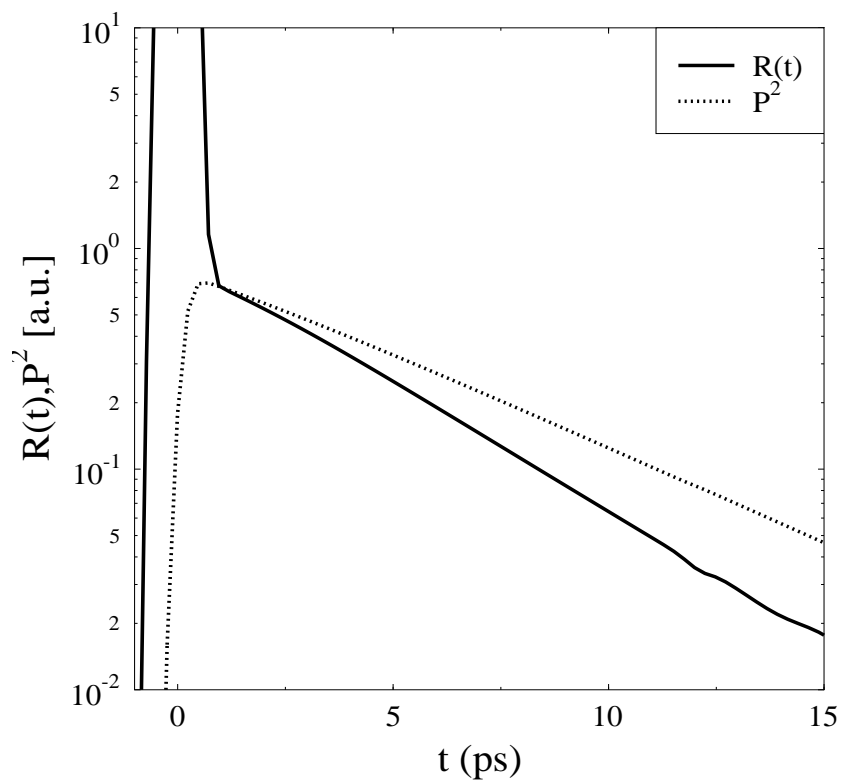


Abbildung 3.20: Zeitaufgelöstes reflektiertes Signal von einem Quantenfilm unter der Apertur. Zum Vergleich ist die Gesamtpolarisation $|P(Q=0)|^2$ gezeigt.

einer Zeitkonstante von $t = 3.8$ ps angenähert werden. Dieser schnellere Zerfall ist ein direkter Hinweis auf die Propagation der Exzitonen aus dem Fokus der Apertur und könnte zum Nachweis des Wellenpaketes genutzt werden.

Kapitel 4

Zusammenfassung

In dieser Arbeit sind verschiedene grundlegende Aspekte der Nahfeldspektroskopie von Halbleitern behandelt worden. Es wurde ein einfaches Modellsystem untersucht, das aus einer Apertur in einer idealen, unendlich dünnen metallischen Schicht über der Halbleiteroberfläche besteht. Berechnungen der elektrischen Feldverteilung haben gezeigt, daß sich bei dieser Konfiguration eine Intensitätsverteilung des Feldes ergibt, deren Ausdehnung durch die Apertur bestimmt ist und die deutlich kleiner ist als die Wellenlänge.

Neben einer hohen räumlichen Auflösung gibt es einige weitere Unterschiede zwischen Nah- und zur Fernfeldanregung: eine i. allg. komplexe elektrische Feldverteilung, in der verschiedene Polarisationskomponenten des Lichts vorliegen, starke Gradienten in der Feldverteilung und eine mögliche Wechselwirkung zwischen der Probe und den felderzeugenden Ladungen. Die Relevanz dieser Eigenschaften für die Spektroskopie von Halbleiterstrukturen ist an verschiedenen Beispielen diskutiert worden.

Es zeigt sich, daß sich Modifikationen der Auswahlregeln für die optischen Übergänge ergeben. Dies liegt einerseits an der Streuung der Polarisation durch Nahfeldsonde, was bei anisotropen Materialeigenschaften die Anregung des Materials modifiziert. Dies ist am Beispiel der Schwer- und Leichtlochübergänge in einem Quantenfilm gezeigt worden. Unter der Apertur werden Leichtlochübergänge im Vergleich zu den Schwerlochübergängen verstärkt angeregt, weil sie an Komponenten des elektrischen Feldes koppeln, die unter der Apertur neu entstehen.

Desweiteren unterscheidet sich das Nahfeld vom Fernfeld darin, daß größere Gradienten in der Feldverteilung auftreten können. Das Nahfeld variiert i. allg. auf einer Skala, die durch die Abmessungen der Nahfeldsonde vorgegeben ist, wohingegen das Fernfeld einer Quelle auf der Skala der Wellenlänge variiert. Bei einer Multipolentwicklung der Wechselwirkung zwischen Feldern und Halbleiter koppeln so höhere Momente stärker an das elektromagnetische Feld.

Es ist gezeigt worden, daß eine solche Multipolentwicklung auf zwei Ebenen stattfindet. Einmal auf der Skala der Elementarzelle, beim Übergang von mikroskopischen zu gemittelten Feldern und zum zweiten für eine mesoskopische Struktur, falls deren Ausdehnung klein gegen die Wellenlänge ist. Die erste Entwicklung kann zur modifizierten Anregung von dipolverbotenen Interbandübergängen führen, was am Beispiel der Bandstruktur von Cu_2O diskutiert worden ist. Hier ergibt sich unter der Apertur eine verstärkte Anregung der Quadrupolübergänge im Vergleich zu den dipolerlaubten Übergängen zweiter Ordnung.

Die Multipolentwicklung auf der Skala der mesoskopischen Struktur wurde für Quantenpunkte diskutiert. Hier zeigt sich, daß Übergänge, die dipolverboten sind (z. B. aufgrund der Parität), zum Signal beitragen können. Die Anregung dieser Übergänge ist besonders stark unter den Rändern der Apertur, wo die Ableitungen der Felder maximal werden.

Die Wechselwirkung mit der Nahfeldsonde kommt zustande durch die Rückstreuung eines Teils des Lichts, das von der Probe erzeugt wird. Es ist gezeigt worden, daß dies für Exzitonen, die in Quantenpunkten gebunden sind, zu Modifikationen in der Lebensdauer und in der Resonanzenergie führt.

Im Fall der freien Exzitonen in einem idealen Quantenfilm führt die Anregung durch die Apertur mit einem kurzen optischen Puls zur Ausbildung eines exzitonischen Wellenpaketes. Es kommt zu einem Transport der Polarisation aus dem Fokus der Apertur. Hier wurde der Einfluß von Unordnung (z. B. durch Oberflächenrauigkeit des Quantenfilms) untersucht. Es zeigt sich, daß es für Proben, die dominant strahlungsverbreitert sind, auf einer Pikosekundenskala zu ballistischem Transport kommt. Für stärkere Unordnung ist ein Übergang zu diffusivem Regime und auch zur Lokalisierung erkennbar.

Bei der Analyse von nahfeldoptischen Experimenten ist besonders die Beschreibung der Dynamik des elektromagnetischen Feldes aufwendiger als im Falle einer

optischen Anregung aus dem Fernfeld. Dies liegt an der i. allg. niedrigen Symmetrie der Nahfeldkonfiguration und daran, daß in diesem Bereich der Fokussierung des elektromagnetischen Feldes Standardnäherungen der Optik (z. B. die paraxiale Näherung [34]) nicht greifen. In dieser Arbeit werden FDTD (Finite-Difference Time-Domain) Verfahren eingesetzt, um die gekoppelte Dynamik von elektrischen Feldern und Halbleiterpolarisation zu beschreiben. Bei dieser Methode werden die Bewegungsgleichungen für die elektromagnetischen Felder und für die Polarisation in Ort und Zeit diskretisiert und integriert. Das Verfahren ist insbesondere für die Beschreibung von inhomogenen Systemen geeignet, aber auch die nichtlokalen und nichtlinearen optischen Eigenschaften können einbezogen werden. Da die Beschreibung insbesondere von dreidimensionalen Systemen aufwendig ist, können FDTD Rechnungen u. U. auch mit anderen Verfahren, die z. B. auf der Greenschen Funktion basieren, kombiniert werden für eine effiziente Beschreibung des Systems.

In dieser Arbeit wird ein einfaches Modellsystem untersucht, das aus einer Apertur in einer idealen, unendlich dünnen metallischen Schicht über der Halbleiteroberfläche besteht. Hier ist eine Erweiterung und Anpassung der Geometrie an die Experimente wünschenswert. Dabei ist auch eine differenziertere Modellierung der Eigenschaften des Metalls wichtig.

Eine andere Erweiterung ist die Hinzunahme von inkohärenten Prozessen wie der Streuung an Phononen. Hier ist besonders deren Einfluß auf die Kopplung und den Zerfall von gebundenen Exzitonen und der Einfluß auf den optischen Transport im Quantenfilm interessant.

Letztlich wäre angesichts der vielen Ergebnisse, die aus PL- oder PLE-Messungen gewonnen werden, auch eine Beschreibung der Kopplung von inkohärenten Prozessen an das elektromagnetische Feld wünschenswert. Dies liegt aber sicherlich jenseits einer semiklassischen Beschreibung und erfordert eine quantenmechanische Beschreibung des Lichts in der komplexen Nahfeldgeometrie.

Anhang A

Die Greensche Funktion des elektromagnetischen Feldes

A.1 Darstellung im homogenen System

In diesem Abschnitt werden einige Eigenschaften des elektromagnetischen Feldes und des zugehörigen Feldpropagators diskutiert. Im folgenden wird zuerst ein homogenes Medium betrachtet, danach wird die Diskussion auf geschichtete Strukturen erweitert. Nach einer Fouriertransformation in der Zeit erfüllt das elektrische Feld die Wellengleichung

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \nabla \nabla \cdot \mathbf{E} + n^2 k^2 \mathbf{E} = -\frac{4\pi\omega i}{c_0^2} \mathbf{J}, \quad (\text{A.1})$$

wobei $nk = \sqrt{\varepsilon} \frac{\omega}{c}$ die Wellenzahl im Material ist. Wichtig ist es, den vektoriellen Charakter der Gleichung zu beachten, insbesondere kann der Term $\nabla \nabla \cdot \mathbf{E}$ nicht vernachlässigt werden. In der Anwesenheit von Strom und Ladungen verschwindet $\nabla \cdot \mathbf{E}$ nicht; die Kopplung zwischen den Gleichungen ist wichtig für die Beschreibung des Nahfeldes.

Im allgemeinen ist eine Lösung der inhomogenen Wellengleichung A.1 für eine gegebene Stromverteilung $\mathbf{J}(\mathbf{r})$ die Summe aus einer speziellen Lösung, die im unendlichen hinreichend stark abfällt, und aus einer homogenen Lösung, die die Anregung des Systems durch eine externe Quelle (einen Laser) beschreibt. Definiert man die Greensche Funktion über

$$\left(\nabla^2 - \nabla \nabla \cdot + n^2 k^2\right) \hat{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \hat{\delta}(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), \quad (\text{A.2})$$

ergibt sich formal eine allgemeine Lösung der Gleichung A.1 durch:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) - \frac{4\pi\omega i}{c_0^2} \int \hat{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \mathbf{J}(\mathbf{r}') d\mathbf{r}', \quad (\text{A.3})$$

wobei \mathbf{E}_0 eine homogene Lösung der Wellengleichung A.1 bezeichnet. Zu einer Darstellung der Greenschen Funktion kann man über die Potentiale \mathbf{A} und ϕ gelangen. In der Wahl der Potentiale bleibt eine Eichfreiheit bestehen. Wählt man die Lorentzgleichung

$$\nabla \cdot \mathbf{A}^{LE} + \frac{1}{c} \frac{\partial \varepsilon \phi^{LE}}{\partial t} = 0, \quad (\text{A.4})$$

so ergibt sich für das Vektorpotential:

$$\Delta \mathbf{A}^{LE} + n^2 k^2 \mathbf{A}^{LE} = -\frac{4\pi}{c} \mathbf{J}, \quad (\text{A.5})$$

wobei \mathbf{A}^{LE} das Vektorpotential in der Lorentzgleichung bezeichnet. Jede Komponente von \mathbf{A}^{LE} erfüllt eine skalare Wellengleichung. Mit der Greenschen Funktion der skalaren Wellengleichung

$$g_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = -\frac{e^{ink|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}}{4\pi|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}, \quad (\text{A.6})$$

die die Gleichung

$$\Delta g_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}') + n^2 k^2 g_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \quad (\text{A.7})$$

erfüllt, ist das Vektorpotential gegeben durch:

$$\mathbf{A}^{LE}(\mathbf{r}) = -\frac{4\pi}{c} \int g_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \mathbf{J}(\mathbf{r}') d^3 r'. \quad (\text{A.8})$$

Dann sind das magnetische und das elektrische Feld bestimmt durch

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}^{LE} \quad (\text{A.9})$$

$$\mathbf{E} = -(\Delta + \nabla \cdot \nabla) \mathbf{A}^{LE}. \quad (\text{A.10})$$

Nehmen wir an, daß die Quellen auf ein Gebiet S beschränkt sind ($\mathbf{J}(\mathbf{r}) = 0$ für $\mathbf{r} \notin S$). Dann ergibt sich aus Gl. A.10, daß das elektrische Feld außerhalb von S in der Form von Gleichung A.3 durch eine Greensche Funktion dargestellt werden kann, die definiert ist durch:

$$\begin{aligned} G_{ij}(\mathbf{r} - \mathbf{r}', \omega) &= -\left(\delta_{ij} + \frac{1}{n^2 k^2} \partial_i \partial_j\right) \frac{\exp(inkR)}{4\pi R} \\ &= -\left(\left(1 + \frac{i}{nkR} - \frac{1}{(nkR)^2}\right) \delta_{ij} + \left(1 - \frac{3i}{nkR} + \frac{3}{(nkR)^2}\right) \mathbf{n}_i \mathbf{n}_j\right) \\ &\quad \times \frac{\exp(inkR)}{4\pi R} \end{aligned} \quad (\text{A.11})$$

mit den Abkürzungen $R = |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$ und $\mathbf{n} = (\mathbf{r} - \mathbf{r}')/R$. Im Bereich der Quellen ist ein Vertauschen von Differentiation und Integration in Gl. A.10 nicht möglich, da die Greensche Funktion eine Singularität besitzt für $\mathbf{r} = \mathbf{r}'$, deren führender Term

mit $1/|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^3$ wächst. Eine eingehendere Betrachtung zeigt [60], daß sich in diesem Fall folgende Darstellung des elektrischen Felds ergibt:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) - \frac{4\pi\omega i}{c_0^2} \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \int_{S \setminus S_\epsilon} \hat{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \mathbf{J}(\mathbf{r}') d^3 r' - \frac{4\pi i}{n^2 \omega} \hat{\mathbf{L}} \mathbf{J}(\mathbf{r}) . \quad (\text{A.12})$$

Die Integration läuft hier nur über ein Gebiet, das die Singularität ausschließt. Abhängig von der Form des Gebietes S_ϵ ist ein zusätzlicher Term zu berücksichtigen. Für ein kugel- oder ein würfelförmiges Gebiet hat der Tensor $\hat{\mathbf{L}}$ die Komponenten $L_{ij} = \delta_{ij}/3$.

Im Kapitel 3.4 ist das durch Gleichung A.12 vermittelte Funktional der Einfachheit halber immer in der Form von Gl. A.3 angegeben. Für den Fall, in dem das Feld innerhalb der Quellen berechnet wird, sollte man aber beachten, daß sich dahinter der in Gl. A.12 beschriebene Grenzübergang verbirgt.

Um diesen Umstand noch weiter zu beleuchten, sei im folgenden das elektrische Feld in seinen transversalen und longitudinalen Anteil zerlegt. Führt man die Coulombbeziehung für die Potentiale ein

$$\nabla \cdot \mathbf{A}^{CE} = 0 , \quad (\text{A.13})$$

so erhält man eine einfache Darstellung von transversalem und longitudinalem Feld durch die Potentiale:

$$\mathbf{E}^t = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}^{CE}}{\partial t} \quad (\text{A.14})$$

$$\mathbf{E}^l = -\nabla \phi . \quad (\text{A.15})$$

Das Skalarpotential in der Coulombbeziehung erfüllt die Coulombgleichung, so daß das longitudinale elektrische Feld gegeben ist durch:

$$\mathbf{E}_l(\mathbf{r}) = \frac{i}{\epsilon \omega} \nabla \nabla \cdot \int \frac{\mathbf{J}(\mathbf{r}')}{\mathbf{r} - \mathbf{r}'} d^3 r' = \frac{4\pi}{i\epsilon \omega} \mathbf{J}_l(\mathbf{r}) . \quad (\text{A.16})$$

Da die Summe aus transversalem und longitudinalem Feld das gesamte Feld ergibt, ist das transversale elektrische Feld gegeben durch:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) - \frac{4\pi\omega i}{c_0^2} \int_S \hat{\mathbf{G}}^t(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \mathbf{J}(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' \quad (\text{A.17})$$

mit dem transversalem Propagator:

$$\begin{aligned} G_{ij}^t(\mathbf{r} - \mathbf{r}') &= -\delta_{ij} \frac{\exp(ink|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|)}{4\pi|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \\ &\quad - \frac{1}{n^2 k^2} \partial_i \partial_j \frac{\exp(ink|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|) - 1}{4\pi|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} . \end{aligned} \quad (\text{A.18})$$

Man sieht, daß der führende Term in der Singularität der Greenschen Funktion zum longitudinalen Teil des Feldes gehört. Der physikalische Hintergrund der Darstellung

ist, daß ein kleines Objekt im allgemeinen eine anisotrope (quasistatische) Polarisierbarkeit besitzt, die auch im Grenzfall eines kleinen Volumens nicht nur vom Volumen des Objektes abhängt, sondern auch von dessen Form.

In der Greenschen Funktion für das longitudinale Feld (Gl. A.16) kommt kein Phasenfaktor vor, die Greensche Funktion ist reell. Darum (vgl. Diskussion in Abs. 3.4) trägt die Wechselwirkung des strahlenden Dipols mit diesem Teil des Feldes nicht zum Zerfall bei, sondern führt zu einer Verschiebung der Resonanz. Der Zerfall der Polarisation ist allein durch den transversalen Teil des Feldes bestimmt. Bei einer Entwicklung des transversalen Teils der Greenschen Funktion um $r = 0$ ergibt sich in führender Ordnung für den Imaginärteil:

$$\Im(G_{ij}^t) = -\frac{ink}{6\pi}\delta_{ij} . \quad (\text{A.19})$$

Dieser Ausdruck führt zu der in Abs. 3.4 angegebenen Formel für die Lebensdauer von gebundenen Exzitonen, deren Ausdehnung klein gegen die Wellenlänge ist (Gl. 3.26).

A.2 Darstellung der Greenschen Funktion in geschichteten Strukturen

Im folgenden betrachten wir den Fall eines Mediums, das aus verschiedenen Schichten mit unterschiedlichen Brechungsindizes aufgebaut ist. Der Fall zweier angrenzender Medien, der in Abs. 3.4.3 diskutiert wird, ist ein Spezialfall hiervon. In diesem Fall gibt es eine ausgezeichnete Richtung senkrecht zu den Schichten, die im folgenden als z -Achse gewählt wird. In den Schichtebenen ist das System homogen, das macht eine Fourierentwicklung der Greenschen Funktion in der Variablen x und y sinnvoll. Um den vektoriellen Charakter der Felder zu beschreiben, ist eine Entwicklung nach vektorwertigen Eigenfunktionen nötig. Sie lassen sich aus Lösungen der skalaren Wellengleichung erhalten. Die Funktionen $\psi_{\mathbf{k}}$, definiert durch

$$\psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \mathbf{e}^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} , \quad (\text{A.20})$$

sind Lösungen der homogenen skalaren Wellengleichung ($k = \frac{\omega}{c}$). Dann läßt sich zeigen, daß die Felder \mathbf{M} und \mathbf{N} , definiert durch

$$\begin{aligned} \mathbf{M}_{\mathbf{k}} &= \nabla \times (\psi_{\mathbf{k}} \mathbf{e}_z) \\ \mathbf{N}_{\mathbf{k}} &= \frac{1}{nk} \nabla \times \nabla \times (\psi_{\mathbf{k}} \mathbf{e}_z) , \end{aligned} \quad (\text{A.21})$$

Lösungen der homogenen Wellengleichung für das elektromagnetische Feld sind. Bezeichne \mathbf{Q} die Projektion von \mathbf{k} auf die Ebene und κ die Komponente in Richtung der z -Achse, so ergibt sich:

$$\begin{aligned} \mathbf{M}_{\mathbf{k}} &= i\mathbf{Q} \times \mathbf{e}_z \psi_{\mathbf{k}} \\ \mathbf{N}_{\mathbf{k}} &= \frac{1}{nk} (Q^2 \kappa \mathbf{e}_z - \kappa^2 \mathbf{Q}) \psi_{\mathbf{k}} . \end{aligned} \quad (\text{A.22})$$

Die Felder $\mathbf{M}_{\mathbf{k}}$ stehen senkrecht auf der z -Achse und werden als TE-Moden bezeichnet. Für die Felder $\mathbf{N}_{\mathbf{k}}$ steht $\nabla \times \mathbf{N}_{\mathbf{k}}$ senkrecht auf der z -Achse, sie werden als TM-Moden bezeichnet. Die Felder sind orthogonal in folgendem Sinn:

$$\begin{aligned} \int \mathbf{M}_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{N}_{\mathbf{k}'}^*(\mathbf{r}) d^3r &= 0 \\ \int \mathbf{M}_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{M}_{\mathbf{k}'}^*(\mathbf{r}) d^3r &= (2\pi)^3 n^2 k^2 \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \\ \int \mathbf{N}_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{N}_{\mathbf{k}'}^*(\mathbf{r}) d^3r &= (2\pi)^3 n^2 k^2 \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}') . \end{aligned} \quad (\text{A.23})$$

Die Greensche Funktion des elektromagnetischen Feldes läßt sich nach TE- und TM-Moden entwickeln [44], so daß sich folgende Darstellung ergibt:

$$\begin{aligned} \hat{G}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') &= -\frac{1}{k^2} \mathbf{e}_z \otimes \mathbf{e}_z \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \\ &+ \int \frac{i}{8\pi\kappa Q^2} ((\mathbf{Q} \times \mathbf{e}_z) \otimes (\mathbf{Q} \times \mathbf{e}_z)) e^{i\mathbf{Q}\mathbf{r}} e^{i\kappa z} \\ &+ \frac{1}{n^2 k^2} (Q^2 \kappa \mathbf{e}_z - \kappa^2 \mathbf{Q}) \otimes (Q^2 \kappa \mathbf{e}_z - \kappa^2 \mathbf{Q}) e^{i\mathbf{Q}\mathbf{r}} e^{i\kappa z} d^2Q , \end{aligned} \quad (\text{A.24})$$

wobei κ gegeben ist durch $\kappa = \sqrt{n^2 k^2 - Q^2}$. Falls $Q^2 > n^2 k^2$ wird die Komponente des Wellenvektors, die die Propagation in Richtung der z -Achse beschreibt imaginär. Damit nimmt das Feld in dieser Richtung exponentiell ab. Diese Moden heißen evaneszent. Sie können durch eine lokalisierte Quelle erzeugt werden oder an Grenzflächen beim Übergang von einem optisch dichteren zu einem optisch dünneren Medium entstehen.

Um von der Beschreibung des homogenen Materials zur geschichteten Struktur zu gelangen, ist die Reflexion und Transmission der TE- und TM-Moden an den Grenzflächen zu berücksichtigen. Die Reflexions- und Transmissionskoeffizienten ergeben sich dabei aus den üblichen Randbedingungen an das elektromagnetische Feld an einer Grenzfläche.

Betrachten wir den Fall einer einzelnen Grenzschicht zwischen zwei Medien unterschiedlicher Dielektrizität. Das Feld, das von einer Quelle in Medium I im gleichen Medium erzeugt wird, kann aufgeteilt werden in das Feld, das ohne das zweite Medium erzeugt würde, und in das reflektierte Feld. Dementsprechend ist die Greensche Funktion gegeben durch:

$$\hat{\mathbf{G}} = \hat{\mathbf{G}}^{hom} + \hat{\mathbf{G}}^{ref} , \quad (\text{A.25})$$

wobei $\hat{\mathbf{G}}^{hom}$ die im vorigen Abschnitt diskutierte Greensche Funktion des homogenen Systems ist und $\hat{\mathbf{G}}^{ref}$ die durch die Grenzschicht reflektierten Felder repräsentiert. $\hat{\mathbf{G}}^{ref}$ kann wie oben beschrieben aus einer Modenentwicklung von $\hat{\mathbf{G}}^{hom}$ gewonnen werden. Die Reflexionskoeffizienten für die Moden sind gegeben durch:

$$r^{TE}(\mathbf{Q}) = \frac{\kappa_1 - \kappa_2}{\kappa_1 + \kappa_2} \quad (\text{A.26})$$

$$r^{TM}(\mathbf{Q}) = \frac{n_2 \kappa_1 - n_1 \kappa_2}{n_2 \kappa_1 + n_1 \kappa_2} , \quad (\text{A.27})$$

wobei n_1 und n_2 die Brechungsindizes der Medien sind und $\kappa_i = \sqrt{n_i^2 k^2 - Q^2}$ die entsprechende z -Komponente des Wellenvektors ist.

A.3 Der quasistatische Grenzfall

Falls sich die Quelle sehr nah an der Grenzfläche befindet, so sind die Felder bestimmt durch die longitudinalen Anteile, die für kurze Abstände am stärksten divergieren. In diesem Fall kann man zur Berechnung des Feldes am Ort des Dipols alle transversalen Anteile vernachlässigen, und das Randwertproblem ist äquivalent zu einem elektrostatischen Randwertproblem. Dies läßt sich für beliebige Medien mit dielektrischen Konstanten ε_1 und ε_2 lösen [28]. Sei die Oberfläche, die die beiden Medien trennt, die Ebene, für die $z = 0$ gilt ($\varepsilon(z > 0) = \varepsilon_1, (\varepsilon(z < 0) = \varepsilon_2$). Die Greensche Funktion, die das Feld im Bereich $z > 0$ für eine Quelle im gleichen Bereich beschreibt, ist dann gegeben durch:

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{G}}(x - x', y - y', z, z') &= \hat{\mathbf{G}}^{hom}(x - x', y - y', z - z') \\ &- \frac{\varepsilon_2 - \varepsilon_1}{\varepsilon_2 + \varepsilon_1} \hat{\mathbf{G}}^{hom}(x - x', y - y', z + z') \\ &\cdot (\mathbf{e}_x \otimes \mathbf{e}_x + \mathbf{e}_y \otimes \mathbf{e}_y - \mathbf{e}_z \otimes \mathbf{e}_z) . \end{aligned} \quad (\text{A.28})$$

Der Vorfaktor $-(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)/(\varepsilon_2 + \varepsilon_1)$ ergibt sich dabei aus der Größe der Bildladung vor einer Grenzfläche [28]. Der letzte Term in Gl. A.28 ist von der Orientierung der Quelle abhängig. Aus der Anordnung der Bildladungen ergibt sich, daß für einen Dipol, der senkrecht zur Grenzfläche orientiert ist, der Bilddipol immer entgegengesetzt orientiert ist wie für einen parallel orientierten Dipol.

Die quasistatische Näherung ist allerdings nur dann zulässig wenn $2nkd \ll 1$. Für GaAs mit einem hohen Brechungsindex gilt $2nkd = 1$ für $d \approx 20$ nm. In vielen relevanten Fällen wird also die quasistatische Näherung nicht brauchbar sein.

Anhang B

Numerische Lösung der Maxwell-Gleichungen

Verschiedene numerische Verfahren werden zur Beschreibung der Dynamik der elektromagnetischen Felder in der Nahfeldoptik angewandt. Insbesondere sind die Methode der Momente (Method of Moments (MM) oder Boundary Elements Method (BEM)) [61], Berechnungen die auf einem Ansatz mit Greenschen Funktionen basieren [62], und Algorithmen, die die Gleichungen im Raum und Zeitbereich integrieren (Finite-Difference Time-Domain (FDTD)) [40], zu nennen. Beim BEM-Verfahren wird der Raum in homogene Bereiche unterteilt, und die Ströme werden durch fiktive Quellen an den Oberflächen berücksichtigt. Dies führt auf ein Gleichungssystem für die fiktiven Quellen, dessen Lösung N^3 Schritte erfordert. Mit diesem Verfahren sind z.B. Feldverteilungen in zugespitzten und metallbedampften Glasfasern berechnet worden [38]. Im Vergleich zu BEM hat der Zugang über Greensche Funktionen den Vorteil, daß eine Aufteilung in ein Referenz-System, für das die Greensche Funktion bekannt ist, und in die Abweichungen von der Referenz zerlegt werden kann. Ein Referenzsystem könnte z.B. eine geschichtete Struktur sein, für die die Darstellung der Greenschen Funktion im Anhang A diskutiert wurde. Eine Gleichung für das Feld muß dann nur im Bereich der Abweichungen vom Referenzsystem gelöst werden. Auch hier sind N^3 Schritte erforderlich.

Die Beschreibung von nichtlinearen und nichtlokalen Materialeigenschaften ist allerdings schwierig mit BEM und mit Darstellungen der Greenschen Funktionen im Ortsraum.

Daher sind die meisten der in dieser Arbeit dargestellten Resultate mit dem FDTD-Verfahren bestimmt worden. Bei dieser Methode werden die Maxwell-Gleichungen in Ort und Zeit diskretisiert. Um einen effizienten Algorithmus zu erhalten, werden dabei die Differentialgleichungen, die nur Ableitungen erster Ordnung erhalten, in zentrale Differenzenquotienten, die in zweiter Ordnung exakt sind, zerlegt. Dies ist möglich, wenn man die Felder im Ortsraum auf einem speziellen Gitter (Yee-Gitter) anordnet. In der Zeit führt das zu einer Struktur bei der elektrische und magne-

tische Felder um einen halben Zeitschritt verschoben berechnet werden (leapfrog arrangement).

Die Bewegungsgleichung für die Polarisation, die die Struktur der Schrödingergleichung $i\hbar\partial_t P = HP$ hat, wird ähnlich behandelt. Ein übliches Schema zur Diskretisierung von Gleichungen dieser Art ist das Crank-Nicholson Verfahren [63]

$$P^{n+1} = \frac{1 - \frac{i}{2\hbar}H}{1 + \frac{i}{2\hbar}H}P^n, \quad (\text{B.1})$$

wobei P^n die Polarisation zum Zeitschritt n bezeichnet. Falls H hermitesch ist, führt jeder Zeitschritt zu einer unitären Transformation. Die Erhaltung der Dichte ist bei dieser Diskretisierung also gewährleistet, was zu den guten Stabilitätseigenschaften des Verfahrens führt. In einer Dimension ist H tridiagonal, d.h. ein tridiagonales Gleichungssystem ist in jedem Zeitschritt zu lösen. Für die hier dargestellten Rechnungen ist eine Kombination mit einem Prediktor-Korrektor Schema gebraucht worden. Jeder Zeitschritt wird dann in $j = 1..f$ Zwischenschritte zerlegt:

$$P^{n+1,j+1} = P^n - \frac{i}{2\hbar}H(P^{n+1,j} + P^n). \quad (\text{B.2})$$

In einem ersten Schritt ($j=1$) wird $P^{n+1,1}$ auf der rechten Seite der Gleichung auf P^n gesetzt. Der erste Schritt liefert $P^{n+1,2}$, was auch das Ergebnis eines Euler-Verfahrens wäre und i. allg. schon eine gute Näherung an P^{n+2} ist. Dieser neue Wert wird dann auf der rechten Seite im nächsten Zwischenschritt eingesetzt. Konvergiert das Verfahren ($P^{n+1,j+1} = P^{n+1,j}$), so ist das Ergebnis von B.2 das gleiche Resultat wie das des Crank-Nicholson Zeitschritts. Das Verfahren konvergiert sehr schnell, hier sind $f = 5$ Zwischenschritte gebraucht worden. Mit dieser Methode ist es möglich, die Schrödingergleichung auf sehr großen, auch zwei- und dreidimensionalen Gittern zu lösen (z. B. 10^6 Gitterpunkte).

Das Prediktor-Korrektor-Schema eignet sich hier besonders, weil in jedem Zeitschritt Polarisation und elektrisches Feld selbstkonsistent aufgefrischt werden:

$$\begin{aligned} P^{n+1,j+1} &= F_1(P^n, P^{n+1,j}, E^n, E^{n+1,j}) \\ E^{n+1,j+1} &= F_2(P^n, P^{n+1,j}, E^n, E^{n+1,j}). \end{aligned}$$

Ein Schema dieser Art ist zuvor für die Beschreibung der gekoppelten Dynamik von optischen Blochgleichungen und elektromagnetischem Feld verwendet worden [64].

Literaturverzeichnis

- [1] Ash, E.A., Nichols, G., Nature **237**, 510, (1972)
- [2] Pohl, D.W., Denk, W., Lanz, M. Appl. Phys. Lett. **44**, 651 (1984)
- [3] Lewis, A., Isaacson, M., Murray, A., Harootunian, A. Biophys. J. **41**, 405a, (1983)
- [4] U.Düring, D.W.Pohl, F. Rohner, J. Appl. Phys. **59**, 3318, (1986)
- [5] R.D.Grober, T.D.Harris, J.K.Trautman, E.Betzig, W.Wegscheider, L. Pfeiffer, K. West, Appl. Phys. Lett. **64**, 1421, (1994)
- [6] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer, D. Park, Phys. Rev. Lett. **76**, 3005, (1996)
- [7] D.W.Pohl, *Advances in Optical and Electron Microscopy* 12,(1991);
- [8] E. Oesterschulze, O.Rudow, C. Mihalcea, W. Scholz, S. Werner, Ultramicroscopy **71**, 85, (1998)
- [9] S. Jiang, N. Tomita, H.Oshwa, M. Ohtsu, Jpn. J. Appl. Phys., **30**, 2107, (1991)
- [10] G.A. Valaskovic, M.Holton, G.H.Morrison, Appl. Opt., **34**, 1215, (1995)
- [11] W. Langbein, J.M.Hvam, S.Madsen, M. Hetterich, C. Klingshirn, Phys. Stat. Sol. A, **164**, 541, (1997)
- [12] Ch. Adelman, J.Hetzler, G. Scheiber, Th. Schimmel, M. Wegener, H.B.Weber, H.v.Löhneysen, **74**, 179, (1999)
- [13] G.v.Freymann, Th.Schimmel, M.Wegener, B. Hanewinkel, A.Knorr, S.W.Koch, **73**, 1170, (1998)
- [14] V. Sandoghar, S. Wegscheider, G.Krausch, J.Mlynek, J. Appl. Phys. **81**, 2499, (1997)
- [15] S.L.Chuang, *Physics of Optoelectronic Devices* (John Wiley & Sons, New York 1997)

-
- [16] H. Haug and S.W. Koch, *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors* (3rd edition, World Scientific, Singapore 1994).
- [17] A.Richter, G.Behme, M.Stüptitz, Ch.Lienau, Th.Elsässer, M.Ramsteiner, R.Nötzel, and K.H.Ploog, *Phys.Rev.Lett.* **79**, 2145 (1997).
- [18] B. A. Nechay, U.Siegner, F. Morier-Genoud, A. Schertel, and U.Keller *Appl. Phys. Lett.* **74**,61, (1999)
- [19] N. Van Hulst, M.Moers, and E. Bogonjen, in *Photons and local Probes* edited by O.Marti and R.Möller (Kluwer Academic Publishers, Dordrecht-Boston-London 1996)
- [20] Ch. Lienau, A.Richter, and T.Elsaesser, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 325 (1996)
- [21] K. Brunner, G.Abstreiter, G.Böhm, G.Tränkle, and G. Weimann *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1183, (1994)
- [22] M. J. Gregor, P. G. Blome, R. G. Ulbrich, P. Grossmann, S. Grosse, J. Feldmann, W. Stolz, E. O. Göbel, D. J. Arent, M. Bode, K. A. Bertness, J. M. Olson, *Appl. Phys. Lett.* **67**, (24) 3572, (1995)
- [23] *Phys. Rev. B*, **55**, 13715 (1997) B. Hanewinkel, A. Knorr, P. Thomas, S.W. Koch
- [24] L. Banyai, S. W. Koch "Semiconductor Quantum Dots", World Series On Atomic, Molecular and Optical Physics, Vol. 2, World Scientific, Singapore (1993)
- [25] A.Zrenner, L.V.Butov, M.Hagn, G.Abstreiter, G.Böhm, and G.Weinmann, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 3382 (1994)
- [26] Y. Toda, S. Shinomori, K. Suzuki, Y. Arakawa *Phys. Rev. B*, **58**, (1998)
- [27] A. Vertikov, I. Ozden, and A. Nurmikko, *Appl. Phys. Lett.* **74** (1999)
- [28] J.D.Jackson, *Classical Electrodynamics*. (2nd. edition, John Wiley & sons, New York 1975)
- [29] G.D.Mahan, *Many-Particle Physics*, (Plenum Press, New York 1990)
- [30] W.Vogel, *Lectures on quantum optics*, (1st. ed., Akad. Verl., Berlin 1994)
- [31] G.Bastard, *Wave Mechanics Applied to Semiconductor Heterostructures*. (Les Editions de Physique, Paris 1988)
- [32] W.W.Chow, S.W.Koch, M. Sargent, *Semiconductor-Laser Physics* (Springer-Verlag, Berlin, 1994)
- [33] S.D.Baranovskii, A.L.Efros, *Fiz. Tekh. Poluprovodh.* **12**, 2233 (1978) [*Sov. Phys. Semicond.* **12**, 1328 (1978)]

-
- [34] F.Steininger, A.Knorr, T.Stroucken, P.Thomas, S.W.Koch, Phys.Rev.Lett. 77, 550 (1996).
- [35] A.Knorr, B.Hanewinkel, H.Giessen, and S.W.Koch, *Advances in Solid State Physics* 38, p.311 (Vieweg Verlag, Wiesbaden, 1998).
- [36] D.Fröhlich in *Advances in Solid State Physics* X.227, ed. by O.Madelung (Vieweg, Braunschweig 1970)
- [37] E. Betzig, J.K. Trautman, T.D. Harris, J.S. Weiner, and R.L. Kostelak, Science Vol. 251, 1468 (1991).
- [38] L.Novotny, D.W.Pohl, and B.Hecht, Opt. Lett. 20, 970, (1995).
- [39] R.X.Bian, R.C.Dunn, S.Xie, P.T.Leung, Phys.Rev.Lett. 75, 4772 (1995).
- [40] A.Taflove *Computational Electrodynamics - The Finite-Difference Time-Domain Method.* (Artech House Inc., Norwood, 1995).
- [41] C.J. Bouwkamp, Philips Res. Rep. 5, 401 (1950).
- [42] Y.Leviatan, J.Appl.Phys. **60**, 1577, (1986)
- [43] J. Bromage, S. Radic, G.P. Agraval, C.R. Stroud, P.M. Fauchet, and R. Sobolewski, Opt. Lett. 22, 627 (1997)
- [44] C. Tai, *Dyadic Green Functions in Electromagnetic Theory*, 2nd ed. , IEEE PRESS, (1994)
- [45] M.Hübner, J.Kuhl, T.Stroucken, A.Knorr, S.W.Koch, R.Hey, K.Ploog, Phys.Rev.Lett. 76, 4199 (1996).
- [46] J. Chem. Phys. **21**, 836,(1953)
- [47] U.Bockelmann, Phys. Rev. B **48**, 17637, (1994)
- [48] P. Meystre, M. Sargent, *Elements of Quantum Optics*, 2nd Ed. Springer Verlag, Berlin, 1991
- [49] M. Bass, *Handbook of Optics*, 2nd ed., McGraw-Hill, 1995
- [50] G.W.Bryant, Appl. Phys. Lett. 72, 768 (1998).
- [51] P.Y.Yu and M.Cardona, *Fundamentals of Semiconductors.* (Springer, Berlin, Heidelberg, New York 1996)
- [52] R.J.Elliott, Phys.Rev. 124, 340 (1961)
- [53] D. W. Pohl, *Advances in Optical and Electron Microscopy*, 12, (1991); E. Betzig, J.K. Trautman, T.D. Harris, J.S. Weiner, and R.L. Kostelak, Science Vol. 251, 1468 (1991).

- [54] A. Knorr, F. Steininger, B. Hanewinkel, S. Kuckenburg, P. Thomas and S.W. Koch, *phys.stat.sol.(b)* 206, 139 (1998).
- [55] M. Vollmer, H. Giessen, W. Stolz, W. Rühle, submitted to *Appl.Phys.Lett.*.
- [56] S.D.Baranovskii, U.Doerr, P.Thomas, A.Naumov, W.Gebhardt *Phys.Rev.B* **48**, 17149 (1993); E.Runge, R.Zimmermann, *J. Lumin.* 60, 320 (1994).
- [57] V.M.Agranovitch, O.A.Dubovskii, *JETP Lett.* **3**, 223 (1966)
- [58] D. H. S. Cheng, *Electromagnetics*, **6**, 171, (1986)
- [59] P.A.Lee, T.V.Ramakrishnan, *Rev.Mod.Phys.* **57**, 287 (1985)
- [60] A. D. Yaghjian, *Proc. of the IEEE*, **68**, 248, (1980)
- [61] Ch. Hafner *The Generalized Multiple Multipole Technique for Computational Electrodynamics*, (Artech. Boston, Mass., 1990)
- [62] O. J. F. Martin, C. Girard, A. Dereux, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 526, (1995).
- [63] W. H. Press, *Numerical Recipes*, Cambridge University Press, Cambridge, 1986
- [64] R. W. Ziolkowski, *IEEE Trans.Ant.Prop.* 45, 375 (1997)

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich herzlich bedanken bei allen, die mich bei dieser Arbeit unterstützt haben:

- bei S. W. Koch und P. Thomas für die freundliche Aufnahme in die Arbeitsgruppe und viele Diskussionen und Anregungen,
- bei A. Knorr für die angenehme Zusammenarbeit und für viele hilfreiche Diskussionen,
- bei den Nahfeldoptikern in der experimentellen Halbleiterphysik, insbesondere H. Giessen und M. Schüttler, für Einblicke in die experimentelle Aspekte,
- bei allen Mitgliedern der Arbeitsgruppe für die angenehme Arbeitsatmosphäre.
- Mein besonderer Dank gilt meiner Frau Jutta, die mir oft den Rücken für die Physik freigehalten hat.

