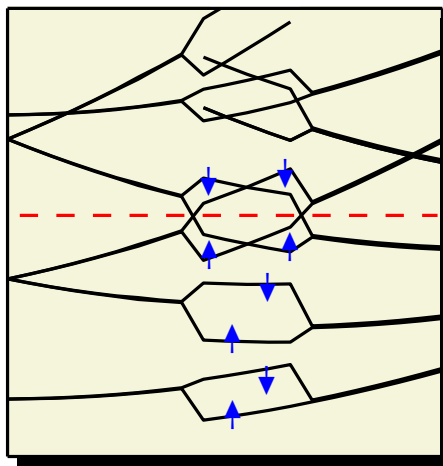


Künstliche Atome im Magnetfeld

Strom-Spin-Dichtefunktional-Rechnungen für Halbleiter-Quantenpunkte



DISSERTATION

zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat.)

der Naturwissenschaftlichen Fakultät II – Physik
der Universität Regensburg
vorgelegt

von

Oliver Steffens

1999



Promotionsgesuch eingereicht am 9. März 1999
Die Arbeit wurde angeleitet von Prof. Dr. U. Rößler

Prüfungsausschuß:

Prof. Dr. W. Wegscheider	Vorsitzender
Prof. Dr. U. Rößler	1. Gutachter
Prof. Dr. M. Brack	2. Gutachter
Prof. Dr. U. Krey	Weiterer Prüfer

Tag des Kolloquiums: 20. Mai 1999

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis	3
Einführung: „Künstliche Atome“ in Halbleiter-Nanostrukturen	5
1. Strom-Spin-Dichtefunktional-Theorie	15
1.1 Das verallgemeinerte Hohenberg-Kohn-Theorem	16
1.2 Kohn-Sham-Formalismus	19
1.3 Eichinvarianz	22
1.4 Lokale Näherungen	22
1.5 Austausch-Korrelation homogener Systeme	25
1.6 Zeitabhängige Dichtefunktional-Theorie	32
2. Von der Bandstruktur zur Enveloppenfunktions-Näherung	39
2.1 Die $k \cdot p$ -Methode	39
2.2 Kanische Wellenfunktionen	41
2.3 Enveloppenfunktions-Näherung	42
3. Grundzustandsrechnungen für Quantenpunkte im Magnetfeld	45
3.1 Der harmonische Oszillator im Magnetfeld	45
3.2 Kohn-Sham-Formalismus für Quantenpunkte	47
3.3 Vergleiche mit exakter Diagonalisierung	52
3.4 Spin-Effekte: Hundesche Regel im Magnetfeld	57
3.5 Additionsspektren	60
3.6 Hochfeld-Bereich	66
3.7 Gebrochene Zeitumkehrsymmetrie: Korrelationseffekte bei $B = 0$	70
4. Theorie der inelastischen Lichtstreuung in Halbleitern	77
4.1 Zeitabhängige Störungstheorie	79
4.2 Streuquerschnitt	82
4.3 Beschreibung mit Enveloppenfunktionen	83
4.4 Ladungs- und Spindichte-Anregungen	86

5. Die Berechnung des Raman-Streuquerschnitts	89
5.1 Adiabatische LSDA	90
5.2 Berechnung für ein 2D-System mit zylindrischer Symmetrie	93
5.3 Ferninfrarot-Absorption und das Verallgemeinerte Kohnsche Theorem	95
5.4 Summenregeln	97
6. Der Raman-Streuquerschnitt für Wenig-Elektronen-Quantenpunkte	101
6.1 Vergleich der linearen Antwort in Hartree-Näherung (RPA), ALDA und ALSDA	101
6.2 Raman-Spektren im Magnetfeld	103
6.3 Abhängigkeit der Raman-Spektren vom Impulsübertrag	112
6.4 Parametrisierung der Wechselwirkung	114
6.5 Abschließende Diskussion	116
Zusammenfassung und Ausblick	117
Anhang A: Zeitabhängige Störungstheorie für inelastische Lichtstreuung	121
Anhang B: Berechnung des Tensors $\mathcal{K}^{(v)}$	125
Anhang C: Berechnung der freien Responsefunktion $\chi_{\sigma\sigma'}^{(0)}$	127
Abbildungsverzeichnis	129
Literaturverzeichnis	131
Eigene Veröffentlichungen	143
Dank	145

EINFÜHRUNG

„Künstliche Atome“ in Halbleiter-Nanostrukturen

Die beeindruckende Entwicklung der technologischen Verfahren zur Herstellung von atomar genauen, nur wenige Nanometer dicken Halbleiter-Schichtstrukturen setzt sich fort in den jüngsten Erfolgen der modernen Nanotechnologie: Man ist heute in der Lage, die Bewegung freier Ladungsträger *in allen drei Raumdimensionen* auf vergleichbar kleine Gebiete einzuschränken. Charakteristisch für die Miniaturisierungsstufe im Nanometerbereich ist, daß sie mit neuen, quantenmechanischen Phänomenen einhergeht, die in herkömmlichen, von der klassischen Physik bestimmten Mikrostrukturen noch weitgehend irrelevant waren. Das Anwendungspotential dieser Strukturen zeigt sich – abgesehen von der Möglichkeit, ihre grundlegende Physik zu studieren – zum Beispiel in der Herstellung von Halbleiter-Lasern mit hoher Effizienz (Weisbuch, 1987¹⁸², Oga-
wa & Takagahara, 1991¹²²) und Hochfrequenz-Bauelementen wie dem *High-electron-mobility transistor* (HEMT, Abe et al., 1987¹).

Die Fertigung von Halbleiter-Schichtstrukturen (Heterostrukturen) beruht auf der Methode, unterschiedliche Materialien in dünnen, wenige Monolagen umfassenden Schichten möglichst versetzungsfrei aufzuwachsen. Mittlerweile sind Verfahren wie die Molekularstrahlepitaxie (MBE) oder die metallorganische Gasphasenepitaxie (MOCVD) soweit gereift, daß sich mit verschiedenen tetraedrisch koordinierten Halbleitern beliebige Schichtfolgen realisieren lassen. Um Verspannungseffekte auszuschließen, eignen sich besonders Verbindungen mit nahezu identischer Gitterkonstante, häufig finden GaAs und AlAs Verwendung. Im folgenden werden wir uns daher exemplarisch auf Heterostrukturen aus GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ beziehen. Bewegliche Ladungsträger werden entweder durch optische Anregung oder aber – in Form losgelöster Elektronen – durch räumlich getrennt angeordnete Donator-Atome bereitgestellt, z.B. durch Silizium, das in $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Strukturen bei Wachstum in $\{001\}$ -Richtung als Substituent für Gallium oder Aluminium ins Kristallgitter eingebaut wird. Durch den räumlichen Abstand von den ionisierten Störstellen wird die Beweglichkeit der Ladungsträger sehr hoch, etwa einige $100 \text{ m}^2/\text{Vs}$.

Die Bandlücke in der $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Schicht kann durch das Mischungsverhältnis x eingestellt werden (Landolt-Börnstein, 1987⁹¹). Es liegt typischerweise zwischen 20

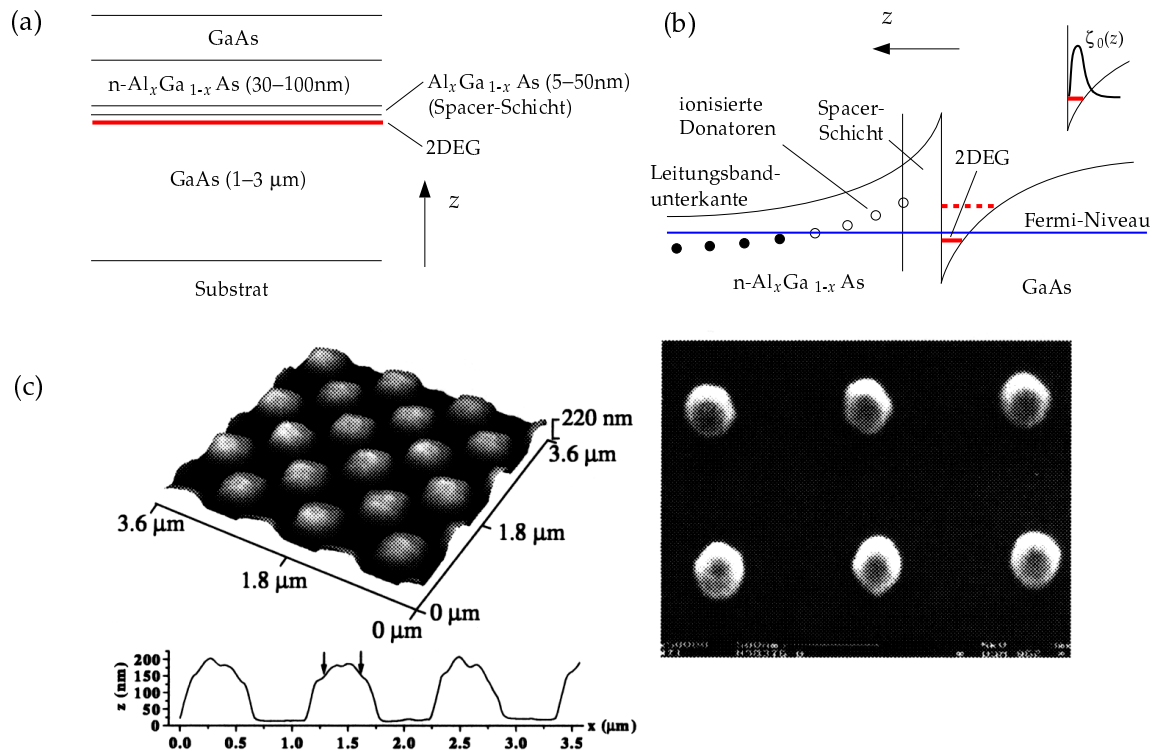


ABBILDUNG E.1: Schematische Darstellung einer GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostruktur: (a) Schichtabfolge mit Lage des 2DEG. (b) Bandkantenverlauf mit ionisierten Donatoren (o) oberhalb der Fermi-Energie. Das System befindet sich im elektrischen Quantenlimit, wenn nur das unterste Subbandkontinuum mit der Enveloppe $\zeta_0(z)$ besetzt ist. (c) AFM-Bild (links) mit Schnittprofil und REM-Bild (rechts) einer geätzten Quantenpunkt-Probe mit Gitterperiode $a = 800 \text{ nm}$ und einer geometrischen Breite der Quantenpunkte von $b = 240 \text{ nm}$ (aus Biese, 1997¹³).

und 30 %. Die unterschiedlichen Bandlücken in den Schichten führen zu Unstetigkeiten der Bandkanten als Funktion der Koordinate z in Wachstumsrichtung. Die Wechselwirkung der Ladungsträger untereinander und mit den ionisierten, räumlich fixierten Donator-Ionen erzeugt schließlich ein selbstkonsistentes Potential $V(z)$, das die Bewegung der Teilchen auf einen schmalen Bereich einschränkt – man spricht von einem *Quantenfilm*. Wenn bei entsprechend tiefer Temperatur (einige Kelvin) nur das unterste durch das Einschlußpotential $V(z)$ hervorgerufenen Subband-Kontinua $E_\nu(k_{\parallel})$ (mit einem Wellenvektor k_{\parallel} in der Filmebene) besetzt ist, befindet sich das System im sog. elektrischen Quantenlimit und man erhält ein *zweidimensionales Elektronengas* (2DEG) im engeren Sinn. Die Ausdehnung der Wellenfunktion $\zeta_0(z)$ ist auf wenige Nanometer begrenzt und kann näherungsweise als δ -Funktion betrachtet werden, die im GaAs-Bereich nahe der Grenzschicht lokalisiert ist [Abb. E.1 (a, b)].

Das 2DEG in einem dazu senkrecht angelegten Magnetfeld B zeigt bereits hochinteressante Phänomene wie den ganz- und gebrochenzahligen Quanten-Hall-Effekt, die von v. Klitzing et al. (1980⁸¹) bzw. Tsui et al. (1982¹⁷⁴) entdeckt wurden. Diesem System lassen sich nun weitere, *laterale* Strukturen aufprägen: Durch Ätzverfahren oder geeignete Metall-Gate-Strukturen mit negativer Spannung kann die Dichte des dar-

unterliegenden Elektronengases gezielt verarmt werden. So können langgestreckte, quasi-eindimensionale Bereiche definiert werden, die man Quantendrähte nennt, oder sogar Säulen geätzt werden, in welchen die Ladungsträger in punktförmige, „null-dimensionale“ Gebiete eingesperrt sind [Abb. E.1 (c)]. Die Herstellung von Quantendrähten und -punkten kann auch durch geeignetes Überwachsen der – in $\{110\}$ -Kristallrichtung atomar genauen – Bruchkante einer Schichtstruktur mit einer neuen Heterostruktur realisiert werden (*cleaved-edge overgrowth*, erstmals durchgeführt von Pfeiffer et al., 1990¹³⁴; siehe auch Wegscheider et al., 1996¹⁸¹). Diese lassen sich nach optischer Anregung von Exzitonen spektroskopisch untersuchen.

Eine Besonderheit von Feldeffekt-induzierten Quantenpunkten in dotierten Strukturen ist, daß sie sukzessive mit Elektronen geladen werden können, indem die steuernde Gate-Spannung variiert wird. Dies wurde erstmals von Meurer et al. (1992¹¹⁷), Ashoori et al. (1992⁸) und McEuen et al. (1992¹¹³) voneinander unabhängig demonstriert. Diese Systeme werden häufig als „künstliche Atome“ (Kastner, 1993⁷⁷) umschrieben (das variable elektrostatische Einschlußpotential übernimmt dabei die Rolle eines effektiven Kernladungspotentials) und sind Gegenstand der vorliegenden theoretischen Arbeit.

In der Tat weisen Halbleiter-Quantenpunkte starke Parallelen zu natürlichen Atomen auf.* Das Energiespektrum der Elektronen hat wie in echten Atomen Schalen-Charakter, und es wird sich zeigen, daß eine zur Atomphysik analoge Hundzsche Regel existiert, die die Spinkonfiguration eines N -Elektronen-Quantenpunktes festlegt.

Ein großer Vorteil der künstlichen Quantenstrukturen gegenüber echten Atomen besteht allerdings in dem Umstand, daß aufgrund der kleinen effektiven Masse der Elektronen im Leitungsband und der schwachen Bindungsenergie (einige meV) durch das Einschlußpotential bereits kleine Magnetfelder unter $B = 10$ T ausreichen, um interessante Effekte zu sehen, die sich aus dem Zusammenspiel von Coulomb-Wechselwirkung, Landau-Quantisierung und Einschlußpotential ergeben. In Atomen sind z.B. Niveaufkreuzungen infolge eines Magnetfeldes erst bei einigen tausend Tesla zu erwarten. Dies macht die Quantenpunkte zu einem faszinierenden Studienobjekt, in dem die charakteristischen Längenskalen – diejenige des Einschlußpotentials, die magnetische Länge und der effektive Bohrsche Radius – alle in der gleichen Größenordnung liegen. Gerade die Auswirkungen der Elektron-Elektron-Wechselwirkung im endlichen Magnetfeld weisen eine unerwartete Komplexität auf.

In dieser Arbeit soll insbesondere dem Aspekt der Austausch-Korrelation im Magnetfeld durch Einsatz eines erweiterten Dichtefunktional-Zugangs Rechnung getragen werden. Bisherige Ansätze, z.B. von Darnhofer (1996³⁴), haben Spin- und Magnetfeldabhängigkeit der Wechselwirkung nur unzureichend berücksichtigt. Mit dem Konzept der Strom-Spin-Dichtefunktional-Theorie von Vignale & Rasolt (1988¹⁷⁷) wollen wir diese Lücke schließen.

*Selbstverständlich gibt es auch signifikante Unterschiede: So sind die Quantenpunkte in einem *zweidimensionalen* Raum eingebettet, der durch das 2DEG gegeben ist; darüber hinaus ist das Bindungspotential in echten Atomen im Zentrum divergent, während die Elektronen in Halbleiter-Quantenpunkten typischerweise durch ein harmonisches Oszillatorpotential gebunden werden.

Additionsspektren künstlicher Atome

Die „Additionsenergie“, die benötigt wird, um ein weiteres Elektron in einen Halbleiter-Quantenpunkt zu setzen, ist verwandt zur Elektronen-Affinität von Atomen (Ashoori, 1996⁶). Bei festgehaltener Elektronenzahl können die Elektronen durch Einteilchen-Anregungen in höhere Zustände gehoben werden. Allerdings bewirkt die Coulomb-Wechselwirkung eine erhöhte Additionsenergie verglichen mit den entsprechenden zu besetzenden Einteilchen-Niveaus. Diese Coulomb-Barriere erlaubt schließlich das separate „Laden“ einzelner Elektronen in den Quantenpunkt.

Die Rolle der Coulomb-Wechselwirkung wird von theoretischer Seite in vielfältiger Weise diskutiert. Bereits das einfache, später genauer erläuterte *constant-interaction*-Modell (McEuen et al., 1991¹¹⁴) kann manche Merkmale der Additionsspektren qualitativ gut beschreiben, aber besonders der Übergang zu hohen Magnetfeldern offenbart die vom Magnetfeld beeinflusste Inhomogenität des Systems und Austausch-Korrelations-Effekte beim Übergang in einen spinpolarisierten Zustand. Nach Ashoori et al. (1993⁷) sind zudem Probeninhomogenitäten, aber auch unzureichend bekannte Modellparameter verantwortlich für die bis heute nicht erzielte quantitative Übereinstimmung berechneter Spektren mit den beobachteten Additions- und Anregungsenergien.

Wir versuchen im Rahmen der numerischen Studien in dieser Arbeit zumindest ein semiquantitatives Verständnis für die Ergebnisse jüngerer Experimente von Tarucha et al. (1996¹⁷⁰) zu gewinnen. Diese wurden an vertikalen Quantenpunkten ausgeführt, die von einer ringförmigen Gate-Elektrode umgeben sind, mithilfe derer das chemische Potential des Systems durchgestimmt werden kann (Abb. E.2). Der Quantenpunkt wird in senkrechter Richtung durch eine Doppelbarrieren-Struktur (DBH) aus 12.0 nm $\text{In}_{0.05}\text{Ga}_{0.95}\text{As}$ zwischen zwei 7.5 und 9.0 nm dicken Barrieren aus $\text{Al}_{0.22}\text{Ga}_{0.78}\text{As}$ definiert. Die Zumischung von In zu GaAs verschiebt den Leitungsbandboden unter das Fermi-Niveau der Kontakte, so daß nichtlinearer Transport durch die Doppelbarriere studiert werden kann. Das laterale Confinement ergibt sich aus der herausgeätzten säulenförmigen Struktur. Wie später (in Abschnitt 3.5) genauer beschrieben, können die Elektronen resonant durch die Barriere tunneln (erkennbar durch einen starken Anstieg des Stromes), wenn sich das chemische Potential – eingestellt durch die Spannung an der Gate-Elektrode – in Resonanz mit den Additionsenergien des Quantenpunktes befindet. Dies eröffnet eine Möglichkeit, Additionsspektren wie in Abb. E.2 (a) zu messen.

Eine alternative Methode zur Bestimmung der Additionsenergien besteht in der Kapazitäts-Spektroskopie von Quantenpunkten. Miller et al. (1997¹¹⁹) haben durch Messung der differentiellen Kapazität von Quantenpunkt-Ensembles in einer Barrierenstruktur aus GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ebenfalls die Schalenstruktur des Einteilchenspektrums demonstriert. Die Quantenpunkte entstehen hier durch *selbstorganisiertes Wachstum* (Stranski & Krastanov, 1937¹⁶⁵; Goldstein et al., 1985⁵⁴; Marzin et al., 1994¹¹¹) von InAs-Inseln auf einer GaAs-Schicht. Durch die etwas größere Gitterkonstante von InAs kommt es zu Verspannungen, die die Ausbildung von flachen Inseln auf einer dünnen Benetzungsschicht begünstigt. Die diskreten Niveaus der Leitungselektronen, die in den Inseln lokalisiert sind, liegen energetisch tiefer als in der übrigen Schicht, weshalb die durch die Inseln gebildeten Quantenpunkte noch vor Besetzung der anderen

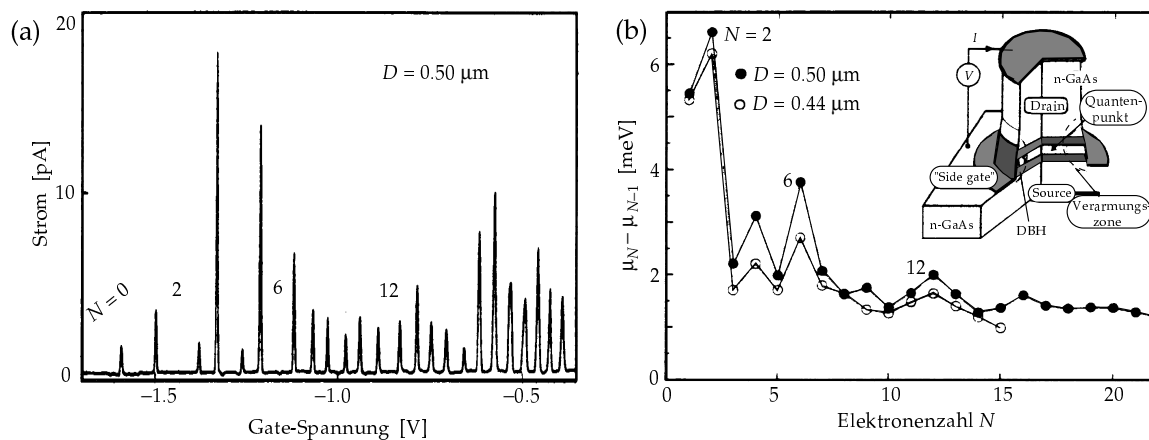


ABBILDUNG E.2: (a) Oszillationen in der Strom-Gate-Spannungs-Charakteristik bei $B = 0 \text{ T}$ in einem Quantenpunkt mit einem geometrischen Durchmesser $D = 0.5 \mu\text{m}$. Die Gate-Spannung an den Peakpositionen entspricht der Additionsenergie μ_N für ein weiteres Elektron zu einem N -Elektronen-System. (b) Differenzen der Additionsenergien $\mu_N - \mu_{N-1}$ in Abhängigkeit der Elektronenzahl N für unterschiedliche Durchmesser mit einer schematischen Zeichnung der untersuchten Struktur. Man sieht, daß zur Addition eines dritten Elektrons zu einem System mit $N = 2$ Elektronen die Gate-Spannung wesentlich mehr erhöht werden muß als zur Addition des vierten Elektrons bei $N = 3$. Dies läßt sich mit der Schalenstruktur des Einteilchenspektrums begründen, die zu „magischen“ Elektronenzahlen $N = 2, 6, 12$, etc. führt. Austauschbedingte Spineffekte verursachen außerdem deutliche Zwischenminima für $N = 3$ und $N = 8$. (Nach Tarucha et al., 1996¹⁷⁰)

Zustände geladen werden. Erstaunlicherweise sind die so gefertigten Quantenpunkt-Ensembles extrem homogen, so daß sie sich für die Beobachtung einer gut aufgelösten spektralen Schalenstruktur eignen.

Im endlichen Magnetfeld findet man neben typischen Niveaufkreuzungen des Einteilchenspektrums wechselwirkungsbedingte Modifikationen, zu denen auch Austausch-Korrelations-Effekte gehören, die durch eine Hundtsche Regel im Magnetfeld beschrieben werden können. Während in den Experimenten von Miller (1998¹¹⁸) Spineffekte im Magnetfeld nicht erkennbar sind, bestätigt Tarucha (1998¹⁶⁹) die Beobachtung von charakteristischen Strukturen, die auf spinpolarisierte Elektronen an der Fermikante hindeuten.

Raman-Spektroskopie

Die Untersuchung von *kollektiven Anregungen* in Quantenpunkten mithilfe von resonanter Raman-Lichtstreuung ist erst in den letzten Jahren realisiert worden. Die Erzeugung von Teilchen-Loch-Anregungen zwischen Valenz- und Leitungsband durch Absorption von Laserlicht mit einer Photonen-Energie in der Nähe der fundamentalen Bandlücke, gefolgt von einem Rekombinationsprozeß mit Photonen-Emission, läßt

das Valenzband unverändert, kann aber durch Energie- und Impulsübertrag zu einer Reihe von elektronischen Anregungen der Leitungselektronen führen. Die für die Messung des Streuquerschnitts nötige Intensität erzielt man durch ein Ensemble von Quantenpunkten. Diese werden durch sog. *holographische Lithographie* als periodische Muster in einen Photolack geschrieben; diese Maske wird durch ein geeignetes Ätzverfahren (z.B. reaktives Ionenätzen) auf das 2DEG übertragen. In Abb. E.1 (c) ist eine auf diese Weise präparierte Probe zu sehen.

Bereits aus Ferninfrarot-Absorptionsmessungen an Quantenpunkt-Ensembles (Sikorski & Merkt, 1989¹⁵⁹; Demel et al., 1990³⁸; Lorke & Kotthaus, 1990⁹⁸; Meurer et al., 1992¹¹⁷) weiß man, daß die kollektiven Ladungsdichteanregungen, die aus der Ankopplung der Dichte an den Dipoloperator des langwelligen Lichtfeldes entstehen, im Fall eines parabolischen Einschlußpotentials aufgrund des *Verallgemeinerten Kohnschen Theorems* (Brey et al., 1989¹⁹) denjenigen eines nichtwechselwirkenden Systems entsprechen – der Dipoloperator kann nur Schwerpunktsbewegungen der Ladungsdichte anregen. Die Beobachtung von Wechselwirkungseffekten ist daher nur möglich, wenn die Anharmonizität des Confinements ausreichend stark ist (Gudmundsson & Gerhardt, 1991⁵⁹; Pfannkuche et al., 1994¹³²; Gudmundsson et al., 1995⁵⁸), oder im Fall einer nichtparabolischen Leitungsbanddispersion (Darnhofer & Rössler, 1993³⁵) bzw. unterschiedlicher effektiver Massen in 2D-Lochgasen (Darnhofer, 1996³⁴).

Bei kleinem Impulsübertrag gilt das Kohnsche Theorem auch für die Anregung durch inelastische Lichtstreuung mit sichtbarem Licht; der Impulsübertrag auf das Elektronensystem kann aber durch Verwendung einer Rückstreugeometrie auch wesentlich größer sein, wodurch höhere Multipolmomente angeregt werden, deren Spektren durch die internen Freiheitsgrade mitbestimmt sind.

Lockwood et al. (1996⁹⁷) vergleichen Experimente an Quantenpunkten mit $N > 100$ Elektronen mit dem Einteilchenspektrum einer Hartree-Rechnung und interpretieren die Ergebnisse als Manifestation einer Schalenstruktur, die sich im endlichen Magnetfeld auflöst und dadurch zu einer Aufspaltung der Intensitätsmaxima führt. Zum vollständigen Verständnis wünschen sich die Autoren jedoch eine realistische Berechnung der kollektiven Ladungs- und Spindichteanregungen.

Schüller et al. (1996¹⁵⁴) berichten über Experimente an Quantenpunkten und -drähten, die sowohl Einteilchen-Anregungen (SPE) wie kollektive Ladungs- und Spindichteanregungen (CDE und SDE) zeigen (Abb. E.3). Dabei ist entscheidend, daß sich die letzteren durch die Wahl der Polarisationsrichtungen des einfallenden und detektierten Lichtes – zueinander parallel (polarisiert) oder senkrecht (depolarisiert) – selektiv untersuchen lassen, während SPE von der Streugeometrie unabhängig sind und daher in beiden Meßvarianten auftreten. *Resonante* Raman-Streuung begünstigt die Beobachtung unabgeschirmter Einteilchen-Anregungen (Klein, 1975⁸⁰), da sie durch Pole im Raman-Streuquerschnitt verstärkt werden. Diese Pole entsprechen Teilchen-Loch-Anregungen zwischen Valenz- und Leitungsbandzuständen; Resonanz entsteht, wenn die Frequenz des einfallenden Laser-Lichts mit deren Energie übereinstimmt.

Die Experimente wurden an tief-geätzten Proben [siehe Abb. E.1 (c)] durchgeführt, in denen Bereiche des 2DEG tatsächlich entfernt werden. Flach-geätzte Proben haben nach Strenz et al. (1994¹⁶⁶) den Vorteil einer hohen optischen Güte, da das 2DEG unversehrt bleibt und die Entstehung von Zentren für nichtstrahlende Rekombina-

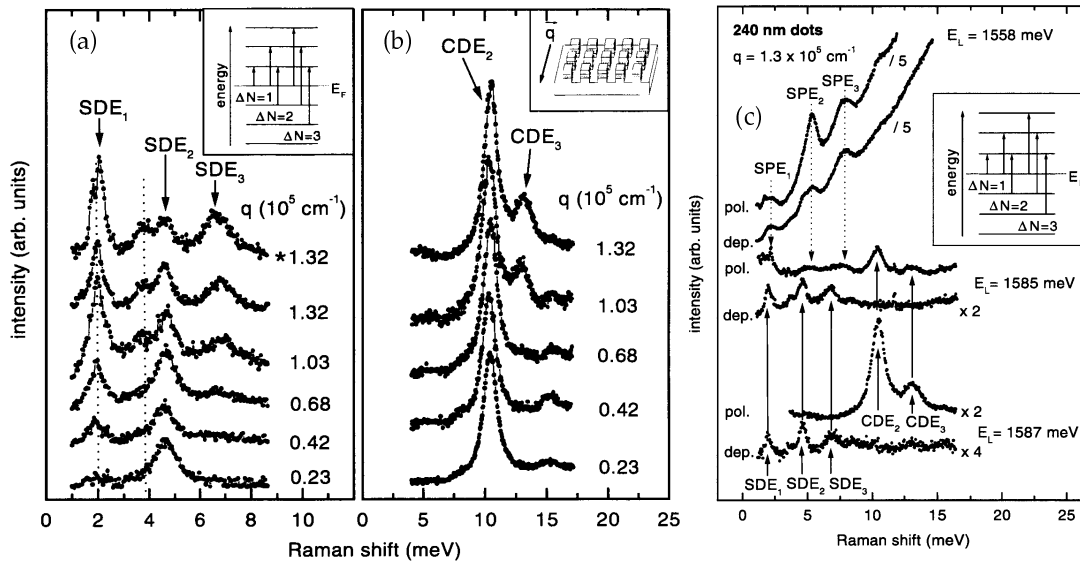


ABBILDUNG E.3: Depolarisierte (a) und polarisierte (b) Raman-Spektren einer Quantenpunkt-Probe mit 240 nm Durchmesser für unterschiedliche Impulsüberträge q bei einer Laser-Energie $E_L = 1600.7$ meV. Der Index an den kollektiven Moden SDE/CDE gibt die Änderungen δN der Quantenzahlen durch das laterale Confinement für diejenigen Übergänge an, die die dominanten Beiträge zur beobachteten Anregung leisten (kleine Bilder). In (c) ist die Resonanzverstärkung der Einteilchen-Anregungen (SPE) bei veränderter Laser-Energie sehr deutlich zu sehen. (Aus Schüller et al., 1996¹⁵⁴)

tion vermieden wird. Frühe Raman-Experimente von Goñi et al. (1991⁵³) an flachgeätzten *Quantendrähten* zeigen eine lineare Dispersion der CDE bezüglich des Impulsübertrags q (1D-Plasmonen), wenn q in Richtung des Drahtes (x) weist; diese Plasmonen entsprechen Anregungen innerhalb der durch die laterale 1D-Strukturierung geschaffenen Subbänder $E_n(k_x)$. Schmeller et al. (1994¹⁵³) beobachten außerdem in den depolarisierten Spektren – sowohl für Intra- als auch Inter-Subband-Anregungen vom SDE-Typ – deutliche Austausch-Korrelations-Effekte, die die Resonanzpositionen zu niedrigeren Energien, verglichen mit den nackten SPE, verschieben. In einem weicheren Quantendraht-Confinement mit mehreren besetzten Subbändern finden Strenz et al. (1994¹⁶⁶) eine q -Dispersion der Intra-Subband-Plasmonen, die der 2D-Plasmondispersion ähnelt. Bezüglich des Impulsübertrags senkrecht zur Drahtichtung sind alle Spektren dispersionslos (Goñi et al., 1991⁵³), man spricht von *lokalisierten Plasmonen*.

Für *Quantenpunkte* erwartet man schließlich überhaupt keine q -Abhängigkeit der energetischen Position der einzelnen Moden. Dies wird von den bisherigen Experimenten (Schüller et al., 1996¹⁵⁴; Biese, 1997¹³; Schüller et al., 1998¹⁵⁵) auch bestätigt, wie in Abb. E.3 (a, b) gezeigt.

Während die zitierten Experimente an Quantenpunkten mit einigen hundert Elektronen durchgeführt wurden, konzentriert sich meine Arbeit auf die Berechnung der kollektiven Anregungen von Wenig-Elektronen-Quantenpunkten mit beliebiger Spinpolarisation. Diese sind numerisch im Rahmen der hier vorgestellten Konzepte

behandelbar und zeichnen sich dadurch aus, daß schon wenige spinpolarisierte Elektronen zu einer signifikanten Spindichte (verglichen mit der Gesamtdichte) führen. Bei endlicher Spindichte im Grundzustand verliert die Polarisations-Auswahlregel ihre Gültigkeit und Ladungs- und Spindichteanregungen können simultan auftreten. In Abhängigkeit des angelegten Magnetfeldes lassen sich deshalb Spineffekte durch die Wechselwirkung im Raman-Streuquerschnitt identifizieren. Raman-Experimente mit dieser Zielsetzung sind noch nicht bekannt, weshalb wir praktische Realisierungsmöglichkeiten diskutieren werden.

Aufbau der vorliegenden Arbeit

Diese Studie widmet sich der theoretischen Beschreibung der Grundzustandseigenschaften und der Raman-Spektroskopie von Quantenpunkten mit wenigen Elektronen in einem äußeren Magnetfeld. Insbesondere der Spinfreiheitsgrad wird durch das von uns angewandte Konzept der Strom-Spin-Dichtefunktional-Theorie zur Beschreibung korrelierter Elektronen explizit berücksichtigt. Dazu gehört auch eine entsprechende Erweiterung der Responserechnung für Raman-Streuung an spinpolarisierten Systemen.

Die fünf Kapitel der Arbeit sind wie folgt gegliedert:

- KAPITEL 1 enthält eine ausführliche Übersicht über die Konzepte der Strom-Spin-Dichtefunktional-Theorie, die wir zur Beschreibung der Wechselwirkung in einem inhomogenen Elektronensystem mit externem Magnetfeld verwenden. Damit ist es möglich, im Rahmen eines erweiterten Kohn-Sham-Verfahrens die Ladungs- und Spindichte des Grundzustandes zu berechnen.
- In KAPITEL 2 stellen wir die Grundlagen der $k \cdot p$ -Methode und der Enveloppenfunktions-Näherung mit Hinblick auf die Halbleiter-Bandstruktur von GaAs zusammengefaßt dar. Dies führt auf die Effektiv-Massen-Näherung für die elektronischen Zustände in Quantenpunkten. Die Enveloppenfunktions-Näherung ist außerdem zur Behandlung von inelastischer Lichtstreuung in Quantenstrukturen sehr nützlich.
- Die numerischen Ergebnisse der Grundzustandsrechnungen für Halbleiter-Quantenpunkte in GaAs werden im KAPITEL 3 diskutiert. Wir vergleichen berechnete Additionsspektren mit dem Experiment und diskutieren die Auswirkungen einer verallgemeinerten Hundschen Regel im Magnetfeld sowie das Phänomen spontaner, korrelationsbedingter Ströme ohne äußeres Magnetfeld.
- Die Grundlagen der theoretischen Beschreibung von inelastischer Lichtstreuung an Quantenstrukturen enthält KAPITEL 4. Darin gehen die Konzepte aus dem zweiten Kapitel wieder ein. Auch die oben angesprochene Polarisations-Auswahlregel wird im Detail diskutiert.
- KAPITEL 5 beschäftigt sich schließlich mit der von uns verwendeten Methode zur Berechnung der Raman-Spektren. Die Behandlung von Systemen mit beliebiger Spinpolarisation beinhaltet einen Mechanismus, der zur Aufhebung der

Polarisations-Auswahlregel führt. Daneben diskutieren wir die Implikationen des Verallgemeinerten Kohnschen Theorems sowie die Methode der Summenregeln, die ein Testverfahren der numerischen Resultate bereitstellt.

- Mit der Diskussion der numerischen Ergebnisse schließt KAPITEL 6 die Arbeit ab. Im Rahmen der Resultate für Wenig-Elektronen-Quantenpunkte versuchen wir, eine Möglichkeit aufzuzeigen, wie magnetfeldabhängige Spin-Effekte in zukünftigen Raman-Experimenten identifiziert werden können.

Oliver Steffens

Regensburg 1999

KAPITEL 1

Strom-Spin-Dichtefunktional-Theorie

Ein praktikables und vielfach bewährtes Verfahren zur Behandlung von wechselwirkenden Vielteilchensystemen stellt die Dichtefunktional-Theorie (DFT) dar, deren fundamentales Konzept in der Abbildung des wechselwirkenden Systems auf ein nicht-wechselwirkendes Hilffsystem besteht. Zentral ist dabei die Erkenntnis von Hohenberg & Kohn (1964⁶⁵), daß die Grundzustandswellenfunktion des Vielteilchensystems unter einfachen Voraussetzungen durch eine umkehrbare Abbildung mit der Grundzustandsdichte verknüpft ist. Damit sind alle Erwartungswerte bezüglich des Grundzustandes Funktionale der Dichte, die nun anstelle der Wellenfunktion zur Beschreibung des N -Teilchen-Grundzustands verwendet wird. Infolgedessen reduziert sich das $3N$ -dimensionale Problem auf ein dreidimensionales; dies macht die numerische Lösung auch für große Teilchenzahlen N realisierbar.

In diesem Kapitel soll die von Vignale & Rasolt (1987¹⁷⁶) entwickelte Erweiterung für Vielteilchensysteme im Magnetfeld dargestellt werden. Die Motivation für eine derartige Erweiterung findet sich in der Vielzahl von Effekten, die sich aus der Kopplung eines externen Vektorpotentials an die orbitale Bewegung ableiten. Das einfachste Beispiel ist die Landau-Quantisierung für ein homogenes Elektronengas (Landau & Lifshitz, 1965⁹⁰), dazu zählen aber auch der Aharonov-Bohm-Effekt (1959⁴) oder der de Haas-van Alphen-Effekt (siehe Ashcroft & Mermin, 1976⁵); des weiteren wurden speziell in mesoskopischen Systemen Phänomene wie *persistent currents* (Cheung et al., 1988³⁰; Lévy et al., 1990⁹⁴; Chandrasekhar et al., 1991²⁸) sowie charakteristische Magnetfeldabhängigkeiten von Magnetisierung (Oosterkamp et al., 1998¹²⁵), Wärmekapazität (Maksym & Chakraborty, 1990¹⁰⁶) oder Transportverhalten (Imamura et al., 1998⁶⁸) untersucht, die maßgeblich durch die Wechselwirkung beeinflusst werden.

Notwendig ist die Neuformulierung der DFT mit Magnetfeld aber nicht etwa, weil das Hohenberg-Kohn-Theorem⁶⁵ nicht länger anwendbar wäre, sondern um eine explizite Abhängigkeit der auftretenden Funktionale vom externen Vektorpotential zu vermeiden. Dann lassen sich die üblichen Verfahren der DFT (Kohn-Sham-Gleichungen,⁸⁴ Lokale-Dichte-Näherung⁴¹) zur Berechnung der Grundzustandseigenschaften in analoger Form anwenden.

1.1 Das verallgemeinerte Hohenberg-Kohn-Theorem

Wir betrachten den Vielteilchen-Hamiltonoperator

$$H = \hat{T} + \hat{W} + \hat{V}, \quad (1.1)$$

wobei, ausgedrückt durch die Feldoperatoren $\hat{\psi}_\sigma^\dagger(\mathbf{r})$ und $\hat{\psi}_\sigma(\mathbf{r})$ für die Spinzustände $\sigma = \uparrow$ bzw. \downarrow und die zugehörigen Dichteoperatoren $\hat{n}_\sigma(\mathbf{r}) = \hat{\psi}_\sigma^\dagger(\mathbf{r})\hat{\psi}_\sigma(\mathbf{r})$,

$$\hat{T} = -\frac{\hbar^2}{2m} \sum_\sigma \int d^3r \hat{\psi}_\sigma^\dagger(\mathbf{r}) \nabla^2 \hat{\psi}_\sigma(\mathbf{r}), \quad (1.2)$$

$$\hat{W} = \frac{1}{2} \sum_{\sigma, \sigma'} \int d^3r \int d^3r' W(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \hat{\psi}_\sigma^\dagger(\mathbf{r}) \hat{\psi}_{\sigma'}^\dagger(\mathbf{r}') \hat{\psi}_{\sigma'}(\mathbf{r}') \hat{\psi}_\sigma(\mathbf{r}), \quad (1.3)$$

$$\hat{V} = \int d^3r V(\mathbf{r}) \hat{n}(\mathbf{r}) \quad [\text{mit } \hat{n}(\mathbf{r}) = \sum_\sigma \hat{n}_\sigma(\mathbf{r})] \quad (1.4)$$

den Operator der kinetischen Energie, die interne Wechselwirkung und die Kopplung an das externe Potential bezeichnen. In der Arbeit von Hohenberg & Kohn (1964⁶⁵) wird für eine festgelegte Teilchenzahl N die Umkehrbarkeit der nach Konstruktion surjektiven Abbildung

$$\mathcal{V} \rightarrow \mathcal{G} \rightarrow \mathcal{N}, \quad V \mapsto |\Psi\rangle \mapsto n, \quad (1.5)$$

bewiesen, die jedes externe Potential $V \in \mathcal{V}$ auf seinen (nach Voraussetzung nicht entarteten) Grundzustand $|\Psi\rangle \in \mathcal{G}$ und letzteren auf die Grundzustandsdichte $n(\mathbf{r}) = \langle \Psi | \sum_\sigma \int d^3r \hat{\psi}_\sigma^\dagger(\mathbf{r}) \hat{\psi}_\sigma(\mathbf{r}) | \Psi \rangle \in \mathcal{N}$ abbildet. Dabei werden Potentiale, die sich nur um einen konstanten Term unterscheiden, als äquivalent betrachtet.

Im Fall entarteter Grundzustände kann man zwar eine ähnliche Abbildung (nun jeweils auf die Mengen der entarteten Grundzustände und deren Dichten) formulieren, man verliert aber die eindeutige Beziehung zwischen dem externen Potential und einer speziellen Grundzustandsdichte (siehe Dreizler & Gross, 1990⁴¹).

Die besondere Bedeutung des Hohenberg-Kohn-Theorems liegt darin, daß sich alle Erwartungswerte bezüglich eines Grundzustandes $|\Psi[n]\rangle$ als Funktional der Grundzustandsdichte $n(\mathbf{r})$ schreiben lassen. Insbesondere kann man für jedes $V \in \mathcal{V}$ und $n' \in \mathcal{N}$ folgendes Energiefunktional definieren:

$$E_V[n'] = \langle \Psi[n'] | (\hat{T} + \hat{W} + \hat{V}) | \Psi[n'] \rangle = F_{\text{HK}}[n'] + \int d^3r V(\mathbf{r}) n'(\mathbf{r}), \quad (1.6)$$

welches aufgrund des Variationsprinzips für die Grundzustandswellenfunktion $|\Psi[n]\rangle$ genau für $n' = n$ minimiert wird (wobei n die Grundzustandsdichte des Potentials V sein soll). Das Hohenberg-Kohn-Funktional $F_{\text{HK}}[n']$ ist universell (d.h. es ist von V unabhängig) und nur durch die Art der internen Wechselwirkung festgelegt. In Gegenwart eines externen Vektorpotentials A hängt $F_{\text{HK}}[n']$ jedoch parametrisch von A ab, da nun der kinetische Operator \hat{T} durch $\frac{1}{2m} \sum_\sigma \int d^3r \hat{\psi}_\sigma^\dagger(\mathbf{r}) [\hbar \frac{\nabla}{i} + \frac{e}{c} A(\mathbf{r})]^2 \hat{\psi}_\sigma(\mathbf{r})$ zu ersetzen ist. Darüber hinaus wollen wir den Spinfreiheitsgrad explizit berücksichtigen.

Nur so können spinabhängige Austausch-Effekte im Rahmen des Dichtefunktional-Konzeptes untersucht werden, wie sich im folgenden Abschnitt zeigen wird.

Nach Vignale & Rasolt (1988¹⁷⁷) schreiben wir den Hamiltonoperator mit Magnetfeld in der Form

$$H = \hat{T} + \hat{W} + \sum_{\sigma} \int d^3r V_{\sigma}(\mathbf{r}) \hat{n}_{\sigma}(\mathbf{r}) + \frac{e}{c} \int d^3r \hat{j}_p(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}) + \frac{e^2}{2mc^2} \sum_{\sigma} \int d^3r \hat{n}_{\sigma}(\mathbf{r}) A^2(\mathbf{r}), \quad (1.7)$$

mit dem Operator der *paramagnetischen* Stromdichte*

$$\hat{j}_p(\mathbf{r}) = \frac{\hbar}{2mi} \sum_{\sigma} \left\{ \hat{\psi}_{\sigma}^{\dagger}(\mathbf{r}) \nabla \hat{\psi}_{\sigma}(\mathbf{r}) - [\nabla \hat{\psi}_{\sigma}^{\dagger}(\mathbf{r})] \hat{\psi}_{\sigma}(\mathbf{r}) \right\}. \quad (1.8)$$

Das spinabhängige Potential $V_{\uparrow/\downarrow}(\mathbf{r}) = V(\mathbf{r}) \pm \frac{1}{2}g\mu_B B(\mathbf{r})$ enthält sowohl das skalare Potential $V(\mathbf{r})$ als auch die Ankopplung an die Spindichte $\hat{s}(\mathbf{r}) = \hat{n}_{\uparrow}(\mathbf{r}) - \hat{n}_{\downarrow}(\mathbf{r})$ durch den Zeeman-Term $H_Z = \frac{1}{2}g\mu_B B(\mathbf{r})\hat{s}(\mathbf{r})$ mit dem Bohrschen Magneton $\mu_B = \hbar e/(2mc)$. Dabei setzen wir der Einfachheit halber voraus, daß das Magnetfeld $\mathbf{B}(\mathbf{r})$ nur in eine Raumrichtung zeige. [Eine Erweiterung für den Fall räumlich variabler Magnetfeldrichtung findet man bei Vignale & Rasolt (1988¹⁷⁷).]

Die physikalische (orbitale) Stromdichte $\hat{j}(\mathbf{r})$, deren Heisenberg-Darstellung die Kontinuitätsgleichung $\partial \hat{n}(\mathbf{r}, t)/\partial t + \nabla \cdot \hat{j}(\mathbf{r}, t) = 0$ erfüllt, ist die Summe aus paramagnetischer und diamagnetischer Stromdichte:

$$\hat{j}(\mathbf{r}) = \hat{j}_p(\mathbf{r}) + \hat{j}_d(\mathbf{r}) = \hat{j}_p(\mathbf{r}) + \frac{e}{mc} \hat{n}(\mathbf{r}) \mathbf{A}(\mathbf{r}). \quad (1.9)$$

Die Erwartungswerte der Operatoren werden im folgenden ohne das Symbol „ $\hat{}$ “ geschrieben. Der Beitrag $j_s(\mathbf{r}) = \frac{1}{2}g\mu_B \frac{c}{e} \nabla \times \mathbf{s}(\mathbf{r})$ des Spins zum Gesamtstrom ist durch die Spindichte $\mathbf{s}(\mathbf{r}) = s(\mathbf{r})\hat{\mathbf{B}}$ (in Richtung des Magnetfeldes \mathbf{B}) vollständig festgelegt und muß nicht extra behandelt werden.

Analog zur ursprünglichen DFT erhält man ein *verallgemeinertes Hohenberg-Kohn-Theorem* (Vignale & Rasolt, 1988¹⁷⁷) der Strom-Spin-Dichtefunktional-Theorie (CSDFT), welches besagt, daß $V_{\uparrow}(\mathbf{r})$, $V_{\downarrow}(\mathbf{r})$ und $\mathbf{A}(\mathbf{r})$, sowie der zugehörige (nicht-entartete) Grundzustand $|\Psi\rangle$, eindeutig durch die Grundzustandsdichten $n_{\uparrow}(\mathbf{r})$, $n_{\downarrow}(\mathbf{r})$ und $\mathbf{j}_p(\mathbf{r})$ bestimmt sind. Die Abbildung

$$\mathcal{V}_{\uparrow} \times \mathcal{V}_{\downarrow} \times \mathcal{A} \rightarrow \mathcal{G} \rightarrow \mathcal{N}_{\uparrow} \times \mathcal{N}_{\downarrow} \times \mathcal{J}_p, \quad (V_{\uparrow}, V_{\downarrow}, \mathbf{A}) \mapsto |\Psi\rangle \mapsto (n_{\uparrow}, n_{\downarrow}, \mathbf{j}_p) \quad (1.10)$$

ist also umkehrbar.[†] (Wiederum werden Potentiale, die sich nur um eine additive Konstante unterscheiden, nicht unterschieden.) Man erkennt nun, warum die Einführung von \mathbf{j}_p notwendig war: Mit jeder Eichtransformation des Vektorpotentials

*Der etwas irreführende Name geht auf Vignale & Rasolt (1987¹⁷⁶) zurück; der Index „*p*“ kann alternativ als Erinnerung an den kanonischen Impuls gedeutet werden, der in der Definition (1.8) auftritt.

[†]Hier wird vorausgesetzt, daß die Dichtetupel $(n_{\uparrow}, n_{\downarrow}, \mathbf{j}_p)$ – in der Sprechweise der DFT – „ $(V_{\uparrow/\downarrow}, \mathbf{A})$ -darstellbar“ sind, d.h. als Grundzustandsdichten physikalischer Potentiale überhaupt auftreten. Eine Diskussion der Darstellbarkeit findet sich in dem Buch von Dreizler & Gross (1990⁴¹).

muß sich auch j_p (im Gegensatz zu j) transformieren.[‡] Der Beweis des Theorems erfolgt über einen Widerspruch: Angenommen, zwei verschiedene Potentialtupel $(V_\uparrow, V_\downarrow, \mathbf{A}) \neq (V'_\uparrow, V'_\downarrow, \mathbf{A}')$ hätten identische Grundzustandsdichten; seien ferner H und H' die entsprechenden Hamiltonoperatoren, und $|\Psi\rangle \neq |\Psi'\rangle$ die zwei Grundzustände mit den Energien E und E' .[§] Wenden wir das Variationsprinzip für die beiden Hamiltonoperatoren an, so folgt:

$$\begin{aligned} E &= \langle \Psi | H | \Psi \rangle < \langle \Psi' | H | \Psi' \rangle = \langle \Psi' | [H' + (H - H')] | \Psi' \rangle \\ &= E' + \sum_{\sigma} \int d^3r n_{\sigma}(\mathbf{r}) [V_{\sigma}(\mathbf{r}) - V'_{\sigma}(\mathbf{r})] \\ &\quad + \frac{e}{c} \int d^3r j_p(\mathbf{r}) \cdot [\mathbf{A}(\mathbf{r}) - \mathbf{A}'(\mathbf{r})] + \frac{e^2}{2mc^2} \sum_{\sigma} \int d^3r n_{\sigma}(\mathbf{r}) [A^2(\mathbf{r}) - A'^2(\mathbf{r})]. \end{aligned} \quad (1.11)$$

Eine zweite Abschätzung erhält man für E' durch Vertauschen der gestrichenen und ungestrichenen Variablen. Addiert man beide Seiten und setzt $(n_\uparrow, n_\downarrow, j_p) = (n'_\uparrow, n'_\downarrow, j'_p)$, resultiert der Widerspruch $E + E' < E' + E$. Damit ist die Injektivität bewiesen.

Somit können wir wieder ein Energiefunktional definieren, dessen Minimum durch Einsetzen der Grundzustandsdichten $(n_\uparrow, n_\downarrow, j_p)$ erreicht wird:

$$\begin{aligned} E_{V_\uparrow/\downarrow, \mathbf{A}}[n'_\uparrow, n'_\downarrow, j'_p] &= F[n'_\uparrow, n'_\downarrow, j'_p] + \sum_{\sigma} \int d^3r n'_{\sigma}(\mathbf{r}) V_{\sigma}(\mathbf{r}) \\ &\quad + \frac{e}{c} \int d^3r j'_p(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}) + \frac{e^2}{2mc^2} \sum_{\sigma} \int d^3r n'_{\sigma}(\mathbf{r}) A^2(\mathbf{r}) \end{aligned} \quad (1.12)$$

mit dem universellen Funktional $F[n'_\uparrow, n'_\downarrow, j'_p] = \langle \Psi[n'_\uparrow, n'_\downarrow, j'_p] | (\hat{T} + \hat{W}) | \Psi[n'_\uparrow, n'_\downarrow, j'_p] \rangle$, das nicht von den externen Potentialen abhängt [beachte die Definition (1.2) von \hat{T} ohne Vektorpotential!].

Eine Bemerkung am Rande: Aus der Dirac-Gleichung erhält man relativistische Korrekturen, zu denen neben dem Zeeman-Term u.a. auch der Spin-Bahn-Kopplungsterm

$$H_{\text{so}} = \frac{\hbar}{2m^2c^2} \hat{\boldsymbol{\sigma}} \cdot \left[\nabla V(\mathbf{r}) \times \left(\mathbf{p} - \frac{e}{c} \mathbf{A} \right) \right] \quad (1.13)$$

[‡]Eine Formulierung basierend auf $n_{\uparrow/\downarrow}$ und j wurde von Diener (1991³⁹) vorgeschlagen; für diese existiert ebenfalls ein Hohenberg-Kohn-Theorem, nach welchem die Grundzustandsdichten $n_{\uparrow/\downarrow}$ und j die externen Potentiale eindeutig *bis auf eine Eichtransformation* bestimmen. Allerdings eignet sich dieser Zugang weniger für lokale Näherungen (siehe Abschnitt 1.4), da in einem quasi-homogenen System die physikalische Stromdichte im Zentrum, wo die Dichte konstant ist, verschwindet; infolgedessen muß die gesamte Information über das externe Magnetfeld in den Randströmen enthalten sein (siehe Vignale, 1995¹⁷⁵) – eine ausgesprochen nicht-lokale Beziehung!

[§]Im Fall des einfachen Hohenberg-Kohn-Theorems folgt aus der Annahme $|\Psi\rangle = |\Psi'\rangle$ sofort der Widerspruch $(H - H')|\Psi\rangle = (E - E')|\Psi\rangle \Rightarrow V(\mathbf{r}) - V'(\mathbf{r}) = E - E' = \text{const}$, was die Injektivität der ersten Teilabbildung beweist. Diese müssen wir an dieser Stelle leider voraussetzen, da die analoge Betrachtung aufgrund des vorhandenen Vektorpotentials nicht zum Widerspruch führt. Der Fall, daß zwei unterschiedliche Potentialtupel zu identischen Grundzuständen führen, scheint allerdings äußerst unwahrscheinlich.

mit dem Spinoperator $\hbar\hat{\sigma}$ zählt. Schon unter der Beschränkung auf eine Spinkomponente (in Richtung des Magnetfeldes) wird die Erweiterung des Hohenberg-Kohn-Theorems auf die neuen Observablen

$$\mathbf{j}_{p\sigma} = \frac{\hbar}{2mi} \left\{ \hat{\psi}_\sigma^\dagger(\mathbf{r}) \nabla \hat{\psi}_\sigma(\mathbf{r}) - [\nabla \hat{\psi}_\sigma^\dagger(\mathbf{r})] \hat{\psi}_\sigma(\mathbf{r}) \right\} \quad (1.14)$$

erforderlich, da die Spin-Bahn-Energiekorrektur

$$E_{\text{so}} = \int d^3r \frac{\hbar}{4mc^2} \left\{ [\nabla V(\mathbf{r}) \times (\mathbf{j}_{p\uparrow} - \mathbf{j}_{p\downarrow})]_{\hat{B}} - \frac{e}{mc} [\nabla V(\mathbf{r}) \times \mathbf{A}(\mathbf{r})]_{\hat{B}} [n_\uparrow(\mathbf{r}) - n_\downarrow(\mathbf{r})] \right\} \quad (1.15)$$

eine entgegengesetzte Kopplung an die verschiedenen Spinströmdichten beinhaltet. Nimmt man an, daß in realistischen Situationen auch die anderen Spinkomponenten senkrecht zum Magnetfeld wichtig werden, muß man zu einer allgemeineren Beschreibung in den Variablen

$$\begin{aligned} n_{\alpha\beta}(\mathbf{r}) &= \langle \hat{\psi}_\beta^\dagger(\mathbf{r}) \hat{\psi}_\alpha(\mathbf{r}) \rangle = n_{\beta\alpha}^*(\mathbf{r}), \\ \mathbf{j}_{p\alpha\beta}(\mathbf{r}) &= \frac{\hbar}{2mi} \langle \hat{\psi}_\beta^\dagger(\mathbf{r}) \nabla \hat{\psi}_\alpha(\mathbf{r}) - [\nabla \hat{\psi}_\beta^\dagger(\mathbf{r})] \hat{\psi}_\alpha(\mathbf{r}) \rangle = \mathbf{j}_{p\beta\alpha}^*(\mathbf{r}) \end{aligned} \quad (1.16)$$

übergehen (Vignale & Rasolt, 1988¹⁷⁷). Dies wird hier jedoch nicht weiter verfolgt.

Die Relation $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}$ führt zu einer gewissen Redundanz in der Beschreibung des Grundzustandes als Funktional von $(n_\uparrow, n_\downarrow, \mathbf{j}_p)$. In der Tat sind in dieser Formulierung auch Systeme, in denen \mathbf{B} und \mathbf{A} unabhängig sind, zugelassen, sofern wir sie in die Menge $\mathcal{V}_\uparrow \times \mathcal{V}_\downarrow \times \mathcal{A}$ aufnehmen. Wird $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}$ aber sinnvollerweise vorausgesetzt, so kann die CSDFT auf eine Formulierung reduziert werden, in der nur noch die Grundzustandsdichte n und die Summe der paramagnetischen und Spin-Ströme $\mathbf{j}_p + \mathbf{j}_s$ als unabhängige Bestimmungsgrößen auftreten (Capelle & Gross, 1997²³).

1.2 Kohn-Sham-Formalismus

Das Hohenberg-Kohn-Theorem ermöglicht die eindeutige Konstruktion eines nicht-wechselwirkenden Hilfssystems (Kohn & Sham, 1965⁸⁴), das die gleichen Grundzustandsdichten $(n_\uparrow, n_\downarrow, \mathbf{j}_p)$ wie das physikalische Vielteilchensystem aufweist.[¶] Dazu zerlegen wir das Funktional $F[n'_\uparrow, n'_\downarrow, \mathbf{j}'_p]$ in Gl. (1.12) wie folgt:

$$F[n'_\uparrow, n'_\downarrow, \mathbf{j}'_p] = T_s[n'_\uparrow, n'_\downarrow, \mathbf{j}'_p] + \frac{1}{2} \int d^3r \int d^3r' W(\mathbf{r}, \mathbf{r}') n'(\mathbf{r}) n'(\mathbf{r}') + E_{\text{xc}}[n'_\uparrow, n'_\downarrow, \mathbf{j}'_p]; \quad (1.17)$$

das Funktional T_s bezeichnet hier den Erwartungswert des Operators \hat{T} für ein wechselwirkungsfreies System,

$$T_s[n'_\uparrow, n'_\downarrow, \mathbf{j}'_p] = \langle \Psi_0[n'_\uparrow, n'_\downarrow, \mathbf{j}'_p] | \hat{T} | \Psi_0[n'_\uparrow, n'_\downarrow, \mathbf{j}'_p] \rangle, \quad (1.18)$$

[¶]Hier setzen wir die Darstellbarkeit der Dichten durch ein nichtwechselwirkendes System, also durch eine Slater-Determinante, stillschweigend voraus. Die Bedeutung sog. „Ensemble-repräsentierbarer“ Dichten⁴¹ wird im Zusammenhang mit der Arbeit von Lubin et al. (1997¹⁰¹) an anderer Stelle (S. 69) diskutiert.

mit dem Grundzustand $|\Psi_0[n'_\uparrow, n'_\downarrow, j'_p]\rangle$; der zweite Term beinhaltet die klassische elektrostatische Wechselwirkung, und E_{xc} enthält sämtliche Korrekturen durch Austausch und Korrelation. Wir suchen $V_{s\sigma}(\mathbf{r})$ und $\mathbf{A}_s(\mathbf{r})$ für ein nichtwechselwirkendes N -Teilchen-System, das sog. Kohn-Sham- oder KS-System, dessen Dichten

$$n_\sigma(\mathbf{r}) = \sum_\alpha f_{\alpha\sigma} |\varphi_{\alpha\sigma}(\mathbf{r})|^2 \quad (f_{\alpha\sigma}: \text{Besetzungsfaktor, s.u.}), \quad (1.19)$$

$$\mathbf{j}_p(\mathbf{r}) = \frac{\hbar}{2mi} \sum_{\alpha,\sigma} f_{\alpha\sigma} \{ \varphi_{\alpha\sigma}^*(\mathbf{r}) \nabla \varphi_{\alpha\sigma}(\mathbf{r}) - [\nabla \varphi_{\alpha\sigma}^*(\mathbf{r})] \varphi_{\alpha\sigma}(\mathbf{r}) \} \quad (1.20)$$

sich aus den normierten Lösungen der Schrödinger-Gleichung

$$H_{KS\sigma} \varphi_{\alpha\sigma}(\mathbf{r}) = \left[\frac{1}{2m} \left(\mathbf{p} + \frac{e}{c} \mathbf{A}_s(\mathbf{r}) \right)^2 + V_{s\sigma}(\mathbf{r}) \right] \varphi_{\alpha\sigma}(\mathbf{r}) = \varepsilon_{\alpha\sigma} \varphi_{\alpha\sigma}(\mathbf{r}) \quad (1.21)$$

berechnen. Die Besetzungsfaktoren $f_{\alpha\sigma} = \begin{cases} 1 & \text{für } \varepsilon_{\alpha\sigma} < \mu \\ 0 & \text{für } \varepsilon_{\alpha\sigma} > \mu \end{cases}$ sind durch das chemische Potential μ bzw. durch die Nebenbedingung $\sum_{\alpha\sigma} f_{\alpha\sigma} = N = \int d^3r n(\mathbf{r})$ festgelegt.

Das Energiefunktional für das Kohn-Sham-System H_{KS} lautet:

$$\begin{aligned} E_{V_{s\uparrow/\downarrow}, A_s}^0[n'_\uparrow, n'_\downarrow, j'_p] &= T_s[n'_\uparrow, n'_\downarrow, j'_p] + \sum_\sigma \int d^3r n'_\sigma(\mathbf{r}) V_{s\sigma}(\mathbf{r}) \\ &+ \frac{e}{c} \int d^3r \mathbf{j}'_p(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{A}_s(\mathbf{r}) + \frac{e^2}{2mc^2} \sum_\sigma \int d^3r n'_\sigma(\mathbf{r}) \mathbf{A}_s^2(\mathbf{r}) \end{aligned} \quad (1.22)$$

und soll nach Konstruktion ebenfalls durch $(n_\uparrow, n_\downarrow, j_p)$ minimiert werden:

$$\left. \frac{\delta \left(E_{V_{\uparrow/\downarrow}, A} - \mu [N - \int d^3r n'(\mathbf{r})] \right)}{\delta n'_\sigma} \right|_{(n_\uparrow/\downarrow, j_p)} = 0 = \left. \frac{\delta \left(E_{V_{s\uparrow/\downarrow}, A_s}^0 - \mu [N - \int d^3r n'(\mathbf{r})] \right)}{\delta n'_\sigma} \right|_{(n_\uparrow/\downarrow, j_p)}, \quad (1.23)$$

$$\left. \frac{\delta E_{V_{\uparrow/\downarrow}, A}}{\delta \mathbf{j}'_p} \right|_{(n_\uparrow/\downarrow, j_p)} = 0 = \left. \frac{\delta E_{V_{s\uparrow/\downarrow}, A_s}^0}{\delta \mathbf{j}'_p} \right|_{(n_\uparrow/\downarrow, j_p)}. \quad (1.24)$$

Nach Einsetzen von (1.12,1.22) und Ausführen der Variationsableitungen erhält man:

$$\int d^3r' W(\mathbf{r}, \mathbf{r}') n(\mathbf{r}') + \left. \frac{\delta E_{xc}}{\delta n'_\sigma} \right|_{(n_\uparrow, n_\downarrow, j_p)(\mathbf{r})} + V_\sigma(\mathbf{r}) + \frac{e^2}{2mc^2} \mathbf{A}^2(\mathbf{r}) = V_{s\sigma}(\mathbf{r}) + \frac{e^2}{2mc^2} \mathbf{A}_s^2(\mathbf{r}), \quad (1.25)$$

$$\left. \frac{\delta E_{xc}}{\delta \mathbf{j}'_p} \right|_{(n_\uparrow, n_\downarrow, j_p)(\mathbf{r})} + \frac{e}{c} \mathbf{A}(\mathbf{r}) = \frac{e}{c} \mathbf{A}_s(\mathbf{r}). \quad (1.26)$$

Damit sind die (nach dem Hohenberg-Kohn-Theorem eindeutigen) effektiven Einteilchenpotentiale $V_{s\sigma}$ und \mathbf{A}_s gefunden.

Wir definieren das Hartreepotential $V_H(\mathbf{r})$ für die Coulomb-Wechselwirkung $W(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \kappa^{-1} e^2 |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^{-1}$ (mit einer relativen Dielektrizitätskonstanten κ), die skalaren Austausch-Korrelations-Potentiale $V_{xc\sigma}(\mathbf{r})$ und das Austausch-Korrelations-Vektorpotential $A_{xc}(\mathbf{r})$ als

$$V_H(\mathbf{r}) = \frac{e^2}{\kappa} \int d^3 r' \frac{n(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}, \quad (1.27)$$

$$V_{xc\sigma}(\mathbf{r}) = \left. \frac{\delta E_{xc}[n'_\uparrow, n'_\downarrow, \mathbf{j}'_p]}{\delta n'_\sigma} \right|_{(n_\uparrow, n_\downarrow, \mathbf{j}_p)(\mathbf{r})}, \quad (1.28)$$

$$\frac{e}{c} A_{xc}(\mathbf{r}) = \left. \frac{\delta E_{xc}[n'_\uparrow, n'_\downarrow, \mathbf{j}'_p]}{\delta \mathbf{j}'_p} \right|_{(n_\uparrow, n_\downarrow, \mathbf{j}_p)(\mathbf{r})}. \quad (1.29)$$

Damit erhalten wir die Schrödinger-Gleichung

$$\left[\frac{1}{2m} \left\{ \hbar \frac{\nabla}{i} + \frac{e}{c} [\mathbf{A}(\mathbf{r}) + \mathbf{A}_{xc}(\mathbf{r})] \right\}^2 + \frac{e^2}{2mc^2} \left\{ A^2(\mathbf{r}) - [\mathbf{A}(\mathbf{r}) + \mathbf{A}_{xc}(\mathbf{r})]^2 \right\} + V_\sigma(\mathbf{r}) + V_H(\mathbf{r}) + V_{xc\sigma}(\mathbf{r}) \right] \varphi_{\alpha\sigma}(\mathbf{r}) = \varepsilon_{\alpha\sigma} \varphi_{\alpha\sigma}(\mathbf{r}), \quad (1.30)$$

die zusammen mit den Gln. (1.19,1.20) eine Verallgemeinerung der *KS-Gleichungen*⁸⁴ darstellt, deren selbstkonsistente Lösung $(n_\uparrow, n_\downarrow, \mathbf{j}_p)$ die gesuchten, physikalischen Grundzustandsdichten sind. Man beachte, daß $A_s = A + A_{xc}$ in Gl. (1.30) nur *linear* erscheint!

Die Grundzustandsenergie des wechselwirkenden Systems ist nach Einsetzen von (1.22) in (1.12) gegeben durch:

$$E = \sum_{\alpha\sigma} f_{\alpha\sigma} \varepsilon_{\alpha\sigma} - \frac{e^2}{2} \int d^3 r \int d^3 r' \frac{n(\mathbf{r})n(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} - \sum_{\sigma} \int d^3 r n_\sigma(\mathbf{r}) V_{xc\sigma}(\mathbf{r}) - \frac{e}{c} \int d^3 r \mathbf{j}_p(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{A}_{xc}(\mathbf{r}) + E_{xc}[n_\uparrow, n_\downarrow, \mathbf{j}_p]. \quad (1.31)$$

Abschließend sei noch erwähnt, daß die Formulierung der Selbstkonsistenz-Gleichungen ohne A_{xc} dem Konzept der Spin-Dichtefunktional-Theorie [SDFT, siehe von Barth & Hedin (1972⁹), Rajagopal & Callaway (1973¹⁴⁶) und andere Referenzen^{24,61,180}] entspricht, das in magnetischen Systemen Anwendung findet. In dieser Formulierung, die die Kopplung der orbitalen Ströme an das Vektorpotential vernachlässigt, ist es möglich, durch die Lösung der KS-Gleichungen die physikalische Spindichte $s(\mathbf{r})$ zu berechnen, die an das Zeeman-Feld $\frac{1}{2}g\mu_B B(\mathbf{r})$ koppelt und in der einfachen DFT nicht explizit in Erscheinung tritt (infolge des Hohenberg-Kohn-Theorems aber eindeutig definiert ist). Die dazu nötigen Informationen müssen allerdings in Näherungen der (exakt nicht bekannten) Austausch-Korrelations-Energie enthalten sein (vgl. Abschnitt 1.4). Letztere ist nun ein Funktional von n_\uparrow und n_\downarrow , das nicht mehr parametrisch von B abhängt. Auf diese Weise können spontane Symmetriebrüche, wie sie in ferromagnetischen Substanzen auftreten, beschrieben werden. Nimmt man a priori an, daß der Grundzustand stets unpolarisiert ist, kann man auf die Spinabhängigkeit von V_s verzichten.

1.3 Eichinvarianz

Während die physikalische Stromdichte $\mathbf{j}(\mathbf{r})$ bei einer Eichtransformation des Vektorpotentials $\mathbf{A}(\mathbf{r}) \rightarrow \mathbf{A}(\mathbf{r}) - \nabla\Lambda(\mathbf{r})$ (mit einer beliebigen skalaren Funktion Λ) invariant bleibt, transformiert sich $\mathbf{j}_p(\mathbf{r})$ gemäß Gl. (1.8) nach $\mathbf{j}_p(\mathbf{r}) + \frac{e}{mc}n(\mathbf{r})\nabla\Lambda(\mathbf{r})$.

Die Eichinvarianz des im letzten Abschnitt dargelegten Verfahrens überprüft man, indem die Eigenschaften aller Funktionale unter der Transformation $\mathbf{j}'_p(\mathbf{r}) \rightarrow \mathbf{j}'_p(\mathbf{r}) + \frac{e}{mc}n'(\mathbf{r})\nabla\Lambda(\mathbf{r})$ untersucht werden. Die Wellenfunktionen verändern sich wie folgt:

$$\Psi[n'_\uparrow, n'_\downarrow, \mathbf{j}'_p + \frac{e}{mc}n'\nabla\Lambda](\{\mathbf{r}_i\}) = \exp\left[\frac{ie}{\hbar c}\sum_{i=1}^N\Lambda(\mathbf{r}_i)\hat{\sigma}_i\right]\Psi[n'_\uparrow, n'_\downarrow, \mathbf{j}'_p](\{\mathbf{r}_i\}); \quad (1.32)$$

$\hat{\sigma}_i$ ist hier der Spin-Projektionsoperator mit den Eigenwerten ± 1 für \uparrow/\downarrow . Damit ermittelt man das Transformationsverhalten des Funktionals F :¹⁷⁷

$$\begin{aligned} F[n'_\uparrow, n'_\downarrow, \mathbf{j}'_p + \frac{e}{mc}n'\nabla\Lambda] &= \\ F[n'_\uparrow, n'_\downarrow, \mathbf{j}'_p] + \frac{e}{c}\sum_\sigma \int d^3r \mathbf{j}'_p(\mathbf{r}) \cdot \nabla\Lambda(\mathbf{r}) + \frac{e^2}{2mc^2}\sum_\sigma \int d^3r n'_\sigma(\mathbf{r})|\nabla\Lambda(\mathbf{r})|^2. \end{aligned} \quad (1.33)$$

Diese Transformation hängt nicht von der Grundzustands-Wellenfunktion $|\Psi\rangle$ selbst ab und gilt gleichermaßen für das Funktional T_s ohne Wechselwirkung. Daraus folgern wir:

$$\begin{aligned} E_{xc}[n'_\uparrow, n'_\downarrow, \mathbf{j}'_p + \frac{e}{mc}n'\nabla\Lambda] &= \\ &= F[n'_\uparrow, n'_\downarrow, \mathbf{j}'_p + \frac{e}{mc}n'\nabla\Lambda] - T_s[n'_\uparrow, n'_\downarrow, \mathbf{j}'_p + \frac{e}{mc}n'\nabla\Lambda] \\ &\quad - \frac{1}{2}\int d^3r \int d^3r' W(\mathbf{r}, \mathbf{r}')n'(\mathbf{r})n'(\mathbf{r}') \\ &= F[n'_\uparrow, n'_\downarrow, \mathbf{j}'_p] - T_s[n'_\uparrow, n'_\downarrow, \mathbf{j}'_p] - \frac{1}{2}\int d^3r \int d^3r' W(\mathbf{r}, \mathbf{r}')n'(\mathbf{r})n'(\mathbf{r}') \\ &= E_{xc}[n'_\uparrow, n'_\downarrow, \mathbf{j}'_p]. \end{aligned} \quad (1.34)$$

Aus dieser Gleichung kann man die komplette Eichinvarianz des Kohn-Sham-Formalismus ableiten (Vignale & Rasolt, 1988¹⁷⁷). Eine wichtige Konsequenz ist schließlich, daß das Austausch-Korrelations-Funktional nicht explizit von \mathbf{j}'_p abhängt, sondern nur über die Kombination $\mathbf{v}' = \nabla \times (\mathbf{j}'_p/n')$, die als *Vortizität*¹⁷⁶ bezeichnet wird. Wir können also ein neues Funktional

$$\tilde{E}_{xc}[n'_\uparrow, n'_\downarrow, \mathbf{v}'] := E_{xc}[n'_\uparrow, n'_\downarrow, \mathbf{j}'_p] \quad (1.35)$$

eingeführen, wobei die Tilde über \tilde{E}_{xc} im folgenden weggelassen wird.

1.4 Lokale Näherungen

Um mithilfe der KS-Gleichungen tatsächlich die Grundzustandsdichten und -energien berechnen zu können, bedarf es freilich noch gewisser Näherungen. Da in E_{xc} die gesamte Vielteilcheninformation enthalten ist, bedeutet das Wissen um das exakte Funktional bereits die vollständige Lösung des Problems. Um dennoch einen brauchbaren Ausgangspunkt für ein näherungsweise *Lösungsverfahren* zu bekommen, wurde

im Rahmen der einfachen DFT die *Lokale-Dichte-Näherung* (*local density approximation*, LDA; siehe Dreizler & Gross, 1990⁴¹) vorgeschlagen: Man approximiert $E_{xc}[n']$ durch

$$E_{xc}[n'] \approx \int d^3r \varepsilon_{xc}(n'(r)) n'(r), \quad (1.36)$$

wobei $\varepsilon_{xc}(n^0)$ die Austausch-Korrelations-Energie pro Teilchen eines *homogenen* Systems mit der vorgegebenen Dichte ist.

Der Gültigkeitsbereich der LDA geht nach praktischen Erfahrungen weit über diejenigen Systeme hinaus, deren Grundzustandsdichte nur schwach auf der Längenskala der Vielteilchenkorrelationen variiert. Dreizler & Gross (1990⁴¹) argumentieren folgendermaßen im Rahmen einer Diskussion, die auf der Technik der Kopplungskonstanten-Integration beruht: Die Grundzustandsenergie E für eine *festgehaltene* Dichte n läßt sich mithilfe des Hellmann-Feynman-Theorems in Abhängigkeit der Kopplungskonstanten $\lambda = 0 \dots 1$, die als Vorfaktor das Zuschalten der Wechselwirkung steuert, schreiben als

$$\begin{aligned} E &= T_s[n] + \int d^3r V(r)n(r) + \frac{1}{2} \int d^3r \int d^3r' W(r, r')n(r)n(r') + E_{xc}[n] \\ &= E(\lambda = 1) = E(0) + \int_0^1 d\lambda \frac{dE(\lambda)}{d\lambda} = E(0) + \int_0^1 d\lambda \left\langle \Psi_\lambda \left| \frac{dH_\lambda}{d\lambda} \right| \Psi_\lambda \right\rangle; \end{aligned} \quad (1.37)$$

durch Identifikation des Integrals über λ mit den entsprechenden Termen der ersten Zeile kann man die Austausch-Korrelations-Energie ermitteln:⁴¹

$$\begin{aligned} E_{xc}[n] &= \frac{1}{2} \int_0^1 d\lambda \int d^3r \int d^3r' W(r, r') \\ &\quad \times [\langle \Psi_\lambda | (\hat{n}(r) - n(r))(\hat{n}(r') - n(r')) | \Psi_\lambda \rangle - n(r)\delta(r - r')] \\ &= \frac{1}{2} \int d^3r \int d^3r' W(r, r')n(r)n(r') \int_0^1 d\lambda [g_\lambda(r, r', [n]) - 1], \end{aligned} \quad (1.38)$$

welche als die Wechselwirkungsenergie der Elektronen mit dem Austausch-Korrelations-Loch $\rho_{xc}(r, r', [n]) = n(r')[\bar{g}(r, r', [n]) - 1]$ interpretiert werden kann (Perdew & Langreth, 1975¹²⁹; Gunnarsson & Lundqvist, 1976⁶¹). Dabei ist $\bar{g}(r, r', [n]) = \int_0^1 d\lambda g_\lambda(r, r', [n])$ die Mittelung der Paar-Korrelationsfunktion

$$g_\lambda(r, r', [n]) = \frac{\langle \Psi_\lambda | \hat{n}(r)\hat{n}(r') | \Psi_\lambda \rangle}{n(r)n(r')} - \frac{\delta(r - r')}{n(r)} \quad (1.39)$$

über die Kopplungskonstante λ . Die exakte Austausch-Korrelations-Energie pro Teilchen für eine Wechselwirkung der Form $W(r, r') = W(|r - r'|)$ ist dann (mit $\mathbf{y} = \mathbf{r}' - \mathbf{r}$)

$$\varepsilon_{xc}(r, [n]) = \frac{1}{2} \int d\mathbf{y} 4\pi y^2 W(y) \bar{\rho}_{xc}(r, y, [n]) \quad (1.40)$$

⁴¹Dazu ist zu beachten, daß $H_\lambda = \hat{T} + \lambda\hat{W} + V_\lambda$ ein λ -abhängiges Potential enthält, welches für jedes λ die geforderte Grundzustandsdichte n liefert!

mit dem sphärisch-gemittelten Austausch-Korrelations-Loch $\bar{\rho}_{xc}(r, y, [n]) = (4\pi)^{-1} \int d\Omega_y \rho_{xc}(r, r + y, [n])$. Der Vergleich mit der LDA (1.36) zeigt, daß dieser Ausdruck bereits dann gut mit demjenigen für ein homogenes System,

$$\varepsilon_{xc}(n^0) = \frac{1}{2} \int dy 4\pi y^2 W(y) \rho_{xc}^{\text{hom}}(y, n^0), \quad (1.41)$$

übereinstimmt, wenn das *sphärisch-gemittelte* Austausch-Korrelations-Loch gut durch $\rho_{xc}^{\text{hom}}(y, n(\mathbf{r}))$ beschrieben wird. Für Wasserstoff-artige Atome wurde diese Voraussetzung von Gunnarsson, Jonson & Lundqvist (1979⁶⁰) numerisch verifiziert. Sie überträgt sich direkt auf die CSDFT-Erweiterung mit $(n_\uparrow, n_\downarrow, \mathbf{j}_p)$ -abhängiger Austausch-Korrelations-Energie. Unsere Rechnungen für mesoskopische Quantenpunkte zeigen eine gute Übereinstimmung mit Ergebnissen exakter Diagonalisierung (siehe Abschnitt 3.3), was die Verwendung der lokalen Näherung auch in diesen Systemen rechtfertigt.

Die Verallgemeinerung der LDA innerhalb der CSDFT lautet (Vignale, Rasolt & Geldart, 1990¹⁷⁹)

$$E_{xc}[n'_\uparrow, n'_\downarrow, \mathbf{v}'] \approx \int d^3r \varepsilon_{xc}(n'_\uparrow(\mathbf{r}), n'_\downarrow(\mathbf{r}), \mathbf{v}'(\mathbf{r})) n'(\mathbf{r}) \quad (1.42)$$

und erlaubt eine magnetfeld- und spinabhängige Beschreibung der Austausch-Korrelations-Energie. Wie in der Arbeit von Vignale & Rasolt (1988¹⁷⁷) betont wird, liefert eine lokale Näherung unter expliziter Benutzung von $\mathbf{j}'_p(\mathbf{r})$ keine neue Information, da für Systeme mit homogener paramagnetischer Stromdichte die Vortizität stets verschwindet. Damit schränkt man die Klasse der homogenen Systeme auf diejenigen mit $\mathbf{v}^0 = \mathbf{0}$ ein. Die Verwendung der lokalen Vortizität, $\mathbf{v}^0 = \mathbf{v}'(\mathbf{r})$, gestattet jedoch tatsächlich eine Erweiterung: Aufgrund der Translationsinvarianz und der Stromerhaltung gilt in homogenen, abgeschlossenen Systemen $\mathbf{j}_{\text{hom}} = \mathbf{0}$, und damit:

$$\mathbf{j}_{p\text{hom}} = -\frac{e}{mc} n^0 \mathbf{A}_{\text{hom}}. \quad (1.43)$$

Für das Magnetfeld des homogenen Systems folgt daraus sofort:

$$\mathbf{B}_{\text{hom}} = \nabla \times \mathbf{A}_{\text{hom}} = -\frac{mc}{e} \nabla \times \frac{\mathbf{j}_{p\text{hom}}}{n^0} = -\frac{mc}{e} \mathbf{v}^0 = \text{const}; \quad (1.44)$$

es ist also durch die lokale Vortizität des inhomogenen Systems definiert. Die Austausch-Korrelations-Energie pro Teilchen

$$\varepsilon_{xc}(n_\uparrow^0, n_\downarrow^0, \mathbf{v}^0) = \varepsilon_{xc}(n_\uparrow^0, n_\downarrow^0, \mathbf{B}_{\text{hom}}) \quad (1.45)$$

wird analog zur LDA mit der lokalen Dichte gewichtet und integriert. Wie in Vignale (1995¹⁷⁵) dargelegt darf \mathbf{B}_{hom} nicht mit dem externen Magnetfeld $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}$ verwechselt werden, obwohl im Fall $|\mathbf{j}| \ll |\mathbf{j}_p|$ das Feld des homogenen Systems durch \mathbf{B} approximiert werden kann.

Die Austausch-Korrelations-Energie der einfachen LDA ist wie F_{HK} explizit vom externen Vektorpotential abhängig. Eine Beschreibung von E_{xc} gemäß Gl. (1.36) setzt voraus, daß das zugrundeliegende homogene System unpolarisiert und keinem äußeren

Magnetfeld unterworfen ist. Damit wird die Magnetfeldabhängigkeit von Austausch und Korrelation nur bedingt berücksichtigt (nämlich in Form der selbstkonsistenten Grundzustandsdichte). Ferner werden Spineffekte unterschlagen, da E_{xc} keinerlei Information über den Einfluß einer lokalen Spindichte enthält. Letzteres kann bereits im Rahmen der SDFT behoben werden, wenn man anstelle $\varepsilon_{xc}(n^0)$ die Energie für ein homogenes System mit beliebiger Spinpolarisation einsetzt, $\varepsilon_{xc}(n_{\uparrow}^0, n_{\downarrow}^0)$. Dies entspricht einem homogenen System mit Zeeman-Feld, das nach dem Hohenberg-Kohn-Theorem der SDFT (von Barth & Hedin, 1972⁹) durch $(n_{\uparrow}^0, n_{\downarrow}^0)$ eindeutig festgelegt ist (der Einfluß des Vektorpotentials A_{hom} wird dabei aber immer noch vernachlässigt).

Wir bezeichnen die erweiterte LDA mit variabler Spindichte (aber $A_{\text{hom}} = 0$) als *Lokale-Spindichte-Näherung* (LSDA), und die allgemeine Form (1.42) als *Lokale-Vortizitäts-Spindichte-Näherung* (LVSDA).

Aus der Verknüpfung von Zeeman-Feld und Vektorpotential, $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}$, leiten Capelle & Gross (1997²³) die Beziehung

$$E_{xc}[n'_{\uparrow}, n'_{\downarrow}, \mathbf{v}'] = \bar{E}_{xc}[n', \nabla \times ((\mathbf{j}'_p + \mathbf{j}'_s)/n')], \quad (1.46)$$

ab, wobei für eine konstante Spindichte \mathbf{s}^0 der Beitrag von \mathbf{j}'_s verschwindet. Damit ist ε_{xc} in Gl. (1.45) nur noch eine Funktion von n^0 und $\mathbf{v}^0 = -e\mathbf{B}_{\text{hom}}/(mc)$, die \mathbf{s}^0 festlegen. Für die Beschreibung inhomogener Systeme mithilfe der LVSDA schöpfen wir dennoch den formalen Spielraum der CSDFT voll aus (vgl. Abschnitt 1.1): Die Spinpolarisation des (fiktiven) homogenen Systems sei also im folgenden unabhängig von dem Vektorpotential A_{hom} , an das die orbitalen Ströme koppeln.

Ein bedeutender Aspekt der LVSDA betrifft den erweiterten Gültigkeitsbereich im Vergleich zur LDA und LSDA: Da die charakteristische Länge eines homogenen Systems im Magnetfeld \mathbf{B}_{hom} bestimmt wird durch die magnetische Länge $\ell_B = \sqrt{\hbar c/(eB_{\text{hom}})}$, mit welcher die Ausdehnung der Einteilchen-Wellenfunktionen skaliert, gibt es neben dem Grenzfall $n(\mathbf{r}) \rightarrow n^0$ auch noch einen anderen exakten Limes der LVSDA, der durch die Bedingung $\ell_B |\nabla n(\mathbf{r})|/n(\mathbf{r}) \ll 1$ gegeben ist. Für große B_{hom} gewinnt die LVSDA also an Signifikanz, selbst wenn die physikalische Dichte $n(\mathbf{r})$ sehr inhomogen ist (Rasolt & Perrot, 1992¹⁴⁸; Vignale, 1995¹⁷⁵).

1.5 Austausch-Korrelation homogener Systeme

Das dreidimensionale Elektronengas

Dem Problem der Austausch-Korrelations-Energie wurden in den letzten Jahrzehnten viele Studien gewidmet, insbesondere natürlich dem Fall dreidimensionaler homogener Elektronengase ohne Vektorpotential, der für die meisten LDA-Berechnungen relevant ist. Neben den klassischen Pionierarbeiten von Wigner (1934¹⁸⁴) (Grenzfall niedriger Dichte) und Gell-Mann & Brueckner (1957⁵²) (hohe Dichte) wurden Parametrisierungen von Singwi et al. (1968¹⁶⁰), Hedin & Lundqvist (1971⁶⁴), Gunnarsson & Lundqvist (1976⁶¹), Vosko et al. (1980¹⁸⁰) und Perdew & Zunger (1981¹³⁰) erarbeitet, die teilweise auf analytischer Betrachtung bestimmter Approximationen [z.B. „Ring-Diagramm-Summation“ (*random-phase approximation*, RPA¹⁴¹)] beruhen, aber auch Quanten-Monte-Carlo-Rechnungen von Ceperley & Alder (1980²⁵)

berücksichtigen. Diese und eine Reihe weiterer Arbeiten werden von Dreizler & Gross (1990⁴¹) diskutiert.

Ausgehend von der Hartree-Fock-Energie eines homogenen Elektronensystems mit beliebiger Spinpolarisation $\xi = (n_\uparrow - n_\downarrow)/(n_\uparrow + n_\downarrow)$ (Index 0 weggelassen),

$$\begin{aligned} \varepsilon_{\text{HF}}(r_s, \xi)/\text{Ry} = & \frac{3}{10} \left(\frac{9\pi}{4} \right)^{2/3} \frac{(1 + \xi)^{5/3} + (1 - \xi)^{5/3}}{r_s^2} \\ & - \frac{3}{4\pi} \left(\frac{9\pi}{4} \right)^{1/3} \frac{(1 + \xi)^{4/3} + (1 - \xi)^{4/3}}{r_s} \end{aligned} \quad (1.47)$$

in Einheiten von Rydberg, $1 \text{ Ry} = e^2/(2a_0)$, und in Abhängigkeit des dimensionslosen Dichteparameters $r_s = (\frac{4}{3}\pi a_0^3 n)^{-1/3}$ [mit dem Bohr-Radius $a_0 = \hbar^2/(me^2)$], haben von Barth & Hedin (1972⁹) vorgeschlagen, die Korrelationsenergie pro Teilchen mithilfe der Funktion $f(\xi) = [(1 + \xi)^{4/3} + (1 - \xi)^{4/3} - 2] (2^{4/3} - 2)$ zwischen den Grenzfällen $\xi = 0$ und $\xi = 1$ zu interpolieren. Die resultierende Formel für Austausch und Korrelation

$$\varepsilon_{\text{xc}}(r_s, \xi) = \varepsilon_{\text{xc}}(r_s, \xi = 0) + [\varepsilon_{\text{xc}}(r_s, \xi = 1) - \varepsilon_{\text{xc}}(r_s, \xi = 0)] f(\xi), \quad (1.48)$$

reproduziert so den bekannten Austausch-Anteil (Thomas, 1927¹⁷¹; Fermi, 1928⁴⁹) in der zweiten Zeile von Gl. (1.47) exakt. Für die Grenzfälle $\varepsilon_c(r_s, \xi = 0)$ und $\varepsilon_c(r_s, \xi = 1)$ können dann Parametrisierungen wie oben erwähnt^{61,64} verwendet werden.** Im Wechselspiel mit dem kinetischen Term reproduziert ε_{xc} den Übergang zu spinpolarisierten ($\xi = 1$) Grundzuständen bei hinreichend kleiner Dichte; Korrelationen verschieben die kritische Dichte allerdings von dem bereits von Bloch (1929¹⁴) aus dem Austausch-Term abgeschätzten Wert nach unten.

Vosko, Wiek & Nusair (1980¹⁸⁰) kritisieren, daß die von Barth-Hedin-Interpolation der ξ -Abhängigkeit der Korrelation nur bedingt gerecht wird; unter Einbeziehung von Monte-Carlo-Rechnungen (Ceperley, 1978²⁴; Ceperley & Alder, 1980²⁵) geben die Autoren Korrekturen für $\varepsilon_c(n, \xi)$ an, die über die einfache Interpolation (1.48) hinausgehen.

Speziell für drei Dimensionen wurden des weiteren Verbesserungen der LDA im Kontext der *Generalized Gradient Approximation* (Perdew et al., 1996¹²⁸) und des Konzepts der *Optimized Effective Potentials* (Sharp & Horton, 1953¹⁵⁸; Talman & Shadwick, 1976¹⁶⁷) entwickelt, auf die wir hier nicht eingehen.

Eine Reihe von Autoren hat sich darüber hinaus mit Austausch-Korrelation in 3D-Systemen unter Berücksichtigung der Kopplung der orbitalen Ströme an ein *endliches Vektorpotential* beschäftigt. Ausgangspunkt ist dabei ein nichtwechselwirkendes Elektronengas mit Landau-Quantisierung (Landau & Lifshitz, 1965⁹⁰),

$$E_{n_L \sigma}(k_z) = \hbar \omega_c (n_L + \frac{1}{2}) + \frac{\hbar^2 k_z^2}{2m} + \frac{1}{2} g \hbar \omega_c \sigma \quad (\text{Spin } \sigma = \uparrow/\downarrow = \pm \frac{1}{2}), \quad (1.49)$$

mit der Zyklotronenergie $\hbar \omega_c = \hbar e B / (mc)$, die durch das Magnetfeld B in z -Richtung gegeben ist. Das chemische Potential ist definiert durch die Situation, in der die Fermi-

**Das analytische Ergebnis für $\xi = 0$ lautet $\varepsilon_c(r_s, 0)/\text{Ry} = 0.0622 \ln r_s - 0.096 + O(r_s)$ (Gell-Mann & Brueckner, 1957⁵²).

Wellenvektoren $k_{F_{n_L}}^\sigma$ für alle besetzten Landau-Subbänder (Index n_L) dieselbe Energie haben [hier mit neuem Energienullpunkt $E_{0\uparrow}(0) = 0$]:

$$\mu_0 = \frac{\hbar^2 k_{F0}^{\uparrow 2}}{2m} = \frac{\hbar^2 k_{F_{n_L}}^{\uparrow 2}}{2m} + n_L \hbar \omega_c = \frac{\hbar^2 k_{F_{n_L}}^{\downarrow 2}}{2m} + n_L \hbar \omega_c - \frac{1}{2} g \hbar \omega_c. \quad (1.50)$$

Danz & Glasser (1971³³) berechnen die Austausch-Energie für ein spinpolarisiertes Elektronengas im untersten Landau-Subband analytisch, in einer späteren Arbeit (Morgenstern Horing, Danz & Glasser, 1972¹²¹) wird der Korrelationsanteil unter Verwendung der RPA (siehe Pines, 1963¹⁴¹) bestimmt. Ein ähnliches Resultat ermitteln Keldysh & Onishchenko (1976⁷⁹) mit Korrekturen, die über die RPA hinausgehen.

Skudlarski & Vignale (1993¹⁶¹) finden mithilfe der Kopplungskonstanten-Integrationstechnik und der RPA einen Ausdruck für E_{xc} bei beliebigem Magnetfeld, der jedoch noch einige Integrale enthält, die numerisch ausgewertet werden müssen. Für verschiedene Wertebereiche des Parameters $\lambda^2 = \mu_0 / (\hbar \omega_c)$ zeigen die Autoren explizite Ergebnisse für E_{xc} ; sie erhalten für $\lambda \ll 1$ (im extrem hohen Magnetfeldbereich, wenn höhere Landau-Subbänder vernachlässigt werden können) die Parametrisierung:

$$\begin{aligned} \varepsilon_x(\lambda, r_s) / \text{Ry} &= 1.345 \frac{\lambda^{2/3}}{r_s} \ln \left(\frac{\lambda}{1.679} \right), \\ \varepsilon_c(\lambda, r_s) / \text{Ry} &= -1.606 r_s^{-3/4} (1 - 1.009 \lambda^{1/4}). \end{aligned} \quad (1.51)$$

Im Bereich mittlerer Felder ($\lambda \geq 0.3$), wenn immer mehr Landau-Subbänder besetzt werden, wird die Situation komplizierter und eine einfache Parametrisierung durch λ und r_s ist nicht mehr allgemein möglich.

Die Korrekturen zur Austausch-Korrelations-Energie eines homogenen, unpolarisierten Elektronengases durch kleine paramagnetische Ströme geben Vignale & Rasolt (1987¹⁷⁶) durch Störungstheorie erster Ordnung an als

$$E_{xc}[n_\uparrow, n_\downarrow, j_p] - E_{xc}[n_\uparrow, n_\downarrow, \mathbf{0}] = \int d^3r \frac{mk_F}{24\pi^2} \left(\frac{\chi_L}{\chi_L^0} - 1 \right) \left| \nabla \times \frac{j_p(\mathbf{r})}{n} \right|^2, \quad (1.52)$$

wobei die orbitale Landau-Suszeptibilität χ_L des wechselwirkenden Systems im Limes $r_s \rightarrow 0$ bei Vignale et al. (1988¹⁷⁸) zu finden ist. Der entsprechende Ausdruck für ein wechselwirkungsfreies System lautet $\chi_L^0 = -e^2 k_F / (12\pi^2 m c^2)$.

Schließlich existiert noch eine Studie von Mazzolo et al. (1995¹¹²), die eine Gradientenkorrektur zur LDA unter Berücksichtigung inhomogener Stromdichten formuliert, deren numerische Realisierung jedoch höchst aufwendig ist.

Austausch-Korrelation in zwei Dimensionen

Für zweidimensionale Systeme wie das Elektronengas in einer Halbleiter-Heterostruktur gibt es leider nur relativ wenige Ergebnisse, die in einer LVSDA-Rechnung verwendet werden könnten.

Zunächst folgt ein Überblick über Systeme *ohne* äußeres Magnetfeld:

Jonson (1976⁷³) vergleicht RPA und die genauere STLS-Näherung (Singwi et al., 1968¹⁶⁰) für ein echtes zweidimensionales Elektronengas (2DEG) mit den Ergebnissen

für ein Quasi-2DEG mit endlicher Ausdehnung in der dritten Dimension. In beiden Fällen stellt sich die RPA als schlechtere Näherung heraus, als aus 3D-Systemen bekannt ist. Da die Korrelationen infolge der abgeschwächten kurzreichweitigen Coulomb-Wechselwirkung im Fall eines Quasi-2DEG an Bedeutung verlieren, fallen hier die Diskrepanzen zwischen RPA und STLS-Näherung nicht so groß aus. Eine jüngere Studie zum dem Problem eines 2DEG mit endlicher Dicke findet sich in Betbeder-Matibet et al. (1996¹²).

Die Ring-Diagramm-Summation von Gell-Mann & Brueckner (1957⁵²) wenden Rajagopal & Kimball (1977¹⁴⁷) auf zwei Dimensionen an und erhalten für die Gesamtenergie pro Teilchen eines 2DEG mit Polarisation ξ :

$$\varepsilon_{\text{tot}}/\text{Ry} = \frac{1}{r_s^2}(1 + \xi^2) - \frac{4\sqrt{2}}{3\pi r_s} \left[(1 + \xi)^{3/2} + (1 - \xi)^{3/2} \right] + [E_x^{(2)} + E_c^r(r_s, \xi)]/N, \quad (1.53)$$

wobei der erste Term die kinetische Energie der nicht wechselwirkenden Teilchen, der zweite den Hartree-Fock-Beitrag und der dritte, konstante Term $E_x^{(2)}$ einen Austausch-Beitrag zweiter Ordnung darstellt. Der letzte Ausdruck E_c^r ist eine Korrektur, die sich aus der Summation aller „Ring-Diagramme“⁵² ergibt und den restlichen Korrelationsanteil definiert. Er enthält außer dem Ring-Diagramm niedrigster Ordnung ebenfalls einen von r_s unabhängigen Term. Hier ist $r_s = (\pi n_s)^{-1/2}/a_0$ die zweidimensionale Variante des Dichteparameters. Interessanterweise gibt es eine Skalen-Beziehung zwischen den Grenzfällen $E_c^r(r_s, 1)$ und $E_c^r(r_s, 0)$:

$$E_c^r(r_s, 1) = \frac{1}{2} E_c^r\left(\frac{r_s}{2^{3/2}}, 0\right). \quad (1.54)$$

Für den Spezialfall $\xi = 0$ erhalten die Autoren:

$$\varepsilon_{\text{tot}}/\text{Ry} = \frac{1}{r_s^2} - \frac{1.20}{r_s} - 0.38 - 0.172 r_s \ln r_s + O(r_s). \quad (1.55)$$

Die konstanten Beiträge aus der zweiten Ordnung der direkten Coulomb-Wechselwirkung (die auch in der RPA enthalten sind) sowie diejenigen aus dem Austauschterm $E_x^{(2)}$ werden im Limes $r_s \rightarrow 0$ besonders interessant, weil – im Unterschied zum 3D-Fall – ein Faktor r_s vor dem Logarithmus steht. Eine genauere Berechnung unter Hinzunahme weiterer Austausch-Graphen zweiter Ordnung führt zu dem besseren Wert von -0.2287 (Isihara & Ioratti, 1980⁶⁹).

Einen numerischen Zugang benutzen Tanatar & Ceperley (TC) (1989¹⁶⁸) zur Berechnung der Austausch-Korrelations-Energie für die Grenzfälle $\xi = 0$ und $\xi = 1$. Mithilfe der Methoden des *Variational Monte Carlo* und des *Fixed-Node Green's-Function Monte Carlo* bestimmen sie die Korrelationsenergie für verschiedene r_s (1, 5, 10, 15, 20 usw.) und parametrisieren die Ergebnisse in der Form:

$$\varepsilon_c^{\text{TC}}(r_s, \xi)/\text{Ry} = a_0 \frac{1 + a_1 x}{1 + a_1 x + a_2 x^2 + a_3 x^3} \quad (\text{mit } x = r_s^{1/2}). \quad (1.56)$$

Tabelle I zeigt die konkreten Werte der Parameter, die aus einer Anpassung an die berechneten Energien ermittelt wurden. Für $r_s \rightarrow 0$ liefert dies das asymptotische Verhalten $a_0 \left[1 + b r_s + O\left(r_s^{3/2}\right) \right]$, wobei allerdings der Term $r_s \ln r_s$ aus Gl. (1.55) fehlt. Die

	a_0	a_1	a_2	a_3
$\xi = 0$	-0.356 8	1.130 0	0.905 2	0.416 5
$\xi = 1$	-0.051 5	340.581 3	75.229 3	37.017 0

TABELLE I: Parameter der Padé-Approximation (1.56) für ein unpolarisiertes ($\xi = 0$) und ein vollständig polarisiertes ($\xi = 1$) 2D-Elektronengas. (Aus Tanatar & Ceperley, 1989¹⁶⁸)

Austausch-Korrelations-Energie für beliebige Polarisation läßt sich analog zu Gl. (1.48) durch eine an den zweidimensionalen Austausch angepaßte Interpolation annähern:

$$\begin{aligned} \varepsilon_{xc}^{\text{TC}}(r_s, \xi)/\text{Ry} = & -\frac{4\sqrt{2}}{3\pi r_s} \left[(1 + \xi)^{3/2} + (1 - \xi)^{3/2} \right] + \varepsilon_c^{\text{TC}}(r_s, \xi = 1)/\text{Ry} \\ & + \left[\varepsilon_c^{\text{TC}}(r_s, \xi = 0) - \varepsilon_c^{\text{TC}}(r_s, \xi = 1) \right] f(\xi)/\text{Ry}, \end{aligned} \quad (1.57)$$

mit einer entsprechenden Interpolationsfunktion $f(\xi) = [(1 + \xi)^{3/2} + (1 - \xi)^{3/2} - 2^{3/2}] / (2 - 2^{3/2})$. Diese Parametrisierung dient in den folgenden Kapiteln als Grundlage für die Berechnung des LSDA-Energiefunktional. Die spinunabhängige LDA realisieren wir auf der Basis von $\varepsilon_{xc}^{\text{TC}}(r_s, \xi = 0)$, also unter Verwendung eines unpolarisierten homogenen Systems. Die so gewonnenen LDA-Ergebnisse unterscheiden sich kaum von denjenigen aus einer Parametrisierung nach Jonson (1976⁷³).

Den Einfluß kleiner Magnetfelder auf ein unpolarisiertes 2DEG haben Isihara et al. (1979⁷⁰) analytisch untersucht; sie finden in linearer Ordnung des Parameters $\alpha = [\hbar\omega_c/(4\text{Ry})]^2$ die Korrektur [bis $O(r_s^2)$]:

$$\Delta\varepsilon_{\text{tot}}/\text{Ry} = \alpha r_s^2 \left[\left(\frac{1}{3} - \frac{g^2}{4} \right) + (-5.540 \times 10^{-3} - 0.1125 g^2) r_s + 0.03751 r_s \ln r_s \right]. \quad (1.58)$$

Für den Limes hoher Magnetfelder, wenn alle Elektronen die Zustände des untersten, spinpolarisierten Landau-Niveaus besetzen und die Beimischung höherer Landau-Niveaus zum korrelierten Grundzustand vernachlässigbar sind, schlagen Levesque, Weis & MacDonald (LWM) (1984⁹³) eine geglättete Formel für die Abhängigkeit der Austausch-Korrelation vom Füllfaktor $\nu = n_s 2\pi \ell_B^2$ vor. Letzterer gibt die Zahl besetzter Landau-Niveaus im Magnetfeld B bei einer Flächendichte n_s an. Die Entartung pro Fläche eines jeden Landau-Niveaus beträgt $(2\pi \ell_B^2)^{-1}$, wobei $\ell_B = \sqrt{\hbar c/(eB)}$ die magnetische Länge ist. Die LWM-Formel stellt eine Interpolation zwischen diskreten Füllfaktoren dar, für die ε_{xc} explizit berechnet wurde. Dazu mußte die Paarkorrelationsfunktion $g_\nu(r)$ eines klassischen 2D-Plasmas mit der Dichte $n = \nu/(2\pi \ell_B^2)$ unter Verwendung statistischer Methoden (Caillol et al., 1982²²) ermittelt werden. Für die Vielteilchen-Grundzustandswellenfunktion, die von Laughlin (1983⁹²) für die Füllfaktoren $\nu = m^{-1} < 1$ (m ungerade Zahl) postuliert wurde, gilt dann die Beziehung:⁹²

$$\varepsilon_{xc}(\nu = m^{-1}) = \frac{e^2}{\ell_B \sqrt{2m}} \int_0^\infty dx [g(x\ell_B) - 1]. \quad (1.59)$$

Dabei entspricht der Limes $B \rightarrow \infty$ bei endlichem ν dem Grenzfall hoher Dichten ($r_s \rightarrow 0$). Angepaßt an die numerischen Werte für $\nu = \frac{1}{3}$, $\frac{1}{5}$ und andere Werte erhält man die Näherung (gültig für $\nu < 1$):

$$\varepsilon_{xc}^{\text{LWM}}(r_s, \nu)/\text{Ry} = -0.782\,133 \frac{2\sqrt{2}}{r_s} (1 - 0.211 \nu^{0.74} + 0.012 \nu^{1.7}). \quad (1.60)$$

Dabei gilt der Zusammenhang $\nu = 2(\ell_B/a_0)^2 r_s^{-2}$, über welchen die Magnetfeld- bzw. Vortizitätsabhängigkeit von ε_{xc} festgelegt ist. An dieser Stelle ist jedoch anzumerken, daß die LWM-Formel nur eine Näherung für den glatten Anteil der Austausch-Korrelations-Energie ist. Es wurde sogar die Idee vorgebracht, daß das exakte $\varepsilon_{xc}(\nu)$ in der Tat höchst irregulär und an keiner Stelle differenzierbar sein könnte (Vignale, 1995¹⁷⁵). Trotzdem erfaßt die Formel zumindest einen Teil der Physik für hohe Magnetfelder.

Eine alternative Parametrisierung findet man bei Fano & Ortolani (FO) (1988⁴⁵), die die Teilchen-Loch-Symmetrie für Elektronen im untersten Landau-Niveau bei sehr großen Magnetfeldern widerspiegelt und das analytisch bekannte Ergebnis für $\nu = 1$ (Yoshioka & Lee, 1983¹⁸⁹) exakt reproduziert:

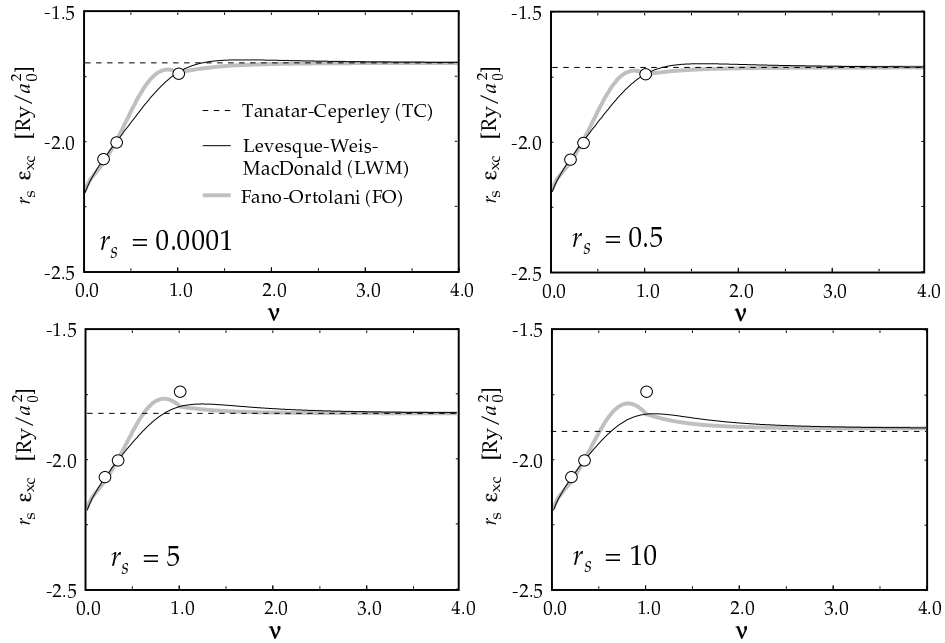
$$\varepsilon_{xc}^{\text{FO}}(r_s, \nu)/\text{Ry} = \frac{2\sqrt{2}}{\nu^{3/2} r_s} \left[-\sqrt{\frac{\pi}{8}} \nu^2 - 0.782\,133 \nu^{3/2} (1 - \nu)^{3/2} + 0.683 \nu^2 (1 - \nu)^2 - 0.806 \nu^{5/2} (1 - \nu)^{5/2} \right]. \quad (1.61)$$

Wenn wir im folgenden den Grundzustand von 2D-Systemen mit beliebiger lokaler Vortizität berechnen wollen, benötigt die LVSDA ε_{xc} für ein 2DEG in *beliebigem* Magnetfeld. Diese Größe kann nur näherungsweise angegeben werden. Wie sich im dritten Kapitel jedoch zeigen wird, rechtfertigen Vergleiche mit anderen Methoden wie exakter Diagonalisierung und Quanten-Monte-Carlo-Rechnungen die nachstehenden Approximationen. Wir folgen einem Vorschlag von Rasolt & Perrot (1992¹⁴⁸) und schreiben

$$\varepsilon_{xc}(r_s, \xi, \nu) = \frac{\varepsilon_{xc}^{\text{LWM/FO}}(r_s, \nu) + \nu^p \varepsilon_{xc}^{\text{TC}}(r_s, \xi)}{1 + \nu^p}. \quad (1.62)$$

Diese Padé-Approximation interpoliert zwischen $\nu \rightarrow \infty$ ($B = 0$) und dem Hochfeld-Limes ($\nu < 1$). Wir wählen in Anlehnung an frühere Arbeiten (Rasolt & Perrot, 1992¹⁴⁸; Ferconi & Vignale, 1994⁴⁸) als Exponenten $p = 4$. Es hat sich jedoch in verschiedenen Testrechnungen kein starker Unterschied in den Ergebnissen für $p = 4, 8$ oder 10 gezeigt. Dies wurde bereits auch von Rasolt & Perrot (1992¹⁴⁸) geprüft. In Abb. 1.1 sind die Interpolationen für verschiedene r_s dargestellt. Strenggenommen gelten die LWM- und FO-Parametrisierungen allerdings nur für $r_s \rightarrow 0$.

Eine speziellere Form der Austausch-Korrelations-Energie im Regime des fraktionierten Quanten-Hall-Effekts (FQHE) haben Price & Das Sarma (1996¹⁴⁵) entwickelt, die die Knicke von ε_{xc} bei den Füllfaktoren $\nu = 2, 1, \frac{1}{3}, \frac{1}{5}$ und $\frac{1}{7}$ berücksichtigt. Diese entstehen aufgrund der endlichen Energielücke E_g , die den jeweiligen FQHE-Grundzustand von den angeregten Zuständen trennt. Price & Das Sarma (PD)



ABILDUNG 1.1: Interpolation der Austausch-Korrelations-Energie eines spinpolarisierten 2DEG ($\xi = 1$) nach Gl. (1.62) für verschiedene Dichteparameter r_s , jeweils unter Verwendung der Parametrisierungen von Fano-Ortolani⁴⁵ und Levesque-Weis-MacDonald⁹³. Die Kreise markieren die exakten Ergebnisse für $\nu = \frac{1}{5}, \frac{1}{3}$ und 1 im Limes $r_s \rightarrow 0$.

berechnen $\varepsilon_g(\nu) = E_g(\nu)/N$ mittels *Variational Monte Carlo*. Unter Ausnutzung der Beziehung (MacDonald & Girvin, 1986¹⁰³)

$$\varepsilon_g(\nu) = \nu^2 \left(\left. \frac{\partial \varepsilon_{xc}}{\partial \nu} \right|_{\nu=\nu^+} - \left. \frac{\partial \varepsilon_{xc}}{\partial \nu} \right|_{\nu=\nu^-} \right) \quad (1.63)$$

kann man $\varepsilon_{xc}(\nu)$ durch eine kubische Spline-Interpolation (siehe Press et al., 1989¹⁴⁴) beschreiben, die bei den betrachteten Füllfaktoren die durch (1.63) gegebenen Unstetigkeiten in der Ableitung nach ν aufweist. Die Autoren geben außerdem eine Padé-Interpolation für die r_s -Abhängigkeit von $\varepsilon_{xc}(r_s, \nu)$ und $\varepsilon_g(r_s, \nu)$ zu jedem der berechneten Füllfaktoren an, z.B.

$$\varepsilon_{xc}^{\text{PD}}(r_s, \nu)/\text{Ry} = \frac{2 a_0 + a_1 r_s + a_2 r_s^2}{r_s (1 + b_1 r_s + b_2 r_s^2)} \quad (1.64)$$

(vgl. Tabelle II). Mit dieser Parametrisierung können prinzipiell die Haupteffekte des FQHE-Regimes berücksichtigt werden, jedoch ist bei der Anwendung dieser Ergebnisse auf inhomogene, endliche Systeme wie Quantenpunkte Vorsicht geboten, da diese unter Umständen völlig anders geartete Korrelationseffekte beinhalten als das homogene 2DEG.

In Abb. 1.2 sieht man die Unterschiede der besprochenen Formeln für die Austausch-Korrelations-Energie. Die Unstetigkeiten der Ableitung $\partial \varepsilon_{xc}^{\text{PD}}(r_s, \nu)/\partial \nu$ haben wir unter Berücksichtigung der Teilchen-Loch-Symmetrie im untersten Landau-Niveau,

$$\nu [\varepsilon_{xc}(\tilde{r}_s, \nu) - \varepsilon_{xc}(\tilde{r}_s, 1)/\sqrt{\nu}] = (1 - \nu) [\varepsilon_{xc}(r_s, 1 - \nu) - \varepsilon_{xc}(r_s, 1)/\sqrt{1 - \nu}], \quad (1.65)$$

	a_0	a_1	b_1	$a_2 \times 10^{-3}$	$b_2 \times 10^{-3}$
$\nu = 2$	-0.8642	-0.3883	0.4221	-19.85	18.97
$\nu = 1$	-0.8882	-0.7518	0.8281	-41.28	39.52
$\nu = 1/3$	-1.0041	-0.01561	0.01466		
$\nu = 1/5$	-1.03558	-0.007768	0.007241		
$\nu = 1/7$	-1.05075	-0.004958	0.004602		

TABELLE II: Parameter der Padé-Approximation (1.64) für ein spinpolariertes 2D-Elektronengas im FQHE-Regime.

(Aus Price & Das Sarma, 1996¹⁴⁵)

$\tilde{r}_s = r_s \sqrt{(1-\nu)/\nu}$, mithilfe der erwähnten Spline-Interpolation an die Monte-Carlo-Ergebnisse von Price-Das Sarma angepaßt. Die Teilchen-Loch-Symmetrie im Hochfeldlimites wird üblicherweise in Einheiten von e^2/ℓ_B anstelle von Ry ausgedrückt [$\bar{\varepsilon}_{xc}(\nu) = \varepsilon_{xc}(r_s, \nu) \text{Ry}/(e^2/\ell_B) = \frac{\sqrt{\nu} r_s}{2\sqrt{2}} \varepsilon_{xc}(r_s, \nu)$]; dann lautet sie (nach Tossati et al., 1985¹⁷³): $\nu[\bar{\varepsilon}_{xc}(\nu) - \bar{\varepsilon}_{xc}(1)] = (1-\nu)[\bar{\varepsilon}_{xc}(1-\nu) - \bar{\varepsilon}_{xc}(1)]$. Man erkennt, daß die glatten Interpolationen von Levesque et al. sowie von Fano & Ortolani recht gut mit den Monte-Carlo-Werten von Price-Das Sarma übereinstimmen. Die Spline-Interpolation führt hingegen zu starken Diskrepanzen in den Bereichen dazwischen, wo keine genaueren Informationen vorliegen. Wir bevorzugen daher für die späteren Berechnungen die LWM- oder die FO-Formel.

Zum Abschluß weisen wir noch auf einen interessanten Ansatz von Farid (1997⁴⁶) hin, der die selbstkonsistente Lösung der KS-Gleichungen mit einer störungstheoretischen Beschreibung des wechselwirkenden Systems verbindet, indem als nichtwechselwirkendes System nicht der Hamilton-Operator $H_0 = H - \hat{W}$, sondern H_{KS} betrachtet wird. Die diagrammatische Entwicklung der entsprechenden Greenschen Funktionen führt – durch Identifikation der jeweiligen Grundzustandsdichten des wechselwirkenden und des KS-Systems – zu homogenen nichtlinearen Gleichungen für die Austausch-Korrelations-Potentiale, deren numerische Lösung jedoch noch so aufwendig ist, daß nur kleine Systeme tatsächlich behandelt werden können (z.B. zwei Elektronen in einem Quantenpunkt). Vorteil der Methode ist, daß die in der lokalen Näherung auftretenden Selbstwechselwirkungs-Beiträge vermieden werden.

1.6 Zeitabhängige Dichtefunktional-Theorie

Die rigorose Formulierung einer *zeitabhängigen* Dichtefunktional-Theorie wurde erstmals von Deb & Ghosh (1982³⁷) und Bartolotti (1981¹⁰), Bartolotti (1982¹¹) vorgestellt. Mit der Ableitung des Runge-Gross-Theorems (Runge & Gross, 1984¹⁵¹) gelang schließlich eine Theorie, die auf eine größere Klasse von zeitabhängigen Potentialen anwendbar ist. Hier skizzieren wir eine Formulierung nach Gross & Kohn (1990⁵⁷) ohne externes Vektorpotential, die auf die Situation mit Spinfreiheitsgrad erweitert wurde.

Ausgehend von der Schrödinger-Gleichung

$$\hbar i \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = \hat{H}(t) |\Psi(t)\rangle \quad (1.66)$$

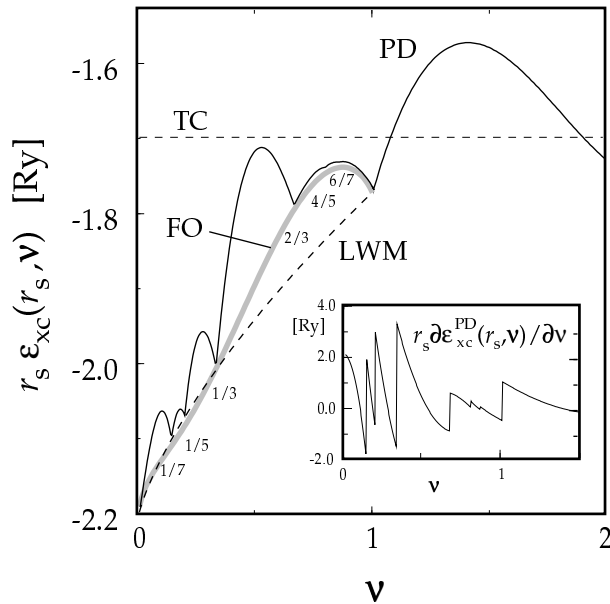


ABBILDUNG 1.2: Vergleich der Interpolationsformeln $\varepsilon_{xc}(r_s, \nu)$ für ein spinpolarisiertes 2DEG in Abhängigkeit des Füllfaktors ν für $r_s \rightarrow 0$. Gezeigt werden die Formeln von Levesque et al. (LWM)⁹³ (---) und Fano-Ortolani (FO)⁴⁵ (—) im Regime $\nu < 1$ neben einer kubischen Spline-Interpolation nach Price-Das Sarma (PD)¹⁴⁵ (—). Letztere hat unstetige Ableitungen (Kuspen) bei den Füllfaktoren $\nu = \frac{1}{7}, \frac{1}{5}, \frac{1}{3}$ bzw. $\frac{2}{3}, \frac{4}{5}, \frac{6}{7}$, die den Energielücken der FQHE-Zustände entsprechen. Das kleine Bild zeigt die Ableitung $r_s \partial \varepsilon_{xc}^{PD} / \partial \nu$. Die gestrichelte Gerade gibt die Austausch-Korrelation nach Tanatar-Ceperley (TC)¹⁶⁸ an, die in die Interpolationsformel (1.62) als Limes für große Füllfaktoren eingeht.

betrachten wir die Dichten $n_\sigma(\mathbf{r}t)$, die sich aus einem festgelegten Vielteilchenzustand $|\Psi_0(t_0)\rangle = |\Psi_0\rangle$ unter dem Einfluß unterschiedlicher externer Potentiale der Form

$$\hat{V}_\sigma(t) = \int d^3r \hat{\psi}_\sigma^\dagger(\mathbf{r}) V_\sigma(\mathbf{r}t) \hat{\psi}_\sigma(\mathbf{r}) \quad (1.67)$$

entwickeln. Dazu setzen wir voraus, daß sich die Potentiale $V_\sigma(\mathbf{r}t)$ in einer Taylor-Reihe darstellen lassen:

$$V_\sigma(\mathbf{r}t) = \sum_{j=0}^{\infty} \frac{1}{j!} v_{\sigma j}(\mathbf{r})(t - t_0)^j. \quad (1.68)$$

Der Konvergenzradius dieser Entwicklung darf dabei beliebig klein sein. Es kann nun zwar kein Extremalprinzip wie im Beweis des Hohenberg-Kohn-Theorems angewandt werden, aber wir werden zeigen, daß zwei Dichtetupel $(n_\uparrow(\mathbf{r}t), n_\downarrow(\mathbf{r}t))$ und $(n'_\uparrow(\mathbf{r}t), n'_\downarrow(\mathbf{r}t))$, die sich unter dem Einfluß der Potentiale $(V_\uparrow, V_\downarrow)$ bzw. $(V'_\uparrow, V'_\downarrow)$ aus $|\Psi_0\rangle$ entwickeln, stets verschieden sind, wenn sich die Potentialtupel um mehr als eine rein zeitabhängige Funktion $(c_\uparrow(t), c_\downarrow(t))$ unterscheiden.

Nach Voraussetzung gibt es in der Taylorentwicklung dann ein kleinstes $k \geq 0$, so daß für mindestens eine der beiden Spinrichtungen σ gilt:

$$v_{\sigma k}(\mathbf{r}) - v'_{\sigma k}(\mathbf{r}) = \frac{\partial^k}{\partial t^k} [v_{\sigma}(\mathbf{r}t) - v'_{\sigma}(\mathbf{r}t)]|_{t=t_0} \equiv w_{\sigma k}(\mathbf{r}) \neq \text{const.} \quad (1.69)$$

Wir zeigen nun zunächst, daß die spinabhängigen paramagnetischen Stromdichten

$$\mathbf{j}_{\sigma}(\mathbf{r}t) = \langle \Psi(t) | \frac{\hbar}{2mi} \left\{ \hat{\psi}_{\sigma}^{\dagger}(\mathbf{r})[\nabla \hat{\psi}_{\sigma}(\mathbf{r})] - [\nabla \hat{\psi}_{\sigma}^{\dagger}(\mathbf{r})]\hat{\psi}_{\sigma}(\mathbf{r}) \right\} | \Psi(t) \rangle \quad (1.70)$$

mit $\mathbf{j}_{\sigma}(\mathbf{r}t_0) = \mathbf{j}'_{\sigma}(\mathbf{r}t_0)$ für $t = t_0 + \delta t$ unterschiedlich sind. Nach $k + 1$ -maligem Ableiten der Differenz $\mathbf{j}_{\sigma}(\mathbf{r}t) - \mathbf{j}'_{\sigma}(\mathbf{r}t)$ zur Zeit t_0 erhält man iterativ aus der Bewegungsgleichung $\frac{\partial}{\partial t} \langle \Psi(t) | \hat{O}(t) | \Psi(t) \rangle = \langle \Psi(t) | \frac{\partial}{\partial t} \hat{O}(t) - i\hbar^{-1}[\hat{O}(t), \hat{H}(t)] | \Psi(t) \rangle$ die Gleichung

$$\frac{\partial^{k+1}}{\partial t^{k+1}} [\mathbf{j}_{\sigma}(\mathbf{r}t) - \mathbf{j}'_{\sigma}(\mathbf{r}t)]|_{t=t_0} = -n_{\sigma}(\mathbf{r}t_0) \nabla w_{\sigma k}(\mathbf{r}) \neq 0. \quad (1.71)$$

Das beweist die Behauptung. Um eine ähnliche Aussage über die Dichtekomponenten zu machen, verwenden wir die Kontinuitätsgleichung

$$\frac{\partial}{\partial t} [n_{\sigma}(\mathbf{r}t) - n'_{\sigma}(\mathbf{r}t)] = -\nabla \cdot [\mathbf{j}_{\sigma}(\mathbf{r}t) - \mathbf{j}'_{\sigma}(\mathbf{r}t)]. \quad (1.72)$$

Daraus folgt, daß

$$\frac{\partial^{k+2}}{\partial t^{k+2}} [n_{\sigma}(\mathbf{r}t) - n'_{\sigma}(\mathbf{r}t)]|_{t=t_0} = \nabla \cdot [n_{\sigma}(\mathbf{r}t_0) \nabla w_{\sigma k}(\mathbf{r})]. \quad (1.73)$$

Angenommen, die rechte Seite dieser Gleichung würde identisch verschwinden; dann müßte gelten:

$$\begin{aligned} \int d^3r n_{\sigma}(\mathbf{r}t_0) [\nabla w_{\sigma k}(\mathbf{r})]^2 &= - \int d^3r w_{\sigma k}(\mathbf{r}) \nabla \cdot [n_{\sigma}(\mathbf{r}t_0) \nabla w_{\sigma k}(\mathbf{r})] \\ &+ \underbrace{\oint d\mathbf{S} \cdot [n_{\sigma}(\mathbf{r}t_0) w_{\sigma k}(\mathbf{r}) \nabla w_{\sigma k}(\mathbf{r})]}_{\rightarrow 0} = 0. \end{aligned} \quad (1.74)$$

Der nichtnegative Integrand auf der linken Seite müßte also ebenfalls verschwinden. Falls $n_{\sigma}(\mathbf{r}t_0) = 0$ nur auf einem Gebiet vom Maß 0 gilt (wie dies normalerweise der Fall ist, wenn keine unendlichen Potentialbarrieren auftreten), müßte $\nabla w_{\sigma k}(\mathbf{r}) \equiv 0$ sein, im Widerspruch zu Bedingung (1.69).

Folglich erhält man aus Gl. (1.73) $n_{\sigma}(\mathbf{r}t_0 + \delta t) \neq n'_{\sigma}(\mathbf{r}t_0 + \delta t)$. Nach diesem Theorem von Runge & Gross (1984¹⁵¹) gibt es also eine umkehrbare Abbildung, die die Dichtetupel $(n_{\uparrow}(\mathbf{r}t), n_{\downarrow}(\mathbf{r}t))$ mit einem externen Potential $(V_{\uparrow}(\mathbf{r}t), V_{\downarrow}(\mathbf{r}t))$ verknüpft, welches bis auf eine rein zeitabhängige Funktion $(c_{\uparrow}(t), c_{\downarrow}(t))$ festgelegt ist. Für ein gegebenes $|\Psi_0\rangle$ ist der zeitentwickelte Zustand $|\Psi(t)\rangle$ dann ein Funktional der Dichten, $|\Psi(t)\rangle = |\Psi[n_{\uparrow}, n_{\downarrow}](t)\rangle$.

Variationsprinzip und zeitabhängige Kohn-Sham-Gleichungen

Die Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung (1.66) mit der Anfangsbedingung $|\Psi(t_0)\rangle = |\Psi_0\rangle$ entspricht einem stationären Wirkungsintegral

$$\mathcal{A}[n_\uparrow, n_\downarrow] := \int_{t_0}^{t_1} dt \langle \Psi[n_\uparrow, n_\downarrow](t) | \hbar i \frac{\partial}{\partial t} - \hat{H}(t) | \Psi[n_\uparrow, n_\downarrow](t) \rangle \quad (1.75)$$

$$\frac{\partial \mathcal{A}[n_\uparrow, n_\downarrow]}{\partial n_\sigma} = 0. \quad (1.76)$$

Dieses Funktional können wir wieder zerlegen,

$$\mathcal{A}[n_\uparrow, n_\downarrow] = B[n_\uparrow, n_\downarrow] - \int_{t_0}^{t_1} dt \int d^3r \sum_\sigma n_\sigma(\mathbf{r}t) V_\sigma(\mathbf{r}t), \quad (1.77)$$

in einen universellen (aber $|\Psi_0\rangle$ -abhängigen) Teil $B[n_\uparrow, n_\downarrow]$, definiert als

$$B[n_\uparrow, n_\downarrow] = \int_{t_0}^{t_1} dt \langle \Psi[n_\uparrow, n_\downarrow](t) | \hbar i \frac{\partial}{\partial t} - \hat{T} - \hat{W} | \Psi[n_\uparrow, n_\downarrow](t) \rangle, \quad (1.78)$$

und einen Anteil, der die Wechselwirkung mit dem externen Potential widerspiegelt.

Analog zum Kohn-Sham-Formalismus der zeitunabhängigen SDFT konstruiert man nun ein nichtwechselwirkendes Hilfssystem mit denselben Dichten; die Variationsableitungen des entsprechenden Wirkungsfunctionals \mathcal{A}_s liefern dann das effektive Einteilchenpotential

$$V_{s\sigma}(\mathbf{r}t) = V_\sigma(\mathbf{r}t) + \frac{e^2}{\kappa} \int d^3r' \frac{n(\mathbf{r}'t)}{|\mathbf{r}' - \mathbf{r}|} + \frac{\delta \mathcal{A}_{xc}}{\delta n_\sigma(\mathbf{r}t)} \quad (1.79)$$

mit dem Austausch-Korrelations-Funktional

$$\begin{aligned} \mathcal{A}_{xc}[n_\uparrow, n_\downarrow] = & \int_{t_0}^{t_1} dt \left[\langle \Phi[n_\uparrow, n_\downarrow](t) | \hbar i \frac{\partial}{\partial t} - \hat{T} | \Phi[n_\uparrow, n_\downarrow](t) \rangle \right. \\ & \left. - \frac{e^2}{2\kappa} \int d^3r \int d^3r' \frac{n(\mathbf{r}t)n(\mathbf{r}'t)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \right] - B[n_\uparrow, n_\downarrow]; \end{aligned} \quad (1.80)$$

dabei ist $|\Phi[n_\uparrow, n_\downarrow]\rangle$ die nichtwechselwirkende Wellenfunktion im Potential $(V_{s\uparrow}(\mathbf{r}t), V_{s\downarrow}(\mathbf{r}t))$ mit Anfangsbedingung $|\Phi_0\rangle$ zur Zeit t_0 dergestalt, daß sich die Dichten $(n_\uparrow(\mathbf{r}t_0), n_\downarrow(\mathbf{r}t_0))$ ergeben. Daraus lassen sich wieder KS-Gleichungen formulieren, die analog zum stationären Fall sind.

Lineare Antwort

Wir betrachten nun die Antwort eines stationären Grundzustandes $|\Psi\rangle$ auf eine zeitabhängige Störung in linearer Näherung. Die Störung $V_{1\sigma}(\mathbf{r}t)$ setze zum Zeitpunkt t_0 ein; die lineare Antwort der Dichte ausgedrückt durch die Antwortfunktionen

$$\chi_{\sigma\sigma'}(\mathbf{r}t, \mathbf{r}'t') = \frac{1}{\hbar i} \langle \Psi | [\hat{n}_\sigma(\mathbf{r}t), \hat{n}_{\sigma'}(\mathbf{r}'t')] | \Psi \rangle, \quad \chi = \begin{pmatrix} \chi_{\uparrow\uparrow} & \chi_{\uparrow\downarrow} \\ \chi_{\downarrow\uparrow} & \chi_{\downarrow\downarrow} \end{pmatrix}, \quad (1.81)$$

ergibt sich als

$$\begin{pmatrix} \delta n_{\uparrow}(\mathbf{r}t) \\ \delta n_{\downarrow}(\mathbf{r}t) \end{pmatrix} = \int d^3r' \int_{t_0}^{\infty} dt' \boldsymbol{\chi}(\mathbf{r}t, \mathbf{r}'t') \cdot \begin{pmatrix} V_{1\uparrow}(\mathbf{r}'t') \\ V_{1\downarrow}(\mathbf{r}'t') \end{pmatrix}. \quad (1.82)$$

Da die Lösung der zeitabhängigen KS-Gleichungen formal die exakten Dichteänderungen beschreibt, kann $\delta n_{\sigma}(\mathbf{r}t)$ auch aus der linearen Antwort des nichtwechselwirkenden Systems auf die Störung $V_{s1\sigma}^{(1)}(\mathbf{r}t)$ berechnet werden, die das externe Störpotential $V_{1\sigma}$ in erster Ordnung enthält. Sie läßt sich schreiben als

$$V_{s1\sigma}^{(1)}(\mathbf{r}t) = V_{1\sigma}(\mathbf{r}t) + \frac{e^2}{\kappa} \int d^3r' \frac{\delta n(\mathbf{r}'t)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} + \int d^3r' \int dt' \sum_{\sigma'} f_{xc\sigma\sigma'}(\mathbf{r}t, \mathbf{r}'t') \delta n_{\sigma'}(\mathbf{r}'t'), \quad (1.83)$$

mit dem Integralkern der Austausch-Korrelations-Wechselwirkung

$$f_{xc\sigma\sigma'}(\mathbf{r}t, \mathbf{r}'t') = \frac{\delta}{\delta n_{\sigma'}(\mathbf{r}'t')} \left(\frac{\delta \mathcal{A}_{xc}}{\delta n_{\sigma}(\mathbf{r}t)} \right). \quad (1.84)$$

Lösen wir Gl. (1.82) nach $V_{1\sigma}(\mathbf{r}t)$ auf und setzen in Gl. (1.83) ein, können wir den Integralkern durch die inversen Antwortfunktionen $\boldsymbol{\chi}^{-1}(\mathbf{r}t, \mathbf{r}'t')$ und $\boldsymbol{\chi}_{KS}^{-1}(\mathbf{r}t, \mathbf{r}'t')$ des wechselwirkenden und des KS-Systems ausdrücken:

$$f_{xc\sigma\sigma'}(\mathbf{r}t, \mathbf{r}'t') = (\boldsymbol{\chi}_{KS}^{-1})_{\sigma\sigma'} - (\boldsymbol{\chi}^{-1})_{\sigma\sigma'} - \frac{e^2}{\kappa} \frac{\delta(t-t')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}. \quad (1.85)$$

Das Runge-Gross-Theorem sorgt unter den geforderten Voraussetzungen für die Invertierbarkeit der Antwortfunktionen. Denn in Gl. (1.73) tritt die Störung in erster Ordnung auf, so daß schon die *lineare* Näherung der Dichteantwort verschieden sein muß, wenn sich die Störpotentiale um mehr als eine rein zeitabhängige Funktion $c_{\sigma}(t)$ unterscheiden.

Leider ist das Runge-Gross-Theorem für eine adiabatisch eingeschaltete, zeitlich periodische Störung der Form

$$V_{1\sigma}(\mathbf{r}t) = V_{1\sigma}(\mathbf{r}\omega) e^{-i\omega t - \eta|t|} \quad (\eta \rightarrow 0^+) \quad (1.86)$$

nicht gültig [Gl. (1.68)]. Wir müssen zur Berechnung der linearen Antwort auf periodische Störungen daher *ad hoc* die Invertierbarkeit der Antwortfunktionen voraussetzen.

Im speziellen Fall, daß $n_{\sigma}(\mathbf{r}t) = \bar{n}_{\sigma}(\mathbf{r})$ die Grundzustandsdichten des wechselwirkenden und des KS-Systems mit zeitunabhängigen Potentialen darstellen (und damit $|\Psi_0\rangle$ und $|\Phi_0\rangle$ aufgrund des Hohenberg-Kohn-Theorems die jeweiligen nicht entarteten Grundzustände sein müssen), reduziert sich der Austausch-Korrelations-Anteil des Wirkungsfunktionals auf

$$\mathcal{A}_{xc}[\bar{n}_{\uparrow}, \bar{n}_{\downarrow}] = (t_1 - t_0) E_{xc}[\bar{n}_{\uparrow}, \bar{n}_{\downarrow}]. \quad (1.87)$$

Eine Approximation des Funktionals, die diese Bedingung erfüllt und lokal in der Zeit ist, muß deshalb zwangsläufig die Form

$$\mathcal{A}_{xc}[n_{\uparrow}, n_{\downarrow}] = \int_{t_0}^{t_1} dt E_{xc}[n_{\uparrow}(t), n_{\downarrow}(t)] \quad (1.88)$$

haben. Das führt direkt auf eine nützliche Näherung, die *adiabatische* LSDA (ALSDA; Zangwill & Soven, 1980¹⁹¹):

$$\mathcal{A}_{\text{xc}}^{\text{ALSDA}}[n_{\uparrow}, n_{\downarrow}] = \int_{t_0}^{t_1} dt \int d^3r n(\mathbf{r}t) \varepsilon_{\text{xc}}[n_{\uparrow}(\mathbf{r}t), n_{\downarrow}(\mathbf{r}t)] \quad (1.89)$$

mit dem Kern

$$f_{\text{xc}\sigma\sigma'}(\mathbf{r}t, \mathbf{r}'t') = \delta(t - t') \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \frac{\partial^2}{\partial n_{\sigma} \partial n_{\sigma'}} [n\varepsilon(n_{\uparrow}, n_{\downarrow})] |_{n_{\sigma} = \bar{n}_{\sigma}(\mathbf{r}t)}. \quad (1.90)$$

KAPITEL 2

Von der Bandstruktur zur Enveloppenfunktions-Näherung

Die optischen und elektronischen Eigenschaften von Halbleiter-Strukturen werden im wesentlichen von den bandkantennahen Zuständen im Bereich des Leitungsbandminimums und Valenzbandmaximums bestimmt. Daher kann der relevante Bereich im k -Raum in guter Näherung durch eine Entwicklung um die k -Punkte der Bandextrema beschrieben werden, in GaAs und anderen Halbleitern mit direkter Bandlücke also um den Γ -Punkt ($\mathbf{k} = \mathbf{0}$). Dies läßt sich mithilfe der $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Methode (Kane, 1956⁷⁴; Kane, 1957⁷⁵) für Volumenmaterial und im Rahmen der Enveloppenfunktions-Näherung (Luttinger & Kohn, 1955¹⁰²) auch für strukturierte Halbleiter bewerkstelligen.

2.1 Die $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Methode

Die Eigenfunktionen $\psi(\mathbf{r})$ von Elektronen in einem gitterperiodischen Potential $U(\mathbf{r})$ sind Bloch-Funktionen mit der Gestalt $\psi(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ mit gitterperiodischen Funktionen $u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r})$. Für freie Teilchen lautet die entsprechende Schrödinger-Gleichung:

$$\begin{aligned} \left(\frac{\mathbf{p}^2}{2m} + U(\mathbf{r}) \right) e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) &= e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \left(\frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m} + \frac{\hbar}{m} \mathbf{k} \cdot \mathbf{p} + \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + U(\mathbf{r}) \right) u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \\ &= e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} E_n(\mathbf{k}) u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}), \end{aligned} \quad (2.1)$$

und für den gitterperiodischen Anteil $u_{n\mathbf{0}}(\mathbf{r})$ am Γ -Punkt gilt speziell:

$$\left(\frac{\mathbf{p}^2}{2m} + U(\mathbf{r}) \right) u_{n\mathbf{0}}(\mathbf{r}) = E_n(\mathbf{0}) u_{n\mathbf{0}}(\mathbf{r}). \quad (2.2)$$

Der Index n kennzeichnet die Energiebänder $E_n(\mathbf{k})$. Wir stellen nun für jedes \mathbf{k} die Funktionen $u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ in der Orthonormal-Basis der $u_{n\mathbf{0}}(\mathbf{r})$ mit $\int_{V_0} d^3r u_{n\mathbf{0}}^*(\mathbf{r}) u_{n'\mathbf{0}}(\mathbf{r}) = \delta_{nn'}$ dar:

$$u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \sum_{n'} c_{nn'}(\mathbf{k}) u_{n'\mathbf{0}}(\mathbf{r}); \quad (2.3)$$

V_0 ist das Volumen einer Gitter-Einheitszelle. Eingesetzt in Gl. (2.1) erhält man nach Multiplikation mit $u_{n0}^*(\mathbf{r})$ und anschließender Integration über die Einheitszelle für die Entwicklungskoeffizienten $c_{nn'}(\mathbf{k})$ das Gleichungssystem

$$\sum_{n'} \left\{ \left[\frac{\hbar^2 k^2}{2m} + E_n(\mathbf{0}) \right] \delta_{nn'} + \frac{\hbar}{m} \langle n\mathbf{0} | \mathbf{k} \cdot \mathbf{p} | n'\mathbf{0} \rangle \right\} c_{nn'}(\mathbf{k}) = E_n(\mathbf{k}) c_{nn'}(\mathbf{k}). \quad (2.4)$$

Sind die materialspezifischen Parameter $E_n(\mathbf{0})$ sowie die Impuls-Matrixelemente $P_{nn'} = (\hbar/m) \int_{V_0} d^3r u_{n0}^*(\mathbf{r}) \mathbf{p} u_{n'\mathbf{0}}(\mathbf{r})$ bekannt, läßt sich die Dispersion $E_n(\mathbf{k})$ jedes Bandes aus dem Gleichungssystem (2.4) bestimmen. In der Praxis ist die Lösung dieses Problems natürlich nur unter Berücksichtigung einer endlichen Zahl von Bändern möglich. Dadurch sind die erhaltenen Lösungen nur noch näherungsweise um den Punkt $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ gültig. Das Verfahren läßt sich durch Entwicklung um einen Punkt $\mathbf{k}_0 \neq \mathbf{0}$ auch auf Halbleiter mit indirekter Bandlücke anwenden, um eine genäherte Beschreibung des Bandverlaufes um die Extrema zu gewinnen.*

Für kleine \mathbf{k} kann $H_1 = (\hbar/m)\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ als Störung in erster Ordnung von \mathbf{k} betrachtet werden, $H_2 = \hbar^2 k^2 / (2m)$ als Korrektur zweiter Ordnung. Die Wellenfunktionen und Energien ergeben sich dann aus den „ungestörten“ Größen u_{n0} und $E_n(\mathbf{0})$ für nichtentartete Zustände aus der Rayleigh-Schrödinger-Störungstheorie:

$$u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = u_{n0}(\mathbf{r}) + \frac{\hbar}{m} \sum_{n' \neq n} \frac{\langle n'\mathbf{0} | \mathbf{k} \cdot \mathbf{p} | n\mathbf{0} \rangle}{E_n(\mathbf{0}) - E_{n'}(\mathbf{0})} u_{n'\mathbf{0}}(\mathbf{r}), \quad (2.5)$$

$$E_n(\mathbf{k}) = E_n(\mathbf{0}) + \frac{\hbar}{m} \langle n\mathbf{0} | \mathbf{k} \cdot \mathbf{p} | n\mathbf{0} \rangle + \frac{\hbar^2}{m^2} \sum_{n' \neq n} \frac{|\langle n'\mathbf{0} | \mathbf{k} \cdot \mathbf{p} | n\mathbf{0} \rangle|^2}{E_n(\mathbf{0}) - E_{n'}(\mathbf{0})} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m}. \quad (2.6)$$

Die in \mathbf{k} lineare Energiekorrektur verschwindet in Materialien mit Inversionssymmetrie (in Materialien wie Wurtzit führt der lineare Term u.a. für einzelne Bänder zu einer Verschiebung der Bandextrema). Durch die Schreibweise

$$E_n(\mathbf{k}) = E_n(\mathbf{0}) + \sum_{i,j} \frac{\hbar^2}{2m_{ij}^*} k_i k_j \quad (2.7)$$

führen wir eine *effektive Masse* m^* ein:

$$\frac{1}{m_{ij}^*} \equiv \hbar^{-2} \left. \frac{\partial^2 E_n(\mathbf{k})}{\partial k_i \partial k_j} \right|_{\mathbf{k}=\mathbf{0}} = \frac{\delta_{ij}}{m} + \frac{2}{m^2} \sum_{n' \neq n} \frac{\langle n\mathbf{0} | p_i | n'\mathbf{0} \rangle \langle n'\mathbf{0} | p_j | n\mathbf{0} \rangle}{E_n(\mathbf{0}) - E_{n'}(\mathbf{0})}. \quad (2.8)$$

Alternativ kann zur Lösung des Gleichungssystems (2.4) bei entarteten oder fast-entarteten Zuständen die Beimischung energetisch weiter entfernt liegender Bänder vernachlässigt werden. Im einfachsten Fall eines Zweiband-Modells mit

*Von Löwdin (1951⁹⁹) stammt die Methode des *partitioning*. Sie ist geeignet, den Einfluß weiterer Bänder, die in einem endlichen $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Hamiltonoperator nicht enthalten sind, durch Hinzunahme von effektiven Termen höherer Ordnung in \mathbf{k} zu berücksichtigen, ohne die Matrixgröße zu verändern (siehe auch Löwdin, 1962¹⁰⁰).

einem Leitungs- (c) und einem Valenzband (v) erhält man die Lösung aus der Säkulargleichung

$$\det \begin{vmatrix} \frac{\hbar^2 k^2}{2m} + [E_c(\mathbf{0}) - E(\mathbf{k})] & \mathbf{k} \cdot \mathbf{P}_{cv} \\ \mathbf{k} \cdot \mathbf{P}_{vc} & \frac{\hbar^2 k^2}{2m} + [E_v(\mathbf{0}) - E(\mathbf{k})] \end{vmatrix} = 0. \quad (2.9)$$

Für $E_c(\mathbf{0}) = \frac{1}{2}E_g$, $E_v(\mathbf{0}) = -\frac{1}{2}E_g$ und bei sphärischer Symmetrie im k -Raum ($\mathbf{k} \cdot \mathbf{P}_{cv} = \mathbf{k} \cdot \mathbf{P}_{vc} = kP_{cv}$) folgt

$$E_{c/v}(\mathbf{k}) = \pm \sqrt{\left(\frac{1}{2}E_g\right)^2 + k^2 P_{cv}^2} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m}. \quad (2.10)$$

Hier sind auch Terme höherer Ordnung in k enthalten (Nichtparabolizitäten). Durch Entwicklung der Wurzel erhält man für kleine k :

$$E_c(\mathbf{k}) = \frac{1}{2}E_g + \frac{k^2 P_{cv}^2}{E_g} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m} = \frac{1}{2}E_g + \frac{\hbar^2 k^2}{2m^*} \quad (2.11)$$

mit der (isotropen) effektiven Masse

$$m^* = m \left(1 + \frac{2m P_{cv}^2}{\hbar^2 E_g} \right)^{-1} \approx \frac{\hbar^2 E_g}{2P_{cv}^2}. \quad (2.12)$$

Analog ergibt sich $E_v(\mathbf{k}) = -\frac{1}{2}E_g - \hbar^2 k^2 / (2m^*) = -E_c(k)$.

2.2 Kanesche Wellenfunktionen

Die freien Atome der Halbleiter mit Diamant- bzw. Zinkblende-, sowie Sphalerit- und Wurtzit-Struktur besitzen Valenzelektronen in atomaren s- und p-Zuständen (Ridley, 1993¹⁵⁰). Durch sp^3 -Hybridisierung entstehen aus den s- und p-Elektronen der zwei Atome in jeder Einheitszelle bindende und antibindende Orbitale mit hoher Elektrodichte zwischen bzw. an den Orten der Atomrümpfe. Am Γ -Punkt erhält man so einen bindenden Valenzzustand mit s-Wellencharakteristik und drei bindende p-artige Valenzzustände. Das unterste Leitungsband hat s-antibindenden Charakter. Die besetzten p-Valenzzustände und das unbesetzte s-Leitungsband sind entscheidend für die elektronischen und optischen Eigenschaften des Halbleiters bzw. Verbindungshalbleiters (z.B. GaAs).

Der Spin-Bahn-Kopplungsterm

$$H_{so} = \frac{\hbar}{2m^2 c^2} \mathbf{p} \cdot [\hbar \hat{\boldsymbol{\sigma}} \times \nabla U(\mathbf{r})] \quad (2.13)$$

mit dem dimensionslosen Spin-Operator $\hat{\boldsymbol{\sigma}} = \frac{1}{2} \boldsymbol{\tau}$ ($\boldsymbol{\tau}$: Pauli-Spinmatrizen) sorgt für eine Aufhebung von Entartungen in der Bandstruktur wie sie zunächst an den Punkten hoher Symmetrie auftreten. Durch Übergang von der Basis aus Spin- und Bahndrehimpulseigenzuständen zur $|jm_j \ell\rangle$ -Darstellung mit Gesamtdrehimpuls $\hat{\mathbf{j}} = \hat{\mathbf{l}} + \hbar \hat{\boldsymbol{\sigma}}$ lässt sich

n	u_{n0}	j	m_j	ℓ
c \uparrow	$ iS \uparrow\rangle$	1/2	1/2	0
c \downarrow	$ iS \downarrow\rangle$	1/2	-1/2	0
hh ₊	$ (X + iY) \uparrow\rangle/\sqrt{2}$	3/2	3/2	1
hh ₋	$ (X - iY) \downarrow\rangle/\sqrt{2}$	3/2	-3/2	1
lh ₊	$ (-X - iY) \downarrow\rangle/\sqrt{6} + \sqrt{2/3} Z \uparrow\rangle$	3/2	1/2	1
lh ₋	$ (X - iY) \uparrow\rangle/\sqrt{6} + \sqrt{2/3} Z \downarrow\rangle$	3/2	-1/2	1
so ₊	$ (-X - iY) \downarrow\rangle/\sqrt{3} - Z \uparrow\rangle/\sqrt{3}$	1/2	1/2	1
so ₋	$ (X - iY) \uparrow\rangle/\sqrt{3} - Z \downarrow\rangle/\sqrt{3}$	1/2	-1/2	1

TABELLE III: Wellenfunktionen $u_{n0}(\mathbf{r})$ nach Kane (1957⁷⁵), die den Kristall-Hamiltonoperator inklusive Spin-Bahn-Wechselwirkung H_{so} diagonalisieren. Man beachte, daß die z-Komponente des Spins für die Valenzbandzustände aufgrund der Spin-Bahn-Kopplung keine gute Quantenzahl mehr ist. Die Eigenfunktionen (in *tight-binding*-Näherung aus atomaren s- und p-Orbitalen) sind vielmehr Eigenzustände des Gesamtdrehimpuls-Operators $\hat{j} = \hat{l} + \hbar\boldsymbol{\sigma}$ [mit $\langle jm_j|\hat{j}^2|jm_j\rangle = \hbar^2j(j+1)$] sowie seiner z-Komponente $\langle jm_j|\hat{j}_z|jm_j\rangle = \hbar m_j$. Die Leitungsbandzustände (c) haben s-artigen (Bahndrehimpuls-Quantenzahl $\ell = 0$), die Valenzzustände p-artigen ($\ell = 1$) Charakter. Die Entwicklungskoeffizienten für die letzteren sind die Clebsch-Gordan-Koeffizienten beim Übergang zur $|jm_j\ell\rangle$ -Darstellung, $\Gamma_5(3) \otimes \Gamma_6(2) = \Gamma_8(4) \oplus \Gamma_7(2)$ (siehe Ridley, 1993¹⁵⁰).

H_{so} diagonalisieren und man erhält die von Kane (1957⁷⁵) berechneten Wellenfunktionen (Tabelle III). Die Eigenzustände sind gekennzeichnet durch ein s-Leitungsband (c) und zwei am Γ -Punkt entartete Valenzbänder [*heavy hole* (hh) und *light hole* (lh)] sowie ein *split-off*-Band (so) (Abb. 2.1). Alle diese Bänder sind jeweils zweifach entartet. Für die Bandstruktur um den Γ -Punkt ergibt sich:⁷⁵

$$\begin{aligned}
 E_c(\mathbf{k}) &= E_g + \frac{\hbar^2 k^2}{2m} + \frac{\mathcal{P}^2 k^2}{3} \left(\frac{2}{E_g} + \frac{1}{E_g + \Delta} \right), & E_{hh}(\mathbf{k}) &= \frac{\hbar^2 k^2}{2m}, \\
 E_{so}(\mathbf{k}) &= -\Delta + \frac{\hbar^2 k^2}{2m} - \frac{\mathcal{P}^2 k^2}{3(E_g + \Delta)}, & E_{lh}(\mathbf{k}) &= \frac{\hbar^2 k^2}{2m} - \frac{2\mathcal{P}^2 k^2}{3E_g}.
 \end{aligned} \tag{2.14}$$

Dabei ist $\mathcal{P} = (\hbar/m)\langle iS|p_x|X\rangle$ das Kanesche Matrixelement und $\Delta = 3\hbar^2/(4m^2c^2)\langle X|\frac{\partial U}{\partial x}p_y - \frac{\partial U}{\partial y}p_x|Y\rangle$ eine Energieverschiebung durch die Spin-Bahn-Kopplung (vgl. Abb. 2.1).

2.3 Enveloppenfunktions-Näherung

Die Abfolge unterschiedlicher Halbleitermaterialien (z.B. GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$) in einer Schichtstruktur, wie in Abb. E.1 (a) gezeigt, bricht die Gitter-Translationssymmetrie in Wachstumsrichtung. In Verbindung mit ionisierten Störstellen kommt es zu einer „Bandverbiegung“ in der Nähe der Grenzfläche, die im Leitungsband zu einem Potentialgraben führt, dessen quantisierte Zustände (Subbänder) teilweise besetzt sind [siehe Abb. E.1 (b)].

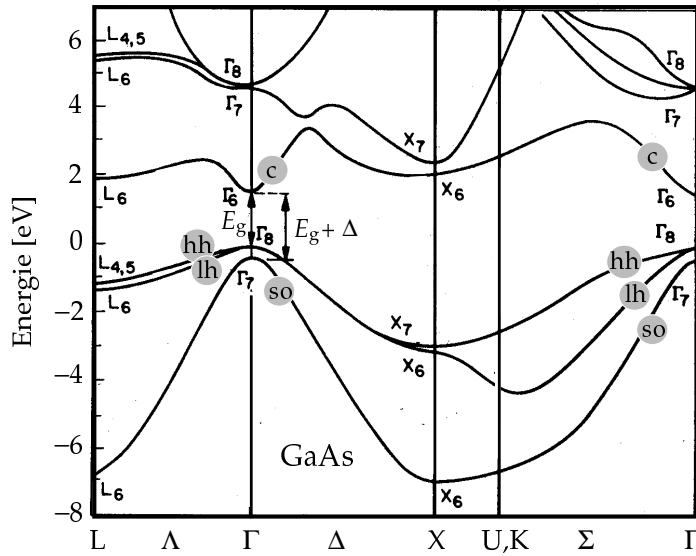


ABBILDUNG 2.1: Elektronische Bandstruktur von GaAs mit Kennzeichnung der relevanten Bänder um den Γ -Punkt (c, hh, lh, so). Die einzelnen Bänder sind entsprechend ihrer Symmetrie nach den irreduziblen Darstellungen der Symmetriegruppe T_d des Zinkblendegitters benannt. (Nach Chelikowsky & Cohen, 1976²⁹)

In lateraler Richtung (senkrecht zur Wachstumsrichtung) wird die Symmetrie gebrochen, wenn durch Ätzprozesse oder Gate-Strukturen ein zusätzliches Potential aufgeprägt wird. Die Situation eines solchen auf der Skala der Gitterkonstanten schwach variierenden Potentials $V(\mathbf{r})$ kann innerhalb der Enveloppenfunktions-Näherung (Luttinger & Kohn, 1955¹⁰²) behandelt werden. Dazu stellen wir die Wellenfunktionen dar als

$$\psi_\alpha(\mathbf{r}) = \sqrt{V_0} \sum_{n'} \varphi_{n'\alpha}(\mathbf{r}) u_{n'}(\mathbf{r}). \quad (2.15)$$

Hier sind die $u_{n'}(\mathbf{r}) \equiv u_{n'0}(\mathbf{r})$ wieder die gitterperiodischen Eigenfunktionen des reinen Halbleiters, während $\varphi_{n'\alpha}(\mathbf{r})$ langwellige Funktionen darstellen, die innerhalb einer Einheitszelle nahezu konstant sind, weshalb sie als „Enveloppenfunktionen“ bezeichnet werden. Ihre Ortsabhängigkeit rührt von $V(\mathbf{r})$ her. Aus der Schrödinger-Gleichung

$$H\psi_\alpha(\mathbf{r}) = \left[\frac{\mathbf{p}^2}{2m} + U(\mathbf{r}) + H_{\text{so}} + V(\mathbf{r}) \right] \psi_\alpha(\mathbf{r}) = E_\alpha \psi_\alpha(\mathbf{r}) \quad (2.16)$$

folgt:

$$(H - E_\alpha)\psi_\alpha = \sqrt{V_0} \sum_{n'} \left\{ \varphi_{n'\alpha}(\mathbf{r}) \overbrace{\left[\frac{\mathbf{p}^2}{2m} + U(\mathbf{r}) + H_{\text{so}} \right] u_{n'}(\mathbf{r})}^{E_{n'}(0)u_{n'}(\mathbf{r})} + u_{n'}(\mathbf{r}) \left[\frac{\mathbf{p}^2}{2m} + V(\mathbf{r}) \right] \varphi_{n'\alpha}(\mathbf{r}) + \frac{1}{m} [\mathbf{p}\varphi_{n'\alpha}(\mathbf{r})] \cdot [\mathbf{p}u_{n'}(\mathbf{r})] - E_\alpha \varphi_{n'\alpha}(\mathbf{r}) u_{n'}(\mathbf{r}) \right\} = 0. \quad (2.17)$$

Dabei haben wir die Spin-Bahn-Kopplung nur bezüglich des Gitterpotentials $U(\mathbf{r})$ berücksichtigt. Durch Multiplikation mit $u_n^*(\mathbf{r})$ und Integration über eine Einheitszelle um den Gitterpunkt \mathbf{R} erhält man

$$\sum_{n'} \left\{ \left[\frac{\mathbf{p}^2}{2m} + E_n(\mathbf{0}) - E_\alpha + V(\mathbf{R}) \right] \delta_{nn'} + \frac{1}{\hbar} \mathbf{P}_{nn'} \cdot \mathbf{p} \right\} \varphi_{n'\alpha}(\mathbf{R}) = 0; \quad (2.18)$$

der Impulsoperator wirkt hier auf die Variable \mathbf{R} . Dieses homogene Gleichungssystem läßt sich speziell im Zweiband-Modell durch Eliminieren von $\varphi_{v\alpha}(\mathbf{R}) = -\hbar^{-1} \mathbf{P}_{vc} \cdot \mathbf{p} \varphi_{c\alpha}(\mathbf{R}) / (E_v(\mathbf{0}) - E_\alpha)$ lösen. Dabei wird der Term $\hbar^2 k^2 / (2m) + V(\mathbf{R})$ gegenüber $E_v(\mathbf{0}) - E_\alpha$ vernachlässigt. Solange die Energien E_α noch in der Nähe der ursprünglichen Bandkantenenergien $E_n(\mathbf{0})$ liegen, ist diese Approximation gerechtfertigt, und für leitungsbandartige Zustände α liegt $E_v(\mathbf{0}) - E_\alpha$ in der Nähe der Bandlücke E_g . Damit folgt für das Leitungsband:

$$\left[E_c(\mathbf{0}) - E_\alpha + \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + V(\mathbf{R}) - \frac{1}{\hbar^2} \frac{\mathbf{P}_{cv} \cdot \mathbf{p} \mathbf{P}_{vc} \cdot \mathbf{p}}{E_v(\mathbf{0}) - E_\alpha} \right] \varphi_{c\alpha}(\mathbf{R}) = 0. \quad (2.19)$$

Für isotrope Bänder ergibt sich die Bestimmungsgleichung

$$\left[E_c(\mathbf{0}) - E_\alpha + \left(\frac{1}{2m} + \frac{1}{\hbar^2} \frac{P_{cv}^2}{E_g} \right) \mathbf{p}^2 + V(\mathbf{R}) \right] \varphi_{c\alpha}(\mathbf{R}) = 0. \quad (2.20)$$

Daraus erkennt man, daß $\varphi_{c\alpha}(\mathbf{r})$ der Schrödingergleichung

$$\left[\frac{\mathbf{p}^2}{2m^*} + V(\mathbf{r}) \right] \varphi_{c\alpha}(\mathbf{r}) = [E_\alpha - E_c(\mathbf{0})] \varphi_{c\alpha}(\mathbf{r}) \quad (2.21)$$

genügt mit derselben effektiven Masse wie in der $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Theorie. Aus der Normierungsforderung für die Gesamtwellenfunktionen ψ_α folgt:

$$V_0 \sum_{n,m} \int d^3r \varphi_{n\alpha}^*(\mathbf{r}) u_n^*(\mathbf{r}) \varphi_{m\beta}(\mathbf{r}) u_m(\mathbf{r}) = V_0 \sum_n \sum_{\mathbf{R}} \varphi_{n\alpha}^*(\mathbf{R}) \varphi_{n\beta}(\mathbf{R}) \stackrel{!}{=} 1. \quad (2.22)$$

Falls α und β reine Leitungsbandzustände sind, bedeutet dies:

$$V_0 \sum_{\mathbf{R}} \varphi_{c\alpha}^*(\mathbf{R}) \varphi_{c\beta}(\mathbf{R}) = \int d^3r \varphi_{c\alpha}^*(\mathbf{r}) \varphi_{c\beta}(\mathbf{r}) = 1. \quad (2.23)$$

Matrixelemente von langsam variierenden Größen $O(\mathbf{r})$ sind dann gegeben durch: $\langle \psi_\alpha | O(\mathbf{r}) | \psi_\beta \rangle = \langle \varphi_\alpha | O(\mathbf{r}) | \varphi_\beta \rangle$.

Für $V(\mathbf{r}) = 0$ findet man erwartungsgemäß die (unnormierte) Enveloppe $\varphi_{c\alpha}(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}}$ ($\alpha \equiv \mathbf{k}$) mit $E_c(\mathbf{k}) = E_c(\mathbf{0}) + \hbar^2 k^2 / (2m^*)$.

In Gegenwart eines langsam veränderlichen Vektorpotentials $\mathbf{A}(\mathbf{r})$ ist der Impulsoperator durch $\mathbf{p} + (e/c)\mathbf{A}(\mathbf{r})$ zu ersetzen. Da $\mathbf{A}(\mathbf{r})$ über eine Einheitszelle nahezu konstant ist, hat dies keine Auswirkungen auf die Kanaschen Impuls-Matrixelemente zwischen den gitterperiodischen Funktionen.

Auf diese Weise lassen sich die Leitungsbandzustände aus der Schrödingergleichung für Teilchen mit effektiver Masse m^* in einem Potential $V(\mathbf{r})$ berechnen. Solange die Quantisierungsenergien dieses Potentials bzw. des Vektorpotentials $\mathbf{A}(\mathbf{r})$ wesentlich kleiner als die Breite des ursprünglichen Leitungsbandes sind, stellt dieses Verfahren eine nützliche Näherung dar.

 KAPITEL 3

Grundzustandsrechnungen für Quantenpunkte im Magnetfeld

In diesem Kapitel wenden wir die Konzepte der CSDFT für laterale Halbleiter-Quantenpunkte im Magnetfeld an. Dabei betrachten wir die Dimension in Wachstumsrichtung der Halbleiter-Schichtstruktur (z -Richtung) als separates Problem, das z.B. durch eine selbstkonsistente Hartree-Rechnung (Winkler, 1994¹⁸⁵) gelöst werden kann. Aufgrund der hohen Quantisierungsenergien durch das effektive Einschlußpotential (typischerweise ca. 20 bis 100 meV bei modulationsdotierten Heterostrukturen auf GaAs/Al_xGa_{1-x}As-Basis) darf davon ausgegangen werden, daß bei den hier interessierenden Temperaturen $T < 1$ K der „elektrische Quantenlimes“ erreicht ist, in dem alle Elektronen lediglich das unterste Subband der Heterostruktur bevölkern. Die Ausdehnung der Elektronen in z -Richtung, gegeben durch die Wellenfunktion $\zeta_0(z)$ des untersten Subbandes, ist dabei viel kleiner (einige Nanometer) als diejenige in den lateralen Richtungen. Im folgenden interessiert uns ausschließlich die Wechselwirkung innerhalb dieses zweidimensionalen Elektronensystems, dessen laterale Strukturierung durch ein Einschlußpotential $V_0(x, y)$ modelliert wird. Die Hinzunahme eines äußeren Magnetfeldes erweist sich als interessanter Parameter in einer tiefergehenden Analyse der Eigenschaften dieser Systeme.

3.1 Der harmonische Oszillator im Magnetfeld

Bevor wir mit der Formulierung des wechselwirkenden Systems beginnen, betrachten wir zunächst das Problem freier Elektronen (mit effektiver Masse m^*) in einem parabolischen Potential $V_0(r) = \frac{1}{2}m^*\omega_0^2r^2$, die sich in einem homogenen Magnetfeld B senkrecht zur Systemebene bewegen. Die Beschreibung des elektrostatischen Confinements durch eine harmonische Näherung um das Potentialminimum stellt in vielen Fällen eine gute Näherung dar.

Bereits im Frühstadium der modernen Quantenmechanik wurde dieses Modell eines zweidimensionalen harmonischen Oszillators im Magnetfeld von Fock (1928⁵⁰)

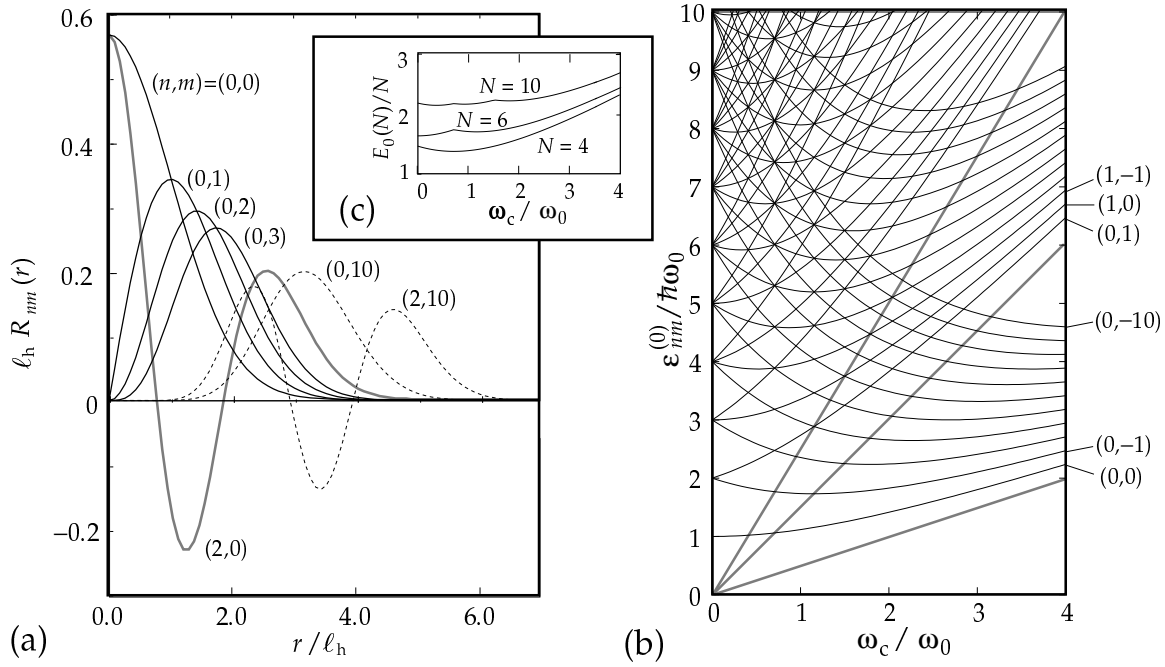


ABBILDUNG 3.1: (a) Fock-Darwin-Wellenfunktionen $R_{nm}(r)$ für ausgewählte n, m . (b) Eigenwerte des Hamilton-Operators H_0 (3.2) in Abhängigkeit von ω_c . Die grauen Linien markieren die Landau-Niveaus, denen sich die Eigenwerte für $\omega_c/\omega_0 \rightarrow \infty$ asymptotisch nähern. (c) Mittlere Energie pro Elektron $E_0(N)/N$ im Grundzustand für $N = 4, 6, 10$.

und Darwin (1931³⁶) analytisch behandelt. Ausgangspunkt ist der Effektiv-Massen-Hamiltonian

$$H_0 = \frac{1}{2m^*} \left[\mathbf{p} + \frac{e}{c} \mathbf{A}(\mathbf{r}) \right]^2 + V_0(r). \quad (3.1)$$

Für das Vektorpotential wählen wir die symmetrische Eichung $\mathbf{A}(x, y) = (-y, x)B/2$. Nach dem Übergang zu polaren Koordinaten $\mathbf{r} = (r, \varphi)$ erhalten wir

$$\begin{aligned} H_0 &= -\frac{\hbar^2}{2m^*} \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2} \right] + \frac{e^2}{2m^*c^2} \frac{B^2}{4} r^2 - i \frac{\hbar e B}{2m^*c} \frac{\partial}{\partial \varphi} + \frac{1}{2} m^* \omega_0^2 r^2 \\ &= -\frac{\hbar^2}{2m^*} \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2} \right] + \frac{1}{2} m^* \omega_h^2 r^2 - i \frac{\hbar \omega_c}{2} \frac{\partial}{\partial \varphi}. \end{aligned} \quad (3.2)$$

Dabei wurde die Hybridfrequenz $\omega_h = \sqrt{\omega_0^2 + \omega_c^2/4}$ aus der charakteristischen Frequenz ω_0 des Confinement und der Zyklotronfrequenz $\omega_c = eB/(m^*c)$ gebildet. Die Eigenfunktionen dieses axialsymmetrischen Hamilton-Operators haben die Form

$$\psi_{nm}(\mathbf{r}) = R_{n|m}(r) e^{im\varphi}, \quad n = 0, 1, 2, \dots, \quad m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots, \quad (3.3)$$

mit radialer Quantenzahl n und Winkelquantenzahl m , welche die Drehimpulskomponente $\hbar m$ in z -Richtung angibt. Die Radialfunktionen ergeben sich als (Fock, 1928⁵⁰; Darwin, 1931³⁶)

$$R_{n|m|}(r) = \frac{(-1)^n}{\ell_h} \sqrt{\frac{n!}{\pi(n+|m|)!}} e^{-r^2/(2\ell_h^2)} \left(\frac{r}{\ell_h}\right)^{|m|} L_n^{|m|}(r^2/\ell_h^2), \quad (3.4)$$

mit den verallgemeinerten Laguerre-Polynomen (siehe Gradshteyn & Ryzhik, 1980⁵⁶)

$$L_n^\alpha(x) = \sum_{i=0}^n \frac{(-1)^i}{i!} \frac{(n+\alpha)!}{(n-i)!(\alpha+i)!} x^i \quad (3.5)$$

und der charakteristischen Hybrid-Oszillatorlänge $\ell_h = \sqrt{\hbar/(m^*\omega_h)}$. Diese als Fock-Darwin-Zustände bezeichneten Lösungen haben das Eigenwertspektrum

$$\varepsilon_{nm}^{(0)} = \hbar\omega_h(2n + |m| + 1) + \frac{\hbar\omega_c}{2}m. \quad (3.6)$$

Abbildung 3.1 zeigt einige der Wellenfunktionen $R_{nm}(r)$ (a) sowie das Spektrum $\varepsilon_{nm}^{(0)}$ (b). In verschwindendem Magnetfeld weist dieses Spektrum eine *Schalenstruktur* auf. Sie ist das Ergebnis von Zeitumkehr-Symmetrie (Entartung bezüglich $\pm m$) und der Entartung von Zuständen mit gleichem $2n + |m|$, eine Besonderheit des parabolischen Potentials. Die i -fach entarteten Zustände der i -ten Schale ($i = 2n + |m| + 1 = 1, 2, \dots$) besitzen die Energie $\varepsilon_i = \hbar\omega_0 i$.

Für große Magnetfelder, $\omega_c/\omega_0 \gg 1$, konvergieren die Einteilchen-Niveaus zu den Landau-Niveaus

$$E_{n_L} = \hbar\omega_c(n_L + \frac{1}{2}), \quad (3.7)$$

mit der Landau-Quantenzahl $n_L = n + (|m| + m)/2$.

Wir ergänzen den Hamiltonian H_0 noch um den Zeeman-Term

$$H_Z = g^* \mu_B B \sigma, \quad (3.8)$$

wobei $\sigma = \pm \frac{1}{2}$ die Spinkomponente in z -Richtung angibt, um die Spinaufspaltung im endlichen Magnetfeld zu berücksichtigen.

3.2 Kohn-Sham-Formalismus für Quantenpunkte

Die Berechnung des Grundzustandes für wechselwirkende Elektronen beruht auf den Konzepten der CSDFT aus Kapitel 1. Die Rotationssymmetrie des Grundzustandes und aller im KS-Hamiltonian auftretenden Potentiale, die wir im folgenden voraussetzen wollen, führt dabei zu einer erheblichen Vereinfachung des Hamilton-Operators. Der Lösungsansatz $\tilde{\psi}_{nm\sigma}(\mathbf{r}) = \psi_{nm\sigma}(r)e^{im\varphi}$ erlaubt die Separation von Radial- und Winkelproblem. Man erhält folgenden effektiven Hamiltonian für die radiale Bewegung:

$$H_{KS} = -\frac{\hbar^2}{2m^*} \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \right) - \frac{m^2}{r^2} \right] + \frac{1}{2} m^* \omega_h^2 r^2 + m \left(\frac{\hbar\omega_c}{2} + \frac{\hbar e}{m^* c} \frac{A_{xc,\varphi}(r)}{r} \right) + V_H(r) + \sum_{\sigma=\pm\frac{1}{2}} (g^* \mu_B B \sigma + V_{xc\sigma}(r)) |\sigma\rangle\langle\sigma|. \quad (3.9)$$

(Die Bezeichnungen \uparrow/\downarrow und $\pm\frac{1}{2}$ für die z-Komponente des Spins werden hier synonym verwendet.) Das Austausch-Korrelations-Vektorpotential $\mathbf{A}_{\text{xc}}(r) = A_{\text{xc},\varphi}(r)\mathbf{e}_\varphi$ hat dabei die Form eines Wirbelfeldes um das Zentrum des Quantenpunktes. Diese Form ist konsistent mit einem winkelunabhängigen Stromdichteprofil $j_p(r)$.

Ein steileres, anharmonisches Einschlußpotential $V_0(r) = \frac{1}{2}m^*\omega_0^2r^2 + a_4r^4 + a_6r^6 + \dots$ kann man behandeln, indem im Rahmen der numerischen Diagonalisierung des KS-Hamiltonians die zusätzlichen Terme der Ordnung r^4 und höher zum Hartree-Potential addiert werden. In dieser Arbeit wurde der Effekt anharmonischer Terme nur in speziellen Fällen untersucht, da er bereits häufig Gegenstand früherer Arbeiten (z.B. Darnhofer, 1996³⁴) war.

Zur Konstruktion der Austausch-Korrelations-Potentiale in LVSDA betrachten wir zunächst die lokale Vortizität. Sie hat in der vorliegenden Symmetrie die Form

$$\mathbf{v}(r) = \nabla \times \left(\mathbf{e}_\varphi \frac{j_p(r)}{n(r)} \right) = \mathbf{e}_z \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{j_p(r)}{n(r)} \right). \quad (3.10)$$

Für festgehaltene Dichten n_σ gilt $\delta\mathbf{v}(r)|_{n_\sigma} = \nabla \times (\delta j_p/n)$. Identifiziert man über die Variation $\delta E_{\text{xc}}|_{n_\sigma}$ die Definitionsgleichungen der Variationsableitungen bezüglich \mathbf{v} bzw. j_p , findet man

$$\begin{aligned} \delta E_{\text{xc}}|_{n_\sigma} &= \int d^2r \frac{\delta E_{\text{xc}}}{\delta \mathbf{v}} \cdot \left(\nabla \times \frac{\delta j_p}{n} \right) \stackrel{\text{part.Int.}}{=} \int d^2r \left(\nabla \times \frac{\delta E_{\text{xc}}}{\delta \mathbf{v}} \right) \cdot \frac{\delta j_p}{n} + \underbrace{\text{Rand-Integral}}_{=0} \\ &\equiv \int d^2r \frac{\delta E_{\text{xc}}}{\delta j_p} \cdot \delta j_p(r); \end{aligned} \quad (3.11)$$

analog gilt bei festgehaltener Stromdichte j_p mit $\delta\mathbf{v}|_{j_p} = \nabla \times (-j_p\delta n/n^2)$:

$$\begin{aligned} \delta E_{\text{xc}}|_{j_p} &= \sum_\sigma \int d^2r \left[\frac{\delta E_{\text{xc}}}{\delta n_\sigma} \delta n_\sigma(r) + \frac{\delta E_{\text{xc}}}{\delta \mathbf{v}} \cdot \delta\mathbf{v}|_{j_p}(r) \right] \\ &= \sum_\sigma \int d^2r \left[\frac{\delta E_{\text{xc}}}{\delta n_\sigma} - \frac{j_p}{n^2} \cdot \left(\nabla \times \frac{\delta E_{\text{xc}}}{\delta \mathbf{v}} \right) \right] \delta n_\sigma(r) \\ &\equiv \sum_\sigma \int d^2r V_{\text{xc}\sigma}(r) \delta n_\sigma(r) d^2r; \end{aligned} \quad (3.12)$$

Damit folgt für die Austausch-Korrelations-Potentiale in lokaler Näherung:

$$\begin{aligned} \frac{e}{c} \mathbf{A}_{\text{xc}}(r) &= \frac{\delta E_{\text{xc}}}{\delta j_p} \Big|_{(n_\uparrow, n_\downarrow, \mathbf{v})(r)} = \frac{1}{n} \nabla \times \frac{\delta E_{\text{xc}}}{\delta \mathbf{v}} = -\mathbf{e}_\varphi \frac{1}{n(r)} \frac{\partial}{\partial r} \left(n(r) \frac{\partial \varepsilon_{\text{xc}}}{\partial \mathbf{v}} \Big|_{(n_\uparrow, n_\downarrow, \mathbf{v})(r)} \right), \quad (3.13) \\ V_{\text{xc}\sigma} &= \frac{\delta E_{\text{xc}}}{\delta n_\sigma} \Big|_{(n_\uparrow, n_\downarrow, \mathbf{v})(r)} = \varepsilon_{\text{xc}}(n_\uparrow(r), n_\downarrow(r), \mathbf{v}(r)) + n \frac{\partial \varepsilon_{\text{xc}}}{\partial n_\sigma} \Big|_{(n_\uparrow, n_\downarrow, \mathbf{v})(r)} - \frac{e}{c} A_{\text{xc},\varphi}(r) \frac{j_p(r)}{n(r)}. \end{aligned} \quad (3.14)$$

Hier verwenden wir konkret die im Kapitel 1 angeführte Parametrisierung von $\varepsilon_{\text{xc}}(r_s, \xi, \nu)$ [Gl. (1.62), mit der Formel von Levesque et al. (1984⁹³), falls nicht anders angegeben]. Es sei noch einmal bemerkt, daß ε_{xc} die Austausch-Korrelations-Energie

pro Teilchen eines homogenen Systems mit Dichte $n(r) = n_{\uparrow}(r) + n_{\downarrow}(r)$ und Spindichte $s(r) = n_{\uparrow}(r) - n_{\downarrow}(r)$ im Magnetfeld $B_{\text{hom}} = -m^*c v(r)/e$ darstellt. Die übliche Parametrisierung erfolgt in den Größen $r_s = (\pi n)^{-1/2}/a_0$, $\xi = n/s$ und $\nu = 2\pi n \ell_B$ mit dem effektiven Bohrschen Radius a_0 des Materials (hier durchwegs GaAs) und der magnetischen Länge $\ell_B = \sqrt{\hbar c / (e B_{\text{hom}})}$.

Die selbstkonsistente Lösung wird in einem iterativen Verfahren durch numerische Diagonalisierung von H_{KS} bestimmt. Der Vergleich mit Rechnungen in LSDA und LDA gestattet es, Wechselwirkungseffekte durch Strom und Spin zu identifizieren.

In Abb. 3.2 sind die Grundzustands-Dichteprofile für einen GaAs-Quantenpunkt mit $N = 8$ Elektronen ($m^* = 0.067 m_e$, $m_e =$ Elektronen-Ruhemasse) bei $B = 0$ gezeigt, wobei wir die Wechselwirkung zunächst vernachlässigen (a), dann durch eine Hartree-Näherung beschreiben (b) und schließlich inklusive Austausch-Korrelation in LDA (c) und LSDA (d) behandeln. Die LVSDA liefert hier dasselbe Ergebnis wie die LSDA, da für erhaltene Zeitumkehr-Symmetrie die Stromdichte, und damit die Vortizität, verschwindet. Dann reduziert sich die Berechnung der Austausch-Korrelations-Energie auf den LSDA-Ausdruck [siehe Gl. (1.62)]. Die Confinement-Energie beträgt $\hbar\omega_0 = 3 \text{ meV}$, die dielektrische Konstante (DK) $\kappa = 12.4$. Im Vergleich zum nichtwechselwirkenden System zeigt sich eine deutliche Modifikation der Grundzustandsdichte, wenn die Abschirmung des Confinements durch das Hartree-Potential berücksichtigt wird. Letzteres führt zu einem flachen Potentialverlauf im Zentrum des Quantenpunktes; die Form des effektiven Gesamtpotentials hat also einen stark anharmonischen Verlauf mit steilen Randflanken. Folglich erhält man ein Einteilchenspektrum, das nur noch näherungsweise schalenartig aufgebaut ist. Die Hinzunahme von Austausch-Korrelation resultiert in einer Absenkung der physikalischen Grundzustandsenergie E_0 , berechnet nach Gl. (1.31), die sich im Dichteprofil ebenfalls bemerkbar macht.

Der Grundzustand läßt sich durch die Quantenzahlen M und S charakterisieren:

$$M = \sum_{i=1}^N m_i, \quad S = \sum_{i=1}^N \sigma_i; \quad (3.15)$$

sie geben die z -Komponente des Gesamtdrehimpulses bzw. Gesamtspins an und sind auch im wechselwirkenden System gute Quantenzahlen. Folglich kann man die Konzepte der CSDFT (Variationsprinzip und Hohenberg-Kohn-Theorem, Kohn-Sham-Formalismus) auf die entsprechenden Vielteilchen-Hilbert-Unterräume zu festem M und S anwenden. In der Praxis bedeutet dies, daß die Konfiguration $(M, 2S)$ des Kohn-Sham-Grundzustandes mit derjenigen des physikalischen Systems identisch ist, also auch physikalische Relevanz besitzt.

Ohne spinabhängiges Austausch-Korrelationspotential werden für gerade Elektronenzahlen alle räumlichen Orbitale paarweise besetzt. Solange der Zeeman-Effekt nicht zu groß wird, gilt dies auch in einem endlichen Magnetfeld. Anders verhält sich die Situation in LSDA, also wenn E_{xc} auch von der Spindichte abhängt: Die Schalenstruktur des Einteilchenspektrums begünstigt einen spontanen Symmetriebruch bezüglich der beiden Spinrichtungen und analog zur Hundschen Spinregel für natürliche Atome (vgl. Weissbluth, 1978¹⁸³) weisen die Elektronen in den fast-entarteten Schalen bis zur Halbbesetzung den gleichen Spin auf. Dadurch kann Austausch-Energie gewonnen und die Grundzustandsenergie gesenkt werden. Dies

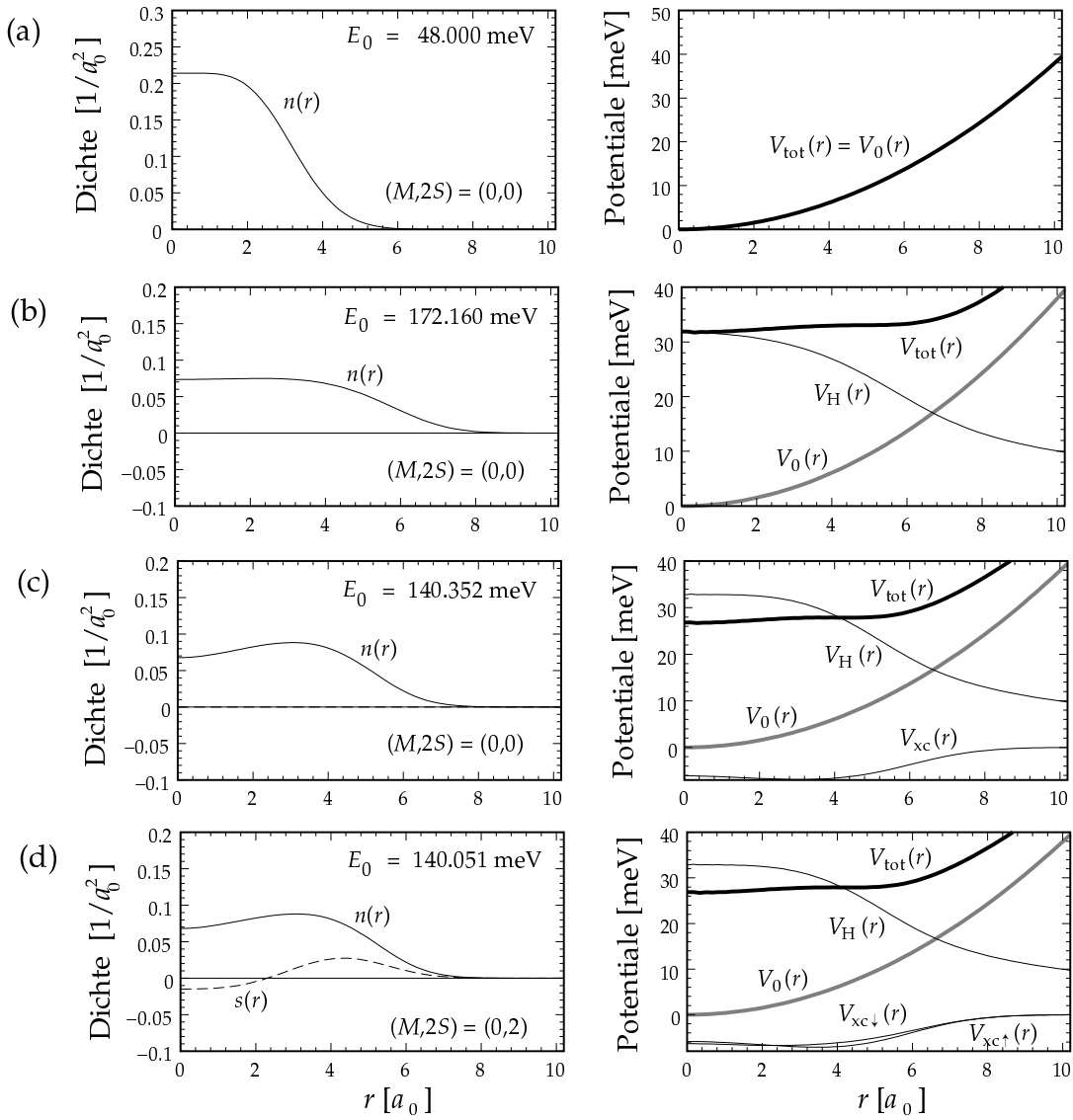


ABBILDUNG 3.2: Profile der Ladungs- und Spindichte des Grundzustandes, $n(r) = n_{\uparrow}(r) + n_{\downarrow}(r)$ und $s(r) = n_{\uparrow}(r) - n_{\downarrow}(r)$, für einen GaAs-Quantenpunkt mit $N = 8$ Elektronen und einer Confinement-Energie von $\hbar\omega_0 = 3$ meV, ohne äußeres Magnetfeld. Der effektive Bohrsche Radius von GaAs beträgt $a_0 = 9.794$ nm. Die KS-Einteilchen-Potentiale sind rechts dargestellt, $V_{\text{tot}}(r)$ ist das effektive Gesamtpotential. (a) Ohne Wechselwirkung. (b) Hartree-Rechnung. (c) LDA mit $V_{\text{xc}}(r) = V_{\text{xc}\uparrow}(r) = V_{\text{xc}\downarrow}(r)$. (d) LSDA/LVSDA.

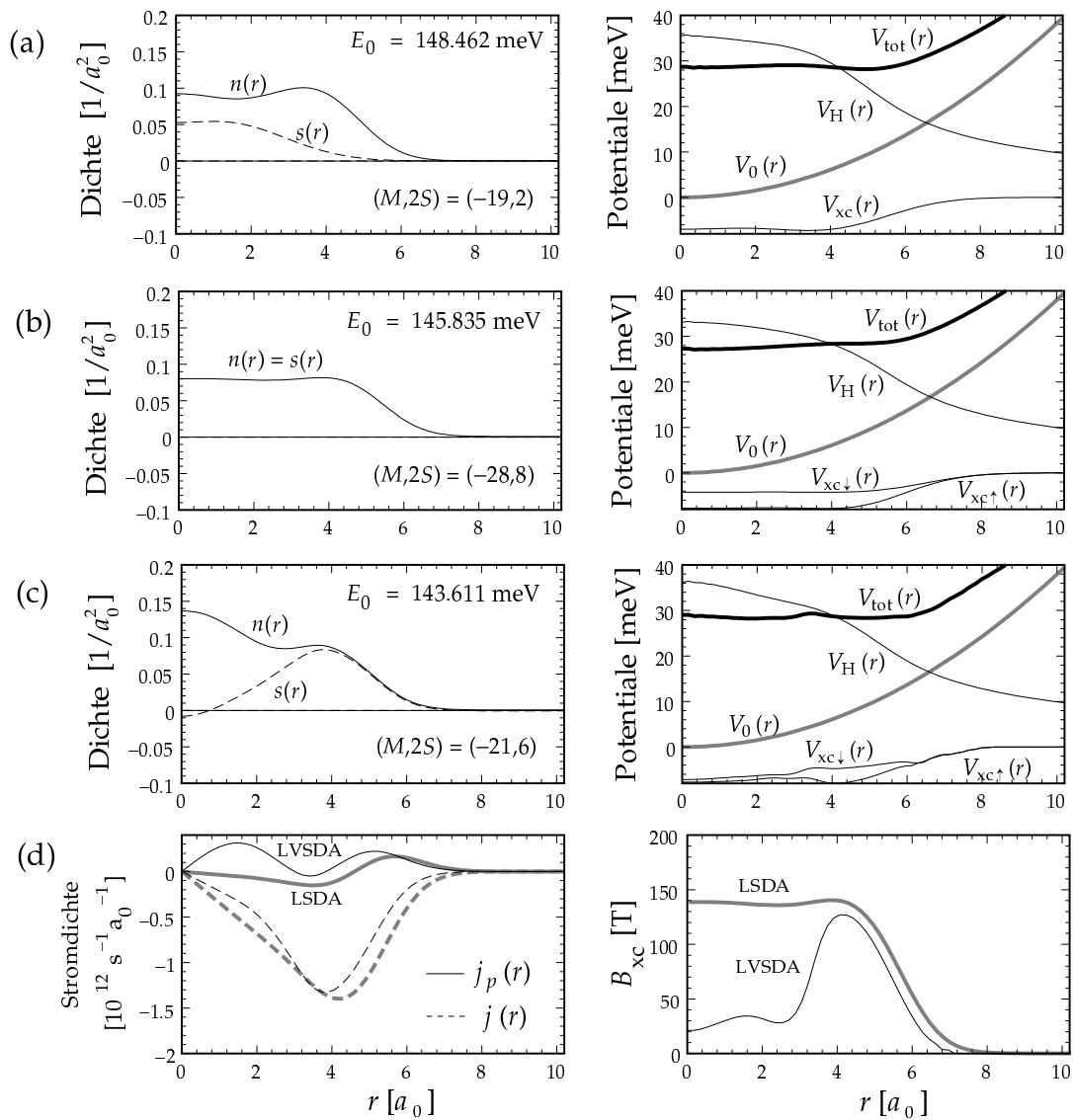


ABBILDUNG 3.3: Profile der Ladungs- und Spindichte des Grundzustandes mit den effektiven Einteilchen-Potentialen für einen GaAs-Quantenpunkt mit $N = 8$ Elektronen und $\hbar\omega_0 = 3 \text{ meV}$ im Magnetfeld $B = 3 \text{ T}$. (a) LDA. (b) LSDA. (c) LVSDA. Der Unterschied in $V_{xc\sigma}(r)$ für LSDA und LVSDA kommt unter anderem durch den Einfluß des Austausch-Korrelations-Vektorpotentials zustande, das gemäß Gl. (3.14) in das skalare Potential eingeht. (d) Radiale Profile der physikalischen Stromdichte $j(r)$ (durchgezogene Linie) und der paramagnetischen Stromdichte $j_p(r)$ (gestrichelt), jeweils für LVSDA (schwarz) und LSDA (grau). Im rechten Teil sieht man das effektive Zeeman-Feld $B_{xc}(r) = [V_{xc\uparrow}(r) - V_{xc\downarrow}(r)] / (g^* \mu_B)$, das durch Austausch-Korrelation hervorgerufen wird.

wird später im Bild der KS-Einteilchen-Niveaus noch ausführlicher diskutiert. Im Beispiel $N = 8$ [Abb. 3.2 (d)] sind die beiden Elektronen der dritten Schale im selben Spinzustand ($2S = 2$).

Im endlichen Magnetfeld treten infolge der gebrochenen Zeitumkehr-Symmetrie große orbitale Ströme auf. Genau für diesen Fall wurde die CSDFT entwickelt: Durch die – zumindest modellhafte – Berücksichtigung der lokalen Ströme bei der Berechnung von E_{xc} erhält man modifizierte Ergebnisse für die Grundzustandsenergie und -konfiguration. Ein Beispiel ist in Abb. 3.3 zu sehen: Bei $B = 3$ T liefert die LSDA als Grundzustand ein *maximum density droplet* (MDD), eine vollständig spinpolarisierte Konfiguration, deren Drehimpuls durch die sukzessive Besetzung aufeinanderfolgender Zustände $(0, m)$, $m = 0, -1, -2, \dots$ gebildet wird [d.h. $M = -\frac{1}{2}N(N-1)$] und die durch eine maximale Dichte im Zentrum des Quantenpunktes gekennzeichnet ist. Sie entspricht der Grundzustandskonfiguration eines nichtwechselwirkenden Systems im Grenzfall starker Magnetfelder (mit ausreichend hoher Zeeman-Aufspaltung, so daß alle Elektronen spinpolarisiert sind), deren zugehörige Dichte nach Gl. (3.4) gegeben ist durch (MacDonald et al., 1993¹⁰⁴):

$$n_{\text{MDD}}(r) = \frac{1}{2\pi\ell_B^2} \sum_{m=0}^{N-1} \frac{1}{m!} \left(\frac{r}{\sqrt{2}\ell_B} \right)^{2m} e^{-r^2/(2\ell_B)^2}. \quad (3.16)$$

Die Austausch-Wechselwirkung erhöht einerseits die Spinaufspaltung, was den Übergang zu einem spinpolarisierten System begünstigt, andererseits zeigt die LVSDA-Rechnung, daß die MDD-Bildung zunächst durch die strombedingten Korrelationseffekte gehemmt wird: Nicht alle Spins sind ausgerichtet und durch die paarweise Besetzung des orbitalen Zustands $(0, 0)$ bleibt der Gesamtdrehimpuls kleiner. Die spinunabhängige LDA-Rechnung in Abb. 3.3 (a) kann die physikalische Situation nicht mehr gut beschreiben: Lediglich aufgrund des Zeeman-Terms (mit $g^* = -0.44$) erhält man eine partielle Spinausrichtung ($2S = 2$). Die Grundzustandsenergie fällt auch viel zu hoch aus.

Die Unterschiede der Grundzustandsenergien in LSDA und LVSDA befinden sich immerhin im Prozentbereich, sind also nicht völlig unbedeutend. Wesentlich interessanter ist allerdings, daß die Grundzustandskonfigurationen $(M, 2S)$ verschieden sind. Der Wechsel der Konfiguration in Abhängigkeit des äußeren Magnetfeldes wird also von der Art und Weise, wie man die Wechselwirkung im System behandelt, beeinflusst.

3.3 Vergleiche mit exakter Diagonalisierung

Wir zeigen zunächst, wie der Vergleich unserer CSDFT-Ergebnisse mit denjenigen, die aus einer exakten Diagonalisierung (ED) des Vielteilchen-Hamiltonians hervorgehen, ausfällt. Diese Methode erlaubt zwar eine wesentlich genauere Behandlung der Wechselwirkung, ist aber aus technischen Gründen auf Wenig-Elektronen-Systeme beschränkt. Moderne Hochleistungs-Computer sind in der Lage, eine exakte Diagonalisierung etwa bis zu acht Elektronen (Eto, 1997⁴³) auszuführen. Ein Vorteil der ED-Methode besteht darin, daß man neben der Grundzustandswellenfunktion auch angeregte Zustände erhält [Messungen angeregter Vielteilchen-Zustände mittels Transport-Spektroskopie an einem Quantenpunkt mit bis zu zwölf Elektronen werden in einem

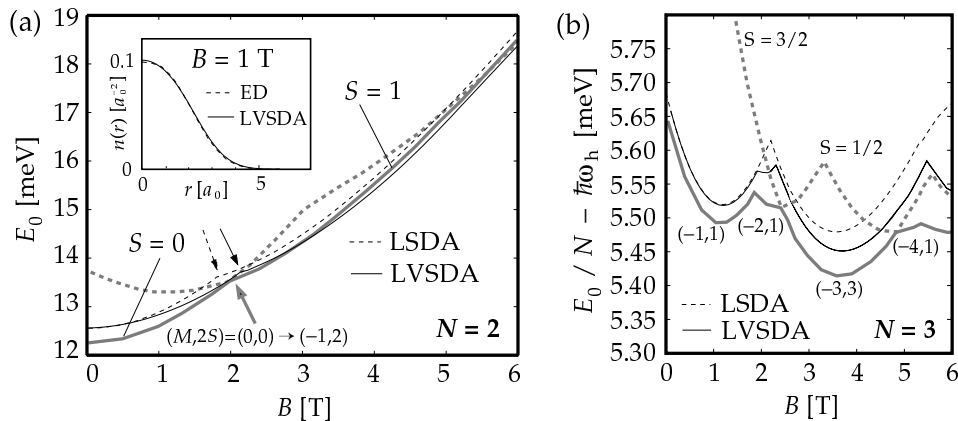


ABBILDUNG 3.4: Magnetfeldabhängigkeit der Grundzustandsenergie von GaAs-Quantenpunkten (ohne Zeeman-Energie) für $N = 2$ und 3 . Das Confinement beträgt $\hbar\omega_0 = 3.37$ meV. In (a) sind die niedrigsten Zweiteilchenniveaus zum Gesamtspin $S = 0$ und $S = 1$ grau eingezeichnet (exakte Diagonalisierung von Pfannkuche et al., 1993¹³³). Den Grundzustandsübergang von $(M, 2S) = (0, 0)$ nach $(-1, 2)$ findet man in LVSDA und ED nahezu beim gleichen Magnetfeldwert (Pfeile). Das eingesetzte Bild demonstriert die gute Übereinstimmung der exakten Grundzustandsdichte mit LVSDA. (b) ED-Grundzustandskonfigurationen $(M, 2S)$ (graue Linien) des 3-Elektronen-Systems (mit $S = \frac{1}{2}$ oder $S = \frac{3}{2}$; nach Hawrylak & Pfannkuche, 1993⁶³) im Vergleich zur LVSDA und LSDA.

neueren Artikel von Kouwenhoven et al. (1997⁸⁶) beschrieben]. Höhere Teilchenzahlen (bisher $N \leq 10$) können nur noch unter bestimmten Einschränkungen diagonalisiert werden, z.B. für spinpolarisierte Systeme wie in der Pionierarbeit von Maksym & Chakraborty (1990¹⁰⁶) oder durch Projektion ins unterste Landau-Niveau (Hochfeld-Limes, siehe Yang et al., 1993¹⁸⁷).

Für $B = 0$ haben bereits Merkt et al. (1991¹¹⁵) die Coulomb-Energie von Quantenpunkt-„Helium“ ($N = 2$) in erster Ordnung Störungstheorie berechnet. Eine exakte Diagonalisierung für dieses System (in GaAs) bei beliebigen Magnetfeldern wird von Pfannkuche et al. (1993¹³³) präsentiert. Bei Hawrylak & Pfannkuche (1993⁶³) findet man eine ähnliche Rechnung für $N = 3$ Elektronen. Charakteristisch für diese Studien ist die Trennung der elektronischen Bewegung in einen freien Schwerpunktsanteil und einen Anteil, der die durch die Wechselwirkung beeinflussten inneren Freiheitsgrade beschreibt. Aufgrund des Pauli-Prinzips können die Werte für Gesamtspin S in z -Richtung und relativer Drehimpuls m nicht in beliebigen Kombinationen auftreten. So erzwingt die spinpolarisierte Triplett-Konfiguration mit $S = 1$ eine ungerade Form für die Ortswellenfunktion der Relativbewegung $\mathbf{r} = \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2$, weshalb nur ungerade Relativ-Drehimpulse m erlaubt sind. Im Grundzustand mit verschwindendem Schwerpunkts-Drehimpuls bedeutet dies, daß der Gesamtdrehimpuls $m_1 + m_2$ ungerade sein muß. Bei drei Elektronen wird die Situation komplizierter (Hawrylak & Pfannkuche, 1993⁶³); so fordert das Pauli-Prinzip für polarisierte Zustände mit Gesamtspin $S = \frac{3}{2}$ einen Gesamtdrehimpuls $|m_1 + m_2 + m_3| = 3, 6, 9, \dots$ (entsprechend muß $|m_1 + m_2 + m_3| = 1, 2, 4, 5, 7, \dots$ sein für $S = \frac{1}{2}$). Die Erfüllung dieser Bedingun-

gen kann von einer CSDFT-Rechnung natürlich nicht garantiert werden. Sie müßten vielmehr als Randbedingung bei der Minimierung des Energiefunktionalis eingeführt werden.

In Abb. 3.4 sehen wir die magnetfeldabhängige Grundzustandsenergie für Quantenpunkte mit $N = 2$ bzw. 3 Elektronen im Vergleich mit ED-Rechnungen.^{63,133} Für sehr kleine N stößt das Konzept der Lokalen-Dichte-Näherung natürlich an seine Grenzen: Das sog. Selbstwechselwirkungsproblem, das aus der Wechselwirkung jedes Teilchens mit seinem eigenen Hartree-Potential herrührt, gewinnt an Bedeutung. In einer exakten Theorie wird dieser Anteil des Hartree-Potentials vom (nichtlokalen) Austausch-Korrelations-Potential kompensiert. Stark vereinfacht ließe sich der Beitrag in lokaler Näherung durch eine Korrektur des Hartreefunktionalis in der Form $E_H^{\text{corr}}[n] = E_H[n] - NE_H[n/N]$ teilweise kompensieren. Der Ausdruck liefert für $N = 1$ und $N \rightarrow \infty$ das korrekte Resultat. Deutlich bessere Verfahren zur *self-interaction correction* findet man in der Literatur, z.B. bei Perdew (1983¹²⁷) oder Krieger & Li (1989⁸⁸).

Je mehr Teilchen im System sind (also je homogener die Dichte ist), umso leichter kann dieser Effekt vernachlässigt werden. Wir finden dennoch eine erstaunlich gute Übereinstimmung der LVSDA-Ergebnisse mit exakter Diagonalisierung. Wechsel in der Grundzustandskonfiguration ($M, 2S$) machen sich als Knicke (Kuspen) in der Gesamtenergie bemerkbar. Für $N = 2$ geschieht dies z.B. bei ca. 2 T, wo ein Singulett-Triplett-Übergang stattfindet. LVSDA und ED stimmen hierbei sehr gut überein, während die LSDA diesen Übergang schon bei einem niedrigeren Magnetfeld aufweist. Die größten Abweichungen zwischen ED und LVSDA liegen bei kleinen Magnetfeldern. Hier beträgt der relative Fehler aber immer noch weniger als 2.5%. Für $N = 3$ gibt es Magnetfeldbereiche, in welchen die korrekte Grundzustandskonfiguration in LSDA nicht reproduziert wird. Dies ist insbesondere um $B = 2$ T der Fall, wo der LSDA-Grundzustand von $(M, 2S) = (-1, 1)$ sofort nach $(-3, 3)$ springt, wohingegen sich der exakte Grundzustand dazwischen in der Konfiguration $(-2, 1)$ befindet. Die LVSDA beschreibt die Konfigurationsänderungen richtig, wenn die Magnetfeldauflösung fein genug gerastert ist.* Über 5 T treten größere Abweichungen auf; der ED-Grundzustand wechselt von $(-3, 3)$ über $(-4, 1)$ nach $(-5, 1)$, die LVSDA liefert einen Wechsel von $(-3, 3)$ direkt nach $(-6, 3)$. Die Energie ist dabei nahe an dem exakten Ergebnis für diese Konfiguration; im gesamten untersuchten Bereich liegt der Unterschied der renormierten Energien $E_0/N - \hbar\omega_h$ zwischen ED und LVSDA bei gleicher Konfiguration stets unterhalb von 1%.†

In Abb. 3.5 sieht man den Vergleich mit ED-Rechnungen von Eto (1997⁴³) für $N \geq 4$. Für den Fall schwacher [$e^2/(\kappa\ell_0) = \hbar\omega_0/2$] bzw. starker [$e^2/(\kappa\ell_0) = \hbar\omega_0$]

*An dieser Stelle sollte ein technisches Detail erwähnt werden: Um die Berechnung der Magnetfeldabhängigkeit zu beschleunigen, wurde als Ausgangspunkt für die iterative Lösung der KS-Gleichungen der selbstkonsistente Grundzustand des benachbarten Magnetfeldwertes verwendet. Dadurch kann man allerdings infolge einer numerischen „Hysterese“ in einem metastabilen Zustand hängenbleiben, der nicht dem Grundzustand entspricht. Um diesen unerwünschten Effekt zu vermeiden, wurde die Rechnung einmal von kleinen zu großen Feldern und zurück durchgeführt, und jeweils die energetisch tiefer liegende Lösung ausgewählt. Aber auch dann kann bei zu grober Rasterung in schmalen Übergangsbereichen eine Zwischenkonfiguration übersprungen werden.

†Ähnliche Vergleichsrechnungen für zwei und drei Elektronen wurden auch von Ferconi et al. (1995⁴⁷) durchgeführt.

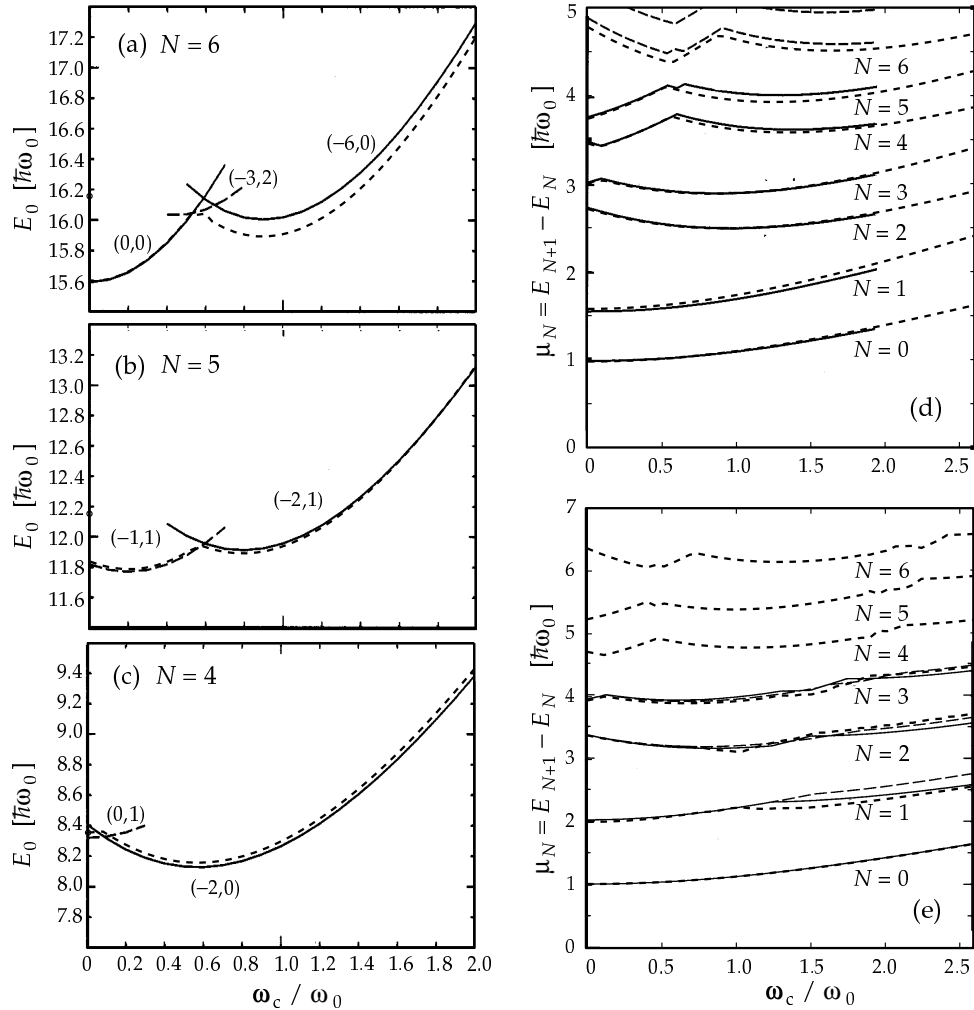


ABBILDUNG 3.5: Vergleich mit exakter Diagonalisierung von Eto (1997⁴³): Grundzustandsenergien für $N = 6, 5, 4$ (a–c) bei schwacher Coulomb-Wechselwirkung [$e^2/(\kappa l_0) = \hbar\omega_0/2$] ohne Zeeman-Term. Neben den Kurven steht die Grundzustandskonfiguration $(M, 2S)$. Die LVSDA-Kurven sind fett gestrichelt (---) eingezeichnet. (d, e) Additionsenergien μ_N für $N = 0$ bis 7, jeweils mit schwacher (d) bzw. starker (e) Coulomb-Wechselwirkung [$e^2/(\kappa l_0) = \hbar\omega_0$] aus LVSDA (---) und ED (—). In (e) wurde die ED zusätzlich mit Zeeman-Feld ausgeführt (- -).

Coulomb-Wechselwirkung wurde eine Produktbasis aus allen Eigenzuständen des harmonischen Oszillators im Magnetfeld mit $2n + |m| \leq 4$ bzw. 5 zur Diagonalisierung des Vielteilchensystems verwendet; $\ell_0 = \sqrt{\hbar/(m^*\omega_0)}$ ist dabei die charakteristische Oszillatorlänge. Drückt man das Magnetfeld durch ω_c in Einheiten von ω_0 aus, lassen sich alle Größen (außer dem Zeeman-Term) materialunabhängig in Einheiten von ω_0 und ℓ_0 schreiben. Ein Confinement von $\hbar\omega_0 = 3.37$ meV wie in Abb. 3.4 entspricht in GaAs übrigens genau der Situation starker Wechselwirkung. Die Magnetfeldabhängigkeit der LVSDA-Grundzustandsenergie E_0 zeigt eine sehr gute Übereinstimmung mit Eto's Ergebnissen; selbst die Grundzustandsübergänge werden für $N = 4$ und 5 von der LVSDA nahezu an denselben Magnetfeldwerten reproduziert. Für $N = 6$ findet man allerdings Abweichungen von ca. 1 %, die im Übergangsbereich $\omega_c = 0.6\omega_0$ mit einem Zwischenzustand $(M, 2S) = (-3, 2)$ beginnen, der in der LVSDA nur über einen viel kleineren Magnetfeldbereich erscheint. Für große Magnetfelder werden die Unterschiede wieder kleiner. Abbildung 3.5 (d, e) zeigt die *Additionsenergien* $\mu_N = E_0(N+1) - E_0(N)$, also die Differenzen der Vielteilchen-Grundzustandsenergien für N bzw. $N+1$ Elektronen. Diese können mittels Tunnelstrom- oder Kapazitäts-Spektroskopie experimentell gemessen werden; darauf wird im Abschnitt 3.5 noch ausführlicher eingegangen. Die ED-Rechnungen offenbaren zunächst die charakteristischen Knicke in der Magnetfeldabhängigkeit von μ_N [z.B. in (d) für $N = 4, 5, 6$ bei $0.5\omega_0$ oder für $N = 6$ bei $0.9\omega_0$], deren Ursprung man auf eine Umkonfiguration des Grundzustandes infolge einer Niveaureuzung des einfachen Einteilchenspektrums zurückführen kann. Typisch ist dabei der paarweise-parallele Verlauf der Kurven aufgrund der Spinartung. Die Wechselwirkung führt zu einer modifizierten Position der Strukturen sowie zu einer – näherungsweise konstanten – Verschiebung der Linien durch das Hartree-Potential. Im nichtwechselwirkenden Fall [vgl. Abb. 3.1 (c)] findet man ein qualitativ ähnliches Bild, in welchem die Linien für die beiden Spinrichtungen aufeinanderfallen.

Eto betont die Bedeutung des Zeeman-Terms im Bereich großer Magnetfelder, wenn der Grundzustand in (e) für $N = 2$ den bereits erwähnten Singulett-Triplett-Übergang vollzieht. Seine Rechnungen (für GaAs) belegen, daß in Gegenwart der Zeeman-Aufspaltung dieser Übergang bereits bei kleineren Magnetfeldern ($\omega_c = 1.3\omega_0$ statt $1.5\omega_0$) auftritt. Er erscheint in den LVSDA-Rechnungen (ohne Zeeman-Term) schon bei ca. $1.0\omega_0$. Analoge Effekte durch sukzessive Spinausrichtung im Hochfeld-Limes lassen sich in ED und LVSDA für $N = 3$ und 4 erkennen. Im Gegensatz dazu zeigen die Additionsspektren für schwache Wechselwirkung (d) keine Spinpolarisation. Sie ist hier erst bei höheren Magnetfeldern zu erwarten.

Dem soweit diskutierten Kurvenverlauf sind Anomalien überlagert, die um $B = 0$ zu einer geringeren Additionsenergie für das vierte und einer erhöhten für das fünfte Elektron führen. Für schwache (d) und starke Wechselwirkung (e) findet man dies sowohl in ED als auch in LVSDA. [Im Fall (d) wurde die Additionsenergie aus ED für $N = 6$ dünn gestrichelt eingezeichnet, da die Konvergenz des Grundzustandes in der eingeschränkten Produktbasis hier nicht gesichert ist.] Man erkennt eine weitere Besonderheit bei etwa $0.6\omega_0$, die zu einer „blasenartigen“ Struktur führt. In LVSDA ist diese erst im Fall starker Wechselwirkung (e) erkennbar, wo leider keine ED-Daten mehr vorliegen. Ähnliche Bereiche finden sich auch bei höheren Feldern ab $2\omega_0$ für $N > 4$. Die durch diese Anomalien unterbrochene Parallelität je zweier Linien deutet

auf einen spinabhängigen Effekt hin. In der Tat handelt es sich dabei um Austausch-Korrelations-Effekte, die im nächsten Abschnitt ausführlich behandelt werden.

Schließlich weisen wir auch auf Vergleiche mit Ergebnissen aus Quanten-Monte-Carlo-Rechnungen für $N \leq 10$ von Bolton (1994¹⁷) hin, die hier allerdings nicht gezeigt werden. Die betrachtete Methode startet von einem Variationsansatz für die Grundzustandswellenfunktion, der sich „diffusiv“ im Laufe einer imaginären Zeit der wahren Grundzustandswellenfunktion annähert (siehe Reynolds et al., 1982¹⁴⁹; Bolton, 1994¹⁶, 1994¹⁷). Die Gegenüberstellungen weisen eine gute Übereinstimmung im höheren Magnetfeld auf, wo die von Bolton angewandte Projektion ins unterste Landau-Niveau gerechtfertigt ist.

3.4 Spin-Effekte: Hundische Regel im Magnetfeld

Wie bereits in früheren LSDA-Rechnungen von Koskinen et al. (1997⁸⁵) gezeigt wurde, kann die Grundzustandsenergie bei verschwindendem Magnetfeld im Fall (fast) entarteter Einteilchen-Niveaus dadurch minimiert werden, daß sich die Elektronenspins ausrichten.[‡] Der dadurch vergrößerte Austausch-Beitrag der Coulomb-Wechselwirkung senkt die Gesamtenergie ab. Die energetische Nähe der beteiligten Einteilchen-Zustände ist dabei ganz wesentlich, weil aufgrund des Pauli-Prinzips mehr orbitale Zustände besetzt werden müssen. Infolgedessen können die Spins auch nur bis zur Halbfüllung der obersten besetzten Schale ausgerichtet werden. Ungeachtet der Spin-Bahn-Kopplung, die zu weitaus komplexeren Szenarien führt (Kutzelnigg & Morgan, 1996⁸⁹), entspricht dieser Mechanismus der Hundischen Spinregel für natürliche Atome: In partiell besetzten Schalen sind unter Beachtung des Pauli-Prinzips so viele Elektronen wie möglich in identischen Spinzuständen.

Die Dispersion der Einteilchen-Niveaus im endlichen Magnetfeld führt zur Auflösung der Schalenstruktur, weshalb ab einer kritischen Feldstärke keine Spinausrichtung mehr auftritt. Dennoch kann auch im endlichen Magnetfeld eine „verallgemeinerte Hundische Regel“ abgeleitet werden: Treffen zwei (spinentartete) Einteilchen-Niveaus an der Fermi-Kante zusammen, bilden diese vier Zustände wiederum eine „Schale“, deren Gesamtspin durch die Besetzung zweier identischer Spinzustände maximiert werden kann.

Abbildung 3.6 zeigt die KS-Energien $\varepsilon_{nmo}(B)$ für $N = 10$ Elektronen in LVSDA (a), LSDA (b) und LDA (c) im Vergleich. Für $B = 0$ befinden sich vier Elektronen in der dritten, ohne Wechselwirkung sechsfach entarteten Schale. Im LDA-Grundzustand werden die (durch die Wechselwirkung zwar modifizierten, aber dennoch fast entarteten) Zustände der dritten Schale jeweils paarweise besetzt; infolgedessen treffen die besetzten und unbesetzten Zustände an der Fermi-Energie zusammen. Dagegen wird durch spontane Bevorzugung einer Spinrichtung in der LSDA-Rechnung eine endliche Spindichte aufgebaut, die die Spinentartung der Einteilchen-Niveaus aufhebt. Dies geschieht in selbstkonsistenter Weise durch ein endliches „Zeeman-Feld“ $g^* \mu_B B_{xc} = V_{xc\uparrow} - V_{xc\downarrow}$. Dadurch entsteht eine Energielücke an der Fermi-Kante, die

[‡]Die in der Arbeit von Koskinen et al. (1997⁸⁵) gefundenen Spindichtewellen in azimuthaler Richtung können im hier angewandten Formalismus aufgrund der zugrundeliegenden Rotationssymmetrie nicht reproduziert werden. Dies ist Gegenstand einer weiterführenden Arbeit.

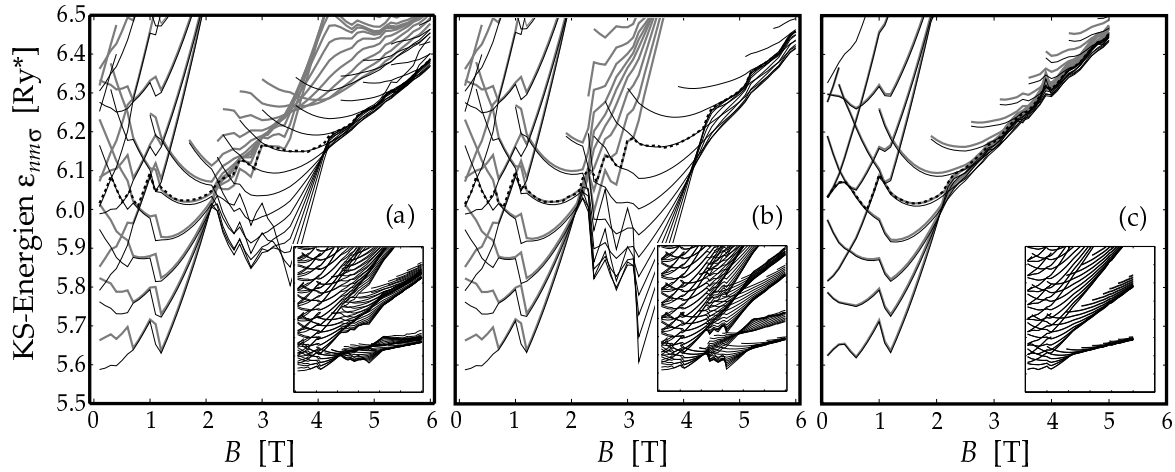


ABBILDUNG 3.6: KS-Energiespektrum $\varepsilon_{nm\sigma}$ (inkl. Zeeman-Effekt) für $N = 10$ in LVSDA (a), LSDA (b) und LDA (c) (GaAs, $\hbar\omega_0 = 3 \text{ meV}$, $1 \text{ Ry}^* = 5.929 \text{ meV}$). Austausch-Korrelation führt in LSDA und LVSDA zu einer Spinaufspaltung (\uparrow —, \downarrow —). Die gestrichelte Kurve markiert den höchsten besetzten KS-Zustand. Die Insets zeigen über dem gleichen Magnetfeldbereich einen größeren Teil des Spektrums, um die Landau-Niveaus sowie die wechselwirkungsinduzierte Zeeman-Auspaltung herauszustellen.

die besetzten von den unbesetzten Zuständen trennt (markiert durch die gestrichelte Linie in Abb. 3.7). Sie stabilisiert den Grundzustand bezüglich des nächstliegenden angeregten, spinlosen Zustands und löst die Frustration durch entartete Zustände an der Fermi-Kante auf. Ein nahezu identisches Ergebnis erhält man in LVSDA.

Die Spinaufspaltung bricht ab einem kritischen Magnetfeld zusammen, wenn die Energie zur Besetzung unterschiedlicher orbitaler Zustände mit gleichem Spin größer ist als die Energie bei paarweiser Besetzung von entsprechend weniger orbitalen Zuständen. Dies tritt hier bei ca. 0.7 T auf. Ein zweiter Abschnitt mit endlicher Spinaufspaltung liegt zwischen 1.0 und 1.2 T. Er kann auf eine Kreuzung von KS-Niveaus an der Fermi-Kante zurückgeführt werden, wodurch in analoger Weise wie für kleine Magnetfelder eine Art „Schale“ aufgebaut wird, die bis zur Halbfüllung mit spinpolarisierten Elektronen besetzt werden kann.

Ab 2.0 T beginnt die sukzessive Ausrichtung aller Spins, die aus der zunehmenden Zahl fast-entarteter Niveaus beim Übergang zu hohen Magnetfeldern ermöglicht wird. Auch hier kann durch Spinpolarisation die Gesamtenergie minimiert werden. Folglich erhält man einen *giant Zeeman effect*, der viel größer ist als in der spinunabhängigen LDA-Rechnung und bei vollständiger Polarisation in eine Sättigung übergeht [Inset in Abb. 3.6 (b)]. Allerdings produziert die LVSDA ein Artefakt: Da in der Formel (1.62) im Limes $\nu \ll 1$ keine Information über die Polarisationsabhängigkeit der Austausch-Korrelations-Energie enthalten ist, schließt sich die Lücke zwischen den Spins wieder und wird nur noch vom normalen Zeeman-Term bestimmt. Eine Korrektur der Approximation (1.62) erhalten wir durch den Ansatz

$$\varepsilon_{xc}^{(\text{kor})}(r_s, \xi, \nu) = \varepsilon_{xc}(r_s, \xi = 1, \nu) + f(\xi)\Delta\varepsilon_{xc}(r_s, \nu), \quad (3.17)$$

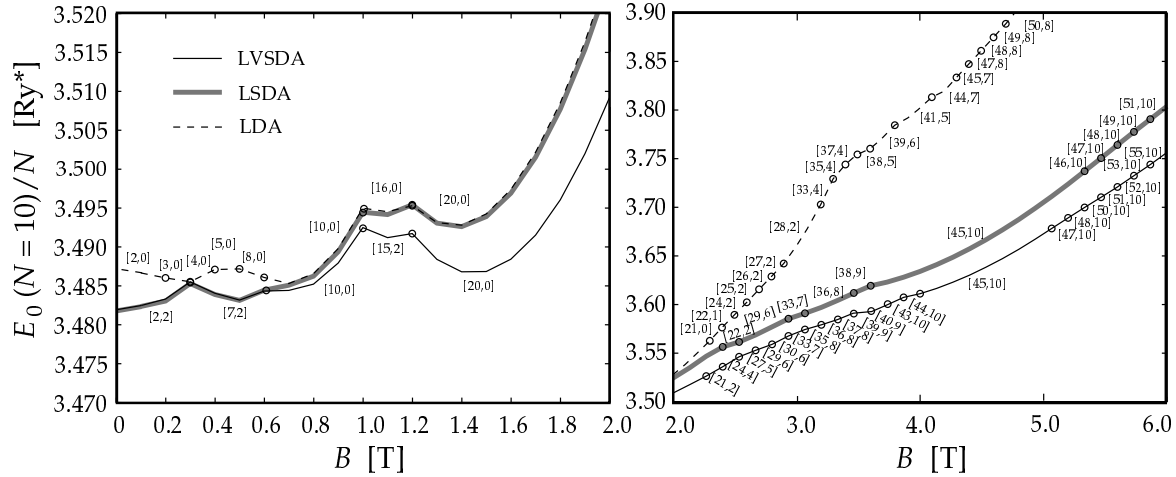


ABBILDUNG 3.7: Grundzustandsenergie für $N = 10$ (GaAs, $\hbar\omega_0 = 3$ meV, $1 \text{ Ry}^* = 5.929$ meV) in LDA, LSDA und LVSDA. Die Klammerpaare kennzeichnen die jeweiligen Grundzustandskonfigurationen $[|M|, 2S]$.

wobei $\Delta\varepsilon_{xc}(r_s, \nu) = [\varepsilon_{xc}(r_s, \xi = 0, \nu) - \varepsilon_{xc}(r_s, \xi = 1, \nu)]$ exakt nicht bekannt ist. Die Interpolationsfunktion $f(\xi)$ ist dieselbe wie im magnetfeldfreien Fall [siehe Gl. (1.57)]; dies läßt sich aus einer Dimensionsbetrachtung ableiten (Oliver & Perdew, 1979¹²⁴). Die konkrete Modellierung von $\Delta\varepsilon_{xc}(r_s, \nu)$ haben Lubin et al. (1997¹⁰¹) verwirklicht durch eine komplizierte Spline-Interpolation zwischen speziellen Füllfaktoren, für welche Chakraborty & Zhang (1984²⁶) numerische Diagonalisierungen durchgeführt haben. Eigene Testrechnungen mit dieser Modifikation weisen zwar Unterschiede in der magnetfeldabhängigen Gesamtenergie im Vergleich mit der ursprünglichen Beschreibung der Austausch-Korrelations-Energie auf, aber angesichts der guten Übereinstimmung mit exakter Diagonalisierung auch bei hohen Magnetfeldern beschränken sich die weiteren Rechnungen in diesem Kapitel auf die Fassung (1.62).

Abbildung 3.7 stellt die Gesamtenergie des wechselwirkenden Systems im Vergleich zwischen LDA, LSDA und LVSDA dar. Im niedrigen und mittleren Magnetfeldbereich (linkes Bild) erkennt man klar die energetischen Minima infolge der Hundschen Spinausrichtung in LSDA/LVSDA. Wie bereits in den KS-Spektren sichtbar wird, wirken sich die Approximationen unterschiedlich auf die relative energetische Position und die Besetzung der Einteilchen-Zustände aus. Bei hohen Feldern (rechts) fällt insbesondere auf, daß die LVSDA höhere Drehimpulse favorisiert als die strom- bzw. vortizitätsunabhängige LSDA [dies ist jedoch keine feste Regel, vgl. Abb. 3.3 (b) und (c)]. Interessanterweise bevorzugt auch die LDA hohe Drehimpulse, selbst wenn der einfache Zeeman-Effekt noch nicht ausreicht, um alle Elektronen zu polarisieren. Aufgrund der unberücksichtigten Energieabsenkung durch Spinausrichtung im Energiefunktional der LDA, fällt deren Gesamtenergie deutlich höher aus. Insgesamt stellt man fest, daß gerade im Hochfeldbereich die zunehmende Zahl an Niveaufkreuzungen zu einer häufigen Änderung der Grundzustandskonfiguration führt. Allerdings sticht der MDD-Zustand $(M, 2S) = (-45, 10)$ sowohl in LSDA als auch in LVSDA durch seine hohe Stabilität bezüglich Magnetfeldänderungen hervor.

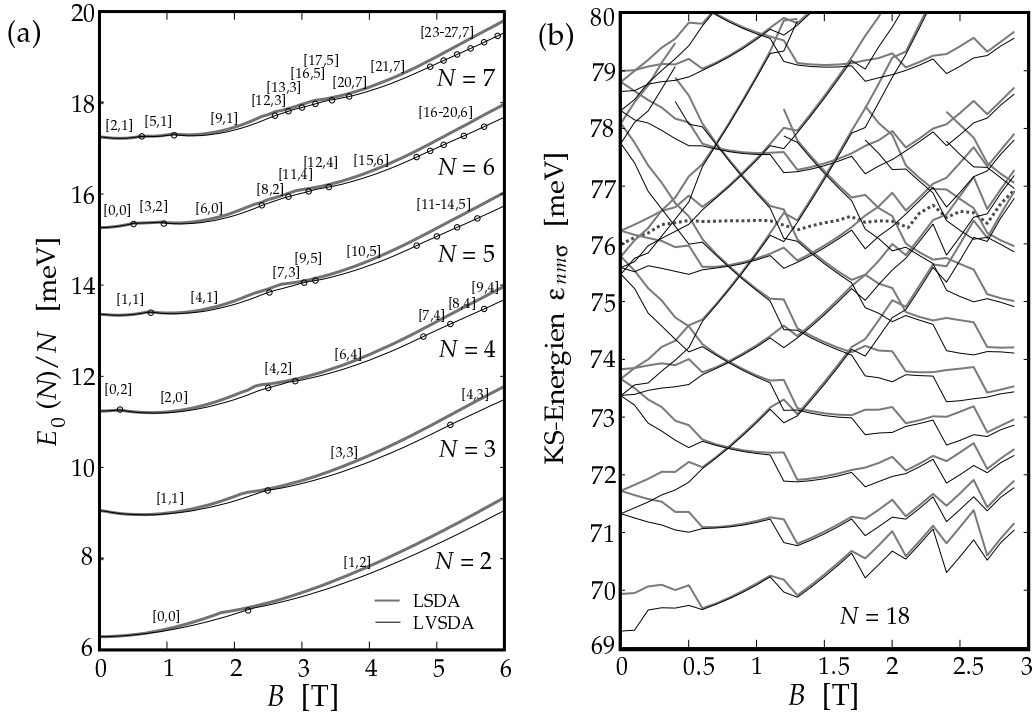


ABBILDUNG 3.8: (a) Grundzustandsenergie für $N = 2$ bis 7 (GaAs, $\hbar\omega_0 = 3.37$ meV) in LSDA und LVSDA. Die Klammerpaare $[|M|, 2S]$ geben die Grundzustandskonfiguration der LVSDA-Rechnung wieder. (b) KS-Einteilchenniveaus $\varepsilon_{nm\sigma}$ in LVSDA für $N = 18$ (\uparrow —, \downarrow —). Die Zustände unterhalb der gestrichelten Linie sind besetzt.

In Abb. 3.8 (a) zeigen wir die systematische Berechnung aller Grundzustandsenergien von $N = 2$ bis 7 im Bereich 0 bis 6 T. Im Vergleich mit der LSDA-Rechnung erhält man in LVSDA durchwegs niedrigere Grundzustandsenergien. Auch sind die Magnetfeldpositionen, an welchen Änderungen der Konfiguration eintreten, in LSDA zu kleineren Felder verschoben. Der Übersichtlichkeit halber sind in Abb. 3.8 nur die LVSDA-Übergangspalten mit Kreisen markiert. Eine besonders auffällige Illustration der Hundschen Regel im Magnetfeld ist Abb. 3.8 (b): Für höhere Elektronenzahlen (hier $N = 18$) treten infolge zahlreicherer Niveaufkreuzungen des Einteilchenspektrums entlang der Fermi-Energie immer wieder Grundzustandskonfigurationen mit endlichem Gesamtspin auf, lange bevor der spinpolarisierte Limes des untersten Landau-Niveaus erreicht wird. Wie wir im nächsten Abschnitt sehen werden, sind diese Strukturen auch im Experiment zu identifizieren.

3.5 Additionsspektren

Der experimentelle Nachweis der Schalenstruktur des Energiespektrums wurde möglich mit der Herstellung von Quantenpunktstrukturen, deren Elektronenzahl mithilfe einer Gate-Elektrode von 0 beginnend eingestellt werden kann. Nach den Pionierarbeiten von McEuen et al. (1992¹¹³) und Ashoori et al. (1993⁷) (siehe auch

Ashoori, 1996⁶), denen mittels Einzel-Elektronen-Kapazitätsspektroskopie die Messung der Additionsenergien von Wenig-Elektronen-Quantenpunkten gelang, ist vor allem ein jüngeres Experiment von Tarucha et al. (1996¹⁷⁰) interessant, in dem erstmals die Hundschen Spinregeln erkennbar wurden. Der experimentelle Aufbau wurde bereits in der Einleitung (Abb. E.2) gezeigt.

Durch das Anlegen einer Gate-Spannung kann das chemische Potential des Systems variiert werden. Man beobachtet resonantes Tunneln von einzelnen Elektronen durch die Struktur, wenn das chemische Potential des N -Elektronen-Quantenpunktes $\mu_N = E_0(N + 1) - E_0(N)$ (wie schon zuvor auch Additionsenergie genannt) übereinstimmt mit demjenigen in den Source- und Drain-Kontakten, die der Zu- und Ableitung der Elektronen dienen. Im einfachsten Fall sind jene nur durch eine kleine Wechsellspannung gegeneinander verstimmt. Das resonante Tunneln des $N + 1$ -ten Elektrons äußert sich in einem starken Anstieg des gemessenen Wechselstroms. Im Bereich zwischen den Resonanzsituationen ist die Elektronenzahl wohldefiniert. Durch Verschieben des chemischen Potentials mithilfe der Gate-Spannung kann der Quantenpunkt also sukzessive mit Elektronen geladen werden. Die von der angelegten Gate-Spannung abhängige Zu- und Abnahme des Tunnelstroms bezeichnet man als *Coulomb-Oszillationen*.

Selbstverständlich spielt hier die Wechselwirkung der Elektronen untereinander eine wichtige Rolle; ein simples Bild beschreibt sie im sog. *constant-interaction model* (McEuen et al., 1991¹¹⁴; siehe auch van Houten et al., 1991⁶⁶). Hier wird die Wechselwirkung im Quantenpunkt durch einen Plattenkondensator mit der Kapazität $C = e^2/U$ modelliert. Die Ladungsenergie U entspricht im wesentlichen einer konstanten Wechselwirkungsenergie des hinzugefügten Elektrons mit jedem anderen, das bereits im System enthalten ist. Ausgehend von der Coulomb-Energie $E_C(N) = \frac{1}{2}(Ne)^2/C = \frac{1}{2}N^2U$ für N Elektronen im Kondensator, erhält man als Additionsenergie für das N -te Elektron $\mu_{N-1} = E_0(N) - E_0(N - 1) = [E_C(N) - E_C(N - 1)] + \varepsilon_N^{(0)} = (N - \frac{1}{2})U + \varepsilon_N^{(0)}$, die sich aus einer durch das Einschlußpotential festgelegten Einteilchenenergie $\varepsilon_N^{(0)}$ und der Coulomb-Energie $\Delta E_C(N) = (N - \frac{1}{2})U$ zusammensetzt. McEuen et al. (1992¹¹³) haben die Gültigkeit dieses Modells für hohe Magnetfelder durch ihre Experimente widerlegt; die Coulomb-Wechselwirkung modifiziert die Additionsspektren so sehr, daß eine selbstkonsistente Behandlung zur Erklärung des experimentellen Befundes unerlässlich ist.

Falls die Einteilchenniveaus $\varepsilon_N^{(0)}$ innerhalb einer Schale liegen, werden die Additionsenergien nur durch die Coulomb-Wechselwirkung gegeneinander verschoben. Dieser unter dem Stichwort „Coulomb-Blockade“ (Kastner, 1993⁷⁷) bekannte Effekt bewirkt, daß bei einer festen, resonanten Gate-Spannung immer nur ein Elektron in das Quantenpunkt-System hinein- und hinaustunneln kann. Daher nennt man ein solches System auch *single-electron transistor* (SET).

In Abb. 3.9 (a) sind die experimentellen Gate-Spannungswerte, für welche Tunnelstrom-Maxima gemessen werden, in Abhängigkeit des Magnetfeldes aufgetragen (nach Tarucha et al., 1996¹⁷⁰). Zum Vergleich haben wir die Additionsenergien für einen GaAs-Quantenpunkt mit bis zu 20 Elektronen in einem Einschlußpotential von $\hbar\omega_0 = 5$ meV berechnet (b). Die Experimentatoren erklären die von ihnen beobachteten „Schaleneffekte“ durch ein wechselwirkungsfreies Quantenpunkt-Modell

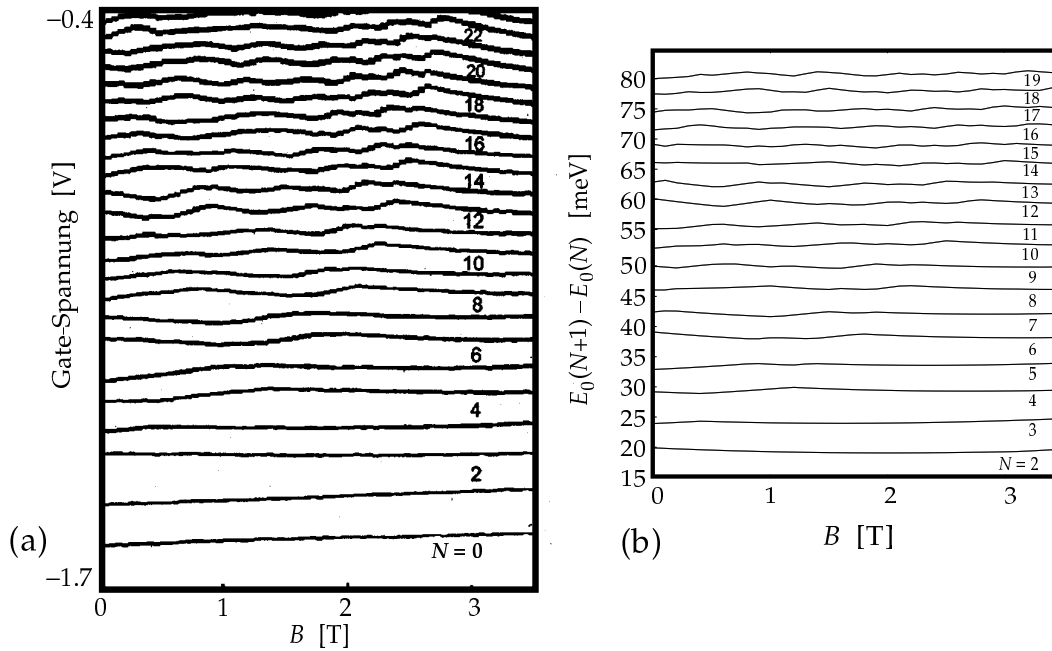


ABBILDUNG 3.9: (a) Experimentelles Additionsspektrum für $N = 2$ bis 22 (GaAs) nach Tarucha et al. (1996¹⁷⁰). (b) LVSDA-Rechnung mit $\hbar\omega_0 = 5$ meV. Aufgrund der experimentellen Unwägbarkeiten ist eine direkte Übersetzung der Gate-Spannung in eine Energie nicht möglich. Auf ein sehr ungenaues Umrechnungsverfahren wurde hier deshalb verzichtet.

mit $\hbar\omega_0 = 3$ meV. Dieses reproduziert das gemessene Minimum der Additionsenergie für das siebte Elektron bei $B \approx 1.3$ T, das der Kreuzung des sechsten und siebten Einteilchen-Niveaus zugeordnet werden kann [vgl. Abb. 3.11 (a)]. Spineffekte bei $B = 0$ werden von Tarucha et al. im Rahmen des *constant-interaction*-Modells durch Hinzunahme von Fitparametern, die die Austausch-Energie parallelorientierter Spins enthalten, beschrieben. Dieses einfache Modell liefert bereits eine qualitative Begründung der Hundschen Regel. Wie bereits erwähnt, konnten Koskinen et al. (1997⁸⁵) diesen Befund für $B = 0$ im Rahmen der SDFT theoretisch belegen. Hier wird dieses Konzept nun konsistent auf den Bereich endlicher Felder erweitert.

Die Übereinstimmung zwischen Experiment und unserer auf lokalen Näherungen beruhenden Rechnung ist insofern beachtlich, daß keine Fitparameter außer der Confinement-Energie $\hbar\omega_0$ benutzt werden. Der höhere Wert von 5 meV erklärt sich dabei aus der Abschirmung des nackten Einschlußpotentials. Um daher dieselben Magnetfeldpositionen für die Niveaufkreuzungen zu erhalten wie im Experiment, muß ein stärkeres Confinement zugrundegelegt werden als im nichtwechselwirkenden Modell. Dies wirft auch ein Licht auf das „wahre“ Einschlußpotential im Experiment.

Aufgrund der Wechselwirkung bleibt die Schalenstruktur des nichtwechselwirkenden Modells bei $B = 0$ nur näherungsweise erhalten; nur die Zustände $(n, \pm m, \sigma)$ sind infolge der Zeitumkehr-Symmetrie exakt entartet. Diese Quasi-Schalenstruktur spiegelt sich in den erhöhten Additionsenergien für Elektronen wider, die eine neue, bisher unbesetzte Schale bevölkern müssen. Mit anderen Worten, die Zustände mit $N = 2, 6, 12, 20$, usw. sind besonders stabil und entsprechen „magischen“ Elektronenzahlen. Be-

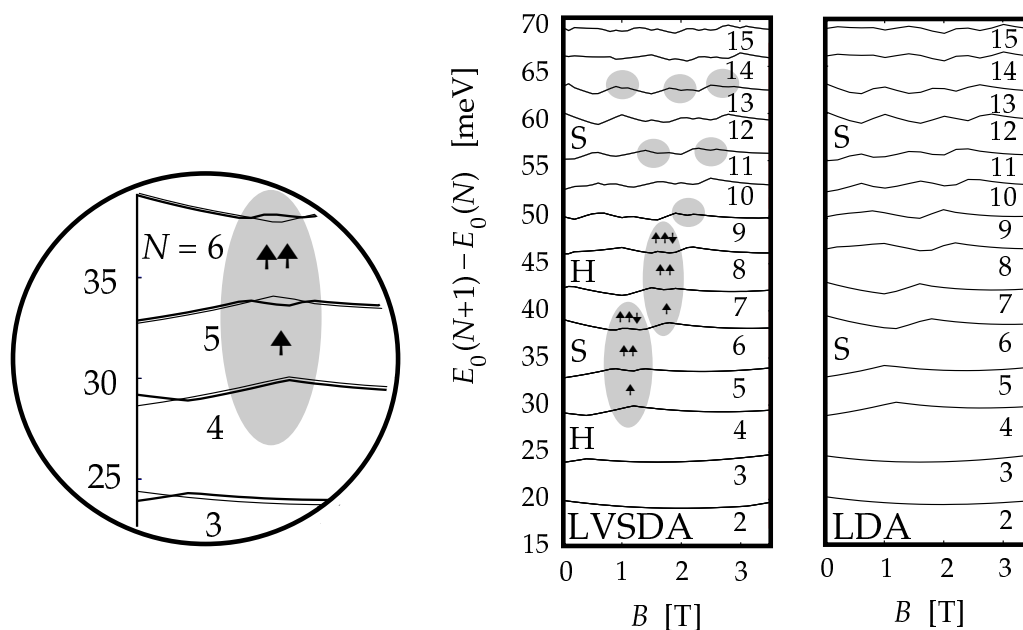


ABBILDUNG 3.10: Additionsspektrum für $N = 2$ bis 19 (GaAs, $\hbar\omega_0 = 5$ meV), jeweils in LVSDA und LDA. Links ist der im Text diskutierte, schattierte Bereich vergrößert abgebildet (LVSDA —, LDA —). „H“ und „S“ markieren die Stellen bei $B = 0$, an denen die Hundse Regel und die Schalenstruktur des Einteilchenspektrums erkennbar sind (siehe Text).

sonders deutlich wird dies für die Additionsenergien des siebten und 13. Elektrons (vgl. auch Abb. 3.10, wo die entsprechenden Stellen mit „S“ markiert sind). Die Hundse Regel führt außerdem zu einer erhöhten Additionsenergie für Elektronen, die einer halbgefüllten, spinpolarisierten Schale zugefügt werden, z.B. für $N = 4$ oder 9 („H“). Bei größeren N verliert sich der Effekt, da die Schalenstruktur des Spektrums durch die Wechselwirkung mehr und mehr verwischt wird. Abbildung 3.10 stellt den Vergleich mit LDA-Ergebnissen dar, in welchen die Spineffekte nicht auftreten und die Additionsenergien infolge der Spinentartung paarweise parallel verlaufen.[§]

Im endlichen Magnetfeld trifft man wieder auf die verallgemeinerte Hundse Regel. Obwohl die effektiven KS-Energieniveaus selbst keine physikalische Bedeutung haben, geben sie ein eingängiges intuitives Bild vom zugrundeliegenden Mechanismus. So ist die Addition des sechsten Elektrons um $B = 1.2$ T günstiger aufgrund der großen Austausch-Lücke zwischen den besetzten und unbesetzten Niveaus [Abb. 3.11 (b)]. Entsprechend verlaufen die Additionsenergien für das fünfte und sechste Elektron, die nun im selben Spinzustand sind, nicht mehr parallel. Umgekehrt ist nun die Addition des siebten Elektrons energetisch aufwendiger. Für $N = 5$ und 7 ist die Spinaufspaltung kleiner (gegeben nur durch die endliche Spindichte des einzelnen un-

[§]*Cum grano salis*: Natürlich wird durch die Addition eines weiteren Elektrons das selbstkonsistente Spektrum verändert, so daß – obwohl im $N + 1$ -Elektronen-System bei geradem $N + 1$ die Spinrichtungen (ohne Zeeman-Term) entartet sind – das Additionsspektrum als Differenz $E_0(N + 1) - E_0(N)$ strukturelle Unterschiede der beiden Einteilchenspektren enthalten kann. Diese sind aber längst nicht so ausgeprägt wie diejenigen aufgrund polarisierter Spinzustände.

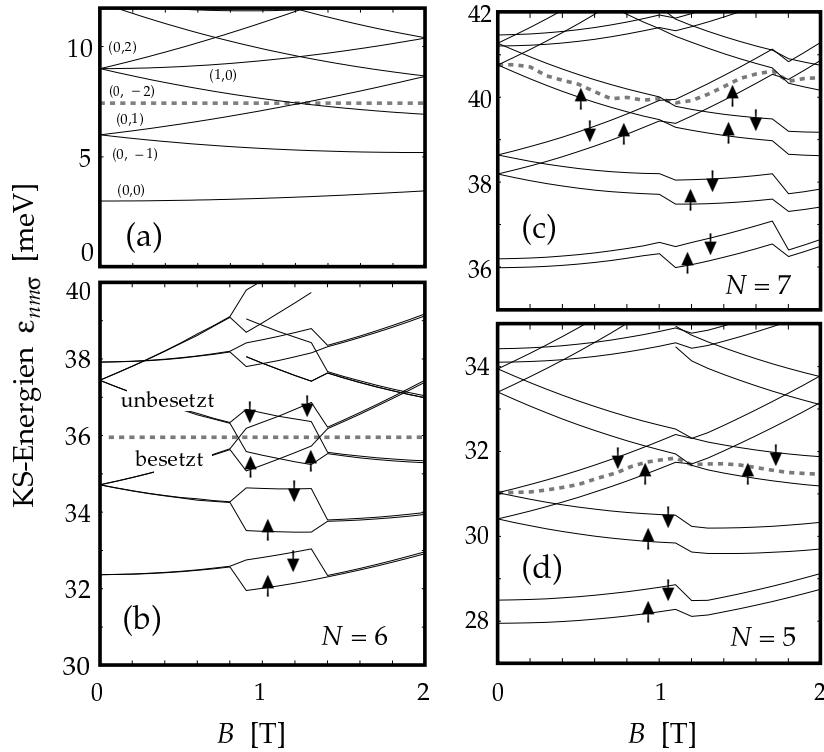


ABBILDUNG 3.11: (a) Einteilchenniveaus eines nichtwechselwirkenden GaAs-Quantenpunkt-Systems mit $\hbar\omega_0 = 3$ meV. (b–d) KS-Niveaus für $N = 5, 6, 7$ mit $\hbar\omega_0 = 5$ meV.

gepaarten Elektronenspins), und an der Fermi-Energie gibt es keine Energielücke. Die sich kreuzenden Einteilchen-Niveaus gehören zum gleichen Spinzustand. Dieser Effekt wurde von Tarucha et al. (1996¹⁷⁰) nicht diskutiert, obwohl er in Abb. 3.9 für $N = 6$ bei $B \approx 1.3$ T schwach sichtbar ist und nach persönlicher Mitteilung in anderen Messungen noch deutlicher wurde. In unseren Rechnungen wiederholt sich dieses Szenario für $N = 7, 8$ und 9 bei $B = 1.8$ T, wo der Grundzustand für $N = 8$ zwei polarisierte Spins aufweist. Interessanterweise läßt sich die Hundsche Regel auch für größere N gelegentlich ziemlich klar an den „eingedellten“ Maxima der Additionsenergien μ_{N-1} für gerade N identifizieren, so z.B. für $N = 10, 12$ und 14 (in Abb. 3.10 grau unterlegt), wo im Experiment keine besonderen Strukturen mehr erkennbar sind. Verfolgt man die Additionsenergien im Magnetfeld, kann man die *Sequenz* der berechneten Strukturen jedoch sehr gut den beobachteten zuordnen. Die Diskrepanzen bezüglich der Magnetfeldwerte liegen vermutlich in Unwägbarkeiten begründet, die die Art und Stärke des tatsächlichen Confinements sowie seine Abhängigkeit von der Gate-Spannung bzw. Elektronenzahl betreffen.

Da die zu erwartenden Austauschlücken relativ groß sind (ca. 1 meV), sind sie auch bei Temperaturen von einigen Kelvin stabil. Der Einfluß von Verunreinigungen im Quantenpunkt ist schwieriger einzuschätzen. Störstellen im System verschieben die Einteilchen-Niveaus und brechen die Rotationssymmetrie. Der hier vorgestellte Effekt ist jedoch generischer Natur und nicht vom spezifischen Einschlußpotential, sondern nur von der Existenz irgendwie gearteter symmetriebedingter Niveaukreuzun-

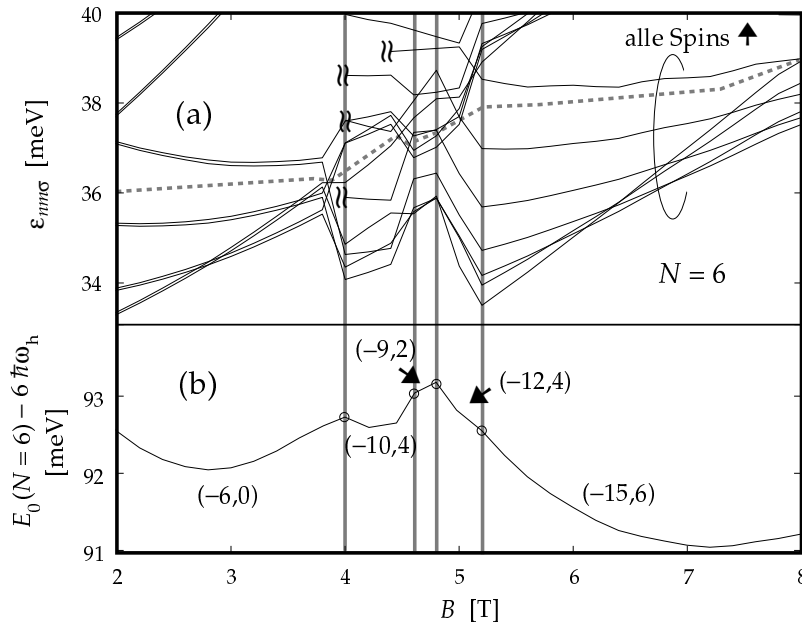


ABBILDUNG 3.12: Hochfeld-Limes der KS-Niveaus (a) und Grundzustandsenergie (b) für $N = 6$ in GaAs mit $\hbar\omega_0 = 5$ meV. Bei $B = 8$ T zeichnet sich ein Übergang vom MDD-Zustand $(M, 2S) = (-15, 6)$ zu höheren Drehimpulsconfigurationen ab, der durch die energetische Umverteilung der KS-Niveaus in der Nähe der Fermi-Kante zustande kommt.

gen abhängig. Eine gebrochene Rotationssymmetrie führt zwar zu Niveaubstoßungen anstatt -kreuzungen, falls diese Aufspaltung jedoch kleiner als die Austauschlücke ist, sollte die Spinausrichtung immer noch beobachtbar sein. Im Hinblick auf elliptische Quantenpunkte ist dies ein interessanter Aspekt, der bereits experimentell untersucht wird (Sasaki et al., 1998¹⁵²). Neuere Rechnungen mit exakter Diagonalisierung bei $B = 0$ von Ezaki et al. (1998⁴⁴) zeigen, daß bei hinreichend großer Aufspaltung die $S = 1$ -Konfiguration für $N = 4$ oder $N = 8$ in der Tat instabil wird. In dreiecksförmigen Quantenpunkten bewirken geometrische Effekte eine besonders hohe Stabilität der Zustände mit $N = 3, 6$ und 9 Elektronen.

An dieser Stelle sollte man betonen, daß das Konzept der CSDFT gegenüber einer Hartree-Fock-Rechnung den Vorteil hat, daß Korrelationseffekte nicht gänzlich vernachlässigt werden. Die exponentielle Dämpfung der Austausch-Korrelations-Potentiale im KS-Hamiltonian simulieren Kompensationseffekte zwischen Austausch und Korrelation. In einer nicht-abgeschirmten Hartree-Fock-Rechnung kann dies nicht beschrieben werden. Daher überschätzt diese Methode häufig die Austausch-Energie und sagt Spinpolarisation auch in Situationen voraus, in denen andere Methoden gegenteilige Aussagen machen (Manolescu, 1995¹⁰⁷; Manolescu & Gerhardts, 1995¹⁰⁸; Manolescu & Gerhardts, 1997¹⁰⁹).

3.6 Hochfeld-Bereich

Für die gezeigten kleinen und mittleren Magnetfelder ist der Unterschied zwischen LVSDA und LSDA vernachlässigbar klein. Der Einfluß paramagnetischer Ströme ist also gering, wie auch von Ferconi & Vignale (1994⁴⁸) festgestellt wird. Im hohen Magnetfeld, wenn die besetzten Einteilchen-Niveaus zum untersten Landau-Niveau konvergieren, ist das Additionsspektrum strukturlos. Dies wird bereits über die Experimente von Ashoori et al. (1993⁷) berichtet, in denen noch keine Spineffekte sichtbar sind. Die Autoren führen daher den Verlauf im hohen Magnetfeld auf das nicht-wechselwirkende Einteilchenspektrum $\varepsilon_{nm}^{(0)}$ (3.6) zurück. Unsere Berechnungen zeigen, daß nach vollständiger Polarisation der Spins bei weiterer Erhöhung des Magnetfeldes keine wesentliche Vergrößerung der Austausch-Energie mehr eintritt [wobei wir korrelationsbedingte Energielücken im FQHE-Regime, wie von Price & Das Sarma (1996¹⁴⁵), aber auch von Lubin et al. (1997¹⁰¹) näherungsweise untersucht, nicht berücksichtigen]. Daher kann die Magnetfelddispersion der um das unterste Landau-Niveau konzentrierten Einteilchenenergien nur glatte Änderungen der Gesamtenergie bewirken. Der komplexe Übergang in einen spinpolarisierten Grundzustand ist in Abb. 3.12 noch einmal für $N = 6$ im Detail gezeigt. Mit wachsender Spinpolarisation durchläuft der Grundzustand unterschiedliche Drehimpulsconfigurationen. Die Wechselwirkung führt schließlich zu einer Umsortierung der Drehimpulszustände, so daß Zustände mit hohem Drehimpuls energetisch günstiger werden. Wie bei $B = 8$ T noch ansatzweise sichtbar, führt dies zu einer Destabilisierung des MDD-Zustands, hier mit $M = -15$. Experimentell können die damit verbundenen Knicke in der Additionsenergie mittlerweile klar beobachtet werden (Tokura et al., 1998¹⁷²).

Bei weiterer Erhöhung des Magnetfeldes ereignet sich schließlich eine Umkonfiguration, die als *edge reconstruction* bezeichnet wird und Gegenstand zahlreicher Studien ist. Karlhede et al. (1996⁷⁶) haben beispielsweise mittels Hartree-Fock-Rechnungen das Entstehen von Spin-Texturen entlang eines semi-infiniten 2DEG (begrenzt durch eine kastenförmige positive Hintergrundladungsverteilung mit einer abgeschrägten Randflanke) untersucht. Diese Phänomene werden durch Wellenfunktionen der Gestalt

$$|k\rangle = \prod_p (u_p c_{p\uparrow}^\dagger + v_p c_{p+k\downarrow}^\dagger) |0\rangle \quad (3.18)$$

beschrieben. $|p\sigma\rangle$ sind hier die Eigenfunktionen für das homogene 2DEG und liegen im untersten Landau-Niveau; dabei wurde die Landau-Eichung mit einem Vektorpotential senkrecht zum Rand gewählt, so daß die Eigenfunktionen entlang des Randes ebene Wellen mit Impuls $p\hbar$ darstellen. Der Wellenvektor k wird so gewählt, daß er die Gesamtenergie minimiert. Während im Inneren des spinpolarisierten Systems $u_p \rightarrow 1$ gilt, können am Rand „skyrmionische“ Spintexturen (Sondhi et al., 1993¹⁶²) auftreten. In einem weichen Confinement mit breiter Randflanke wird bei zunehmendem Magnetfeld und schwacher Zeeman-Aufspaltung die Ausbildung spintexturierter Randzonen energetisch begünstigt, bevor eine polarisierte Rekonstruktion geschieht, wie sie unsere Rechnungen für Quantenpunkte liefern (siehe Abb. 3.13).

Bei Randrekonstruktionen von Wenig-Elektronen-Quantenpunkten handelt es sich eigentlich um keinen Randeﬀekt im engeren Sinn, sondern um einen Prozeß, der auch den inneren Teil der Grundzustandsdichte stark beeinflußt. Ausgehend vom MDD-

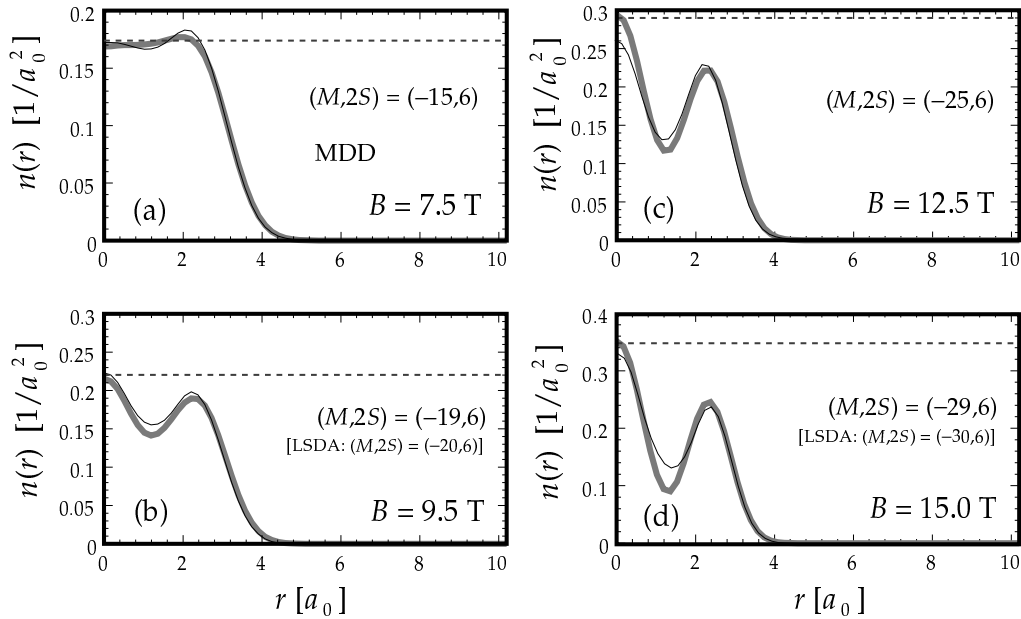


ABBILDUNG 3.13: Randrekonstruktion durch Änderung des Grundzustandsdrehimpulses für $N = 6$ und $\hbar\omega_0 = 5 \text{ meV}$ ($a_0 = 9.794 \text{ nm}$, GaAs). (a) MDD-Konfiguration bei $B = 7.5 \text{ T}$. (b–d) Ausbildung von Seitenmaxima im Dichteprofil durch Randzustände mit hohem Drehimpuls (LVSDA —, LSDA —). Die gestrichelte Linie markiert die Dichte, die einem Füllfaktor $\nu = 1$ im externen Magnetfeld entspricht.

Dichteprofil, das einer *bulk*-artigen Dichte am nächsten liegt, entstehen Rekonstruktionen sowohl unterhalb eines kritischen Magnetfeldes (begleitet von den Strukturen, die im Zusammenhang mit den experimentellen Additionsspektren diskutiert wurden) als auch für höhere Magnetfelder.

Wir drücken die Stärke des Einschlußpotentials relativ zur Wechselwirkungsenergie $e^2/(\kappa\ell_B)$ aus durch den Parameter

$$\alpha_0 = \frac{m^*\omega_0^2\ell_B^2}{e^2/(\kappa\ell_B)} = \frac{1}{4} \left(\frac{\hbar\omega_0}{\text{Ry}} \right)^2 \left(\frac{\ell_B}{a_0} \right)^3, \quad (3.19)$$

wobei $\ell_B = \sqrt{\hbar c/(eB)}$; a_0 ist der effektive Bohrsche Radius im Material und $\text{Ry} = \hbar^2/(2ma_0^2)$. Chamon & Wen (1994²⁷) haben im Rahmen der Hartree-Fock-Näherung gezeigt, daß das Wechselspiel zwischen der langreichweitigen direkten und der kurzreichweitigen Austausch-Wechselwirkung ein Fenster für α_0 festlegt, in welchem der kompakte spinpolarisierte MDD-Zustand stabil ist. (Eine Verringerung von α_0 bedeutet ein schwächeres Confinement oder ein höheres Magnetfeld.) Sie schätzen die minimale Stärke des Einschlußpotentials, die zur Aufrechterhaltung der MDD-Konfiguration nötig ist, ab, indem das radiale elektrische Feld aufgrund der elektrostatischen Abstoßung der Elektronen, $E_r \sim [e/(\kappa\ell_B^2)] \ln(R/\lambda)$, gleichgesetzt wird mit dem Feld des externen Potentials $E_r = -[e/(\kappa\ell_B^2)] \alpha_0 R/\ell_B$. Dabei ist R der Radius des kompakten „Dichte-Tröpfchens“ und λ eine Abschneidelänge, die aus

numerischen Rechnungen für $N = 20$ bis 70 bestimmt wurde. Durch Anpassung an Ergebnisse in Hartree-Näherung erhält man²⁷

$$\alpha_0^{\min} \sim N^{-1/2} \ln \left(\frac{N}{\lambda^2 / (2\ell_B^2)} \right) \quad \rightarrow \quad \alpha_0^{\min} = 0.118 N^{-1/2} \ln \left(\frac{N}{0.16} \right), \quad (3.20)$$

unterhalb dessen es aus elektrostatischen Gründen für das System günstiger ist, die MDD-Konfiguration zugunsten einer Konfiguration mit höherem Drehimpuls aufzugeben. Die attraktive Austausch-Wechselwirkung führt zu einer ähnlichen funktionalen Abhängigkeit, allerdings mit den numerischen Konstanten 0.083 und 0.21 , die insgesamt einen kleineren Wert für α_0^{\min} ergeben.

Die obere Grenze α_0^{\max} folgt aus einer Abschätzung des Energiegewinns, wenn ein Teilchen vom Rand in die Mitte des Quantenpunkts umgesetzt wird. Dieser beträgt nach Chamon & Wen (1994²⁷) $\Delta E = [e^2 / (\kappa \ell_B)] [\alpha_0 N - \sqrt{2N}(\pi - 2) / \pi]$. Er muß kleiner sein als die effektive Zeeman-Aufspaltung zwischen den Spinrichtungen ΔE_{Zeeman} . Anderenfalls gelangt man in ein Regime, in welchem die paarweise Besetzung einiger orbitaler Zustände favorisiert wird und die vollständige Spinpolarisation zusammenbricht. Aus dem Einteilchenspektrum in Abb. 3.12 schätzen wir diese für $N = 6$ auf etwa 5 meV . Damit erhält man

$$\alpha_0^{\max} = \frac{\pi - 2}{\pi} \sqrt{2} N^{-1/2} + \frac{\Delta E_{\text{Zeeman}}}{e^2 / (\kappa \ell_B)} / N = 0.21 + 0.07 \frac{\ell_B}{a_0}. \quad (3.21)$$

Vergleichen wir das Fenster für α_0 mit unseren Rechnungen, indem wir in Gl. (3.21) $\ell_B / a_0 \approx 1.14$ (dem Wert für $B = 5 \text{ T}$) setzen, finden wir für $\hbar\omega_0 = 5 \text{ meV}$

$$0.114 \leq \alpha_0 \leq 0.29 \quad (3.22)$$

oder

$$0.86 \leq \left(\frac{\ell_B}{a_0} \right) \leq 1.18. \quad (3.23)$$

Damit erhalten wir für den Bereich des MDD-Zustands: $4.8 \text{ T} \leq B \leq 9.1 \text{ T}$, was innerhalb der numerischen Fehlergrenzen von etwa 10% recht gut mit Abb. 3.12 und dem Beginn der *edge reconstruction* in Abb. 3.13 übereinstimmt.

Austausch-Korrelation bewirkt als attraktive Wechselwirkung eine Dichteverteilung, die möglichst nahe bei einem lokalen Füllfaktor $\nu = n(r) 2\pi \ell_B^2 = 1$ liegt. Bei vollständiger Entkopplung der Landau-Niveaus im Hochfeldlimites ist dies die maximale Dichte, die durch spinpolarisierte Besetzung von Zuständen $(0, m)$, $m \leq 0$, des untersten Landau-Niveaus realisiert werden kann. Auf diese Weise wird die lokale Austausch-Wechselwirkung maximiert, was im MDD-Zustand durch Wahl der Konfiguration mit minimalem Drehimpuls geschieht. Um die direkte, langreichweitige elektrostatische Coulomb-Wechselwirkung zu minimieren, wird es bei ausreichend hohem Magnetfeld energetisch vorteilhafter, die Ladungsdichte in Blöcke zu zerlegen, die weit auseinander liegen, was die Besetzung höherer Drehimpulszustände erfordert. Dies beschreibt anschaulich die Destabilisierung der MDD-Konfiguration, wie in Abb. 3.13 zu beobachten.

Aufgrund der ganzzahligen Besetzung von Einteilchenzuständen $(0, m)$ in einem Hartree-Fock- oder Dichtefunktional-Ansatz mit einfachen Slater-Determinanten zur Beschreibung der Grundzustandsdichte kann diese nur auf der Skala von 2 bis $4 \ell_B$ von $\nu = 1$ auf $\nu = 0$ abfallen, bestimmt durch die Lokalisierungslängen der Wellenfunktionen. Eine rein elektrostatische Beschreibung von Randzuständen durch Chklovskii et al. (1992³¹) kommt jedoch zu dem Schluß, daß der Randbereich eines 2DEG durch eine Abfolge von *compressible* und *incompressible strips* (ν gebrochenzahlig bzw. ν ganzzahlig) gekennzeichnet ist. In den kompressiblen Streifen ist das Landau-Niveau an der Fermi-Kante nur teilweise besetzt, und die Elektronen können sich so verteilen, daß das lokale elektrische Feld verschwindet. In den inkompressiblen Gebieten mit ganzzahligem Füllfaktor ist die Elektronendichte fixiert und das äußere Feld wird überhaupt nicht abgeschirmt. Eine solche Dichteverteilung mit Plateaus und breiten kompressiblen Streifen, in denen sich die Dichte auf der Skala von vielen magnetischen Längen verändert, kann im Hochfeldlimit nur durch *partielle* Besetzung der Einteilchenzustände $(0, m)$ beschrieben werden; sie ist also – in der Terminologie der Dichtefunktionaltheorie – nicht mehr *non-interacting pure-state v-representable* (Dreizler & Gross, 1990⁴¹). Stoof & Bauer (1995¹⁶⁴) haben für Viel-Elektronen-Quantenpunkte ($N = 40$) die Dichteprofile in einem modifizierten Dichtefunktionalansatz berechnet, der eine glatte Variation der Grundzustandsdichte ermöglicht. Tatsächlich können die Autoren auf diese Art die Ausbildung von breiten kompressiblen Streifen reproduzieren.

Lubin et al. (1997¹⁰¹) lösen das Problem fraktionierter Besetzung im Rahmen der *Ensemble-CSDFT*. In diesem Konzept wird die Grundzustandsdichte $n(\mathbf{r})$ aus einer Superposition von entarteten Grundzuständen Ψ_i ($i = 1 \dots q$) gebildet:

$$n(\mathbf{r}) = \text{Tr} \{ \hat{D} \hat{n}(\mathbf{r}) \} \quad \text{mit} \quad \hat{D} = \sum_{i=1}^q d_i |\Psi_i\rangle \langle \Psi_i|, \quad (3.24)$$

$d_i = d_i^* \geq 0$, $\sum_i d_i = 1$. Dies ergibt sich aus einer Verallgemeinerung des Hohenberg-Kohn-Theorems für entartete Grundzustände. Im Fall, daß die Einteilchenzustände im Kohn-Sham-Formalismus an der Fermi-Energie ε_F entartet sind, muß die Grundzustandsdichte des wechselwirkenden Systems im allgemeinen aus einer Linearkombination von (entarteten) Slater-Determinanten bestimmt werden, bzw. durch fraktionierte Besetzungszahlen f_α :

$$n(\mathbf{r}) = \sum_{\alpha} f_{\alpha} |\varphi_{\alpha}(\mathbf{r})|^2, \quad \sum_{\alpha} f_{\alpha} = N. \quad (3.25)$$

Generell sind die f_{α} bei ε_F nicht alle identisch, dagegen gilt $f_{\alpha} = 0(1)$ für $\varepsilon_{\alpha} > (<) \varepsilon_F$. Dabei bleibt prinzipiell unbekannt, wie die gebrochenzahligigen Werte zu wählen sind.[¶] Die Verwendung eines Temperatur-abhängigen CSDFT-Ansatzes, bei welchem das Grundzustands-Energiefunktional durch das großkanonische Funktional Ω ersetzt wird (Mermin, 1965¹¹⁶), erlaubt auf natürliche Weise eine partielle Besetzung der Einteilchen-Niveaus entsprechend der Fermi-Verteilungsfunktion

[¶]Lubin et al. (1997¹⁰¹) haben in ihrer Arbeit die fraktionierten Besetzungszahlen aus einem gleitenden Durchschnitt über die Iterationen der KS-Lösungsprozedur berechnet. Das ist zwar praktikabel, es existiert aber keine rigorose Begründung für dieses Vorgehen.

$f(\varepsilon) = (1 + \exp[(\varepsilon - \mu)/(k_B T)])^{-1}$. Dieser Zugang wurde kürzlich von Pi et al. (1998¹³⁵) zur Beschreibung kompressibler und inkompressibler Streifen in Quantenpunkten mit vielen Elektronen ($N \approx 200$) benutzt.

Die Grenzen der *pure-state* CSDFT lassen sich an einem einfachen Beispiel in Form eines axialsymmetrischen Systems mit lokalem Füllfaktor $\nu(r) = n(r)2\pi\ell_B^2 = 1/3$ im Zentrum aufzeigen: Offenbar kann die homogene Ladungsdichte nicht durch eine einzige Slater-Determinante aus Zuständen im untersten Landau-Niveau beschrieben werden. Denn es gilt $n(0) = |\varphi_{00}(0)|^2 = (2\pi\ell_B)^{-1}$ [also $\nu(0) = 1$], falls der Zustand $(n, m) = (0, 0)$ besetzt ist, und $n(0) = 0$ sonst (alle anderen Wellenfunktionen verschwinden bei $r = 0$). Die gewünschte Dichte kann dagegen leicht durch eine Linearkombination der Gestalt

$$|\Psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}} (|\Psi_1\rangle + |\Psi_2\rangle + |\Psi_3\rangle) \quad (3.26)$$

realisiert werden, deren Slater-Determinanten aus den Zuständen $(0, m)$ mit $m \in \{0, -3, -6, \dots\}, \{-1, -4, -7, \dots\}$ bzw. $\{-2, -5, -8, \dots\}$ gebildet sind.

3.7 Gebrochene Zeitumkehrsymmetrie: Korrelationseffekte bei $B = 0$

In diesem Abschnitt befassen wir uns mit der – zunächst spekulativen – Idee spontaner Zeitumkehr-Symmetriebrechung durch die Gegenwart des Austausch-Korrelations-Vektorpotentials A_{xc} . Austausch-Korrelation könnte nicht nur Anlaß geben zu spinpolarisierten Grundzuständen (auch ohne Magnetfeld), sondern zudem die Ausbildung *spontaner Ströme* begünstigen, die die Gesamtenergie des Systems minimieren. Die Existenz solcher stromtragender Grundzustände mit gebrochener Zeitumkehr-Symmetrie (*symmetry-broken current-carrying states, SBCCS*) wird in einer Arbeit von Rasolt & Perrot (1992¹⁴⁸) für zweidimensionale periodische Systeme vorhergesagt, endliche Systeme wie Quantenpunkte wurden bisher aber noch nicht untersucht.

Ausgehend von der radialen KS-Schrödinger-Gleichung für $B = 0$,

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m^*} \left(\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} - \frac{m^2}{r^2} \right) + \frac{1}{2} m^* \omega_0^2 r^2 + m \frac{\hbar e}{m^* c} \frac{A_{xc,\varphi}(r)}{r} + V_H(r) + V_{xc\sigma}(r) \right] \phi_{nm\sigma}(r) = \varepsilon_{nm\sigma} \phi_{nm\sigma}(r) \quad (3.27)$$

mit $\psi_{nm\sigma}(\mathbf{r}) = \phi_{nm\sigma}(r)e^{im\varphi}$, ist eine endliche Stromdichte

$$\mathbf{j}(r) = \mathbf{j}_p(r) = e_\varphi \frac{\hbar}{m^* r} \sum_{\substack{\{nm\sigma\} \\ \text{besetzt}}} m |\phi_{nm\sigma}|^2 \neq 0 \quad (3.28)$$

mit $A_{xc,\varphi}(r) \neq 0$ verknüpft; dadurch wird die Zeitumkehr-Symmetrie des KS-Hamiltonians gebrochen. Er hängt dann nicht nur von m^2 , sondern explizit von m ab. Dies führt zu einer Verzerrung der radialen Wellenfunktionen $\phi_{n\pm m\sigma}(r)$ gegeneinander, die die endliche Stromdichte bewirkt. In der Praxis fixieren wir das Anfangsvektorpotential in symmetrischer Eichung durch ein sehr kleines (infinitesimales) Magnetfeld, dessen Größe keinen Einfluß auf die selbstkonsistente Lösung der KS-Gleichungen hat. Nach einigen Iterationen des Lösungsverfahrens wird dieses

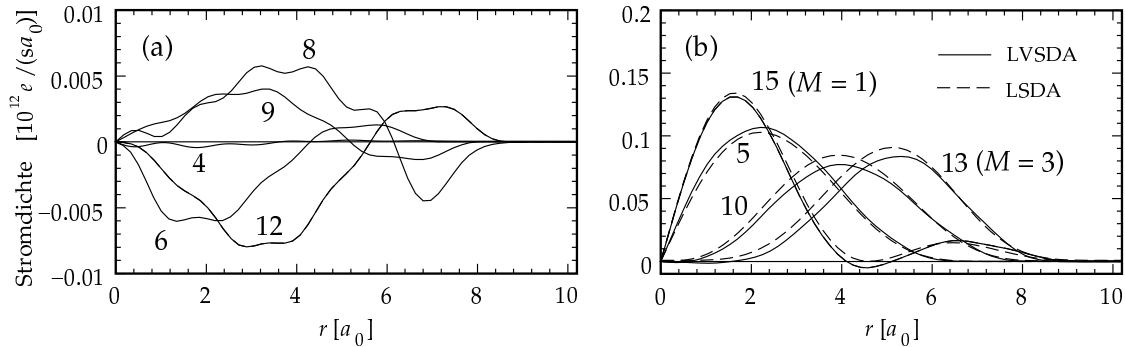


ABBILDUNG 3.14: Radiale Stromdichteprofile $j_p(r)$ für unterschiedliche Elektronenzahlen N . (a) Grundzustände mit $M = 0$ (LSDA: $j_p(r) = 0$). (b) $M \neq 0$ (vgl. Tabelle IV) in LVSDA (—) und LSDA (---). $a_0 = 9.794$ nm ist der effektive Bohrsche Radius in GaAs.

äußere Magnetfeld abgeschaltet. In einigen Fällen konvergiert die selbstkonsistente Lösung dann tatsächlich zu stromtragenden Grundzuständen, selbst wenn der Gesamtdrehimpuls verschwindet.

Die Grundzustandsstromdichten für verschiedene Elektronenzahlen N sind in Abb. 3.14 dargestellt. Um den zugrundeliegenden Mechanismus, der zu den Strömen führt, zu illustrieren, zeigen wir in Abb. 3.15 und 3.16 die effektiven KS-Energieniveaus.

In Grundzuständen mit verschwindendem Gesamtdrehimpuls $|M|\hbar$ [Abb. 3.14 (a)], wenn also alle KS-Niveaus mit endlichen Drehimpulsen $\pm m\hbar$ paarweise besetzt oder leer sind, finden wir Stromprofile, die analog sind zu „Spindichtewellen“ für $S = 0$ -Grundzustände, wie sie von Koskinen et al. (1997⁸⁵) theoretisch postuliert werden (in diesen Fällen ist allerdings die Rotationssymmetrie spontan gebrochen; dagegen haben wir Grundzustände mit Spindichtewellen in *radialer* Richtung bisher nicht erhalten). Durch die Deformation der Wellenfunktionen wird die Entartung der Niveaus $\varepsilon_{n\pm m\sigma}$ aufgehoben, wie in Abb. 3.15 zu sehen ist. Der Betrag der relativen Niveaufverschiebung ist in der Größenordnung von 0.1 bis 1 Prozent von $\hbar\omega_0$ und numerisch signifikant. Grundzustände ohne Drehimpuls sind typisch für die „magischen“ $N = 2, 6, 12$. Andere Beispiele sind $N = 8$ und 9 ; hier besetzen die Elektronen der teilweise gefüllten dritten Schale alle denselben Spinzustand [Abb. 3.15 (b, c)].

Man könnte vermuten, daß der Gesamtstrom der SBCCS mit $M = 0$ verschwindet. Tatsächlich beträgt der Strom in azimuthaler Richtung dagegen etwa 15 nA für $N = 6$. Weitere Zahlenwerte finden sich in Tabelle IV. Interessanterweise erhält man nicht für alle N ausgeprägte Stromtexturen (z.B. $N = 4$).

Wenn der Gesamtdrehimpuls $|M|\hbar$ infolge einer Entartung an der Fermi-Kante endlich ist, erhält man zwei Grundzustände mit entgegengesetzten Drehimpulsen ($\pm M\hbar$), deren Stromdichten im wesentlichen von dem jeweiligen besetzten Einteilchen-Drehimpulszustand an der Fermi-Kante bestimmt werden. In Abb. 3.14 (b) sieht man den Unterschied zwischen der stromunabhängigen SDFT-Rechnung in LSDA und die Korrekturen durch A_{xc} . Es ergeben sich leichte Modifikationen der

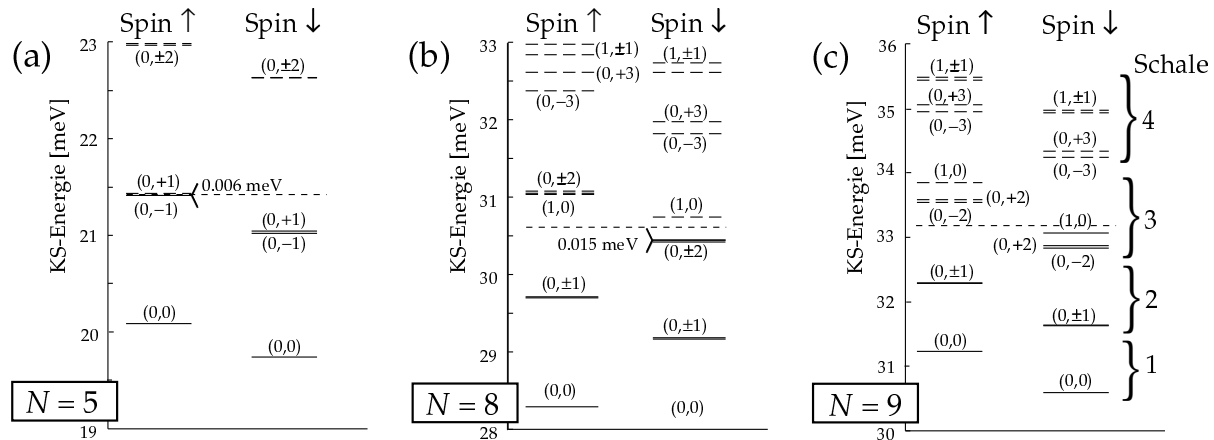


ABBILDUNG 3.15: KS-Niveaus für $N = 5, 8, 9$ bei $B = 0$ mit $\hbar\omega_0 = 3$ meV. Die Fermi-Energie ist gestrichelt eingezeichnet.

Stromdichten, die in der Größenordnung den Strömen für $M = 0$ entsprechen und auch mit Vorzeichenwechseln verbunden sein können ($N = 15$).

Die Gegenwart des Austausch-Korrelations-Vektorpotentials schafft einen Mechanismus, um eine Energielücke zwischen entarteten Drehimpulszuständen $\pm m$ an der Fermi-Kante zu öffnen. Das stabilisiert die SBCCS-Konfiguration. Ein dafür typisches Beispiel ist $N = 5$ in Abb. 3.15 (a) mit einer winzigen Energielücke von $0.006(0)$ meV. Auf ähnliche Weise wird nach Hinzufügen eines Elektrons zu einer bereits halbgefüllten, spinpolarisierten Schale eine Lücke zwischen den verfügbaren $\pm m$ -Zuständen geöffnet, so daß wiederum eine energetische Trennung von besetzten und unbesetzten Zuständen stattfindet. Diese Situation liegt für $N = 10$ vor; hier stabilisiert die Energielücke an der Fermi-Kante eine Konfiguration, in der die KS-Zustände $(n, m, \sigma) + (0, -2, \uparrow)$ besetzt sind, während $(0, +2, \uparrow)$ frei bleibt. In der LSDA-Rechnung ohne A_{xc} bleiben die beiden Zustände entartet. Den Vergleich zwischen LDA, LSDA und LVSDA für diesen Fall zeigt Abb. 3.16.

Es ist wichtig festzuhalten, daß die Symmetriebrechung durch Ströme ein wesentlich schwächerer Effekt ist als der Spin-Austausch-Effekt. Die Korrekturen sind um

N	LDA	LSDA		LVSDA		$(M , 2S)$
4	41.528	41.078	(0.0 μA)	41.078	(1 nA)	(0, 2)
5	61.252	61.160	(0.9 μA)	61.157	(0.9 μA)	(1, 1)
6	83.942	83.942	(0.0 μA)	83.933	(15 nA)	(0, 0)
7	110.854	110.782	(1.4 μA)	110.770	(1.3 μA)	(2, 1)
8	140.344	140.051	(0.0 μA)	140.016	(32 nA)	(0, 2)
9	172.356	171.956	(0.0 μA)	171.947	(13 nA)	(0, 3)
10	206.855	206.655	(1.3 μA)	206.625	(1.2 μA)	(2, 2)

TABELLE IV: Grundzustandsenergien (in meV) für unterschiedliche N in LDA, LSDA und LVSDA (mit numerischen Unsicherheiten von weniger als 0.001 meV). Die letzte Spalte bezeichnet die Grundzustandskonfiguration. Für LSDA und LVSDA ist zusätzlich der integrierte Gesamtstrom angegeben.

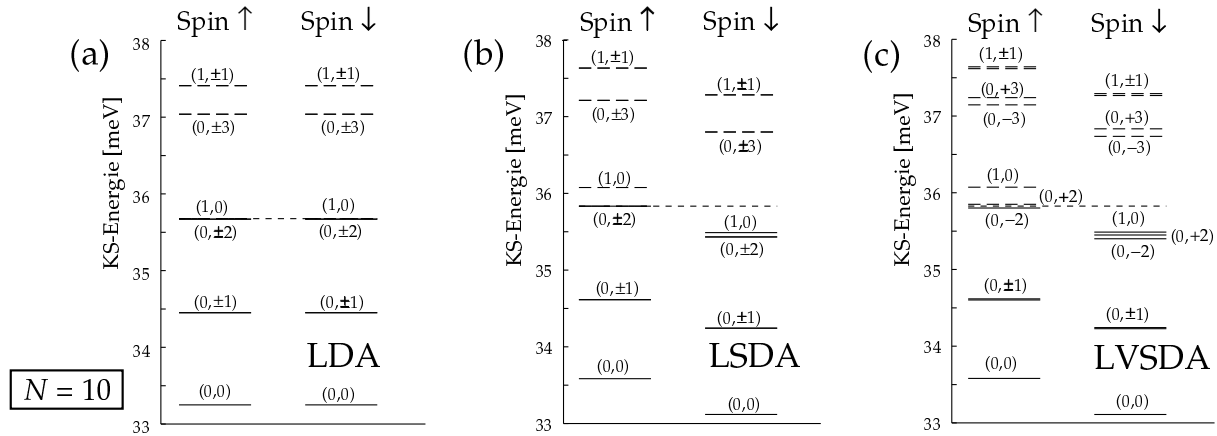


ABBILDUNG 3.16: KS-Niveaus für $N = 10$ in LDA, LSDA und LVSDA bei $B = 0$ mit $\hbar\omega_0 = 3$ meV. Die Fermi-Energie ist gestrichelt eingezeichnet.

Größenordnungen kleiner. Daher bleibt die Hundsche Regel gültig und bestimmt den Gesamtspin des Grundzustandes. Anhand von Abb. 3.15 läßt sich die Hierarchie der Effekte noch einmal zusammenfassen: Die Coulomb-Wechselwirkung bricht die Schalenstruktur des Spektrums auf; dadurch kommt die Energielücke an der Fermi-Kante in (b) zustande. Die Hundsche Regel stabilisiert den Grundzustand in (c), und symmetriebrechende Ströme sorgen für die Lücke im Fall (a).

Die SBCCS werden insbesondere bei tiefen Temperaturen interessant, da sie durch eine Lücke von den angeregten Zuständen getrennt sind. Um eine Orientierung für die Auswirkung auf die Grundzustandsenergie zu erhalten, vergleichen wir diese für die (spinentartete) LDA, LSDA und LVSDA (Tabelle IV). Obwohl der Unterschied von den letzten beiden Näherungen nicht groß ist, erkennt man doch die Tendenz der LVSDA, die Energie weiter zu minimieren. Im Fall $N = 4$ liefern beide Lösungen dieselbe Energie.

Wir haben die CSDFT-Ergebnisse bezüglich der Beschreibung der Magnetfeldabhängigkeit von Austausch und Korrelation durch Testrechnungen mit abgeänderten Interpolationsverfahren sowie unter Verwendung der Parametrisierung (1.61) von Fano & Ortolani (1988⁴⁵) überprüft. Die Resultate sehen zwar quantitativ anders aus (mit Unterschieden im μeV -Bereich für die Grundzustandsenergien), die qualitativen Aussagen reproduzieren sich aber. In allen Fällen finden wir Grundzustände mit verringerter Energie verglichen mit LSDA.

Die Existenz spontaner Ströme für ausgedehnte 2D-Elektronensysteme haben Rasolt & Perrot (1992¹⁴⁸) untersucht. Sie zeigen, daß eine wichtige Voraussetzung für einen Übergang zu SBCCS die *Inhomogenität* des Systems ist. Das Energiefunktional für ein wechselwirkendes System mit homogener Dichte n^0 lautet¹⁴⁸

$$\begin{aligned}
 E[n^0, s(\mathbf{r}), \mathbf{j}_p] &= T_s[n^0, s(\mathbf{r}), \mathbf{j}_p] + E_{xc}[n^0, s(\mathbf{r}), \mathbf{j}_p] \\
 &= \frac{1}{2} \int d^2r d^2r' \\
 &\quad \left[s(\mathbf{r}) \tilde{\chi}_P(\mathbf{r} - \mathbf{r}') s(\mathbf{r}') + v(\mathbf{r}) \tilde{\chi}_L(\mathbf{r} - \mathbf{r}') v(\mathbf{r}') + \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \frac{1}{2} \frac{m}{\hbar^0} |\mathbf{j}_p(\mathbf{r})|^2 \right]. \quad (3.29)
 \end{aligned}$$

Dabei wurde der Hartree-Beitrag weggelassen, der zur Erhaltung der Ladungsneutralität von einer positiven, homogen verteilten Hintergrundladung kompensiert werde. $v(\mathbf{r})$ bezeichnet die Vortizität, gegeben durch die planare Stromverteilung. Die Größen $\tilde{\chi}_{P/L}$ sind mit der inversen Pauli- bzw. Landau-Suszeptibilität $\chi_{P/L}$ verknüpft, aus denen sich die Spin- und orbitale Magnetisierung bei Anlegen eines Magnetfeldes in linearer Näherung bestimmt. Ein Phasenübergang zweiter Ordnung, wie er durch diese Gleichung beschrieben wird, zu einem symmetriegebrochenen Zustand erfordert $s(\mathbf{q})^2 \tilde{\chi}_P(\mathbf{q}) < 0$ zur Ausbildung von Spindichtewellen bzw. $v(\mathbf{q})^2 \tilde{\chi}_L(\mathbf{q}) + \frac{1}{2}(m/n^0) |j_p(\mathbf{q})|^2 < 0$ zur Bildung eines SBCCS. Offensichtlich kann die letzte Bedingung nur durch eine stark inhomogene Stromverteilung erfüllt werden. Wie von Rasolt & Perrot (1992¹⁴⁸) numerisch gezeigt wird, bilden sich stabile spontane Ströme schließlich erst bei hinreichend inhomogener Ladungsdichte aus. Durch die Inhomogenität des Systems spielen die Details (z.B. Kuppen) der Austausch-Korrelations-Energie für das homogene 2DEG keine Rolle. Dies rechtfertigt die glatte Interpolation, die in dieser Arbeit als auch bei Rasolt et al. Anwendung fand.

Eine Studie von Ebert et al. (1997⁴²), die sich mit spontanem orbitalen Magnetismus in dreidimensionalen Festkörpern befaßt, kommt zu dem Schluß, daß A_{xc} allein einen orbitalen Strom nicht aufrechterhalten kann. Erst unter Hinzunahme von Spin-Bahn-Kopplung kann der *orbitale* Magnetismus von Eisen, Nickel und Kobalt erklärt werden. Offenbar besteht hierin ein wesentlicher Unterschied zwischen zwei und drei Dimensionen (eine Bemerkung dazu findet man schon bei Rasolt & Perrot, 1992¹⁴⁸).

Schließlich wenden wir uns noch der Frage der Stabilität der SBCCS zu. Die kritischen Faktoren in einem Experiment zur Beobachtung von spontanen Strömen stellen Temperatur und Unordnung in dem System dar. Die Magnetisierung mesoskopischer Ringe wurde bei endlichem Magnetfeld im mK-Bereich untersucht. Sie äußert sich in *persistent currents* von einigen Nano-Ampère, die tatsächlich gemessen werden können (Chandrasekhar et al., 1991²⁸). In der Arbeit von Mailly et al. (1993¹⁰⁵) wird sogar über Strommessungen an einem einzelnen Quantenring mit einer Genauigkeit von 4 ± 2 nA berichtet. Wie wir aus Tabelle IV ersehen, beträgt der energetische Abstand zwischen dem stromtragenden LVSDA- und dem stromlosen LSDA-Grundzustand für $N = 8$ ca. 0.035 meV, was etwa der thermischen Verbreiterung $k_B T$ bei $T = 0.4$ K entspricht. In einem realistischen System beeinflussen außerdem Verunreinigungen die tatsächliche Abfolge der effektiven Einteilchenniveaus. Es spricht aber nichts gegen eine spontane Magnetisierung infolge der hier diskutierten Mechanismen. Zur Messung von SBCCS ist also vor allem eine niedrige Temperatur und eine verlässliche Präparation von Quantenpunkten mit exakt einstellbarer Elektronenzahl vonnöten. Entsprechende experimentelle Ansätze auf der Basis von selbstorganisierten Quantenpunkten sind heute schon ziemlich erfolversprechend (Miller et al., 1997¹¹⁹).

Ein spontaner Symmetriebruch geschieht in realen Systemen immer durch eine äußere Störung, die aus der Menge der – im ungestörten System entarteten – Grundzustände einen speziellen auszeichnet. Der Bruch der Zeitumkehr-Symmetrie kann experimentell durch ein endliches Magnetfeld ausgelöst werden. Wenn der so präparierte, stromtragende Grundzustand $|I\rangle$ nicht ohne weiteres in den zeitinvertierten Zustand $|-I\rangle$ übergehen kann, verharrt das System nach Abschalten des Magnetfeldes in diesem Zustand. Eine Überlagerung der entarteten Zustände $|\pm I\rangle$ in der Gestalt $(|I\rangle \pm |-I\rangle)/\sqrt{2}$, deren Gesamtstrom verschwindet, ist dann ausgeschlossen. (Auf

analoge Weise kann auch ein Zustand mit Spin $S = 1$ in z -Richtung bei $B = 0$ erzeugt werden, wie ihn die Hundsche Regel z.B. für $N = 4$ vorhersagt.) Wird das Magnetfeld schließlich weiter abgesenkt, also im Vorzeichen umgekehrt, sollte man im Experiment einen Hysterese-Effekt beobachten, dessen „Koerzitiv-Feldstärke“ von der energetischen Aufspaltung der beiden Zustände $|\pm I\rangle$ im endlichen Magnetfeld abhängt.

In diesem Sinne erlaubt die CSDFT einen Einblick in die innere Struktur des Systems, wie sie im Rahmen einer exakten Diagonalisierung allgemein durch *Korrelationsfunktionen* beschrieben wird. Durch Betrachten des Grenzfalles $B \rightarrow 0$ (anstelle $B = 0$) könnte in einer exakten Diagonalisierung unabhängig von der verwendeten Vielteilchen-Basis ein Grundzustand ermittelt werden, der Spin- und Stromdichten aufweist, die den CSDFT-Ergebnissen entsprechen.

KAPITEL 4

Theorie der inelastischen Lichtstreuung in Halbleitern

Inelastische Lichtstreuung an elektronischen Anregungen ist eine sehr erfolgreiche Methode, um bewegliche Ladungsträger im Leitungsband von Halbleitern zu untersuchen. Nach ersten Experimenten an Volumenmaterial durch Mooradian (1968¹²⁰) wurde von Burstein et al. (1979²⁰) erstmals die Untersuchung zweidimensionaler Elektronensysteme vorgeschlagen. Kurz darauf wurde bereits über die ersten Experimente an 2DEG berichtet (Abstreiter & Ploog, 1979³, Pinczuk et al., 1979¹⁴⁰). Mittlerweile gibt es eine Vielzahl an Experimenten, die der Aufklärung kollektiver Phänomene in niedrigdimensionalen Systemen gewidmet sind.

Bei der inelastischen Lichtstreuung (oder Raman-Streuung) wird nach Absorption eines Lichtquants ein Elektron-Loch-Paar zwischen Valenz- und Leitungsband erzeugt, das an kollektiven Anregungen des Elektronensystems streuen kann und schließlich rekombiniert, wobei die dabei freiwerdende Energie als zweites, gestreutes Photon emittiert wird. Der Vorteil einer Interband-Anregung besteht darin, daß die Energien der beteiligten Photonen in der Größenordnung der fundamentalen Bandlücke des Halbleiters liegen und im Fall einer Rückstreugeometrie variable Impulse auf das Elektronensystem übertragen werden. Zudem begünstigt die *resonante Lichtstreuung* eine Erhöhung des Streuquerschnitts, so daß die Raman-Spektroskopie an mesoskopischen Systemen überhaupt erst möglich wird.

Nach ursprünglichen Überlegungen von Hamilton & McWorther (1969⁶²) und deren Übertragung auf zweidimensionale Elektronensysteme an Halbleitergrenzflächen oder in Übergittern durch Burstein et al. (1980²¹), lassen sich zwei dominante Streumechanismen unterscheiden, die zu *Einteilchen-Anregungen* (SPE) mit und ohne Spinflip sowie zu kollektiven *Ladungsdichteanregungen* (CDE) führen; die Mechanismen werden als Zwei-Stufen- bzw. Drei-Stufen-Prozeß bezeichnet (siehe Abb. 4.1). In 2DEG-Experimenten von Pinczuk et al. (1989¹³⁹) und von Gammon et al. (1990⁵¹) werden schließlich *Spindichteanregungen* (SDE) beobachtet, die bezogen auf die SPE zu kleineren Energien verschoben liegen. Dies wird auf Austausch-Effekte zurückgeführt, die in einer RPA-Behandlung nicht erfaßt werden. Wie bereits von Hamilton & McWor-

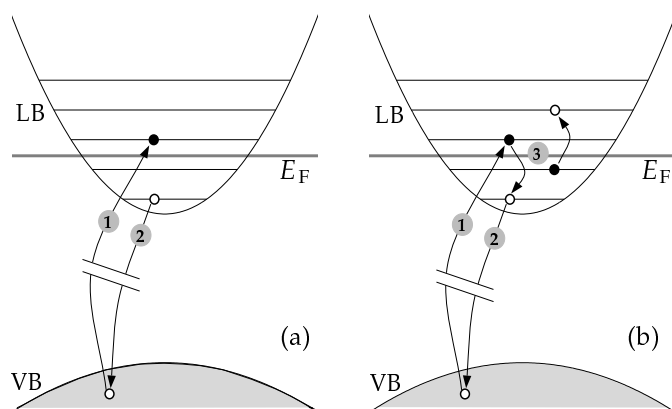


ABBILDUNG 4.1: (a) Zwei-Stufen-Prozess für inelastische Lichtstreuung an SPE (schematisch): Ein Elektron wird aus einem Valenzzustand ins Leitungsband (LB) – hier bestehend aus den diskreten Niveaus eines Quantenpunkt-Systems – angehoben (1). Ein energetisch niedrigerer, besetzter Zustand wird geleert, um mit dem Loch im Valenzband (VB) zu rekombinieren (2). Bei diesem Vorgang kann aufgrund der Spin-Bahn-Wechselwirkung, die die Spinzustände im Valenzband mischt, der Spin des Elektrons im Leitungsband erhalten oder invertiert werden. (b) Drei-Stufen-Prozess (abgeschirmte, kollektive Anregungen): Die ersten beiden Schritte entsprechen Prozess (a), allerdings rekombiniert das Elektron über der Fermi-Energie im letzten Schritt mit dem in der zweiten Stufe entstandenen Loch. Die Anregungsenergie wird durch die Coulomb-Wechselwirkung an das Gesamtsystem weitergegeben, dargestellt durch eine zusätzliche Teilchen-Loch-Anregung (3). Ohne Austausch-Korrelation kann dieser Prozess nicht zu Spinflip-Anregungen führen. (Nach Burstein et al., 1980²¹)

ther (1969⁶²) für Kristalle mit Zinkblendestruktur abgeleitet wird, sind diese Anregungsphänomene durch Auswahlregeln unterscheidbar. Sie lassen durch geeignete Wahl der Polarisationsrichtungen von einfallendem und detektiertem Licht eine selektive Untersuchung von SDE bzw. CDE zu. Damit stellt die inelastische Lichtstreuung ein vielseitiges Verfahren zur Bestimmung der komplexen Eigenschaften eines wechselwirkenden Systems dar. Jüngere Experimente an Quantendrähten (Schmeller et al., 1994¹⁵³) und Quantenpunkten (Schüller et al., 1996¹⁵⁴) zeigen, daß neben den kollektiven Anregungen in der Situation extrem resonanter Raman-Streuung auch polarisationsunabhängige, unabgeschirmte SPE beobachtbar sind.

Wie sich in diesem und dem nächsten Kapitel zeigen wird, hängt die Natur der kollektiven Anregungen auch wesentlich von der Spinkonfiguration des Grundzustandes ab. Vor der Diskussion konkreter Ergebnisse für Quantenpunkte möchten wir hier zunächst die theoretische Beschreibung von inelastischer Lichtstreuung skizzieren. Hier halten wir uns hauptsächlich an eine Arbeit von Blum (1970¹⁵), der den Streuquerschnitt in Gegenwart eines endlichen Magnetfeldes behandelt, sowie an den Artikel von Hamilton & McWorther (1969⁶²). Grundlagen zur Wechselwirkung von Licht und Materie findet man auch bei Jha (1969⁷²), Platzman & Wolff (1973¹⁴²) oder Klein (1975⁸⁰).

4.1 Zeitabhängige Störungstheorie

Wir beginnen mit einem Einteilchen-Hamilton-Operator ohne Strahlungsfeld, der ein skalares Potential $V_{\text{tot}}(\mathbf{r})$ und ein externes, statisches Vektorpotential $\mathbf{A}_0(\mathbf{r})$ enthält (den Zeeman-Term $g\mu_B \mathbf{B} \cdot \boldsymbol{\sigma}$ lassen wir zunächst weg):

$$H_0^{(i)} = \frac{1}{2m} \left[\mathbf{p}_i - \frac{e}{c} \mathbf{A}_0(\mathbf{r}_i) \right]^2 + V_{\text{tot}}(\mathbf{r}_i) + \frac{\hbar}{2m^2 c^2} \left[\mathbf{p}_i - \frac{e}{c} \mathbf{A}_0(\mathbf{r}_i) \right] \cdot [\boldsymbol{\sigma}_i \times \nabla V_{\text{tot}}(\mathbf{r}_i)]. \quad (4.1)$$

Der letzte Ausdruck stellt den Spin-Bahn-Wechselwirkungsterm dar. $V_{\text{tot}}(\mathbf{r})$ wird später die Summe von einem Kristallpotential $U(\mathbf{r})$ und einer Nanostrukturierung $V(\mathbf{r})$ sein.

Ein Strahlungsfeld $\mathbf{A}_\omega(\mathbf{r}, t)$ führt auf den erweiterten Hamiltonian:

$$\begin{aligned} H^{(i)} &= H_0^{(i)} + \frac{e^2}{2mc^2} \mathbf{A}_\omega^2(\mathbf{r}_i, t) - \frac{1}{m} \left[\mathbf{p}_i - \frac{e}{c} \mathbf{A}_0(\mathbf{r}_i) \right] \cdot \frac{e}{c} \mathbf{A}_\omega(\mathbf{r}_i, t) \\ &\quad - \frac{\hbar}{2m^2 c^2} \frac{e}{c} \mathbf{A}_\omega(\mathbf{r}_i, t) \cdot [\boldsymbol{\sigma}_i \times \nabla V_{\text{tot}}(\mathbf{r}_i)] \\ &= H_0^{(i)} + \frac{e^2}{2mc^2} \mathbf{A}_\omega^2(\mathbf{r}_i, t) - \frac{e}{mc} \left[\boldsymbol{\pi}_i - \frac{e}{c} \mathbf{A}_0(\mathbf{r}_i) \right] \cdot \mathbf{A}_\omega(\mathbf{r}_i, t) \\ &= H_0^{(i)} + H_1^{(i)}, \end{aligned} \quad (4.2)$$

wobei $\boldsymbol{\pi} = \mathbf{p} + \hbar \boldsymbol{\sigma} \times \nabla V_{\text{tot}}(\mathbf{r}) / (2mc^2)$. $H_1^{(i)}$ ist der Elektron-Photon-Wechselwirkungsoperator mit

$$\mathbf{A}_\omega(\mathbf{r}, t) = \sum_{k,\nu} \mathcal{N}_k (a_{k\nu} \boldsymbol{\varepsilon}_{k\nu} e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega_k t)} + \text{h.c.}), \quad \mathcal{N}_k = \sqrt{\frac{2\pi \hbar c}{kV}}. \quad (4.3)$$

$\boldsymbol{\varepsilon}_{k\nu}$ ($\nu = 1, 2$) sind die beiden Polarisationsrichtungen senkrecht zu \mathbf{k} . Die Zeitabhängigkeit des Operators \mathbf{A}_ω wurde hier im Heisenberg-Bild bezüglich des Photonen-Hamiltonians $H_\omega = \sum_{k,\nu} \hbar \omega_k a_{k\nu}^\dagger a_{k\nu}$ angegeben.* In Erzeuger-Vernichter-Darstellung lautet $H_1 = \sum_{i=1}^N H_1^{(i)}$:

$$H_1 = \sum_{\alpha,\beta} \frac{e^2}{2mc^2} \langle \alpha | \mathbf{A}_\omega^2(\mathbf{r}, t) | \beta \rangle c_\alpha^\dagger c_\beta - \sum_{\alpha,\beta} \frac{e}{mc} \langle \alpha | \left[\boldsymbol{\pi} - \frac{e}{c} \mathbf{A}_0(\mathbf{r}) \right] \cdot \mathbf{A}_\omega(\mathbf{r}, t) | \beta \rangle c_\alpha^\dagger c_\beta. \quad (4.4)$$

Hier bezeichnen $|\alpha\rangle, |\beta\rangle$ einen vollständigen Satz von elektronischen Einteilchenzuständen.

Wir führen nun eine *zeitabhängige Störungsrechnung* für das Vielteilchensystem $H_0 + H_\omega = \sum_i H_0^{(i)} + W + H_\omega$ (mit Coulomb-Wechselwirkung W) bezüglich des Störoperators H_1 durch. Zur Zeit $t = 0$ sei das Gesamtsystem im Eigenzustand $|\tilde{I}\rangle \equiv |I, (\mathbf{k}_I, \boldsymbol{\varepsilon}_I)\rangle$ mit einem Photon $(\mathbf{k}_I, \boldsymbol{\varepsilon}_I)$ und der Energie $E_{\tilde{I}} = E_I + \hbar \omega_I$, d.h. $H_0 |\tilde{I}\rangle = E_{\tilde{I}} |\tilde{I}\rangle$. Aus dem Überlapp des zeitentwickelten Ausgangszustands mit $|\tilde{F}(t)\rangle \equiv |F, (\mathbf{k}_S, \boldsymbol{\varepsilon}_S)(t)\rangle =$

*Die Nullpunktsenergie $\frac{1}{2} \sum_{k,\nu} \hbar \omega_k$ haben wir zur einfacheren Notation als neuen Energienullpunkt gewählt.

$e^{-iH_0t/\hbar}|F, (\mathbf{k}_S, \boldsymbol{\varepsilon}_S)\rangle$, dessen Energie $E_{\tilde{F}} = E_F + \hbar\omega_S$ beträgt, erhält man bis zur zweiten Ordnung in H_1 die Übergangsrate

$$W_{FI} \equiv \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{d}{dt} |c_{FI}(t)|^2 = \frac{2\pi}{\hbar} \delta(E_F - E_I - \hbar\omega) \left| \langle \tilde{F} | H_1 | \tilde{I} \rangle + \sum_{\tilde{i}} \frac{\langle \tilde{F} | H_1 | \tilde{i} \rangle \langle \tilde{i} | H_1 | \tilde{I} \rangle}{E_{\tilde{I}} - E_{\tilde{i}}} \right|^2. \quad (4.5)$$

Dabei bezeichnet $\hbar\omega = \hbar\omega_I - \hbar\omega_S$ den Unterschied zwischen eingestrahelter und detektierter Photonenenergie, der als *Raman-Verschiebung* bezeichnet wird.

Wie in Anhang A ausführlicher beschrieben, liefert nur der A_ω^2 -Term in H_1 nichtverschwindende Korrekturen in erster Ordnung. Bei der Berechnung des Terms zweiter Ordnung vernachlässigen wir die aus A_ω^2 resultierenden Beiträge, da sie mehr als zwei Photonen involvieren (also Terme, die die Erzeugung und Vernichtung von weiteren, virtuellen Photonen beinhalten).

Die Übergangsrate ist dann nach Einsetzen der Konstanten $\mathcal{N}_{I/S}$ (Blum, 1970¹⁵)

$$W_{FI} = \left(\frac{e^2}{mc^2} \right)^2 \frac{2\pi}{\hbar} \delta(E_F - E_I - \hbar\omega) |M_{FI}|^2 \left(\frac{2\pi\hbar c^2}{V} \right)^2 \frac{1}{\omega_I \omega_S} \quad (4.6)$$

mit dem Matricelement

$$\begin{aligned} M_{FI} &= \boldsymbol{\varepsilon}_I \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_S \sum_{\alpha, \beta} \langle \alpha | e^{iq \cdot \mathbf{r}} | \beta \rangle \langle F | c_\alpha^\dagger c_{\alpha'} | I \rangle \\ &+ \frac{1}{m} \sum_i \sum_{\substack{\alpha, \alpha' \\ \beta, \beta'}} \langle \alpha | \mathbf{j}_I | \alpha' \rangle \langle \beta | \mathbf{j}_S | \beta' \rangle \left(\frac{\langle F | c_\alpha^\dagger c_{\alpha'} | i \rangle \langle i | c_\beta^\dagger c_{\beta'} | I \rangle}{E_I - E_i - \hbar\omega_S} + \frac{\langle F | c_\beta^\dagger c_{\beta'} | i \rangle \langle i | c_\alpha^\dagger c_{\alpha'} | I \rangle}{E_I - E_i + \hbar\omega_I} \right), \end{aligned} \quad (4.7)$$

wobei

$$\left\{ \begin{array}{c} \mathbf{j}_I \\ \mathbf{j}_S \end{array} \right\} = \left\{ \begin{array}{c} \boldsymbol{\varepsilon}_I \\ \boldsymbol{\varepsilon}_S \end{array} \right\} \cdot \left(\boldsymbol{\pi} - \frac{e}{c} \mathbf{A}_0(\mathbf{r}) \right) \exp \left(i \left\{ \begin{array}{c} \mathbf{k}_I \\ -\mathbf{k}_S \end{array} \right\} \cdot \mathbf{r} \right). \quad (4.8)$$

Die Zustände $|I\rangle$, $|F\rangle$ und $|i\rangle$ sind Vielteilchen-Eigenzustände des ungestörten, wechselwirkenden Elektronensystems H_0 (ohne Lichtfeld). Die mit griechischen Buchstaben bezeichneten Einteilchenzustände $|\alpha\rangle$ seien im folgenden die Eigenzustände des nichtwechselwirkenden Hamiltonians (4.1), der auch ein Kohn-Sham-Hamiltonian mit effektiven Einteilchenpotentialen sein kann, zum Eigenwert E_α .

Wir betrachten nun konkret ein Halbleitersystem mit Valenz- und Leitungsbandern, die durch eine Energielücke getrennt sind. Ein eventuelles Strukturierungspotential wird dabei als kleine Störung der Bandstruktur betrachtet (im Sinne der Enveloppenfunktionsnäherung). Unter der Annahme, daß sich Anfangs- und Endzustand von den Zwischenzuständen $|i\rangle$ nur jeweils um eine Einteilchen-Anregung unterscheiden (also etwa $|i\rangle = c_\alpha^\dagger c_{\alpha'} | I \rangle$), kann man die Energiedifferenz $E_I - E_i$ in den beiden Nennern approximieren durch $E_{\beta'} - E_\beta$ bzw. $E_{\alpha'} - E_\alpha$ (das bedeutet, wir vernachlässigen die Coulomb-Wechselwirkung bei der Berechnung der Energienenner). Dann wird der numerische Ausdruck in der Summe unabhängig von i und die Summe $\sum_i |i\rangle \langle i|$ läßt sich als Identitätsoperator herausstreichen. Sei ferner $\omega_S \approx \omega_I$. Nimmt man außerdem

an, daß $\hbar\omega_I$ viel größer ist als die Intra-Band-Anregungsenergien ($E_{\beta'} - E_\beta$ für β, β' im gleichen Band), so folgt, daß nur Inter-Band-Anregungen zwischen Anfangs- bzw. Endzustand und den Zwischenzuständen einen wesentlichen Beitrag leisten; für Lichtstreuung an *Einteilchen-Anregungen* (SPE) innerhalb eines einzigen teilweise besetzten Bandes – hier das Leitungsband (LB) – muß der Vernichtungsoperator vor $|I\rangle$ daher einen *Valenzbandzustand* löschen, weil nur im Leitungsband ein Zustand neu besetzt werden kann. Analoges gilt für den Übergang $|i\rangle \rightarrow |F\rangle$, wenn $|F\rangle$ ebenfalls ein voll besetztes Valenzband (VB) hat. Damit vereinfacht sich der Ausdruck in M_{FI} zu

$$\begin{aligned} & \sum_i \sum_{\substack{\alpha, \alpha' \\ \beta, \beta'}} \langle \alpha | j_I | \alpha' \rangle \langle \beta | j_S | \beta' \rangle \left(\frac{\langle F | c_\alpha^\dagger c_{\alpha'} | i \rangle \langle i | c_\beta^\dagger c_{\beta'} | I \rangle}{E_{\beta'} - E_\beta - \hbar\omega_I} + \frac{\langle F | c_\beta^\dagger c_{\beta'} | i \rangle \langle i | c_\alpha^\dagger c_{\alpha'} | I \rangle}{E_{\alpha'} - E_\alpha + \hbar\omega_I} \right) \\ &= \sum_{\substack{\alpha, \alpha' \\ \beta, \beta'}} \langle \alpha | j_I | \alpha' \rangle \langle \beta | j_S | \beta' \rangle \left(\delta_{\alpha\beta'}^{(\text{VB})} \frac{\langle F | c_{\alpha'} c_\beta^\dagger | I \rangle}{E_\alpha - E_\beta - \hbar\omega_I} + \delta_{\alpha'\beta}^{(\text{VB})} \frac{\langle F | c_{\beta'} c_\alpha^\dagger | I \rangle}{E_\beta - E_\alpha + \hbar\omega_I} \right) \\ &= \sum_{\alpha, \beta}^{\text{LB}} \langle F | c_\alpha^\dagger c_\beta | I \rangle \sum_{\beta'}^{\text{VB}} \left(\frac{\langle \alpha | j_S | \beta' \rangle \langle \beta' | j_I | \beta \rangle}{E_\alpha - E_{\beta'} + \hbar\omega_I} + \frac{\langle \alpha | j_I | \beta' \rangle \langle \beta' | j_S | \beta \rangle}{E_\alpha - E_{\beta'} - \hbar\omega_I} \right) \end{aligned} \quad (4.9)$$

und man erhält $M_{FI} = \sum_{\alpha, \beta}^{\text{LB}} \gamma_{\alpha\beta} \langle F | c_\alpha^\dagger c_\beta | I \rangle$ mit¹⁵

$$\gamma_{\alpha\beta} = \langle \alpha | e^{iq \cdot r} | \beta \rangle \epsilon_I \cdot \epsilon_S + \frac{1}{m} \sum_{\beta'}^{\text{VB}} \left(\frac{\langle \alpha | j_S | \beta' \rangle \langle \beta' | j_I | \beta \rangle}{E_\alpha - E_{\beta'} + \hbar\omega_I} + \frac{\langle \alpha | j_I | \beta' \rangle \langle \beta' | j_S | \beta \rangle}{E_\alpha - E_{\beta'} - \hbar\omega_I} \right). \quad (4.10)$$

$|\alpha\rangle$ und $|\beta\rangle$ sind Leitungsbandzustände. Die Auswertung der Formel (4.10) ist in der Praxis sehr komplex. Für die Beschreibung von Resonanzphänomenen, die zur Beobachtung unabgeschirmter SPE führen (im Fall $E_\alpha - E_{\beta'} = \hbar\omega_I$), ist die Verwendung der individuellen Energienenner[†] unerlässlich, da sie zum sog. *resonance enhancement* führen. Zur Beschreibung der Streuung an *kollektiven Anregungen* innerhalb eines einzigen Bandes (hier LB) geht man mit den Näherungen noch einen Schritt weiter, indem man $E_i - E_I \approx E_g$ durch die entsprechenden Bandlücken annähert und wie in Gl. (4.9), alle Intra-Band-Anregungen vernachlässigt. Das ist erlaubt, wenn alle Anregungsenergien wesentlich kleiner als $|E_g - \hbar\omega_I|$ sind (also im nichtresonanten Fall) und $|\omega| \ll \omega_I$. Dann folgt¹⁵

$$\gamma_{\alpha\beta} = \langle \alpha | e^{iq \cdot r} | \beta \rangle \epsilon_I \cdot \epsilon_S + \frac{1}{m} \sum_{\beta'}^{\text{VB}} \left(\frac{\langle \alpha | j_S | \beta' \rangle \langle \beta' | j_I | \beta \rangle}{E_g(\beta') + \hbar\omega_I} + \frac{\langle \alpha | j_I | \beta' \rangle \langle \beta' | j_S | \beta \rangle}{E_g(\beta') - \hbar\omega_I} \right). \quad (4.11)$$

$E_g(\beta')$ ist die Bandlücke zwischen dem betrachteten Leitungsband und dem Valenzband, in welchem der Zustand $|\beta'\rangle$ liegt. Bei fast-resonanter Raman-Streuung (im Bereich der Bandlückenenergie) sorgt der Energienenner immer noch für eine starke Erhöhung der Übergangsrates, die die Durchführung von Experimenten an Quantenstrukturen praktisch erst möglich macht.

[†]In diese geht die k -Abhängigkeit der Bänder ein (Klein, 1975⁸⁰). Daraus resultierende unabgeschirmte Einteilchen-Anregungen wurden bereits von Pinczuk et al. (1971¹³⁷) beobachtet und teilweise durch eine Theorie von Wolff (1968¹⁸⁶) erklärt, in der auch die Nichtparabolizität des Leitungsbandes berücksichtigt wird.

4.2 Streuquerschnitt

Der totale Streuquerschnitt σ für die inelastische Lichtstreuung ist definiert als Anzahl der gestreuten Photonen pro Zeit, dividiert durch die einfallende Photonenstromdichte $j_{\text{ph}} = cN_{\text{ph}}/V$. N_{ph} bezeichnet die Zahl der Photonen im Zustand $(\mathbf{k}_I, \boldsymbol{\epsilon}_I)$ im Streuvolumen V . σ errechnet sich aus den Übergangsraten für alle möglichen Streuprozesse:

$$\begin{aligned}\sigma &= \sum_{k_s} \sum_{I,F} p_I [W_{FI}(\mathbf{q}, \omega) N_{\text{ph}}] / j_{\text{ph}} = \int \frac{V}{(2\pi)^3} dk_s k_s^2 d\Omega \sum_{I,F} p_I W_{FI}(\mathbf{q}, \omega) N_{\text{ph}} / j_{\text{ph}} \\ &= \frac{V^2}{(2\pi)^3 c^4} \int d\omega \omega_S^2 d\Omega \sum_{I,F} p_I W_{FI}(\mathbf{q}, \omega); \end{aligned} \quad (4.12)$$

dabei wurde benutzt, daß $\omega_S = \omega_I - \omega = ck_S$ und $\mathbf{k}_S = \mathbf{k}_I - \mathbf{q} = \mathbf{e}_r(\Omega)\omega_S/c$, mit dem Raumwinkel Ω (Streuwinkel) gemessen bezüglich \mathbf{k}_I . p_I sind die thermischen Besetzungszahlen der Zustände $|I\rangle$. Daraus liest man den *differentiellen Wirkungsquerschnitt* ab (vgl. Blum, 1970¹⁵; Jha, 1969⁷²):

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = \left(\frac{e^2}{mc^2}\right)^2 \hbar \frac{\omega_S}{\omega_I} \sum_{I,F} p_I |M_{FI}|^2 \delta(E_F - E_I - \hbar\omega). \quad (4.13)$$

Die Matrixelemente M_{FI} aus Gl. (4.7) und (4.10) ergeben sich formal aus einem zeitlich periodischen, effektiven Störoperator

$$H_{\text{eff}} = \frac{e^2}{mc^2} \frac{2\pi\hbar c^2}{V} \sqrt{\frac{1}{\omega_I \omega_S}} \sum_{\alpha,\beta} \gamma_{\alpha\beta} c_{\alpha}^{\dagger} c_{\beta} e^{-i\omega t}. \quad (4.14)$$

Ausgedrückt durch den verallgemeinerten Paaroperator

$$\hat{N}(t) = e^{iH_0 t/\hbar} \sum_{\alpha,\beta} \gamma_{\alpha\beta} c_{\alpha}^{\dagger} c_{\beta} e^{-iH_0 t/\hbar} \quad (4.15)$$

erhalten wir damit als Streuquerschnitt (van Hove, 1954⁶⁷)

$$\begin{aligned}\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} &= r_0^2 \frac{\omega_S}{\omega_I} \sum_{I,F} p_I \hbar \delta(E_F - E_I - \hbar\omega) |M_{FI}|^2 \\ &= r_0^2 \frac{\omega_S}{\omega_I} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dt}{2\pi} e^{i\omega t} \sum_{I,F} p_I \sum_{\substack{\alpha,\beta \\ \alpha',\beta'}} e^{i(E_I - E_F)t/\hbar} \langle I | c_{\beta}^{\dagger} c_{\alpha} | F \rangle \langle F | c_{\alpha'}^{\dagger} c_{\beta'} | I \rangle \gamma_{\alpha\beta}^* \gamma_{\alpha'\beta'} \\ &= r_0^2 \frac{\omega_S}{\omega_I} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dt}{2\pi} e^{i\omega t} \sum_I p_I \langle I | \hat{N}^{\dagger}(t) \hat{N}(0) | I \rangle. \end{aligned} \quad (4.16)$$

Wir haben dabei den klassischen Elektronenradius $r_0 = e^2/(mc^2)$ eingeführt; im folgenden kürzen wir den thermischen Erwartungswert $\sum_I p_I \langle I | \dots | I \rangle$ durch $\langle \dots \rangle$ ab. Das Fluktuations-Dissipations-Theorem (Zubarev, 1960¹⁹²),

$$\langle A(t)B(0) \rangle = - \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{\pi} e^{-i\omega t} G''_{AB}(\omega) (n_{\omega} + 1), \quad G''_{AB}(\omega) = \text{Im } G_{AB}(\omega), \quad (4.17)$$

mit $n_\omega = [\exp(\hbar\omega/k_B T) - 1]^{-1}$, liefert für $G_{AB}(t) = G_{\hat{N}^\dagger\hat{N}}(t) = -i\Theta(t)\langle[\hat{N}^\dagger(t), \hat{N}(0)]\rangle$:

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} &= r_0^2 \frac{\omega_S}{\omega_I} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dt}{2\pi} e^{i\omega t} \langle \hat{N}^\dagger(t) \hat{N}(0) \rangle = -r_0^2 \frac{\omega_S}{\omega_I} \frac{n_\omega + 1}{\pi} \text{Im} G_{\hat{N}^\dagger\hat{N}}(\omega) \\ &= -r_0^2 \frac{\omega_S}{\omega_I} \frac{n_\omega + 1}{\pi} \text{Im} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\omega t} (-i\Theta(t)\langle[\hat{N}^\dagger(t), \hat{N}(0)]\rangle). \end{aligned} \quad (4.18)$$

Blum (1970¹⁵) hat im Rahmen der RPA-Näherung (ohne Austausch-Korrelations-Korrekturen) eine Lösung für die Greensche Funktion im Integral gefunden, die auf die allgemeine Streuquerschnitt-Formel

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} &= -r_0^2 \frac{\omega_S}{\omega_I} \frac{n_\omega + 1}{\pi} \text{Im} \left(L_2 + \frac{4\pi e^2}{q^2} \frac{L_1 L_1^*}{\epsilon} \right), \quad (4.19) \\ L_2 &= \sum_{\alpha, \beta} |\gamma_{\alpha\beta}|^2 \left(\frac{f_\beta - f_\alpha}{\hbar\omega + E_\beta - E_\alpha} \right), \quad L_1 = \sum_{\alpha, \beta} \gamma_{\alpha\beta} \langle \beta | e^{-iq \cdot r} | \alpha \rangle \left(\frac{f_\beta - f_\alpha}{\hbar\omega + E_\beta - E_\alpha} \right), \\ \epsilon(\omega, q) &= 1 - \frac{4\pi e^2}{q^2} \sum_{\alpha, \beta} |\langle \alpha | e^{iq \cdot r} | \beta \rangle|^2 \left(\frac{f_\beta - f_\alpha}{\hbar\omega + E_\beta - E_\alpha} \right) \end{aligned}$$

führt. Hier tragen die Interband-Übergänge in der Summe über α und β zur longitudinalen dielektrischen Funktion ϵ maßgeblich bei, dürfen bei der Berechnung von ϵ also nicht weggelassen werden. Dies macht die Formel (4.19) sehr kompliziert. Der erste Term in der Klammer entspricht dem Zwei-Stufen-Prozeß (a) in Abb. 4.1, der zweite dem Drei-Stufen-Prozeß (b). Durch diesen werden nicht nur die SPE abgeschirmt, sondern auch neue, kollektive Moden bei $\epsilon(\omega, q) = 0$ (Plasmonen) beschrieben.

Für effektive Ladungsträger muß e^2 durch e^2/κ ersetzt werden. Als DK des Materials kann dabei anstelle der statischen DK der frequenzabhängige Ausdruck

$$\kappa(\omega) = \kappa_\infty \frac{\omega_{\text{LO}}^2 - \omega^2}{\omega_{\text{TO}} - \omega^2} \quad (4.20)$$

verwendet werden, um die Wechselwirkung mit dem longitudinal-optischen Phonon (LO) am Γ -Punkt zu berücksichtigen. Anstelle $\epsilon(\omega, q)$ direkt zu berechnen, werden wir allerdings für endliche Quantenpunktstrukturen später eine *selbstkonsistente* Berechnung des Streuquerschnitts vornehmen.

4.3 Beschreibung mit Enveloppenfunktionen

In Analogie zu Hamilton & McWorther (1969⁶²) berechnen wir M_{FI} mit den Einteilchenzuständen $|\alpha\rangle$, die Eigenzustände des Hamiltonoperators $H_0^{(i)}$ (4.1) sind, wobei wir für das Gesamtpotential $V_{\text{tot}}(\mathbf{r}) = U(\mathbf{r}) + V(\mathbf{r})$ schreiben, das sich aus Kristallpotential und Überstruktur zusammensetzt. Im Rahmen der Enveloppenfunktions-Näherung (Abschnitt 2.3) lassen sich die zugehörigen Wellenfunktionen schreiben als $\psi_\alpha(\mathbf{r}) = \sqrt{V_0} \sum_n \varphi_{n\alpha}(\mathbf{r}) u_{n0}(\mathbf{r})$. Die Blochfunktionen am Γ -Punkt $u_{n0}(\mathbf{r}) \equiv u_n(\mathbf{r})$ sollen dabei die von Kane (1957⁷⁵) berechneten Wellenfunktionen sein, die sich

aus Diagonalisierung des Hamiltonoperators $H_0^{(i)}$ mit $V_{\text{tot}}(\mathbf{r}) = U(\mathbf{r})$ und $A_0(\mathbf{r}) = \mathbf{0}$ ergeben. Die für die Zinkblende-Struktur des GaAs relevanten Bänder sind in Kapitel 2 (Tabelle III) aufgeführt.

Aufgrund der relativ großen Energielücke in GaAs ($E_g = 1.519$ eV) vernachlässigen wir die Beimischung von Valenzzuständen zu den Leitungsbandzuständen, d.h. wir beschreiben die leitungsbandartigen Zustände näherungsweise durch $\psi_{c\alpha}(\mathbf{r}) = \sqrt{V_0} \varphi_{c\alpha}(\mathbf{r}) u_{c\sigma_\alpha}(\mathbf{r})$, während die Valenzbandzustände (VB) als Linearkombinationen

$$\psi_{\beta'}(\mathbf{r}) = \sqrt{V_0} \sum_{v,\tau=\pm} \varphi_{v\tau\beta'}(\mathbf{r}) u_{v\tau}(\mathbf{r}) \quad \text{mit } v \in \{\text{hh, lh, so}\} \quad (4.21)$$

dargestellt werden. Wir setzen dies in Gl. (4.11) mit $A_0(\mathbf{r}) = \mathbf{0}$ und unter Vernachlässigung des Spin-Bahn-Terms im Operator $\boldsymbol{\pi}$ ein. Dann benutzt man, daß die Envelopenfunktionen φ als auch die Exponentialfaktoren auf der Skala der Gitterperiode nahezu konstant sind, so daß z.B. für das Matrixelement $\langle \alpha | j_S | \beta' \rangle$ folgt:

$$\begin{aligned} V_0 \int d^3r \varphi_{c\alpha}^*(\mathbf{r}) u_{c\sigma_\alpha}^*(\mathbf{r}) \mathbf{p} e^{-i\mathbf{k}_S \cdot \mathbf{r}} \varphi_{v\tau\beta'}(\mathbf{r}) u_{v\tau}(\mathbf{r}) &\approx V_0 \sum_{\mathbf{R}} \varphi_{c\alpha}^*(\mathbf{R}) \\ &\times \left\{ e^{-i\mathbf{k}_S \cdot \mathbf{r}} \varphi_{v\tau\beta'}(\mathbf{R}) \int_{V_0} d^3\tilde{r} u_{c\sigma_\alpha}^*(\tilde{\mathbf{r}}) \mathbf{p} u_{v\tau}(\tilde{\mathbf{r}}) + [\mathbf{p} e^{-i\mathbf{k}_S \cdot \mathbf{r}} \varphi_{v\tau\beta'}(\mathbf{R})] \int_{V_0} d^3\tilde{r} u_{c\sigma_\alpha}^*(\tilde{\mathbf{r}}) u_{v\tau}(\tilde{\mathbf{r}}) \right\} \\ &= \int d^3r \varphi_{c\alpha}^*(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{k}_S \cdot \mathbf{r}} \varphi_{v\tau\beta'}(\mathbf{r}) \underbrace{\int_{V_0} d^3\tilde{r} u_{c\sigma_\alpha}^*(\tilde{\mathbf{r}}) \mathbf{p} u_{v\tau}(\tilde{\mathbf{r}})}_{=: \langle c\sigma_\alpha | \mathbf{p} | v_\tau \rangle}, \end{aligned} \quad (4.22)$$

wegen der Orthogonalität der Blochwellen. Analog vereinfachen sich die anderen Matrixelemente in (4.11). Diese Näherung behält ihre Gültigkeit auch in Gegenwart eines langsam veränderlichen Vektorpotentials $A_0(\mathbf{r})$. Damit erhält man aus Gl. (4.11):

$$\begin{aligned} \gamma_{\alpha\beta} &= \langle \alpha | e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} | \beta \rangle \boldsymbol{\varepsilon}_I \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_S + \frac{1}{m} \sum_{\beta'} \sum_{v,\tau=\pm}^{\text{VB}} [E_{gv}^2 - (\hbar\omega_I)^2]^{-1} \\ &\times \left\{ (E_{gv} - \hbar\omega_I) \boldsymbol{\varepsilon}_S \cdot \int d^3r_1 \varphi_{c\alpha}^*(\mathbf{r}_1) e^{-i\mathbf{k}_S \cdot \mathbf{r}_1} \varphi_{v\tau\beta'}(\mathbf{r}_1) \langle c\sigma_\alpha | \mathbf{p} | v_\tau \rangle \right. \\ &\quad \times \int d^3r_2 \varphi_{v\tau\beta'}^*(\mathbf{r}_2) e^{i\mathbf{k}_I \cdot \mathbf{r}_2} \varphi_{c\beta}(\mathbf{r}_2) \langle v_\tau | \mathbf{p} | c\sigma_\beta \rangle \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_I \\ &\quad + (E_{gv} + \hbar\omega_I) \boldsymbol{\varepsilon}_I \cdot \int d^3r_1 \varphi_{c\alpha}^*(\mathbf{r}_1) e^{i\mathbf{k}_I \cdot \mathbf{r}_1} \varphi_{v\tau\beta'}(\mathbf{r}_1) \langle c\sigma_\alpha | \mathbf{p} | v_\tau \rangle \\ &\quad \times \left. \int d^3r_2 \varphi_{v\tau\beta'}^*(\mathbf{r}_2) e^{-i\mathbf{k}_S \cdot \mathbf{r}_2} \varphi_{c\beta}(\mathbf{r}_2) \langle v_\tau | \mathbf{p} | c\sigma_\beta \rangle \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_S \right\} \\ &= \langle \alpha | e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} | \beta \rangle \boldsymbol{\varepsilon}_I \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_S + \frac{1}{m} \sum_{v,\tau=\pm} [E_{gv}^2 - (\hbar\omega_I)^2]^{-1} \int d^3r \varphi_{c\alpha}^*(\mathbf{r}) \overbrace{e^{-i\mathbf{k}_S \cdot \mathbf{r}} e^{i\mathbf{k}_I \cdot \mathbf{r}}}^{=e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}}} \varphi_{c\beta}(\mathbf{r}) \times \\ &\left\{ (E_{gv} - \hbar\omega_I) \boldsymbol{\varepsilon}_S \cdot \langle c\sigma_\alpha | \mathbf{p} | v_\tau \rangle \langle v_\tau | \mathbf{p} | c\sigma_\beta \rangle \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_I + (E_{gv} + \hbar\omega_I) \boldsymbol{\varepsilon}_I \cdot \langle c\sigma_\alpha | \mathbf{p} | v_\tau \rangle \langle v_\tau | \mathbf{p} | c\sigma_\beta \rangle \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_S \right\}. \end{aligned} \quad (4.23)$$

$\mathcal{K}^{(\text{hh})} / \mathcal{P}^2$	$\mathcal{K}^{(\text{lh})} / \mathcal{P}^2$	$\mathcal{K}^{(\text{so})} / \mathcal{P}^2$
$\begin{pmatrix} \frac{1}{2}\delta_{\sigma_\alpha\sigma_\beta} & -i\hat{\sigma}_z & 0 \\ i\hat{\sigma}_z & \frac{1}{2}\delta_{\sigma_\alpha\sigma_\beta} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} \frac{1}{6}\delta_{\sigma_\alpha\sigma_\beta} & \frac{i}{3}\hat{\sigma}_z & \frac{2i}{3}\hat{\sigma}_y \\ -\frac{i}{3}\hat{\sigma}_z & \frac{1}{6}\delta_{\sigma_\alpha\sigma_\beta} & -\frac{2i}{3}\hat{\sigma}_x \\ -\frac{2i}{3}\hat{\sigma}_y & \frac{2i}{3}\hat{\sigma}_x & \frac{2}{3}\delta_{\sigma_\alpha\sigma_\beta} \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} \frac{1}{3}\delta_{\sigma_\alpha\sigma_\beta} & \frac{2i}{3}\hat{\sigma}_z & -\frac{2i}{3}\hat{\sigma}_y \\ -\frac{2i}{3}\hat{\sigma}_z & \frac{1}{3}\delta_{\sigma_\alpha\sigma_\beta} & \frac{2i}{3}\hat{\sigma}_x \\ \frac{2i}{3}\hat{\sigma}_y & -\frac{2i}{3}\hat{\sigma}_x & \frac{1}{3}\delta_{\sigma_\alpha\sigma_\beta} \end{pmatrix}$

TABELLE V: Elemente der Tensoren

$$\mathcal{K}_{ij}^{(v)} = \left(\frac{\hbar}{m}\right)^2 \sum_{\tau=\pm} \langle c\sigma_\alpha | p_i | v_\tau \rangle \langle v_\tau | p_j | c\sigma_\beta \rangle \quad (v \in \{\text{hh}, \text{lh}, \text{so}\})$$

in Einheiten des Kanaschen Matrixelementes $\mathcal{P} = \frac{\hbar}{m} \langle iS\sigma | p_x | X\sigma \rangle \in \mathbb{R}$. $\hat{\sigma}_i$ steht dabei für die Spin-Projektionsoperatoren, d.h. $\hat{\sigma}_z | \uparrow \rangle = \frac{1}{2} | \uparrow \rangle$, $\hat{\sigma}_x | \downarrow \rangle = \frac{1}{2} (\hat{\sigma}_+ + \hat{\sigma}_-) | \downarrow \rangle = \frac{1}{2} | \uparrow \rangle$ usw. (Siehe Anhang B)

Dabei wurde die Energie $E_g(\beta')$, die durch die Mischung der Valenzbandzustände infolge der Überstruktur nicht mehr wohldefiniert ist, in den einzelnen Summanden jeweils durch E_{gv} ersetzt, so daß die Energielücken der Bänder gemäß ihrer Beimischung gewichtet werden. (Noch genauer wäre, anstelle E_{gv} die Lücke zwischen dem obersten Valenzbandzustand und dem untersten Leitungsbandzustand, wie sie sich aus der Strukturierung ergeben, einzusetzen.) Außerdem wurde im letzten Schritt angenommen, daß die Valenz-Enveloppenfunktionen $\varphi_{v\tau\beta'}(\mathbf{r})$ für jedes v_τ ein vollständiges Orthonormalsystem bilden: $\sum_{\beta'} |\varphi_{v\tau\beta'}\rangle \langle \varphi_{v\tau\beta'}| = \mathbb{1}$. Für die Matrixelemente über die Kristalleinheitszellen V_0 verwenden wir nun die Kanaschen Wellenfunktionen aus Tabelle III. Die Tensoren $\mathcal{K}^{(v)}$, deren Elemente mit den entsprechenden Komponenten des Impulsoperators gebildet werden, sind in Tabelle V für jedes der interessierenden Valenzbänder zusammengestellt. Unter der Annahme, daß $E_{gv} - \hbar\omega_I \ll E_{gv} + \hbar\omega_I \approx 2E_{gv}$, läßt sich der Tensor $\gamma_{\alpha\beta}$ schreiben als

$$\gamma_{\alpha\beta} = \langle \alpha | e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} | \beta \rangle \boldsymbol{\varepsilon}_I \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_S + \sum_{v \in \{\text{hh}, \text{lh}, \text{so}\}} \gamma_{\alpha\beta}^{(v)}, \quad (4.24)$$

wobei die folgenden Einzelbeiträge nur noch Matrixelemente bezüglich der Einteilchen-Leitungsband-Enveloppen (mit Spin) beinhalten:

$$\gamma_{\alpha\beta}^{(\text{hh})} = \frac{m\mathcal{P}^2}{\hbar^2} \frac{E_{g\text{hh}}}{E_{g\text{hh}}^2 - (\hbar\omega_I)^2} \langle \alpha | e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \frac{1}{2} [\boldsymbol{\varepsilon}_{I\parallel} \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_{S\parallel} - 2i(\boldsymbol{\varepsilon}_I \times \boldsymbol{\varepsilon}_S)_z \hat{\sigma}_z] | \beta \rangle, \quad (4.25)$$

$$\begin{aligned} \gamma_{\alpha\beta}^{(\text{lh})} &= \frac{m\mathcal{P}^2}{\hbar^2} \frac{E_{g\text{lh}}}{E_{g\text{lh}}^2 - (\hbar\omega_I)^2} \\ &\times \langle \alpha | e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \frac{1}{6} [\boldsymbol{\varepsilon}_{I\parallel} \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_{S\parallel} + 4\varepsilon_{Iz}\varepsilon_{Sz} - 4i(\boldsymbol{\varepsilon}_I \times \boldsymbol{\varepsilon}_S)_\parallel \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}}_\parallel + 2i(\boldsymbol{\varepsilon}_I \times \boldsymbol{\varepsilon}_S)_z \hat{\sigma}_z] | \beta \rangle, \quad (4.26) \end{aligned}$$

$$\gamma_{\alpha\beta}^{(\text{so})} = \frac{m\mathcal{P}^2}{\hbar^2} \frac{E_{g\text{so}}}{E_{g\text{so}}^2 - (\hbar\omega_I)^2} \langle \alpha | e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \frac{1}{3} [\boldsymbol{\varepsilon}_I \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_S + 2i(\boldsymbol{\varepsilon}_I \times \boldsymbol{\varepsilon}_S) \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}}] | \beta \rangle. \quad (4.27)$$

Hier bezeichnet \mathcal{P} das Kanasche Matrixelement aus Tabelle V und der Index \parallel die Projektion in die xy -Ebene (senkrecht zur Schichtstruktur). Ein äquivalenter Ausdruck (ohne Herleitung) findet sich in der Arbeit von Govorov & Magarill (1994⁵⁵).

Konkret betrachten wir nun eine Rückstreugeometrie mit $\mathbf{k}_I \approx -\mathbf{k}_S \sim \mathbf{e}_z$, d.h. $\boldsymbol{\varepsilon}_I, \boldsymbol{\varepsilon}_S$ liegen in x - y -Ebene. In dieser Situation werden die Spinzustände $|\uparrow\rangle$ und $|\downarrow\rangle$ nicht gemischt, da nur der Projektionsoperator $\hat{\sigma}_z$ übrigbleibt.[‡]

Des weiteren unterscheiden wir zwei spezielle Fälle, nämlich $\boldsymbol{\varepsilon}_I \parallel \boldsymbol{\varepsilon}_S$ (polarisierte Streuung) bzw. $\boldsymbol{\varepsilon}_I \perp \boldsymbol{\varepsilon}_S$ (depolarisierte Streuung). Die Summe der drei Interband-Übergänge ergibt dann jeweils:

(a) Polarisierte Streuung (P):

$$\begin{aligned} \gamma_{\alpha\beta} &= \left[1 + \frac{1}{6} \frac{m\mathcal{P}^2}{\hbar^2} \left(\frac{3E_{\text{g hh}}}{E_{\text{g hh}}^2 - (\hbar\omega_I)^2} + \frac{E_{\text{g lh}}}{E_{\text{g lh}}^2 - (\hbar\omega_I)^2} + \frac{2E_{\text{g so}}}{E_{\text{g so}}^2 - (\hbar\omega_I)^2} \right) \right] \langle \alpha | e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} | \beta \rangle \\ &= \mathcal{F}_P \langle \alpha | e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} | \beta \rangle. \end{aligned} \quad (4.28)$$

(b) Depolarisierte Streuung (D):

$$\begin{aligned} \gamma_{\alpha\beta} &= \frac{i}{3} \frac{m\mathcal{P}^2}{\hbar^2} \left(-\frac{3E_{\text{g hh}}}{E_{\text{g hh}}^2 - (\hbar\omega_I)^2} + \frac{E_{\text{g lh}}}{E_{\text{g lh}}^2 - (\hbar\omega_I)^2} + \frac{2E_{\text{g so}}}{E_{\text{g so}}^2 - (\hbar\omega_I)^2} \right) \langle \alpha | e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \hat{\sigma}_z | \beta \rangle \\ &= 2 \mathcal{F}_D \langle \alpha | e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \hat{\sigma}_z | \beta \rangle. \end{aligned} \quad (4.29)$$

Man beachte, daß für am Γ -Punkt entartete Valenzbänder (d.h. ohne Spin-Bahn-Aufspaltung) $\gamma_{\alpha\beta}$ im Fall (b) verschwindet! Die Beiträge zur depolarisierten Lichtstreuung kommen im übrigen ausschließlich aus dem A_ω -Term in Störungstheorie zweiter Ordnung.

4.4 Ladungs- und Spindichte-Anregungen

Der durch (\mathbf{q}, ω) festgelegte inelastische Streuprozess entspricht nach Gln. (4.18) und (4.14) formal einer periodischen Störung $H_{\text{eff}} \sim \hat{N} e^{-i\omega t}$, die sich gemäß Gln. (4.28) und (4.29) wie folgt deuten läßt:

(a) Polarisierte Streuung:

$$\begin{aligned} \hat{N} / \mathcal{F}_P &= \sum_{\alpha\beta} \langle \alpha | e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} | \beta \rangle c_\alpha^\dagger c_\beta = \int d^3r e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \sum_{\alpha,\beta} \delta_{\sigma_\alpha\sigma_\beta} \varphi_\alpha^*(\mathbf{r}) \varphi_\beta(\mathbf{r}) c_\alpha^\dagger c_\beta \\ &= \int d^3r e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} [\hat{n}_\uparrow(\mathbf{r}) + \hat{n}_\downarrow(\mathbf{r})] = \int d^3r e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \hat{n}(\mathbf{r}) = \hat{n}(\mathbf{q}). \end{aligned} \quad (4.30)$$

(b) Depolarisierte Streuung:

$$\begin{aligned} \hat{N} / \mathcal{F}_D &= \sum_{\alpha\beta} 2 \langle \alpha | e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \hat{\sigma}_z | \beta \rangle c_\alpha^\dagger c_\beta = \int d^3r e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \sum_{\alpha,\beta} \delta_{\sigma_\alpha\sigma_\beta} 2\sigma_\beta \varphi_\alpha^*(\mathbf{r}) \varphi_\beta(\mathbf{r}) c_\alpha^\dagger c_\beta \\ &= \int d^3r e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} [\hat{n}_\uparrow(\mathbf{r}) - \hat{n}_\downarrow(\mathbf{r})] = \int d^3r e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \hat{s}(\mathbf{r}) = \hat{s}(\mathbf{q}). \end{aligned} \quad (4.31)$$

[‡]Die Ausdrücke mit $\hat{\sigma}_\parallel$ beschreiben die im Kontext zu Abb. 4.1 erwähnten Spinflip-Anregungen. Sie stellen die sog. *transversale* Response des Systems dar [eine neuere Arbeit dazu stammt von Lipparini & Serra (1998⁹⁵)] im Gegensatz zur *longitudinalen* Response, auf die wir uns im folgenden konzentrieren.

Im Fall (a) koppelt die externe Störung e^{iqr} an die Ladungsdichte, im Fall (b) an die Spindichte $s(\mathbf{r}) = n_{\uparrow}(\mathbf{r}) - n_{\downarrow}(\mathbf{r})$. Für ein spinentartetes System gilt $\langle [\hat{n}(\mathbf{q}), \hat{s}(\mathbf{q})] \rangle = 0$, so daß eine Kopplung von Spin- und Ladungsdichteanregungen unterbleibt. Daher lassen sich *Ladungsdichteanregungen (CDE)* und *Spindichteanregungen (SDE)* nach der jeweiligen Streugeometrie selektiv anregen. Diese *Auswahlregeln* wurden erstmals von Hamilton & McWorther (1969⁶²) abgeleitet und zur Interpretation zahlreicher Experimente an Volumenhalbleitern (Abstreiter et al., 1984²), später auch an 2D-Elektronensystemen in geschichteten Halbleiterstrukturen herangezogen (Pinczuk & Abstreiter, 1988¹³⁶; Pinczuk et al., 1994¹³⁸).

In einem wechselwirkenden System ist die Korrelationsfunktion bzw. Antwortfunktion $\langle [\hat{N}^{\dagger}(t), \hat{N}(0)] \rangle$ im Streuquerschnitt eine komplizierte Größe, da Abschirmeffekte und Austausch-Korrelation die Antwort des Systems modifizieren. Nur im Fall extrem resonanter Raman-Streuung treten infolge des *resonance enhancement* ungeschirmte Einteilchen-Anregungen (in beiden Streugeometrien) auf, die sich durch geeignete Wahl der Frequenz des einfallenden Laserlichtes gezielt detektieren lassen (Abstreiter et al., 1984²).

Die Berechnung von Ladungs- und Spindichte-Anregungen in GaAs/Al_xGa_{1-x}As-Übergittern wurde erstmals von Katayama & Ando (1985⁷⁸) durchgeführt. Mittlerweile existieren mehrere theoretische Arbeiten zur nichtresonanten Raman-Streuung an Quantenfilmen und -drähten (z.B. Chuang et al., 1992³²; Marmorkos & Sarma, 1993¹¹⁰; Schüller et al., 1996¹⁵⁴; Brataas et al., 1997¹⁸), die aber alle von den diskutierten Auswahlregeln Gebrauch machen.

Hat das System im Grundzustand eine endliche Spindichte, führt die unterschiedliche Änderung der Spindichtekomponenten infolge einer Störung, die beispielsweise an die Ladungsdichte koppelt, unter Umständen auch zu einer zusätzlichen Spindichteanregung. Die Auswahlregeln, in deren Rahmen die Experimente von Pinczuk et al. (1994¹³⁸), Schüller et al. (1996¹⁵⁴) und anderer interpretiert werden, sind dann nicht mehr streng anwendbar. Dieser Aspekt ist Gegenstand der Untersuchungen im nächsten Kapitel.

KAPITEL 5

Die Berechnung des Raman-Streuquerschnitts

Zur Berechnung des Raman-Streuquerschnitts für kollektive Anregungen wenden wir die zeitabhängige (adiabatische) LSDA aus Abschnitt 1.6 für Quantenpunkte an. Stromdichteabhängige Korrelationseffekte werden vernachlässigt, da wir von ihnen mit Blick auf die Grundzustandsrechnungen in Kapitel 3 nur eine geringfügige Modifikation der Ergebnisse erwarten. Durch eine selbstkonsistente Response-Rechnung wird die Dyson-Gleichung für das wechselwirkende System gelöst; aus der erhaltenen Ladungs- und Spindichte-Änderung kann schließlich das Ramanspektrum bestimmt werden. Im Anschluß daran diskutieren wir noch wichtige Summenregeln für den Streuquerschnitt.

Die Berechnung des Raman-Streuquerschnitts

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = -r_0^2 \frac{\omega_S}{\omega_I} \frac{n_\omega + 1}{\pi} \text{Im} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\omega t} (-i\Theta(t) \langle [\hat{N}^\dagger(t), \hat{N}(0)] \rangle). \quad (5.1)$$

involviert die Auswertung des Kommutators $\langle [\hat{N}^\dagger(t), \hat{N}(0)] \rangle$ für das wechselwirkende Elektronensystem. Je nach Streugeometrie (P/D) gilt:

$$\begin{aligned} \text{P: } \langle [\hat{N}^\dagger(t), \hat{N}(0)] \rangle / |\mathcal{F}_P|^2 &= \langle [\hat{n}^\dagger(\mathbf{q}, t), \hat{n}(\mathbf{q}, 0)] \rangle \\ &= \sum_{\sigma=\uparrow,\downarrow} \langle [\hat{n}_\sigma^\dagger(\mathbf{q}, t), \hat{n}_\sigma(\mathbf{q}, 0)] + [\hat{n}_\sigma^\dagger(\mathbf{q}, t), \hat{n}_{-\sigma}(\mathbf{q}, 0)] \rangle, \end{aligned} \quad (5.2)$$

$$\begin{aligned} \text{D: } \langle [\hat{N}^\dagger(t), \hat{N}(0)] \rangle / |\mathcal{F}_D|^2 &= \langle [\hat{s}^\dagger(\mathbf{q}, t), \hat{s}(\mathbf{q}, 0)] \rangle \\ &= \sum_{\sigma=\uparrow,\downarrow} \langle [\hat{n}_\sigma^\dagger(\mathbf{q}, t), \hat{n}_\sigma(\mathbf{q}, 0)] - [\hat{n}_\sigma^\dagger(\mathbf{q}, t), \hat{n}_{-\sigma}(\mathbf{q}, 0)] \rangle. \end{aligned} \quad (5.3)$$

Wir definieren die Responsefunktion (Suszeptibilität)

$$\chi_{\sigma\sigma'}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = \frac{1}{\hbar i} \int_0^\infty dt e^{i\omega t} \langle \Psi | [\hat{n}_\sigma(\mathbf{r}, t), \hat{n}_{\sigma'}(\mathbf{r}', 0)] | \Psi \rangle, \quad (5.4)$$

wobei wir den Erwartungswert bei $T = 0$ bezüglich des wechselwirkenden Grundzustands $|\Psi\rangle$ zu bilden haben. Damit läßt sich der Streuquerschnitt mit $n_\omega \rightarrow 0$ schreiben als

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = -r_0^2 \frac{\hbar\omega_S}{\omega_I} \frac{1}{\pi v_0} \text{Im} \int d^3r \int d^3r' v_0 e^{iq \cdot (r' - r)} \left\{ \begin{array}{l} |\mathcal{F}_P|^2 (\chi_{\uparrow\uparrow} + \chi_{\downarrow\downarrow} + \chi_{\uparrow\downarrow} + \chi_{\downarrow\uparrow}) \\ |\mathcal{F}_D|^2 (\chi_{\uparrow\uparrow} + \chi_{\downarrow\downarrow} - \chi_{\uparrow\downarrow} - \chi_{\downarrow\uparrow}) \end{array} \right. . \quad (5.5)$$

Das Doppelintegral entspricht der Fourier-transformierten Ladungsdichte- (Spindichte-) Antwort $\delta n(\mathbf{q}, \omega)$ [$\delta s(\mathbf{q}, \omega)$] auf eine externe Störung $v_0 e^{iq \cdot r'}$, die an die Ladungsdichte (Spindichte) koppelt.

5.1 Adiabatische LSDA

Die lineare Antwortfunktion eines wechselwirkungsfreien Systems $H_0 = \sum_{\alpha,\sigma} \varepsilon_{\alpha\sigma} c_{\alpha\sigma}^\dagger c_{\alpha\sigma}$ ist (siehe Anhang C)

$$\chi_{\sigma\sigma'}^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = \delta_{\sigma\sigma'} \sum_{\alpha,\beta} \frac{f(\varepsilon_{\beta\sigma}) - f(\varepsilon_{\alpha\sigma})}{\varepsilon_{\beta\sigma} - \varepsilon_{\alpha\sigma} + \hbar\omega + i\Gamma} \varphi_{\alpha\sigma}(\mathbf{r}) \varphi_{\beta\sigma}^*(\mathbf{r}) \varphi_{\alpha\sigma}^*(\mathbf{r}') \varphi_{\beta\sigma}(\mathbf{r}'). \quad (5.6)$$

[Dabei wurde eine phänomenologische Dämpfung (Linienbreite) Γ eingeführt.] Bis auf den Faktor $\mathcal{F}_{P/D}$ ist damit der Streuquerschnitt (5.5) für P- und D-Streuung identisch und enthält keine kollektiven Anregungen.

Kollektive Phänomene entstehen durch die Antwort des Systems auf die mit einer Ladungs- bzw. Spindichtefluktuations verknüpfte Änderung der internen Felder. Dazu gehören neben dem klassischen elektrostatischen Abschirmverhalten auch Austausch-Korrelations-Effekte, die das gesamte Anregungsspektrum renormieren.

Die Abschirmung einer externen Störung in einem wechselwirkenden System zeigt, daß die Verwendung von $\chi_{\sigma\sigma'}^{(0)}$ zur Berechnung des induzierten Potentials infolge der externen Störung keine gute Näherung ist. In der Tat divergiert in einem homogenen System das induzierte elektrostatische Potential

$$v_{\text{ind}}^{(0)}(\mathbf{q}, \omega) = \frac{4\pi}{q^2} \sum_{\sigma} \chi_{\sigma\sigma}^{(0)}(\mathbf{q}, \omega) v_{\text{ext}}(\mathbf{q}, \omega) = \frac{8\pi}{q^2} \sum_p \frac{f(\varepsilon_p) - f(\varepsilon_{p+q})}{\varepsilon_p - \varepsilon_{p+q} + \hbar\omega + i\Gamma} v_{\text{ext}}(\mathbf{q}, \omega) \quad (5.7)$$

im statischen Grenzfall ($q \rightarrow 0$, $\omega \rightarrow 0$); in Wahrheit erwartet man jedoch eine vollständige Abschirmung, $v_{\text{ind}}(0, 0) = -v_{\text{ext}}(0, 0)$. Das korrekte Resultat erzielt man, wenn in (5.7) anstelle von v_{ext} das Gesamtpotential $v_{\text{ext}} + v_{\text{ind}}$ eingesetzt wird, also die Responsefunktion des wechselwirkenden Systems bezogen auf das *Gesamtpotential* durch $\chi_{\sigma\sigma'}^{(0)}$ approximiert wird.

In der selbstkonsistenten linearen Antwort-Theorie des Kohn-Sham-Formalismus (Abschnitt 1.6) unter Verwendung der adiabatischen LSDA (ALSDA) geschieht diese Behandlung auf ähnliche Weise. (Wie bereits erwähnt, vernachlässigen wir hier die Vortizitätsabhängigkeit der Austausch-Korrelations-Energie und beschränken uns auf eine Formulierung ohne Ströme.) Es wird berücksichtigt, daß sich sowohl Hartree- als auch Austausch-Korrelations-Potentiale durch endliche Dichteanregungen $\delta n_\sigma(\mathbf{r})$ verändern; diese Änderungen $\delta V_{\text{H}}(\mathbf{r})$ und $\delta V_{\text{xc}\sigma}(\mathbf{r})$ sind als *zusätzliche*

Störung zum externen Störpotential zu addieren. Dann kann die Antwort des wechselwirkenden Systems mithilfe der KS-Responsefunktion $\chi_{\sigma\sigma'}^{(0)}$ (unter Verwendung der KS-Wellenfunktionen und KS-Energien) berechnet werden aus

$$\delta n_{\sigma}(\mathbf{r}, \omega) \equiv \int dt e^{i\omega t} n_{\sigma}(\mathbf{r}, t) = \int d^3 r' \chi_{\sigma}^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) v_{\text{sc}\sigma}(\mathbf{r}'), \quad (5.8)$$

wobei $v_{\text{sc}\sigma}(\mathbf{r}) = v_{0\sigma} e^{iq\cdot\mathbf{r}} + \delta V_{\text{H}}(\mathbf{r}) + \delta V_{\text{xc}\sigma}(\mathbf{r})$ das selbstkonsistente Störpotential darstellt (man beachte, daß in linearer Näherung die Response, und daher auch das selbstkonsistente Potential proportional zur Amplitude der externen Störung ist). Wir haben $\chi_{\sigma\sigma}^{(0)}$ mit $\chi_{\sigma}^{(0)}$ abgekürzt. Je nach Streugeometrie (P/D) besteht mit Gl. (5.5) der Zusammenhang $v_0 = v_{0\uparrow} = \pm v_{0\downarrow}$. Die entsprechende Dyson-Gleichung für die Suszeptibilität des wechselwirkenden Systems, die sich durch Einsetzen von (1.90) in (1.85) ergibt, lautet:

$$\begin{aligned} \chi_{\sigma\sigma'}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) &= \chi_{\sigma}^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \delta_{\sigma\sigma'} \\ &+ \int d^3 r_1 \int d^3 r_2 \sum_{\sigma''} \chi_{\sigma}^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_1, \omega) K_{\sigma\sigma''}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \chi_{\sigma''\sigma'}(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}', \omega) \end{aligned} \quad (5.9)$$

mit dem Kern $K_{\sigma\sigma''}$, der die Änderungen der effektiven Potentiale in linearisierter Form enthält und in welchen die ALSDA (1.90) eingeht:

$$K_{\sigma\sigma''}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \frac{e^2}{\kappa} |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|^{-1} + \left. \frac{\partial V_{\text{xc}\sigma}}{\partial n_{\sigma''}} \right|_{n_{\sigma''}(\mathbf{r}_2)} \delta(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2). \quad (5.10)$$

Ohne die xc-Terme stellt Gl. (5.9) eine Form der RPA-Näherung (vgl. Platzman & Wolff, 1973¹⁴²) dar. Austausch-Korrelation wirkt nun als weiterer Mechanismus, um kollektive Anregungen zu vermitteln. Dabei können wir zwischen einer spinunabhängigen LDA-Rechnung (adiabatische LDA, ALDA) und der ALSDA unterscheiden. Für verschwindende Spindichte gilt $\chi_{\uparrow\downarrow} = \chi_{\downarrow\uparrow}$, $\chi_{\downarrow\downarrow} = \chi_{\uparrow\uparrow}$,* weshalb in Systemen mit vernachlässigbarer Spindichte keine gekoppelten Spin- und Ladungsdichte-Anregungen in P- oder D-Streuung beobachtbar sind.

Erst wenn eine endliche Spindichte $\delta n_{\uparrow}(\mathbf{r}) - \delta n_{\downarrow}(\mathbf{r}) \neq 0$ die Spinkomponenten der Suszeptibilität mischt, kann eine Störung, die an die Ladungsdichte koppelt (P-Streuung), auch Spindichtefluktuationen anregen, und umgekehrt in

* Dies spiegelt sich in der Symmetrie von $\varepsilon_{\text{xc}}(r_s, \xi)$ um $\xi = 0$ wider: $\frac{\partial V_{\text{xc}\sigma}}{\partial n_{\sigma'}} = \frac{\partial \varepsilon_{\text{xc}}}{\partial n_{\sigma}} + \frac{\partial \varepsilon_{\text{xc}}}{\partial n_{\sigma'}} + n \frac{\partial^2 \varepsilon_{\text{xc}}}{\partial n_{\sigma} \partial n_{\sigma'}} = 2 \frac{\partial \varepsilon_{\text{xc}}}{\partial r_s} \frac{\partial r_s}{\partial n} + n \left[\frac{\partial \varepsilon_{\text{xc}}}{\partial r_s} \frac{\partial^2 r_s}{\partial n^2} + \frac{\partial^2 \varepsilon_{\text{xc}}}{\partial r_s^2} \left(\frac{\partial r_s}{\partial n} \right)^2 + \frac{\partial^2 \varepsilon_{\text{xc}}}{\partial \xi^2} \frac{\partial \xi}{\partial n_{\sigma}} \frac{\partial \xi}{\partial n_{\sigma'}} \right]$, unter Verwendung von $\frac{\partial \varepsilon_{\text{xc}}}{\partial \xi} = 0$ bei $\xi = 0$. Der letzte Summand in der eckigen Klammer liefert bei $\xi = 0$ für $\sigma = \sigma'$ den Beitrag $\frac{1}{n} \frac{\partial^2 \varepsilon_{\text{xc}}}{\partial \xi^2}$ und $-\frac{1}{n} \frac{\partial^2 \varepsilon_{\text{xc}}}{\partial \xi^2}$ für $\sigma \neq \sigma'$.

D-Streugeometrie. Wir formulieren nun ein Gleichungssystem für die gesuchten Dichteänderungen $\delta n_\sigma(\mathbf{r})$, indem wir $v_{sc\sigma}$ in (5.8) einsetzen:

$$\begin{aligned}
\delta n_\sigma(\mathbf{r}, \omega) &= \int d^3r' \chi_\sigma^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) v_{sc\sigma}(\mathbf{r}') \\
&= \int d^3r' \chi_\sigma^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \left\{ v_{0\sigma} e^{iq\cdot r'} + \int d^3r'' \sum_{\sigma'} [K_{\sigma\sigma'}(\mathbf{r}', \mathbf{r}'') \delta n_{\sigma'}(\mathbf{r}'')] \right\} \\
&= \int d^3r' \chi_\sigma^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \\
&\quad \times \left\{ v_{0\sigma} e^{iq\cdot r'} + \sum_{\sigma'} \left[\int d^3r'' \frac{e^2}{\kappa} \frac{\delta n_{\sigma'}(\mathbf{r}'')}{|\mathbf{r}' - \mathbf{r}''|} + \left. \frac{\partial V_{xc\sigma}}{\partial n_{\sigma'}} \right|_{n_{\sigma'}(\mathbf{r}')} \delta n_{\sigma'}(\mathbf{r}') \right] \right\}. \quad (5.11)
\end{aligned}$$

Dies ist simultan für δn_\uparrow und δn_\downarrow zu lösen, was konkret durch eine Diskretisierung der Integration im Ortsraum geschieht; das resultierende inhomogene lineare Gleichungssystem der Form $(\mathbb{1} - \mathcal{M})\delta \mathbf{n}_{(r\sigma)} = \mathbf{b}_{(r\sigma)}$ wird dann durch eine Matrixinversion numerisch gelöst.

Im Spezialfall $s(\mathbf{r}) = 0$ gilt aufgrund der identischen Ortswellenfunktionen, Einteilchen-Energiedifferenzen und Besetzungszahlen für beide Spinrichtungen in Gl. (5.6) $\chi_\uparrow^{(0)} = \chi_\downarrow^{(0)} \equiv \chi^{(0)}$; man findet außerdem (siehe Fußnote * auf S. 91):

$$\frac{\partial V_{xc\uparrow}}{\partial n_\downarrow} = \frac{\partial V_{xc\downarrow}}{\partial n_\uparrow}, \quad \frac{\partial V_{xc\uparrow}}{\partial n_\uparrow} = \frac{\partial V_{xc\downarrow}}{\partial n_\downarrow}. \quad (5.12)$$

Durch Übergang zu $\delta n = \delta n_\uparrow + \delta n_\downarrow$ und $\delta s = \delta n_\uparrow - \delta n_\downarrow$ lassen sich in diesem Fall die Gleichungen (5.11) entkoppeln:

$$\begin{aligned}
\delta n(\mathbf{r}, \omega) &= \int d^3r' \chi^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \left[(v_{0\uparrow} + v_{0\downarrow}) e^{iq\cdot r'} + 2 \int d^3r'' \frac{e^2}{\kappa} \frac{\delta n(\mathbf{r}'')}{|\mathbf{r}' - \mathbf{r}''|} \right. \\
&\quad \left. + \left(\frac{\partial V_{xc\uparrow}}{\partial n_\downarrow} + \frac{\partial V_{xc\downarrow}}{\partial n_\downarrow} \right) \delta n(\mathbf{r}') \right], \quad (5.13)
\end{aligned}$$

$$\delta s(\mathbf{r}, \omega) = \int d^3r' \chi^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \left[(v_{0\uparrow} - v_{0\downarrow}) e^{iq\cdot r'} + \left(\frac{\partial V_{xc\uparrow}}{\partial n_\downarrow} - \frac{\partial V_{xc\downarrow}}{\partial n_\downarrow} \right) \delta s(\mathbf{r}') \right]. \quad (5.14)$$

Dies zeigt nun ganz offensichtlich, daß in P-Streugeometrie ($v_{0\uparrow} = v_{0\downarrow}$) stets $\delta s(\mathbf{r}, \omega) = 0$ ist und nur Ladungsdichteanregungen möglich sind. In D-Streuung hat man analog $\delta n(\mathbf{r}, \omega) = 0$. Man beachte, daß in der Gleichung für δs kein Hartree-Term erscheint.

5.2 Berechnung für ein 2D-System mit zylindrischer Symmetrie

Wir betrachten nun ein zweidimensionales System, d.h. alle Wellenfunktionen seien lokalisiert um $z = 0$. Dann erlaubt eine Fourier-Bessel-Entwicklung in Polarkoordinaten (r, φ) die Zerlegung der Integralgleichungen (5.11):

$$\delta n_\sigma(\mathbf{r}) = \sum_\ell \delta n_{\sigma\ell}(r) e^{i\ell\varphi}, \quad (5.15)$$

$$\chi_\sigma^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = \sum_\ell \chi_{\sigma\ell}^{(0)}(r, r', \omega) e^{i\ell(\varphi - \varphi')}, \quad (5.16)$$

$$v_{0\sigma} e^{iq \cdot \mathbf{r}} = \sum_{\ell=-\infty}^{\infty} v_{\sigma\ell}(r) e^{i\ell\varphi} = \sum_{\ell=-\infty}^{\infty} v_{0\sigma} i^{|\ell|} J_{|\ell|}(qr) e^{i\ell\varphi}, \quad (5.17)$$

$$\frac{1}{|\mathbf{r}' - \mathbf{r}''|} = \sum_\ell e^{i\ell(\varphi' - \varphi'')} \int dq J_\ell(qr') J_\ell(qr'') \quad (\text{Jackson, 1975}^{71}), \quad (5.18)$$

wobei o.B.d.A. $\mathbf{q} = (q, 0, 0)$ angenommen wurde. Eingesetzt in (5.11) ergibt sich:

$$\begin{aligned} \sum_\ell \delta n_{\sigma\ell}(r) e^{i\ell\varphi} &= \sum_{\ell, \ell'} \int dr' r' \int d\varphi' \chi_{\sigma\ell}^{(0)}(r, r', \omega) e^{i\ell(\varphi - \varphi')} \left\{ v_{\sigma\ell'}(r') e^{i\ell'\varphi'} \right. \\ &\quad + \sum_{\sigma'} \left[\int dr'' r'' \int d\varphi'' \frac{e^2}{\kappa} \delta n_{\sigma'\ell'}(r'') e^{i\ell'\varphi''} \sum_{\ell''} e^{i\ell''(\varphi' - \varphi'')} \int dq J_{\ell''}(qr') J_{\ell''}(qr'') \right. \\ &\quad \left. \left. + \frac{\partial V_{\text{xc}\sigma}}{\partial n_{\sigma'}} \delta n_{\sigma'\ell'}(r') e^{i\ell'\varphi'} \right] \right\}, \end{aligned} \quad (5.19)$$

und nach Integration über φ' und φ'' für die einzelnen Moden ℓ :

$$\begin{aligned} \delta n_{\sigma\ell}(r) &= 2\pi \int r' dr' \chi_{\sigma\ell}^{(0)}(r, r', \omega) \left\{ v_{\sigma\ell}(r') \right. \\ &\quad \left. + \sum_{\sigma'} \left[2\pi \int r'' dr'' \frac{e^2}{\kappa} \delta n_{\sigma'\ell}(r'') R_\ell(r', r'') + \frac{\partial V_{\text{xc}\sigma}}{\partial n_{\sigma'}} \delta n_{\sigma'\ell}(r') \right] \right\}, \end{aligned} \quad (5.20)$$

mit $R_\ell(r', r'') = \int dq J_\ell(qr') J_\ell(qr'')$. Die Komponenten der KS-Suszeptibilität lauten:

$$\begin{aligned} \chi_{\sigma\ell}^{(0)}(r, r', \omega) &= \sum_{\substack{n_1, n_2 \\ m_1 - m_2 = \ell}} \frac{f(\varepsilon_{n_1 m_1 \sigma}) - f(\varepsilon_{n_2 m_2 \sigma})}{\varepsilon_{n_2 m_2 \sigma} - \varepsilon_{n_1 m_1 \sigma} + \hbar\omega + i\Gamma} \\ &\quad \times \varphi_{n_1 m_1 \sigma}(r) \varphi_{n_2 m_2 \sigma}^*(r) \varphi_{n_1 m_1 \sigma}^*(r') \varphi_{n_2 m_2 \sigma}(r'). \end{aligned} \quad (5.21)$$

Für $R_\ell(r', r'')$ gilt wegen $J_\ell(z) = (-1)^\ell J_{-\ell}(z)$: $R_\ell(r', r'') = R_{-\ell}(r', r'')$. Nach Gradshteyn & Ryzhik (1980⁵⁶), Integral 6.512 Nr. 1, erhält man:

$$\int_0^\infty dq J_{|\ell|}(qr') J_{|\ell|}(qr'') = \frac{r_{<}^{|\ell|}}{r_{>}^{|\ell|+1}} \frac{\Gamma\left(\frac{2|\ell|+1}{2}\right)}{\Gamma(|\ell|+1)\Gamma\left(\frac{1}{2}\right)} F\left(|\ell| + \frac{1}{2}, \frac{1}{2}; |\ell| + 1, k^2\right) \quad (5.22)$$

mit $k = r_{<}/r_{>}$, $r_{<} = \min(r', r'')$, $r_{>} = \max(r', r'')$, $r' \neq r''$. F ist die hypergeometrische Funktion. Ferner gilt nach Integral 3.671 Nr. 2 in Gradshteyn & Ryzhik (1980⁵⁶):

$$\int_0^{\pi/2} dx \frac{\sin^\alpha(x)}{\sqrt{1-k^2 \sin^2(x)}} = \frac{1}{2} \frac{\Gamma(\frac{\alpha+1}{2}) \Gamma(\frac{1}{2})}{\Gamma(\frac{\alpha+2}{2})} F\left(\frac{\alpha+1}{2}, \frac{1}{2}; \frac{\alpha+2}{2}, k^2\right). \quad (5.23)$$

Mit $\alpha = 2|\ell|$ folgt damit:

$$R_\ell(r', r'') = \frac{r_{<}^{|\ell|}}{r_{>}^{|\ell|+1}} \frac{2}{\Gamma(\frac{1}{2})^2} \int_0^{\pi/2} dx \frac{\sin^{2|\ell|}(x)}{\sqrt{1-k^2 \sin^2(x)}}. \quad (5.24)$$

Nach Gradshteyn & Ryzhik (1980⁵⁶), Integral 2.584 Nr. 1, 4, 11 und 22 erhält man für $|\ell| \leq 3$:

$$\begin{aligned} R_0(r', r'') &= \frac{2}{\pi} \frac{1}{r_{>}} K(k), \\ R_{\pm 1}(r', r'') &= \frac{2}{\pi} \frac{1}{r_{<}} [K(k) - E(k)], \\ R_{\pm 2}(r', r'') &= \frac{2}{\pi} \frac{r_{<}^2}{r_{>}^3} \left[\frac{2+k^2}{3k^4} K(k) - \frac{2(1+k^2)}{3k^4} E(k) \right] \\ &= \frac{2}{3\pi} \frac{1}{r_{>} k^2} [(2+k^2)K(k) - 2(1+k^2)E(k)], \end{aligned} \quad (5.25)$$

$$R_{\pm 3}(r', r'') = \frac{2}{\pi} \frac{r_{<}^3}{r_{>}^4} \left[\frac{4k^4 + 3k^2 + 8}{15k^6} K(k) - \frac{8k^4 + 7k^2 + 8}{15k^6} E(k) \right] \quad (5.26)$$

$$= \frac{2}{15\pi} \frac{1}{r_{>} k^3} [(4k^4 + 3k^2 + 8)K(k) - (8k^4 + 7k^2 + 8)E(k)]. \quad (5.27)$$

Die kompletten elliptischen Integrale erster und zweiter Art sind hier definiert als

$$K(k) = \int_0^{\pi/2} \frac{dx}{\sqrt{1-k^2 \sin^2(x)}}, \quad E(k) = \int_0^{\pi/2} dx \sqrt{1-k^2 \sin^2(x)}. \quad (5.28)$$

Hat man die selbstkonsistente lineare Antwort $\delta n_{\sigma\ell}(r)$ für alle ℓ gefunden, ergibt sich der differentielle Streuquerschnitt durch Fourier-Rücktransformation in Gl. (5.5):

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma}{d\omega d\Omega} &= -r_0^2 \frac{\hbar\omega_S n_\omega + 1}{\omega_I} \frac{n_\omega}{\pi v_0} |\mathcal{F}_{P/D}|^2 \text{Im} \int d^2r e^{-iqr} \sum_\ell [\delta n_{\uparrow\ell}(r) \pm \delta n_{\downarrow\ell}(r)] e^{i\ell\varphi} \\ &= \dots \text{Im} \int d\varphi \int dr r \sum_{\ell, \ell'} (-i)^{|\ell'|} J_{|\ell'|}(qr) [\delta n_{\uparrow\ell}(r, \omega) \pm \delta n_{\downarrow\ell}(r, \omega)] e^{i(\ell-\ell')\varphi} \\ &= \dots \text{Im} 2\pi \sum_\ell (-i)^{|\ell|} \int dr r J_{|\ell|}(qr) [\delta n_{\uparrow\ell}(r, \omega) \pm \delta n_{\downarrow\ell}(r, \omega)]. \end{aligned} \quad (5.29)$$

Genau der Ausdruck in der letzten Zeile (also ohne die durch Punkte symbolisierten Vorfaktoren) entspricht der numerischen Größe, die wir im folgenden als „Streuquerschnitt“ darstellen werden.

5.3 Ferninfrarot-Absorption und das Verallgemeinerte Kohnsche Theorem

Im Grenzfall kleiner Impulsüberträge ($qR \ll 1$, wobei R die Ausdehnung des Systems bezeichnet) kann man die Fourier-Bessel-Darstellung von $e^{iq \cdot r}$ linear approximieren:

$$e^{iq \cdot r} = J_0(qr) + iJ_1(qr)(e^{i\varphi} + e^{-i\varphi}) + \dots = \text{const} + \frac{1}{2}iqr(e^{i\varphi} + e^{-i\varphi}) + O[(qr)^2]. \quad (5.30)$$

Der konstante Term spielt als Störpotential keine Rolle, da er nur die potentielle Energie verschiebt. Der Dipol-Term $qr(e^{i\varphi} + e^{-i\varphi})$ ist formal identisch mit dem Störpotential $-eE_0re^{\pm i\varphi}$ eines elektrischen Feldes, das in der Systemebene zirkular polarisiert ist und auf der Längenskala der Quantenpunkt-Abmessungen näherungsweise konstant ist. Dies trifft auf den Fall eines Ferninfrarot-(FIR-)Feldes zu, dessen Photonenenergie vom elektronischen System direkt absorbiert werden kann. Somit lassen sich die $\ell = \pm 1$ -Beiträge zum Streuquerschnitt in P-Streugeometrie im Dipolgrenzfall $q \rightarrow 0$ (bis auf Vorfaktoren) mit der FIR-Absorption

$$\alpha_{\pm}(\omega) = 4\pi \frac{\omega}{c} \text{Im} \left\{ \int dr r^2 \delta n_{\pm 1}(r, \omega) \right\} \sim \left. \frac{d^2 \sigma}{d\omega d\Omega} \right|_{|q| \rightarrow 0} \quad (5.31)$$

(siehe z.B. Darnhofer, 1996³⁴) identifizieren.

Insbesondere spielt das *Verallgemeinerte Kohnsche Theorem* (Kohn, 1959⁸²; Kohn, 1961⁸³; Brey et al., 1989¹⁹; Yip, 1991¹⁸⁸) eine wichtige Rolle bei der Diskussion von Ladungsdichteanregungen in P-Geometrie: Der Hamilton-Operator für einen Quantenpunkt mit N wechselwirkenden Elektronen läßt sich durch Einführung von Schwerpunkts- und Relativkoordinaten,

$$\begin{aligned} \mathbf{R} &= \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \mathbf{r}_i, & \mathbf{P} &= \sum_{i=1}^N \mathbf{p}_i, & L_Z &= X P_Y - Y P_X, \\ \mathbf{r}_{ij} &= \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j, & \mathbf{p}_{ij} &= \mathbf{p}_i - \mathbf{p}_j, & l_{zij} &= x_{ij} p_{yij} - y_{ij} p_{xij}, \end{aligned} \quad (5.32)$$

in einen Anteil für die Schwerpunktsbewegung und einen für die Relativbewegung separieren:

$$H = \frac{P^2}{2Nm^*} + \frac{1}{2}Nm^*\omega_h^2 R^2 + \frac{\omega_c}{2}L_Z + \frac{1}{N} \sum_{i < j} \left[\frac{p_{ij}^2}{2m^*} + \frac{1}{2}m^*\omega_h^2 r_{ij}^2 + \frac{\omega_c}{2}l_{zij} + Nu(r_{ij}) \right]. \quad (5.33)$$

Dabei kommt es nicht auf die genaue Form der Paarwechselwirkung $u(r_{ij})$ an, sondern nur darauf, daß das Einschlußpotential parabolisch ist. Dann kann man das ursprüngliche Kohnsche Theorem,⁸³ welches besagt, daß die Zyklotronresonanz eines homogenen Elektronengases ($\omega_h = \omega_c$) unabhängig von der Zahl der Elektronen und der Wechselwirkung ist, verallgemeinern. Weil der Dipoloperator $\sum_i e r_i = Ne\mathbf{R}$ nur von der Schwerpunktskoordinate abhängig ist, kann ein räumlich konstantes elektrisches Feld nicht an die internen Freiheitsgrade koppeln. Infolgedessen findet man die Dipol-Anregungen bei den Energien

$$\hbar\omega_{\pm}^{(k)} = k\hbar\sqrt{\omega_0^2 + \omega_c^2/4} \pm \frac{\omega_c}{2}, \quad k \text{ ungerade}, \quad (5.34)$$

die den erlaubten Einteilchen-Anregungen ($\Delta m = \pm 1$) des Schwerpunkt-Systems entsprechen. Insbesondere die dominanten Moden mit $k = 1$ werden häufig als *Kohnsche Moden* bezeichnet.

Für „Quantenpunkt-Helium“ ($N = 2$) haben Pfannkuche et al. (1993¹³¹) das Verallgemeinerte Kohnsche Theorem (VKT) diskutiert. Die Autoren zeigen durch Exakte Diagonalisierung des System-Hamiltonians und Betrachtung der FIR-Absorption, daß Korrelationseffekte bei einer Verletzung der Voraussetzungen des VKT wichtig werden.

Entscheidend – und vom konzeptionellen Standpunkt aus ermutigend – ist der Befund von Dobson (1994⁴⁰), daß auch das zeitabhängige Kohn-Sham-Verfahren mit lokalen Näherungen durch ein *harmonic potential theorem* (HPT) charakterisiert ist. Ausgehend vom Hamiltonian[†]

$$H = H_0 - \mathbf{F}(t) \cdot \sum_i \mathbf{r}_i, \quad H_0 = \sum_{i=1}^N \left[-\frac{\hbar^2}{2m^*} \nabla_i^2 + \frac{1}{2} \sum_i \mathbf{r}_i \cdot \mathcal{K} \cdot \mathbf{r}_i \right] + \hat{W}, \quad (5.35)$$

der eine zeitabhängige Ankopplung an die Schwerpunktskoordinate \mathbf{R} enthält und ein statisches, harmonisches Confinement mit Federkonstantenmatrix \mathcal{K} , konstruiert der Autor aus der Grundzustandsfunktion Ψ_0 des ungestörten Systems mit Dichte $n_0(\mathbf{r})$,

$$H_0 \Psi_0(\{\mathbf{r}_i\}) = E_0 \Psi_0(\{\mathbf{r}_i\}), \quad (5.36)$$

folgende Vielteilchenwellenfunktion:

$$\Psi_{\text{HPT}}(\{\mathbf{r}_i\}) = \exp \left[-iE_0 t / \hbar - iN S(t) + iN \frac{m^*}{\hbar} \frac{d\mathbf{x}}{dt} \cdot \mathbf{R} \right] \Psi_0(\{\tilde{\mathbf{r}}_i\}), \quad (5.37)$$

mit $S(t) = \hbar^{-1} \int_{t_0}^t dt' \frac{1}{2} m^* \dot{\mathbf{x}}(t') \cdot \mathcal{K} \cdot \mathbf{x}(t')$ und $\tilde{\mathbf{r}}_i = \mathbf{r}_i - \mathbf{x}(t)$. Der Vektor $\mathbf{x}(t)$ ist zunächst eine beliebige zeitabhängige Translation. Daraus erhält man die Gleichung⁴⁰

$$\left[i\hbar \frac{\partial}{\partial t} - H(\{\mathbf{r}_i\}, t) \right] \Psi_{\text{HPT}}(\{\mathbf{r}_i\}, t) = -N^{-1} [m^* \ddot{\mathbf{x}} + \mathcal{K} \cdot \mathbf{x} - \mathbf{F}(t)] \cdot \mathbf{R} \Psi_{\text{HPT}}(\{\mathbf{r}_i\}, t). \quad (5.38)$$

Somit erfüllt Ψ_{HPT} die zeitabhängige Schrödingergleichung, wenn $\mathbf{x}(t)$ der Bewegungsgleichung

$$m^* \ddot{\mathbf{x}} = -\mathcal{K} \cdot \mathbf{x} + \mathbf{F}(t) \quad (5.39)$$

genügt. Der zeitentwickelte Vielteilchenzustand läßt sich also direkt aus der Transformation (5.37) gewinnen, und für die Dichte gilt: $n(\mathbf{r}, t) = n_0(\tilde{\mathbf{r}}(t)) = n_0(\mathbf{r} - \mathbf{x}(t))$. Die Ladungsdichte beschreibt eine starre Bewegung, wie es das VKT vorhersagt.

Die nichtlinearisierten Hartree- und Austausch-Korrelations-Potentiale der zeitabhängigen Dichtefunktionaltheorie in lokaler Näherung sind dann aber genau gegeben durch $V_{\text{H}}(\mathbf{r}, t) = V_{\text{H}}[n_0(\mathbf{r}' - \mathbf{x}(t))](\mathbf{r}, t) = V_{\text{H}0}(\mathbf{r} - \mathbf{x}(t))$ und $V_{\text{xc}}(\mathbf{r}, t) =$

[†]Leider hat Dobson sein Theorem nur für den Fall $B = 0$ hergeleitet!

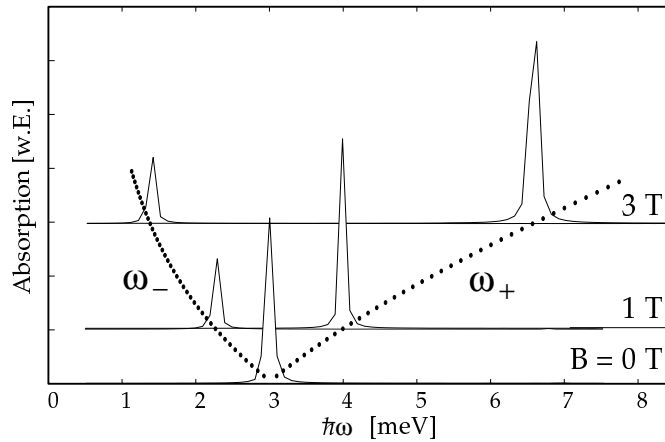


ABBILDUNG 5.1: Reproduktion des verallgemeinerten Kohnschen Theorems: FIR-Absorption eines Quantenpunktes mit $N = 4$ Elektronen im Confinement $\hbar\omega_0 = 3 \text{ meV}$ für $B = 0 \text{ T}$, 1 T und 3 T . Die Berechnung wurde in ALSDA durchgeführt. Bei 3 T ist der Grundzustand vollständig polarisiert.

$V_{xc}(n_0(\mathbf{r} - \mathbf{x}(t)))$. Die Lokalität von V_{xc} ist hier wichtig! Die entsprechenden KS-Orbitale lauten $\varphi_i(\mathbf{r}, t) = \exp[-iS(t) - i\varepsilon_i t/\hbar + i\frac{m^*}{\hbar}\dot{\mathbf{x}} \cdot \mathbf{r}] \varphi_{0i}(\mathbf{r} - \mathbf{x}(t))$. Linearisieren wir im Fall kleiner Amplituden \mathbf{x} die Wellenfunktion Ψ_0 , können wir schließen, daß die Linearisierung der adiabatischen LDA um den statischen KS-Grundzustand auch das HPT erfüllt.

Der SDFT-Zugang mit Spinfreiheitsgrad wird von Dobsons HPT ebenfalls erfaßt, da für die Transformation (5.37) gilt:

$$n_\sigma(\mathbf{r}, t) = \langle \Psi_{\text{HPT}}(t) | \hat{n}_\sigma(\mathbf{r}) | \Psi_{\text{HPT}}(t) \rangle = \langle \Psi_0 | \hat{n}_\sigma(\mathbf{r} - \mathbf{x}(t)) | \Psi_0 \rangle = n_{0\sigma}(\mathbf{r} - \mathbf{x}(t)); \quad (5.40)$$

die Austausch-Korrelations-Potentiale sind auch im Fall der adiabatischen LSDA lokal: $V_{xc\sigma}(\mathbf{r}, t) = V_{xc\sigma}(n_\uparrow(\mathbf{r}, t), n_\downarrow(\mathbf{r}, t)) = V_{xc\sigma}(n_\uparrow(\mathbf{r} - \mathbf{x}(t)), n_\downarrow(\mathbf{r} - \mathbf{x}(t)))$. An keiner anderen Stelle des HPT geht der Spinfreiheitsgrad sonst explizit ein. Wir erwarten also, daß im Grenzfall kleiner Impulsüberträge \mathbf{q} das VKT auch in unseren numerischen Ergebnissen in Erscheinung tritt. Das ist auch tatsächlich der Fall, wie Abb. 5.1 zeigt.

5.4 Summenregeln

Ein interessantes Konzept zur Analyse von Anregungsspektren ist die Methode der *Summenregeln*, die ursprünglich in der Kernphysik zur Berechnung von Riesenresonanzen in Atomkernen erfolgreich eingesetzt wurde. Dazu verweisen wir auf einen Übersichtartikel von Lipparini & Stringari (1989⁹⁶).

Für einen Störoperator F definieren wir zunächst die reellwertige *Stärkefunktion*

$$S(\omega) = \sum_{k>0} |\langle k | F | 0 \rangle|^2 \delta(\omega - \omega_k) \quad (\text{hier mit } \hbar = 1), \quad (5.41)$$

wobei $\omega_k = E_k - E_0$ und E_k die Energien der angeregten Zustände $|k\rangle$ des betrachteten Systems mit Hamiltonian H_0 sind. $S(\omega)$ ist formal äquivalent zum Raman-Streuquerschnitt (4.13).

Die Methode der Summenregeln benutzt die Momente der Stärkefunktion

$$m_p = \int_0^\infty d\omega S(\omega)\omega^p = \sum_{k>0} |\langle k|F|0\rangle|^2 \omega_k^p \quad (5.42)$$

(deren Summanden oft als „Oszillatorstärken“ bezeichnet werden); sie lassen sich für $p > 0$ auch schreiben als

$$\begin{aligned} m_p &= \sum_k \langle 0|F^\dagger|k\rangle \langle k|F|0\rangle \omega_k^p - \underbrace{\langle 0|F^\dagger|0\rangle \langle 0|F|0\rangle}_{=0} \omega_0^p \\ &= \sum_k \langle 0|F^\dagger|k\rangle \langle k|(H_0 - E_0)^p F|0\rangle = \langle 0|F^\dagger(H_0 - E_0)^p F|0\rangle. \end{aligned} \quad (5.43)$$

Diese Beziehung gilt auch für $p = 0$, falls $\langle 0|F|0\rangle = 0$. Kennt man alle Momente von $S(\omega)$, so kann die Stärkefunktion selbst durch jene dargestellt werden:

$$S(\omega) = \int_{-\infty}^\infty \frac{d\tau}{2\pi} e^{i\omega\tau} \sum_{p=0}^\infty \frac{(-i)^p}{p!} \tau^p m_p. \quad (5.44)$$

Dies ergibt sich aus der Fourier-Reziprozität, wenn die Fourier-Transformierte $\bar{S}(\tau)$ als Exponentialreihe geschrieben wird.

In der Praxis ist die Berechnung aller Momente unmöglich; jedoch genügen oft schon ein paar wenige, um charakteristische Eigenschaften des Anregungsspektrums zu ermitteln. Sie sind geeignet, mittlere Anregungsenergien der Form

$$\omega_{p,p-2} = \sqrt{m_p/m_{p-2}} \quad \text{und} \quad \omega_{p,p-1} = m_p/m_{p-1} \quad (5.45)$$

zu berechnen, die die Ungleichungen

$$\dots \geq \omega_{p,p-1} \geq \omega_{p,p-2} \geq \omega_{p-1,p-2} \geq \dots \quad (5.46)$$

erfüllen. Das Gleichheitszeichen gilt für den Fall, daß die gesamte Stärke in einem Übergang konzentriert ist.

Die Momente m_p mit $p > 0$ lassen sich durch Kommutatoren und Antikommutatoren ausdrücken. Gilt $F^\dagger = \pm F$, so folgt z.B. für $p = 1$:

$$\begin{aligned} m_1 &= \langle 0|F^\dagger(H_0 - E_0)F|0\rangle = \langle 0|F^\dagger \underbrace{F(H_0 - E_0)}_{=0}|0\rangle + \langle 0|F^\dagger[H_0, F]|0\rangle \\ &\stackrel{F^\dagger=\pm F}{=} \pm \frac{1}{2} \langle 0|[F, [H_0, F]]|0\rangle. \end{aligned} \quad (5.47)$$

Analog berechnen sich die Momente:

$$\begin{aligned} m_0 &= \pm \frac{1}{2} \langle 0|\{F, F\}|0\rangle - \langle 0|F|0\rangle^2, & m_2 &= \pm \frac{1}{2} \langle 0|\{[F, H_0], [H_0, F]\}|0\rangle, \\ m_3 &= \pm \frac{1}{2} \langle 0|[[F, H_0], [H_0, [H_0, F]]]|0\rangle. \end{aligned} \quad (5.48)$$

Ähnliche Relationen findet man auch für $p < 0$. Die Berechnung einiger mittlerer Anregungsenergien (5.45) durch Auswertung der Kommutatoren erlaubt in bestimmten Fällen die Rekonstruktion experimenteller Anregungsspektren (Lipparini & Stringari, 1989⁹⁶).

Für die Raman-Streuung lautet der effektive Störoperator $F = \sum_{i=1}^N e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i} = \sum_{i=1}^N [\cos(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i) + i \sin(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i)]$. Er ist zwar nicht hermitesch, aber da $S(\omega)$ reell ist, treten z.B. im Moment m_1 keine Mischterme zwischen Real- und Imaginärteil von F auf; man darf die Anteile daher separat auswerten:

$$\begin{aligned} m_1 &= \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \left\{ \langle 0 | [\cos(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i), [H_0^{(i)}, \cos(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i)]] | 0 \rangle + \langle 0 | [\sin(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i), [H_0^{(i)}, \sin(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i)]] | 0 \rangle \right\} \\ &= \frac{\hbar q^2}{2m^*} \sum_{i=1}^N \underbrace{\langle 0 | [\cos^2(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i) + \sin^2(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i)] | 0 \rangle}_{=1} = \frac{\hbar^2 q^2}{2m^*} N. \end{aligned} \quad (5.49)$$

Diese *Summenregel* gilt sowohl für P- wie D-Spektren, da der Spinoperator $\hat{\sigma}_z$ im Fall der D-Streuung quadriert wird. Gl. (5.49) ist eine wertvolle Information, die u.a. zum Test der numerischen Genauigkeit bei der Berechnung des Streuquerschnitts verwendet werden kann. Die Auswertung des Integrals über resonante Moden ω_k liefert also einen Wert, den man in einem klassischen Bild interpretieren kann als „Anzahl“ der an der jeweiligen Anregung beteiligten Elektronen bzw. als *Oszillatorstärke* der betrachteten Mode.

Interessanterweise erhält man für den Dipoloperator $F_{\text{Dipol}} = \sum_{i=1}^N \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i$ exakt dasselbe Resultat:

$$m_1 = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \langle 0 | [\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i, [H_0^{(i)}, \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i]] | 0 \rangle = \frac{\hbar^2 q^2}{2m^*} N. \quad (5.50)$$

Dies ist eine Formulierung der Thomas-Reiche-Kuhn-Summenregel.

KAPITEL 6

Der Raman-Streuquerschnitt für Wenig-Elektronen-Quantenpunkte

In diesem Kapitel präsentieren wir die numerischen Ergebnisse der Response-Rechnung für die (nichtresonante) Raman-Streuung an spinpolarisierten Quantenpunkten. Von zentralem Interesse ist dabei die Frage, inwiefern sich die endliche Spinpolarisation des Grundzustandes auf den Streuquerschnitt auswirkt, und auf welche Weise diese Spin-Effekte im Experiment identifiziert werden können.

6.1 Vergleich der linearen Antwort in Hartree-Näherung (RPA), ALDA und ALSDA

Die elektrostatische Abschirmung der elektronischen Anregungen und Austausch-Korrelations-Effekte beeinflussen das Raman-Spektrum erheblich. Um einen Eindruck von diesem Effekt zu erhalten, vergleichen wir in Abb. 6.1 Spektren in polarisierter Streugeometrie bei $B = 0\text{T}$ für ein System mit $N = 4$ Elektronen, einmal ohne Wechselwirkung (a), eine selbstkonsistente Hartree-RPA-Rechnung (b), in der sowohl in der Grundzustands- wie in der Response-Berechnung Austausch und Korrelation unberücksichtigt bleiben, sowie Spektren in ALDA (c) und ALSDA (d).

In Abb. 6.1 (a) erkennt man für einen hohen Impulsübertrag q die Anregung vieler Moden, die aus einzelnen Einteilchen-Übergängen innerhalb des Oszillator-Spektrums (3.6) hervorgehen. Konsequenterweise sind diese Moden alle bei Vielfachen der Confinement-Energie $\hbar\omega_0$ zu finden. Die Änderung der Einteilchen-Drehimpuls-Quantenzahl m ist durch ℓ gegeben. Bei einem kleinen Impulsübertrag von $q = 0.1 a_0^{-1} \approx 0.01 \text{ nm}^{-1}$ (der Quantenpunktradius beträgt etwa $R \approx 2 a_0$) werden hauptsächlich die entarteten Dipol-Moden $\hbar\omega_{\pm} = \hbar\omega_0$ angeregt. In diesem Grenzfall kann man das Verallgemeinerte Kohnsche Theorem (VKT, Abschnitt 5.3) gut reproduzieren: Hartree-RPA, ALDA und ALSDA haben (bis auf eine schwache Anregung anderer Moden mit $\ell = \pm 2$ und $\ell = 0$) im wesentlichen eine Mode bei $\hbar\omega_0 = 3 \text{ meV}$, und das, obwohl durch das Hartree-Potential der mittlere Schalenabstand des effektiven KS-Spektrums deutlich kleiner (ca. 2 meV) ist!

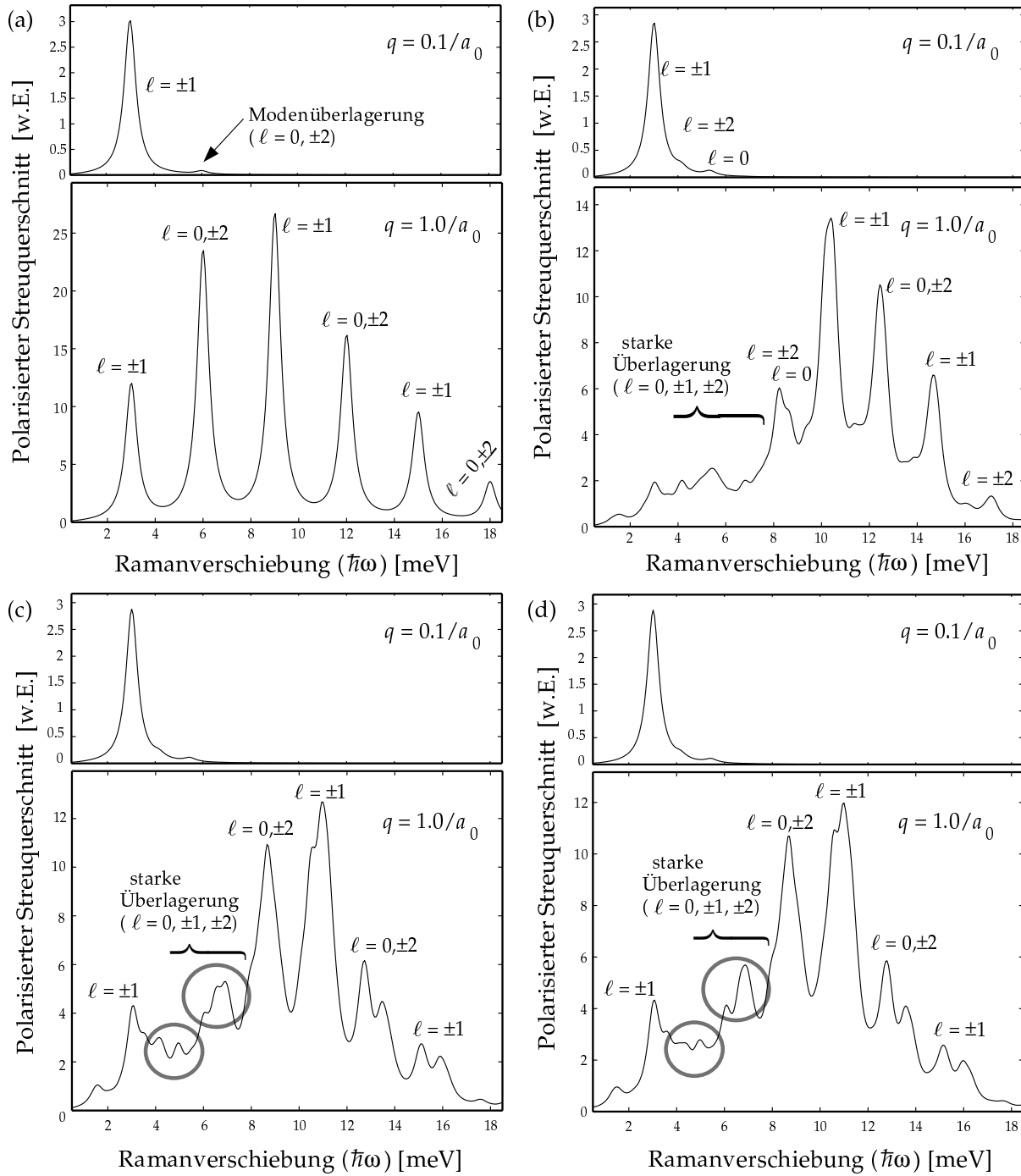


ABBILDUNG 6.1: Polarisierte Raman-Spektren für $N = 4$ Elektronen bei $B = 0\text{T}$ in einem harmonischen Confinement mit $\hbar\omega_0 = 3\text{ meV}$. (a) Nichtwechselwirkendes System. (b) Hartree-Rechnung (RPA). (c) ALDA. (d) ALSDA. — Bei kleinem Impulsübertrag ($q = 0.1 a_0^{-1}$) sind die Voraussetzungen des VKT nahezu erfüllt und man beobachtet hauptsächlich die Kohnsche Mode bei $\hbar\omega_0$. Große Impulsüberträge ($q = 1.0 a_0^{-1}$) führen zur Anregung vieler neuer Moden, die im Fall (a) genau Vielfachen von $\hbar\omega_0$ entsprechen. Die grauen Markierungen weisen auf Unterschiede zwischen (c) und (d) hin. (Die Verbreiterung beträgt $\Gamma = 0.3\text{ meV}$.)

Kollektive Phänomene durch die Wechselwirkung werden erst bei größerem q dominant: In Abb. 6.1 (b) führt die Hartree-Komponente des selbstkonsistenten Störpotentials δV_H zu einer Verschiebung der Modenenergien nach höheren Energien. Diese *Depolarisations-Verschiebung* ist besonders deutlich für die vier stärksten Moden, die von 6.0 auf 8.5, von 9.0 auf 10.5 und von 12 auf 12.5 meV verschoben werden. Die Mode bei 15 meV bleibt nahezu an derselben Stelle. Daneben gibt es eine Vielzahl schwächerer Moden im Bereich um die ehemalige Dipolmode, die sich stark überlagern.

Austausch und Korrelationen bewirken theoretisch eine gegenläufige Tendenz: Die Moden erleiden eine *exzitonische Verschiebung* hin zu kleineren Energien. In polarisierter Streugeometrie ist dies jedoch nur bedingt zu beobachten, da das dominante Hartree-Potential in der selbstkonsistenten Lösung der Responserechnung diesen Effekt zunichte macht. Exzitonische Verschiebungen sind daher am besten in depolarisierten Spektren zu sehen. Trotzdem weisen die ALDA-/ALSDA-Spektren gravierende Unterschiede im Vergleich mit der RPA auf, die einerseits aus den unterschiedlichen KS-Zuständen, aber auch aus der modifizierten selbstkonsistenten Response erwachsen. So sind z.B. die Moden mit $\ell = 0$ und $\ell = \pm 2$ bei einer Energie von ca. 13 meV aufgespalten (c, d), während die entsprechenden Moden in der RPA-Rechnung (b) praktisch aufeinander fallen.

Obwohl die Differenzen zwischen ALDA- und ALSDA-Streuquerschnitten sehr gering ausfallen, handelt es sich um Korrekturen, die eindeutig auf den Umstand zurückzuführen sind, daß bei $B = 0$ T der 4-Elektronen-Quantenpunkt zwei ungepaarte Spins beinhaltet. Die Unterschiede zwischen Abb. 6.1 (c) und (d) stellen also Austausch-Korrelations-Effekte durch die *endliche Spindichte* des Grundzustandes dar, die z.B. im Fall $N = 6$ nicht auftreten können, weil der zugehörige Grundzustand unpolarisiert ist.

6.2 Raman-Spektren im Magnetfeld

Um spinbezogenen Austausch-Korrelations-Effekten auf die Spur zu kommen, betrachten wir nun einen Quantenpunkt mit $N = 8$ Elektronen in einem variablen Magnetfeld B zwischen 0 und 3 T. In diesem Bereich kann man sowohl Spineffekte durch Niveaufkreuzungen beobachten als auch den Übergang zu einem vollständig spinpolarisierten Grundzustand [Abb. 6.2 (a,b)]. Wir konzentrieren uns zunächst auf den Bereich um $B = 1$ T, in welchem die Grundzustandskonfiguration $(M, 2S) = (-8, 2)$ eine endliche Spindichte und daher eine Spinaufspaltung der KS-Niveaus aufweist [Abb. 6.2 (c)]. Die Pole der nackten Suszeptibilität $\chi_{\sigma\ell}^{(0)}$ sind durch die Übergänge zwischen Zuständen mit gleichem Spin und einer Änderung der Drehimpulsquantenzahl m von $\Delta m = \ell$ gegeben. Betrachten wir den gesamten Streuquerschnitt in Abb. 6.2 (d), der sich aus dieser unrenormierten Responsefunktion ergibt, so kann man jedes Maximum bestimmten Übergängen zuordnen, deren Energiedifferenz gerade $\hbar\omega$ entspricht. Diese Anregungen bezeichnen wir als *Einteilchen-Anregungen* oder SPE. Ihre Spektren sind identisch für P- und D-Geometrie, da

$$\begin{aligned} \delta n_{\uparrow}(\mathbf{r}) \pm \delta n_{\downarrow}(\mathbf{r}) &= \int d^2r' \left[\chi_{\uparrow}^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) v_{0\uparrow} \pm \chi_{\downarrow}^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) v_{0\downarrow} \right] e^{iq \cdot \mathbf{r}'} \\ &= \int d^2r' \left[\chi_{\uparrow}^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) + \chi_{\downarrow}^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \right] v_0 e^{iq \cdot \mathbf{r}'} \end{aligned} \quad (6.1)$$

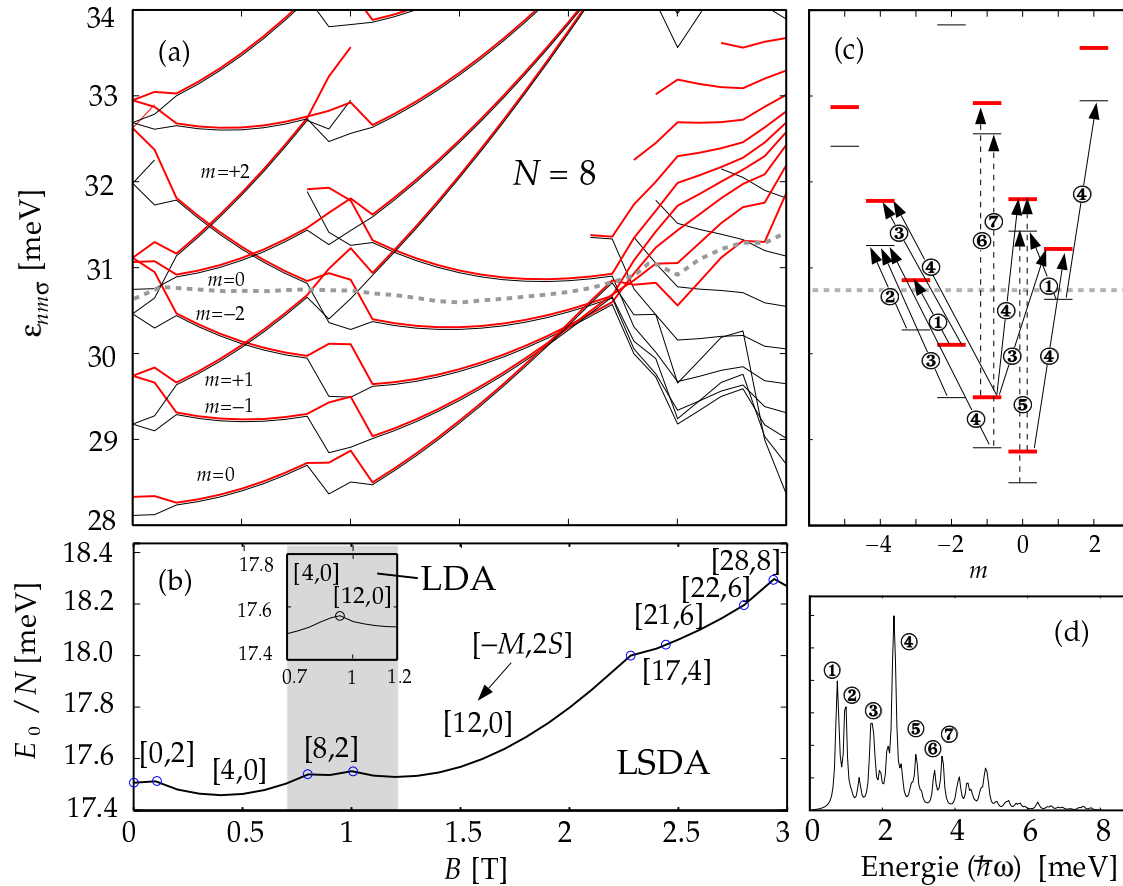


ABBILDUNG 6.2: KS-Einteilchenspektrum (a) für einen Quantenpunkt mit $N = 8$ Elektronen in einem Einschlußpotential $\hbar\omega_0 = 3$ meV im Magnetfeld von 0 bis 3 T. Die verallgemeinerte Hund'sche Regel führt zu spinpolarisierten Grundzuständen mit $2S = 2$ bei $B = 0$ und bei $B \approx 1$ T. In diesem Bereich unterscheiden sich die LDA- und LSDA-Ergebnisse für die Grundzustandsenergie und -konfiguration $(-M, 2S)$ (b). In (c) sind die Einteilchen-Niveaus für $B = 1$ T nach ihrem Drehimpuls m und Spin (\uparrow —, \downarrow —) aufgeschlüsselt. Die Pfeile beziehen sich auf beispielhafte Einteilchen-Übergänge, die zu den mit Nummern markierten Peaks im „nackten“, also unrenormierten Raman-Spektrum (d) führen.

mit $v_0 = v_{0\uparrow} = \pm v_{0\downarrow}$ für P- bzw. D-Streuung. Dies ist in Gl. (5.29) einzusetzen.*

In Abb. 6.2 sind einige Strukturen im Raman-Spektrum durch Nummern (①–⑦) entsprechenden Niveau-Übergängen zugewiesen; allerdings kommt es häufig vor, daß mehrere Übergänge energetisch eng zusammenliegen und kaum aufgelöst werden können, z.B. die Übergänge ④, die Änderungen der Quantenzahlen ($\Delta m = 1, \Delta n = 1$) bzw. ($\Delta m = -3, \Delta n = 0$) involvieren. Zunächst stellt man fest, daß gewisse Übergänge aufgrund der asymmetrischen Besetzungsverhältnisse nur für eine Spinrichtung

*Diese SPE sind zu identifizieren mit denjenigen aus Kapitel 4, wir erhalten sie allerdings nur in der wechselwirkungsfreien Resonanzrechnung, da die Resonanzverstärkung mittels der exakten Energienenner in Gl. (4.10) nicht berücksichtigt wird. Die Wechselwirkung modifiziert das gesamte Anregungsspektrum.

erlaubt sind; beispielsweise ist der Übergang ① aus dem Drehimpulszustand $m = -2$ nur für $\sigma = \downarrow$ möglich, aus dem Zustand $m = 1$ dagegen nur für $\sigma = \uparrow$. Zum Raman-Peak ② trägt nur der Übergang $(n, m, \sigma) = (0, -3, \uparrow) \rightarrow (0, -4, \uparrow)$ etwas bei. Im Peak ③ sind Übergänge mit $(\Delta m = -2, \Delta n = 1)$ (für beide Spinrichtungen) und $(\Delta m = 2, \Delta n = 0)$ für $\sigma = \downarrow$ beteiligt. Aber auch für paarweise Übergänge spielt die Austausch-Energielücke zwischen den Niveaus eine Rolle: Während für die Übergänge ⑤ mit $\Delta m = 0$ kaum ein Unterschied in den Übergangsenergien für die beiden Spins zu erkennen ist, führt die veränderliche Spinaufspaltung zu einer Doppelpeak-Struktur ⑥/⑦.

Die Kopplung der Spinkomponenten durch die Wechselwirkung hat eine Mischung der Anregungen zur Folge, die gerade diese Spinaufspaltung im Raman-Spektrum zu einem Teil wieder aufhebt. Dies wollen wir anhand des direkten Vergleichs einer spinunabhängigen LDA/ALDA-Rechnung (also LDA-Grundzustand mit ALDA-Responserechnung) und der LSDA/ALSDA diskutieren. Die Aufschlüsselung des Raman-Spektrums in Abb. 6.3 nach den Moden mit $\ell = 0, \pm 1$ und ± 2 (höhere Moden tragen nur noch kaum etwas zum Streuquerschnitt bei) erlaubt eine detaillierte Analyse der Wechselwirkungseffekte.

Die kollektiven Anregungen in P-Streugeometrie [Abb. 6.3 (a)] sind von der Position der SPE aus zu höheren Energien hin verschoben (Depolarisationsverschiebung), was bereits von unpolarisierten Systemen her wohlbekannt ist. Dies ist konsistent mit Anregungen, die hauptsächlich vom CDE-Typ sind, also stark von Hartree-Korrekturen bestimmt werden. Aufgrund des VKT sind die dominanten Kohnschen Moden ($\ell = \pm 1$) bei $\omega_{\pm} = \omega_h \pm \omega_c/2$ zu finden, gekennzeichnet durch „ K_{\pm} “. Da der Impulsübertrag von $q = 0.04 \text{ nm}^{-1}$ in der Größenordnung des inversen Quantenpunkt-Radius' ($R \approx 50 \text{ nm}$) liegt, treten zusätzliche Dipol-Moden für $\hbar\omega > 6 \text{ meV}$ auf [dies liegt an der örtlichen Variation der Bessel-Funktion $J_1(qr)$ in Gl. (5.17), die im Bereich $r < R$ bereits deutlich von ihrer linearen Approximation für $r \rightarrow 0$ abweicht].

Die Moden in den D-Spektren liegen bei etwas kleineren Energien als die entsprechenden SPE. Diese bereits erwähnte exzitonische Verschiebung ist ein Austausch-Korrelations-Effekt, der auch in den Experimenten von Schüller et al. (1996¹⁵⁴) klar beobachtet wird und auf eine SDE-dominierte Anregungsform hinweist. In Quantenfilmen wurde dieser Unterschied zwischen SPE und SDE erstmals durch Pinczuk et al. (1989¹³⁹) und Gammon et al. (1990⁵¹) experimentell nachgewiesen. Auch in Responserechnungen für Quantendrähte im Rahmen einer zeitabhängigen Hartree-Fock-Methode können diese Korrekturen beschrieben werden (Brataas et al., 1997¹⁸). Die zusätzliche Austausch-Korrelations-Korrektur durch die Spindichte in der ALSDA-Rechnung verringert die Energie der Moden in D-Geometrie noch weiter, wie z.B. für $\ell = -1$ in Abb. 6.3 (b), markiert durch einen Stern (*), zu sehen. Die Spinaufspaltung des Energiespektrums, die an der entsprechenden Stelle in (c) ganz deutlich hervortritt, ist hier allerdings nur noch schwach erkennbar, da die betreffenden Oszillatorstärken extrem differieren.

Insbesondere die CDE-dominierten Anregungen haben einen ausgesprochen *kollektiven Charakter* – sie können keiner speziellen SPE zugeordnet werden. Interessanterweise sind aber auch die korrespondierenden Peaks des D-Spektrums in ALDA und ALSDA nicht systematisch mit den zugrundeliegenden Einteilchen-Energieniveaus in Verbindung zu bringen. So ist in den meisten Fällen die Spinaufspaltung des LSDA-

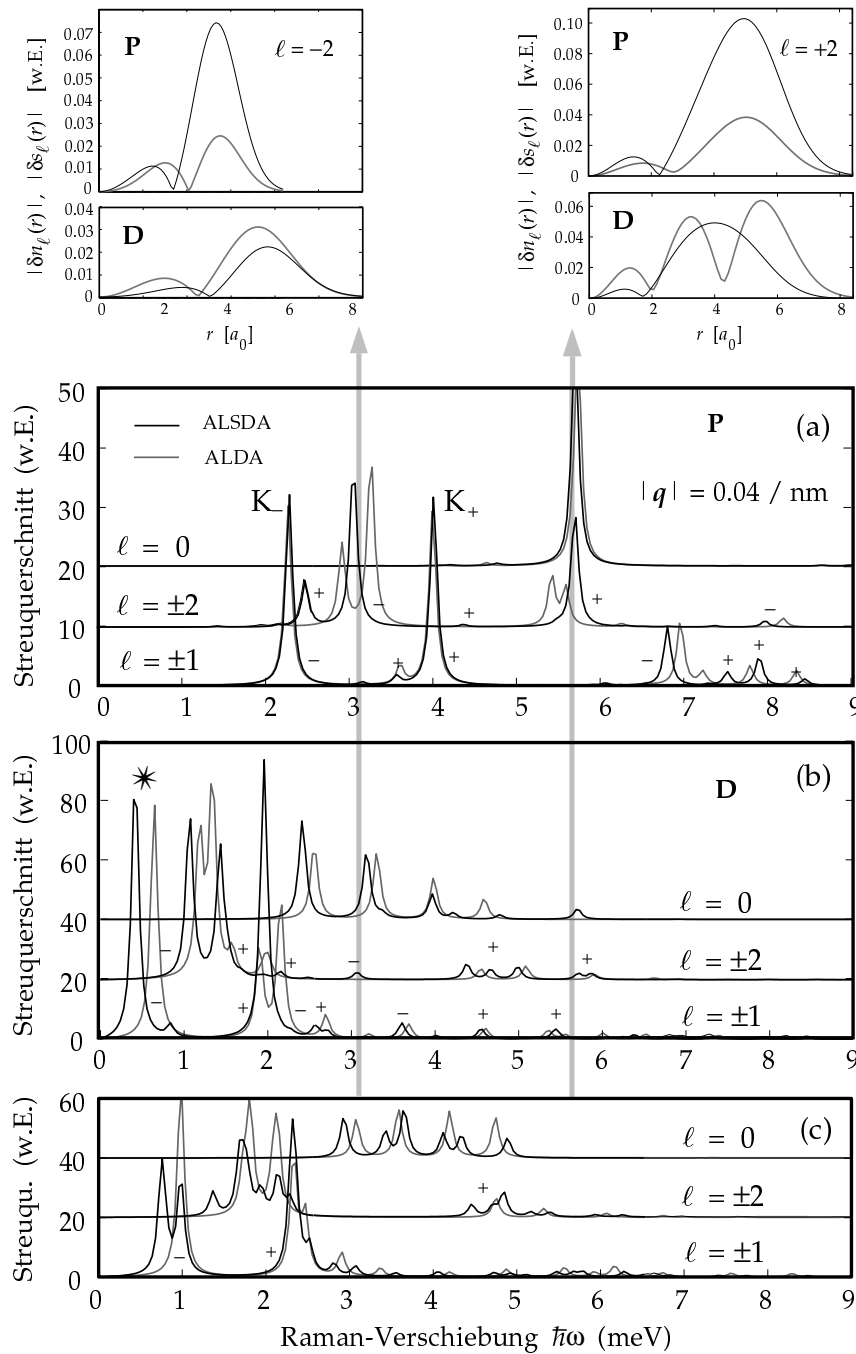


ABBILDUNG 6.3: Raman-Spektren für $N = 8$ bei $B = 1 T$, aufgeschlüsselt nach den Multipol-Komponenten ℓ , mit einem Impulsübertrag von $q = 0.4a_0^{-1} \approx 0.04 \text{ nm}^{-1}$ ($\Gamma = 0.05 \text{ meV}$). Neben den Peaks stehen die Vorzeichen der Moden (\pm). (a) Polarisiertes Raman-Spektrum in ALDA ($\color{red}{\text{---}}$) bzw. ALSDA (---). (b) Entsprechende depolarisierte Spektren. (c) Einteilchen-Anregungen gewonnen aus der nackten Suszeptibilität $\chi_{\sigma\ell}^{(0)}$. Für die gekoppelten CDE und SDE bei 3.2 meV und 5.6 meV (Pfeile) sind oben die Quadrupolanteile der induzierten Änderungen von Spindichte ($\color{red}{\text{---}}$) und Ladungsdichte (---) in polarisierter und depolarisierter Geometrie (P/D) abgebildet.

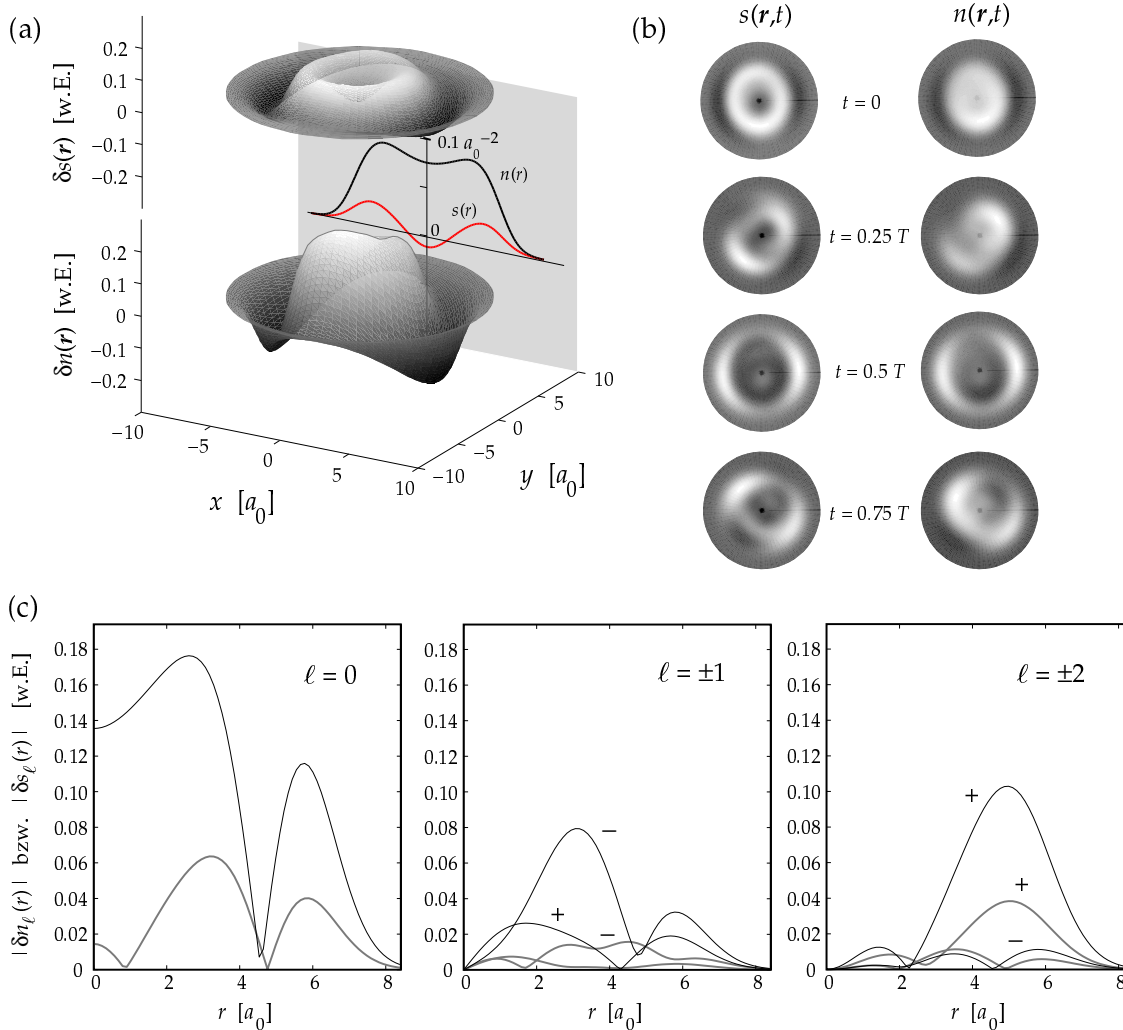


ABBILDUNG 6.4: Induzierte Ladungs- und Spindichten in polarisierter Streugeometrie für $N = 8$ und $B = 1 \text{ T}$ bei einer Energie $\hbar\omega = 5.6 \text{ meV}$ und $q = 0.4 a_0^{-1}$: (a) Vergleich der Realteile von $\delta n(\mathbf{r}, t)$ und $\delta s(\mathbf{r}, t)$ zur Zeit $t = 0$ (im Hintergrund die Grundzustands-Dichteprofile). (b) Momentaufnahmen (Sicht von oben) von $s(\mathbf{r}, t)$ (links) und $n(\mathbf{r}, t)$ (rechts) zu jedem Viertel einer Periode T . (c) Vergleich der Absolutwerte der induzierten Dichtekomponenten $\delta n_\ell(\mathbf{r}, \omega)$ (—) und $\delta s_\ell(\mathbf{r}, \omega)$ (—) für $\ell = 0, \pm 1$ und ± 2 .

Einteilchen-Spektrums im Raman-Spektrum kaum wiederzufinden – dagegen sieht man neue Strukturen kollektiver Natur.

Unterschiede zwischen ALDA und ALSDA zeigen eine simultane Anregung von Spin- und Ladungsdichte an. Die relativen Amplituden der simultanen CDE und SDE in polarisierter Geometrie sind in Abb. 6.4 am Beispiel einer Raman-Verschiebung von $\hbar\omega = 5.6 \text{ meV}$ gegenübergestellt. Bei einem Impulsübertrag von $q = 0.4 a_0^{-1}$ werden mehrere Multipol-Komponenten angeregt. In Abb. 6.4 (a) sind die Realteile der Dichteänderungen zur Zeit $t = 0$ dargestellt, die sich aus Überlagerung der verschiedenen Multipol-Anteile ergeben. Dabei sind die Amplituden im korrekten Verhältnis zuein-

ander dargestellt. Man erkennt, daß die Dichteänderungen im Bereich eines hohen Gradienten der Grundzustandsdichten besonders groß sind. Dies sind Relikte einer starren Schwerpunktsbewegung, die sich im Grenzfall kleiner Amplituden aus der linearen Näherung

$$\delta n_{\text{SP}}(\mathbf{r}, t) = -\nabla n(r) \cdot \delta \mathbf{r}(t), \quad \delta s_{\text{SP}}(\mathbf{r}, t) = -\nabla s(r) \cdot \delta \mathbf{r}(t) \quad (6.2)$$

berechnen läßt, wobei $\delta \mathbf{r}(t)$ die Bahn des Schwerpunkts beschreibt. Für den Gültigkeitsbereich des VKT ($q < 0.1 a_0^{-1}$) ergibt der Vergleich der so erhaltenen Dichteänderungen eine sehr gute Übereinstimmung mit der numerischen Lösung.

Vier herausgegriffenene Momentaufnahmen von $s(\mathbf{r}, t)$ und $n(\mathbf{r}, t)$ zu den Zeiten $t = 0T, 0.25T, 0.5T$ und $0.75T$ (mit $T = 2\pi/\omega$) sind in Abb. 6.4 (b) zu sehen. Der dominanten *breathing mode* ist eine Dipol- und Quadrupol-Schwingung überlagert. Dies führt neben der „atmenden“ Bewegung zu einer asymmetrischen Deformation. Das endliche Magnetfeld bricht die Symmetrie zwischen +- und --Moden, weshalb die Dichte eine rotierende Bewegung ausführt, die hauptsächlich durch die $\ell = +2$ -Mode bestimmt ist. Das Verhältnis der Absolut-Beträge der (komplexen) induzierten Dichteänderungen $\delta s_\ell(r, \omega)$ und $\delta n_\ell(r, \omega)$ kann bis zu 30% ausmachen (c). Die Vernachlässigung der Spindichte-Anregung in polarisierter Geometrie ist deshalb nicht mehr zu rechtfertigen. Ähnliche Ergebnisse finden wir für die D-Geometrie mit dominanten Spindichte-Anregungen.

Während bei $B = 1\text{ T}$ zwar eine Kopplung von CDE und SDE in den induzierten Dichteänderungen klar erkennbar ist, erhält man aus den Peakpositionen in Abb. 6.3 nur sehr geringe Hinweise auf eine Modenkopplung: Die $\ell = -2$ -Mode in P-Geometrie (a) bei ca. 3 meV ist korreliert mit einer schwachen äquivalenten Anregung derselben Energie in D-Geometrie (b). Dasselbe gilt für die CDE-dominierten Moden unterhalb von 6 meV ($\ell = 0, 2$). Im Gegensatz dazu findet man praktisch keine Anregungen in P-Geometrie, wo die Hauptmoden des D-Spektrums liegen. Offenbar ist in den meisten Fällen die Anregung der *Ladungsdichte* in D-Geometrie wesentlich geringer ausgeprägt als die Anregung der *Spindichte* in P-Geometrie. Das ist in einem vereinfachten Bild – bei Vernachlässigung der Unterschiede in den orbitalen Wellenfunktionen für die zwei Spinrichtungen aufgrund der spinabhängigen Austausch-Korrelations-Potentiale – plausibel, da ja die ungepaarten Überschuß-Spins im System die wesentliche Ursache für Spindichteschwingungen im Fall einer äußeren Ankopplung an die Ladungsdichte (P-Geometrie) sind. Ihre Spindichte kann von den anderen (gepaarten) Elektronen nicht kompensiert werden. Umgekehrt kann in D-Geometrie bei Ankopplung an die Spindichte (vereinfacht gesprochen: an die zwei ungepaarten Elektronen) die Ladung aller Elektronen zur Kompensation von Ladungsdichteverchiebungen durch innere Umverteilung beitragen. Das heißt, daß die Eigenmoden des Systems, die vergleichbar starke Spin- und Ladungsdichte-Anregungen beinhalten, hauptsächlich bei den Peakpositionen des P-Spektrums zu finden sind. Sie erzeugen Nebenmoden im D-Spektrum, dessen dominante Moden wiederum meist nahezu „reine“ SDE darstellen. Dies ist konsistent mit unserer Beobachtung, daß die Kopplungseffekte die D-Spektren deutlicher modifizieren als die P-Spektren. In Abb. 6.3 sind die Quadrupolmomente der induzierten Spin- und Ladungsdichteänderungen für die gekoppelten Moden bei 3.2 meV und 5.6 meV explizit abgebildet, die diesen Sachverhalt veranschaulichen.

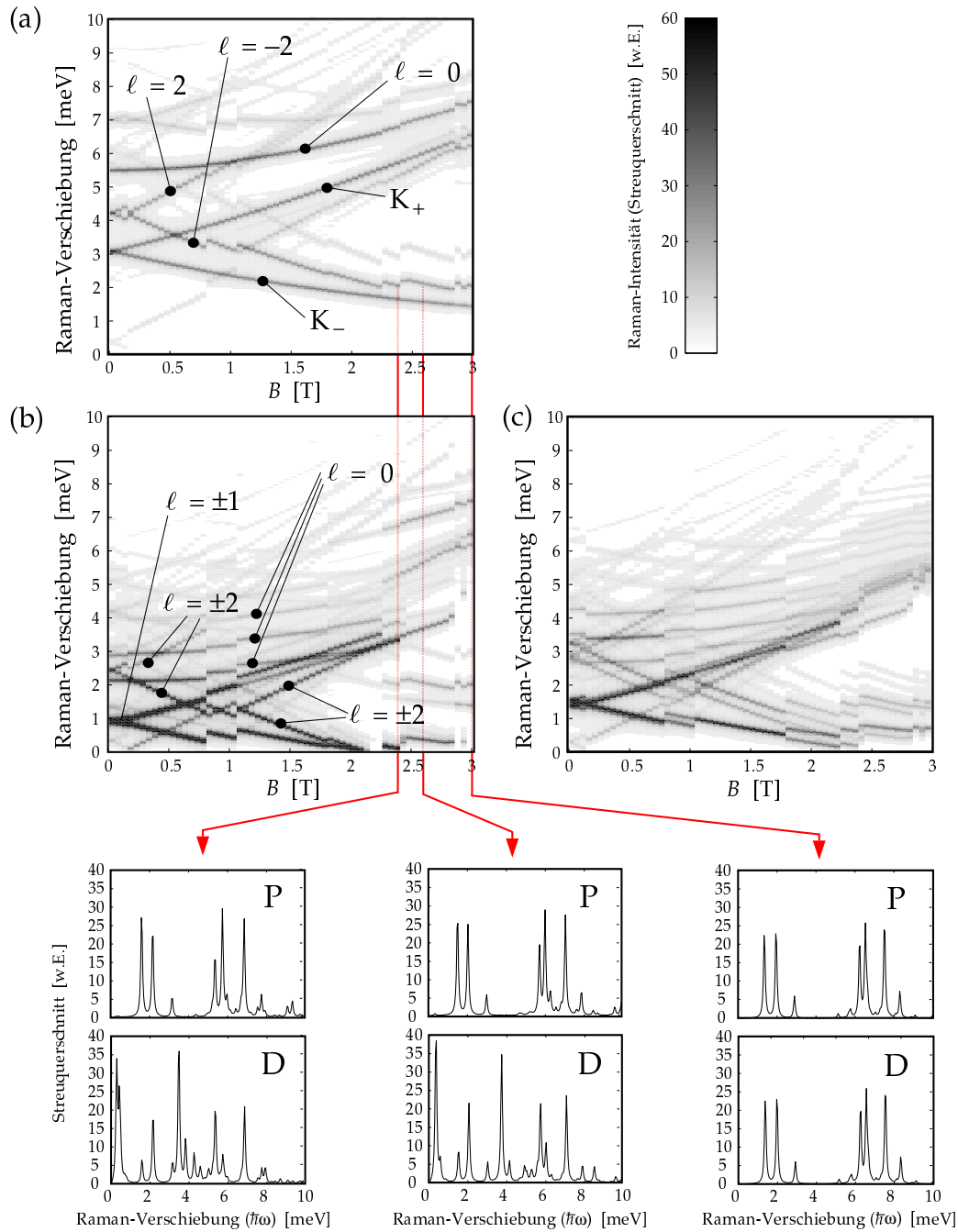


ABBILDUNG 6.5: Graustufen-Plot der Raman-Intensitäten für $N = 8$ im Bereich $B = 0$ T bis 3 T: (a) P-Spektrum in ALSA. Die Kohnschen Moden ω_{\pm} sind durch K_{\pm} markiert. (b) D-Spektrum in ALSA. (c) Einteilchen-Spektrum berechnet aus $\chi_{\sigma}^{(0)}$. — Darunter sind die Spektren für die Magnetfelder $B = 2.4$ T, 2.6 T und 3.0 T abgebildet, in denen die zunehmende Kopplung von CDE und SDE beim Übergang zum vollständig spinpolarisierten Grundzustand ersichtlich wird.

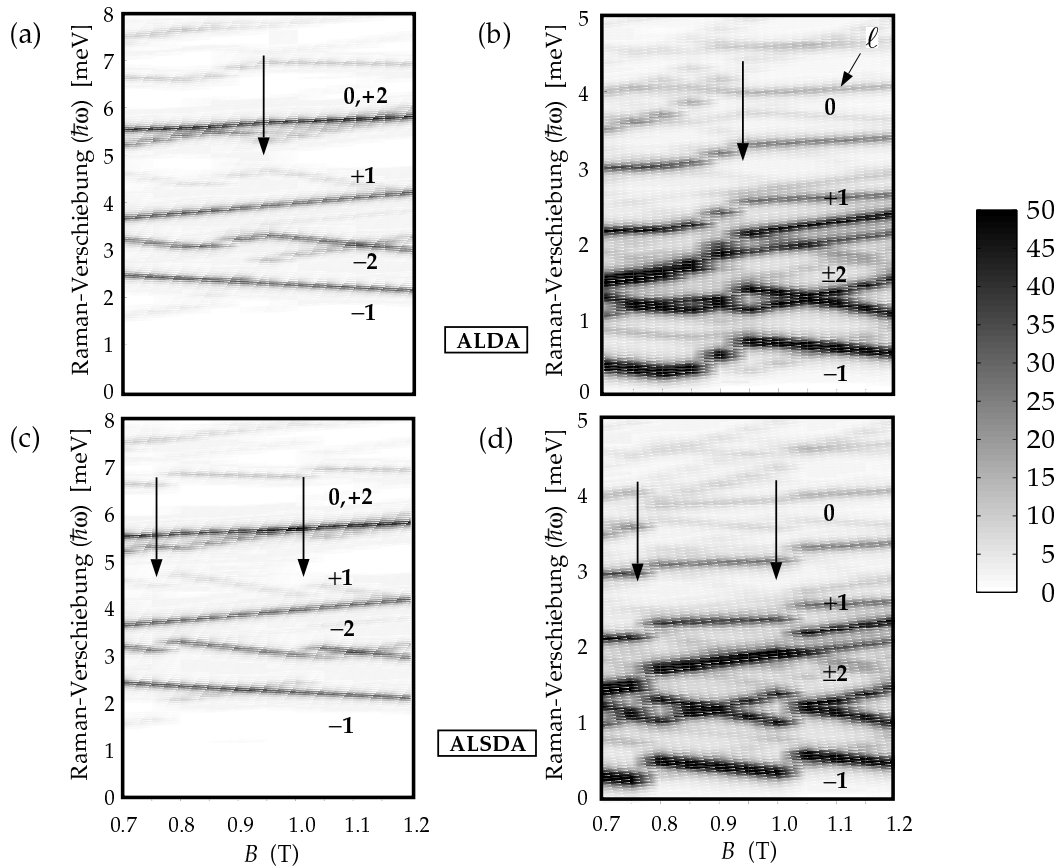


ABBILDUNG 6.6: Graustufen-Plot der Raman-Intensitäten für $N = 8$ im Bereich $B = 0.7\text{ T}$ bis 1.2 T : (a) P-Spektrum in ALDA. (b) D-Spektrum in ALDA. (c) P-Spektrum in ALSDA. (d) D-Spektrum in ALSDA. Die Pfeile markieren die im Text diskutierten Grundzustandsübergänge.

Durch Angleichen der Ladungs- und Spindichte im Grundzustand verstärkt sich der Kopplungseffekt beider Anregungsformen. Im Magnetfeldbereich von 0 bis 3 T läßt sich der Übergang in den vollständig polarisierten Grundzustand, $n(\mathbf{r}) = s(\mathbf{r})$, im Hochfeld-Limes verfolgen. In Abb. 6.5 ist dieser Übergang für die P- (a) und D-Spektren (b), sowie für die nackten Einteilchen-Anregungen aus der freien Responsefunktion $\chi_{\sigma}^{(0)}$ (c) dargestellt. Wiederum lassen sich Instabilitätsbereiche erkennen, die exakt mit den Grundzustandsübergängen in Abb. 6.2 (b) zusammenhängen. Darunter sieht man die zunehmende Kopplung der Moden in den explizit dargestellten Raman-Spektren für $B = 2.4\text{ T}$ ($2S = 4$), $B = 2.6\text{ T}$ ($2S = 6$) und $B = 3\text{ T}$ ($2S = 8$). Im Fall identischer Spin- und Ladungsdichte stimmen die Raman-Spektren ideal überein.

Die P-Spektren (a) belegen noch einmal ganz deutlich die Reproduzierbarkeit des Kohnschen Theorems in ALSDA; die Moden K_{\pm} zeigen – im Gegensatz zu der dominanten *breathing mode* $\ell = 0$ und den Quadrupol-Moden – keine Wechselwirkungsabhängigkeit. Vergleicht man diese Spektren mit den SPE (c), erkennt man die Depolarisationsverschiebung der kollektiven Moden zu höheren Energien. Dagegen sind die D-Spektren (b) zu niedrigeren Energien verschoben. Insgesamt sind sie jedoch weniger durch die Wechselwirkung beeinflusst, wie man auch daraus ersehen kann, daß

die vielen $\ell = 0$ -Moden des SPE-Spektrums auch in (b) zu sehen sind, während (a) nur eine starke Mode aufweist.

Die Spinaufspaltung vieler Moden im SPE-Spektrum um 1 T und ab 2 T infolge der endlichen Grundzustands-Spindichte ist in den D-Spektren meist nicht beobachtbar. Wie bereits in Verbindung mit Abb. 6.3 (b, *) diskutiert, ist die stark unterschiedliche Oszillatorstärke der Moden dafür verantwortlich. In Abschnitt 6.4 wird noch im Detail gezeigt, daß die Wechselwirkung tendenziell zu einer *Konzentration* von Oszillatorstärke in wenigen Moden führt.

Abb. 6.6 stellt einen vergrößerten Graustufen-Plot der berechneten Raman-Intensität für den kritischen Magnetfeldbereich um 1 T dar, in welchem die Grundzustandskonfiguration ($M, 2S$) wechselt. In ALDA (a, b) findet man einen Übergangspunkt bei ca. 0.95 T, wenn sich die Konfiguration von $(-4, 0)$ nach $(-12, 0)$ ändert [vgl. den schattierten Bereich in Abb. 6.2 (b)]. Dieser Übergang spiegelt sich in einem kuspentförmigen Maximum der Moden-Energie für $\ell = -2$ in P-Geometrie (a) und für $\ell = -1$ in D-Geometrie (b) wider. Da in der depolarisierten Streugeometrie kein Kohnsches Theorem gilt, zeigen die $\ell = \pm 1$ -Moden eine komplizierte Struktur. Die Aufspaltung der $\ell = \pm 2$ -Moden weist außerdem auf eine Instabilität der Anregungen aus dem Grundzustand am Übergangspunkt (Pfeil) hin. Die ALSDA-Spektren (c, d) enthalten dagegen zwei Instabilitätszonen bei 0.75 T und 1.0 T (durch Pfeile markiert), die mit den Grundzustandsübergängen $(M, 2S) = (-4, 0) \rightarrow (-8, 2) \rightarrow (-12, 0)$ verbunden sind. Die Abbildung zeigt, daß diese Spinstrukturen in D-Geometrie wesentlich klarer hervortreten, da die Hartree-Korrekturen geringer ausfallen. Hier erkennt man ein „Aufweichen“ (*softening*) der niederenergetischen Dipol-Mode ($\ell = -1$), also eine Absenkung ihrer Energie.

Der Effekt des *mode softening* ist in Abb. 6.5 (b) auch deutlich für $B = 2.3$ T und 2.5 T zu sehen, wo die Modenenergie gänzlich verschwindet. Diese Magnetfelder entsprechen den Grundzustandsübergängen $(M, 2S) = (12, 0) \rightarrow (17, 4)$ bzw. $(17, 4) \rightarrow (21, 6)$.

Kürzlich berichteten Pellegrini et al. (1997¹²⁶) über die experimentelle Beobachtung eines soft-mode-Verhaltens bei Spindichte-Anregungen in gekoppelten doppellagigen 2DEG-Präparaten. Durch die Doppel-Quantenfilm-Struktur können Elektronen vom energetisch tiefsten, in vertikaler Richtung symmetrischen Zustand in den nächstliegenden, antisymmetrischen Zustand umverteilt werden (Inter-Subband-Übergang). Bei Elektronendichten, die mit einem geraden Füllfaktor verknüpft sind, geht die Energie der Inter-Subband-SDE nahezu vollständig zu Null. Die Autoren führen dies auf die Magnetfeldabhängigkeit des Phasenraumanteils zurück, der für die betrachteten Anregungen zur Verfügung steht. Für $\nu = 2$ ist dieser besonders groß, da sich alle Elektronen im symmetrischen Zustand befinden und daher alle am Inter-Subband-Übergang teilhaben können. Dadurch, so die Autoren, werde die (energieabsenkende) Austausch-Korrektur erheblich größer als bei anderen Füllfaktoren mit partieller Besetzung des antisymmetrischen Zustands.

Serra et al. (1998¹⁵⁷) ziehen eine Parallele zu ihrem theoretischen Befund eines *mode softening* von Spindichte-Dipol-Moden in Quantenpunkten bei $\nu = 2$. Der Füllfaktor $\nu = 1$ wird dabei mit dem mittleren Magnetfeldwert B_1 , für welchen eine MDD-Grundzustandskonfiguration vorliegt, assoziiert; die Magnetfelder höherer Füllfaktoren ergeben sich dann aus der Beziehung $B_\nu = B_1/\nu$. Im Fall $N = 8$ kann man $B_1 \approx 4$ T setzen. Dann erhält man für $\nu = 2$ das Feld $B_2 \approx 2$ T. Wir finden tatsächlich just in die-

sem Bereich ein *mode softening*. Die Übertragung auf die physikalische Situation eines (unpolarisierten!) 2D-Systems ist unserer Ansicht nach jedoch sehr fragwürdig.

6.3 Abhängigkeit der Raman-Spektren vom Impulsübertrag

In diesem Abschnitt wird die Abhängigkeit der Raman-Spektren vom Impulsübertrag q untersucht. Ein genereller Anstieg der Oszillatorstärken mit wachsendem q ergibt sich bereits aus der Summenregel (5.49):

$$m_1(q) \sim \int_0^\infty d\omega \omega \frac{d^2\sigma}{d\omega d\Omega} \sim Nq^2. \quad (6.3)$$

Je größer der Impulsübertrag, desto mehr Moden werden angeregt (Abb. 6.7). Während in einem periodischen System (z.B. einem 1D-Quantendraht) der Einteilchen-Impuls in der betreffenden Richtung eine gute Quantenzahl darstellt und man daher eine Dispersion der Spektren mit q erwartet, sind die Raman-Spektren für die in allen Raumrichtungen endlichen Quantenpunkte dispersionslos. Die gestrichelten Linien in Abb. 6.7 markieren die unveränderte energetische Position der einzelnen Moden, deren Oszillatorstärke bzw. Peakhöhe allerdings mit q variiert. Die gesamte integrierte Oszillatorstärke verteilt sich unterschiedlich auf die einzelnen Moden und kann bei Erhöhung von q für manche Moden auch abnehmen.

In Abb. 6.7 (a) fällt auf, daß die P-Spektren nur eine $\ell = 0$ -Mode aufweisen [siehe auch Abb. 6.5 (a)]. Die Dipol-Moden in (b) bei Streuung in P-Geometrie illustrieren, wie der Gültigkeitsbereich des VKT verlassen wird: Ab $q = 0.3 a_0^{-1}$ treten höherenergetische Moden auf, die den Kohnschen Moden ω_\pm bei ca. 2.2 meV und 4.0 meV Oszillatorstärke entziehen, was sich in einer reduzierten Peakhöhe für $q = 0.4 a_0^{-1}$ bemerkbar macht.

Je größer der Impulsübertrag wird, desto mehr höherenergetische Anregungen treten auf. Dies beinhaltet natürlich auch Multipol-Anregungen höherer Ordnung, die in unserer numerischen Behandlung mit $|\ell| \leq 3$ nicht erfaßt sind. Die Auswertung des Stärkemoments (6.3) erlaubt eine Abschätzung, wie wichtig diese Beiträge mit wachsendem q werden. Dazu vergleichen wir die Größe $m_1(q)/q^2$ für verschiedene q . In Abb. 6.8 (a) ist sie für $N = 4$ und $N = 8$ abgebildet. Darunter sind die Beiträge aus den Dipol-Moden $\ell = \pm 1$ separat gezeigt. Bereits für $q = 0.2 a_0^{-1}$ sind die Beiträge der anderen Multipol-Anregungen nicht mehr vernachlässigbar. Das *gesamte* Stärkemoment $m_1(q)/q^2$ bleibt erwartungsgemäß konstant und ist proportional zur Teilchenzahl N . Die Abweichungen zwischen den P- und D-Spektren und für verschiedene q liegen bis $q = 0.4 a_0^{-1}$ unter 0.5 %. Die Rechnungen mit $q > 0.4 a_0^{-1}$ für $N = 4$ zeigen, daß bei sehr großen Impulsüberträgen die Näherung $|\ell| \leq 3$ schließlich zu größeren Fehlern führt.

Bei höherem Magnetfeld stellt man eine Abnahme des Stärkemoments bei gleichem q (hier $0.4 a_0^{-1}$ für $N = 8$) fest, das ebenfalls auf die zunehmende Oszillatorstärke von Moden mit $|\ell| > 3$ zurückgeführt werden muß. Insbesondere im Hochfeldregime kommen sich die Einteilchen-Zustände $(0, m)$ energetisch so nahe, daß Übergänge mit großem ℓ möglich werden. Entsprechend nimmt der Dipol-Anteil am Stärkemoment mit wachsendem Magnetfeld ab, wie bei $q = 0.4 a_0^{-1}$ für $N = 8$ zu sehen ist. Dieser Abfall läßt sich in ein (phänomenologisches) Potenzgesetz der Form $m_1^{(\ell=\pm 1)}(q) \sim q^a$ mit

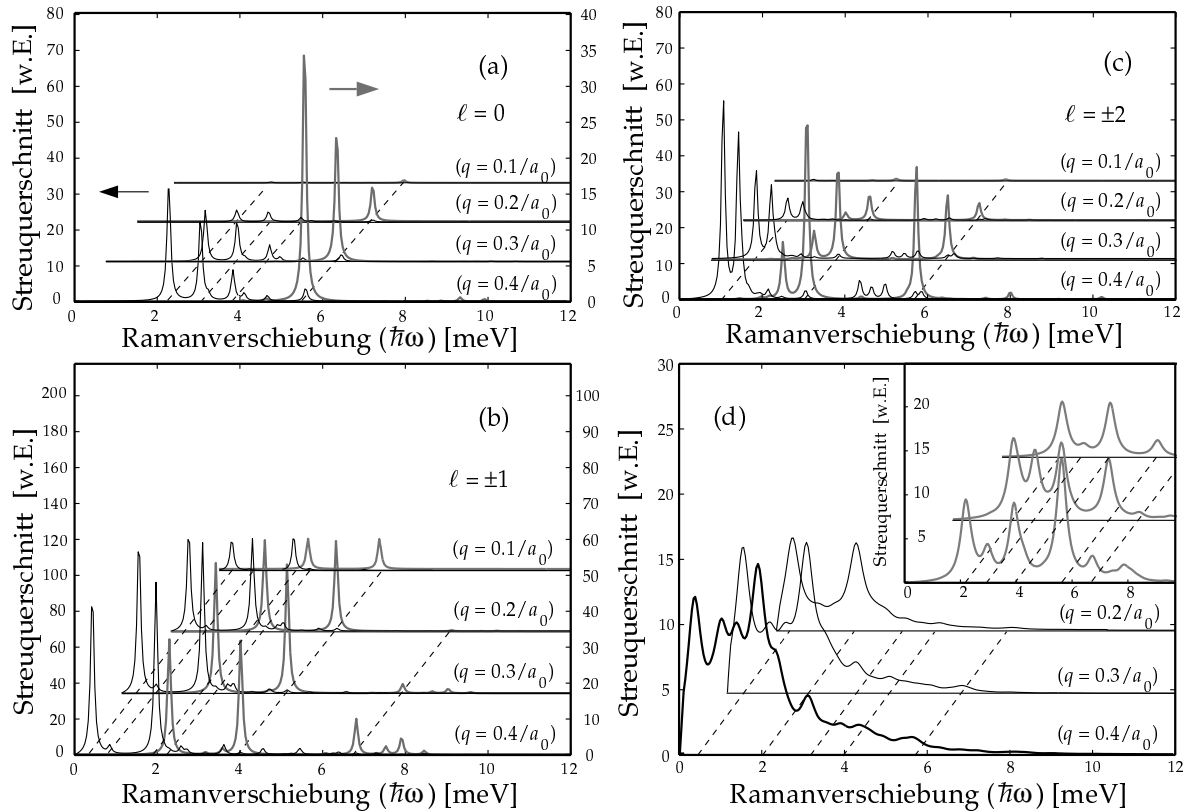


ABBILDUNG 6.7: Raman-Spektren (ALSDA) für $N = 8$, $\hbar\omega_0 = 3$ meV und $B = 1$ T in Abhängigkeit vom Impulsübertrag q : P-Spektren (—, rechte Skala) und D-Spektren (—, linke Skala), $\Gamma = 0.05$ meV. Die Spektren sind um einen konstanten Vektor gegeneinander verschoben. Die gestrichelten Linien verdeutlichen, daß die Moden dispersionslos sind. (a) $\ell = 0$. (b) $\ell = \pm 1$. (c) $\ell = \pm 2$. (d) Gesamter Streuquerschnitt ($|\ell| \leq 3$) in D-Geometrie – bzw. P-Geometrie im Inset – für eine größere Verbreiterung $\Gamma = 0.3$ meV.

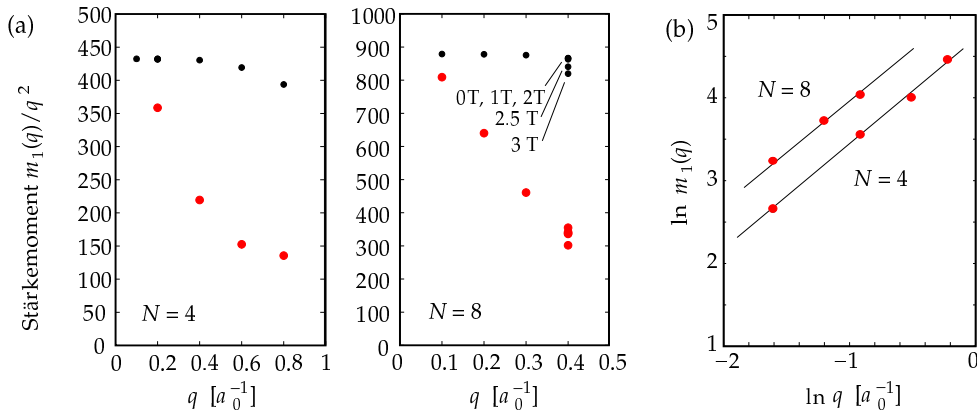


ABBILDUNG 6.8: (a) Werte des Stärkemoments $m_1(q)$ für verschiedene q mit $N = 4$ bzw. 8 (P-Spektren; graue Symbole: nur $\ell = \pm 1$). Für $N = 4$ ist $B = 0$ T, für $N = 8$ 1 T (Vergleichswerte bei $q = 0.4 a_0^{-1}$ für 0 T, 2 T, 2.5 T und 3 T). Das Absinken der Größe bei wachsendem Magnetfeld ist auf eine zunehmende Oszillatorstärke von Moden mit $|\ell| > 3$ zurückzuführen, die in unserer Rechnung nicht berücksichtigt werden. Die Werte stimmen jeweils für P- und D-Streuquerschnitte bis auf 0.5% überein. (b) Zur q -Abhängigkeit des Dipol-Anteils ($\ell = \pm 1$; siehe Text).

$a \approx 5/4$ fassen, wie aus Abb. 6.8 (b) hervorgeht. Eine theoretische Begründung für diesen Befund ist uns allerdings nicht bekannt.

6.4 Parametrisierung der Wechselwirkung

Eine hochinteressante Fragestellung ist schließlich noch, wie sich die Modifizierung der kollektiven Anregungsspektren abspielt, wenn die Wechselwirkung in der selbstkonsistenten Response-Rechnung allmählich eingeschaltet wird. Dazu parametrisieren wir den Responsekern (5.10) in der Form

$$K_{\sigma\sigma''}^{(\lambda)}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \lambda \left[\frac{e^2}{\kappa} |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|^{-1} + \frac{\partial V_{\text{xc}\sigma}}{\partial n_{\sigma''}} \Big|_{n_{\sigma''}(\mathbf{r}_2)} \delta(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2) \right]. \quad (6.4)$$

Abb. 6.9 zeigt den Übergang vom reinen SPE-Spektrum (a) zum voll renormierten Spektrum der kollektiven Anregungen für $0 < \lambda < 1$. Wir haben drei Gruppen von Anregungspeaks im SPE-Spektrum herausgegriffen, um deren Entwicklung mit wachsendem λ besser verfolgen zu können. Abgesehen von der Depolarisationsverschiebung der Moden in P-Geometrie (b–e) und der exzitonen Verschiebung in D-Geometrie (f–i), die jeweils schrittweise vonstatten gehen, fällt auf, daß die grobe Struktur des Spektrums schon bei $\lambda = 0.5$ dem voll wechselwirkenden Grenzfall ähnlich sieht. Mit wachsender Abschirmung läßt sich die Tendenz erkennen, die stark zersplitterte Oszillatorstärke des SPE-Spektrums in einigen Moden zu bündeln – es zeichnet sich eine „Stärke-Konzentration“ ab. Dies führt zu etwas schmälere Peaks im Vergleich zur SPE-Rechnung (a).

Bei etwa 5.6 meV ist in D-Streuung (i) das Anschwingen der gekoppelten Mode (Pfeil) zu erkennen, die bereits früher diskutiert wurde. Sie steht in Verbindung mit der Ladungsdichte-Anregung, die im P-Spektrum (e) zum größten Peak ($\ell = 0, 2$) führt.

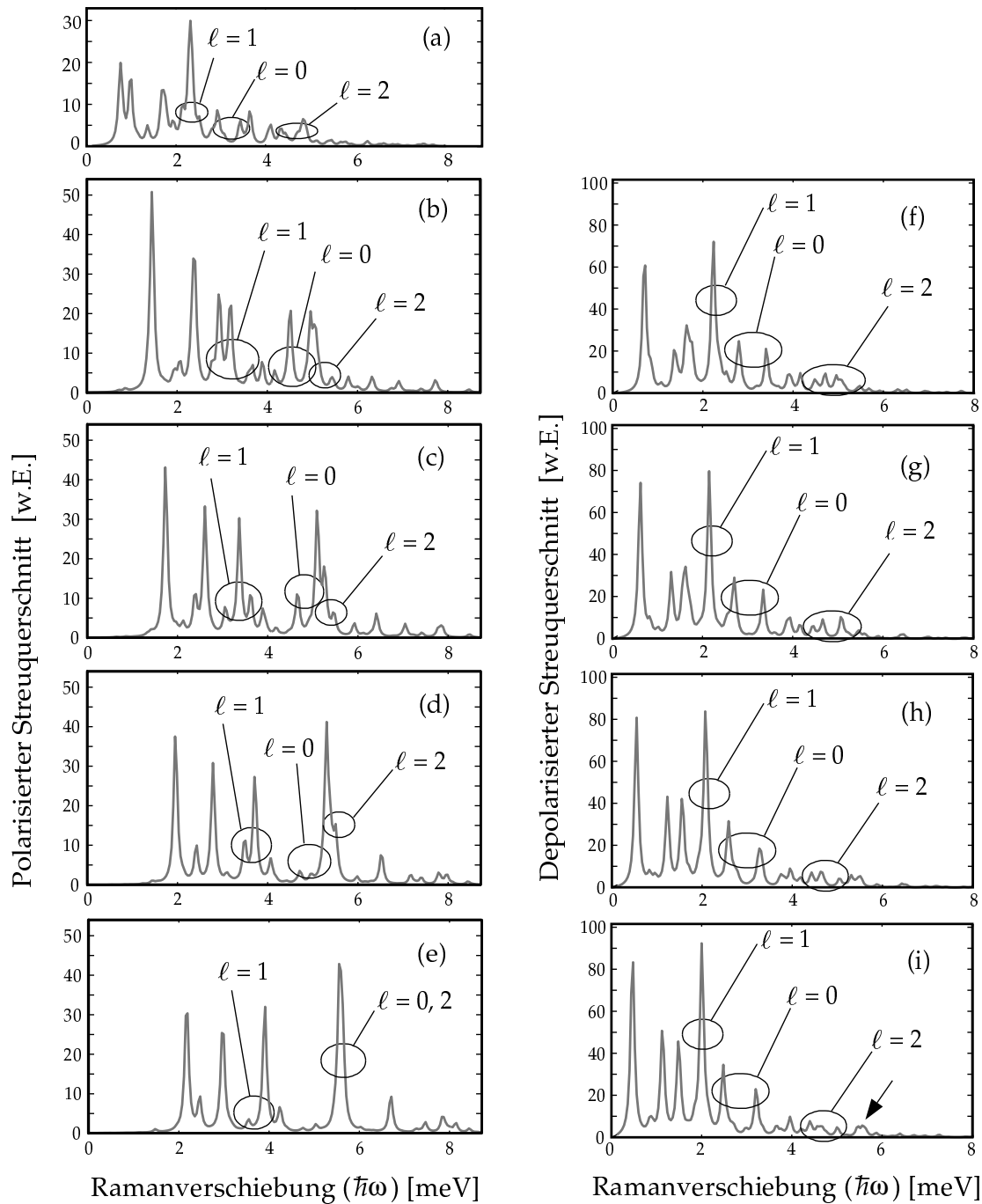


ABBILDUNG 6.9: Raman-Spektren (ALSDA) für $N = 8$, $B = 1$ T und $\hbar\omega_0 = 3$ meV, bei denen die Wechselwirkung in der Responserechnung allmählich eingeschaltet wird (siehe Text): (a) Spektrum der Einteilchen-Anregungen ($\chi_{\sigma}^{(0)}$). (b–e) Polarisierte Spektren mit $\lambda = 0.3, 0.5, 0.7$ und 0.9 . (f–i) Entsprechende depolarisierte Spektren.

6.5 Abschließende Diskussion

Wir haben gezeigt, wie die Kopplung von Spin- und Ladungsdichte-Anregungen die Raman-Spektren beeinflusst, wenn der Quantenpunkt-Grundzustand eine endliche Spindichte hat. Durch Variation des Magnetfeldes könnten auf diese Weise Spinübergänge in Wenig-Elektronen-Quantenpunkten experimentell beobachtet werden. Die bisher veröffentlichten Daten zu Raman-Experimenten (Schüller et al., 1996¹⁵⁴; Schüller et al., 1998¹⁵⁵) beziehen sich allerdings auf viel größere Elektronenzahlen ($N > 100$). Da in diesem Regime die Anzahl ungepaarter Spins im Bereich der Fermi-Energie vernachlässigbar ist im Vergleich zur Gesamtelektronenzahl, wäre es wünschenswert, homogene Systeme von Wenig-Elektronen-Quantenpunkten zu fertigen, möglicherweise durch selbstorganisiertes Wachstum. Über Fortschritte in dieser Richtung wird von Miller et al. (1997¹¹⁹) berichtet. Der Vorteil dieses experimentellen Zugangs ist, daß die Vermessung von Additionsspektren durch Kapazitätsspektroskopie bereits erfolgreich durchgeführt wurde; die Additionsspektren könnten daher zur Interpretation von Raman-Streudaten herangezogen werden.

Die von uns theoretisch diskutierten kollektiven Moden sind beim gegenwärtigen Stand der experimentellen Möglichkeiten nicht so detailliert aufzulösen. Auch aufgrund dieses Problems ist eine sehr homogene Quantenpunkt-Präparation erforderlich. Eine vom harmonischen Einschlußpotential abweichende Form des Confinements gibt prinzipiell keinen Anlaß zu bedeutenden qualitativen Veränderungen, da die den Spineffekten zugrundeliegenden Mechanismen unabhängig von der Confinement-Form sind. Allerdings ist bei anharmonischem Einschlußpotential das VKT nicht mehr anwendbar, weshalb die Kohnschen Moden nicht mehr so klar beobachtet werden können. Experimentell sind die Auswirkungen des VKT jedoch sehr robust gegen kleine Abweichungen vom harmonischen Confinement.

In den Experimenten von Schüller et al. (1998¹⁵⁵) werden auch unabgeschirmte Einteilchen-Anregungen beobachtet, die in beiden Streugeometrien auftreten. Zwar sind in einem wechselwirkenden Vielteilchen-System strenggenommen *alle* Anregungen kollektiv, die Korrekturen durch die Wechselwirkung sind aber unter Umständen sehr klein, wenn der Energienenner im Resonanzfall verschwindet. Unabgeschirmte SPE sind schon aus den frühen Experimenten von Pinczuk et al. (1971¹³⁷) bekannt und wurden durch Berücksichtigung der Nichtparabolizität der Energiebänder theoretisch erklärt Wolff (1968¹⁸⁶). Auch in p-dotierten GaAs/Al_xGa_{1-x}As-Quantenfilm-Strukturen werden von Schüller et al. (1994¹⁵⁶) unabgeschirmte SPE gemessen.

Neuere, erst kürzlich erschienene Ansätze von Steinebach et al. (1998¹⁶³), die auf Quantenpunkte mit unpolarisierten Grundzuständen beschränkt sind, zeigen tatsächlich Streuquerschnitte mit zusätzlichen Moden bei den Energien der SPE, wenn die einfallende Laser-Energie mit Einteilchen-Übergängen zwischen Valenz- und Leitungsbändern übereinstimmt. In dieser Rechnung werden explizit die Schwerloch-Zustände (hh) des Γ_8 -Valenzbandes berücksichtigt. Eine Erweiterung des hier vorgestellten Formalismus auf *resonante* Raman-Streuung unter Einbeziehung von Leitungs- und Valenzbandzuständen erscheint danach sinnvoll und ist unverzichtbar, um das Auftreten unabgeschirmter Einteilchen-Anregungen korrekt zu beschreiben. Dies ist jedoch zukünftigen Arbeiten vorbehalten.

Zusammenfassung und Ausblick

Im ersten Teil dieser Arbeit werden die Grundzustandseigenschaften von 2D-Halbleiter-Quantenpunkten auf GaAs-Basis mit wenigen Elektronen ($N \leq 20$) untersucht. Die Behandlung der Coulomb-Wechselwirkung mit dem Konzept der Strom-Spin-Dichtefunktional-Theorie von Vignale & Rasolt (1988¹⁷⁷) erlaubt die Berücksichtigung des Spinfreiheitsgrades sowie magnetfeldabhängiger Korrelationen. Dazu setzen wir die Lokale-Spindichte-Näherung (LSDA) bzw. die Lokale-Vortizitäts-Spindichte-Näherung (LVSDA) ein. Durch Abbildung des Vielteilchenproblems auf ein Kohn-Sham-System mit effektiven Einteilchen-Potentialen, die außer dem Hartree-Potential spinabhängige Austausch-Korrelations-Potentiale und ein Austausch-Korrelations-Vektorpotential umfassen, können neben der N -Teilchen-Grundzustandsenergie E_N auch die Ladungs- und Spindichte, $n(r)$ und $s(r)$, sowie die Stromdichte $j(r)$ berechnet werden.

Bei verschwindendem Magnetfeld führt der elektrostatische Hartree-Anteil der Wechselwirkung zu einer leichten Aufspaltung der Energieschalen des durch ein harmonisches Einschlußpotential gegebenen, wechselwirkungsfreien Einteilchenspektrums. Für nicht zu große Elektronenzahlen sind daher Schaleneffekte im Additionsspektrum $\mu_N = E_{N+1} - E_N$ beobachtbar. Dagegen bewirkt der (attraktive) Austausch-Korrelations-Anteil eine Aufhebung der Spin-Entartung der effektiven Kohn-Sham-Einteilchen-Niveaus, wenn die Elektronen die Schale an der Fermi-Energie nur unvollständig besetzen; dadurch wird eine Spinrichtung energetisch begünstigt. Dieses Verhalten ist aus der Atomphysik unter dem Begriff der „Hundschen Kopplung“ bekannt. Die daraus abgeleitete Formulierung der 1. Hundschen Regel (Spinregel) besagt, daß Elektronen in teilweise gefüllten Schalen – unter Beachtung des Pauli-Prinzips – einen möglichst großen Gesamtspin ausbilden, um maximale Austausch-Energie zu gewinnen. Einen analogen Effekt findet man auch in 2D-Quantenpunkten: Im Grundzustand richten sich möglichst viele Elektronenspins innerhalb einer Schale parallel aus. In „künstlichen Atomen“ mit einer halbgefüllten Schale an der Fermi-Energie ist die Lücke zwischen besetzten und unbesetzten Zuständen daher besonders groß. Diese Anomalie führt zu erhöhten Additionsenergien für die weiteren Elektronen, was auch experimentell beobachtet wurde (Tarucha et al., 1996¹⁷⁰).

Während Messungen der Additionsenergien im endlichen Magnetfeld durch ihre Struktur die Niveaufkreuzungen im Einteilchenspektrum deutlich wiedergeben, z.B.

durch eine reduzierte Additionsenergie des $N + 1$ -ten Elektrons, falls das betreffende neu zu besetzende Energieniveau die Fermi-Energie des N -Elektronen-Systems schneidet, waren Spineffekte im endlichen Magnetfeld zunächst nicht beobachtet worden. Unsere Rechnungen, die mittlerweile auch experimentell bestätigt werden konnten (Tarucha, 1998¹⁶⁹), zeigen für die Situation zweier sich an der Fermi-Kante kreuzender (jeweils spinentarteter) Einteilchen-Niveaus eine analoge Hundsche Kopplung der Elektronenspins, die zu einer Spinausrichtung führt, wenn die so geformte „Quasi-Schale“ halbgefüllt ist.

Im hohen Magnetfeld bewirkt diese Austausch-Kopplung den Übergang in einen spinpolarisierten Grundzustand, wenn die effektiven Einteilchen-Niveaus im untersten Landau-Niveau kondensieren. Dieser Effekt ist um ein Vielfaches stärker als die materialspezifische Zeeman-Aufspaltung in GaAs. Im Vergleich mit LSDA-Rechnungen, die kein Austausch-Korrelations-Vektorpotential enthalten, wird der Übergang durch Hinzunahme strom- bzw. magnetfeldabhängiger Korrelationen im Rahmen der LVSDA modifiziert aufgrund unterschiedlicher Drehimpulskonfigurationen des Grundzustandes.

Ein weiterer interessanter Aspekt der Grundzustandseigenschaften ist die Untersuchung *spontaner* Stromformationen ohne äußeres Magnetfeld nur infolge der Korrelationen. Ein endliches Austausch-Korrelations-Vektorpotential A_{xc} hebt die Entartung der stromtragenden Einteilchenzustände bezüglich Zeitumkehr-Symmetrie auf, analog zur spontanen Brechung der Spinentartung durch die Hundsche Kopplung. Dadurch treten insbesondere stromtragende Grundzustände mit verschwindendem Gesamtdrehimpuls auf, die aus der Verzerrung der Wellenfunktionen paarweise entgegengesetzt drehender Einteilchenzustände resultieren. Die von uns gefundenen Grundzustände mit spontan gebrochener Zeitumkehr-Symmetrie weisen allerdings nur geringfügig kleinere Energien im Vergleich zu Rechnungen ohne A_{xc} auf. Auch sind die betrachteten Ströme an der Grenze des gegenwärtig Meßbaren, und ihre Detektion stellt eine extreme Anforderung an die Probenpräparation.

Für die Zukunft streben wir eine Erweiterung der numerischen Programmstruktur an, um Systeme ohne axiale Symmetrie, z.B. „künstliche Moleküle“ (Sasaki et al., 1998¹⁵²), Quantenpunkte mit Störstellen oder Grundzustände mit spontan gebrochener axialer Symmetrie studieren zu können. Die explizite Hinzunahme des Spin-Bahn-Kopplungsterms/Rashba-Terms (siehe Ohkawa & Uemura, 1974¹²³; Darnhofer & Rössler, 1993³⁵) ist besonders für Materialien wie InSb mit kleiner Bandlücke (bzw. großer Aufspaltung der Valenzbänder am Γ -Punkt) von Interesse. Gerade die Ausbildung spontaner orbitaler Magnetisierung ist eng verknüpft mit der Spin-Bahn-Kopplung.

Der zweite Teil der Arbeit befaßt sich mit den kollektiven Anregungen spinpolarisierter Grundzustände und zielt konkret auf die Berechnung von Raman-Spektren ab. Dazu beschränken wir uns auf eine selbstkonsistente Beschreibung im Rahmen der zeitabhängigen Spin-Dichtefunktional-Theorie (adiabatische LSDA).

Die Messung von Ladungs- bzw. Spindichte-Anregungen des Quantenpunkt-Systems erfolgt durch geeignete Wahl der relativen Ausrichtung von einfallendem und detektiertem Photon. Diese als polarisierte bzw. depolarisierte Streuung bezeichneten Streugeometrien sind mit einem effektiven Störoperator verbunden, der direkt an die Ladungsdichte bzw. Spindichte des Quantenpunktes koppelt. Ist der

Grundzustand des Systems unpolarisiert, sind die jeweiligen Moden vollständig separiert. Eine endliche Spindichte bewirkt jedoch eine *Mischung* von Ladungs- und Spindichte-Anregungen, die das Raman-Spektrum entsprechend beeinflusst. Im Extremfall eines vollständig spinpolarisierten Grundzustandes stimmen die induzierten Änderungen von Spin- und Ladungsdichte, $\delta s(r)$ und $\delta n(r)$, exakt überein.

Wir diskutieren magnetfeldabhängige Raman-Spektren am Beispiel eines Quantenpunktes mit $N = 8$ Elektronen. Der Übergang zum spinpolarisierten Grundzustand im hohen Magnetfeld zeichnet sich deutlich in der Veränderung des Raman-Spektrums ab. Insbesondere im Bereich von Einteilchen-Niveaufkreuzungen an der Fermi-Kante, wenn die Hundsche Kopplung zu einer endlichen Spindichte führt, treten neuartige Strukturen auf. Durch die Kopplung von Spin- und Ladungsdichte-Anregungen findet man Peaks im Raman-Spektrum der depolarisierten Streugeometrie an Stellen, wo die polarisierte Streuung besonders hohe Oszillatorstärken aufweist. Die umgekehrte Situation ist nur im Fall sehr hoher Spinpolarisation zu sehen. Dies ist mit dem Umstand verknüpft, daß nahezu alle Moden mit Ladungsdichteänderungen auch Spindichteänderungen beinhalten, während Spindichte-Anregungen auch ohne signifikanten Ladungstransfer auftreten. Insbesondere die Dipol-Spektren der polarisierten Geometrie sind aufgrund des verallgemeinerten Kohnschen Theorems für ein harmonisches Einschlußpotential wechselwirkungsunabhängig und offenbaren daher auch keine gemischten Moden. Um die theoretischen Vorhersagen dieser Arbeit experimentell zu prüfen, erscheint daher vor allem die depolarisierte Streugeometrie interessant, in der Spineffekte deutlicher zutage treten sollten. Derartige Raman-Experimente erfordern Quantenpunkt-Ensembles hoher Homogenität, deren Elektronenzahl nicht zu hoch ist ($N < 20$) und exakt eingestellt werden kann. Die bisher durchgeführten Experimente haben eine zu große Linienverbreiterung und enthalten zu viele Elektronen.

Die experimentelle Beobachtung unabgeschirmter Einteilchen-Anregungen in beiden Streuanordnungen kann nur durch ein theoretisches Modell beschrieben werden, in dem die am inelastischen Streuprozess beteiligten Valenzbandzustände explizit enthalten sind. Der dazu notwendige konzeptionelle, vor allem aber numerische Aufwand macht dieses Ziel nicht unmittelbar erreichbar, aber entsprechende Vorarbeiten zur korrekten Behandlung der resonanten Raman-Streuung erscheinen vielversprechend.

Im Hinblick auf zukünftige Anwendungen endlicher Quantenstrukturen im Nanometerbereich, wie die mittlerweile vielfältig diskutierten Ausprägungen eines „Quantenpunkt-Computers“ (siehe z.B. Krashennikov & Openov, 1996⁸⁷; Porod, 1997¹⁴³; Zanardi, 1998¹⁹⁰), sind detaillierte Kenntnisse der Systemeigenschaften von großer Wichtigkeit. Zwar mag die Wechselwirkung in den momentan denkbaren Anwendungen noch relativ zweitrangig für das Arbeitsprinzip sein (abgesehen vom funktionell möglicherweise bedeutsamen Coulomb-Blockade-Effekt), aber angesichts der unterschiedlichen Ansätze zur Realisierung neuer Instrumente auf Basis von Halbleiter-Nanostrukturen sind z.B. Spin-Effekte durchaus interessant. Mit Sicherheit werden die Fertigung und das theoretische Verständnis mesoskopischer Systeme, unter denen „künstliche Atome“, „Moleküle“ oder „Kristalle“ nur eine kleine Gruppe bilden, maßgeblich an den technologischen Innovationen der kommenden Jahre beteiligt sein.

ANHANG A

Zeitabhängige Störungstheorie für inelastische Lichtstreuung

Wir führen eine *zeitabhängige Störungsrechnung* für das Vielteilchensystem $H_0 + H_\omega = \sum_i H_0^{(i)} + W + H_\omega$ (mit Coulomb-Wechselwirkung W) bezüglich des Störoperators H_1 durch (siehe Abschnitt 4.1, S. 79). Zur Zeit $t = 0$ sei das Gesamtsystem im Eigenzustand $|\tilde{I}\rangle \equiv |I, (\mathbf{k}_I, \boldsymbol{\varepsilon}_I)\rangle$ mit einem Photon $(\mathbf{k}_I, \boldsymbol{\varepsilon}_I)$ und der Energie $E_{\tilde{I}} = E_I + \hbar\omega_I$, d.h. $H_0|I\rangle = E_I|I\rangle$. Der Überlapp mit dem Gesamtzustand $|\tilde{F}(t)\rangle \equiv |F, (\mathbf{k}_S, \boldsymbol{\varepsilon}_S)(t)\rangle = e^{-iH_0 t/\hbar}|F, (\mathbf{k}_S, \boldsymbol{\varepsilon}_S)\rangle$, dessen Energie $E_{\tilde{F}} = E_F + \hbar\omega_S$ beträgt, ist

$$\begin{aligned} c_{FI}(t) &= \langle \tilde{F}(t) | \mathcal{T}(t, 0) | \tilde{I} \rangle \\ &= \langle \tilde{F} | \left[\mathbb{1} + \frac{1}{\hbar i} \int_0^t dt' H_{1H}(t') + \left(\frac{1}{\hbar i} \right)^2 \int_0^t dt' \int_0^{t'} dt'' H_{1H}(t') H_{1H}(t'') + \dots \right] | \tilde{I} \rangle, \end{aligned} \quad (\text{A.1})$$

wobei die Heisenberg-Darstellung, $H_{1H}(t) = e^{iH_0 t/\hbar} H_1 e^{-iH_0 t/\hbar}$, mit „H“ indiziert ist. Daraus ergibt sich bis zur zweiten Ordnung in H_1 die Übergangsrate (Landau & Lifshitz, 1965⁹⁰)

$$W_{FI} \equiv \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{d}{dt} |c_{FI}(t)|^2 = \frac{2\pi}{\hbar} \delta(E_F - E_I - \hbar\omega) \left| \langle \tilde{F} | H_1 | \tilde{I} \rangle + \sum_i \frac{\langle \tilde{F} | H_1 | \tilde{i} \rangle \langle \tilde{i} | H_1 | \tilde{I} \rangle}{E_{\tilde{I}} - E_{\tilde{i}}} \right|^2. \quad (\text{A.2})$$

mit $\omega = \omega_I - \omega_S$.

Bei der Behandlung des A_ω^2 -Term in H_1 vernachlässigen wir Prozesse, die mehr als zwei Photonen involvieren (mit anderen Worten den Term zweiter Ordnung, der die Erzeugung und Vernichtung von weiteren, virtuellen Photonen beinhaltet); damit bleibt nur der Beitrag

$$\begin{aligned} \langle \tilde{F} | \sum_{\alpha, \beta} \frac{e^2}{2mc^2} \langle \alpha | A_\omega^2(\mathbf{r}) | \beta \rangle c_\alpha^\dagger c_\beta | \tilde{I} \rangle &= \frac{e^2}{2mc^2} \sum_{\alpha, \beta} \langle F | c_\alpha^\dagger c_\beta | I \rangle \langle \alpha, (\mathbf{k}_S, \boldsymbol{\varepsilon}_S) | A_\omega^2(\mathbf{r}) | \beta, (\mathbf{k}_I, \boldsymbol{\varepsilon}_I) \rangle \\ &= \frac{e^2}{2mc^2} \sum_{\alpha, \beta} \langle F | c_\alpha^\dagger c_\beta | I \rangle \langle \alpha, (\mathbf{k}_S, \boldsymbol{\varepsilon}_S) | \left(\mathcal{N}_I a_I \boldsymbol{\varepsilon}_I e^{i\mathbf{k}_I \cdot \mathbf{r}} + \mathcal{N}_S a_S^\dagger \boldsymbol{\varepsilon}_S e^{-i\mathbf{k}_S \cdot \mathbf{r}} \right)^2 | \beta, (\mathbf{k}_I, \boldsymbol{\varepsilon}_I) \rangle. \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

In der letzten Zeile in Gl. (A.3) wurde berücksichtigt, daß $|\tilde{I}\rangle$ nur ein Photon im Zustand $(\mathbf{k}_I, \boldsymbol{\varepsilon}_I)$ und $|\tilde{F}\rangle$ nur eines im Zustand $(\mathbf{k}_S, \boldsymbol{\varepsilon}_S)$ enthält, weshalb nur aus den entsprechenden Summanden des Strahlungsfeldes $A_\omega(\mathbf{r})$ (4.3) Beiträge erwachsen. Von den vier Termen des Operatorquadrats liefern schließlich bloß die zwei Kombinationen $a_I a_S^\dagger$ und $a_S^\dagger a_I$ (identische) Beiträge. Die anderen entsprechen Zwei-Photonen-Absorption und -Emission (mit verschwindendem Matrixelement). Man erhält mit $\mathbf{q} = \mathbf{k}_I - \mathbf{k}_S$:

$$\langle \tilde{F} | \sum_{\alpha, \beta} \frac{e^2}{2mc^2} \langle \alpha | \mathbf{A}_\omega^2(\mathbf{r}) | \beta \rangle c_\alpha^\dagger c_\beta | \tilde{I} \rangle = \frac{e^2}{mc^2} \sum_{\alpha, \beta} \langle F | c_\alpha^\dagger c_\beta | I \rangle \boldsymbol{\varepsilon}_I \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_S \mathcal{N}_I \mathcal{N}_S \langle \alpha | e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} | \beta \rangle. \quad (\text{A.4})$$

In erster Ordnung verschwindet der Beitrag des A_ω -Terms in H_I , weil hier nur ein Photon erzeugt oder vernichtet wird. Der Beitrag zweiter Ordnung liefert:

$$\begin{aligned} \sum_{\tilde{i}} \frac{\langle \tilde{F} | H_I | \tilde{i} \rangle \langle \tilde{i} | H_I | \tilde{I} \rangle}{E_{\tilde{i}} - E_{\tilde{I}}} &= \left(\frac{e}{mc} \right)^2 \sum_{\tilde{i}} \sum_{\mathbf{k}, \nu} \langle \tilde{F} | \left[\boldsymbol{\pi} - \frac{e}{c} \mathbf{A}_0(\mathbf{r}) \right] \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_\nu \mathcal{N}_k \left(a_{k\nu} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} + a_{k\nu}^\dagger e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \right) | \tilde{i} \rangle \\ &\times (E_{\tilde{i}} - E_{\tilde{I}})^{-1} \sum_{\mathbf{k}', \nu'} \langle \tilde{i} | \left[\boldsymbol{\pi} - \frac{e}{c} \mathbf{A}_0(\mathbf{r}) \right] \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_{\nu'} \mathcal{N}_{k'} \left(a_{k'\nu'} e^{i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}} + a_{k'\nu'}^\dagger e^{-i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}} \right) | \tilde{I} \rangle. \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

Hier wurde für einen elektronischen Einteilchenoperator O die abgekürzte Schreibweise $\langle \tilde{F} | O | \tilde{I} \rangle$ anstelle von $\sum_{\alpha, \beta} \langle F | c_\alpha^\dagger c_\beta | I \rangle \langle \alpha, (\mathbf{k}_S, \boldsymbol{\varepsilon}_S) | O | \beta, (\mathbf{k}_I, \boldsymbol{\varepsilon}_I) \rangle$ benutzt. $|\tilde{i}\rangle$ sind virtuelle Vielteilchen-Photon-Zwischenzustände. Bedingt durch die Definition der Zustände $|\tilde{I}\rangle$ und $|\tilde{F}\rangle$ können nur solche Summanden etwas beitragen, die ein Photon $(\mathbf{k}_I, \boldsymbol{\varepsilon}_I)$ vernichten (a_I) und ein Photon $(\mathbf{k}_S, \boldsymbol{\varepsilon}_S)$ erzeugen (a_S^\dagger):

$$\begin{aligned} \sum_{\tilde{i}} \frac{\langle \tilde{F} | H_I | \tilde{i} \rangle \langle \tilde{i} | H_I | \tilde{I} \rangle}{E_{\tilde{i}} - E_{\tilde{I}}} &= \left(\frac{e}{mc} \right)^2 \sum_{\tilde{i}} (E_{\tilde{i}} - E_{\tilde{I}})^{-1} \\ &\left\{ \langle \tilde{F} | \left[\boldsymbol{\pi} - \frac{e}{c} \mathbf{A}_0(\mathbf{r}) \right] \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_I \mathcal{N}_I a_I e^{i\mathbf{k}_I \cdot \mathbf{r}} | \tilde{i} \rangle \langle \tilde{i} | \left[\boldsymbol{\pi} - \frac{e}{c} \mathbf{A}_0(\mathbf{r}) \right] \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_S \mathcal{N}_S a_S^\dagger e^{-i\mathbf{k}_S \cdot \mathbf{r}} | \tilde{I} \rangle \right. \\ &+ \left. \langle \tilde{F} | \left[\boldsymbol{\pi} - \frac{e}{c} \mathbf{A}_0(\mathbf{r}) \right] \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_S \mathcal{N}_S a_S^\dagger e^{-i\mathbf{k}_S \cdot \mathbf{r}} | \tilde{i} \rangle \langle \tilde{i} | \left[\boldsymbol{\pi} - \frac{e}{c} \mathbf{A}_0(\mathbf{r}) \right] \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_I \mathcal{N}_I a_I e^{i\mathbf{k}_I \cdot \mathbf{r}} | \tilde{I} \rangle \right\} \\ &= \left(\frac{e}{mc} \right)^2 (\mathcal{N}_I \mathcal{N}_S)^2 \sum_{\tilde{i}} \sum_{\substack{\alpha, \alpha' \\ \beta, \beta'}} \langle F | c_\alpha^\dagger c_{\alpha'} | \tilde{i} \rangle \langle \tilde{i} | c_\beta^\dagger c_{\beta'} | I \rangle \\ &\times \left(\frac{\langle \alpha | \mathbf{j}_I | \alpha' \rangle \langle \beta | \mathbf{j}_S | \beta' \rangle}{E_I - E_i - \hbar\omega_S} + \frac{\langle \alpha | \mathbf{j}_S | \alpha' \rangle \langle \beta | \mathbf{j}_I | \beta' \rangle}{E_I - E_i + \hbar\omega_I} \right), \end{aligned} \quad (\text{A.6})$$

mit $\left\{ \begin{matrix} \mathbf{j}_I \\ \mathbf{j}_S \end{matrix} \right\} = \left\{ \begin{matrix} \boldsymbol{\varepsilon}_I \\ \boldsymbol{\varepsilon}_S \end{matrix} \right\} \cdot \left(\boldsymbol{\pi} - \frac{e}{c} \mathbf{A}_0(\mathbf{r}) \right) \exp \left(i \left\{ \begin{matrix} \mathbf{k}_I \\ -\mathbf{k}_S \end{matrix} \right\} \cdot \mathbf{r} \right).$

Die Übergangsrates ist dann nach Einsetzen der Konstanten $\mathcal{N}_{I/S}$ (Blum, 1970¹⁵)

$$W_{FI} = \left(\frac{e^2}{mc^2} \right)^2 \frac{2\pi}{\hbar} \delta(E_F - E_I - \hbar\omega) |M_{FI}|^2 \left(\frac{2\pi\hbar c^2}{V} \right)^2 \frac{1}{\omega_I \omega_S} \quad (\text{A.7})$$

mit dem Matrixelement

$$\begin{aligned}
 M_{FI} = & \boldsymbol{\varepsilon}_I \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_S \sum_{\alpha, \beta} \langle \alpha | e^{iq \cdot r} | \beta \rangle \langle F | c_{\alpha}^{\dagger} c_{\alpha'} | I \rangle \\
 & + \frac{1}{m} \sum_i \sum_{\substack{\alpha, \alpha' \\ \beta, \beta'}} \langle \alpha | j_I | \alpha' \rangle \langle \beta | j_S | \beta' \rangle \left(\frac{\langle F | c_{\alpha}^{\dagger} c_{\alpha'} | i \rangle \langle i | c_{\beta}^{\dagger} c_{\beta'} | I \rangle}{E_I - E_i - \hbar \omega_S} + \frac{\langle F | c_{\beta}^{\dagger} c_{\beta'} | i \rangle \langle i | c_{\alpha}^{\dagger} c_{\alpha'} | I \rangle}{E_I - E_i + \hbar \omega_I} \right).
 \end{aligned} \tag{A.8}$$

ANHANG B

Berechnung des Tensors $\mathcal{K}^{(v)}$

Die explizite Berechnung des Tensors

$$\mathcal{K}^{(v)} = \left(\frac{\hbar}{m}\right)^2 \sum_{\tau=\pm} \langle c\sigma_\alpha | \mathbf{p} | v_\tau \rangle \langle v_\tau | \mathbf{p} | c\sigma_\beta \rangle, \quad (\text{B.1})$$

mit $v \in \{\text{hh}, \text{lh}, \text{so}\}$, erfolgt durch Einsetzen der Kanischen Wellenfunktionen⁷⁵ (Tabelle III) unter Berücksichtigung der Transformationseigenschaften der Wellenfunktionen $|S\sigma\rangle, |X\sigma\rangle$ usw. mit s - bzw. p -Charakter. Es sei $\mathcal{P} = \frac{\hbar}{m} \langle iS\sigma | p_x | X\sigma \rangle = \frac{\hbar}{m} \langle iS\sigma | p_y | Y\sigma \rangle = \frac{\hbar}{m} \langle iS\sigma | p_z | Z\sigma \rangle \in \mathbb{R}$ das Kanische Matricelement. Alle anderen Impulsmatricelemente verschwinden. Zur vereinfachten Notation führen wir den Spinprojektionsoperator $\hat{\sigma}$ ein, der auf den Zustand $|\sigma_\beta\rangle$ in der spinbehafteten Enveloppenfunktion $\varphi_{\beta\sigma_\beta}(\mathbf{r})$ wirkt. In der Basis $\{|\uparrow\rangle, |\downarrow\rangle\}$ gilt:

$$\hat{\sigma}_x = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \hat{\sigma}_y = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \quad \hat{\sigma}_z = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}. \quad (\text{B.2})$$

Wir definieren die Leiteroperatoren $\hat{\sigma}_\pm = \hat{\sigma}_x \pm i\hat{\sigma}_y$, $\hat{\sigma}_+ \begin{Bmatrix} |\uparrow\rangle \\ |\downarrow\rangle \end{Bmatrix} = \begin{Bmatrix} 0 \\ |\uparrow\rangle \end{Bmatrix}$ und umgekehrt.

Beiträge vom *heavy-hole*-Band ($v = \text{hh}$):

$$\begin{aligned} \mathcal{K}_{xx}^{(\text{hh})} &= \mathcal{K}_{yy}^{(\text{hh})} = \delta_{\sigma_\alpha\sigma_\beta} \left(\frac{\hbar}{m}\right)^2 \langle iS\sigma_\alpha | p_x | (X + iY)\sigma_\alpha \rangle \langle (X + iY)\sigma_\alpha | p_x | iS\sigma_\alpha \rangle / 2 \\ &= \frac{1}{2} \mathcal{P}^2 \delta_{\sigma_\alpha\sigma_\beta}; \\ \mathcal{K}_{zz}^{(\text{hh})} &= 0; \\ \mathcal{K}_{xy}^{(\text{hh})} &= -\mathcal{K}_{yx}^{(\text{hh})} = \delta_{\sigma_\alpha\uparrow} \delta_{\sigma_\beta\uparrow} \left(\frac{\hbar}{m}\right)^2 \langle iS\uparrow | p_x | (X + iY)\uparrow \rangle \langle (X + iY)\uparrow | p_y | iS\uparrow \rangle / 2 \\ &\quad + \delta_{\sigma_\alpha\downarrow} \delta_{\sigma_\beta\downarrow} \left(\frac{\hbar}{m}\right)^2 \langle iS\downarrow | p_x | (X - iY)\downarrow \rangle \langle (X - iY)\downarrow | p_y | iS\downarrow \rangle / 2 = -i\mathcal{P}^2 \hat{\sigma}_z; \\ \mathcal{K}_{xz}^{(\text{hh})} &= \mathcal{K}_{zx}^{(\text{hh})} = \mathcal{K}_{yz}^{(\text{hh})} = \mathcal{K}_{zy}^{(\text{hh})} = 0. \end{aligned}$$

Beiträge vom *light-hole*-Band ($v = \text{lh}$):

$$\begin{aligned}
\mathcal{K}_{xx}^{(\text{lh})} &= \mathcal{K}_{yy}^{(\text{lh})} = \left(\frac{\hbar}{m}\right)^2 \langle iS\sigma_\alpha | p_x | (-X - iY) \downarrow \rangle / \sqrt{6} \langle (-X - iY) \downarrow | p_x | iS\sigma_\beta \rangle / \sqrt{6} \\
&\quad + \left(\frac{\hbar}{m}\right)^2 \langle iS\sigma_\alpha | p_x | (X - iY) \uparrow \rangle / \sqrt{6} \langle (X - iY) \uparrow | p_x | iS\sigma_\beta \rangle / \sqrt{6} = \frac{1}{6} \mathcal{P}^2 \delta_{\sigma_\alpha \sigma_\beta}; \\
\mathcal{K}_{zz}^{(\text{lh})} &= \sqrt{2/3} \left(\frac{\hbar}{m}\right)^2 \langle iS\sigma_\alpha | p_z | Z \uparrow \rangle \langle Z \uparrow | p_z | iS\sigma_\beta \rangle \sqrt{2/3} \\
&\quad + \sqrt{2/3} \left(\frac{\hbar}{m}\right)^2 \langle iS\sigma_\alpha | p_z | Z \downarrow \rangle \langle Z \downarrow | p_z | iS\sigma_\beta \rangle \sqrt{2/3} = \frac{2}{3} \mathcal{P}^2 \delta_{\sigma_\alpha \sigma_\beta}; \\
\mathcal{K}_{xy}^{(\text{lh})} &= -\mathcal{K}_{yx}^{(\text{lh})} = \left(\frac{\hbar}{m}\right)^2 \langle iS\sigma_\alpha | p_x | (-X - iY) \downarrow \rangle / \sqrt{6} \langle (-X - iY) \downarrow | p_y | iS\sigma_\beta \rangle / \sqrt{6} \\
&\quad + \left(\frac{\hbar}{m}\right)^2 \langle iS\sigma_\alpha | p_x | (X - iY) \uparrow \rangle / \sqrt{6} \langle (X - iY) \uparrow | p_y | iS\sigma_\beta \rangle / \sqrt{6} = \frac{i}{3} \mathcal{P}^2 \hat{\sigma}_z; \\
\mathcal{K}_{xz}^{(\text{lh})} &= -\mathcal{K}_{zx}^{(\text{lh})} = \left(\frac{\hbar}{m}\right)^2 \langle iS\sigma_\alpha | p_x | (-X - iY) \downarrow \rangle / \sqrt{6} \sqrt{2/3} \langle Z \uparrow | p_z | iS\sigma_\beta \rangle \\
&\quad + \left(\frac{\hbar}{m}\right)^2 \langle iS\sigma_\alpha | p_x | (X - iY) \uparrow \rangle / \sqrt{6} \sqrt{2/3} \langle Z \downarrow | p_z | iS\sigma_\beta \rangle \\
&= \delta_{\sigma_\alpha \uparrow} \delta_{\sigma_\beta \downarrow} \frac{1}{3} \mathcal{P}^2 - \delta_{\sigma_\alpha \downarrow} \delta_{\sigma_\beta \uparrow} \frac{1}{3} \mathcal{P}^2 = \frac{1}{3} \mathcal{P}^2 (\hat{\sigma}_+ - \hat{\sigma}_-) = \frac{2i}{3} \mathcal{P}^2 \hat{\sigma}_y; \\
\mathcal{K}_{yz}^{(\text{lh})} &= -\mathcal{K}_{zy}^{(\text{lh})} = -\delta_{\sigma_\alpha \uparrow} \delta_{\sigma_\beta \downarrow} \frac{i}{3} \mathcal{P}^2 - \delta_{\sigma_\alpha \downarrow} \delta_{\sigma_\beta \uparrow} \frac{i}{3} \mathcal{P}^2 = -\frac{i}{3} \mathcal{P}^2 (\hat{\sigma}_+ + \hat{\sigma}_-) = -\frac{2i}{3} \mathcal{P}^2 \hat{\sigma}_x.
\end{aligned}$$

Beiträge vom *split-off*-Band ($v = \text{so}$):

$$\begin{aligned}
\mathcal{K}_{xx}^{(\text{so})} &= \mathcal{K}_{yy}^{(\text{so})} = \mathcal{K}_{zz}^{(\text{so})} = \frac{1}{3} \mathcal{P}^2 \delta_{\sigma_\alpha \sigma_\beta}; \\
\mathcal{K}_{xy}^{(\text{so})} &= -\mathcal{K}_{yx}^{(\text{so})} = \frac{2i}{3} \mathcal{P}^2 \hat{\sigma}_z; \\
\mathcal{K}_{xz}^{(\text{so})} &= -\delta_{\sigma_\alpha \uparrow} \delta_{\sigma_\beta \downarrow} \frac{1}{3} \mathcal{P}^2 + \delta_{\sigma_\alpha \downarrow} \delta_{\sigma_\beta \uparrow} \frac{1}{3} \mathcal{P}^2 = \frac{1}{3} \mathcal{P}^2 (\hat{\sigma}_- - \hat{\sigma}_+) = -\frac{2i}{3} \mathcal{P}^2 \hat{\sigma}_y; \\
\mathcal{K}_{zx}^{(\text{so})} &= -\mathcal{K}_{xz}^{(\text{so})} \\
\mathcal{K}_{yz}^{(\text{so})} &= \delta_{\sigma_\alpha \uparrow} \delta_{\sigma_\beta \downarrow} \frac{i}{3} \mathcal{P}^2 + \delta_{\sigma_\alpha \downarrow} \delta_{\sigma_\beta \uparrow} \frac{i}{3} \mathcal{P}^2 = \frac{i}{3} \mathcal{P}^2 (\hat{\sigma}_+ + \hat{\sigma}_-) = \frac{2i}{3} \mathcal{P}^2 \hat{\sigma}_x; \\
\mathcal{K}_{zy}^{(\text{so})} &= -\mathcal{K}_{yz}^{(\text{so})}.
\end{aligned}$$

Wir haben hier nicht alle Rechenschritte aufgeführt, sondern die Ergebnisse nur für einige Elemente exemplarisch hergeleitet. Die übrigen erhält man auf analoge Weise. Wesentlich ist das Verschwinden von Matrixelementen der Form $\langle iS\sigma | p_y | X\sigma' \rangle$ aufgrund der Transformationseigenschaften der Blochfunktionen am Γ -Punkt.

 ANHANG C

Berechnung der freien Responsefunktion $\chi_{\sigma\sigma'}^{(0)}$

Es sei $H_0 = \sum_{\alpha,\sigma} \varepsilon_{\alpha\sigma} c_{\alpha\sigma}^\dagger c_{\alpha\sigma} = \sum_{\alpha,\sigma} \varepsilon_{\alpha\sigma} \hat{n}_{\alpha\sigma}$ ein wechselwirkungsfreies Fermionen-System mit Grundzustand $|\Psi_0\rangle$. Wir berechnen die Responsefunktion

$$\begin{aligned}
 \chi_{\sigma\sigma'}^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) &= \frac{1}{\hbar i} \int_0^\infty dt e^{i\omega t} \sum_{\substack{\alpha,\beta \\ \alpha',\beta'}} \varphi_{\alpha\sigma}(\mathbf{r}) \varphi_{\beta\sigma}^*(\mathbf{r}) \varphi_{\alpha'\sigma'}^*(\mathbf{r}') \varphi_{\beta'\sigma'}(\mathbf{r}') \langle \Psi_0 | [c_{\beta\sigma}^\dagger(t) c_{\alpha\sigma}(t), c_{\alpha'\sigma'}^\dagger c_{\beta'\sigma'}] | \Psi_0 \rangle \\
 &= \frac{1}{\hbar i} \int_0^\infty dt e^{i\omega t} \sum_{\substack{\alpha,\beta \\ \alpha',\beta'}} \varphi_{\alpha\sigma}(\mathbf{r}) \varphi_{\beta\sigma}^*(\mathbf{r}) \varphi_{\alpha'\sigma'}^*(\mathbf{r}') \varphi_{\beta'\sigma'}(\mathbf{r}') \\
 &\quad \times \langle \Psi_0 | e^{iH_0 t/\hbar} c_{\beta\sigma}^\dagger c_{\alpha\sigma} e^{-iH_0 t/\hbar} c_{\alpha'\sigma'}^\dagger c_{\beta'\sigma'} - c_{\alpha'\sigma'}^\dagger c_{\beta'\sigma'} e^{iH_0 t/\hbar} c_{\beta\sigma}^\dagger c_{\alpha\sigma} e^{-iH_0 t/\hbar} | \Psi_0 \rangle \\
 &= \frac{1}{\hbar i} \int_0^\infty dt e^{i\omega t} \sum_{\substack{\alpha,\beta \\ \alpha',\beta'}} \varphi_{\alpha\sigma}(\mathbf{r}) \varphi_{\beta\sigma}^*(\mathbf{r}) \varphi_{\alpha'\sigma'}^*(\mathbf{r}') \varphi_{\beta'\sigma'}(\mathbf{r}') \\
 &\quad \times \langle \Psi_0 | e^{iH_0 t/\hbar} c_{\beta\sigma}^\dagger e^{-i(H_0 + \varepsilon_{\alpha\sigma})t/\hbar} c_{\alpha\sigma} c_{\alpha'\sigma'}^\dagger c_{\beta'\sigma'} \\
 &\quad \quad - c_{\alpha'\sigma'}^\dagger c_{\beta'\sigma'} e^{iH_0 t/\hbar} c_{\beta\sigma}^\dagger e^{-i(H_0 + \varepsilon_{\alpha\sigma})t/\hbar} c_{\alpha\sigma} | \Psi_0 \rangle \\
 &= \frac{1}{\hbar i} \int_0^\infty dt e^{i\omega t} \sum_{\substack{\alpha,\beta \\ \alpha',\beta'}} \varphi_{\alpha\sigma}(\mathbf{r}) \varphi_{\beta\sigma}^*(\mathbf{r}) \varphi_{\alpha'\sigma'}^*(\mathbf{r}') \varphi_{\beta'\sigma'}(\mathbf{r}') \\
 &\quad \times \langle \Psi_0 | e^{iH_0 t/\hbar} e^{-i(H_0 + \varepsilon_{\alpha\sigma} - \varepsilon_{\beta\sigma})t/\hbar} c_{\beta\sigma}^\dagger c_{\alpha\sigma} c_{\alpha'\sigma'}^\dagger c_{\beta'\sigma'} \\
 &\quad \quad - c_{\alpha'\sigma'}^\dagger c_{\beta'\sigma'} e^{iH_0 t/\hbar} e^{-i(H_0 + \varepsilon_{\alpha\sigma} - \varepsilon_{\beta\sigma})t/\hbar} c_{\beta\sigma}^\dagger c_{\alpha\sigma} | \Psi_0 \rangle \\
 &= \frac{1}{\hbar i} \int_0^\infty dt e^{i\omega t} \sum_{\substack{\alpha,\beta \\ \alpha',\beta'}} \varphi_{\alpha\sigma}(\mathbf{r}) \varphi_{\beta\sigma}^*(\mathbf{r}) \varphi_{\alpha'\sigma'}^*(\mathbf{r}') \varphi_{\beta'\sigma'}(\mathbf{r}') e^{-i(\varepsilon_{\alpha\sigma} - \varepsilon_{\beta\sigma} - \hbar\omega)t/\hbar} \\
 &\quad \times \langle \Psi_0 | c_{\beta\sigma}^\dagger c_{\alpha\sigma} c_{\alpha'\sigma'}^\dagger c_{\beta'\sigma'} - c_{\alpha'\sigma'}^\dagger c_{\beta'\sigma'} c_{\beta\sigma}^\dagger c_{\alpha\sigma} | \Psi_0 \rangle; \tag{C.1}
 \end{aligned}$$

dabei haben wir die Kommutatorbeziehungen $c_{\alpha\sigma} e^{-iH_0 t/\hbar} = e^{-it(\varepsilon_{\alpha\sigma} + H_0)/\hbar} c_{\alpha\sigma}$ und $c_{\beta\sigma}^\dagger e^{-iH_0 t/\hbar} = e^{-it(-\varepsilon_{\beta\sigma} + H_0)/\hbar} c_{\beta\sigma}^\dagger$ benutzt (Nebenrechnung).

Nichtverschwindende Beiträge aus der Summe über die Einteilchen-Zustände gibt es nur, falls $\sigma = \sigma'$. Anderenfalls müsste $\alpha = \beta$ und $\alpha' = \beta'$ sein; das liefert aber $[\hat{n}_{\alpha\sigma}, \hat{n}_{\alpha',\sigma'}] = 0$. Insgesamt erhält man also nur Beiträge für $\sigma = \sigma'$ und $\alpha = \alpha' \neq \beta = \beta'$. Die Fermionen-Vertauschungsrelationen führen dann auf $[c_{\beta\sigma}^\dagger c_{\alpha\sigma}, c_{\alpha\sigma}^\dagger c_{\beta\sigma}] = \hat{n}_{\beta\sigma} - \hat{n}_{\alpha\sigma}$. Damit folgt:

$$\begin{aligned} \chi_{\sigma\sigma'}^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) &= \delta_{\sigma\sigma'} \frac{1}{\hbar i} \int_0^\infty dt e^{-i(\varepsilon_{\alpha\sigma} - \varepsilon_{\beta\sigma} - \hbar\omega)t/\hbar} \sum_{\alpha,\beta} \varphi_{\alpha\sigma}(\mathbf{r}) \varphi_{\beta\sigma}^*(\mathbf{r}) \varphi_{\alpha\sigma}^*(\mathbf{r}') \varphi_{\beta\sigma}(\mathbf{r}') \\ &\quad \times \langle \Psi_0 | \hat{n}_{\beta\sigma} - \hat{n}_{\alpha\sigma} | \Psi_0 \rangle \\ &= \delta_{\sigma\sigma'} \lim_{\Gamma \rightarrow 0^+} \sum_{\alpha,\beta} \frac{f(\varepsilon_{\beta\sigma}) - f(\varepsilon_{\alpha\sigma})}{\varepsilon_{\beta\sigma} - \varepsilon_{\alpha\sigma} + \hbar\omega + i\Gamma} \varphi_{\alpha\sigma}(\mathbf{r}) \varphi_{\beta\sigma}^*(\mathbf{r}) \varphi_{\alpha'\sigma'}^*(\mathbf{r}') \varphi_{\beta'\sigma'}(\mathbf{r}'). \end{aligned} \quad (\text{C.2})$$

Eine endliche Dämpfungskonstante Γ im Energienenner bewirkt eine Verbreiterung der Resonanzen. Genaugenommen tritt sie bei der Behandlung der linearen Antwort auf eine adiabatisch einsetzende periodische Störung der Form $e^{-i\omega t + \Gamma t} + \text{c.c.}$ ($\Gamma \rightarrow 0^+$) auf, wenn die Responsefunktion $\chi_{\sigma\sigma'}^{(0)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', z)$ als Laplacetransformierte ($z = \omega + i\Gamma$) der Suszeptibilität im Zeitraum eingeführt wird.

Nebenrechnung: Kommutatoren

Gesucht ist der Kommutator $[c_{\alpha\sigma}, e^{-iH_0 t/\hbar}]$ und $[c_{\alpha\sigma}^\dagger, e^{-iH_0 t/\hbar}]$ für den ungestörten Hamilton-Operator H_0 . Wegen $[c_{\alpha\sigma}, \hat{n}_{\beta\sigma'}] = \delta_{\alpha\beta} \delta_{\sigma\sigma'} c_{\alpha\sigma}$ und $[c_{\alpha\sigma}^\dagger, \hat{n}_{\beta\sigma'}] = -\delta_{\alpha\beta} \delta_{\sigma\sigma'} c_{\alpha\sigma}^\dagger$ folgt:

$$c_{\alpha\sigma} H_0^k = (\varepsilon_{\alpha\sigma} c_{\alpha\sigma} + H_0 c_{\alpha\sigma}) H_0^{k-1} = (\varepsilon_{\alpha\sigma} + H_0) c_{\alpha\sigma} H_0^{k-1} = \dots = (\varepsilon_{\alpha\sigma} + H_0)^k c_{\alpha\sigma}. \quad (\text{C.3})$$

Unter Verwendung der Potenzreihenentwicklung der Exponentialfunktion erhält man:

$$\begin{aligned} c_{\alpha\sigma} e^{-iH_0 t/\hbar} &= \sum_{k=0}^{\infty} c_{\alpha\sigma} \left(-\frac{i}{\hbar} t H_0 \right)^k / k! \\ &= \sum_{k=0}^{\infty} \left(-\frac{i}{\hbar} t \right)^k / k! (\varepsilon_{\alpha\sigma} + H_0)^k c_{\alpha\sigma} \\ &= e^{-it(\varepsilon_{\alpha\sigma} + H_0)/\hbar} c_{\alpha\sigma}. \end{aligned} \quad (\text{C.4})$$

Analog gilt:

$$\begin{aligned} c_{\alpha\sigma}^\dagger H_0^k &= (-\varepsilon_{\alpha\sigma} c_{\alpha\sigma}^\dagger + H_0 c_{\alpha\sigma}^\dagger) H_0^{k-1} = (-\varepsilon_{\alpha\sigma} + H_0)^k c_{\alpha\sigma}^\dagger, \\ c_{\alpha\sigma}^\dagger e^{-iH_0 t/\hbar} &= e^{-it(-\varepsilon_{\alpha\sigma} + H_0)/\hbar} c_{\alpha\sigma}^\dagger. \end{aligned} \quad (\text{C.5})$$

Abbildungsverzeichnis

E.1 GaAs/Al _x Ga _{1-x} As-Heterostruktur	6
E.2 Messung des Additionsspektrums eines Quantenpunktes (Tarucha et al., 1996)	9
E.3 Raman-Streuexperiment an Quantenpunkten (Schüller et al., 1996) . . .	11
1.1 Interpolation der Austausch-Korrelations-Energie für verschiedene Dichteparameter r_s	31
1.2 Vergleich der glatten Interpolationsformeln für die Austausch-Korrelations-Energie im Regime $\nu < 1$ mit kubischer Spline-Interpolation nach Price & Das Sarma (1996)	33
2.1 Bandstruktur von GaAs	43
3.1 Radialfunktionen und Spektrum des harmonischen Oszillators im Magnetfeld (Fock-Darwin-Zustände)	46
3.2 Grundzustands-Dichteprofile und KS-Potentiale für $N = 8, B = 0$	50
3.3 Grundzustands-Dichteprofile und KS-Potentiale für $N = 8, B \neq 0$	51
3.4 Grundzustandsenergie im Vergleich mit exakter Diagonalisierung für $N = 2$ und 3	53
3.5 Vergleich mit exakter Diagonalisierung für $N = 4$ bis 7	55
3.6 KS-Energiespektrum für $N = 10$ (LDA, LSDA, LVSDA)	58
3.7 Grundzustandsenergie für $N = 10$ (LDA, LSDA, LVSDA)	59
3.8 Grundzustandsenergie für $N = 2$ bis 7 (LSDA, LVSDA); KS-Energien für $N = 18$	60
3.9 Experimentelles und berechnetes Additionsspektrum im Vergleich . . .	62
3.10 Berechnetes Additionsspektrum für $N = 2$ bis 15 (LDA vs. LVSDA) . . .	63
3.11 KS-Niveaus für $N = 5, 6, 7$ (Hundsche Regel im Magnetfeld)	64
3.12 Hochfeld-Limes für $N = 6$ (Spinpolarisation)	65
3.13 Randrekonstruktion im hohen Magnetfeld	67
3.14 Spontane Ströme ohne Magnetfeld	71
3.15 KS-Niveaus für $N = 5, 8, 9$ bei $B = 0$ (LVSDA)	72
3.16 KS-Niveaus für $N = 10$ bei $B = 0$ (LDA, LSDA, LVSDA)	73
4.1 Zwei-Stufen- und Drei-Stufen-Prozeß für inelastische Lichtstreuung . .	78
5.1 Reproduktion des Verallgemeinerten Kohnschen Theorems	97
6.1 Raman-Spektren aus RPA-, ALDA-, und ALSDA-Response-Rechnung .	102

6.2	Einteilchenspektrum für $N = 8$ bei $B = 0$ bis $3 T$	104
6.3	Raman-Spektren für $N = 8$ bei $B = 1 T$ (ALDA vs. ALSDA)	106
6.4	Induzierte Ladungs- und Spindichten für $N = 8$ bei $B = 1 T$	107
6.5	Raman-Intensitäten für $N = 8$ und $B = 0 T$ bis $3 T$	109
6.6	Raman-Intensitäten für $N = 8$ und $B = 0.7 T$ bis $1.2 T$	110
6.7	Abhängigkeit der Raman-Spektren vom Impulsübertrag	113
6.8	Überprüfung einer Summenregel	114
6.9	Raman-Spektren mit variabler Wechselwirkung	115

Literaturverzeichnis

- ¹ M. Abe, T. Mimura, K. Nishiuchi, A. Shibatomi, M. Kobayashi & T. Misugi. *Ultra-High-Speed HEMT Integrated Circuits*. In: R. K. Willardson, A. C. Beer & R. Dingle (Hrsg.), *Semiconductors and Semimetals (Applications of Multiquantum Wells, Selective Doping, and Superlattices)*, Band 24, S. 249. Academic Press, New York, 1987.
- ² G. Abstreiter, M. Cardona & A. Pinczuk. *Light scattering by free carrier excitations in semiconductors*. In: M. Cardona (Hrsg.), *Light Scattering in Solids IV. Electronic Scattering, Spin Effects, SERS and Morphotic Effects*, S. 5–150. Springer, Berlin, 1984.
- ³ G. Abstreiter & K. Ploog. *Inelastic light scattering in a quasi-two-dimensional electron system in GaAs-Al_xGa_{1-x}As heterojunctions*. Phys. Rev. Lett. **42**, 1308 (1979).
- ⁴ Y. Aharonov & D. Bohm. *Significance of electromagnetic potentials in the quantum theory*. Phys. Rev. **115**, 485 (1959).
- ⁵ N. W. Ashcroft & N. D. Mermin. *Solid State Physics*. Saunders College, Philadelphia, 17. Auflage, 1976.
- ⁶ R. C. Ashoori. *Electrons in artificial atoms*. Nature **379**, 413 (1996).
- ⁷ R. C. Ashoori, H. L. Störmer, J. S. Weiner, L. N. Pfeiffer, K. W. Baldwin & K. W. West. *N-electron ground state energies of a quantum dot in magnetic field*. Phys. Rev. Lett. **71**, 613 (1993).
- ⁸ R. C. Ashoori, H. L. Störmer, J. S. Weiner, L. N. Pfeiffer, S. J. Pearton, K. W. Baldwin & K. W. West. *Single-electron capacitance spectroscopy of discrete quantum levels*. Phys. Rev. Lett. **68**, 3088 (1992).
- ⁹ U. von Barth & L. Hedin. *A local exchange-correlation potential for the spin polarized case*. J. Phys. C **5**, 1629 (1972).
- ¹⁰ L. J. Bartolotti. *Time-dependent extension of the Hohenberg-Kohn-Levy energy-density functional*. Phys. Rev. A **24**, 1661 (1981).
- ¹¹ L. J. Bartolotti. *Time-dependent Kohn-Sham density-functional theory*. Phys. Rev. A **26**, 2243 (1982).
- ¹² O. Betbeder-Matibet, M. Combescot & C. Tanguy. *Quasi-two-dimensional electron gas: Exchange and correlation energies*. Phys. Rev. B **53**, 12929 (1996).
- ¹³ G. Biese. *Magneto-Raman-Spektroskopie an Quantendrähten und Quantenpunkten*. Dissertation, Universität Hamburg / Shaker-Verlag, Aachen, 1997.

- ¹⁴ F. Bloch. *Bemerkung zur Elektronentheorie des Ferromagnetismus und der elektrischen Leitfähigkeit*. Z. Physik **57**, 545 (1929).
- ¹⁵ F. A. Blum. *Inelastic light scattering from semiconductor plasmas in a magnetic field*. Phys. Rev. B **1**, 1125 (1970).
- ¹⁶ F. Bolton. *Monte-Carlo calculation of few-electron systems in quantum dots*. Solid State Electronics **37**, 1159 (1994).
- ¹⁷ F. Bolton. *Wenig-Elektronen-Systeme in Quanten-Dots*. Dissertation, Universität Regensburg, 1994.
- ¹⁸ A. Brataas, A. G. Mal'shukov, C. Steinebach, V. Gudmundsson & K. A. Chao. *Spin-density and charge-density excitations in quantum wires*. Phys. Rev. B **55**, 13161 (1997).
- ¹⁹ L. Brey, N. F. Johnson & B. I. Halperin. *Optical and magneto-optical absorption in parabolic quantum wells*. Phys. Rev. B **40**, 10647 (1989).
- ²⁰ E. Burstein, A. Pinczuk & S. Buchner. *Resonance inelastic light scattering by charge carriers at semiconductor surfaces*. In: B. L. H. Wilson (Hrsg.), *Physics of Semiconductors (Proc. ICPS 14, Edinburgh, 1978)*, S. 1231. Institute of Physics, London, 1979.
- ²¹ E. Burstein, A. Pinczuk & D. L. Mills. *Inelastic light scattering by charge carrier excitations of two-dimensional plasmas: theoretical considerations*. Surf. Science **98**, 451 (1980).
- ²² J. M. Caillol, D. Levesque, J. J. Weis & J. P. Hansen. *A Monte Carlo study of the classical two-dimensional one-component plasma*. J. Stat. Phys. **28**, 325 (1982).
- ²³ K. Capelle & E. K. U. Gross. *Spin-density functionals from current-density functional theory and vice versa: A road towards new approximations*. Phys. Rev. Lett. **78**, 1872 (1997).
- ²⁴ D. M. Ceperley. *Ground state of the fermion one-component plasma: a Monte Carlo study in two and three dimensions*. Phys. Rev. B **18**, 3126 (1978).
- ²⁵ D. M. Ceperley & B. J. Alder. *Ground state of the electron gas by a stochastic method*. Phys. Rev. Lett. **45**, 566 (1980).
- ²⁶ T. Chakraborty & F. C. Zhang. *Role of reversed spins in the correlated ground state for the fractional quantum Hall effect*. Phys. Rev. B **29**, 7032 (1984).
- ²⁷ C. de C. Chamon & X. G. Wen. *Sharp and smooth boundaries of quantum Hall liquids*. Phys. Rev. B **49**, 8227 (1994).
- ²⁸ V. Chandrasekhar, R. A. Webb, M. J. Brady, M. B. Ketchen, W. J. Gallagher & A. Kleinsasser. *Magnetic response of a single, isolated gold loop*. Phys. Rev. Lett. **67**, 3578 (1991).
- ²⁹ J. R. Chelikowsky & M. L. Cohen. *Inter-subband optical absorption in space-charge layers on semiconductor surfaces*. Phys. Rev. B **14**, 556 (1976).
- ³⁰ H.-F. Cheung, Y. Gefen & E. K. Riedel. *Isolated rings of mesoscopic dimensions. Quantum coherence and persistent currents*. IBM J. Res. Develop. **32**, 359 (1988).
- ³¹ D. B. Chklovskii, B. I. Shklovskii & L. I. Glazman. *Electrostatics of edge channels*. Phys. Rev. B **46**, 4026 (1992).

- ³² S. L. Chuang, M. S. C. Luo, S. Schmitt-Rink & A. Pinczuk. *Many-body effects on intersubband transitions in semiconductor quantum-well structures*. Phys. Rev. B **46**, 1897 (1992).
- ³³ R. W. Danz & M. L. Glasser. *Exchange energy of an electron gas in a magnetic field*. Phys. Rev. B **4**, 94 (1971).
- ³⁴ T. Darnhofer. *Ferninfrarot-Response von Quanten-Dots mit Elektronen oder Löchern*. Dissertation, Universität Regensburg, 1996.
- ³⁵ T. Darnhofer & U. Rössler. *Effects of band structure and spin in quantum dots*. Phys. Rev. B **47**, 16020 (1993).
- ³⁶ C. G. Darwin. *The diamagnetism of the free electron*. Proc. Cambridge Phil. Soc. **27**, 86 (1931).
- ³⁷ B. M. Deb & S. K. Ghosh. *Schrödinger fluid dynamics of many-electron systems in a time-dependent density-functional framework*. J. Chem. Phys. **77**, 342 (1982).
- ³⁸ T. Demel, D. Heitmann, P. Grambow & K. Ploog. *Nonlocal dynamic response and level crossings in quantum-dot structures*. Phys. Rev. Lett. **64**, 788 (1990).
- ³⁹ G. Diener. *Current-density-functional theory for a non-relativistic electron gas in a strong magnetic field*. J. Phys.: Condens. Matter **3**, 9417 (1991).
- ⁴⁰ J. F. Dobson. *Harmonic-potential theorem: Implications for approximate many-body theories*. Phys. Rev. Lett. **73**, 2244 (1994).
- ⁴¹ R. M. Dreizler & E. K. U. Gross. *Density Functional Theory*. Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 1990.
- ⁴² H. Ebert, M. Bottonetti & E. K. U. Gross. *Current density functional theory of spontaneously magnetised solids*. Europhys. Lett. **40**, 545 (1997).
- ⁴³ M. Eto. *Electronic structures of few electrons in a quantum dot under magnetic field*. Jpn. J. Appl. Phys. **36**, 3924 (1997).
- ⁴⁴ T. Ezaki, Y. Sugimoto, N. Mori & C. Hamaguchi. *Electronic properties in quantum dots with asymmetric confining potential*. Semicond. Sci. Technol. **13**, A 1 (1998).
- ⁴⁵ G. Fano & F. Ortolani. *Interpolation formula for the energy of a two-dimensional electron gas in the lowest Landau level*. Phys. Rev. B **37**, 8179 (1988).
- ⁴⁶ B. Farid. *Self-consistent density-functional approach to the correlated ground states and an unrestricted many-body perturbation theory*. Phil. Mag. B **76**, 145 (1997).
- ⁴⁷ M. Ferconi, M. R. Geller & G. Vignale. *Edge structure of fractional quantum Hall systems from density-functional theory*. Phys. Rev. B **52**, 16357 (1995).
- ⁴⁸ M. Ferconi & G. Vignale. *Current-density-functional theory of quantum dots in a magnetic field*. Phys. Rev. B **50**, 14722 (1994).
- ⁴⁹ E. Fermi. *Eine statistische Methode zur Bestimmung einiger Eigenschaften des Atoms und ihre Anwendung auf die Theorie des periodischen Systems der Elemente*. Z. Physik **48**, 73 (1928).
- ⁵⁰ V. Fock. *Bemerkung zur Quantelung des harmonischen Oszillators im Magnetfeld*. Z. Phys. **47**, 446 (1928).

- ⁵¹ D. Gammon, B. V. Shanabrook, J. C. Ryan & D. S. Katzer. *Spin-density waves in a quasi-two-dimensional electron gas*. Phys. Rev. B **41**, 12311 (1990).
- ⁵² M. Gell-Mann & K. A. Brueckner. *Correlation energy of an electron gas at high density*. Phys. Rev. **106**, 364 (1957).
- ⁵³ A. R. Goñi, A. Pinczuk, J. S. Weiner, J. M. Calleja, B. S. Dennis, L. N. Pfeiffer & K. W. West. *One-dimensional plasmon dispersion and dispersionless intersubband excitations in GaAs quantum wires*. Phys. Rev. Lett. **67**, 3298 (1991).
- ⁵⁴ L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse & G. Le Roux. *Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices*. Appl. Phys. Lett. **47**, 1099 (1985).
- ⁵⁵ A. O. Govorov & L. I. Magarill. *Inelastic light scattering in quantum dots: effect of Coulomb interaction*. Phys. Solid State **36**, 139 (1994).
- ⁵⁶ I. S. Gradshteyn & I. M. Ryzhik. *Table of Integrals, Series and Products*. Academic Press, New York, 1980.
- ⁵⁷ E. K. U. Gross & W. Kohn. *Time-dependent density-functional theory*. In: S. B. Trickey (Hrsg.), *Density Functional Theory of Many-Fermion Systems*, Band 21 aus der Reihe *Advances in Quantum Chemistry*, S. 255–291. Academic Press, New York, 1990.
- ⁵⁸ V. Gudmundsson, A. Brataas, P. Grambow, B. Meurer, T. Kurth & D. Heitmann. *Bernstein modes in quantum wires and dots*. Phys. Rev. B **51**, 17744 (1995).
- ⁵⁹ V. Gudmundsson & R. R. Gerhardts. *Self-consistent model of magnetoplasmons in quantum dots with nearly parabolic confinement potentials*. Phys. Rev. B **43**, 12098 (1991).
- ⁶⁰ O. Gunnarsson, M. Jonson & B. I. Lundqvist. *Descriptions of exchange and correlation effects in inhomogeneous electron systems*. Phys. Rev. B **20**, 3136 (1979).
- ⁶¹ O. Gunnarsson & B. I. Lundqvist. *Exchange and correlation in atoms, molecules, and solids by the spin-density formalism*. Phys. Rev. B **13**, 4274 (1976).
- ⁶² D. C. Hamilton & A. L. McWorther. *Raman scattering from spin-density fluctuations in n-GaAs*. In: G. B. Wright (Hrsg.), *Light Scattering Spectra of Solids*, S. 309. Springer, New York, 1969.
- ⁶³ P. Hawrylak & D. Pfannkuche. *Magnetoluminescence from correlated electrons in quantum dots*. Phys. Rev. Lett. **70**, 485 (1993).
- ⁶⁴ L. Hedin & B. I. Lundqvist. *Explicit local exchange-correlation potentials*. J. Phys. C **4**, 2064 (1971).
- ⁶⁵ P. Hohenberg & W. Kohn. *Inhomogeneous electron gas*. Phys. Rev. **136**, B 864 (1964).
- ⁶⁶ H. v. Houten, C. W. J. Beenakker & A. A. M. Staring. *Coulomb-Blockade Oscillations in Semiconductor Nanostructures*. In: H. Grabert, J. M. Martinis & M. H. Devoret (Hrsg.), *Single Charge Tunneling (Coulomb Blockade Phenomena in Nanostructures)*, S. 167–216. Plenum Press, New York, 1991.
- ⁶⁷ L. van Hove. *Correlation in space and time and Born approximation scattering in systems of interacting particles*. Phys. Rev. **95**, 249 (1954).
- ⁶⁸ H. Imamura, H. Aoki & P. A. Maksym. *Spin blockade in single and double quantum dots in magnetic fields: A correlation effect*. Phys. Rev. B **57**, R 4257 (1998).

- ⁶⁹ A. Isihara & L. Ioratti. *Exact evaluation of the second-order exchange energy of a two-dimensional electron fluid*. Phys. Rev. B **22**, 214 (1980).
- ⁷⁰ A. Isihara, T. Toyoda & D. Y. Kojima. *Study of a two-dimensional electron gas in a magnetic field. I. Weak field / II. Intermediate field*. Phys. Rev. B **19**, 831/846 (1979).
- ⁷¹ J. D. Jackson. *Classical Electrodynamics*. Wiley, New York, 1975.
- ⁷² S. S. Jha. *Theory of light scattering from electronic excitations in solids*. Nuovo Cimento LXIII B, 331 (1969).
- ⁷³ M. Jonson. *Electron correlations in inversion layers*. J. Phys. C: Solid State Phys. **9**, 3055 (1976).
- ⁷⁴ E. O. Kane. *Energy band structure in p-type germanium and silicon*. J. Phys. Chem. Solids **1**, 82 (1956).
- ⁷⁵ E. O. Kane. *Band structure of indium antimonide*. J. Phys. Chem. Solids **1**, 249 (1957).
- ⁷⁶ A. Karlhede, S. A. Kivelson, K. Lejnell & S. L. Sondhi. *Textured edges in quantum Hall systems*. Phys. Rev. Lett. **77**, 2061 (1996).
- ⁷⁷ M. Kastner. *Artificial atoms*. Physics Today **46**, 24 (1993).
- ⁷⁸ S. Katayama & T. Ando. *Light scattering by electronic excitations in n-type GaAs-Al_xGa_{1-x}As superlattices*. J. Phys. Soc. Japan **54**, 1615 (1985).
- ⁷⁹ L. V. Keldysh & T. A. Onishchenko. *Electron liquid in a superstrong magnetic field*. [Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz. **24**, 70 (1976)] JETP Lett. **24**, 59 (1976).
- ⁸⁰ M. V. Klein. *Electronic Raman scattering*. In: M. Cardona (Hrsg.), *Light Scattering in Solids*, Band 8 aus der Reihe *Topics in Applied Physics*, S. 147–204. Springer, Berlin, 6. Auflage, 1975.
- ⁸¹ K. v. Klitzing, K. G. Dorda & M. Pepper. *New high-accuracy method for the determination of the fine-structure constant based on quantized Hall resistance*. Phys. Rev. Lett. **45**, 494 (1980).
- ⁸² W. Kohn. *Theory of Bloch electrons in a magnetic field*. Phys. Rev. **115**, 1160 (1959).
- ⁸³ W. Kohn. *Cyclotron resonance and de Haas–van Alphen oscillations of an interacting electron gas*. Phys. Rev. **123**, 1242 (1961).
- ⁸⁴ W. Kohn & L. J. Sham. *Self-consistent equations including exchange and correlation effects*. Phys. Rev. **140**, A 1133 (1965).
- ⁸⁵ M. Koskinen, M. Maninen & S. M. Reimann. *Hund's rules and spin density waves in quantum dots*. Phys. Rev. Lett. **79**, 1389 (1997).
- ⁸⁶ L. P. Kouwenhoven, T. H. Oosterkamp, M. W. S. Danosastro, M. Eto, D. G. Austing, T. Honda & S. Tarucha. *Excitation spectra of circular, few-electron quantum dots*. Science **278**, 1788 (1997).
- ⁸⁷ A. V. Krasheninnikov & L. A. Openov. *Elementary quantum dot gates for single-electron computing*. [Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz. **64**, 214 (1996)] JETP Lett. **64**, 231 (1996).
- ⁸⁸ J. B. Krieger & Y. Li. *Accurate orbital-independent density-functional potential including self-interaction correction*. Phys. Rev. A **39**, 6052 (1989).
- ⁸⁹ W. Kutzelnigg & J. D. Morgan. *Hund's rules*. Z. Phys. D **36**, 197 (1996).

- ⁹⁰ L. D. Landau & E. M. Lifshitz. *Quantum Mechanics*. Addison-Wesley, Reading, Mass., 2. Auflage, 1965.
- ⁹¹ Landolt-Börnstein. *Halbleiter (Neue Serie III, Hrg. O. Madelung)*, Band 22a. Springer, Berlin, 1987.
- ⁹² R. B. Laughlin. *Anomalous quantum Hall effect: an incompressible quantum fluid with fractionally charged excitations*. Phys. Rev. Lett. **50**, 1395 (1983).
- ⁹³ D. Levesque, J. J. Weis & A. H. MacDonald. *Crystallization of the incompressible quantum-fluid state of a two-dimensional electron gas in a strong magnetic field*. Phys. Rev. B **30**, 1056 (1984).
- ⁹⁴ L. P. Lévy, G. Dolan, J. Dunsmuir & H. Bouchiat. *Magnetization of mesoscopic copper rings: Evidence for persistent currents*. Phys. Rev. Lett. **64**, 2074 (1990).
- ⁹⁵ E. Lipparini & Ll. Serra. *Spin-wave excitations in quantum dots*. Phys. Rev. B **57**, R 6830 (1998).
- ⁹⁶ E. Lipparini & S. Stringari. *Sum rules and giant resonances in nuclei*. Phys. Rep. **175**, 103 (1989).
- ⁹⁷ D. J. Lockwood, P. Hawrylak, P. D. Wang, C. M. Sotomayor Torres, A. Pinczuk & B. S. Dennis. *Shell structure and electronic excitations of quantum dots in a magnetic field probed by inelastic light scattering*. Phys. Rev. Lett. **77**, 354 (1996).
- ⁹⁸ A. Lorke & J. P. Kotthaus. *Coupling of quantum dots on GaAs*. Phys. Rev. Lett. **64**, 2559 (1990).
- ⁹⁹ P. O. Löwdin. *A note on the quantum-mechanical perturbation theory*. J. Chem. Phys. **19**, 1396 (1951).
- ¹⁰⁰ P. O. Löwdin. *Studies in perturbation theory. IV. Solution of eigenvalue problem by projection operator formalism*. J. Math. Phys. **3**, 969 (1962).
- ¹⁰¹ M. I. Lubin, O. Heinonen & M. D. Johnson. *Spin ensemble density-functional theory for inhomogeneous quantum Hall systems*. Phys. Rev. B **56**, 10373 (1997).
- ¹⁰² J. M. Luttinger & W. Kohn. *Motion of electrons and holes in perturbed periodic fields*. Phys. Rev. **97**, 869 (1955).
- ¹⁰³ A. H. MacDonald & S. M. Girvin. *Quasiparticle states and the fractional quantum Hall effect*. Phys. Rev. B **33**, 4414 (1986).
- ¹⁰⁴ A. H. MacDonald, S. R. E. Yang & M. D. Johnson. *Quantum dots in strong magnetic fields: stability criteria for the maximum density droplet*. Aust. J. Phys. **46**, 345 (1993).
- ¹⁰⁵ D. Mailly, C. Chapelier & A. Benoit. *Experimental observation of persistent currents in GaAs-AlGaAs single loop*. Phys. Rev. Lett. **70**, 2020 (1993).
- ¹⁰⁶ P. A. Maksym & T. Chakraborty. *Quantum dots in a magnetic field: Role of electron-electron interaction*. Phys. Rev. Lett. **65**, 108 (1990).
- ¹⁰⁷ A. Manolescu. *Density profile in a weakly modulated two-dimensional system in a magnetic field*. Phys. Rev. B **52**, 2831 (1995).
- ¹⁰⁸ A. Manolescu & R. R. Gerhardts. *Coulomb effects on the magnetoconductance of a two-dimensional electron gas in a lateral superlattice: a screened Hartree-Fock calculation*. Phys. Rev. B **51**, 1703 (1995).

- ¹⁰⁹ A. Manolescu & R. R. Gerhardts. *Coulomb effects on the quantum transport of a two-dimensional electron system in periodic electric and magnetic fields*. Phys. Rev. B **56**, 9707 (1997).
- ¹¹⁰ I. K. Marmorosk & S. Das Sarma. *Interacting intersubband excitations in parabolic semiconductor quantum wells*. Phys. Rev. B **48**, 1544 (1993).
- ¹¹¹ J. Y. Marzin, J. M. Gerard, A. Izrael, D. Barrier & G. Bastard. *Photoluminescence of single InAs quantum dots obtained by self-organized growth on GaAs*. Phys. Rev. Lett. **73**, 716 (1994).
- ¹¹² A. Mazzolo, E. L. Pollock & G. Zérah. *Inhomogeneity and current corrections to a non-uniform electronic system in strong magnetic field*. Physics Letters A **209**, 123 (1995).
- ¹¹³ P. L. McEuen, E. B. Foxman, J. Kinaret, U. Meirav, M. A. Kastner, N. S. Wingreen & S. J. Wind. *Self-consistent addition spectrum of a Coulomb island in the quantum Hall regime*. Phys. Rev. B **45**, 11419 (1992).
- ¹¹⁴ P. L. McEuen, E. B. Foxman, U. Meirav, M. A. Kastner, Y. Meir, N. S. Wingreen & S. J. Wind. *Transport spectroscopy of a Coulomb island in the quantum Hall regime*. Phys. Rev. Lett. **66**, 1926 (1991).
- ¹¹⁵ U. Merkt, J. Huser & M. Wagner. *Energy spectra of two electrons in a harmonic quantum dot*. Phys. Rev. B **43**, 7320 (1991).
- ¹¹⁶ N. D. Mermin. *Thermal properties of the inhomogeneous electron gas*. Phys. Rev. **137**, A 1441 (1965).
- ¹¹⁷ B. Meurer, D. Heitmann & K. Ploog. *Single-electron charging of quantum-dot atoms*. Phys. Rev. Lett. **68**, 1371 (1992).
- ¹¹⁸ B. Miller. *Hochauflösende Kapazitätsspektroskopie an selbstorganisierten Quantenpunkten*. Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München, 1998.
- ¹¹⁹ B. T. Miller, W. Hansen, S. Manus, R. J. Luyken, A. Lorke, J. P. Kotthaus, S. Huant, G. Medeiros-Ribeiro & P. M. Petroff. *Few-electron ground states of charge-tunable self-assembled quantum dots*. Phys. Rev. B **56**, 6764 (1997).
- ¹²⁰ A. Mooradian. *Light scattering from single-particle electron excitations in semiconductors*. Phys. Rev. Lett. **20**, 1102 (1968).
- ¹²¹ N. J. Morgenstern Horing, R. W. Danz & M. L. Glasser. *Analysis of magnetic field effects on the correlation energy of a quantum plasma: Quantum strong-field limit*. Phys. Rev. A **6**, 2391 (1972).
- ¹²² T. Ogawa & T. Takagahara. *Optical absorption and Sommerfeld factors of one-dimensional semiconductors: An exact treatment of excitonic effects*. Phys. Rev. B **44**, 8138 (1991).
- ¹²³ F. J. Ohkawa & Y. Uemura. *Quantized surface states of a narrow-gap semiconductor*. J. Phys. Soc. Jpn. **37**, 1325 (1974).
- ¹²⁴ G. L. Oliver & J. P. Perdew. *Spin-density gradient expansion for the kinetic energy*. Phys. Rev. A **20**, 397 (1979).
- ¹²⁵ T. H. Oosterkamp, S. F. Godijn, M. J. Uilenreef, Y. V. Nazarov, N. C. van der Vaart & L. P. Kouwenhoven. *Changes in the magnetization of a double quantum dot*. Phys. Rev.

- Lett. **80**, 4951 (1998).
- ¹²⁶ V. Pellegrini, A. Pinczuk, B. S. Dennis, A. S. Plaut, L. N. Pfeiffer & K. W. West. *Collapse of spin excitations in quantum Hall states of coupled electron double layers*. Phys. Rev. Lett. **78**, 310 (1997).
- ¹²⁷ J. P. Perdew. *Self-interaction correction*. In: *Density functional theory*, S. 127–165. Springer, Berlin, 1983.
- ¹²⁸ J. P. Perdew, K. Burke & M. Ernzerhof. *Generalized gradient approximation made simple*. Phys. Rev. Lett. **77**, 3865 (1996).
- ¹²⁹ J. P. Perdew & D. C. Langreth. *The exchange-correlation energy of a metallic surface*. Solid State Commun. **17**, 1425 (1975).
- ¹³⁰ J. P. Perdew & A. Zunger. *Self-interaction correction to density-functional approximations for many-electron systems*. Phys. Rev. B **23**, 5048 (1981).
- ¹³¹ D. Pfannkuche, R. R. Gerhardt, P. A. Maksym & V. Gudmundsson. *Theory of quantum dot helium*. Physica B **189**, 6 (1993).
- ¹³² D. Pfannkuche, V. Gudmundsson, P. Hawrylak & R. R. Gerhardt. *Far-infrared response of quantum dots: from few electron excitations to magnetoplasmons*. Solid-State Electron. **37**, 1221 (1994).
- ¹³³ D. Pfannkuche, V. Gudmundsson & P. A. Maksym. *Comparison of a Hartree, a Hartree-Fock, and an exact treatment of quantum-dot helium*. Phys. Rev. B **47**, 2244 (1993).
- ¹³⁴ L. N. Pfeiffer, K. W. West, H. L. Störmer, J. P. Eisenstein, K. W. Baldwin, D. Gershoni & J. Spector. *Formation of a high quality two-dimensional electron gas on cleaved GaAs*. Appl. Phys. Lett. **56**, 1697 (1990).
- ¹³⁵ M. Pi, M. Barranco, A. Emperador, E. Lipparini & Ll. Serra. *Current-density-functional approach to large quantum dots in intense magnetic fields*. Phys. Rev. B **57**, 14783 (1998).
- ¹³⁶ A. Pinczuk & G. Abstreiter. *Spectroscopy of free carrier excitations in semiconductor quantum wells*. In: M. Cardona & G. Güntherodt (Hrsg.), *Light Scattering in Solids V.*, Band 66 aus der Reihe *Topics in Applied Physics*, S. 153–211. Springer, Berlin, 1988.
- ¹³⁷ A. Pinczuk, L. Brillson, E. Burstein & E. Anastassakis. *Resonant light scattering by single-particle electronic excitations in n-GaAs*. Phys. Rev. Lett. **27**, 317 (1971).
- ¹³⁸ A. Pinczuk, B. S. Dennis, L. N. Pfeiffer & K. W. West. *Inelastic light scattering by electrons in semiconductor quantum structures*. In: D. J. Lockwood (Hrsg.), *Physics of Semiconductors (Proc. ICPS 22, Vancouver, 1994)*, S. 11–18. World Scientific, Singapore, 1994.
- ¹³⁹ A. Pinczuk, S. Schmitt-Rink, G. Danan, J. P. Valladares, L. N. Pfeiffer & K. W. West. *Large exchange interactions in the electron gas of GaAs quantum wells*. Phys. Rev. Lett. **63**, 1633 (1989).
- ¹⁴⁰ A. Pinczuk, H. L. Störmer, R. Dingle, J. M. Worlock, W. Wiegmann & A. C. Gosard. *Observation of intersubband excitations in a multilayer two-dimensional electron gas*. Solid State Comm. **32**, 1001 (1979).

- ¹⁴¹ D. Pines. *Elementary Excitations in Solids – Lectures on Phonons, Electrons, and Plasmons*. Addison-Wesley, Reading, MA, 6. Auflage, 1963.
- ¹⁴² P. M. Platzman & P. A. Wolff. *Waves and Interactions in Solid State Plasmas*. Academic Press, New York, 1973.
- ¹⁴³ W. Porod. *Quantum-dot devices and quantum-dot cellular automata*. J. Franklin Institute **334B**, 1147 (1997).
- ¹⁴⁴ W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky & W. T. Vetterling. *Numerical Recipes – The Art of Scientific Computing*. Cambridge University Press, Cambridge, 1989.
- ¹⁴⁵ R. Price & S. Das Sarma. *Exchange-correlation energy for a two-dimensional electron gas in a magnetic field*. Phys. Rev. B **54**, 8033 (1996).
- ¹⁴⁶ A. K. Rajagopal & J. Callaway. *Inhomogeneous electron gas*. Phys. Rev. B **7**, 1912 (1973).
- ¹⁴⁷ A. K. Rajagopal & J. C. Kimball. *Correlations in a two-dimensional electron system*. Phys. Rev. B **15**, 2819 (1977).
- ¹⁴⁸ M. Rasolt & F. Perrot. *Spontaneously symmetry-broken-current-carrying states in a strongly inhomogeneous interacting two-dimensional Fermi liquid*. Phys. Rev. Lett. **69**, 2563 (1992).
- ¹⁴⁹ P. J. Reynolds, D. M. Ceperley, B. J. Alder & W. A. Lester Jr. *Fixed-node quantum Monte Carlo for molecules*. J. Chem. Phys. **77**, 5593 (1982).
- ¹⁵⁰ B. K. Ridley. *Quantum Processes in Semiconductors*. Oxford Science Publications. Clarendon Press, Oxford, 3. Auflage, 1993.
- ¹⁵¹ E. Runge & E. K. U. Gross. *Density-functional theory for time-dependent systems*. Phys. Rev. Lett. **52**, 997 (1984).
- ¹⁵² S. Sasaki, D. G. Austing & S. Tarucha. *Spin states in circular and elliptical quantum dots*. Erscheint in Physica B (1998).
- ¹⁵³ A. Schmeller, A. R. Goñi, A. Pinczuk, J. S. Weiner, J. M. Calleja, B. S. Dennis, L. N. Pfeiffer & K. W. West. *Inelastic light scattering by spin-density, charge-density, and single-particle excitations in GaAs quantum wires*. Phys. Rev. B **49**, 14778 (1994).
- ¹⁵⁴ C. Schüller, G. Biese, C. Steinebach, D. Heitmann, P. Grambow & K. Eberl. *Single-particle excitations and many-particle interactions in quantum wires and dots*. Phys. Rev. B **54**, R 17304 (1996).
- ¹⁵⁵ C. Schüller, K. Keller, G. Biese, E. Ulrichs, L. Rolf, C. Steinebach & D. Heitmann. *Quasiatomic fine structure and selection rules in quantum dots*. Phys. Rev. Lett. **80**, 2673 (1998).
- ¹⁵⁶ C. Schüller, J. Kraus, G. Schaack, G. Weimann & K. Panzlaff. *Electronic Raman scattering in p-doped GaAs/Ga_{1-x}Al_xAs quantum-well structures: scattering mechanisms and many-particle interactions*. Phys. Rev. B **50**, 18387 (1994).
- ¹⁵⁷ Ll. Serra, M. Barranco, A. Emperador, M. Pi & E. Lipparini. *Spin and density longitudinal response of quantum dots in time-dependent local-spin-density approximation*. Preprint [cond-mat/9806104] (1998).

- 158 R. T. Sharp & G. K. Horton. *A variational approach to the unipotential many-electron problem*. Phys. Rev. **90**, 317 (1953).
- 159 C. Sikorski & U. Merkt. *Spectroscopy of electronic states in InSb quantum dots*. Phys. Rev. Lett. **62**, 2164 (1989).
- 160 K. S. Singwi, M. P. Tosi, R. H. Land & A. Sjölander. *Electron correlations at metallic densities*. Phys. Rev. **176**, 589 (1968).
- 161 P. Skudlarski & G. Vignale. *Exchange-correlation energy of a three-dimensional electron gas in a magnetic field*. Phys. Rev. B **48**, 8547 (1993).
- 162 S. L. Sondhi, A. Karlhede, S. A. Kivelson & E. H. Rezayi. *Textured edges in quantum Hall systems*. Phys. Rev. B **47**, 16419 (1993).
- 163 C. Steinebach, C. Schüller & D. Heitmann. *Resonant Raman scattering of quantum dots*. Erscheint in Phys. Rev. B (1998).
- 164 T. H. Stoof & G. E. W. Bauer. *Density-functional theory of quantum wires and dots in a strong magnetic field*. Phys. Rev. B **52**, 12143 (1995).
- 165 I. N. Stranski & L. Krastanov. *Zur Theorie der orientierten Ausscheidung von Ionenkristallen aufeinander*. Akad. der Wiss. Wien, Math.-Naturw. Kl. IIb **146**, 797 (1937).
- 166 R. Strenz, V. Roßkopf, F. Hirler, G. Abstreiter, G. Böhm, G. Tränkle & G. Weimann. *Confined plasmons in shallow etched quantum wires*. Semicond. Sci. Technol. **9**, 399 (1994).
- 167 J. D. Talman & W. F. Shadwick. *Optimized effective atomic central potential*. Phys. Rev. A **14**, 36 (1976).
- 168 B. Tanatar & D. M. Ceperley. *Ground state of the two-dimensional electron gas*. Phys. Rev. B **39**, 5005 (1989).
- 169 S. Tarucha. *Private Mitteilung*, 1998.
- 170 S. Tarucha, D. G. Austing, T. Honda, R. J. van der Haage & L. P. Kouwenhoven. *Shell filling and spin effects in a few electron quantum dot*. Phys. Rev. Lett. **77**, 3613 (1996).
- 171 L. H. Thomas. *The calculation of atomic fields*. Proc. Cambridge Phil. Soc. **23**, 542 (1927).
- 172 Y. Tokura, L. P. Kouwenhoven, D. G. Austing & S. Tarucha. *Many-body effect in an artificial atom*. Physica B **246**, 83 (1998).
- 173 E. Tossati, M. Parrinello & C. D. Chen. *The fractional quantized two-dimensional Hall effect*. In: G. F. Bassani (Hrsg.), *Punti focali nella teoria degli stati condensati (Highlights of Condensed-Matter Physics)*, S. 453. Academic Press, New York, 1985.
- 174 D. C. Tsui, H. L. Störmer & A. C. Gossard. *Two-dimensional magnetotransport in the extreme quantum limit*. Phys. Rev. Lett. **48**, 1559 (1982).
- 175 G. Vignale. *Current density functional theory and orbital magnetism*. In: E. K. U. Gross & R. M. Dreizler (Hrsg.), *Density Functional Theory*, Band 337 aus der Reihe NATO ASI Series B: Physics, S. 485–511. Plenum Press, New York, 1995.
- 176 G. Vignale & M. Rasolt. *Density-functional theory in strong magnetic fields*. Phys. Rev. Lett. **59**, 2360 (1987).

- ¹⁷⁷ G. Vignale & M. Rasolt. *Current- and spin-density-functional theory for inhomogeneous electronic systems in strong magnetic fields*. Phys. Rev. B **37**, 10685 (1988).
- ¹⁷⁸ G. Vignale, M. Rasolt & D. J. W. Geldart. *Diamagnetic susceptibility of a dense electron gas*. Phys. Rev. B **37**, 2502 (1988).
- ¹⁷⁹ G. Vignale, M. Rasolt & D. J. W. Geldart. *Magnetic fields and density-functional theory*. In: S. B. Trickey (Hrsg.), *Density Functional Theory of Many-Fermion Systems*, Band 21 aus der Reihe *Advances in Quantum Chemistry*, S. 235–253. Academic Press, New York, 1990.
- ¹⁸⁰ S. H. Vosko, L. Wiek & M. Nusair. *Accurate spin-dependent electron liquid correlation energies for local spin density calculations: a critical analysis*. Can. J. Phys. **58**, 1200 (1980).
- ¹⁸¹ W. Wegscheider, L. N. Pfeiffer & K. W. West. *GaAs/AlGaAs Quantum Wire Lasers and Other Low-Dimensional Structures Fabricated by Cleaved-Edge Overgrowth*. In: R. Helbig (Hrsg.), *Festkörperprobleme/Advances in Solid State Physics*, Band 35, S. 155. Vieweg, Braunschweig/Wiesbaden, 1996.
- ¹⁸² C. Weisbuch. In: E. E. Mendez & K. v. Klitzing (Hrsg.), *Physics and Applications of Quantum Wells and Superlattices*, Band 170 aus der Reihe *NATO ASI Series B: Physics*, S. 261. Plenum Press, New York, 1987.
- ¹⁸³ M. Weissbluth. *Atoms and Molecules*. Academic Press, New York, 1978.
- ¹⁸⁴ E. P. Wigner. *On the interaction of electrons in metals*. Phys. Rev. **46**, 1002 (1934).
- ¹⁸⁵ R. Winkler. *Einteilchenzustände und Exzitonen in geschichteten Halbleiterstrukturen*. Dissertation, Universität Regensburg, 1994.
- ¹⁸⁶ P. A. Wolff. *Effect of nonparabolicity on light scattering from plasmas in solids*. Phys. Rev. **171**, 436 (1968).
- ¹⁸⁷ S.-R. Yang, A. H. MacDonald & M. D. Johnson. *Addition spectra of quantum dots in strong magnetic field*. Phys. Rev. Lett. **71**, 3194 (1993).
- ¹⁸⁸ S. K. Yip. *Magneto-optical absorption by electrons in the presence of parabolic confinement potentials*. Phys. Rev. B **43**, 1707 (1991).
- ¹⁸⁹ D. Yoshioka & P. A. Lee. *Ground-state energy of a two-dimensional charge-density-wave state in a strong magnetic field*. Phys. Rev. B **27**, 4986 (1983).
- ¹⁹⁰ P. Zanardi. *Quantum information in semiconductors: noiseless encoding in a quantum-dot array*. Phys. Rev. Lett. **81**, 4752 (1998).
- ¹⁹¹ A. Zangwill & P. Soven. *Density-functional approach to local-field effects in finite systems: Photoabsorption in the rare gases*. Phys. Rev. A **21**, 1561 (1980).
- ¹⁹² D. N. Zubarev. *Double-time Green functions in statistical physics*. [Usp. Fiz. Nauk **71**, 71 (1960)] Soviet Phys. Usp. **3**, 320 (1960).

Eigene Veröffentlichungen

1. O. Steffens. *Einfluß der Potentialmodulation auf Magnetotransport und Quantenchaos in lateralen Halbleiter-Übergittern*. Edition Wissenschaft, Bd. 26 aus der Reihe *Physik*. Tectum Verlag, Marburg, 1996.
2. O. Steffens, M. Suhrke, P. Rotter & U. Rössler. *From Landau levels to universal fluctuations: Level statistics for lateral superlattices*. *Phys. Rev. B* **55**, 4486 (1997).
3. M. Suhrke, O. Steffens, P. Rotter & U. Rössler. *Quantum chaos and magnetotransport in lateral superlattices: The transition from weak to strong modulation potential*. *Physica E* **1**, 281 (1997).
4. O. Mayrock, S. A. Mikhailov, O. Steffens & U. Rössler. *Observability of the acoustic plasma mode in double-layered quantum dots*. *Physica E* **1**, 232 (1997).
5. O. Steffens, T. Schlösser, P. Rotter, K. Ensslin, M. Suhrke, J.P. Kotthaus, U. Rössler & M. Holland. *From the two-dimensional electron gas to antidot superlattices: Magnetoresistance effects in the transition regime*. *J. Phys.: Cond. Matter* **10**, 3859 (1998).
6. O. Steffens, U. Rössler & M. Suhrke. *Generalized Hund's rule in the addition spectrum of a quantum dot*. *Europhys. Lett.* **42**, 529 (1998).
7. O. Steffens, M. Suhrke & U. Rössler. *Spontaneously-broken time-reversal symmetry in quantum dots*. *Europhys. Lett.* **44**, 222 (1998).
8. O. Steffens, M. Suhrke & U. Rössler. *Shell structure and exchange-related spin effects for quantum dots in a magnetic field*. *Physica B* **256–258**, 147 (1998).
9. O. Steffens, M. Suhrke & U. Rössler. *Correlation in few-electron quantum dots: Spin effects and spontaneous currents*. In: *Physics of Semiconductors (Proc. ICPS 24, Jerusalem, 1998)*. World Scientific, im Druck (1998).
10. O. Steffens, M. Suhrke & U. Rössler. *Novel spin features in Raman spectra of few-electron quantum dots*. *Phys. Rev. Lett.* **82**, im Druck (1999).

11. O. Steffens, M. Suhrke & U. Rössler. *Ground state and collective excitations of quantum dots: Correlation effects and Hund's rule in magnetic field*. Eingereicht bei *Advances in Solid State Physics* (1999).
12. O. Steffens, A. Wensauer, U. Rössler & M. Suhrke. *Collective excitations in quantum dots: Calculated Raman spectra*. Eingereicht bei ICSSS-1999 / *Phys. stat. sol.* (1999).

Dank

Begeisterung und Freude an der Arbeit sind für den Erfolg ebenso ausschlaggebend wie ein kompetentes und kooperatives Arbeitsumfeld. Diese Voraussetzungen sind in der Arbeitsgruppe von Herrn Prof. Dr. Ulrich Rößler und Herrn Privatdozent Dr. habil. Michael Suhrke in harmonischer Weise verbunden, weshalb mein Dank zuallererst meinem Doktorvater Ulrich Rößler gilt. Er hat mir bei der Gestaltung meiner Forschung sehr viel Freiraum gewährt und war stets zu klärenden und hilfreichen Gesprächen bereit. Sein humaner, persönlicher und gleichzeitig motivierender Stil hat mich auch in weniger glücklichen Momenten ermutigt und aufgebaut. Für die Kontakte zu anderen Forschungsgruppen, die dank seiner Unterstützung zustandekamen, bin ich ihm ebenfalls sehr verbunden.

Im gleichen Sinne gilt mein Dank Herrn Dr. Michael Suhrke, der seine fachliche Kompetenz immer gern bereitgestellt hat, um über Hürden und Stolpersteine hinwegzukommen. Neben den vielen konstruktiven Diskussionen denke ich auch gerne an interessante Cafeteria-Gespräche über „Physikalisches und Weltliches“ im Kreise der Arbeitsgruppe zurück.

Meinen Zimmerkollegen Dr. Peter Rotter, Gernot Deinzer und Ralf Hennig danke ich für die lustige und freundschaftliche Atmosphäre im Büro. An der mittäglichen Kaffeerunde des Lehrstuhls Schröder habe ich gerne teilgenommen; den intellektuellen Bedürfnissen wird sie als Polit- und Sport-Nachrichtenbörse bzw. als Rätsel-Club gerecht, den gesellschaftlichen mit Humor und heißem Tee und den Gelüsten nach Abenteuer mit teils zweifelhaften Backexperimenten. In dieser Runde war der direkte Kontakt zu unseren Netzwerk-Gurus von hoher praktischer Bedeutung. Ohne deren Engagement hätte diese Arbeit niemals realisiert werden können. Ebenso unentbehrlich für einen reibungslosen Betrieb ist natürlich unsere liebe „Super-Sekretärin“ Frau Angela Reißer, die sich als Lehrstuhl-Navigatorin unschätzbare Verdienste beim Umschiffen bürokratischer Klippen erworben hat. Bei ihr möchte ich mich an dieser Stelle ganz ausdrücklich bedanken.

Auf auswärtiger Seite möchte ich mich bei Herrn Dr. Behnam Farid für seine freundliche Einladung ans Max-Planck-Institut für Festkörperforschung in Stuttgart bedanken. Die Herren Prof. Dr. Giovanni Vignale, Prof. Dr. Michael D. Johnson und Prof. Dr. E. K. U. Gross haben mir ferner Starthilfe in Sachen CSDFT gegeben. In der späteren Phase der Arbeit haben mir Christoph Steinebach, Dr. habil. Christian Schüller und Prof. Dr. Detlev Heitmann den Zugang zur Raman-Streuung erleichtert.

Für das aufmerksame Korrekturlesen des Manuskriptes danke ich den Herren Ger-
not Deinzer, Dr. Jürgen Fritsch, Ralf Hennig, Roland Onderka und Thomas Rathgeber.

Wenn die tägliche Arbeit gelegentlich zur Obsession wird oder in Augenblicken der
Frustration die innere Ausgeglichenheit verloren geht, ist Nachsicht und Mitgefühl
Nahestehender besonders wichtig. Nicht zuletzt möchte ich mich daher für die Geduld
und die Solidarität, die mir von Freunden, meinen Eltern und vor allem von meiner
Frau Sabine entgegengebracht wurde, aus ganzem Herzen bedanken.

Oliver Steffens

Frühjahr 1999