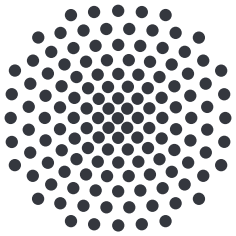
Polaritontransformation der gelben Magnetoexzitonen in Kupferoxydul

Bachelorarbeit von
Jan Ertl

16.03.2017

Prüfer: Apl. Prof. Dr. Jörg Main



1. Institut für Theoretische Physik
Universität Stuttgart
Pfaffenwaldring 57, 70550 Stuttgart

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung **5**
- 1.1. Motivation und Einführung in das Thema . . . 5
- 1.2. Aufbau der Arbeit . . . 5

2. Struktur fester Körper **7**
- 2.1. Aufbau kristalliner Festkörper . . . 7
- 2.2. Das reziproke Gitter . . . 8

3. Elektronenstruktur im Festkörper **11**
- 3.1. Hamiltonoperator des Festkörpers . . . 11
- 3.2. Das freie Elektronengas . . . 12
- 3.3. Elektronen im periodischen Potential . . . 15
  - 3.3.1. Bloch-Funktion . . . 16
  - 3.3.2. Quasi-freie Elektronen . . . 18
- 3.4. Bändermodell . . . 20
- 3.5. Löcher und die effektive Masse . . . 21

4. Exzitonen **23**
- 4.1. Wasserstoffartiges Modell der Exzitonen . . . 23
- 4.2. Exzitonen in magnetischen Feldern . . . 25
- 4.3. Numerische Methode zur Berechnung der Exzitonenergien . . . 25
- 4.4. Kupferoxydul . . . 27
- 4.5. Oszillatorstärken . . . 28
  - 4.5.1. Oszillatorstärken im Magnetfeld . . . 29

5. Polaritonen **31**
- 5.1. Darstellung mit Erzeugern und Vernichtern . . . 31
- 5.2. Die Polaritontransformation . . . 32
  - 5.2.1. Polaritontransformation für eine Polarisation und einen Exzitonzustand . . . 33
  - 5.2.2. Polaritontransformation für eine Polarisation und beliebig viele Exzitonenzustände . . . 35

6. Auswertung **37**
- 6.1. Polaritonen ohne Magnetfeld . . . 37

6.2. Polaritonen im Magnetfeld 38
6.2.1. Einfluss der Magnetfeldstärke 39
6.2.2. Einfluss der Orientierung des Schwerpunktimpulses zum Magnetfeld 42
6.2.3. Einfluss der Quantenzahlen M_J und M_e 43
6.2.4. Photonenanteil und Exzitonenanteil der Polaritonen 44

7. Zusammenfassung **47**

A. Betrachtung des zusätzlichen Termes im Magnetfeld **49**

Literaturverzeichnis **51**

Danksagung **53**

1. Einleitung

1.1. Motivation und Einführung in das Thema

Wird im Festkörper ein Elektron aus dem Valenzband ins Leitungsband angeregt, so lässt es im Valenzband ein Loch zurück. Gebundene Elektron-Loch-Paare, die sogenannten Exzitonen, stellen die fundamentalen Anregungen im Festkörper dar [1]. Man unterscheidet zwei Arten von Exzitonen: Stark-gebundene Exzitonen, die vorwiegend in Ionen-, Molekül- und Edelgaskristallen vorkommen, nennt man Frenkel-Exzitonen [2, 3]. Die in Halbleiter vorkommenden schwach-gebundenen Exzitonen nennt man Wannier-Exzitonen [2, 3]. Da es sich bei Löchern um positiv geladene Teilchen und bei Elektronen um negativ geladene Teilchen handelt, die sich über eine Coulomb-Wechselwirkung anziehen, können Exzitonen in einem wasserstoffartigen Modell beschrieben werden [1, 4, 5]. Diese Darstellung führt auf ein wasserstoffartiges Energiespektrum mit einer modifizierten Rydbergenergie des Exzitons. Hoch angeregte Rydbergexzitonen sind in der Festkörperforschung von besonderem Interesse, da sie sich eignen, um Wechselwirkungen von Exzitonen mit anderen Quasiteilchen zu untersuchen und sie sich möglicherweise in optischen Bauelementen einsetzen lassen [6]. Trifft Licht auf einen Festkörper, so kann dieses mit den Exzitonen wechselwirken. Die Kopplung von Licht und den Exzitonen führt auf ein neues Quasiteilchen, das Exziton-Polariton [7]. Will man nun dieses Teilchen beschreiben, muss man einen Basiswechsel, die Polaritontransformation, durchführen. In der Regel wird diese für ein Exziton und ein Photon durchgeführt. Dies ergibt zwei Zustände das „upper polariton“ und das „lower polariton“ [8]. In der nachfolgenden Arbeit soll diese Polaritontransformation für eine beliebige Anzahl von Exzitonen im Magnetfeld durchgeführt werden.

1.2. Aufbau der Arbeit

Im Folgenden geben wir in Kapitel 2 zunächst einen groben Überblick über die Struktur fester Körper. Danach betrachten wir in Kapitel 3 ihre Elektronenstruktur, ehe wir in Kapitel 4 übergehen zur Beschreibung von Exzitonen. Nach einer Einführung in den Formalismus der zweiten Quantisierung, werden wir in Kapitel 5 das Konzept der Polaritonen erarbeiten. Dabei orientieren wir uns an den Darstellungen in [1–5]. Die Ergebnisse dieser Arbeit zu Polaritonen im Magnetfeld werden in Kapitel 6 präsentiert. Abschließend geben wir in Kapitel 7 eine kurze Zusammenfassung.

2. Struktur fester Körper

2.1. Aufbau kristalliner Festkörper

Einkristalline Festkörper lassen sich mithilfe eine Raumgitters beschreiben, wobei an jedem Gitterpunkt ein Atom sitzt. Wählt man eines der Atome als Ausgangspunkt, so lässt sich jeder Punkt im Raumgitter durch einen Translationsvektor

$$\boldsymbol{T} = \sum_{i=1}^{3} n_i \boldsymbol{a}_i,\ n_i \in \mathbb{Z} \tag{2.1}$$

erreichen. Die $\boldsymbol{a}_i$ sind dabei die linear unabhängigen Ortsvektoren zu den drei Nachbaratomen des Ausgangsatoms. Diese Vektoren werden auch Basisvektoren genannt. Sie spannen ein Parallelepiped, die Einheits- oder Elementarzelle, mit Volumen

$$V_{\text{ez}} = (\boldsymbol{a}_1 \times \boldsymbol{a}_2) \cdot \boldsymbol{a}_3 = (\boldsymbol{a}_3 \times \boldsymbol{a}_1) \cdot \boldsymbol{a}_2 = (\boldsymbol{a}_2 \times \boldsymbol{a}_3) \cdot \boldsymbol{a}_1 \tag{2.2}$$

auf. Die Länge der Kanten dieses Körpers $|\boldsymbol{a}_i| = a_i$ werden Gitterkonstanten genannt. Bei komplizierteren kristallinen Festkörpern, die aus mehreren Atomsorten aufgebaut sind, tritt an die Stelle der Atome in der Zelle eine ganze Atomgruppe. Die Einheitszelle, die nur ein Atom beziehungsweise nur eine Atomgruppe enthält, nennt man primitiv. Für manche Anwendungen, beispielsweise die Berechnung der Elektronenverteilung in einer Zelle, ist die Wahl einer anderen Elementarzelle, der Wigner-Seitz-Zelle, geeignet [3]. Diese erhält man, indem man einen Gitterpunkt mit seinen Nachbarn verbindet und dann diese Verbindungslinie, jeweils auf halber Strecke, mit einer senkrechten Ebene schneidet.

Ein unendlich ausgedehntes Raumgitter kann durch verschiedene Symmetrieoperationen in sich selbst überführt werden. Neben der per Definition gewährleisteten Translationssymmetrie ist es möglich, dass ein Kristall symmetrisch ist bezüglich [2, 3]:

- Inversion am Ursprung,
- Spiegelung an einer Ebene,
- Drehung um eine Symmetrieachse,
- Kombinationen aus den vorherigen Operationen.

Dabei wird eine Symmetrieachse n-zählig genannt, wenn man nach einer Drehung um $\phi = 2\pi/n$ wieder die ursprüngliche Kristallstruktur erhält. Die möglichen Werte für n sind hierbei $n = 2, 3, 4, 6$ [2, 3]. Diese Bedingungen ermöglichen 14 verschiedene Bravais-Gitter, die sich aufgrund ihrer Symmetrie weiter in sieben Kristallsysteme ordnen lassen [2–4].

2.2. Das reziproke Gitter

Da das Gitter einen periodischen Aufbau hat, sollten auch grundlegende Eigenschaften des Festkörpers eine Translationssymmetrie aufweisen. Funktionen, die die Gitterperiodizität aufweisen,

$$f(\boldsymbol{r}) = f(\boldsymbol{r} + \boldsymbol{T}), \tag{2.3}$$

lassen sich in eine Fourierreihe

$$f(\boldsymbol{r}) = \sum_{\boldsymbol{G}} f_{\boldsymbol{G}} e^{i\boldsymbol{G}\boldsymbol{r}} \tag{2.4}$$

entwickeln mit den Koeffizienten

$$f_{\boldsymbol{G}} = \frac{1}{V_{\text{ez}}} \int_{V_{\text{ez}}} f(\boldsymbol{r}) e^{-i\boldsymbol{G}\boldsymbol{r}} \mathrm{d}V \tag{2.5}$$

und den Gittervektoren des reziproken Gitters

$$\boldsymbol{G} = \sum_{i=1}^{3} m_i \boldsymbol{b_i},\ m_i \in \mathbb{Z}. \tag{2.6}$$

Da wegen Gleichung (2.3) und Gleichung (2.4) $\boldsymbol{GT} = 2\pi m$ mit $m \in \mathbb{Z}$ erfüllt sein muss, sind die Basisvektoren des reziproken Gitters gegeben durch

$$\begin{aligned} \boldsymbol{b}_1 &= \frac{2\pi}{V_{\text{ez}}} (\boldsymbol{a}_2 \times \boldsymbol{a}_3), \\ \boldsymbol{b}_2 &= \frac{2\pi}{V_{\text{ez}}} (\boldsymbol{a}_3 \times \boldsymbol{a}_1), \\ \boldsymbol{b}_3 &= \frac{2\pi}{V_{\text{ez}}} (\boldsymbol{a}_1 \times \boldsymbol{a}_2). \end{aligned} \tag{2.7}$$

Insbesondere gilt:

$$\boldsymbol{b}_i \cdot \boldsymbol{a}_j = 2\pi \delta_{ij}. \tag{2.8}$$

Anhand von Gleichung (2.7) sieht man, dass die Vektoren $\boldsymbol{b}_i$ die Dimension m^{-1}, also dieselbe Dimension wie ein Wellenvektor $\boldsymbol{k}$, haben. Das reziproke Gitter ist somit ein Gitter im $\boldsymbol{k}$-Raum, oder auch Impulsraum, nach dem Impuls $\hbar\boldsymbol{k}$. Der Übergang zwischen Orts- und Impulsraum erfolgt durch eine Fouriertransformation. Wie für das Gitter im

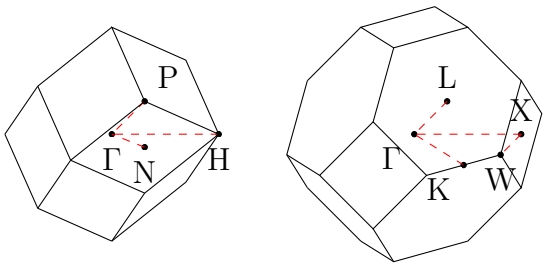


Abbildung 2.1.: Brillouinzone eines kubisch raumzentrierten Gitters (links) und eines kubisch flächenzentrierten Gitters (rechts), sinngemäß nach [5].

Ortsraum lässt sich auch im Impulsraum eine Wigner-Seitz-Zelle konstruieren. Diese wird erste Brillouinzone genannt. Aufgrund der Translationssymmetrie gibt es keine (kontinuierliche) Impulserhaltung. Stattdessen gilt, dass zu einem gegebenen $\boldsymbol{k}$-Wert ein beliebiger Gittervektor des reziproken Gitters hinzu addiert werden kann [4]:

$$\boldsymbol{k} \leftrightarrows \boldsymbol{k} + \boldsymbol{G}. \tag{2.9}$$

Dies bedeutet, dass es genügt, sich auf die erste Brillouinzone zu beschränken, da man einen außerhalb der Zone liegenden $\boldsymbol{k}$-Wert durch Addition eines geeigneten reziproken Gittervektors in den gewünschten Bereich zurückführen kann. Auch das reziproke Gitter weißt, je nach Typ, bestimmte Symmetrien auf. In Anlehnung an die Gruppentheorie erhalten Punkte hoher Symmetrie Bezeichnungen wie Γ, H, K, L, N, P, W, X [3, 5]. Dabei ist der Γ-Punkt das Zentrum der ersten Brillouinzone [3–5]. In Abbildung 2.1 sind die Brillouinzonen eines kubisch raumzentrierten und eines kubisch flächenzentrierten Gitters abgebildet. Die Punkte hoher Symmetrie sind hervorgehoben.

3. Elektronenstruktur im Festkörper

3.1. Hamiltonoperator des Festkörpers

Es ist häufig üblich, den Festkörper als aus Ionen und Valenzelektronen zusammengesetzt zu betrachten. Eine präzisere Darstellung mit Atomkernen und Elektronen ist normalerweise nicht notwendig, da Elektronen in den inneren, abgeschlossenen Schalen aufgrund der höheren Bindungsenergien eine geringere Ausdehnung besitzen als die äußersten, schwächer gebundenen Valenzelektronen [5]. Dies ist in Abbildung 3.1 dargestellt. Die kernnahen Elektronen sind stark an den zugehörigen Atomkern gebunden und ihre Wellenfunktion wird vom Gitterpotential nicht beeinflusst. Die Wellenfunktionen der Valenzelektronen überlappen aufgrund der größeren Ausdehnung und wechselwirken so miteinander. Aufgrund dieser Interaktion kommt es zur Änderung der räumlichen Elektronenverteilung, was die chemische Bindung zwischen den einzelnen Atomen ermöglicht. Je nachdem, wie die Wellenfunktionen benachbarter Elektronen überlappen, unterscheidet man verschiedene Bindungstypen. Die wichtigsten Vertreter sind, nach steigender Bindungsenergie geordnet [2, 5]

- die van-der-Waals-Bindung, welche vornehmlich bei Edelgaskristallen vorkommt,
- die metallische Bindung,
- die ionische Bindung,

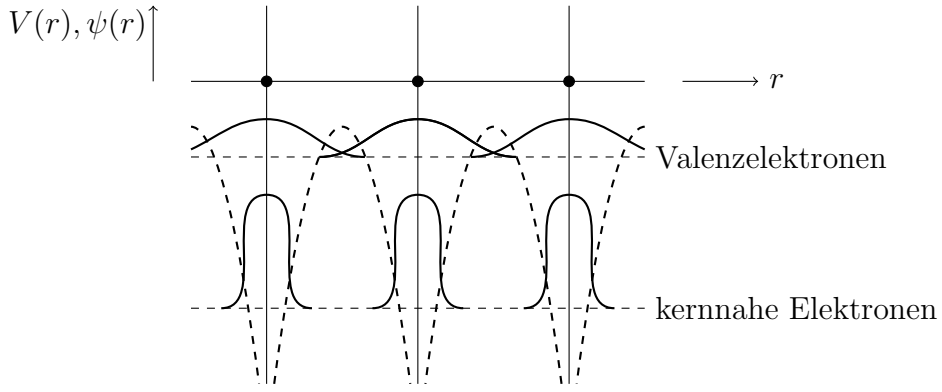


Abbildung 3.1.: Valenzelektronen und kernnahe Elektronen im Potential des Festkörpers (hier gestrichelt dargestellt), sinngemäß nach [5].

- die kovalente Bindung, welche die Diamantstruktur erzeugt.

Bei Halbleitern ist typischerweise die kovalente Bindung dominant [5]. Die oben genannten Wechselwirkungen sorgen für eine Konfiguration mit optimierter Energie. Diese kann durch den Überlapp der Wellenfunktionen minimiert werden, was auf den Grundzustand des Systems führt. Da es in den meisten Fällen ausreicht, nur Valenzelektronen und Ionen zu betrachten, lässt sich der Hamiltonoperator des Systems schreiben als

$$H_0 = H_{\text{el}} + H_{\text{ion}} + H_{\text{ion-el}}. \tag{3.1}$$

Weiterhin lassen sich die gitterdynamischen Eigenschaften im Wesentlichen auf die Bewegung der Ionen um ihre Ausgangsposition zurückführen, während die elektronischen Eigenschaften zum Großteil bestimmt werden durch die Bewegung fast freier Elektronen. Diese Zuordnung lässt sich erklären, indem man Elektronen und Ionen als zwei thermodynamische Systeme betrachtet, die in Kontakt stehen. Befindet sich das System im thermischen Gleichgewicht, so haben Elektronen und Ionen dieselbe Temperatur und somit auch dieselbe kinetische Energie pro Freiheitsgrad

$$\left\langle \frac{p_{\text{el}}}{2m_{\text{el}}} \right\rangle = \left\langle \frac{P_{\text{ion}}}{2M_{\text{ion}}} \right\rangle. \tag{3.2}$$

Da die Atomkerne wesentlich schwerer sind als die Elektronen, müssen sich die Elektronen im Durchschnitt viel schneller bewegen als die Ionen. Ändert sich also die Position der Ionen, richten sich die Elektronen instantan im neuen Potential aus und nehmen dort den Grundzustand ein. Die Bewegung der Ionen führt also nicht zur Anregung der Elektronen, was eine seperate Behandlung der beiden Systeme ermöglicht. Man nennt dies die adiabatische Näherung oder Born-Oppenheimer-Näherung [5]. Sind wir also an den elektronischen Eigenschaften des Festkörpers interessiert, so reicht es aus die N Valenzelektronen in einem Festkörper zu betrachten, in welchem die Ionen in ihrer Gleichgewichtsposition $\boldsymbol{R}_n^0$ sitzen. Dies führt auf einen Hamiltonoperator der Form

$$H_0 = \sum_{l=1}^{N} \frac{\boldsymbol{p}_l^2}{2m_{\text{el}}} + \frac{1}{2} \sum_{k,l=1,\, k\neq l}^{N} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 |\boldsymbol{r}_k - \boldsymbol{r}_l|} + \frac{1}{2} \sum_{m,n=1,\, m\neq n} V(|\boldsymbol{R}_m^0 - \boldsymbol{R}_n^0|) + \sum_{l,n} v(|\boldsymbol{r}_l - \boldsymbol{R}_n^0|). \tag{3.3}$$

Der erste Term beschreibt dabei die kinetische Energie der einzelnen Elektronen, der zweite Term beschreibt die gegenseitige Wechselwirkung der Elektronen, der dritte Term steht für die gegenseitige Wechselwirkung der Ionen über ein Wechselwirkungspotential V und der vierte Term beschreibt die Wechselwirkung der Elektronen mit den Ionen über ein Wechselwirkungspotential v.

3.2. Das freie Elektronengas

In einem einfachen Ansatz vernachlässigen wir die Struktur des Festkörpers und ersetzen die Ionen durch eine homogene Hintergundladung. Diese wird über den Term H_+

berücksichtigt:

$$H = \sum_{l=1}^{N} \frac{\boldsymbol{p}_l^2}{2m_{\mathrm{el}}} + \frac{1}{2} \sum_{k,l=1,\, k\neq l}^{N} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 |\boldsymbol{r}_k - \boldsymbol{r}_l|} + H_+. \tag{3.4}$$

Dies ist das sogenannte Jellium-Model [5]. Geht man zusätzlich davon aus, dass die Ladung der Elektronen homogen über den Festkörper verteilt ist, so heben sich die Ladung der Elektronen und der Ionen gerade auf und man erhält das Modell des freien Elektronengases,

$$H_N = \sum_{l=1}^{N} \frac{\boldsymbol{p}_l^2}{2m_{\mathrm{el}}} = \sum_{l=1}^{N} H_l. \tag{3.5}$$

Da es sich bei diesem Hamiltonoperator um eine Summe von Hamiltonoperatorn für ein Teilchen handelt, lässt sich der Vielteilchen-Hamiltonoperators durch einen Produktansatz lösen

$$\Psi(\{\boldsymbol{r}_l\}) = \prod_{l=1}^{N} \psi(\boldsymbol{r}_l). \tag{3.6}$$

Die $\psi(\boldsymbol{r}_l)$ sind dabei die Lösung des Einteilchenproblems

$$H_l \psi(\boldsymbol{r}_l) = \frac{\boldsymbol{p}_l^2}{2m_{\mathrm{el}}} \psi(\boldsymbol{r}_l) = E_l \psi(\boldsymbol{r}_l). \tag{3.7}$$

Dieser Hamiltonoperator wird durch den Ansatz ebener Wellen

$$\psi_{\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{r}_l) = \frac{1}{\sqrt{V}} e^{i\boldsymbol{k}\boldsymbol{r}_l} \tag{3.8}$$

gelöst und führt auf die Energieeigenwerte

$$E(\boldsymbol{k}) = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_{\mathrm{el}}}. \tag{3.9}$$

Die Randbedingungen schränken die Zahl der $\boldsymbol{k}$-Werte ein. In einem quaderförmigen Festkörper mit Volumen $V = L_1 L_2 L_3$ gilt für die Wellenvektoren aufgrund periodischer Randbedingungen (siehe beispielsweise [3])

$$k_i = \frac{2\pi}{L_i} n_i, \;\; n_i \in \mathbb{Z}, \;\; i = 1, 2, 3. \tag{3.10}$$

Im $\boldsymbol{k}$-Raum nimmt jeder dieser Zustände ein Volumen

$$V_k = \frac{(2\pi)^3}{V} \tag{3.11}$$

ein. Zu beachten ist noch, dass aufgrund der Spin-Entartung jeder Zustand doppelt besetzt ist. Will man die Energie des Grundzustandes berechnen, ist dies über die Zustandsdichte möglich. Für eine Kugelschale mit Radius k und Dicke dk ist diese gegeben durch

$$D(k)dk = \frac{2V}{(2\pi)^3} 4\pi k^2 dk. \tag{3.12}$$

Füllt man nun die Zustände mit N Elektronen innerhalb einer Kugel mit Radius k_F so, dass gerade alle Zustände besetzt sind, gilt

$$N = \int_0^{k_\mathrm{F}} D(k)dk = \frac{V}{\pi^2} \int_0^{k_\mathrm{F}} k^2 dk = \frac{V}{3\pi^2} k_\mathrm{F}^3. \tag{3.13}$$

Diese Kugel wird Fermi-Kugel genannt. Für $T = 0\mathrm{K}$ ist sie voll besetzt. k_F bezeichnet den Radius der Fermi-Kugel. Mit der Elektronendichte $n = N/V$ ist er gegeben durch

$$k_\mathrm{F} = (3\pi^2 n)^{\frac{1}{3}}. \tag{3.14}$$

Die Zustände, die gerade auf der Kugeloberfläche liegen, haben dabei die größtmögliche Energie. Diese wird Fermi-Energie genannt:

$$E_\mathrm{F} = \frac{\hbar^2 k_\mathrm{F}^2}{2m_\mathrm{el}}. \tag{3.15}$$

Die Gesamtenergie des Grundzustandes ist dann gegeben durch

$$E_\mathrm{total} = \int_0^{k_\mathrm{F}} E(k)D(k)dk = \frac{3}{5} N E_\mathrm{F}. \tag{3.16}$$

Diese teilt sich auf N Elektronen auf. Somit ist die mittlere Energie pro Zustand

$$\bar{E} = \frac{E_\mathrm{total}}{N} = \frac{3}{5} E_\mathrm{F}. \tag{3.17}$$

Nun soll noch die Zustandsdichte im Energieraum berechnet werden:

$$D(E)dE = D(k)\frac{dk}{dE}dE = \frac{V}{2\pi^2} \left(\frac{2m_\mathrm{el}}{\hbar^2}\right)^{\frac{3}{2}} \sqrt{E}dE. \tag{3.18}$$

Die Zustandsdichte ist also proportional zur Wurzel aus der Energie E. In Abbildung 3.2 ist die Zustandsdichte neben der zugehörigen Energiedispersionkurve dargestellt. Die bei $T = 0\mathrm{K}$ besetzten Zustände sind blau hervorgehoben. Um die Energie bei einer beliebigen Temperatur berechnen zu können, benötigen wird die Fermi-Dirac-Verteilung. Diese gibt die Wahrscheinlichkeit an, dass ein Zustand der Energie E bei der Temperatur T besetzt ist [9]:

$$f(E, \mu, T) = \frac{1}{e^{\frac{E-\mu}{k_B T}} + 1}. \tag{3.19}$$

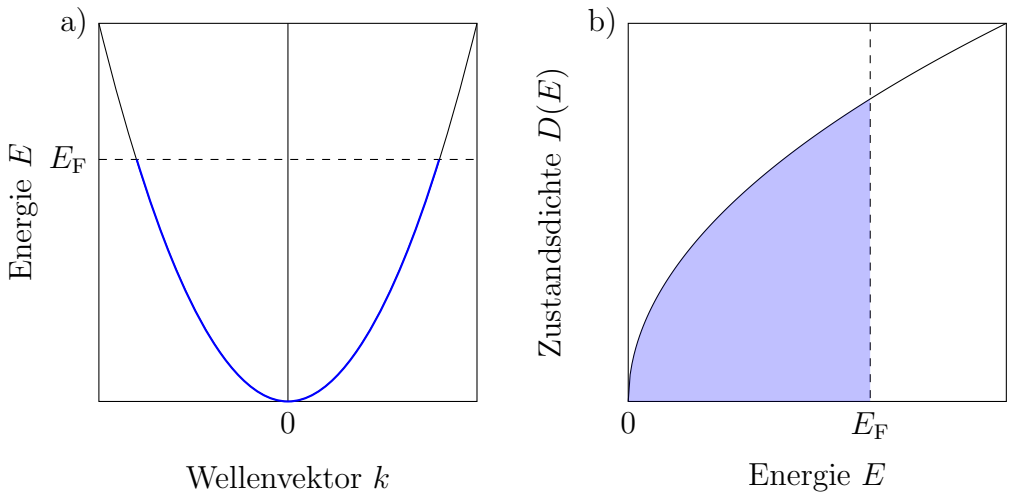


Abbildung 3.2.: a) Energiedispersion und b) Zustandsdichte des freien Elektronengases, sinngemäß nach [3].

Hier bezeichnet μ das chemische Potential. Damit ist die Energie bei einer beliebigen Temperatur gegeben durch

$$E_\mathrm{total}(T) = \int_0^\infty E D(E) f(E, \mu, T) dE. \tag{3.20}$$

3.3. Elektronen im periodischen Potential

In Abschnitt 3.1 wurde der Hamiltonoperator, der im Hinblick auf die Untersuchung der elektronischen Eigenschaften des Festkörpers benötigt wird, vorgestellt. Nun soll noch die periodische Struktur des Kristalls berücksichtigt werden. Dazu werden die Anteile, die eine Abhängigkeit von den Ionen aufweisen, zusammengefasst zu

$$\sum_l \tilde{V}(\boldsymbol{r}_l) = \frac{1}{2} \sum_{m,n=1,\, m\neq n} V(|\boldsymbol{R}_m^0 - \boldsymbol{R}_n^0|) + \sum_{l,n} v(|\boldsymbol{r}_l - \boldsymbol{R}_n^0|), \tag{3.21}$$

wobei die Abhängigkeit von der Position der Ionen im Kristall nun nicht weiter dargestellt wird. Der Hamiltonoperator aus Gleichung (3.3) lässt sich nun schreiben als

$$H = \sum_{l=1}^{N} \left(\frac{\hat{\boldsymbol{p}}_l^2}{2m_\mathrm{el}} + \tilde{V}(\boldsymbol{r}_l) \right) + \frac{1}{2} \sum_{k,l=1,\, k\neq l}^{N} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 |\boldsymbol{r}_k - \boldsymbol{r}_l|}. \tag{3.22}$$

Das gleichzeitige Auftreten des periodischen Potentials und des Wechselwirkungspotentials der Elektronen macht die Auswertung des zugehörigen Eigenwertproblems kompliziert. Eine strikte Lösung ist nicht möglich und Näherungsverfahren werden notwendig

[1, 5]. Ein möglicher Ansatz, das Problem zu vereinfachen, ist es, die beiden auftretenden Potentialterme zu einem effektiven Einteilchenpotential zusammenzufassen [5]:

$$H = \sum_{l=1}^{N} \left(\frac{\hat{\boldsymbol{p}}_l^2}{2m_{\mathrm{el}}} + V_{\mathrm{eff}}(\boldsymbol{r}_l) \right). \tag{3.23}$$

Dieser Hamiltonoperator ist also die Summe von Einteilchen-Schrödinger-Gleichungen und kann durch einen Produktansatz gelöst werden. Die zugehörige Einteilchen-Schrödinger-Gleichung lautet

$$\left(\frac{\hat{\boldsymbol{p}}_l^2}{2m_{\mathrm{el}}} + V_{\mathrm{eff}}(\boldsymbol{r}_l) \right) \psi(\boldsymbol{r}_l) = E_l \psi(\boldsymbol{r}_l). \tag{3.24}$$

3.3.1. Bloch-Funktion

In diesem Abschnitt soll die Lösung der im vorigen Kapitel eingeführten Einteilchen-Schrödinger-Gleichung (3.24) gefunden werden. Das Potential $V_{\mathrm{eff}}(\boldsymbol{r})$ weist, aufgrund der symmetrischen Anordnung der Ionen im Kristall, dieselbe Translationssymmetrie auf:

$$V_{\mathrm{eff}}(\boldsymbol{r}) = V_{\mathrm{eff}}(\boldsymbol{r} + \boldsymbol{T}). \tag{3.25}$$

Funktionen mit dieser Periodizität lassen sich als Fourierreihe entwickeln:

$$V_{\mathrm{eff}}(\boldsymbol{r}) = \sum_{\boldsymbol{G}} V_{\boldsymbol{G}} e^{i\boldsymbol{G}\boldsymbol{r}}. \tag{3.26}$$

Setzt man diese Entwicklung in die Schrödingergleichung

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_{\mathrm{el}}} \Delta + V_{\mathrm{eff}}(\boldsymbol{r}) \right) \psi(\boldsymbol{r}) = E \psi(\boldsymbol{r}) \tag{3.27}$$

ein und nutzt für die Wellenfunktion $\psi(\boldsymbol{r})$ eine Entwicklung nach ebenen Wellen,

$$\psi(\boldsymbol{r}) = \sum_{\boldsymbol{k}} c_{\boldsymbol{k}} e^{i\boldsymbol{k}\boldsymbol{r}} \tag{3.28}$$

so ergibt sich die folgende Gleichung [3]:

$$\sum_{\boldsymbol{k}} e^{i\boldsymbol{k}\boldsymbol{r}} \left[\left(\frac{\hbar^2 k^2}{2m_{\mathrm{el}}} - E \right) c_{\boldsymbol{k}} + \sum_{\boldsymbol{G}} V_{\boldsymbol{G}} c_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{G}} \right] = 0. \tag{3.29}$$

Diese Gleichung lässt sich für beliebige $\boldsymbol{k}$-Werte nur dann erfüllen, wenn

$$\left(\frac{\hbar^2 k^2}{2m_{\mathrm{el}}} - E \right) c_{\boldsymbol{k}} + \sum_{\boldsymbol{G}} V_{\boldsymbol{G}} c_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{G}} = 0 \tag{3.30}$$

gilt. Da in dieser Gleichung lediglich Koeffizienten $c_{\boldsymbol{k}}$ auftreten, deren zugehörige $\boldsymbol{k}$-Werte sich um einen reziproken Gittervektor $\boldsymbol{G}$ unterscheiden, lässt sich der Ansatz (3.28) nun weiter vereinfachen zu

$$\psi_{\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{r}) = \sum_{\boldsymbol{G}} c_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{G}} e^{i(\boldsymbol{k}-\boldsymbol{G})\boldsymbol{r}} = \left(\sum_{\boldsymbol{G}} c_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{G}} e^{-i\boldsymbol{G}\boldsymbol{r}} \right) e^{i\boldsymbol{k}\boldsymbol{r}} = u_{\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{r}) e^{i\boldsymbol{k}\boldsymbol{r}}. \tag{3.31}$$

Die so erhaltene Funktion wird Bloch-Funktion genannt. $u_{\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{r})$ ist dabei eine gitterperiodische Funktion

$$u_{\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{r} + \boldsymbol{T}) = u_{\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{r}). \tag{3.32}$$

Eine solche Bloch-Funktion ist in Abbildung 3.3 dargestellt. Sie ergibt sich als Produkt einer gitterperiodischen Funktion und einer ebenen Welle. Die Gitterperiodizität ist dabei durch die periodisch angeordneten Atomorbitale dargestellt. Eine grundlegende Eigenschaft der Bloch-Funktion zeigt sich, wenn man zum zugehörigen Wellenvektor $\boldsymbol{k}$ einen reziproken Gittervektor $\boldsymbol{G'}$ addiert und anschließend den Summationsindex abändert zu $\boldsymbol{G} - \boldsymbol{G'} \rightarrow \boldsymbol{G''}$. Dann erhält man die ursprüngliche Wellenfunktion $\psi_{\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{r})$ [3]:

$$\psi_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{G'}}(\boldsymbol{r}) = \sum_{\boldsymbol{G}} c_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{G'}-\boldsymbol{G}} e^{i(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{G'}-\boldsymbol{G})\boldsymbol{r}} = \sum_{\boldsymbol{G''}} c_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{G''}} e^{i(\boldsymbol{k}-\boldsymbol{G''})\boldsymbol{r}} = \psi_{\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{r}). \tag{3.33}$$

Auch für die Energieeigenwerte verändert das Hinzuaddieren eines reziproken Gittervektors $\boldsymbol{G}$ zum ursprünglichen Wellenvektor $\boldsymbol{k}$ nichts [3, 5],

$$E_{\boldsymbol{k}}\psi_{\boldsymbol{k}} = H\psi_{\boldsymbol{k}} = H\psi_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{G}} = E_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{G}}\psi_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{G}} \tag{3.34}$$

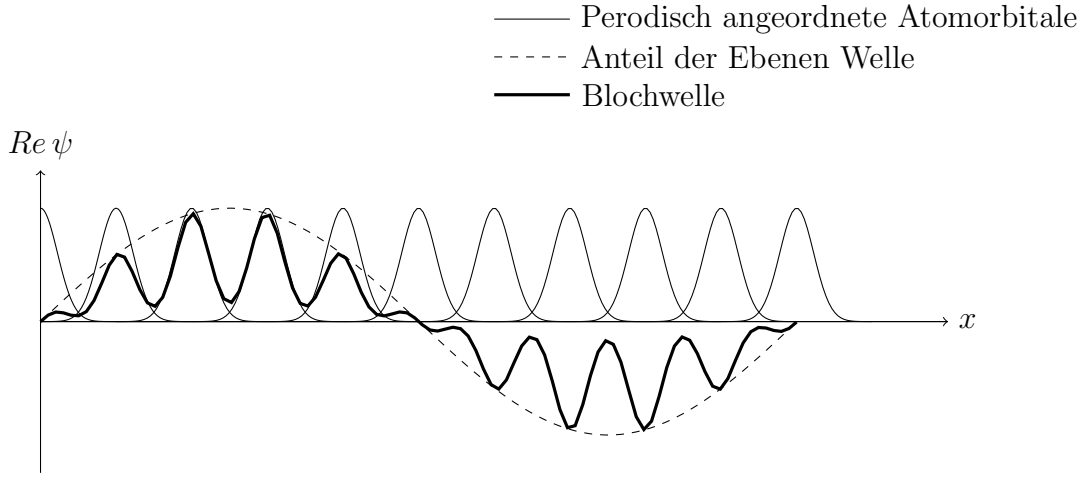


Abbildung 3.3.: Realteil einer Blochwelle in einer Dimension. Dargestellt sind außerdem die periodisch angeordneten Atomorbitale und der Anteil der ebenen Welle zur Blochwelle, sinngemäß nach [4].

und damit

$$E_{\boldsymbol{k}} = E_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{G}}. \tag{3.35}$$

Das ist auch der Grund, warum man im Festkörper von einem Quasiimpuls $\hbar\boldsymbol{k}$ spricht, da im Unterschied zum freien Teilchen hier beliebige reziproke Gittervektoren $\boldsymbol{G}$ zum Wellenvektor $\boldsymbol{k}$ hinzuaddiert werden können [4]. Man kann sich bei der Betrachtung der Lösungen im Impulsraum auf die erste Brillouin-Zone beschränken, da außerhalb dieser die Eigenwerte und Wellenfunktionen periodisch wiederholt werden.

3.3.2. Quasi-freie Elektronen

Ausgehend von der Schrödingergleichung (3.30) sollen die Energieeigenwerte für Elektronen im Festkörper näher untersucht werden. Aufgrund der periodischen Gitterstruktur wiederholen sich die Energieeigenwerte periodisch im Impulsraum. Fordert man, dass diese Lösungsstruktur erhalten bleibt und die Amplituden des periodischen Potentials $V_{\boldsymbol{G}}$ vernachlässigbar klein sind, so sind die Energieeigenwerte durch Parabeln gegeben, die im Impulsraum jeweils um den reziproken Gittervektor $\boldsymbol{G}$ verschoben sind:

$$E_{\boldsymbol{k}} = \frac{\hbar^2\boldsymbol{k}^2}{2m_{\mathrm{el}}}, \quad E_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{G}} = \frac{\hbar^2|\boldsymbol{k}+\boldsymbol{G}|^2}{2m_{\mathrm{el}}}. \tag{3.36}$$

In Abbildung 3.4 ist dies für ein eindimensionales Gitter mit Gitterkonstanten a veranschaulicht. Der zugehörige (minimale) reziproke Gittervektor ist gegeben durch

$$g = \frac{2\pi}{a}. \tag{3.37}$$

Wie im Abschnitt 3.3.1 erläutert, reicht es aus, sich bei der Betrachtung auf die erste Brillouin-Zone zu beschränken. Diese ist in Abbildung 3.4 schwarz hervorgehoben. An den Rändern der ersten Brillouin-Zone und in ihrem Zentrum treten Entartungen auf, welche im Folgenden weiter untersucht werden sollen. Dazu betrachten wir den untersten Schnittpunkt der beiden Parabeln am Rand der ersten Brillouinzone $k = g/2 = \pi/a$. Die zugehörigen Koeffizienten der Parabeln sind $c_{\boldsymbol{k}}$ und $c_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{g}}$. Sofern die Störung durch das periodische Potential als klein angesehen werden kann, reicht es aus, diese beiden Lösungen zu betrachten. Dies wird klar, wenn man die Entwicklungskoeffizienten $c_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{G}}$ gesondert betrachtet. Diese lassen sich ausdrücken durch [3]

$$c_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{G}} = \frac{\sum_{\boldsymbol{G}'} V_{\boldsymbol{G}'} c_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{G}-\boldsymbol{G}'}}{E - \frac{\hbar^2}{2m_{\mathrm{el}}}|\boldsymbol{k}-\boldsymbol{G}|^2}. \tag{3.38}$$

Für kleine Störungen durch das Potential ist der Energieeigenwert gegeben durch den Wert der freien Elektronen

$$E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_{\mathrm{el}}}. \tag{3.39}$$

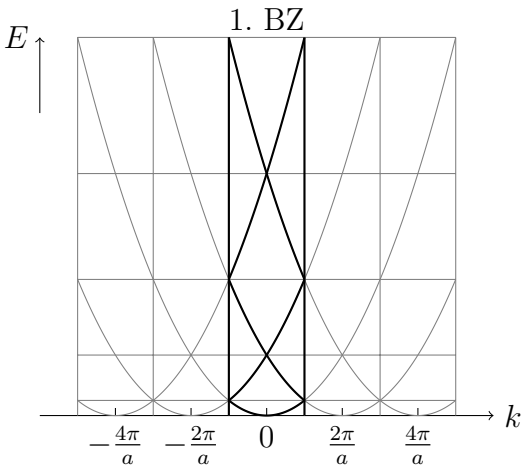


Abbildung 3.4.: Darstellung der Energiedispersion für Elektronen in einem verschwindend kleinen periodischen Potential, sinngemäß nach [5]. Die erste Brillouinzone ist dabei schwarz hervor gehoben.

Die Störung wird am Größten, wenn der Nenner in Gleichung (3.38) verschwindet, also gerade dann, wenn

$$\boldsymbol{k}^2 = |\boldsymbol{k} - \boldsymbol{G}|^2 \tag{3.40}$$

gilt. Gleichung 3.40 ist am Rand der ersten Brillouin-Zone $k = g/2 = \pi/a$ erfüllt, wenn der reziproke Gittervektor die Werte $\boldsymbol{G} = \boldsymbol{g}$ und $\boldsymbol{G} = \boldsymbol{0}$ annimmt. Somit können alle anderen Koeffizienten als klein angesehen werden. In der weiteren Betrachtung werden nur noch die Koeffizienten $c_{\boldsymbol{k}}$ und $c_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{g}}$ berücksichtigt. Nimmt man nun an, dass das Gitter Inversionssymmetrie $V_{\boldsymbol{g}} = V_{-\boldsymbol{g}}$ besitzt und setzt man den Koeffizienten $V_{\boldsymbol{0}} = 0$, so ergibt sich folgendes Gleichungssystem [3]:

$$\begin{aligned} \left(\frac{\hbar^2\boldsymbol{k}^2}{2m_{\mathrm{el}}} - E\right) c_{\boldsymbol{k}} + V_{\boldsymbol{g}} c_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{g}} = 0, \\ \left(\frac{\hbar^2|\boldsymbol{k}-\boldsymbol{g}|^2}{2m_{\mathrm{el}}} - E\right) c_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{g}} + V_{\boldsymbol{g}} c_{\boldsymbol{k}} = 0. \end{aligned} \tag{3.41}$$

Dieses Gleichungssystem hat nur dann eine nichttriviale Lösung wenn die Säkulardeterminante verschwindet. Mit den Abkürzungen

$$E^0_{\boldsymbol{k}} = \frac{\hbar^2\boldsymbol{k}^2}{2m_{\mathrm{el}}},\ E^0_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{g}} \frac{\hbar^2|\boldsymbol{k}-\boldsymbol{g}|^2}{2m_{\mathrm{el}}}, \tag{3.42}$$

ergeben sich die folgenden Lösungen [3]:

$$E_{\pm} = \frac{1}{2}(E^0_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{g}} + E^0_{\boldsymbol{k}}) \pm \sqrt{\frac{1}{4}(E^0_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{g}} + E^0_{\boldsymbol{k}})^2 + V^2_{\boldsymbol{g}}}. \tag{3.43}$$

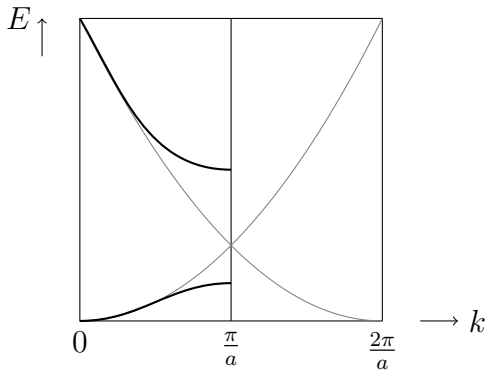


Abbildung 3.5.: Zum Entstehen der Bandlücke am Rand der ersten Brillouinzone. Der Energieverlauf für das freie Elektronengas ist grau dargestellt, sinngemäß nach [5].

An der Grenze der Brillouinzone lässt sich dies weiter vereinfachen zu

$$E_{\pm} = E^0_{\boldsymbol{k}} \pm |V_{\boldsymbol{g}}|. \tag{3.44}$$

Die Anwesenheit des Potenzials $V_{\text{eff}}(\boldsymbol{r})$, beziehungsweise dessen erster Fourierkomponente, sorgt also für eine Energieaufspaltung an der Grenze der Brillouin-Zone. Es bildet sich ein Energiebereich, in dem keine Elektronen vorkommen. Dieser Bereich wird Bandlücke E_g genannt. In Abbildung 3.5 ist die beschriebene Aufspaltung zu sehen. Man erkennt auch, dass im Zentrum der Brillouin-Zone die parabolische Struktur der Energiedispersion erhalten bleibt. Wertet man die Energieeigenwerte an der Zonengrenze aus, so zeigen diese dort ebenfalls ein parabelförmiges Verhalten [3].

3.4. Bändermodell

Im Abschnitt 3.3.2 haben wir gesehen, dass es wegen der periodischen Kristallstruktur Energiebereiche gibt, in denen keine Elektronen vorkommen. Es gibt somit nur bestimmte Bereiche, in denen sich Elektronen aufhalten können. Diese Bereiche werden Bänder genannt. Gibt es N Elektronen im Festkörper, so wird der Grundzustand des Festkörpers erhalten, indem man unter Berücksichtigung des Pauli-Prinzips die untersten zur Verfügung stehenden Energieniveaus bis zur Fermi-Energie E_{F} nacheinander mit den N Elektronen auffüllt. Die voll besetzten Bänder werden Valenzbänder (VB) genannt. Alle darüberliegenden, teilbesetzte oder leere Bänder bezeichnet man als Leitungsbänder (CB) [4]. Ist das oberste Energieband nur zum Teil besetzt oder kommt es beim obersten besetzten Band zum Überlapp mit höher liegenden Bändern, so klassifiziert man diese Materialien als Leiter [2] oder Metall [3, 4]. Materialien, bei denen es zu einem geringen Überlapp beziehungsweise nur zum Berühren der Bänder kommt, werden als Halbmetalle bezeichnet [3, 4]. Die andere mögliche Situation ist, dass die Fermi-Energie in einer

Bandlücke liegt. Somit ist das darunter liegende Valenzband gerade voll besetzt. In diesem Fall handelt es sich bei dem Material um einen Isolator oder Halbleiter [2–5]. Die Unterscheidung zwischen beiden wird dabei durch die Größe der Bandlücke bestimmt. Ist diese verhältnismäßig klein, so können Elektronen aus dem Valenzband ins Leitungsband angeregt werden. Bei größeren Bandlücken wird diese Anregung jedoch schwierig. Üblicherweise liegen die Bandlücken für Halbleiter in einem Bereich von

$$0\text{eV} < E_\text{g} \leq 4\text{eV} \tag{3.45}$$

und jene von Isolatoren in einem Bereich von

$$4\text{eV} < E_\text{g}, \tag{3.46}$$

wobei die Übergänge hier fließend sind [4]. In Abbildung 3.6 sind die verschiedenen Situationen schematisch dargestellt.

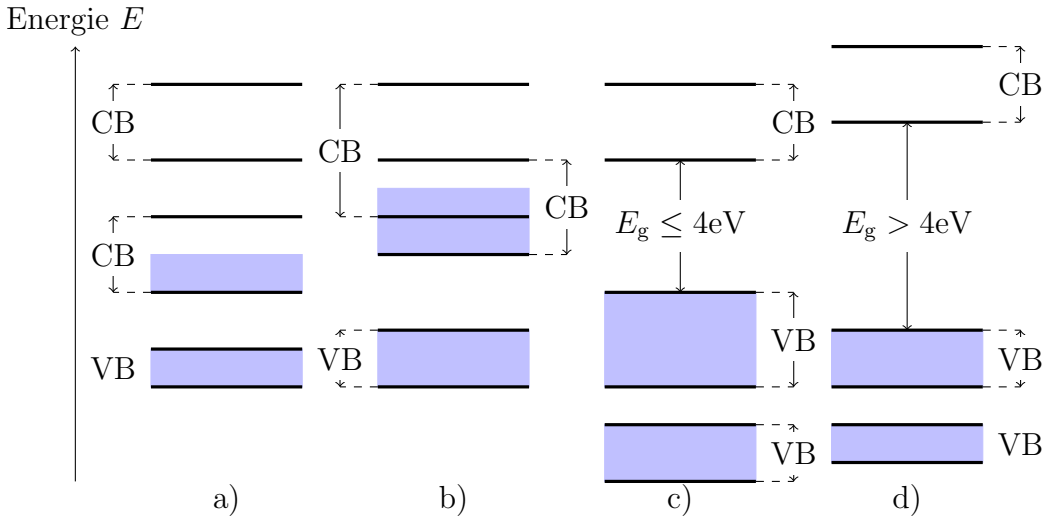


Abbildung 3.6.: Besetzung der Bänder für a), b) Metalle, c) Halbleiter und d) Isolatoren, sinngemäß nach [4]. Die besetzten Zustände sind dabei blau hervor gehoben.

3.5. Löcher und die effektive Masse

Da die Bandlücke bei Halbleitern verhältnismäßig klein ist, lassen sich bei Temperaturen über dem absoluten Nullpunkt Elektronen thermisch in das Leitungsband anregen. Ein angeregtes Elektron hinterlässt dabei eine freie Stelle im Valenzband, die man als Loch oder Defektelektron bezeichnet [3, 4]. Im Festkörper ist es im Hinblick auf die elektronischen Eigenschaften üblich, statt der vielen verbleibenden Elektronen nur diese freie

Stelle im Valenzband als neues positiv geladenes Quasiteilchen zu behandeln. Zur Auswertung der Bewegung von Elektronen und Löchern in elektrischen und magnetischen Feldern wählt man Wellenpakete, bei denen nur die $\boldsymbol{k}$-Werte berücksichtigt werden sollen die in einem geeigneten Bereich um ein $\boldsymbol{k}_0$ orientiert sind:

$$\phi_{\boldsymbol{k}_0}(\boldsymbol{r}) = \sum_{\boldsymbol{k}} a_{\boldsymbol{k}} e^{i\boldsymbol{k}\boldsymbol{r}} u_{\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{r}). \tag{3.47}$$

Diese Wellenpakete bezeichnet man als Wannier-Funktionen [4]. Für eine gute Lokalisation im Impulsraum wählt man eine Ausdehnung des Wellenpaketes im Ortsraum, die sich über einige Einheitszellen erstreckt. Damit eine Behandlung des Elektrons als kompaktes Teilchen möglich ist, muss seine Ausdehnung im Ortsraum wesentlich kleiner sein als die Wellenlänge des äußeren Feldes [3]. Die Gruppengeschwindigkeit für ein solches Wellenpaket ist gegeben über die Energiedispersion $E(\boldsymbol{k})$ durch

$$\boldsymbol{v}_{\mathrm{g}}(\boldsymbol{k}) = \frac{1}{\hbar}\frac{\partial E(\boldsymbol{k})}{\partial k} = \frac{1}{\hbar}\nabla_{\boldsymbol{k}} E(\boldsymbol{k}). \tag{3.48}$$

Eine äußere Kraft $\boldsymbol{F}$ wirkt auf die Energie des Wellenpakets nach

$$dE(\boldsymbol{k}) = \boldsymbol{F} d\boldsymbol{s} = \boldsymbol{F}\boldsymbol{v}_{\mathrm{g}} dt. \tag{3.49}$$

Diese beiden Gleichungen lassen sich zu

$$\frac{d(\hbar\boldsymbol{k})}{dt} = \boldsymbol{F} = \dot{\boldsymbol{p}} \tag{3.50}$$

zusammenfassen mit dem Quasiimpuls $\hbar\boldsymbol{k}$ des Elektrons oder Lochs. Auf der anderen Seite gilt für die Zeitableitung der Gruppengeschwindigkeit

$$\boldsymbol{a} = \frac{d\boldsymbol{v}_{\mathrm{g}}}{dt} = \frac{1}{\hbar}\frac{d}{dt}\left(\frac{\partial E(\boldsymbol{k})}{\partial \boldsymbol{k}}\right) = \frac{1}{\hbar}\frac{\partial^2 E(\boldsymbol{k})}{\partial \boldsymbol{k}\partial \boldsymbol{k}}\frac{d\boldsymbol{k}}{dt}. \tag{3.51}$$

Mit Gleichung (3.50) lässt sich dies ausdrücken als

$$\boldsymbol{a} = \frac{1}{\hbar^2}\frac{\partial^2 E(\boldsymbol{k})}{\partial \boldsymbol{k}\partial \boldsymbol{k}}\boldsymbol{F}. \tag{3.52}$$

Der Vergleich mit dem zweiten Newtonschen Axiom $\boldsymbol{a} = \boldsymbol{F}/m$ liefert

$$\left(\frac{1}{m_{\mathrm{eff}}}\right)_{i,j} = \frac{1}{\hbar^2}\frac{\partial^2 E(\boldsymbol{k})}{\partial k_i \partial k_j}. \tag{3.53}$$

Man beachte, dass es sich bei der so eingeführten effektiven Masse m_{eff} im Allgemeinen um einen Tensor handelt. In der Umgebung von Bandextrema nehmen die Bänder eine parabolische Form an [4] und die effektiven Massen sind skalar. Damit lassen sich Elektronen und Löcher im Festkörper unter Berücksichtigung der effektiven Masse wie freie Teilchen behandeln. Man nennt dies die effektive-Masse-Näherung [4]. Im Folgenden werden die effektiven Massen der Elektronen mit m_{e} und die effektiven Massen der Löcher mit m_{h} bezeichnet.

4. Exzitonen

Wird ein Elektron vom Valenzband in das Leitungsband angeregt, so entsteht im Valenzband ein Loch. Betrachtet man nun die Wechselwirkung des so gebildeten Elektron-Loch-Paares, so führt das auf ein neues Quasiteilchen, das Exziton. Im Wesentlichen unterscheidet man zwei Fälle. Frenkel-Exzitonen sind stark gebundene Exzitonen, die hauptsächlich in Molekül-, Edelgas- und Ionenkristallen zu finden sind [2, 3]. Schwach gebundene Wannier-Exzitonen sind dagegen in den meisten Halbleitern zu finden [2, 3]. Da in dieser Arbeit Exzitonen in einem Halbleiter, nämlich Kupferoxydul, untersucht werden sollen, werden nachfolgend lediglich die Wannier-Exzitonen beschrieben. Weitere Informationen über Frenkel-Exzitonen finden sich beispielsweise in [1].

4.1. Wasserstoffartiges Modell der Exzitonen

Ein Exziton entsteht, wenn ein Elektron aus dem Valenzband in das Leitungsband angeregt wird. Dieses besitzt dann eine effektive Masse m_e. Im Valenzband bleibt ein positiv geladenes Loch mit effektiver Masse m_h zurück. Statt der elektrischen Wechselwirkung des Elektrons im Leitungsband mit den restlichen Elektronen im Valenzband und den Ionenrümpfen im Festkörper, behandelt man lediglich die Wechselwirkung zwischen dem Loch im Valenzband und dem Elektron im Leitungsband. Dies führt auf einen Hamiltonoperator der Form

$$H = E_\mathrm{g} + \frac{\boldsymbol{p}_\mathrm{e}^2}{2m_\mathrm{e}} + \frac{\boldsymbol{p}_\mathrm{h}^2}{2m_\mathrm{h}} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon|\boldsymbol{r}_\mathrm{e} - \boldsymbol{r}_\mathrm{h}|}. \tag{4.1}$$

Der Term E_g beschreibt die Energie der Bandlücke. Die Beschreibung mit effektiven Massen setzt parabolische Bänder voraus. Andere Valenz- und Leitungsbänder müssen allerdings auch berücksichtigt werden. Dies geschieht in einer ersten Näherung über die Materialkonstante ϵ [5].

Der Hamiltonoperator (4.1) lässt sich in Relativ- und Schwerpunktkoordinaten darstel-

len. Mit $\boldsymbol{p}_\mathrm{e} = \hbar\boldsymbol{k}_\mathrm{e}$ und $\boldsymbol{p}_\mathrm{h} = \hbar\boldsymbol{k}_\mathrm{h}$ lauten diese

$$\begin{aligned} \boldsymbol{r} &= \boldsymbol{r}_\mathrm{e} - \boldsymbol{r}_\mathrm{h}, \\ \boldsymbol{R} &= \frac{m_\mathrm{e}\boldsymbol{r}_\mathrm{e} + m_\mathrm{h}\boldsymbol{r}_\mathrm{h}}{M}, \\ \boldsymbol{k} &= \frac{m_\mathrm{h}\boldsymbol{k}_\mathrm{e} - m_\mathrm{e}\boldsymbol{k}_\mathrm{h}}{M}, \\ \boldsymbol{K} &= \boldsymbol{k}_e + \boldsymbol{k}_h \end{aligned} \tag{4.2}$$

dabei ist $M = m_\mathrm{e} + m_\mathrm{h}$ die Gesamtmasse . In diesen Koordinaten ergibt sich der Hamiltonoperator zu

$$H = E_\mathrm{g} + \frac{\boldsymbol{p}^2}{2\mu} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon\boldsymbol{r}} + \frac{\hbar^2\boldsymbol{K}^2}{2M}. \tag{4.3}$$

Dabei ist $\mu = m_\mathrm{e}m_\mathrm{h}/(m_\mathrm{e} + m_\mathrm{h})$ die reduzierte Masse und $\boldsymbol{p}$ der Impulsoperator der Relativbewegung. Der erste Term ist wieder die Energie der Bandlücke, der zweite und der dritte Term beschreiben die Relativbewegung von Elektron und Loch und der vierte Term die abseparierte Schwerpunktsbewegung. Die beiden mittleren Terme haben dieselbe Struktur wie das Wasserstoffproblem und unterscheiden sich lediglich durch die andere reduzierte Masse μ und die Dielektrizitätskonstante ϵ vom Wasserstoffmodell

$$H\phi_\nu(\boldsymbol{r}) = \left(-\frac{\hbar}{2\mu}\Delta - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon|\boldsymbol{r}|}\right)\phi_\nu(\boldsymbol{r}) = E_\nu\phi_\nu(\boldsymbol{r}), \tag{4.4}$$

dessen Lösungen bekannt sind [10]:

$$E_\nu = -\frac{R_\mathrm{exc}}{\nu^2} \tag{4.5}$$

mit der Rydbergenergie des Exzitons

$$R_\mathrm{exc} = R_\mathrm{H}\frac{\mu}{m_\mathrm{el}\epsilon^2} \tag{4.6}$$

und dem Bohr'schen Radius des Exzitons

$$a_\mathrm{exc} = a_\mathrm{H}\frac{m_\mathrm{el}\epsilon}{\mu}. \tag{4.7}$$

Man beachte, dass sich die Rydbergenergie und der Bohrradius des Exzitons jeweils um einen Faktor von denen des Wasserstoffatoms unterscheiden. Diese Faktoren kommen durch die effektiven Massen von Elektron und Loch und die Materialkonstante ϵ zustande. Setzt man für Halbleiter typische Werte ein, so ergeben sich [4]

$$1\mathrm{meV} \leq R_\mathrm{exc} \leq 200\mathrm{meV} \ll E_\mathrm{g} \tag{4.8}$$

und

$$50\mathrm{nm} \gtrsim a_\mathrm{exc} \geq 1\mathrm{nm} > a. \tag{4.9}$$

Die Energieeigenwerte im wasserstoffartigen Modell der Exzitonen ergeben sich zu

$$E_{\nu,\boldsymbol{K}} = E_\mathrm{g} - \frac{R_\mathrm{exc}}{\nu^2} + \frac{\hbar^2\boldsymbol{K}^2}{2M}. \tag{4.10}$$

4.2. Exzitonen in magnetischen Feldern

In dieser Arbeit sollen Exzitonen in konstanten magnetischen Feldern untersucht werden. Der Effekt des Magnetfeldes wird berücksichtigt, indem man die minimale Substitution durchführt. Damit ergibt sich der Hamiltonoperator zu

$$H = E_\mathrm{g} + \frac{(\boldsymbol{p}_\mathrm{e} + e\boldsymbol{A}(\boldsymbol{r}_\mathrm{e}))^2}{2m_\mathrm{e}} + \frac{(\boldsymbol{p}_\mathrm{h} - e\boldsymbol{A}(\boldsymbol{r}_\mathrm{h}))^2}{2m_\mathrm{h}} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon|\boldsymbol{r}_\mathrm{e} - \boldsymbol{r}_\mathrm{h}|}. \tag{4.11}$$

Für konstante Magnetfelder ist das Vektorpotential gegeben durch

$$\boldsymbol{A}(\boldsymbol{r}) = \frac{1}{2}(\boldsymbol{B} \times \boldsymbol{r}). \tag{4.12}$$

Für ein System aus N (in diesem Fall zwei) geladenen Teilchen mit Ladung e_i und Masse m_i lässt sich im konstanten Magnetfeld ein verallgemeineter Gesamtimpulsoperator einführen [11]

$$\boldsymbol{P}_0 = \sum_i^N (\boldsymbol{p}_i - e_i\boldsymbol{A}_i + \boldsymbol{B} \times \boldsymbol{r_i}) = \sum_i^N (\boldsymbol{p}_i + \frac{e_i}{2}\boldsymbol{B} \times \boldsymbol{r_i}) = \boldsymbol{P} - \frac{e}{2}\boldsymbol{B} \times \boldsymbol{r}. \tag{4.13}$$

Dieser kommutiert mit dem Hamiltonoperator und liefert damit eine Konstante der Bewegung. Außerdem kommutieren die Komponenten des verallgemeinerten Impulsoperators untereinander, sofern die Gesamtladung Null ist [11]. Mit dem Ansatz

$$\psi(\boldsymbol{r}, \boldsymbol{R}) = e^{i(\boldsymbol{K} + \frac{e}{2\hbar}\boldsymbol{B}\times\boldsymbol{r})\boldsymbol{R}} F(\boldsymbol{r}) \tag{4.14}$$

ergibt sich

$$\begin{aligned} HF(\boldsymbol{r}) = \Bigg(E_\mathrm{g} + \frac{\hbar^2\boldsymbol{K}^2}{2M} + \frac{e}{M}(\hbar\boldsymbol{K} \times \boldsymbol{B}) \cdot \boldsymbol{r} + \frac{1}{2\mu}\boldsymbol{p}^2 + \frac{e}{2}\left[\frac{1}{m_\mathrm{e}} - \frac{1}{m_\mathrm{h}}\right]\boldsymbol{B} \cdot (\boldsymbol{r} \times \boldsymbol{p}) \\ + \frac{e^2}{8\mu}(\boldsymbol{B} \times \boldsymbol{r})^2 - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon|\boldsymbol{r}|}\Bigg) F(\boldsymbol{r}) = EF(\boldsymbol{r}). \end{aligned} \tag{4.15}$$

Hierin treten neben den bereits bekannten Termen nun noch der paramagnetische Term $\frac{e}{2}\left[\frac{1}{m_\mathrm{e}} - \frac{1}{m_\mathrm{h}}\right]\boldsymbol{B} \cdot (\boldsymbol{r} \times \boldsymbol{p})$ und der diamagnetische Term $\frac{e^2}{8\mu}(\boldsymbol{B} \times \boldsymbol{r})^2$ auf. Außerdem gibt es einen weiteren feldabhängigen Term $\frac{e}{M}(\hbar\boldsymbol{K} \times \boldsymbol{B}) \cdot \boldsymbol{r}$. Dieser beschreibt den sogenannten „Motional-Stark-Effekt“, ein quasi-elektrisches Feld, welches ein Beobachter, der sich mit dem Schwerpunkt des Exzitons bewegt, wahrnimmt [1].

4.3. Numerische Methode zur Berechnung der Exzitonenergien

Für ein konstantes Magnetfeld in z-Richtung

$$\boldsymbol{B} = B\boldsymbol{e}_z \tag{4.16}$$

ergibt sich die folgende Eigenwertgleichung für die Energie der Exzitonen im Magnetfeld:

$$H\Psi = \left(E_\mathrm{g} + \frac{\hbar^2 \boldsymbol{K}^2}{2M} + \frac{e\hbar}{M}(-K_x y + K_y x)B - \frac{\hbar^2}{2\mu}\Delta + \frac{e}{2}\left[\frac{1}{m_\mathrm{e}} - \frac{1}{m_\mathrm{h}}\right] BL_z \right. \\ \left. + \frac{e^2}{8\mu}B^2(x^2+y^2) - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon r}\right)\Psi = E\Psi. \tag{4.17}$$

Die Lösung dieser Schrödingergleichung kann erhalten werden, indem man sie in einer geeigneten vollständigen Basis diagonalisiert. Hierzu werden die Coulomb-Sturm'schen-Basisfunktionen verwendet [12]:

$$\psi_{n_r lm}(\boldsymbol{r}) = N_{n_r l}(2r/b)^l L_{n_r}^{2l+1}(2r/b)e^{-r/b}Y_{lm}(\boldsymbol{r}) \tag{4.18}$$

mit

$$N_{n_r l} = \left(\frac{2}{b}\right)^{\frac{3}{2}} \left[\frac{n_r!}{2(n_r+l+1)(n_r+2l+1)!}\right]^{\frac{1}{2}}, \tag{4.19}$$

den Laguerre-Polynomen $L_{n_r}^m(x)$ und den Kugelfächenfunktionen $Y_{lm}(\boldsymbol{r})$. Dabei ist n_r die radiale Quantenzahl. Sie ist mit der Hauptquantenzahl n wie folgt verbunden:

$$n = n_r + l + 1,\ n_r, l \in \mathbb{N}_0 \tag{4.20}$$

Die Funktionen (4.18) sind nicht mehr orthogonal zueinander, sondern orthogonal bezüglich der Gewichtung $1/r$,

$$\int d^3\boldsymbol{r}\psi^*_{n_r' l' m'}(\boldsymbol{r})\frac{1}{r}\psi_{n_r lm}(\boldsymbol{r}) = \frac{1}{b(n_r+l+1)}\delta_{n_r' n_r}\delta_{l' l}\delta_{m' m}. \tag{4.21}$$

Dies führt für die Schrödingergleichung (4.17) auf ein verallgemeinertes Eigenwertproblem der Form

$$\boldsymbol{A}(b, \boldsymbol{k}, B)\Psi = \lambda \boldsymbol{M}\Psi \tag{4.22}$$

mit einem Konvergenzparameter b. Dieser lässt sich so einstellen, dass die Energien für eine bestimmte Hauptquantenzahl n besonders gut konvergieren. In dieser Arbeit wird er so gewählt, dass dies für $n = 7$ der Fall ist, da so ein möglichst breites Spektrum an Exzitonenenergien konvergiert. Die Coulomb-Sturm'sche-Basis ist unendlich-dimensional und somit würden sich unendlich große Matrizen ergeben. Da sich diese nicht numerisch behandeln lassen, berücksichtigt man nur die Zustände bis zu einer endlichen Quantenzahl n_max. Die Dimenison der Matrizen ist dann gegeben durch

$$D = \sum_{n=1}^{n_\mathrm{max}}\sum_{l=0}^{n-1}(2l+1) = \sum_{n=1}^{n_\mathrm{max}} n^2 = \frac{1}{6}n_\mathrm{max}(n_\mathrm{max}+1)(2n_\mathrm{max}+1). \tag{4.23}$$

Die in dieser Arbeit verwendete maximale Quantenzahl $n_\mathrm{max} = 26$ führt somit zu einer Matrixgröße $D = 6201$. Für solche Matrizen lässt sich das verallgemeinerte Eigenwertproblem (4.22) mit einer geeigneten Lapack-Routine lösen [13].

4.4. Kupferoxydul

Die Berechnungen in dieser Arbeit sollen für den Halbleiter Kupferoxydul Cu_2O durchgeführt werden. In Abbildung 4.1 ist die Bandstruktur von Cu_2O schematisch dargestellt. Die Bandlücke für Kupferoxydul beträgt $E_g = 2.17208$ eV [14]. Die Bezeichnungen „gelb“, „grün“, „blau“ und „violett“ für die verschiedenen Exzitonserien rühren her vom Spektralbereich des Lasers der zur Anregung der jeweiligen Exzitonenserie benötigt wird. In dieser Arbeit wird ausschließlich die gelbe Exzitonenserie betrachtet. Die effektive Masse des Elektrons im Leitungsband beträgt $m_e = 0.99 m_{el}$ [14]. Die effektive Masse des Lochs ist gegeben durch den Luttinger-Parameter $\gamma_1 = 1.76$ zu $m_h = m_{el}/\gamma_1$ [14]. Oft führt man den Parameter $\gamma_1' = \gamma_1 + \frac{m_{el}}{m_e}$ ein, der mit der reduzierten Masse über $\mu = \gamma_1' m_{el}$ zusammenhängt. In Cu_2O beträgt $\gamma_1' = 2.77$ [14]. In der Regel muss in Cu_2O die Kopplung zwischen den drei Valenzbändern über einen Quasi-Spin $I = 1$ berücksichtigt werden [14]. Zusätzlich tritt eine Spin-Bahn-Wechselwirkung zwischen dem Quasi-Spin I und dem Lochspin s_h auf, welche zu einem Gesamtlochspin von $J = I + s_h$ führt. Beide Kopplungen werden in dieser Arbeit jedoch nicht berücksichtigt. Stattdessen wird allein die gelbe Serie betrachtet, zu welcher der Gesamtlochspin $J = 1/2$ gehört [14].

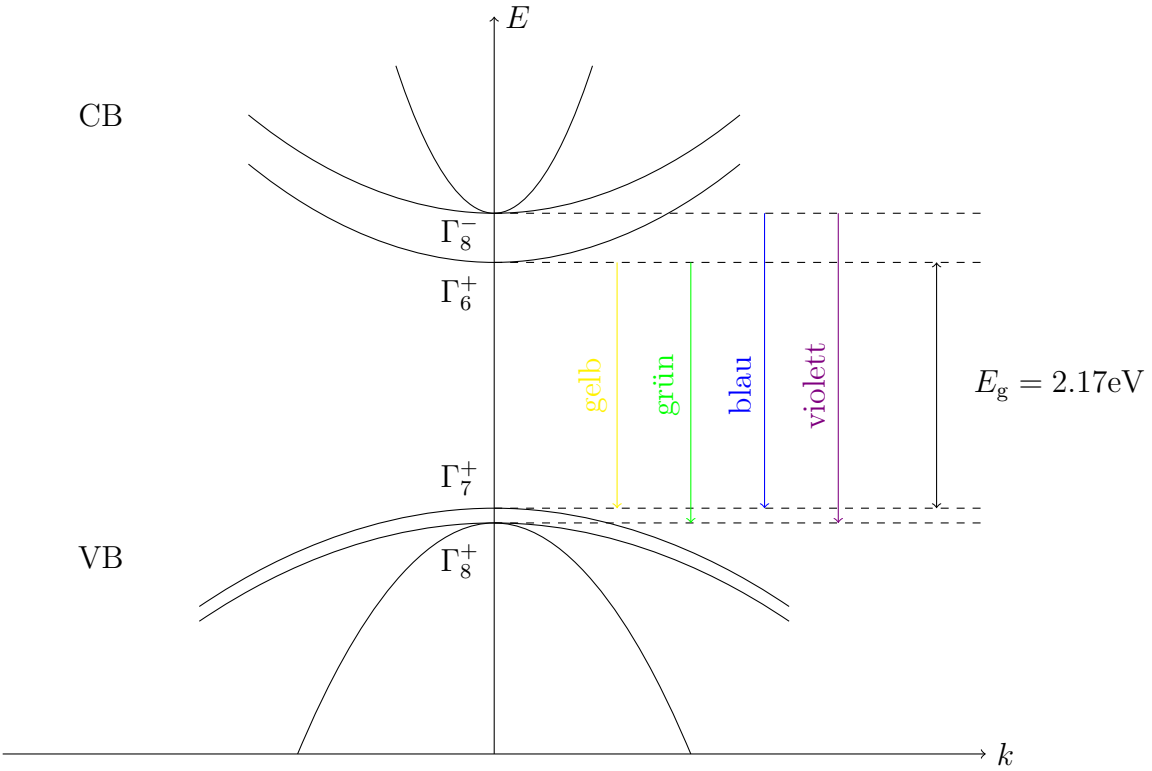


Abbildung 4.1.: Schematische Bandstruktur von Kupferoxydul, sinngemäß nach [14].

Für Exzitonen im Magnetfeld muss der Hamiltonoperator, noch um einen zusätzlichen Term

$$H_B = \frac{\mu_B}{\hbar}(g_\mathrm{c}\boldsymbol{s}_\mathrm{e} + (3\kappa + \frac{g_\mathrm{s}}{2})\boldsymbol{I} - g_\mathrm{s}\boldsymbol{s}_\mathrm{h})\boldsymbol{B} \tag{4.24}$$

ergänzt werden, welcher die Wechselwirkung der Spins mit dem Magnetfeld beschreibt. Der g-Faktor für das Leitungsband ist dabei gegeben durch $g_\mathrm{c} = 2.1$ [15], der vierte Luttinger Parameter ist $\kappa = -0.5$ [15] und $g_\mathrm{s} = 2$ stellt den gyromagnetischen Faktor des Elektrons dar. Bei der Beschränkung auf $J = 1/2$ und $\boldsymbol{B} = B\boldsymbol{e}_z$ kann gezeigt werden (siehe Anhang A), dass sich dieser Operator auf

$$H_B = \frac{\mu_B}{\hbar}(g_\mathrm{c}s_\mathrm{e} + (4\kappa + g_\mathrm{s})J_z)B \tag{4.25}$$

umschreiben lässt. Wir verwenden bei unseren numerischen Berechnungen folglich die Coulomb-Sturm'sche Basis aus Abschnitt 4.3 und geben zusätzlich die Quantenzahlen M_{s_e} und M_J fest vor, da es sich bei beiden um gute Quantenzahlen handelt. Gleichung (4.25) bedeutet bei vorgegebenem M_{s_e} und M_J somit einfach eine Verschiebung der Energie um

$$\frac{\mu_B}{\hbar}(g_\mathrm{c}M_{s_\mathrm{e}} + (4\kappa + g_\mathrm{s})M_J)B. \tag{4.26}$$

Mit den zusätzlichen Quantenzahlen lautet der Ansatz für die Wellenfunktion in den numerischen Rechnungen

$$|\Psi\rangle = \sum_{n_r l m M_J} c_{n_r l m M_J} |n_r l m\rangle |s_\mathrm{e} M_{s_\mathrm{e}}\rangle |(I s_\mathrm{h}) J M_J\rangle . \tag{4.27}$$

Die Matrixelemente für das verallgemeinerte Eigenwertproblem können analog zu [14, 15] berechnet werden.

4.5. Oszillatorstärken

Betrachtet man die Wechselwirkung von Licht mit Exzitonen, so kann man die Exzitonen in einem einfachen Modell (Lorentz-Modell [1]) als dipolaktive Oszillatoren beschreiben. Dabei wird jedem Oszillator eine Stärke zugeordnet, je nachdem wie stark er mit dem elektromagnetischen Strahlungsfeld koppelt. In einer quantenmechanischen Betrachtung beschreibt die Oszillatorstärke, wie stark zwei Zustände miteinander koppeln. Sie ist dann gegeben durch das jeweilige Übergangsmatrixelement [4]. Betrachtet man die Anregung eines Exzitons aus dem Grundzustand des Halbleiters, so beschreibt die zugehörige Oszillatorstärke, wie stark die Kopplung zwischen Licht und dem Exzitonzustand ist. In Kupferoxydul sind Übergänge paritätsverboten. Ohne Magnetfeld ist die Oszillatorstärke f_n für einen Zustand mit Hauptquantenzahl n deshalb proportional zu [1]

$$f_n \sim \frac{n^2 - 1}{n^5}. \tag{4.28}$$

Für die gelbe Serie findet man experimentell $f_2 = 2.8 \cdot 10^{-6}$ [1]. Damit lässt sich die Proportionalitätskonstante bestimmen. Die Oszillatorstärken sind somit für Kupferoxydul gegeben durch

$$f_n \approx 3 \cdot 10^{-5} \frac{n^2 - 1}{n^5}. \tag{4.29}$$

4.5.1. Oszillatorstärken im Magnetfeld

Die Übergänge in Kupferoxydul sind paritätsverboten. Die Übergangsmatrixelemente und damit die Oszillatorstärken sind dann proportional zu der Ableitung der Einhüllendenfunktion an der Stelle $r = 0$, weshalb der Exzitonenzustand eine Komponente mit $l = 1$ besitzen muss [15]. Zudem darf sich beim Übergang der Gesamtspin $S = s_\mathrm{e} + s_\mathrm{h} = 0$ nicht ändern. Für linear polarisiertes Licht in x, y, z Richtung ist dann die relative Oszillatorstärke nach [15] gegeben durch

$$f_\mathrm{rel} \sim |\lim_{r \to 0} \frac{\partial}{\partial r} \langle \pi_{x,y,z} | \Psi \rangle |^2 \tag{4.30}$$

mit den Zuständen

$$\begin{aligned} |\pi_x\rangle &= \frac{i}{\sqrt{2}} \left(|2, -1\rangle_D + |2, 1\rangle_D \right), \\ |\pi_y\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left(|2, -1\rangle_D - |2, 1\rangle_D \right), \\ |\pi_z\rangle &= \frac{i}{\sqrt{2}} \left(|2, -2\rangle_D - |2, 2\rangle_D \right). \end{aligned} \tag{4.31}$$

und der Wellenfunktion $|\Psi\rangle$ von Gleichung (4.27) in Ortsdarstellung. Dabei ist $|F_t,\, M_{F_t}\rangle_D$ eine Abkürzung für den Zustand

$$|(s_\mathrm{e},\, s_\mathrm{h}),\, S,\, M_S\rangle\, |I,\, L,\, F_t,\, M_{F_t}\rangle = |(\frac{1}{2},\, \frac{1}{2}),\, 0,\, 0\rangle\, |1,\, 1,\, F_t,\, M_{F_t}\rangle \tag{4.32}$$

mit dem totalen Drehimpuls $F_t = I + L$. Ohne Magnetfeld führt Gleichung (4.30) gerade auf $f_\mathrm{rel} \sim \frac{n^2-1}{n^5}$. Betrachtet werden sollen in dieser Arbeit die Oszillatorstärken für die beiden Fälle $\boldsymbol{k} \parallel \boldsymbol{B}$ und $\boldsymbol{k} \perp \boldsymbol{B}$, wobei das B-Feld in z-Richtung orientiert ist $\boldsymbol{B} = B\boldsymbol{e}_z$.

1. $\boldsymbol{k} \parallel \boldsymbol{B}$

Eine gruppentheoretische Betrachtung führt auf die korrekte Linearkombination der Zustände (4.31) für $\boldsymbol{k} \parallel \boldsymbol{B}$ [15]. Dabei treten nun ein Zustand mit longitudinaler Polarisation

$$|\pi_\parallel\rangle = \frac{i}{\sqrt{2}} \left(|2, -2\rangle_D - |2, 2\rangle_D \right) \tag{4.33}$$

und zwei Zustände mit transversal-zirkularer Polarisation auf

$$\begin{aligned} |\sigma_\perp^+\rangle &= -\frac{i}{\sqrt{2}} \left(|\pi_x\rangle + i \, |\pi_y\rangle \right) = |2,-1\rangle_D \,, \\ |\sigma_\perp^-\rangle &= \frac{i}{\sqrt{2}} \left(|\pi_x\rangle - i \, |\pi_y\rangle \right) = - \, |2,-1\rangle_D \,. \end{aligned} \tag{4.34}$$

Für das Licht mit longitudinaler Polarisation lässt sich aufgrund der Symmetrie keine Wechselwirkung mit dem Licht beobachten. Die Oszillatorstärke für einen Zustand Ψ ist in diesem Fall also gegeben über

$$f_{\text{rel}} \sim | \lim_{r \to 0} \frac{\partial}{\partial r} \langle \sigma_\perp^\pm | \Psi \rangle \, |^2. \tag{4.35}$$

2. $\boldsymbol{k} \perp \boldsymbol{B}$

Wieder gibt es einen Zustand mit longitudinaler Polarisation

$$|\pi_\parallel\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(|2,-1\rangle_D - |2,1\rangle_D \right). \tag{4.36}$$

Außerdem sind zwei Zustände mit transversaler Polarisation zu finden,

$$\begin{aligned} |\pi_{\perp 1}\rangle &= \frac{i}{\sqrt{2}} \left(|2,-1\rangle_D + |2,1\rangle_D \right), \\ |\pi_{\perp 2}\rangle &= -\frac{i}{\sqrt{2}} \left(|2,-2\rangle_D - |2,2\rangle_D \right). \end{aligned} \tag{4.37}$$

Die Oszillatorstärke für einen Zustand Ψ ist in diesem Fall also gegeben über

$$f_{\text{rel}} \sim | \lim_{r \to 0} \frac{\partial}{\partial r} \langle \pi_{\perp j} | \Psi \rangle \, |^2. \tag{4.38}$$

Diese lassen sich analog zu [15] berechnen.

5. Polaritonen

Betrachtet man Licht im Festkörper, so kann man dieses, in einer einfachen Näherung, als elektromagnetische Welle in einem Medium mit einer konstanten Dielektrizitätskonstante betrachten. Dieses Modell ist allerdings nur tragbar, so lange das Licht nicht mit den Anregungen im Festkörper, in unserem Fall den Exzitonen, wechselwirkt. Tritt das Licht in den Festkörper ein, so kann ein Photon absorbiert und dadurch ein Exziton erzeugt werden. Das Exziton kann dann, unter Aussendung eines Photons, dessen Eigenschaften mit denen des ursprünglich absorbierten Photons identisch sind, zerfallen. Das so frei gewordene Photon kann an einer anderen Stelle wieder ein Exziton anregen. Photonen und Exzitonen sind somit gekoppelt. Um dies zu beschreiben, wird ein neues Quasiteilchen, das Polariton-Exziton, eingeführt [5]. Im Folgenden werden wir dieses nur noch als Polariton bezeichnen. Zuvor erfolgt an dieser Stelle noch eine kurze Einführung in den Formalismus der zweiten Quantisierung. Hier werden, wie bereits für den harmonischen Oszillator bekannt, Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren eingeführt, mit deren Hilfe die Theorie der Polaritonen dann beschrieben wird. Da die beteiligten Teilchen, nämlich Photonen, Exzitonen und Polaritonen, allesamt Bosonen sind, werden wir uns hier auf diese beschränken. Wir orientieren uns hierbei an [10].

5.1. Darstellung mit Erzeugern und Vernichtern

Zunächst werden ein Erzeugungsoperator $a_\alpha^\dagger$ und ein Vernichtungsoperator a_α eingeführt. Für Bosonen gelten die folgenden Kommutationsregeln [10]:

$$\left[a_\alpha, a_{\alpha'}^\dagger\right] = \delta_{\alpha\alpha'}, \quad [a_\alpha, a_{\alpha'}] = 0, \quad \left[a_\alpha^\dagger, a_{\alpha'}^\dagger\right] = 0. \tag{5.1}$$

Zusätzlich führen wir das Vakuum $|0\rangle$ ein. Es gilt

$$a_\alpha |0\rangle = 0. \tag{5.2}$$

Der Erzeugunsoperator $a_\alpha^\dagger$ erzeugt nun Teilchen im Zustand ϕ_α,

$$a_\alpha^\dagger |0\rangle = |\phi_\alpha\rangle . \tag{5.3}$$

Der Vernichtungsoperator a_α vernichtet Teilchen im Zustand ϕ_α. Die N-Teilchen-Wellenfunktion für Bosonen lässt sich dann darstellen als

$$|n_1, n_2, ..., n_k, ..., n_\infty\rangle = \frac{(a_\infty^\dagger)^{n_\infty}}{\sqrt{n_\infty!}} \cdots \frac{(a_k^\dagger)^{n_k}}{\sqrt{n_k!}} \cdots \frac{(a_2^\dagger)^{n_2}}{\sqrt{n_2!}} \frac{(a_1^\dagger)^{n_1}}{\sqrt{n_1!}} |0\rangle \tag{5.4}$$

mit n_k Teilchen im Zustand k. Über die Kommutationsregeln ergibt sich die Wirkung der Erzeuger und Vernichter auf die N-Teilchen-Wellenfunktion,

$$a_k \left|...,n_k,...\right\rangle = \sqrt{n_k}\left|...,n_k-1,...\right\rangle, \tag{5.5}$$

$$a_k^\dagger \left|...,n_k,...\right\rangle = \sqrt{n_k+1}\left|...,n_k+1,...\right\rangle. \tag{5.6}$$

Hiermit lässt sich ein weiterer wichtiger Operator, der Besetzungszahloperator $\hat{n}_k = a_k^\dagger a_k$, einführen, der die Zahl der Teilchen im Zustand k ausgibt:

$$a_k^\dagger a_k \left|...,n_k,...\right\rangle = n_k \left|...,n_k,...\right\rangle \tag{5.7}$$

Um Erwartungswerte zu berechnen, wird noch die Darstellung von Operatoren im Formalismus der zweiten Quantisierung benötigt. Für einen μ-Teilchen-Operator A_μ ist diese gegeben durch [10]

$$A_\mu = \frac{1}{\mu!}\sum_{i_1,...,i_\mu,k_1,...,k_\mu} a_{i_1}^\dagger \cdots a_{i_\mu}^\dagger \left|0\right\rangle \left\langle i_1,...,i_\mu|A_\mu|k_1,...,k_\mu\right\rangle \left\langle 0\right| a_{k_1}\cdots a_{k_\mu} \tag{5.8}$$

mit

$$\left\langle i_1,...,i_\mu|A_\mu|k_1,...,k_\mu\right\rangle = \int dx_1\cdots dx_\mu \phi_{i_1}^*(x_1)\cdots\phi_{i_\mu}^*(x_\mu)A_\mu(x_1,...,x_\mu)\phi_{i_1}^*(x_1)\cdots\phi_{i_\mu}^*(x_\mu). \tag{5.9}$$

5.2. Die Polaritontransformation

Für Halbleiter wie Kupferoxydul lässt sich der Hamiltonoperator für die Wechselwirkung von Photonen und Exzitonen darstellen als [1, 8]

$$H = \sum_{\nu\boldsymbol{K}} E_{\nu\boldsymbol{K}} B_{\nu\boldsymbol{K}}^\dagger B_{\nu\boldsymbol{K}} + \sum_{\xi\boldsymbol{\kappa}} \hbar\omega_{\boldsymbol{\kappa}} a_{\xi\boldsymbol{\kappa}}^\dagger a_{\xi\boldsymbol{\kappa}} + \sum_{\nu\boldsymbol{K}\xi\boldsymbol{\kappa}} \delta_{\boldsymbol{\kappa},\boldsymbol{K}+\boldsymbol{G}} g_{\nu\xi\boldsymbol{\kappa}} \left(a_{\xi\boldsymbol{\kappa}}^\dagger B_{\nu\boldsymbol{K}} + a_{\xi\boldsymbol{\kappa}} B_{\nu\boldsymbol{K}}^\dagger\right). \tag{5.10}$$

Der erste Term beschreibt die Exzitonen: $B_{\nu\boldsymbol{K}}^\dagger B_{\nu\boldsymbol{K}}$ gibt dabei die Anzahl der Exzitonen in einem Zustand ν mit gegebenem $\boldsymbol{K}$-Wert an, $E_{\nu\boldsymbol{K}}$ die zugehörige Energie. Für die Photonen gibt $a_{\xi\boldsymbol{\kappa}}^\dagger a_{\xi\boldsymbol{\kappa}}$ die Anzahl der Photonen zu einer Polarisation ξ und dem Wellenvektor $\boldsymbol{\kappa}$ an. Die zugehörige Energie ist $\hbar\omega_{\boldsymbol{\kappa}} = \hbar\boldsymbol{\kappa}c/\sqrt{\epsilon}$. Im Impulsraum sind die Energien des Photons in Abhängigkeit von $\boldsymbol{\kappa}$ somit alle auf einer Geraden, der Lichtgeraden, zu finden. Der letzte Term beschreibt die Kopplung von Exzitonen und Photonen. Dabei tritt die Kopplungsstärke $g_{\nu\xi\boldsymbol{\kappa}}$ auf. Betrachtet man Licht und Exzitonen in der ersten Brillouinzone, so ist $\delta_{\boldsymbol{\kappa},\boldsymbol{K}+\boldsymbol{G}} = 0$ für jede Kombination von $\boldsymbol{\kappa}$ und $\boldsymbol{K}$, falls $\boldsymbol{G} \neq \boldsymbol{0}$. Beschränken wir uns weiter auf Licht mit einer Polarisation, so ergibt sich der folgende Hamiltonoperator:

$$H = \sum_{\nu\boldsymbol{K}} E_{\nu\boldsymbol{K}} B_{\nu\boldsymbol{K}}^\dagger B_{\nu\boldsymbol{K}} + \sum_{\boldsymbol{\kappa}} \hbar\omega_{\boldsymbol{\kappa}} a_{\boldsymbol{\kappa}}^\dagger a_{\boldsymbol{\kappa}} + \sum_{\nu\boldsymbol{K}\boldsymbol{\kappa}} \delta_{\boldsymbol{\kappa},\boldsymbol{K}} g_{\nu\boldsymbol{\kappa}} \left(a_{\boldsymbol{\kappa}}^\dagger B_{\nu\boldsymbol{K}} + a_{\boldsymbol{\kappa}} B_{\nu\boldsymbol{K}}^\dagger\right) \tag{5.11}$$

Die Kopplungsstärken $g_{\nu\boldsymbol{\kappa}}$ sind proportional zur Wurzel der Oszillatorstärke $f_{\nu\boldsymbol{K}}$ [1] und gegeben durch [8]

$$g_{\nu\boldsymbol{\kappa}} = \sqrt{f_{\nu\boldsymbol{\kappa}}}\frac{E_{\nu\boldsymbol{\kappa}}}{2}. \tag{5.12}$$

Da im Fall von unterschiedlichem $\boldsymbol{\kappa}$ und $\boldsymbol{K}$ keine Wechselwirkung auftritt, bleibt für die Wechselwirkung noch

$$H = \sum_{\boldsymbol{K}} \left(\sum_{\nu} E_{\nu\boldsymbol{K}} B^{\dagger}_{\nu\boldsymbol{K}} B_{\nu\boldsymbol{K}} + \hbar\omega_{\boldsymbol{K}} a^{\dagger}_{\boldsymbol{K}} a_{\boldsymbol{K}} + \sum_{\nu} g_{\nu\boldsymbol{K}} \left(a^{\dagger}_{\boldsymbol{K}} B_{\nu\boldsymbol{K}} + a_{\boldsymbol{K}} B^{\dagger}_{\nu\boldsymbol{K}} \right) \right) \tag{5.13}$$

zu betrachten. Da es keine Wechselwirkung zwischen verschiedenen Wellenvektoren $\boldsymbol{K}$ gibt, lässt sich das Problem für jeden Wert von $\boldsymbol{K}$ separat lösen.

5.2.1. Polaritontransformation für eine Polarisation und einen Exzitonzustand

Wir betrachten zunächst den einfachsten Fall, bei dem ein Exzitonenzustand mit Licht einer Polarisation wechselwirkt. Hierfür lässt sich der Hamiltonoperator schreiben als

$$H = \sum_{\boldsymbol{K}} \left(E_{\boldsymbol{K}} B^{\dagger}_{\boldsymbol{K}} B_{\boldsymbol{K}} + \hbar\omega_{\boldsymbol{K}} a^{\dagger}_{\boldsymbol{K}} a_{\boldsymbol{K}} + g_{\boldsymbol{K}} \left(a^{\dagger}_{\boldsymbol{K}} B_{\boldsymbol{K}} + a_{\boldsymbol{K}} B^{\dagger}_{\boldsymbol{K}} \right) \right). \tag{5.14}$$

Nun kann man einen Polaritonoperator $p_{\boldsymbol{K}}$ einführen, der eine Linearkombination aus den Operatoren des Exzitons und des Photons darstellt [4]:

$$p_{\boldsymbol{K}} = u_{\boldsymbol{K}} B_{\boldsymbol{K}} + v_{\boldsymbol{K}} a_{\boldsymbol{K}}. \tag{5.15}$$

Da es sich bei Exzitonen, Photonen und Polaritonen um Bosonen handelt, müssen die Operatoren die Kommutationsregeln (5.1) erfüllen:

$$\begin{aligned} \left[p_{\boldsymbol{K}}, p^{\dagger}_{\boldsymbol{K}'} \right] &= \left[u_{\boldsymbol{K}} B_{\boldsymbol{K}} + v_{\boldsymbol{K}} a_{\boldsymbol{K}}, u_{\boldsymbol{K}'} B^{\dagger}_{\boldsymbol{K}'} + v_{\boldsymbol{K}'} a^{\dagger}_{\boldsymbol{K}'} \right] \\ &= (|u_{\boldsymbol{K}}|^2 + |v_{\boldsymbol{K}}|^2)\delta_{\boldsymbol{K}\boldsymbol{K}'} \\ &= \delta_{\boldsymbol{K}\boldsymbol{K}'}. \end{aligned} \tag{5.16}$$

Der Hamiltonoperator soll auf die Form

$$H = \sum_{\boldsymbol{K}} \hbar\Omega_{\boldsymbol{K}} p^{\dagger}_{\boldsymbol{K}} p_{\boldsymbol{K}} \tag{5.17}$$

gebracht werden. Hierzu betrachtet man den Kommutator von Polariton- und Hamiltonoperator. Wertet man diesen in der Darstellung mit Polaritonoperatoren aus, so ergibt

sich

$$\begin{aligned}
[p_{\boldsymbol{K}}, H] &= \sum_{\boldsymbol{K}'} \hbar\Omega_{\boldsymbol{K}'} \left[p_{\boldsymbol{K}}, p^\dagger_{\boldsymbol{K}'} p_{\boldsymbol{K}'}\right] \\
&= \sum_{\boldsymbol{K}'} \hbar\Omega_{\boldsymbol{K}'} \left[p_{\boldsymbol{K}}, p^\dagger_{\boldsymbol{K}'}\right] p_{\boldsymbol{K}'} + p^\dagger_{\boldsymbol{K}'} \left[p_{\boldsymbol{K}}, p_{\boldsymbol{K}'}\right] \\
&= \sum_{\boldsymbol{K}'} \hbar\Omega_{\boldsymbol{K}'} \delta_{\boldsymbol{K}\boldsymbol{K}'} p_{\boldsymbol{K}'} \\
&= \hbar\Omega_{\boldsymbol{K}} p_{\boldsymbol{K}} \\
&= \hbar\Omega_{\boldsymbol{K}} (u_{\boldsymbol{K}} B_{\boldsymbol{K}} + v_{\boldsymbol{K}} a_{\boldsymbol{K}}).
\end{aligned} \tag{5.18}$$

Auf der anderen Seite lässt sich der Kommutator auch in der Darstellung mit Exziton- und Photonoperator auswerten:

$$\begin{aligned}
[u_{\boldsymbol{K}} B_{\boldsymbol{K}} + v_{\boldsymbol{K}} a_{\boldsymbol{K}}, H] &= \Bigg[u_{\boldsymbol{K}} B_{\boldsymbol{K}} + v_{\boldsymbol{K}} a_{\boldsymbol{K}}, \sum_{\boldsymbol{K}'} \Bigg(E_{\boldsymbol{K}'} B^\dagger_{\boldsymbol{K}'} B_{\boldsymbol{K}'} + \hbar\omega_{\boldsymbol{K}'} a^\dagger_{\boldsymbol{K}'} a_{\boldsymbol{K}'} \\
&\quad + g_{\boldsymbol{K}'} \left(a^\dagger_{\boldsymbol{K}'} B_{\boldsymbol{K}'} + a_{\boldsymbol{K}'} B^\dagger_{\boldsymbol{K}'}\right) \Bigg)\Bigg] \\
&= u_{\boldsymbol{K}} E_{\boldsymbol{K}} B_{\boldsymbol{K}} + v_{\boldsymbol{K}} \hbar\omega_{\boldsymbol{K}'} a_{\boldsymbol{K}} \\
&\quad + \sum_{\boldsymbol{K}'} \left[u_{\boldsymbol{K}} B_{\boldsymbol{K}} + v_{\boldsymbol{K}} a_{\boldsymbol{K}}, g_{\boldsymbol{K}'} \left(a^\dagger_{\boldsymbol{K}'} B_{\boldsymbol{K}'} + a_{\boldsymbol{K}'} B^\dagger_{\boldsymbol{K}'}\right)\right] \\
&= u_{\boldsymbol{K}} E_{\boldsymbol{K}} B_{\boldsymbol{K}} + v_{\boldsymbol{K}} \hbar\omega_{\boldsymbol{K}} a_{\boldsymbol{K}} + g_{\boldsymbol{K}} \left(u_{\boldsymbol{K}} a_{\boldsymbol{K}} + v_{\boldsymbol{K}} B_{\boldsymbol{K}}\right) \\
&= B_{\boldsymbol{K}} \left(u_{\boldsymbol{K}} E_{\boldsymbol{K}} + v_{\boldsymbol{K}} g_{\boldsymbol{K}}\right) + a_{\boldsymbol{K}} \left(u_{\boldsymbol{K}} g_{\boldsymbol{K}} + v_{\boldsymbol{K}} \hbar\omega_{\boldsymbol{K}}\right).
\end{aligned} \tag{5.19}$$

Vergleicht man nun die Koeffizienten der Operatoren in Gleichung (5.18) und Gleichung (5.19), so ergibt sich für die Energie der Polaritonen das folgende Eigenwertproblem:

$$\begin{pmatrix} \hbar\omega_{\boldsymbol{K}} & g_{\boldsymbol{K}} \\ g_{\boldsymbol{K}} & E_{\boldsymbol{K}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} v_{\boldsymbol{K}} \\ u_{\boldsymbol{K}} \end{pmatrix} = \hbar\Omega_{\boldsymbol{K}} \begin{pmatrix} v_{\boldsymbol{K}} \\ u_{\boldsymbol{K}} \end{pmatrix}. \tag{5.20}$$

Dieses ergibt zwei Zustände, das „upper polariton“ und das „lower polariton“ [8]. Dabei wird die Kreuzung der Lichtgeraden und der Exzitonendispersion aufgrund der Wechselwirkung vermieden. In der Quantenmechanik treten solche vermiedenen Kreuzungen immer dann auf, wenn zwei gekoppelte Energieniveaus, die von einem Parameter, in unserem Fall der Wellenzahl, abhängen, sich im Parameterraum kreuzen würden [4]. Dies ist in Abbildung 5.1 dargestellt. Man erkennt, grau dargestellt, die Lichtgerade und eine parabolische Exzitondispersion, die äußeren schwarzen Linien geben die Dispersion mit Wechselwirkung an. Aufgrund der Kopplung kommt es zur vermiedenen Kreuzung.

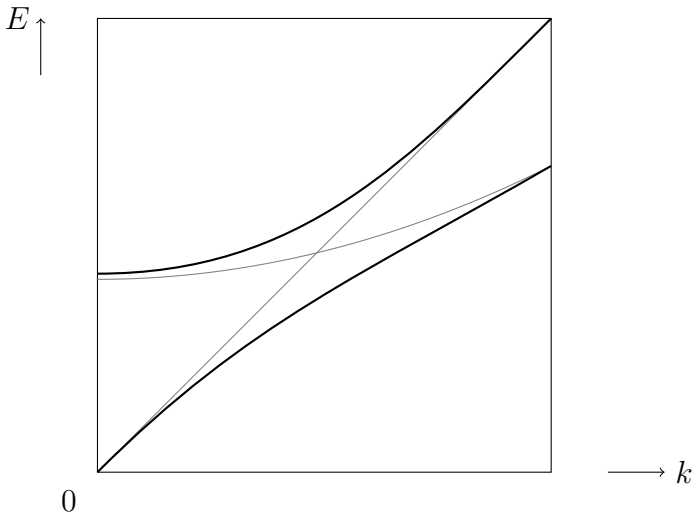


Abbildung 5.1.: Zum Auftreten der vermiedenen Kreuzungen in der Polaritondispersion, sinngemäß nach [16].

5.2.2. Polaritontransformation für eine Polarisation und beliebig viele Exzitonenzustände

Analog zu Gleichung (5.15) kann man einen Polaritonoperator

$$p_{\boldsymbol{K}} = v_{\boldsymbol{K}}^{(0)} a_{\boldsymbol{K}} + \sum_{\nu=1}^{N} v_{\boldsymbol{K}}^{(\nu)} B_{\nu\boldsymbol{K}} \tag{5.21}$$

für eine beliebige Anzahl von Exzitonenzuständen als Linearkombination der Operatoren $B_{\nu\boldsymbol{K}}$ und $a_{\boldsymbol{K}}$ einführen. Da es sich bei Polaritonen um Bosonen handelt, muss die Kommutatorrelation

$$\left[p_{\boldsymbol{K}}, p_{\boldsymbol{K'}}^{\dagger}\right] = \delta_{\boldsymbol{K}\boldsymbol{K'}} \tag{5.22}$$

erfüllt sein. Dies führt auf

$$\sum_{\nu=0}^{N} |v_{\boldsymbol{K}}^{(\nu)}|^2 = 1. \tag{5.23}$$

Der Hamiltonoperator soll wieder auf die Form

$$H = \sum_{\boldsymbol{K}} \hbar\Omega_{\boldsymbol{K}} p_{\boldsymbol{K}}^{\dagger} p_{\boldsymbol{K}} \tag{5.24}$$

gebracht werden. Man erreicht das, wie im Abschnitt 5.2.1 gezeigt, indem man den Ausdruck $[p_{\boldsymbol{K}}, H]$ einmal für den Hamiltonoperator, der über $p_{\boldsymbol{K}}$ ausgedrückt wird, und einmal für den Hamiltonoperator, der über $B_{\nu\boldsymbol{K}}$ und $a_{\boldsymbol{K}}$ ausgedrückt ist, auswertet.

Vergleicht man nun die Koeffizienten der Operatoren $B_{\nu \boldsymbol{K}}$ und $a_{\boldsymbol{K}}$ für die beiden Berechnungen, so führt dies auf das folgende Eigenwertproblem:

$$\begin{pmatrix} \hbar\omega_{\boldsymbol{K}} & g_{1\boldsymbol{K}} & g_{2\boldsymbol{K}} & \dots & g_{N\boldsymbol{K}} \\ g_{1\boldsymbol{K}} & E_{1\boldsymbol{K}} & 0 & \dots & 0 \\ g_{2\boldsymbol{K}} & 0 & E_{2\boldsymbol{K}} & & 0 \\ \vdots & \vdots & & \ddots & \vdots \\ g_{N\boldsymbol{K}} & 0 & 0 & \dots & E_{N\boldsymbol{K}} \end{pmatrix} \boldsymbol{v}_{\boldsymbol{K}} = \hbar\Omega_{\boldsymbol{K}} \boldsymbol{v}_{\boldsymbol{K}}. \tag{5.25}$$

Dabei stehen auf der Diagonalen gerade die Energien des Photons und der Exzitonen, während in der ersten Zeile/Spalte jeweils die zugehörigen Kopplungsstärken auftauchen. Alle anderen Einträge sind Null. Das Eigenwert-Problem (5.25) lässt sich mit Hilfe einer geeigneten LAPACK-Routine lösen [13].

Wir wollen noch ein Augenmerk auf die Komponenten der Eigenvektoren legen. Das Betragsquadrat $|v^0_{\boldsymbol{K}}|^2$ gibt gerade den Anteil des Photons an dem zum Eigenvektor gehörenden Polaritonzustand an. Analog sind die $|v^\nu_{\boldsymbol{K}}|^2$ die Anteile des Exzitons mit Energie $E_{\nu\boldsymbol{K}}$ zu dem entsprechenden Polaritonzustand. Diese Größen sind ein Maß für die Stärke der Vermischung von Photonen und Exzitonen.

6. Auswertung

6.1. Polaritonen ohne Magnetfeld

Die Exzitonenergien sind im Fall ohne Magnetfeld durch Gleichung (4.10) gegeben. Sie sind in Abbildung 6.1 für $B = 0\mathrm{T}$ dargestellt. Hierbei sieht man das parabolische Verhalten, welches durch den Schwerpunktimpuls zu Stande kommt.

Mit den Exzitonenergien lässt sich nun die Polaritontransformation, wie in Kapitel 5 beschrieben, für jeden $\boldsymbol{K}$-Wert einzeln durchführen. In Abbildung 6.2 wird dabei links der Fall ohne Kopplung von Licht und Exzitonen und im Vergleich dazu rechts der Fall mit Kopplung von Licht und Exzitonen für $B = 0\mathrm{T}$ dargestellt. Man erkennt dabei für den Fall mit Kopplung, dass es zu keinen Kreuzungen zwischen ursprünglichen Exziton-

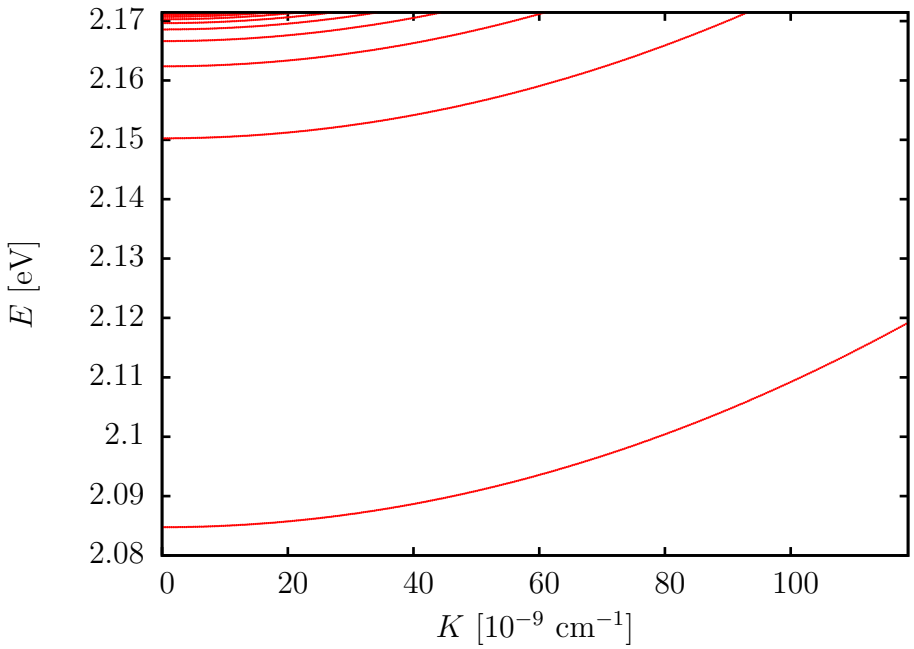


Abbildung 6.1.: Dispersion der Exzitonen für $B = 0\mathrm{T}$. Die gezeigten Linien gehören mit aufsteigender Energie zu den Zuständen mit Hauptquantenzahl $n = 1, 2, 3, \ldots$

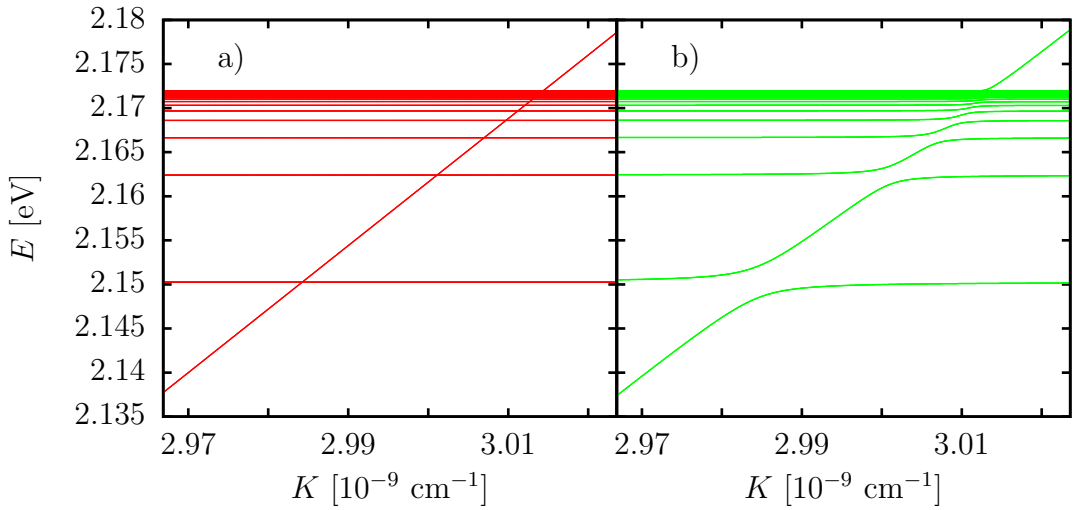


Abbildung 6.2.: a) Lichtgerade und Exzitonenergien ohne Wechselwirkung (rot) sowie b) Dispersionsrelation der Polaritonen ohne Magnetfeld (grün).

energien und der Lichtgeraden kommt. Tritt das Licht in Wechselwirkung mit den Exzitonen, so werden die Kreuzung der Lichtgeraden und der Exzitonenenergien vermieden. Stattdessen nähert sich das energetisch tiefer gelegene Polariton dem darüberliegenden Exzitonenniveau im Wechselwirkungsbereich asymptotisch an.

6.2. Polaritonen im Magnetfeld

Nachfolgend soll die Polaritontransformation im Magnetfeld untersucht werden. Da es im Magnetfeld zur Aufspaltung der einzelnen Energieniveaus kommt, betrachten wir hier exemplarisch die zu den Hauptquantenzahlen $n = 2$ und $n = 3$ gehörigen Energieniveaus. In den nachfolgenden Abbildungen sind neben den Polaritondispersionen zusätzlich die Exzitonenergieniveaus eingezeichnet. Die Farbe des jeweiligen Niveaus gibt die Oszillatorstärke des Exzitonzustandes an. Zunächst soll der Einfluss der Stärke des Magnetfeldes betrachtet werden. Dazu wird die Magnetfeldstärke für $M_J = -\frac{1}{2}$, $M_e = \frac{1}{2}$ und einer Ausrichtung des Schwerpunktimpulses orthogonal zur Ausrichtung des Magnetfeldes variiert. Anschließend soll der Einfluss der Orientierung des Schwerpunktimpulses zum Magnetfeld betrachtet werden. Dazu wird ein Magnetfeld von $B = 6\mathrm{T}$ vorgegeben. Weiter wird betrachtet, welchen Einfluss die Wahl der guten Quantenzahlen M_J und M_e auf die Polaritonen hat. Abschließend soll betrachtet werden, welchen Anteil die Photonen beziehungsweise Exzitonen an den Polaritonen haben.

6.2.1. Einfluss der Magnetfeldstärke

In diesem Abschnitt soll die Dispersionsrelation der Polaritonen unter dem Einfluss der Stärke des Magnetfeldes untersucht werden. Wir betrachten hierzu das Energieniveau zur Hauptquantenzahl $n = 2$ und erhöhen das Magnetfeld in Zwei-Tesla-Schritten bis auf $B = 6\text{T}$. Die vorgegebenen guten Quantenzahlen sind hierbei $M_J = -\frac{1}{2}$ und $M_e = \frac{1}{2}$ und die Schwerpunktbewegung erfolgt senkrecht zum eingestellten Magnetfeld. Dabei

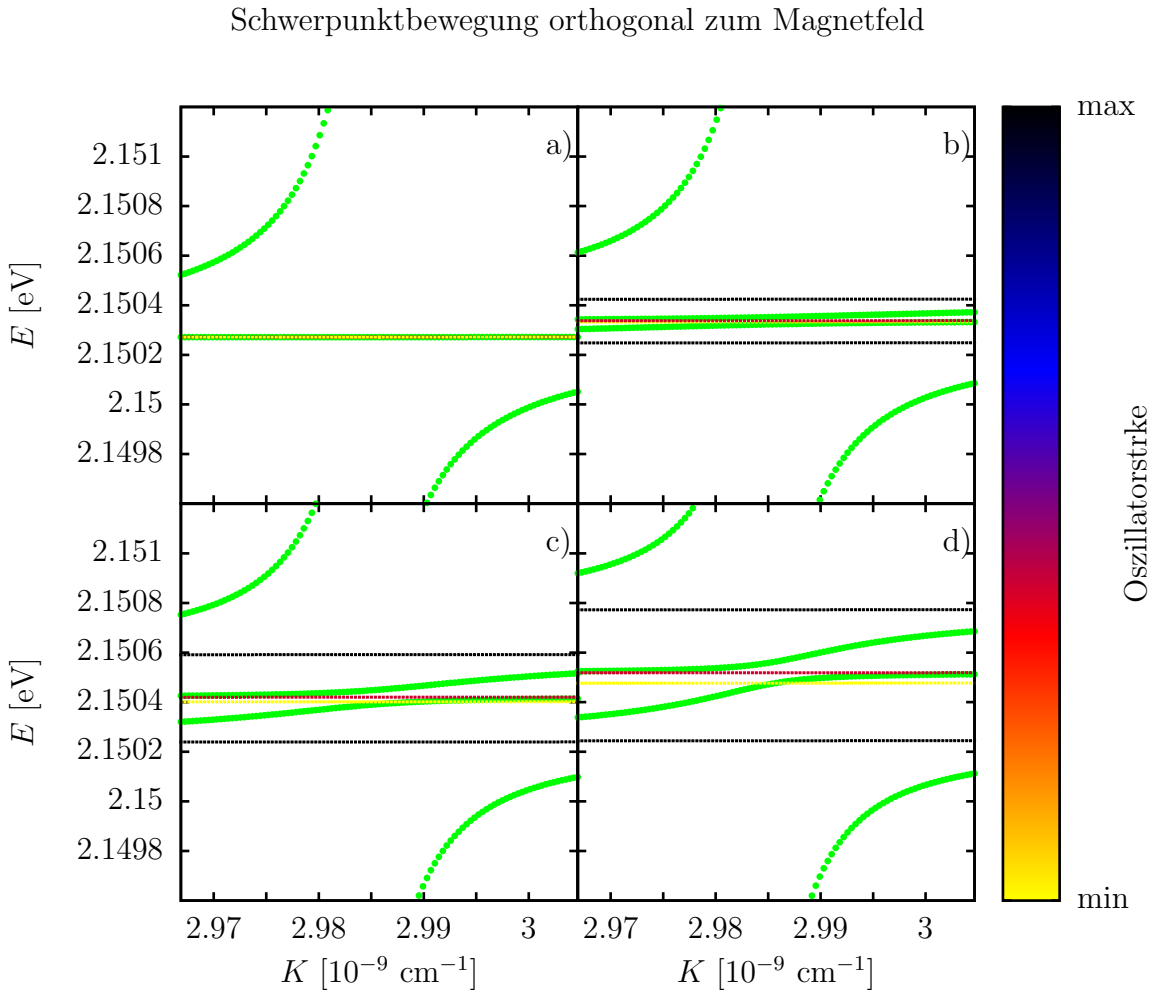


Abbildung 6.3.: Polaritondispersion (grün) und Exzitonenergien mit Oszillatorstärke (Farbskala) zur Hauptquantenzahl $n = 2$ für $M_J = -\frac{1}{2}$, $M_e = \frac{1}{2}$ und a) $B = 0\text{T}$, b) $B = 2\text{T}$, c) $B = 4\text{T}$ und d) $B = 6\text{T}$.

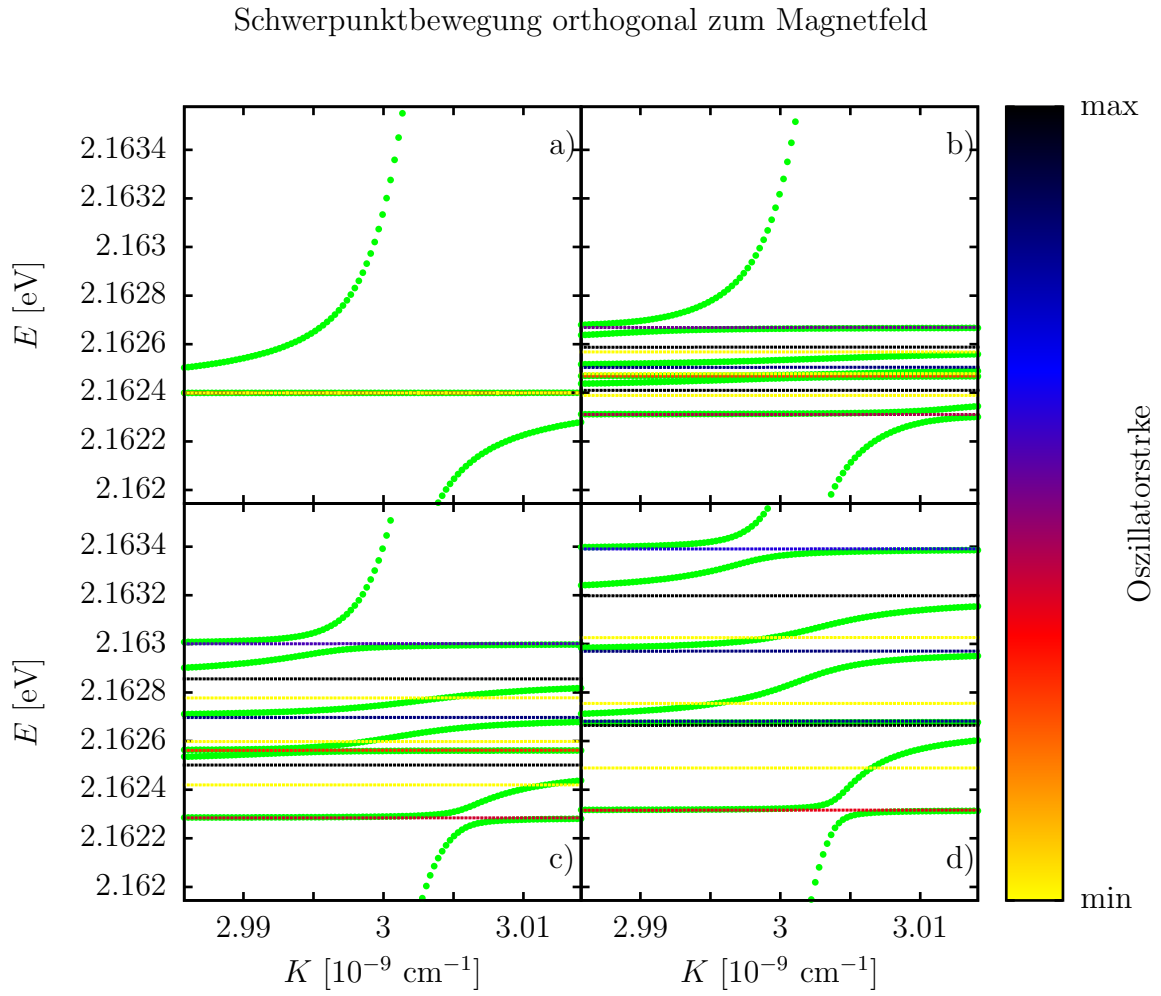


Abbildung 6.4.: Polaritondispersion (grün) und Exzitonenergien mit Oszillatorstärke (Farbskala) zur Hauptquantenzahl $n = 3$ für $M_J = -\frac{1}{2}$, $M_e = \frac{1}{2}$ und a) $B = 0\text{T}$, b) $B = 2\text{T}$, c) $B = 4\text{T}$ und d) $B = 6\text{T}$.

sind in Abbildung 6.3 die Energien der Polaritonen mit grünen Punkten, die Energien der Exzitonen mit kleineren, farbigen Kästchen dargestellt. Die Farbe gibt dabei eine Auskunft über die Oszillatorstärke. In Abbildung 6.3 erkennt man, dass es für die Exzitonen zur Aufspaltung in vier Energieniveaus kommt. Das unterste Niveau bleibt so gut wie unverändert bei derselben Energie. Die Anderen wandern weiter nach oben und mit steigender Magnetfeldstärke immer mehr auseinander. Dabei treten für den Fall von $n = 2$ drei Zustände mit einer nicht-verschwindenden Oszillatorstärke auf, was be-

deutet, dass diese Exzitonzustände eine Komponente mit $l = 1$ besitzen. Im Fall ohne Magnetfeld sind diese entartet und liegen alle bei derselben Energie: mit einer steigenden Magnetfeldstärke spalten diese immer weiter auf. Die Polaritondispersion nähert sich den Exzitonenniveaus mit Oszillatorstärke asymptotisch an. Der Exzitonzustand, der in der Abbildung gelb auftaucht, hat keine Oszillatorstärke, er wechselwirkt nicht mit Licht. Da es hier keine Kopplung der Exzitonen und Photonen gibt, schneidet die Polaritondispersion den Exzitonenzustand. Man sieht weiterhin, dass der obere und untere Zustand eine größere Oszillatorstärke haben, als der mittlere mit Oszillatorstärke. Diese beiden Zustände wechselwirken somit stärker mit dem Licht, als dieser mittlere Zustand. In Abbildung 6.4 sind die Energieniveaus zur Hauptquantenzahl $n = 3$ dargestellt. Für eine steigende Magnetfeldstärke ist die Aufspaltung in neun Energieniveaus zu sehen. Hier treten sechs Zustände mit einer nicht-verschwindenden Oszillatorstärke auf. Für die verbleibenden drei Zustände findet somit keine Wechselwirkung mit dem Licht statt. Die Polaritondispersion schneidet diese Exzitonenzustände. Weiterhin lassen sich für die verbleibenden Zustände unterschiedliche Oszillatorstärken betrachten und die Wechselwirkung mit dem Licht unterscheidet sich somit für die verschiedenen Zustände.

6.2.2. Einfluss der Orientierung des Schwerpunktimpulses zum Magnetfeld

In diesem Abschnitt soll die Orientierung des Schwerpunktimpulses zum Magnetfeld untersucht werden. Dazu werden zum einen eine parallele Orientierung zum anderen eine orthogonale Orientierung bei $B = 6\mathrm{T}$ betrachtet. Die vorgegebenen guten Quantenzahlen sind wieder $M_J = -\frac{1}{2}$ und $M_e = \frac{1}{2}$. Die Polaritondispersion und die Exzitonenergien mit der zugehörigen Oszillatorstärke sind für diese beiden Orientierungen in Abbildung 6.5 dargestellt. Im Wechselwirkungsbereich ist der Einfluss des Motional-Stark-Effektes auf die Exzitonenergien aufgrund der kleinen $\boldsymbol{K}$-Werte noch nicht zu erkennen. Betrachtet man die zugehörigen Oszillatorstärken, so sieht man allerdings, dass im Fall einer Orientierung des Schwerpunktimpulses parallel zum Magnetfeld ein Exzitonzustand weniger mit dem Licht in Wechselwirkung tritt. Für eine parallele Orientierung des Schwerpunktimpulses zum Magnetfeld verschwindet der $\frac{e}{M}(\hbar\boldsymbol{K} \times \boldsymbol{B})\boldsymbol{r}$-Term. Für größere $\boldsymbol{K}$-Werte wird die Aufspaltung bei einer orthogonalen Orientierung des Schwerpunktimpulses zum Magnetfeld somit größer. Außerdem unterscheidet sich dadurch die Durchmischung der Zustände, sodass es im Fall einer Orientierung parallel zum Magnetfeld nur zwei Zustände mit einer Komponente mit $l = 1$ gibt, nämlich den obersten und untersten dargestellten Zustand. Die beiden Zustände, die nicht mit dem Licht in Wechselwirkung treten, werden von der Polaritondispersion geschnitten.

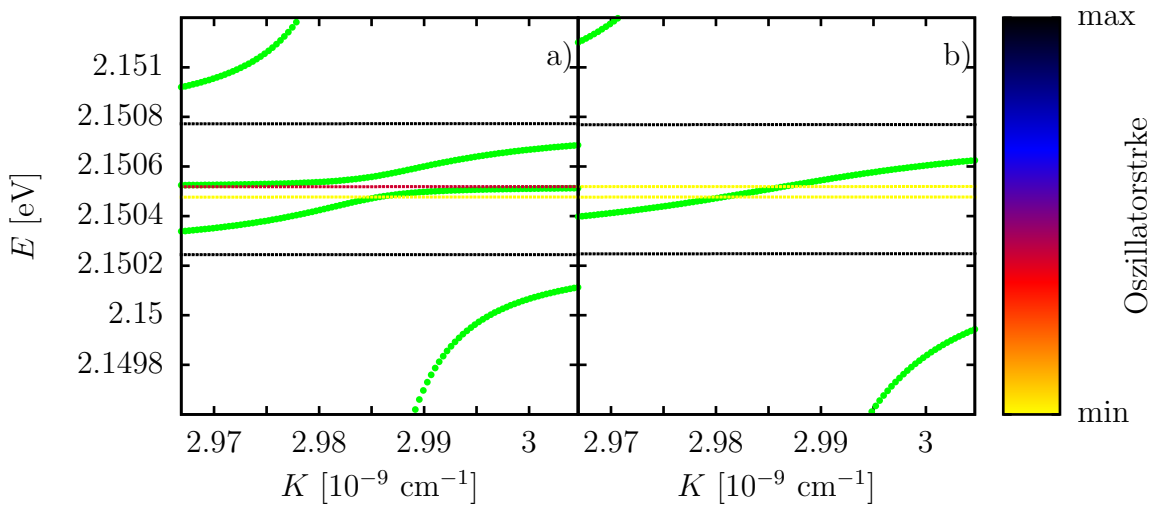


Abbildung 6.5.: Polaritondispersion (grün) und Exzitonenergien mit Oszillatorstärke (Farbskala) zur Hauptquantenzahl $n = 2$ für Orientierung des Schwerpunktimpulses a) orthogonal und b) parallel zum Magnetfeld für $B = 6\mathrm{T}$, $M_J = -\frac{1}{2}$, $M_e = \frac{1}{2}$.

6.2.3. Einfluss der Quantenzahlen M_J und M_e

Wir wollen nun noch betrachten, welchen Einfluss die Wahl der guten Quantenzahlen M_J und M_e auf die Polaritondispersion hat. Zur Berechnung der Exzitonenenergien wählen wir wieder einen Schwerpunktimpuls orthogonal zum Magnetfeld, welches wieder eine Stärke von $B = 6\mathrm{T}$ besitzt. Die beiden Quantenzahlen sollen die Werte $M_J = \frac{1}{2}$ und $M_e = -\frac{1}{2}$ haben. Dies führt auf die in Abbildung 6.6 gezeigte Polaritondispersion. Da M_J und M_e gute Quantenzahlen sind, stellt der Term $\frac{\mu_B}{\hbar}(g_c M_{s_e} + (4\kappa + g_s)M_J)B$ lediglich eine Verschiebung der Energieniveaus dar. Diese unterscheidet sich für die beiden gewählten Konfigurationen. In Abbildung 6.6 ist diese Verschiebung zu erkennen. Die Orientierung des Schwerpunktimpulses ist dabei in beiden Fällen dieselbe. Die Durchmischung der Zustände unterscheidet sich dabei nicht merklich. Die Oszillatorstärken für die einzelnen Energieniveaus stimmen auch gut überein. Es treten in beiden Fällen zwei Zustände mit großer Oszillatorstärke auf, sowie ein weiterer Zustand mit nicht-verschwindender Oszillatorstärke zwischen diesen. Außerdem tritt in beiden Fällen ein Zustand ohne Oszillatorstärke auf, der somit nicht mit dem Licht in Wechselwirkung tritt.

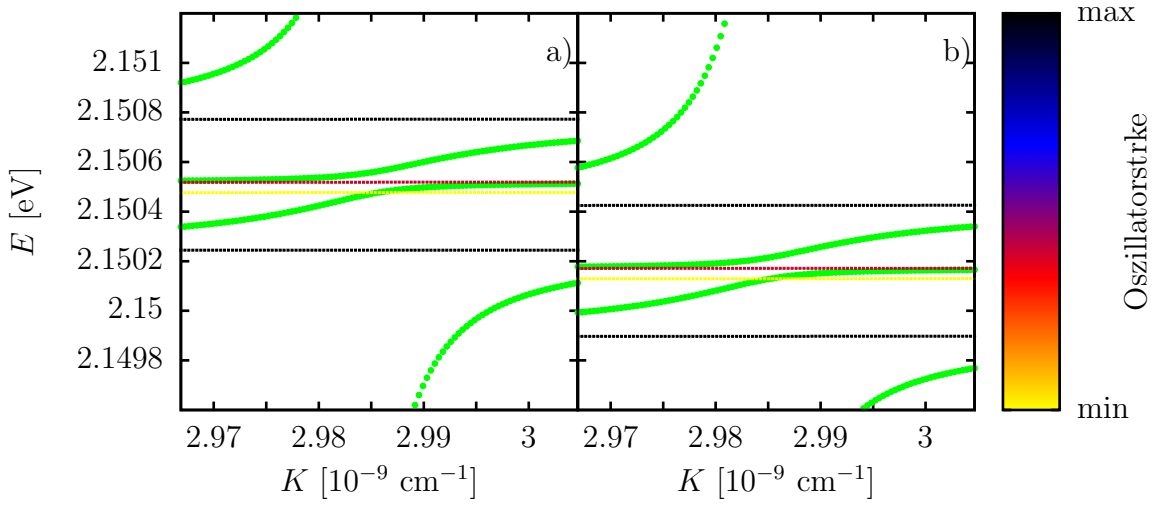


Abbildung 6.6.: Polaritondispersion (grün) und Exzitonenergien mit Oszillatorstärke (Farbskala) zur Hauptquantenzahl $n = 2$ für $B = 6\mathrm{T}$, die Parameter sind dabei a) $M_J = -\frac{1}{2}$ und $M_e = \frac{1}{2}$ und b) $M_J = \frac{1}{2}$, $M_e = -\frac{1}{2}$.

6.2.4. Photonenanteil und Exzitonenanteil der Polaritonen

In diesem Abschnitt soll untersucht werden, wie stark die Vermischung von Photonen und Exzitonen im Polariton ist. Dazu betrachten wir zunächst die erste Komponente der Eigenvektoren. Das Betragsquadrat gibt dann den Photonenanteil des zugehörigen Eigenzustands oder Polaritons an. Wir betrachten nun die Polaritondispersion für Exzitonen mit Schwerpunktsimpuls orthogonal zu einem Magnetfeld mit $B = 6\mathrm{T}$ und den guten Quantenzahlen $M_J = -\frac{1}{2}$, $M_e = \frac{1}{2}$. Dabei wird der Photonenanteil farblich dargestellt. Dies sieht man in Abbildung 6.7. Dabei reicht die Farbskala von einem Anteil von 0.1% bis zu 100%. Abgebildet sind die Bereiche mit Exzitonenergien zu den Zuständen mit Hauptquantenzahl $n = 2$ und $n = 3$. Man erkennt, dass der Photonenanteil in den Bereichen zwischen den Exzitonenniveaus am größten ist. Dennoch sieht man für einige Polaritonen auch noch Photonenanteile, obwohl sie weit von der Region der Lichtgeraden entfernt sind. Insbesondere der obere und untere Zustand zur Hauptquantenzahl $n = 2$, für die wir schon früher eine große Oszillatorstärke sehen konnten, haben in einem breiten Bereich noch Photonenanteile von über einem Prozent.

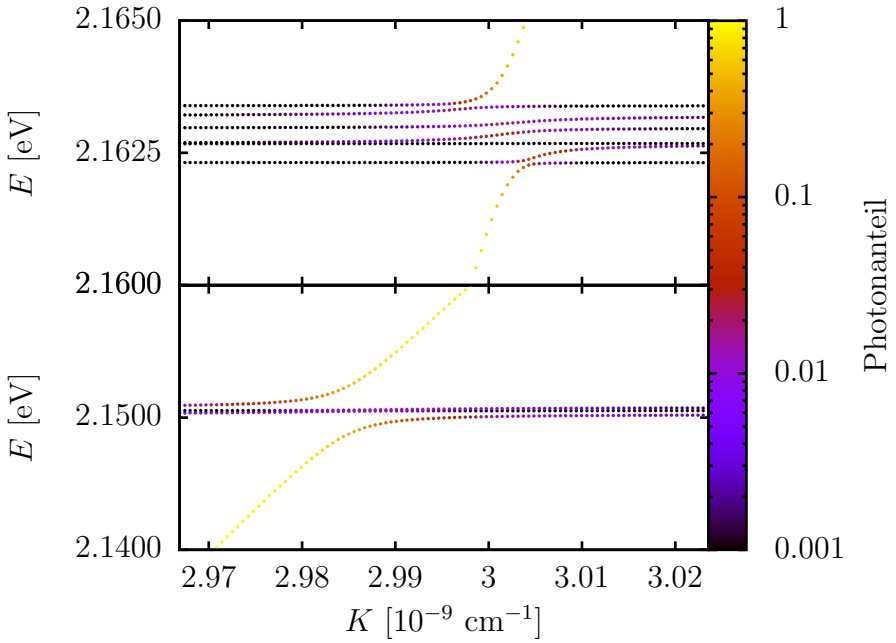


Abbildung 6.7.: Polaritondispersion mit Darstellung des Photonenanteils für $B = 6\mathrm{T}$, $M_J = -\frac{1}{2}$, $M_e = \frac{1}{2}$.

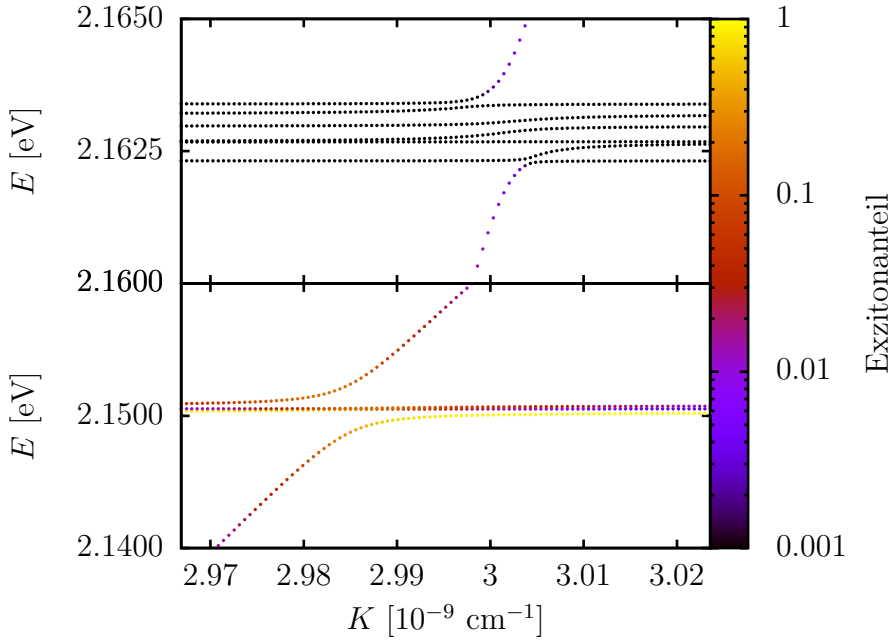


Abbildung 6.8.: Polaritonendispersion mit Darstellung des Exziton-Anteils für $B = 6\mathrm{T}$, $M_J = -\frac{1}{2}$, $M_e = \frac{1}{2}$.

Abschließend soll noch untersucht werden, wie sich die Exzitonen in andere Zustände beimischen. Wie bei den Photonen wird dafür die dazugehörige Komponente der Eigenvektoren untersucht. Wir wählen hier das unterste Exziton der Zustände zur Hauptquantenzahl $n = 2$ und betrachten, analog zum Photon im vorherigen Abschnitt, die Anteile dieses Exzitons an den verschiedenen Polaritoneigenwerten. Die Anteile sind in Abbildung 6.8 wieder in einem Bereich 0.1% bis zu 100% dargestellt. Offensichtlich sind die Beiträge im Bereich der tatsächlichen Exzitonenenergie am Größten. Dennoch gibt es auch im Bereich der Zustände zur Hauptquantenzahl $n = 3$ noch Polaritonen, die einen Anteil von ca. 1% an dem untersten Exziton zur Hauptquantenzahl $n = 2$ haben.

7. Zusammenfassung

In dieser Bachelorarbeit wurde die Polaritontransformation für Exzitonen in magnetischen Feldern vorgestellt. Die Berechnungen erfolgten hierbei für die gelbe Exzitonenserie in Kupferoxydul. Zur Behandlung der Exzitonen wurden mehrere Modellannahmen getroffen. So sind alle Berechnungen in der effektiven-Masse-Näherung durchgeführt, welche eine parabolische Struktur für das Leitungsband und das Valenzband annimmt. Die Berechnung der Exzitonenenergien erfolgte dann mit Hilfe eines wasserstoffähnlichen Hamiltonoperators. Die Kopplung zwischen den Valenzbändern wurde vernachlässigt, ebenso wurde kein Spin-Orbit-Coupling betrachtet. Der Hamiltonoperator für Exzitonen in einem konstanten Magnetfeld ergibt sich durch die minimale Substitution. Die Orientierung des Magnetfeldes wurde für die ganze Arbeit in z-Richtung angenommen. Im Magnetfeld muss weiterhin beachtet werden, dass Elektronen und Löcher Spin-$\frac{1}{2}$-Teilchen sind. Da M_J und M_e guten Quantenzahlen sind, wurden diese in den Berechnungen als feste Parameter vorgegeben. Ein weiterer Aspekt der berücksichtigt werden muss, ist die Orientierung des Schwerpunktimpulses der Exzitonen gegenüber dem Magnetfeld. In dieser Arbeit wurden Ausrichtungen parallel und orthogonal zum Magnetfeld untersucht. Mit den vorhandenen Exzitonenenenergien konnte dann über Berücksichtigung der Wechselwirkung zwischen den Exzitonen und den Photonen die Polaritondispersion bestimmt werden.

Zur numerischen Berechnung der Exzitonenenergien wurde der zugehörige Hamiltonoperator in der Coulomb-Sturm'schen-Basis entwickelt, was auf ein verallgemeinertes Eigenwertproblem führte. Eine geeignete LAPACK-Routine [13] bestimmt die dazugehörigen Eigenwerte. Die für die Polaritontransformation benötigten Oszillatorstärken wurden ebenfalls numerisch bestimmt. Das Eigenwertproblem zur Berechnung der Polaritonenergien wurde ebenfalls mit einer LAPACK-Routine [13] gelöst.

In dieser Arbeit wurde exemplarisch für die Exzitonenzustände mit Hauptquantenzahl $n = 2$ und $n = 3$ gezeigt, dass die Polaritondispersion im Magnetfeld bereits für Zustände mit niedriger Hauptquantenzahl n sehr komplex ist. Dabei spielen die Aufspaltung der Exzitonenzustände sowie die Beimischung von dipolerlaubten zu den bei $B = 0\mathrm{T}$ dipolverbotenen Zuständen im Magnetfeld eine entscheidende Rolle. Weiterhin wurde der Einfluss der Orientierung des Schwerpunktimpulses zum Magnetfeld untersucht. Da für eine parallele Orientierung der Motional-Stark-Term im Hamiltonoperator verschwindet, ergeben sich unterschiedliche Polaritondispersionen. Eine Änderung der Quantenzahlen M_e und M_J bewirkt lediglich eine energetische Verschiebung der Ergebnisse. Zudem

wurde der Photon-Anteil an den Polaritonen betrachtet. Wie zu erwarten, ist dieser zwischen jeweils zwei Exzitonzuständen am höchsten. Jedoch haben Polaritonen, die im Bereich eines Exzitons mit hoher Oszillatorstärke liegen, weit entfernt von der Lichtgeraden, noch einen bestimmten Photonenanteil. Abschließend wurde noch der Anteil eines Exzitonen-Niveaus an den Polaritonen untersucht. Die größten Anteile fand man wieder im Energiebereich des Exzitons. Jedoch konnte gezeigt werden, dass Anteile bis in Zustände mit einer höheren Hauptquantenzahl beigemischt werden.

A. Betrachtung des zusätzlichen Termes im Magnetfeld

In den Exzitonzuständen müssen zusätzlich der Elektronenspin s_e und der effektive Lochspin J berücksichtigt werden:

$$|\Psi\rangle = \sum_{n_r l m M_J} c_{n_r l m M_J} |n_r l m\rangle |s_\mathrm{e} M_{s_\mathrm{e}}\rangle |(I s_\mathrm{h}) J M_J\rangle . \tag{A.1}$$

Wertet man den zusätzlichen Term H_B in Gleichung (4.24) in dieser Basis aus, so ergibt sich:

$$\begin{aligned} \langle\Psi'|H_B|\Psi\rangle &= \langle\psi_{n_r' l' m'}|1|\psi_{n_r l m}\rangle \\ &\times \left(g_c \hbar M_{s_\mathrm{e}} \delta_{M_J' M_J} + \langle (I s_\mathrm{h}) J M_J'| (3\kappa + \frac{g_s}{2}) I_z - g_s s_{\mathrm{h}_z} |(I s_\mathrm{h}) J M_J\rangle\right) \\ &\times \frac{\mu_B B}{\hbar}. \end{aligned} \tag{A.2}$$

Es bleibt noch der letzte Summand in der Klammer auszuwerten. Wir setzen im Folgenden

$$H_B^{(2)} = (3\kappa + \frac{g_s}{2}) I_z - g_s s_{\mathrm{h}_z}. \tag{A.3}$$

Da hier die gelbe Serie betrachtet wird, gilt hier $I = 1$, $J = 1/2$ und $s_\mathrm{h} = 1/2$. Es tauchen also die Zustände $|(I s_\mathrm{h}) J M_J\rangle$ mit

$$\begin{aligned} |(1,\, 1/2),\, 1/2,\, 1/2\rangle &= \sqrt{\frac{2}{3}} |1,\, -1/2\rangle - \sqrt{\frac{1}{3}} |0,\, 1/2\rangle , \\ |(1,\, 1/2),\, 1/2,\, -1/2\rangle &= \sqrt{\frac{1}{3}} |0,\, -1/2\rangle - \sqrt{\frac{2}{3}} |-1,\, 1/2\rangle \end{aligned} \tag{A.4}$$

auf. Die Kets auf der rechten Seite haben dabei jeweils die Form $|M_I M_{s_\mathrm{h}}\rangle$. Für diese Zustände ergibt sich mit $M_J = M_J' = 1/2$

$$\begin{aligned} \langle (1,\, 1/2),\, 1/2,\, 1/2| H_B^{(2)} |(1,\, 1/2),\, 1/2,\, 1/2\rangle &= \frac{2}{3}\left((3\kappa + \frac{g_s}{2})\hbar 1 - g_s \hbar \frac{-1}{2}\right) + \frac{1}{3}(-g_s \hbar \frac{1}{2}) \\ &= 2\kappa\hbar + \frac{1}{2} g_s \hbar, \end{aligned} \tag{A.5}$$

sowie mit $M_J = M'_J = -1/2$

$$\begin{aligned}\langle(1,\,1/2),\,1/2,\,-1/2|H_B^{(2)}|(1,\,1/2),\,1/2,\,-1/2\rangle &= \frac{1}{3}(-g_s\hbar\frac{-1}{2}) \\ &\quad + \frac{2}{3}\left((3\kappa+\frac{g_s}{2})\hbar(-1) - g_s\hbar\frac{1}{2}\right) \\ &= -2\kappa\hbar - \frac{1}{2}g_s\hbar,\end{aligned} \tag{A.6}$$

und mit $M_J = -M'_J$ für $M_J = \pm 1/2$

$$\langle(1,\,1/2),\,1/2,\,\pm 1/2|H_B^{(2)}|(1,\,1/2),\,1/2,\,\mp 1/2\rangle = 0. \tag{A.7}$$

Bei M_J handelt es sich somit, wie bei M_e um eine gute Quantenzahl. Diese beiden Quantenzahlen können fest vorgegeben werden. Der zusätzliche Term im Magnetfeld H_B lässt sich dann schreiben als

$$H_B = \frac{\mu_B B}{\hbar}\left(g_\mathrm{c} M_{s_\mathrm{e}} + (4\kappa + g_s) M_J\right). \tag{A.8}$$

Literaturverzeichnis

[1] R. S. Knox. Theory of Excitons. In: *Solid State Physics: Advances in Research and Applications*, herausgegeben von F. Seitz und D. Turnbull. Academic Press, New York, London (1963).

[2] W. Demtröder. *Experimentalphysik 3: Atome, Moleküle und Festkörper*. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 4. Auflage (2010).

[3] S. Hunklinger. *Festkörperphysik*. Oldenbourg Wissenschaftsverlag GmbH, München, 4. Auflage (2014).

[4] C. F. Klingshirn. *Semiconductor Optics*. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 3. Auflage (2007).

[5] U. Rössler. *Solid State Theory An Introduction*. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 2. Auflage (2009).

[6] T. Kazimierczuk, D. Fröhlich, S. Scheel, H. Stolz und M. Bayer. Giant Rydberg excitons in the copper oxide Cu_2O. *Nature 514, 343* (2014).

[7] L. C. Andreani. Exciton-Polaritons in Bulk Semiconductors and in Confined Electron and Photon Systems. In: *Strong Light-Matter Coupling: From Atoms to Solid-State-Systems*, herausgegeben von A. Auffèves, D. Gerace, M. Richard, S. Portolan, M. F. Santos, L.C. Kwek und C. Miniatura. World Scientific, Singapore (2013).

[8] J. Schmutzler. *Spectroscopy of exciton-polaritons in Cu_2O and GaAs-based microcavities*. Doktorarbeit, TU Dortmund. Deutschland (2014).

[9] W. Nolting. *Grundkurs Theoretische Physik 6: Statistische Physik*. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 7. Auflage (2014).

[10] W. Nolting. *Grundkurs Theoretische Physik 5/2: Quantenmechanik - Methoden und Anwendungen*. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 7. Auflage (2012).

[11] H. Ruder, G. Wunner, H. Herold und F. Geyer. *Atoms In Strong Magnetic Fields*. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg (1994).

[12] M. A. Caprio, P. Maris und J. P. Vary. Coulomb-Sturmian basis for the nuclear many-body problem. *Phys. Rev. C 86, 034312* (2012).

[13] E. Anderson, Z. Bai, C. Bischof, S. Blackford, J. Demmel, J. Dongarra, J. Du Croz, A. Greenbaum, S. Hammerling, A. McKenny und D. Sorensen. *LAPACK Users' Guide*. Society for Industrial and Applied Mathematics, 3. Auflage (1999).

[14] F Schweiner, J. Main, M. Feldmaier, G. Wunner und C. Uihlein. Impact of the valence band structure of Cu_2O on excitonic spectra. *Phys. Rev. B 93, 195203* (2016).

[15] F. Schweiner, J. Main, G. Wunner, M. Freitag, J. Heckötter, C. Uihlein, M. Aßmann, D. Fröhlich und M. Bayer. Magnetoexcitons in cuprous oxide. *Phys. Rev. B 95, 035202* (2017).

[16] G. Czycholl. *Theoretische Festkörperphysik*. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 3. Auflage (2008).

Danksagung

Hiermit möchte ich mich bei allen bedanken, die mich beim Verfassen dieser Bachelorarbeit unterstützt haben.
Zunächst einmal danke ich Herrn Apl. Prof. Dr. Jörg Main für die Möglichkeit, diese Arbeit am 1. Institut für Theoretische Physik schreiben zu können.
Ein besonderer Dank gilt M. Sc. Frank Schweiner, der mir bei Fragen und Problemen stets unterstützend zur Seite stand.
Weiterhin soll Dipl.-Phys. Robin Gutöhrlein erwähnt werden, der mir bei Problemen technischer Natur eine große Hilfe war.
Außerdem danke ich allen Mitarbeitern des Instituts für die angenehme Atmosphäre und die nette Zeit, die ich dort verbringen durfte.

Erklärung

Ich versichere,

- dass ich diese Bachelorarbeit selbständig verfasst habe,
- dass ich keine anderen als die angegebenen Quellen benutzt und alle wörtlich oder sinngemäß aus anderen Werken übernommenen Aussagen als solche gekennzeichnet habe,
- dass die eingereichte Arbeit weder vollständig noch in wesentlichen Teilen Gegenstand eines anderen Prüfungsverfahrens gewesen ist,
- dass ich die Arbeit weder vollständig noch in Teilen bereits veröffentlicht habe, es sei denn, der Prüfungsausschuss hat die Veröffentlichung vorher genehmigt
- und dass der Inhalt des elektronischen Exemplars mit dem des Druckexemplars übereinstimmt.

Stuttgart, den 16.03.2017 *Jan Ertl*