Theoretische Beschreibung kohärenter optischer Nichtlinearitäten in Halbleiter-Quantenfilmen

Michael Buck

Universität Bremen 2004

Theoretische Beschreibung kohärenter optischer Nichtlinearitäten in Halbleiter-Quantenfilmen

Vom Fachbereich für Physik und Elektrotechnik
der Universität Bremen

zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)

genehmigte Dissertation

von

Michael Buck
Diplom Physiker
aus Bremerhaven

1. Gutachter: Prof. Dr. F. Jahnke
2. Gutachter: Prof. Dr. H.C. Schneider

Eingereicht am: 22.11.2004
Tag des Promotionskolloquiums: 24.01.2005

Abstract

In order to optimize opto-electronic applications of semiconductor nanostructures, a deep understanding of optical nonlinearities is essential. One fundamental method currently used within this field of research is ultrafast optical spectroscopy. This work presents a theoretical study of optical nonlinearities in semiconductor quantum wells in the coherent time regime. The theory is based on the equations of motion for the coherent exciton and biexciton transition amplitudes. These equations are derived using two different ways: Heisenberg equations of motion in combination with the dynamics-controlled truncation theory and alternatively the non-equilibrium Green's function technique. For the coherent regime both approaches are equivalent and can be used to formulate a coupled set of equations for the coherent excitation dynamics that is correct up to the third order in the optical field. In contrast to the dynamics-controlled truncation theory the non-equilibrium Green's function technique allows the inclusion of incoherent scattering processes into the description.

The theory is evaluated to describe pump and probe as well as four-wave-mixing experiments with ZnSe quantum wells. Numerical calculations for the coherent control of the macroscopic polarization and the dependence of transient four-wave-mixing on the light-polarization and intensity are both in good agreement with experiments. In order to correctly describe elevated excitation conditions for the latter investigation, the theory is self-consistently extended such that the included excitonic and biexcitonic nonlinearities contribute up to arbitrary order in the optical field.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung **1**

2. Theorie optischer Anregungen in Halbleitern **5**
2.1. Ladungsträgerdynamik 6
2.2. Ankopplung an die Maxwell-Gleichungen 23

3. Dynamisch kontrollierter Abbruch **29**
3.1. DCT-Formalismus 29
3.2. Biexzitonische Nichtlinearitäten 32
3.3. Greensche Funktionen im Nichtgleichgewicht 36
3.4. Auswertung des Formalismus 52

4. Optische Anregungen und ihre Realisierungen **61**
4.1. Pump-Test-Technik 66
4.2. Vier-Wellen-Mischen 69
4.3. Kohärente Kontrolle 72

5. Diskussion der Ergebnisse **75**
5.1. Vier-Wellen-Misch-Spektren für verschiedene Lichtpolarisationen . . . 75
5.2. Kohärente Kontrolle 78
5.3. Polarisations- und Intensitätsabhängiges Vier-Wellen-Mischen 82

6. Zusammenfassung **91**

A. Ankopplung des elektromagnetischen Feldes **93**

B. Über $\chi^{(3)}$ hinaus **97**

C. Parameterliste **103**

Literaturverzeichnis **105**

Abbildungsverzeichnis **113**

1. Einleitung

Für optoelektronische Anwendungen von Halbleiter-Nanostrukturen ist ein mikroskopisches Verständnis der optischen Nichtlinearitäten wichtig. In diesem Zusammenhang stellt die optische Spektroskopie an Halbleiter-Nanostrukturen gegenwärtig ein aktives Forschungsgebiet dar. Dabei werden je nach Art der zu untersuchenden Prozesse unterschiedliche Zeitskalen betrachtet. In der Literatur [1] werden häufig vier für optische Anregungen typische Zeitregime begrifflich unterschieden: Das kohärente, das nicht-thermische, das hochangeregte und das isothermische Regime. Ein Lichtpuls erzeugt im Medium eine makroskopische Polarisation. Solange diese eine feste Phasenbeziehung zum optischen Feld besitzt, spricht man vom kohärenten Regime, das gewöhnlich einige zehn bis hundert Femtosekunden lang ist. Zu diesem Zeitregime gehören die inverse optische Frequenz des optisch anregenden Lichtfeldes und die Dephasierung des angeregten Systems durch Elektron-Elektron-Streuung und Loch-Phonon-Streuung. Auf einer Pikosekunden-Zeitskala findet im nicht-thermischen Regime Ladungsträgerrelaxation durch Elektron-Loch-Streuung und Elektron-Phonon-Streuung statt. Im hochangeregten Regime thermalisiert das System durch Wechselwirkung der Ladungsträger mit Phononen im Bereich von 1 bis 100 ps. Für Zeiten, die größer als 100 ps sind, kehrt das System durch Rekombination der Ladungsträger in den Grundzustand zurück. Letzteres wird als isothermisches Regime bezeichnet. Da zwischen den verschiedenen Zeitregimen keine scharfe Grenze existiert, gibt diese Einordnung nur einen groben Überblick über die ablaufenden Prozesse im System. Diese Arbeit konzentriert sich auf das Regime, in dem die Kohärenz zwischen dem optisch anregenden Lichtpuls und der makroskopischen Polarisation die Eigenschaften des Systems dominiert. In diesem Zeitfenster werden im Folgenden die optischen Eigenschaften von Quantenfilmen durch Anregung des Systems mit einem oder mehreren optischen Lichtfeldern untersucht. Unter Berücksichtigung der einsetzenden Dephasierungsprozesse liegt die kohärente Dynamik korrelierter optischer Übergänge und Besetzungen auf einer Zeitskala von einigen Pikosekunden. Da keine Meßelektronik so schnell schalten kann, bedient man sich in der Ultrakurzzeitspektroskopie der Technik der Pump-Test-Anregung sowie des Vier-Wellen-Mischens mit ultrakurzen Laserpulsen. Heutzutage sind Halbwertsbreiten dieser Laserpulse von wenigen fs möglich [2].

Die mikroskopische Dynamik der Ladungsträger in Halbleitern wird durch ihre gegenseitige Wechselwirkung und ihre Wechselwirkung mit dem Gitter bestimmt. Durch Streuprozesse wie z.B. Elektron-Elektron-, Elektron-Phonon- und Elektron-Photon-Streuung wird die Quantenkohärenz zwischen den Ladungsträgern zerstört. Ein Beispiel korrelierter Ladungsträger sind exzitonische Zustände aufgrund der Coulomb-Wechselwirkung von Elektronen und Löchern, welche insbesondere bei tiefen Temperaturen zu scharfen Resonanzen unterhalb der Bandlücke in den optischen Eigenschaften führen. In niederdimensionalen Strukturen wie einem Quantenfilm nimmt die Coulomb-Wechselwirkung gegenüber dem Volumenmaterial an Bedeutung zu. Dadurch werden Korrelationseffekte stärker gewichtet und es ist selbst bei geringen Anregungsdichten wichtig, die Wechselwirkung der Exzitonen untereinander zu berücksichtigen, welches insbesondere zur Ausbildung von Biexzitonen führt.

Die ultrakurze kohärente Dynamik von Exzitonen und Biexzitonen in Halbleiter-Nanostrukturen stellt ein weites Feld von Anwendungen zur Verfügung. Die Manipulation der angeregten Zustände führt auf bemerkenswerte Phänomene wie Lasing ohne Besetzungsinversion aufgrund elektromagnetisch induzierter Transparenz [3, 4] oder wie kohärente Kontrolle von Exzitonen und Biexzitonen [5–8]. Kohärente Effekte in Halbleitern hängen stark von den damit verbundenen Vielteilchen-Wechselwirkungen ab, welche in der Vergangenheit extensiv mit der transienten Vier-Wellen-Misch-Spektroskopie [9–15] und der Pump-Test-Technik [16–19] studiert wurden.

Das Vier-Wellen-Mischen im Zusammenhang mit Biexzitonen wurde erstmals 1978 beschrieben [20]. Die grundlegende Idee ist, das transmittierte optische Feld nicht entlang der Richtung der beiden einfallenden Pulse zu betrachten, sondern in eine abgebeugte Richtung. Mit Hilfe des transienten Vier-Wellen-Mischens konnte man z.B. zeigen, daß niederenergetische Exzitonen in CdTe/(Cd,Mg)Te gut lokalisiert sind, während höherenergetische Exzitonen delokalisiert sind [21].

Mit der Pump-Test-Spektroskopie lassen sich differentielle Absorptionsspektren aufnehmen und damit z.B. der exzitonische optische Stark-Effekt durch Anregungen eines Quantenfilms mit unterschiedlich polarisierten Pulsen erklären [16]. Für den Fall einer niedrigen Intensität des Pumppulses, dessen zentrale energetische Position unterhalb der exzitonischen Resonanz liegt, und gekreuzt-zirkularer Polarisation wird eine Rot-Verschiebung beobachtet. Der Ursprung dieser Rot-Verschiebung kann mit Hilfe mikroskopischer Berechnungen auf Gedächtnis-Effekte der exzitonischen Korrelationen zurückgeführt werden.

Seit einigen Jahren wird die Technik der kohärenten Kontrolle zu einer immer häufiger eingesetzten Methode zur gezielten Manipulation von verschiedenen physikalischen Größen. Das bekannteste Beipiel ist die kohärente Kontrolle der makroskopischen Po-

larisation im Medium [7, 8]. Das Grundprinzip ist die konstruktive oder destruktive Überlagerung von durch einzelne Pulse erzeugten Polarisationen zu einer Gesamtpolarisation im Medium. Weitere Anwendungen sind die kohärente Kontrolle der Besetzungen exzitonischer Zustände [5] und der exzitonischen Spin-Orientierungen [22]. Die ersten Experimente zur kohärenten Kontrolle wurden 1993 von P.C.M. Planken et al. [23] durchgeführt und im selben Jahr von M.S.C. Luo et al. [24] theoretisch erklärt. Insbesondere die mögliche Anwendung der kohärenten Kontrolle in Hinblick auf Quantencomputer [25, 26] ist in unserer Zeit von zunehmender Bedeutung.

Der Schwerpunkt dieser Arbeit liegt in der Untersuchung eines ZnSe Quantenfilms. Dieser hat gegenüber dem GaAs-Materialsystem eine größere Bandlücke und liegt damit im grün-blauen Spektralbereich. Der wesentliche Vorteil ist die um einen Faktor vier bis fünf größere Bindungsenergie der Exzitonen und Biexzitonen als im GaAs [27, 28]. Dadurch sind die exzitonische und biexzitonische Resonanz mit spektral aufgelösten Vier-Wellen-Mischen oder der Pump-Test-Technik gut getrennt auflösbar. Anhand der Vier-Wellen-Misch-Spektroskopie wird für dieses Materialsystem ein Vergleich zwischen theoretischen und experimentellen Ergebnissen vorgenommen.

Kapitelübersicht

Die theoretischen Grundlagen für kohärente optische Anregungen in einem Quantenfilm werden in Kapitel 2 diskutiert, wobei mikroskopische Bewegungsgleichungen zur Beschreibung der Ladungsträgerdynamik zunächst in der Hartree-Fock-Näherung in Form der sogenannten Halbleiter-Bloch-Gleichungen angegeben sind. Daraus läßt sich die makroskopische Polarisation im Quantenfilm als eine der zentralen Größen berechnen. Da diese Polarisation das elektromagnetische Feld im Quantenfilm durch Ankopplung an die Maxwell-Gleichungen ändert, werden Propagationseffekte in einem separaten Abschnitt vorgestellt.

Die Erweiterung der mikroskopischen Bewegungsgleichungen durch Berücksichtigung des Biexzitons wird in Kapitel 3 sowohl im Rahmen einer Theorie untersucht, die Korrelationen nach Potenzen des anregenden Feldes klassifiziert (in engl.: Dynamics-controlled truncation, DCT) [29–31], als auch mit Hilfe der Theorie der Nichtgleichgewichts-Greenschen Funktionen behandelt. Die DCT-Theorie ist nur im kohärenten Regime gültig und bei Überschreitung dieser zeitlichen Grenze ist sie nicht mehr anwendbar. Den Ausweg bieten hier die Nichtgleichgewichts-Greenschen Funktionen, da in diesem Formalismus bekannt ist, wie man mit ihnen inkohärente Prozesse wie die anfangs diskutierten Streuprozesse in die theoretische Beschreibung integriert. Zur Vereinfachung der numerischen Berechnung wird am Schluß des Kapitels in die dem Problem angepaßte Exziton-Basis gewechselt.

In Kapitel 4 werden mit der Pump-Test- und Vier-Wellen-Misch-Technik zwei für die optische Spektrokopie typische Methoden zur Untersuchung des transmittierten optischen Feldes in einer der Richtungen der einfallenden Pulse bzw. einer abgebeugten Richtung dargestellt. Für beide Techniken werden mit Hilfe von optischen Auswahlregeln und unterschiedlich polarisierten optischen Feldern Bewegungsgleichungen in der Exziton-Basis aufgestellt. Anschließend wird die kohärente Kontrolle der makroskopischen Polarisation erklärt.

In Kapitel 5 werden mit den in Kapitel 4 vorgestellten Bewegungsgleichungen sowohl ein Theorie-Experiment-Vergleich bzgl. der Polarisations- und Intensitätsabhängigkeit des Vier-Wellen-Mischens als auch numerische Ergebnisse für die kohärente Kontrolle der Polarisation vorgestellt. Insbesondere wird die Relevanz mikroskopischer Beschreibungen gegenüber phänomenologischen Beschreibungen zur Erklärung experimenteller Ergebnisse diskutiert.

Die Arbeit wird im abschließenden Kapitel 6 zusammengefaßt.

2. Theorie optischer Anregungen in Halbleitern

Einführung

Die theoretische Beschreibung optischer Anregungen in Halbleitern erfordert die Behandlung eines quantenmechanischen Vielteilchen-Problems. Dies wird mit dem Formalismus der 2. Quantisierung beschrieben [32]. Dazu wird der Hamiltonoperator mittels Feldoperatoren im Ortsraum dargestellt. Anschließend erfolgt ein Basiswechsel vom Orts- in den Impulsraum. In diesem Zusammenhang werden wichtige Näherungen wie die Dipolnäherung, Effektivmassennäherung und Envelope-Näherung im 2-Band-Modell vorgestellt und motiviert. Da in dieser Arbeit das Hauptaugenmerk auf dynamische Größen in Quantenfilmen gerichtet ist, werden als nächstes die Unterschiede zwischen einem Volumenmaterial und einem Quantenfilm aufgezeigt. Die Dynamik von Besetzungen und Übergangsamplituden kann man mit der Heisenberg-Bewegungsgleichung berechnen und führt auf eine unendliche Hierarchie an Bewegungsgleichungen. Im einfachsten Fall wird diese durch die Hartree-Fock-Näherung abgebrochen und liefert die Halbleiter-Bloch-Gleichungen. Hiermit lassen sich lineare optische Größen exakt und nichtlineare optische Größen näherungsweise berechnen. Als Beispiele dienen die Suszeptibilität, deren Imaginärteil das exzitonische Absorptionsspektrum liefert, sowie die Transmission einer Lichtwelle durch einen Quantenfilm als auch deren Reflexion an einem Quantenfilm. Hierzu werden in Abschnitt 2.2 die durch das optische Lichtfeld verursachten Propagationseffekte durch Ankopplung der Maxwell-Gleichungen an die makroskopische Polarisation beschrieben.

2.1. Ladungsträgerdynamik

Hamiltonoperator in Ortsdarstellung

Ziel ist die mikroskopische Beschreibung der Dynamik quantenmechanischer Observablen, die mit der Licht-Materie-Wechselwirkung in Zusammenhang stehen. Der entsprechende Hamiltonoperator wird zunächst in der Ortsdarstellung mittels Feldoperatoren angegeben. Die Feldoperatoren $\Psi_s^\dagger(\boldsymbol{r},t)$, $\Psi_s(\boldsymbol{r},t)$ erzeugen bzw. vernichten ein Elektron mit Spin s zur Zeit t am Ort $\boldsymbol{r}$ und genügen den Anti-Kommutator-Relationen für Fermionen:

$$\left[\Psi_s(\boldsymbol{r},t),\Psi_{s'}^\dagger(\boldsymbol{r}',t)\right]_+ = \delta_{s,s'}\,\delta(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}'), \tag{2.1}$$

$$\left[\Psi_s^\dagger(\boldsymbol{r},t),\Psi_{s'}^\dagger(\boldsymbol{r}',t)\right]_+ = \left[\Psi_s(\boldsymbol{r},t),\Psi_{s'}(\boldsymbol{r}',t)\right]_+ = 0. \tag{2.2}$$

Der betrachtete Hamiltonoperator setzt sich in 2. Quantisierung in der Ortsdarstellung additiv aus drei Anteilen zusammen:

$$H = H_0 + H_L + H_{\mathrm{Coul}}. \tag{2.3}$$

Hierin werden die quasifreien Kristallelektronen durch

$$H_0 = \sum_s \int d^3r\; \Psi_s^\dagger(\boldsymbol{r},t)\left[-\frac{\hbar^2}{2m}\Delta + U(\boldsymbol{r})\right]\Psi_s(\boldsymbol{r},t) \tag{2.4}$$

beschrieben. Dabei ist m die effektive Masse der Elektronen und $U(\boldsymbol{r})$ das gitterperiodische Potential. Die Wechselwirkung der Elektronen mit dem Lichtfeld ist durch

$$H_L = \sum_s \int d^3r\; \Psi_s^\dagger(\boldsymbol{r},t)\left[-\boldsymbol{d}\cdot\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t)\right]\Psi_s(\boldsymbol{r},t) \tag{2.5}$$

gegeben. Dieser Anteil enthält den elektrischen Dipoloperator $\boldsymbol{d} = e\boldsymbol{r}$ mit der Elementarladung e der Elektronen und dem Ortsvektor $\boldsymbol{r}$. Im Anhang A wird Gleichung (2.5) aus einer allgemeinen Form des Hamiltonoperators in Dipolnäherung gewonnen. Während H_0 und H_L Einteilchenoperatoren sind, wird die Coulomb-Wechselwirkung der Elektronen untereinander durch einen Zweiteilchenoperator beschrieben,

$$H_{Coul} = \frac{1}{2}\sum_{s,s'}\int d^3r\; d^3r'\; \Psi_s^\dagger(\boldsymbol{r},t)\Psi_{s'}^\dagger(\boldsymbol{r}',t)V(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}')\Psi_{s'}(\boldsymbol{r}',t)\Psi_s(\boldsymbol{r},t), \tag{2.6}$$

welcher das Coulomb-Potential

$$V(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}') = \frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_b}\frac{e^2}{|\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}'|} \tag{2.7}$$

enthält. In diesem wird die Dielektrizitätskonstante des Vakuums mit ϵ_0 und die Hintergrund-Dielektrizitätskonstante mit ϵ_b bezeichnet.

Basiswechsel vom Orts- in den Impulsraum

Als nächstes wird ein Basiswechsel des Hamiltonoperators vom Ortsraum in den Impulsraum durchgeführt. Dies gelingt mit Hilfe der Blochschen Theorie der Kristallelektronen, welche dieses Vielteilchenproblem auf ein effektives Einteilchenproblem zurückführt. In den entsprechenden Eigenfunktionen ist dann H_0 diagonal. Dafür nutzt man die Translations-Invarianz des Gitters aus. Die daraus folgende periodische Anordnung der Gitterbausteine führt dazu, daß das effektive Potential $U(\boldsymbol{r})$ selbst periodisch ist:

$$U(\boldsymbol{r} + \boldsymbol{R}) = U(\boldsymbol{r}), \tag{2.8}$$

wobei $\boldsymbol{R}$ ein Gittervektor ist. Die Bloch-Wellenfunktionen genügen einer Schrödinger-Gleichung,

$$\left[\frac{-\hbar^2}{2m}\Delta + U(\boldsymbol{r})\right] \varphi_{\lambda\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{r}) = \epsilon_{\lambda\boldsymbol{k}}\, \varphi_{\lambda\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{r}), \tag{2.9}$$

und schreiben sich nach dem Bloch-Theorem

$$\varphi_{\lambda\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{r}) = \frac{1}{\sqrt{V}}\, e^{i\boldsymbol{k}\boldsymbol{r}}\, u_{\lambda\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{r}) \tag{2.10}$$

als das Produkt aus ebener Welle und gitterperiodischem Bloch-Faktor $u_{\lambda\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{r})$ mit dem Bandindex λ, wobei die Normierung auf das Volumen V des Kristalls erfolgt. Anschaulich gesehen sind also die ebenen Wellen durch den Bloch-Faktor gitterperiodisch moduliert. Die Feldoperatoren werden nach den Bloch-Wellenfunktionen entwickelt:

$$\Psi_s(\boldsymbol{r}, t) = \sum_{\lambda\,\boldsymbol{k}} a_{\lambda\boldsymbol{k}s}(t)\, \varphi_{\lambda\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{r}). \tag{2.11}$$

Die Behandlung der Bandstruktur ist auf unterschiedlichen Niveaus möglich. Einerseits kann man sie ab-initio für verschiedene Materialien mit den Kohn-Sham-Gleichungen [33] berechnen und erhält mehrere Valenz- und Leitungsbänder. Für die im Folgenden betrachteten optischen Anregungen genügt es jedoch oft, sich auf einfachere Annahmen zu beschränken. Interbandübergänge ohne die Berücksichtigung phononischer Prozesse können nur in einem direkten Halbleiter, d.h. am Γ-Punkt ($\boldsymbol{k} = 0$) liegt das Minimum des Leitungsbandes über dem Maximum des Valenzbandes, stattfinden. Die Einschränkung auf jeweils ein Leitungs -und Valenzband ist dann gerechtfertigt, wenn die übrigen Bänder energetisch so liegen, daß keine optischen Übergänge zwischen diesen übrigen Bändern angeregt werden können. III-V-Halbleiter wie z.B. GaAs und II-VI-Halbleiter wie z.B. ZnSe sind direkte Halbleiter. Neben dem zweifach entarteten Leitungsband mit dem Gesamtdrehimpuls $J = 1/2$ gibt es aufgrund der Spin-Bahn-Wechselwirkung eine dreifache Aufspaltung des Valenzbandes in das Schwerloch-Valenzband (engl.: heavy hole) mit $J = 3/2$ und der z-Komponente des Gesamtdrehimpulses $m_j = \pm 3/2$, das Leichtloch-Valenzband (engl.:

light hole) mit $J = 3/2$ und $m_j = \pm 1/2$ und das Split-Off-Band mit $J = 1/2$ und $m_j = \pm 1/2$. Das sogenannte Split-Off-Band ist energetisch so stark verschoben, daß es bei allen in dieser Arbeit betrachteten optischen Anregungen nicht berücksichtigt werden muß. Dadurch können die Valenzbänder eindeutig durch die z-Komponente des Gesamtdrehimpulses klassifiziert werden. Im unverspannten Volumen-Kristall sind das Leichtloch- und das Schwerloch-Valenzband am Γ-Punkt energetisch entartet. Diese Entartung wird jedoch durch Verspannung und Quanten-Confinement aufgehoben [34, 35]. In einem ZnSe/ZnSSe-Quantenfilm ist das ZnSe kompressiv biaxial verspannt, wenn die Wachstumsrichtung entlang einer der Hauptsymmetrieachsen liegt (z.B. (001)-Richtung). Dadurch wird das Leichtloch-Valenzband zu niedrigeren Energien verschoben. Im Gegensatz dazu ist in einem GaAs/AlGaAs-Quantenfilm das GaAs biaxial zugverspannt. Dies führt dazu, daß das Schwerloch-Valenzband zu niedrigeren Energien verschoben wird. Zusätzlich zu den reinen Verschiebungen des Schwerloch- und Leichtloch-Valenzbandes gibt es Bandmischungseffekte, die in der Nähe der Bandkante im Rahmen der $\boldsymbol{k} \cdot \boldsymbol{p}$-Theorie beschrieben werden können. Es sind also Situationen möglich, in denen starke nicht-parabolische Effekte und renormierte Massen auftreten.

Im folgenden werden Probenstrukturen betrachtet, wie sie in der Gruppe von Prof. Hommel hergestellt und in der Gruppe von Prof. Gutowski untersucht worden sind. Beide Gruppen sind im Institut für Festkörperphysik der Universität Bremen tätig. Die Proben sind so konstruiert, daß das Leichtloch-Valenzband energetisch zu niedrigeren Energien verschoben ist, so daß in guter Näherung die optischen Anregungen nahe der Bandkante nur noch durch das Schwerloch-Valenzband in parabolischer Näherung bestimmt werden. Dafür wird die reale Bandstruktur um den Γ-Punkt durch die parabolische Bandstruktur freier Elektronen, die für das Leitungsband[1] $\lambda = c$ und das Schwerloch-Valenzband[2] $\lambda = v$ eine effektive Masse m_λ besitzen, genähert. In dieser sogenannten Effektivmassennäherung läßt sich m_λ aus der inversen Krümmung der Dispersionsrelation der Elektronen am Γ-Punkt berechnen:

$$\frac{1}{m_\lambda} = \frac{1}{\hbar^2} \frac{\partial^2 \epsilon^\lambda_{\boldsymbol{k}}}{\partial k^2}. \tag{2.12}$$

Diese im allgemeinen richtungsabhängige effektive Masse ist hier als isotrop angenommen worden. Daraus ergeben sich im Zwei-Band-Modell ($\lambda = c, v$) die Einteilchenenergien

$$\epsilon^\lambda_{\boldsymbol{k}} = \frac{E_g}{2} + \frac{\hbar^2}{2m_\lambda} k^2. \tag{2.13}$$

E_g ist die Bandlückenenergie zwischen Valenz- und Leitungsband. Der kinetische Anteil des Hamiltonoperators wird unter Ausnutzung der Orthonormiertheit der Bloch-

[1] Engl.: Conduction band
[2] Engl.: Heavy hole valence band

Funktionen

$$\int d^3r \varphi^*_{\lambda \boldsymbol{k}}(\boldsymbol{r}) \varphi_{\lambda' \boldsymbol{k}'}(\boldsymbol{r}) = \delta_{\lambda\lambda'}\, \delta_{\boldsymbol{k}\boldsymbol{k}'} \tag{2.14}$$

zu einem in $\boldsymbol{k}$ und λ diagonalen Beitrag bestimmt. Es wird $a_{c\boldsymbol{k}s} \equiv c_{\boldsymbol{k}s}$ und $a_{v\boldsymbol{k}s} \equiv v_{\boldsymbol{k}s}$ gesetzt und s bezeichnet die möglichen z-Komponenten der Drehimpulse. Das Ergebnis ist der Einteilchen-Hamiltonoperator

$$H_0 = \sum_{\boldsymbol{k}s} \left[\epsilon^c_{\boldsymbol{k}}\, c^\dagger_{\boldsymbol{k}s} c_{\boldsymbol{k}s} + \epsilon^v_{\boldsymbol{k}}\, v^\dagger_{\boldsymbol{k}s} v_{\boldsymbol{k}s} \right], \tag{2.15}$$

welcher quasifreie Elektronen im Leitungs- und Valenzband beschreibt. Darin sind $\epsilon^c_{\boldsymbol{k}}$ ($\epsilon^v_{\boldsymbol{k}}$) die Einteilchenenergien und $c^\dagger_{\boldsymbol{k}s} c_{\boldsymbol{k}s}$ ($v^\dagger_{\boldsymbol{k}s} v_{\boldsymbol{k}s}$) ist der Besetzungszahloperator der Elektronen im Leitungsband (Valenzband).

Als nächstes wird der Dipol-Hamiltonoperator (2.5) mit (2.11) transformiert:

$$H_L = \sum_s \sum_{\lambda \boldsymbol{k}} \sum_{\lambda' \boldsymbol{k}'} a^\dagger_{\lambda \boldsymbol{k}s}(t) a_{\lambda' \boldsymbol{k}' s}(t) \underbrace{\int d^3r \varphi^*_{\lambda \boldsymbol{k}}(\boldsymbol{r}) \left[-\boldsymbol{d}\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}, t) \right] \varphi_{\lambda' \boldsymbol{k}'}(\boldsymbol{r})}_{I_L}. \tag{2.16}$$

Das Volumenintegral I_L, welches sich über den ganzen Kristall erstreckt, wird für Übergänge nahe der Bandkante und somit für kleine k mit den Bloch-Wellenfunktionen (2.10) berechnet:

$$I_L = \frac{1}{V} \int_V d^3r e^{i(\boldsymbol{k}' - \boldsymbol{k})\boldsymbol{r}} u^*_{\lambda, \boldsymbol{k} \approx \vec{0}}(\boldsymbol{r}) \left[-\boldsymbol{d}\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}, t) \right] u_{\lambda', \boldsymbol{k}' \approx \vec{0}}(\boldsymbol{r}). \tag{2.17}$$

Zunächst wird das Ortsintegral über den ganzen Kristall mit Volumen V in eine Summe aus Integralen über einzelne Gitterzellen mit Volumen V_j zerlegt. Die Bloch-Faktoren oszillieren für kleine Wellenzahlen $|\boldsymbol{k}|$ sehr viel schneller als die über das Volumen V_j langsam veränderliche ebene Welle. Damit können die Exponentialfunktionen mit Gittervektor $\boldsymbol{R}_j$ vor das Integral gezogen werden:

$$I_L = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^{N} e^{i(\boldsymbol{k}' - \boldsymbol{k})\boldsymbol{R}_j} \;\; \frac{1}{V_j} \int_{V_j} d^3r u^*_{\lambda, \boldsymbol{k} \approx \vec{0}}(\boldsymbol{r}) \left[-\boldsymbol{d}\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}, t) \right] u_{\lambda', \boldsymbol{k}' \approx \vec{0}}(\boldsymbol{r}). \tag{2.18}$$

Im nächsten Schritt wird die Dipolnäherung verwendet. Während die Wellenlänge des optischen Lichtfeldes ungefähr 400 - 800 nm beträgt, liegt die Größe der Elementarzelle (EZ) mit 0.5 nm drei Größenordnungen darunter. Deswegen ändert sich das optische Feld über der Ausdehnung der EZ fast nicht. Damit kann das optische

Feld durch seinen Wert an der Stelle der Gitterzelle mit Gittervektor $\boldsymbol{R}_j$ genähert und vor das Ortsintegral der einzelnen EZ gezogen werden:

$$I_L = -\frac{1}{N}\sum_{j=1}^{N} e^{i(\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{k})\boldsymbol{R}_j}\;\; \boldsymbol{E}(\boldsymbol{R}_j,t)\,\underbrace{\frac{1}{V_j}\int\limits_{V_j} d^3r u^*_{\lambda,\boldsymbol{k}\approx\vec{0}}(\boldsymbol{r})\, e\boldsymbol{r}\, u_{\lambda',\boldsymbol{k}'\approx\vec{0}}(\boldsymbol{r})}_{\boldsymbol{d}^{\lambda\lambda'}}. \tag{2.19}$$

Das Dipolmatrixelement $\boldsymbol{d}^{\lambda\lambda'}$ führt mit $\lambda,\lambda' \in \{c,v\}$ zu folgender 2×2-Matrix:

$$\begin{pmatrix} \boldsymbol{d}^{cc} & \boldsymbol{d}^{cv} \\ \boldsymbol{d}^{vc} & \boldsymbol{d}^{vv} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & \boldsymbol{d} \\ \boldsymbol{d}^* & 0 \end{pmatrix}. \tag{2.20}$$

Man erkennt an Gleichung (2.19), daß nur Dipolmatrixelemente zwischen verschiedenen Bändern ungleich Null sind. Die Ortsintegrale der Dipolmatrixelemente sind für alle EZ gleich, da diese sich von einer zur nächsten EZ nur um Intrabandbeiträge unterscheiden, die vernachlässigbar klein sind. Zu dieser Schlußfolgerung gelangt man unter Ausnutzung der Gitterperiodizität und der Orthonormiertheit der Bloch-Faktoren:

$$\begin{aligned}
&\frac{1}{V_0}\int\limits_{V_0} d^3r u^*_{\lambda,\boldsymbol{k}\approx\vec{0}}(\boldsymbol{r}+\boldsymbol{R})\, e(\boldsymbol{r}+\boldsymbol{R})\, u_{\lambda',\boldsymbol{k}'\approx\vec{0}}(\boldsymbol{r}+\boldsymbol{R}) = \\
&= \frac{1}{V_0}\int\limits_{V_0} d^3r u^*_{\lambda,\boldsymbol{k}\approx\vec{0}}(\boldsymbol{r})\, e\boldsymbol{r}\, u_{\lambda',\boldsymbol{k}'\approx\vec{0}}(\boldsymbol{r}) + \frac{1}{V_0} e\boldsymbol{R}\int\limits_{V_0} d^3r u^*_{\lambda,\boldsymbol{k}\approx\vec{0}}(\boldsymbol{r})\, u_{\lambda',\boldsymbol{k}'\approx\vec{0}}(\boldsymbol{r}) \qquad (2.21)\\
&= \frac{1}{V_0}\int\limits_{V_0} d^3r u^*_{\lambda,\boldsymbol{k}\approx\vec{0}}(\boldsymbol{r})\, e\boldsymbol{r}\, u_{\lambda',\boldsymbol{k}'\approx\vec{0}}(\boldsymbol{r}) + e\boldsymbol{R}\delta_{\lambda\lambda'}. \qquad (2.22)
\end{aligned}$$

Hierbei bezeichnet V_0 das Volumen einer Elementarzelle und $e\boldsymbol{R}\delta_{\lambda\lambda'}$ ist der Intrabandbeitrag.

Unter Benutzung der Fouriertransformation des optischen Feldes

$$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{R}_j,t) = \sum_{\boldsymbol{q}} e^{i\boldsymbol{q}\boldsymbol{R}_j}\boldsymbol{E}_{\boldsymbol{q}}(t) \tag{2.23}$$

folgt

$$I_L = -\sum_{\boldsymbol{q}} \boldsymbol{d}_{\lambda\lambda'}\boldsymbol{E}_{\boldsymbol{q}}(t)\,\underbrace{\frac{1}{N}\sum_{j=1}^{N} e^{i(\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q})\boldsymbol{R}_j}}_{\delta_{\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}}}. \tag{2.24}$$

Das Einsetzen von I_L in Gleichung (2.16) liefert

$$H_L = -\sum_s \sum_{\lambda \boldsymbol{k}} \sum_{\lambda' \boldsymbol{k}'} a^\dagger_{\lambda \boldsymbol{k} s}(t) a_{\lambda' \boldsymbol{k}' s}(t) \sum_{\boldsymbol{q}} \boldsymbol{d}^{\lambda\lambda'} \boldsymbol{E}_{\boldsymbol{q}}(t) \delta_{\boldsymbol{k}', \boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}}. \tag{2.25}$$

Durch Ausführen der λ, λ'-Summen ergibt sich der Hamiltonoperator der Licht-Materie-Wechselwirkung in der Dipol-Näherung für das Zwei-Band-Modell:

$$H_L = \quad -\sum_{\boldsymbol{k}, \boldsymbol{q} s} \left[\boldsymbol{d} c^\dagger_{\boldsymbol{k} s} v_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}, s} + \boldsymbol{d}^* v^\dagger_{\boldsymbol{k} s} c_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}, s} \right] \boldsymbol{E}_{\boldsymbol{q}}(t). \tag{2.26}$$

Durch Einsetzen der Entwicklung der Feldoperatoren nach Bloch-Wellenfunktionen (2.11) und dem Bloch-Theorem (2.10) in den Coulomb-Anteil (2.6) des Hamiltonoperators folgt

$$\begin{aligned} H_{\text{Coul}} =& \frac{1}{2} \sum_{ss'} \sum_{\lambda_1, \ldots, \lambda_4} \sum_{\boldsymbol{k}_1, \ldots, \boldsymbol{k}_4} a^\dagger_{\lambda_1 \boldsymbol{k}_1 s}(t) a^\dagger_{\lambda_2 \boldsymbol{k}_2 s'}(t) a_{\lambda_3 \boldsymbol{k}_3 s'}(t) a_{\lambda_4 \boldsymbol{k}_4 s}(t) \\ & \cdot \underbrace{\int d^3r \int d^3r' \varphi^*_{\lambda_1 \boldsymbol{k}_1}(\boldsymbol{r}) \varphi^*_{\lambda_2 \boldsymbol{k}_2}(\boldsymbol{r}') \varphi_{\lambda_3 \boldsymbol{k}_3}(\boldsymbol{r}') \varphi_{\lambda_4 \boldsymbol{k}_4}(\boldsymbol{r}) V(\boldsymbol{r} - \boldsymbol{r}')}_{I_{Coul}}. \end{aligned} \tag{2.27}$$

Die Volumenintegrale lassen sich mit der Fouriertransformation des Coulombpotentials

$$V(\boldsymbol{r}) = \frac{1}{V} \sum_{\boldsymbol{q}} e^{i \boldsymbol{q} \boldsymbol{r}} V_{\boldsymbol{q}} \tag{2.28}$$

als

$$\begin{aligned} I_{\text{Coul}} =& \frac{1}{V^2} \int d^3r d^3r' e^{i(\boldsymbol{k}_4 - \boldsymbol{k}_1)\boldsymbol{r}} e^{i(\boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{k}_2)\boldsymbol{r}'} \\ & \cdot \frac{1}{V} \sum_{\boldsymbol{q}} e^{i \boldsymbol{q} (\boldsymbol{r} - \boldsymbol{r}')} V_{\boldsymbol{q}} u^*_{\lambda_1, \boldsymbol{0}}(\boldsymbol{r}) u^*_{\lambda_2, \boldsymbol{0}}(\boldsymbol{r}') u_{\lambda_3, \boldsymbol{0}}(\boldsymbol{r}') u_{\lambda_4, \boldsymbol{0}}(\boldsymbol{r}) \end{aligned} \tag{2.29}$$

schreiben. Es werden wieder kleine Wellenzahlen in der Umgebung der Bandkante angenommen, für welche die Exponentialfunktionen langsam über der Gitterzelle oszillieren. Das Volumenintegral wird dadurch in eine Summe aus Integralen über einzelne Elementarzellen zerlegt:

$$I_{\text{Coul}} = \sum_{\boldsymbol{q}} \frac{1}{V} \underbrace{\left(\frac{1}{N} \sum_j e^{i(\boldsymbol{k}_4 - \boldsymbol{k}_1 + \boldsymbol{q}) \boldsymbol{R}_j} \right)}_{\delta_{\boldsymbol{k}_1, \boldsymbol{k}_4 + \boldsymbol{q}}} \underbrace{\left(\frac{1}{N} \sum_j e^{i(\boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{k}_2 - \boldsymbol{q}) \boldsymbol{R}_{j'}} \right)}_{\delta_{\boldsymbol{k}_2, \boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{q}}} V_{\boldsymbol{q}} \tag{2.30}$$

$$\underbrace{\frac{1}{V_i} \int_{V_i} d^3r u^*_{\lambda_1, \boldsymbol{0}}(\boldsymbol{r}) u_{\lambda_4, \boldsymbol{0}}(\boldsymbol{r})}_{\delta_{\lambda_1 \lambda_4}} \underbrace{\frac{1}{V_i} \int_{V_i} d^3r' u^*_{\lambda_2, \boldsymbol{0}}(\boldsymbol{r}') u_{\lambda_3, \boldsymbol{0}}(\boldsymbol{r}')}_{\delta_{\lambda_2 \lambda_3}}. \tag{2.31}$$

Damit folgt nach Auswertung der Delta-Relationen und der Umbenennung ($\lambda_3 = \lambda'$, $\lambda_4 = \lambda$, $\boldsymbol{k}_3 = \boldsymbol{k}'$, $\boldsymbol{k}_4 = \boldsymbol{k}$):

$$H_{\mathrm{Coul}} = \frac{1}{2V} \sum_{ss'} \sum_{\lambda\lambda'} \sum_{\boldsymbol{k}\boldsymbol{k}'\boldsymbol{q}} a^\dagger_{\lambda,\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},s}(t) a^\dagger_{\lambda',\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q},s'}(t) a_{\lambda'\boldsymbol{k}'s'}(t) a_{\lambda\boldsymbol{k}s}(t) V_{\boldsymbol{q}}. \tag{2.32}$$

Nach Ausführen der Summen über die Bandindizes ergibt sich für das Zwei-Band-Modell

$$\begin{aligned} H_{\mathrm{Coul}} = \frac{1}{2V} \sum_{ss'} \sum_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{q}} V_{\boldsymbol{q}} [& c^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},s} c^\dagger_{\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q},s'} c_{\boldsymbol{k}'s'} c_{\boldsymbol{k}s} \\ & + v^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},s} v^\dagger_{\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q},s'} v_{\boldsymbol{k}'s'} v_{\boldsymbol{k}s} + 2 c^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},s} v^\dagger_{\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q},s'} v_{\boldsymbol{k}'s'} c_{\boldsymbol{k}s}]. \end{aligned} \tag{2.33}$$

Die Teilchenzahl in den einzelnen Bändern bleibt sowohl für die beiden Intrabandbeiträge $c^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},s} c^\dagger_{\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q},s'} c_{\boldsymbol{k}'s'} c_{\boldsymbol{k}s}$ und $v^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},s} v^\dagger_{\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q},s'} v_{\boldsymbol{k}'s'} v_{\boldsymbol{k}s}$ als auch für den Interbandbeitrag $c^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},s} v^\dagger_{\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q},s'} v_{\boldsymbol{k}'s'} c_{\boldsymbol{k}s}$ erhalten. $V_{\boldsymbol{q}}$ ist das drei-dimensionale fouriertransformierte Coulomb-Potential

$$V(\boldsymbol{q}) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_b} \frac{4\pi}{|\boldsymbol{q}|^2}. \tag{2.34}$$

Quantenfilm

In Systemen mit verringerter Dimensionalität sind die Wechselwirkungs- und Korrelationseffekte stärker als im Volumenmaterial und nehmen deshalb an Bedeutung zu. Um dies zu zeigen zerlegt man beim Übergang des Hamiltonoperators von der Orts- in die Impulsdarstellung den Ortsvektor in einen Anteil in der Ebene des Quantenfilms und einen in Wachstumsrichtung: $\boldsymbol{r} = \boldsymbol{\rho} + z\boldsymbol{e}_z$. Als nächstes werden die Bloch-Wellenfunktionen (2.10) im Quantenfilm in der Envelope-Näherung [35] durch ein Produkt aus einer ebenen Welle in der Quantenfilmebene und der Einschluß-Wellenfunktion aus Gleichung (2.36) senkrecht zur Quantenfilmebene beschrieben [36]:

$$\varphi_{\nu\boldsymbol{k}_\parallel}(\boldsymbol{r}) = \xi_n(z) \frac{e^{i\boldsymbol{k}_\parallel\boldsymbol{\rho}}}{\sqrt{A}} u_{\lambda\boldsymbol{k}_\parallel}(\boldsymbol{r}). \tag{2.35}$$

Dabei ist $\boldsymbol{k}_\parallel$ der Impuls in der Ebene des Quantenfilms [$\boldsymbol{k}_\parallel \approx \boldsymbol{0}$], $\nu = (n, \lambda)$, λ der Bandindex und n der Subbandindex. Der Begriff Envelope-Näherung kommt daher, daß die Einschluß-Wellenfunktion $\xi_n(z)$ auf der Längenskala der Gitterkonstanten langsam variiert. Die Effektivmassennäherung behält auch im Quantenfilm ihre Gültigkeit, solange noch genügend viele Gitterzellen in z-Richtung vorhanden sind, was bei allen betrachteten Quantenfilmstrukturen der Fall ist. In der Envelope-Näherung

genügt die Bewegung in z-Richtung einer eindimensionalen Schrödinger-Gleichung:

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m}\frac{\partial^2}{\partial z^2} + V_{\mathrm{con}}(z)\right]\xi_n(z) = E_n\xi_n(z). \tag{2.36}$$

Hierin ist E_n die Energie des n-ten Subbandes und $V_{\mathrm{con}}(z)$ das Einschluß-Potential.

Die Entwicklung der Feldoperatoren (2.11) schreibt sich im Quantenfilm als

$$\Psi_s(\boldsymbol{r},t) = \sum_{\nu\,\boldsymbol{k}_\parallel} a_{\nu\boldsymbol{k}_\parallel s}(t)\;\varphi_{\nu\boldsymbol{k}_\parallel}(\boldsymbol{r}). \tag{2.37}$$

Im Folgenden wird der Index $\parallel$ zur Vereinfachung der Notation nicht explizit angegeben. Alle Impulse sind daher als Impulse in der Ebene des Quantenfilms zu verstehen.

Die wichtigsten zwei Änderungen aufgrund der Envelope-Näherung betreffen den Coulomb-Hamiltonoperator

$$H_{\mathrm{Coul}} = \sum_{ss'}\sum_{\nu_1\cdots\nu_4}\sum_{\boldsymbol{k}\boldsymbol{k}'\boldsymbol{q}} a^\dagger_{\nu_1\boldsymbol{k}s}(t)a^\dagger_{\nu_2\boldsymbol{k}'s'}(t)a_{\nu_3,\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q},s'}(t)a_{\nu_4,\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},s}(t)V_{\nu_1,\cdots,\nu_4}(\boldsymbol{q}). \tag{2.38}$$

In diesen gehen die Coulomb-Matrixelemente des Quantenfilms [37]

$$V_{\nu_1,\cdots,\nu_4}(q) = \delta_{\lambda_1,\lambda_4}\delta_{\lambda_2,\lambda_3}\int dz dz' \xi_{\nu_1}(z)\xi_{\nu_2}(z')\frac{e^2}{2\epsilon_0\epsilon_b q}e^{-q|z-z'|}\xi_{\nu_3}(z')\xi_{\nu_4}(z) \tag{2.39}$$

ein. Von diesen Coulomb-Matrixelementen wird bei Annahme eines unendlich hohen Einschlußpotentials für einen Quantenfilm mit der Dicke L in z-Richtung, für das die Einschluß-Funktionen ξ für das Leitungsband und die Valenzbänder gleich sind, und der alleinigen Berücksichtigung des untersten Subbandes ($n_1 = n_2 = n_3 = n_4 = 1$) nur noch

$$\begin{aligned} &V_{(1\lambda_1),(1\lambda_2),(1\lambda_2),(1\lambda_1)}(q) = V(q) \\ &= \frac{e^2}{2\epsilon_0\epsilon_b L}\left[\frac{2}{q^2} + \frac{1}{q^2+4N^2} + \frac{2q}{L}\left(e^{-qL}-1\right)\left(\frac{1}{q^2} - \frac{1}{q^2+4N^2}\right)^2\right] \end{aligned} \tag{2.40}$$

mit $N = \frac{\pi}{L}$ betrachtet. Dieses Vorgehen ist dadurch gerechtfertigt, daß für kleine Quantenfilmdicken der Abstand zwischen den Subbändern groß wird. Im Grenzfall $L \to 0$ ergibt sich das zweidimensionale Coulomb-Potential im Impulsraum:

$$V(\boldsymbol{q}) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_b}\frac{2\pi}{|\boldsymbol{q}|}. \tag{2.41}$$

Die zweite Änderung bezieht sich auf den Hamiltonoperator der Licht-Materie-Wechselwirkung

$$H_L = -\sum_{\boldsymbol{kq}s} \sum_{\substack{\nu,\nu' \\ \lambda\neq\lambda'}} a^\dagger_{\nu\boldsymbol{k}s}(t) a_{\nu',\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q},s}(t) \boldsymbol{d}^{\lambda\lambda'} \boldsymbol{E}_{\nu,\nu'}(\boldsymbol{q},t) \tag{2.42}$$

mit den Matrixelementen des optischen Feldes im Quantenfilm

$$\boldsymbol{E}_{\nu,\nu'}(\boldsymbol{q},t) = \int dz \xi^*_\nu(z) \xi_{\nu'}(z) \boldsymbol{E}(\boldsymbol{q},z,t). \tag{2.43}$$

Wenn das optische Feld senkrecht zur Quantenfilmebene einfällt, verschwindet der Photon-Impuls $\boldsymbol{q}$ in der Quantenfilmebene. Da das unterste Subband sowohl im Leitungs- als auch Valenzband die gleiche Einschluß-Funktion ξ hat, folgt

$$\boldsymbol{E}_{\mathrm{QW}}(t) = \int dz \boldsymbol{E}(z,t) |\xi^2(z)|. \tag{2.44}$$

Desweiteren ist die Ausdehnung des Quantenfilms im Vergleich zur optischen Wellenlänge von $\boldsymbol{E}(z,t)$ vernachlässigbar klein und somit ergibt sich

$$\boldsymbol{E}_{\mathrm{QW}}(t) = \int dz \boldsymbol{E}(z,t) \delta(z-z_0) = \boldsymbol{E}(z_0,t), \tag{2.45}$$

d.h. das optische Feld wird nur an der Stelle z_0 des Quantenfilms in z-Richtung betrachtet.

Hamiltonoperator im Elektron-Loch-Bild

Um Quasiteilchen wie das Exziton und das Biexziton zu beschreiben, in deren Definition die Coulomb-Wechselwirkung eingeht, ist es anschaulicher und für die Notation bequemer in das Elektron-Loch-Bild (im folgenden abgekürzt als eh-Bild für Englisch electron-hole) überzugehen. Mit der Umbezeichnung

$$c^\dagger_{\boldsymbol{k}s} = e^\dagger_{\boldsymbol{k}}, \qquad c_{\boldsymbol{k}s} = e_{\boldsymbol{k}}, \qquad v^\dagger_{\boldsymbol{k}s} = h_{-\boldsymbol{k}}, \qquad v_{\boldsymbol{k}s} = h^\dagger_{-\boldsymbol{k}} \tag{2.46}$$

kennzeichnen e und h nicht nur das Band, sondern auch die z-Komponente des Gesamtdrehimpulses. Der Hamiltonoperator (2.3) mit den einzelnen Summanden (2.15),

(2.26), (2.33) schreibt sich im Elektron-Loch-Bild für einen Quantenfilm als

$$H_0 = \sum_{\boldsymbol{k}e} \epsilon^e_{\boldsymbol{k}}\, e^\dagger_{\boldsymbol{k}} e_{\boldsymbol{k}} + \sum_{\boldsymbol{k}h} \epsilon^h_{\boldsymbol{k}}\, h^\dagger_{-\boldsymbol{k}} h_{-\boldsymbol{k}}, \tag{2.47}$$

$$H_L = -\sum_{\boldsymbol{k}eh} \left[\boldsymbol{d}^{eh} \boldsymbol{E}_{\mathrm{QW}} e^\dagger_{\boldsymbol{k}} h^\dagger_{-\boldsymbol{k}} + \boldsymbol{d}^{he} \boldsymbol{E}_{\mathrm{QW}} h_{-\boldsymbol{k}} e_{\boldsymbol{k}} \right], \tag{2.48}$$

$$H_{\mathrm{Coul}} = \frac{1}{2V} \sum_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{q}} V_{\boldsymbol{q}} \Big[\sum_{ee'} e^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}} e'^\dagger_{\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}} e'_{\boldsymbol{k}'} e_{\boldsymbol{k}} + \sum_{hh'} h^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}} h'^\dagger_{\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}} h'_{\boldsymbol{k}'} h_{\boldsymbol{k}} - \sum_{eh} 2\, e^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}} h^\dagger_{\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}} h_{\boldsymbol{k}'} e_{\boldsymbol{k}} \Big]. \tag{2.49}$$

Dichtematrix

Um Prozesse, die durch die Anregung des Quantenfilms mit einem optischen Feld erzeugt werden, zu beschreiben wird im folgenden die Einteilchen-Dichtematrix

$$\boldsymbol{\rho}_{\boldsymbol{k}} = \begin{pmatrix} f^e_{\boldsymbol{k}} & P^{eh}_{\boldsymbol{k}} \\ P^{eh*}_{\boldsymbol{k}} & f^h_{\boldsymbol{k}} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}}\, e_{\boldsymbol{k}} \rangle & \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}}\, h^\dagger_{-\boldsymbol{k}} \rangle \\ \langle h_{-\boldsymbol{k}}\, e_{\boldsymbol{k}} \rangle & \langle h^\dagger_{-\boldsymbol{k}}\, h_{-\boldsymbol{k}} \rangle \end{pmatrix} \tag{2.50}$$

betrachtet. Auf der Diagonalen stehen die Besetzungen des Leitungsbandes $f^e_{\boldsymbol{k}}$ und des Valenzbandes $f^h_{\boldsymbol{k}}$, während auf den Nichtdiagonalen Übergangsamplituden vom Leitungsband ins Valenzband $P^{eh}_{\boldsymbol{k}}$ bzw. umgekehrt $P^{eh*}_{\boldsymbol{k}}$ stehen. Da bei einer räumlich homogenen Anregung in der Ebene des Quantenfilms nur der Beitrag $\boldsymbol{E}_{\mathrm{QW}}(\boldsymbol{q} = \boldsymbol{0})$ in Gleichung (2.48) berücksichtigt werden muß, ist die Dichtematrix $\boldsymbol{k}$-diagonal.

Mit den Elementen der Dichtematrix lassen sich physikalische Größen wie z.B. die Teilchendichte der Elektronen (Löcher) im Leitungsband (Valenzband)

$$n^{e,h}(t) = \frac{1}{V} \sum_{\boldsymbol{k}} f^{e,h}_{\boldsymbol{k}}(t) \tag{2.51}$$

und die makroskopische Polarisation

$$\boldsymbol{P}(t) = \frac{1}{V} \sum_{\boldsymbol{k}eh} \left[\boldsymbol{d}^{eh} P^{eh}_{\boldsymbol{k}}(t) + \boldsymbol{d}^{eh*} P^{eh*}_{\boldsymbol{k}}(t) \right] \tag{2.52}$$

mit dem Dipolmatrixelement $\boldsymbol{d}$ und der Interband-Übergangsamplitude $P^{eh}_{\boldsymbol{k}}$ berechnen.

Dynamik

Durch die optische Anregung des Quantenfilms wird in diesem eine makroskopische Polarisation (2.52) erzeugt, in welche die exzitonischen Übergangsamplituden eingehen. Diese Polarisation koppelt an die Maxwell-Gleichungen (vgl. Abschnitt 2.2). Um die Dynamik der makroskopischen Polarisation zu beschreiben, wird als nächstes die Dynamik der Elemente der Einteilchen-Dichtematrix betrachtet, d.h. für die Übergangsamplitude und die Besetzung der Ladungsträger wird eine Bewegungsgleichung aufgestellt:

$$\frac{\partial}{\partial t}P^{eh}_{\boldsymbol{k}} = \frac{\partial}{\partial t}\langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}} h^\dagger_{-\boldsymbol{k}}\rangle = \langle \dot{e}^\dagger_{\boldsymbol{k}} h^\dagger_{-\boldsymbol{k}}\rangle + \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}} \dot{h}^\dagger_{-\boldsymbol{k}}\rangle, \tag{2.53}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}f^{e}_{\boldsymbol{k}} = \frac{\partial}{\partial t}\langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}} e_{\boldsymbol{k}}\rangle = \langle \dot{e}^\dagger_{\boldsymbol{k}} e_{\boldsymbol{k}}\rangle + \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}} \dot{e}_{\boldsymbol{k}}\rangle, \tag{2.54}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}f^{h}_{\boldsymbol{k}} = \frac{\partial}{\partial t}\langle h^\dagger_{-\boldsymbol{k}} h_{-\boldsymbol{k}}\rangle = \langle \dot{h}^\dagger_{-\boldsymbol{k}} h_{-\boldsymbol{k}}\rangle + \langle h^\dagger_{-\boldsymbol{k}} \dot{h}_{-\boldsymbol{k}}\rangle. \tag{2.55}$$

Die darin enthaltene zeitliche Entwicklung der Erzeuger (Vernichter) für Elektronen und Löcher kann man mit Hilfe der Heisenberg-Bewegungsgleichung

$$i\hbar\frac{d}{dt}a = [a, H]_- \tag{2.56}$$

aus dem Kommutator $[a, H]_- = aH - Ha$ und dem Hamiltonoperator H für einen beliebigen nicht explizit zeitabhängigen Operator a berechnen:

$$\frac{\partial}{\partial t}e_{\boldsymbol{k}} = \frac{i}{\hbar}\left[-\epsilon^e_{\boldsymbol{k}} e_{\boldsymbol{k}} + \sum_h \boldsymbol{d}^{eh}\boldsymbol{E}_{\mathrm{QW}} h^\dagger_{-\boldsymbol{k}} + \frac{1}{V}\sum_{\boldsymbol{k}'\boldsymbol{q}} V_{\boldsymbol{q}}\left(\sum_{e'} e'^\dagger_{\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} e_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}} e'_{\boldsymbol{k}'} + \sum_h h^\dagger_{\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} h_{\boldsymbol{k}'} e_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}\right)\right] \tag{2.57}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}e^\dagger_{\boldsymbol{k}} = \frac{i}{\hbar}\left[\epsilon^e_{\boldsymbol{k}} e^\dagger_{\boldsymbol{k}} - \sum_h \boldsymbol{d}^{he}\boldsymbol{E}_{\mathrm{QW}} h_{-\boldsymbol{k}} - \frac{1}{V}\sum_{\boldsymbol{k}'\boldsymbol{q}} V_{\boldsymbol{q}}\left(\sum_{e'} e'^\dagger_{\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} e^\dagger_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}} e'_{\boldsymbol{k}'} + \sum_h e^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}} h^\dagger_{\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}} h_{\boldsymbol{k}'}\right)\right] \tag{2.58}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}h_{-\boldsymbol{k}} = \frac{i}{\hbar}\left[-\epsilon^h_{\boldsymbol{k}} h_{-\boldsymbol{k}} - \sum_e \boldsymbol{d}^{eh}\boldsymbol{E}_{\mathrm{QW}} e^\dagger_{\boldsymbol{k}} + \frac{1}{V}\sum_{\boldsymbol{k}'\boldsymbol{q}} V_{\boldsymbol{q}}\left(\sum_{h'} h'^\dagger_{\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}} h_{-\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}} h'_{\boldsymbol{k}'} + \sum_e e^\dagger_{\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} e_{\boldsymbol{k}'} h_{-\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}\right)\right] \tag{2.59}$$

$$\frac{\partial}{\partial t}h^\dagger_{-\boldsymbol{k}} = \frac{i}{\hbar}\Bigg[\epsilon^h_{\boldsymbol{k}}h^\dagger_{-\boldsymbol{k}} + \sum_e \boldsymbol{d}^{he}\boldsymbol{E}_{\mathrm{QW}}e_{\boldsymbol{k}} - \frac{1}{V}\sum_{\boldsymbol{k}'\boldsymbol{q}} V_{\boldsymbol{q}}\left(\sum_{h'} h'^\dagger_{\boldsymbol{k}'}h^\dagger_{-\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}}h'_{\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}} + \sum_e h^\dagger_{-\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}e^\dagger_{\boldsymbol{k}'}e_{\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}}\right)\Bigg] \tag{2.60}$$

Für die Dynamik von Gleichung (2.53) und (2.54) folgt durch Einsetzen der Gleichungen (2.57) bis (2.60):

$$\begin{aligned} i\hbar\frac{\partial}{\partial t}P^{eh}_{\boldsymbol{k}} =& -(\epsilon^e_{\boldsymbol{k}} + \epsilon^h_{\boldsymbol{k}})P^{eh}_{\boldsymbol{k}} + \frac{1}{V}\sum_{\boldsymbol{k}'} V_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{k}'}P^{eh}_{\boldsymbol{k}'} \\ &+ \sum_{h'}\boldsymbol{d}^{h'e}\boldsymbol{E}_{\mathrm{QW}}[\delta_{hh'} - \langle h^\dagger_{-\boldsymbol{k}}h'_{-\boldsymbol{k}}\rangle] - \sum_{e'}\boldsymbol{d}^{he'}\boldsymbol{E}_{\mathrm{QW}}\langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}}e'_{\boldsymbol{k}}\rangle \\ &- \frac{1}{V}\sum_{\boldsymbol{k}'\boldsymbol{q}} V_{\boldsymbol{q}}\Big[\sum_{e'}\Big(\langle e'^\dagger_{\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}}e^\dagger_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}}h^\dagger_{-\boldsymbol{k}}e'_{\boldsymbol{k}'}\rangle - \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}}h^\dagger_{-\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}e'^\dagger_{\boldsymbol{k}'}e'_{\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}}\rangle\Big) \\ &\qquad + \sum_{h'}\Big(\langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}h'^\dagger_{\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}}h^\dagger_{-\boldsymbol{k}}h'_{\boldsymbol{k}'}\rangle - \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}}h'^\dagger_{\boldsymbol{k}'}h^\dagger_{-\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}}h'_{\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}}\rangle\Big)\Big], \end{aligned} \tag{2.61}$$

$$\begin{aligned} i\hbar\frac{\partial}{\partial t}f^e_{\boldsymbol{k}} =& \sum_h\Big(\boldsymbol{d}^{he}\boldsymbol{E}_{\mathrm{QW}}P^{eh*}_{\boldsymbol{k}} - \boldsymbol{d}^{eh}\boldsymbol{E}_{\mathrm{QW}}P^{eh}_{\boldsymbol{k}}\Big) \\ &+ \frac{1}{V}\sum_{\boldsymbol{k}'\boldsymbol{q}} V_{\boldsymbol{q}}\Big[\sum_{e'}\Big(\langle e'^\dagger_{\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}}e^\dagger_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}}e'_{\boldsymbol{k}'}e_{\boldsymbol{k}}\rangle - \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}}e'^\dagger_{\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}}e_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}e'_{\boldsymbol{k}'}\rangle\Big) \\ &\qquad \sum_h\Big(\langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}h^\dagger_{\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}}h_{\boldsymbol{k}'}e_{\boldsymbol{k}}\rangle - \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}}h^\dagger_{\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}}h_{\boldsymbol{k}'}e_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}\rangle\Big)\Big]. \end{aligned} \tag{2.62}$$

An dieser Stelle ergibt sich bei der Berechnung der Dynamik von Besetzungen und Übergangsamplituden eines wechselwirkenden Vielteilchensystems folgendes Problem: Die Dynamik der Erwartungswerte (EW), die zwei Operatoren enthalten (kurz: 2er EW), koppelt über die Coulomb-Wechselwirkung an 4er EW. Die Zeitentwicklung der 4er EW koppelt an 6er EW u.s.w. Man erhält also aufgrund der Coulomb-Wechselwirkung eine unendliche Hierarchie von Bewegungsgleichungen. Dieses Problem ist in Abbildung 2.1 anschaulich dargestellt.

Um geschlossene Bewegungsgleichungen zu erhalten, muß die unendliche Hierarchie abgebrochen werden. Die einfachste Möglichkeit besteht darin, die 4er Erwartungswerte in Produkte aus 2er Erwartungswerten zu faktorisieren. Dies gelingt mit der Hartree-Fock-Näherung.

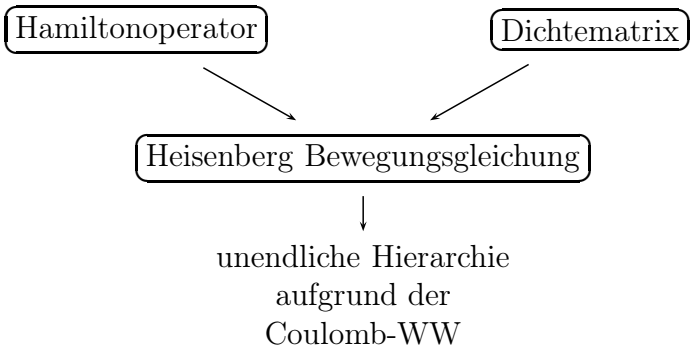

Abbildung 2.1.: Skizze zur Veranschaulichung des Hierarchieproblems

Hartree-Fock-Näherung

In Systemen mit Teilchenzahlerhaltung ist in einer beliebigen Basis die Hartree-Fock-Entkopplung durch

$$\langle a_\alpha^\dagger a_\beta^\dagger a_\delta a_\gamma\rangle \approx \langle a_\alpha^\dagger a_\delta\rangle\langle a_\beta^\dagger a_\gamma\rangle - \langle a_\alpha^\dagger a_\gamma\rangle\langle a_\beta^\dagger a_\delta\rangle \tag{2.63}$$

gegeben. Die Operatoren $a^\dagger$ (a) seien beliebige Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren fermionischen Charakters mit den Quantenzahlen α, β, δ, γ. Die Erwartungswerte $\langle a_\alpha^\dagger a_\beta^\dagger\rangle$ und $\langle a_\delta a_\gamma\rangle$ sind keine makroskopischen Erwartungswerte. Sie erhalten die Teilchenzahl des Systems nicht und sind gleich Null, da $\langle\Phi_0|a_\delta$ und $a_\gamma|\Phi_0\rangle$ (bzw. $\langle\Phi_0|a_\alpha^\dagger$ und $a_\beta^\dagger|\Phi_0\rangle$) in unterschiedlichen Hilbert-Räumen liegen. Mit $|\Phi_0\rangle$ wird der Vielteilchen-Grundzustand bezeichnet. Die Gleichung (2.63) gilt sowohl für räumlich inhomogene als auch homogene Systeme. In dieser Arbeit werden räumlich homogene Systeme betrachtet, für welche $\boldsymbol{k}$ eine gute Quantenzahl ist, da Impulserhaltung gilt. Aufgrund der Impulserhaltung gibt es nur diagonale Beiträge:

$$\langle a_{\boldsymbol{k}_1}^\dagger a_{\boldsymbol{k}_2}^\dagger a_{\boldsymbol{k}_3} a_{\boldsymbol{k}_4}\rangle \approx \langle a_{\boldsymbol{k}_1}^\dagger a_{\boldsymbol{k}_3}\rangle\langle a_{\boldsymbol{k}_2}^\dagger a_{\boldsymbol{k}_4}\rangle\delta_{\boldsymbol{k}_1,\boldsymbol{k}_3}\delta_{\boldsymbol{k}_2,\boldsymbol{k}_4} - \langle a_{\boldsymbol{k}_1}^\dagger a_{\boldsymbol{k}_4}\rangle\langle a_{\boldsymbol{k}_2}^\dagger a_{\boldsymbol{k}_3}\rangle\delta_{\boldsymbol{k}_1,\boldsymbol{k}_4}\delta_{\boldsymbol{k}_2,\boldsymbol{k}_3}, \tag{2.64}$$

wobei der erste Summand auf der rechten Seite der Gleichung (2.64) der sogenannte Fock-Term (Austausch-Term) und der zweite Summand der sogenannte Hartree-Term (direkter Term) ist. Wendet man die Hartree-Fock-Entkopplung auf die 4er EW der Gleichungen (2.61) und (2.62) an, so verschwindet der Hartree-Term:

$$\sum_{\boldsymbol{k}'\boldsymbol{q}e'} V_{\boldsymbol{q}}\langle e'^\dagger_{\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} e^\dagger_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}} h^\dagger_{-\boldsymbol{k}} e'_{\boldsymbol{k}'}\rangle \approx \sum_{\boldsymbol{k}'\boldsymbol{q}e'} V_{\boldsymbol{q}}\langle e'^\dagger_{\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} h^\dagger_{-\boldsymbol{k}}\rangle\langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}} e'_{\boldsymbol{k}'}\rangle\delta_{\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}}\delta_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'} \tag{2.65}$$

Die Ursache liegt darin, daß aufgrund der Impulserhaltung der Hartree-Term nur für $\boldsymbol{q} = 0$ existiert. Dafür wird jedoch das unabgeschirmte Coulomb-Potential singulär. Aufgrund der angenommenen Ladungsneutralität wird dieser Beitrag durch die Hintergrundladung der Gitterionen kompensiert [38].

Halbleiter-Bloch-Gleichungen

Die Gleichungen (2.61) und (2.62) führen in Hartree-Fock–Näherung auf die Halbleiter-Bloch-Gleichungen[3] [4]:

$$\left[i\hbar\frac{\partial}{\partial t} + \tilde{\epsilon}_k^e(t) + \tilde{\epsilon}_k^h(t)\right] P_{\boldsymbol{k}}^{eh}(t) \;=\; \left[1 - f_{\boldsymbol{k}}^e(t) - f_{\boldsymbol{k}}^h(t)\right] \Omega_{\boldsymbol{k}}(t), \tag{2.66}$$

$$i\hbar\,\frac{\partial}{\partial t} f_{\boldsymbol{k}}^a(t) \;= \Omega_{\boldsymbol{k}}^*(t) P_{\boldsymbol{k}}^{eh^*}(t) - \Omega_{\boldsymbol{k}}(t) P_{\boldsymbol{k}}^{eh}(t)\;. \tag{2.67}$$

Die Gleichungen (2.66) und (2.67) bilden ein geschlossenes Bewegungsgleichungssystem für die Übergangsamplitude und die Besetzungen der Elektronen und Löcher. Der Index a steht für e oder h. Im Gegensatz zu den Bloch-Gleichungen im Atom [38, 39] findet im Halbleiter aufgrund der Coulomb-Wechselwirkung eine Renormierung der Einteilchenenergien

$$\tilde{\epsilon}_{\boldsymbol{k}}^a(t) = \epsilon_{\boldsymbol{k}}^a - \frac{1}{V}\sum_{\boldsymbol{k}'} V_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{k}'} f_{\boldsymbol{k}'}^a(t) \tag{2.68}$$

und der Rabi-Energie

$$\Omega_{\boldsymbol{k}}(t) = \boldsymbol{d}^{he}\boldsymbol{E}_{\mathrm{QW}}(t) + \frac{1}{V}\sum_{\boldsymbol{k}'} V_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{k}'} P_{\boldsymbol{k}'}(t) \tag{2.69}$$

statt.

Die Lösung der zu Gleichung (2.66) zugehörigen homogenen Differentialgleichung für $P_{\boldsymbol{k}}^{eh}$ oszilliert mit $\tilde{\epsilon}_k^e(t) + \tilde{\epsilon}_k^h(t)$. Die rechte Seite der Differentialgleichung, welche zum Aufbau einer Polarisation führt, ist das Produkt aus dem Pauli-Blocking-Faktor $1 - f_{\boldsymbol{k}}^e(t) - f_{\boldsymbol{k}}^h(t)$ und der renormierten Rabi-Energie. Die Besetzung genügt einer eigenen Bewegungsgleichung, welche durch das Produkt aus renormierter Rabi-Energie und Übergangsamplitude getrieben wird.

Das Minuszeichen in Gleichung (2.68) beschreibt die Absenkung der Einteilchenenergien und entsprechend eine Verkleinerung der Bandlücke $E_G = \tilde{\epsilon}_{\boldsymbol{k}=\boldsymbol{0}}^e + \tilde{\epsilon}_{\boldsymbol{k}=\boldsymbol{0}}^h$, wenn die Besetzung zunimmt. Die Renormierung der Rabi-Energie (2.69) führt auf exzitonische Resonanzen in optischen Eigenschaften wie z.B. der Suszeptibilität. Dies wird

[3] Der Ursprung dieser Namensgebung kommt daher, daß die Halbleiter-Bloch-Gleichungen eine Verallgemeinerung der optischen Bloch-Gleichungen [38, 39] sind. Ohne Coulomb-Wechselwirkung erhält man für jedes $\boldsymbol{k}$ ein Zwei-Niveau-System, dessen Dynamik mit den optischen Bloch-Gleichungen beschrieben wird.

[4] Hierbei wurde verwendet, daß in Hartree-Fock-Näherung verschiedene Spinkombinationen beim Übergang vom Valenz- ins Leitungsband nicht gekoppelt sind. Genauere Ausführungen erfolgen später in Abschnitt 4.1 auf Seite 69.

deutlich, wenn man nur lineare Anregungen im optischen Lichtfeld $\boldsymbol{E}_{\mathrm{QW}}$ betrachtet, d.h. keine Besetzungsänderungen berücksichtigt ($\frac{\partial}{\partial t} f_{\boldsymbol{k}}^{a}(t) = 0$):

$$\left[i\hbar \frac{\partial}{\partial t} + \epsilon_{\boldsymbol{k}}^{e} + \epsilon_{\boldsymbol{k}}^{h} \right] P_{\boldsymbol{k}}(t) = \boldsymbol{d}\boldsymbol{E}_{\mathrm{QW}}(t) + \sum_{\boldsymbol{k}'} V_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{k}'} P_{\boldsymbol{k}'}(t). \tag{2.70}$$

Durch Fouriertransformation dieser Gleichung vom Zeit- in den Frequenzraum erhält man die inhomogene Exzitongleichung im Impulsraum:

$$\left[\hbar\omega + \epsilon_{\boldsymbol{k}}^{e} + \epsilon_{\boldsymbol{k}}^{h} \right] P_{\boldsymbol{k}}(\omega) = \boldsymbol{d}\boldsymbol{E}_{\mathrm{QW}}(\omega) + \sum_{\boldsymbol{k}'} V_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{k}'} P_{\boldsymbol{k}'}(\omega). \tag{2.71}$$

Mit Hilfe der zugehörigen homogenen Differentialgleichung

$$\sum_{\boldsymbol{k}'} H_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}'} P_{\boldsymbol{k}'} = \epsilon_{\boldsymbol{k}} P_{\boldsymbol{k}} \tag{2.72}$$

mit

$$H_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}'} = -\left(\epsilon_{\boldsymbol{k}}^{e} + \epsilon_{\boldsymbol{k}}^{h} \right) \delta_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}'} + V_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{k}'} \tag{2.73}$$

läßt sich das Eigenwertspektrum ausrechnen. Die zugehörige Wellenfunktion zum niedrigsten Eigenwert ist die 1s-Wellenfunktion. Diese wird in Abschnitt 3.4 nach einem Wechsel von der Bloch-Basis in die Exzitonbasis zur Berechnung von Matrixelementen, die in der Bewegungsgleichung der exzitonischen Übergangsamplitude stehen, benötigt.

Die Beiträge zu der exzitonischen Übergangsamplitude und den Besetzungen der Elektronen und Löcher können nach den Ordnungen im optischen Feld klassifiziert werden. Bei Anregungen, für welche die exzitonische Übergangsamplitude linear im optischen Feld ist und nach Gleichung (2.70) berechnet werden kann, ist die Hartree-Fock-Näherung exakt. Um Besetzungsänderungen zu berücksichtigen, muß die Ordnung des optisch anregenden Lichtfeldes mindestens quadratisch sein. Das liegt daran, daß nach Gleichung (2.67) die Besetzungen der Elektronen und Löcher proportional zum Produkt aus optischen Feld und exzitonischer Übergangsamplitude sind. Bei einer nichtverschwindenden optisch induzierten Besetzung ist ein nichtlinearer Beitrag zur exzitonischen Übergangsamplitude mindestens proportional zur dritten Ordnung im optischen Feld, da sie sich aus einem Produkt aus Besetzung (mindestens $\propto \boldsymbol{E}_{\mathrm{QW}}^{2}$) und Rabi-Energie (mindestens $\propto \boldsymbol{E}_{\mathrm{QW}}$) ergibt. Die systematische Untersuchung der Halbleiter-Bloch-Gleichungen bzgl. ihrer Ordnung im optischen Feld führt zu dem Schluß, daß die exzitonische Übergangsamplitude immer proportional zu einer ungeraden Ordnung im optischen Feld ist, während die Besetzung immer proportional zu einer geraden Ordnung im optischen Feld ist.

Die Halbleiter-Bloch-Gleichungen beschreiben keinen mikroskopischen Polarisationszerfall. Der Polarisationszerfall läßt sich phänomenologisch einführen, indem man

in Gleichung (2.66) auf der linken Seite eine Dämpfung $i\Gamma P_{\boldsymbol{k}}(t)$ addiert. Hierbei ist $\Gamma = \frac{\hbar}{T_2}$ umgekehrt proportional zur Dephasierungszeit T_2. Weiterhin enthalten die Halbleiter-Bloch-Gleichungen keine Abschirmung der Coulomb-Wechselwirkung durch die angeregten Ladungsträger. Da in der HF-Näherung die 4er EW faktorisiert werden, gibt es keine Zweiteilchengrößen. Das bekannteste Beispiel einer Zweiteilchengröße in diesem Zusammenhang ist das Biexziton, welches später in Abschnitt 3.2 bei der Behandlung des Hierarchie-Problems mit dem Konzept des dynamisch kontrollierten Abbruchs vorgestellt wird.

Lineare optische Suszeptibilität

Aus der makroskopischen Polarisation läßt sich die Suszeptibilität berechnen. Diese schreibt sich nach [38] in der bzgl. der Zeit allgemeinsten linearen Beziehung zwischen dem optischen Feld und der Polarisation als

$$\boldsymbol{P}(t) = \int_{-\infty}^{t} dt' \chi(t,t') \boldsymbol{E}(t'). \tag{2.74}$$

Alle Größen sind reell und die zweizeitige Antwortfunktion $\chi(t,t')$ hängt von der Vergangenheit ab, d.h. sie beschreibt das Gedächtnis des Systems für den Einfluß der optischen Felder zu früheren Zeiten. Im Gleichgewicht hängt diese Antwortfunktion aufgrund der zeitlichen Invarianz des ungestörten Systems nur noch von der Zeitdifferenz ab:

$$\boldsymbol{P}(t) = \int_{-\infty}^{t} dt' \chi(t-t') \boldsymbol{E}(t'). \tag{2.75}$$

Eine Fouriertransformation in den Frequenzraum ergibt direkt die frequenzabhängige Suszeptibilität

$$\chi(\omega) = \frac{P(\omega)}{E(\omega)}, \tag{2.76}$$

welche von den ebenfalls frequenzabhängigen Größen, der Polarisation und dem optischen Feld abhängt. Nun läßt sich mit Gleichung (2.76) aus dem Imaginärteil der Suszeptibilität ein lineares Absorptionsspektrum berechnen [38]. Dies wird in Abbildung 2.2 für das drei-dimensionale, zwei-dimensionale und Quantenfilm-System gezeigt, um den Einfluß der Dimensionalität auf die Stärke der Coulomb-Wechselwirkung der Ladungsträger untereinander zu demonstrieren. Dort ist der Imaginärteil der linearen Suszeptibilität gegenüber der Verstimmung Φ aufgetragen. Die Verstimmung Φ ergibt sich aus der um die Bandlückenenergie E_g verringerten Anregungsenergie $\hbar\omega$ in Einheiten der 3d-Exziton-Bindungsenergie des 1s-Exzitons E_B^X. Demzufolge liegt das 1s-Exziton im drei-dimensionalen Halbleiter bei einer Verstimmung von $\Phi = -1$. Da in einem zwei-dimensionalen Halbleiter die Verstimmung des 1s-Exzitons bei $\Phi = -4$

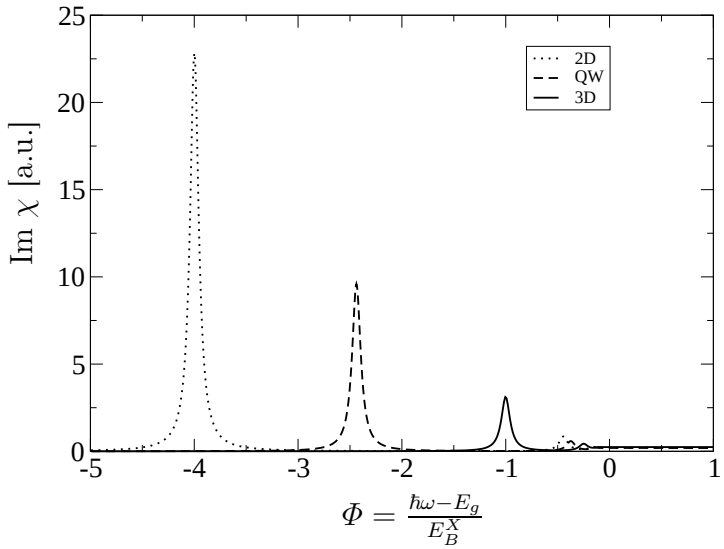

Abbildung 2.2.: Lineares Absorptionsspektrum im zwei- und drei-dimensionalen System, sowie im 8 nm GaAs-Quantenfilm.

liegt, ist es gegenüber dem drei-dimensionalen Fall vier mal so stark gebunden. Der uns interessierende Quantenfilm ist ein System, welches aufgrund der Einschränkung der Dimension in einer Raumrichtung zwischen dem zwei- und drei-dimensionalen System liegt. Dies wirkt sich natürlich auf die Exziton-Bindungsenergie aus, weswegen in einem 8 nm dicken GaAs Quantenfilm[5] das 1s-Exziton bei einer Verstimmung von $\Phi = -2.4$ liegt. Es sei darauf hingewiesen, daß die Bandlückenenergie E_g für alle drei vorgestellten Fälle unterschiedlich ist. Die Ursache hierfür liegt darin, daß bei einer Zunahme der Dicke des Quantenfilms die Energieniveaus für die Elektronen und Löcher so verschieben, daß sich die Bandlückenenergie verkleinert.

Die Suszeptibilität gibt mit dem Zusammenhang zur optischen dielektrischen Funktion

$$\epsilon(\omega) = 1 + \frac{1}{\epsilon_0}\chi(\omega) \tag{2.77}$$

und mit $\epsilon(\omega) = \epsilon'(\omega) + i\epsilon''(\omega)$ direkten Zugriff auf den Brechungsindex

$$n(\omega) = \sqrt{\frac{1}{2}\left[\epsilon'(\omega) + \sqrt{\epsilon'^2(\omega) + \epsilon''^2(\omega)}\right]}. \tag{2.78}$$

[5]Die Materialparameter hierzu befinden sich im Anhang C

Nichtlineare optische Suszeptibilität

Für die Betrachtung nichtlinearer Anregungen entwickelt man die Polarisation nach Ordnungen im optischen Feld:

$$\begin{aligned} P(\omega) =& P^{(1)}(\omega) + P^{(2)}(\omega) + P^{(3)}(\omega) + \cdots \\ =& \chi^{(1)}(\omega)E(\omega) + \chi^{(2)}(\omega)E^2(\omega) + \chi^{(3)}(\omega)E^3(\omega) + \cdots . \end{aligned} \tag{2.79}$$

Die Entwicklungskoeffizienten $\chi^{(n)}$ sind die Suszeptibilitäten in der n-ten Ordnung. In dieser Entwicklung geht die Annahme eines räumlich in der Quantenfilmebene isotropen Mediums ein, welches unendlich dünn in z-Richtung ist. In dieser Arbeit werden nur Materialsysteme betrachtet, die ein Inversionszentrum besitzen. In solchen Materialsystemen verschwinden die Suszeptibilitäten gerader Ordnung der Gleichung (2.79). $\chi^{(2)}$-Effekte werden in [40] unter anderem am Beispiel der Summenfrequenzerzeugung bei der Überlagerung zweier elektromagnetischer Wellen besprochen.

Es ist in der Literatur üblich, von $\chi^{(n)}$-Regimen zu sprechen. Darunter ist zu verstehen, daß die betrachteten Größen wie z.B. die exzitonische Übergangsamplitude und damit auch die Polarisation proportional zur n-ten Ordnung im optischen Feld sind.

2.2. Ankopplung an die Maxwell-Gleichungen

Aus den Maxwell-Gleichungen in Materie ohne externe Ladungen und Ströme

$$\mathrm{rot}\boldsymbol{E} = -\frac{\partial}{\partial t}\boldsymbol{B} \qquad \mathrm{rot}\boldsymbol{B} = \frac{1}{\epsilon_0 c_0^2}\frac{\partial}{\partial t}\boldsymbol{D} \tag{2.80}$$

$$\epsilon_0 \mathrm{div}\boldsymbol{E} = -\mathrm{div}\boldsymbol{P} \qquad \mathrm{div}\boldsymbol{B} = 0 \tag{2.81}$$

folgt die inhomogene Wellengleichung für das elektrische Feld

$$\left(\Delta - \frac{1}{c_0^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\right)\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t) = \mu_0\frac{\partial^2}{\partial t^2}\boldsymbol{P}(\boldsymbol{r},t) - \frac{1}{\epsilon_0}\mathrm{grad}\ \mathrm{div}\boldsymbol{P}(\boldsymbol{r},t). \tag{2.82}$$

In dieser setzt sich die Polarisation aus der Polarisation des angeregten Quantenfilms $\boldsymbol{P}_{\mathrm{QW}}$ und einem nichtresonanten Hintergrundanteil $\boldsymbol{P}_{\mathrm{B}}$ zusammen

$$\boldsymbol{P} = \boldsymbol{P}_{\mathrm{QW}} + \boldsymbol{P}_{\mathrm{B}}. \tag{2.83}$$

Der nichtresonante Hintergrundanteil $\boldsymbol{P}_{\mathrm{B}}$ steht über eine zeitunabhängige Suszeptibilität mit dem elektrischen Feld in Beziehung:

$$\boldsymbol{P}_{\mathrm{B}}(\boldsymbol{r},t) = \chi_{\mathrm{B}}(\boldsymbol{r})\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t). \tag{2.84}$$

Die Suszeptibilität läßt sich wiederum in Abhängigkeit des Hintergrundbrechungsindexes $n(\boldsymbol{r})$ gemäß

$$n^2(\boldsymbol{r}) = 1 + \frac{\chi_B(\boldsymbol{r})}{\epsilon_0} \tag{2.85}$$

ausdrücken. Daraus folgt die Wellengleichung

$$\left(\Delta - \frac{n^2(\boldsymbol{r})}{c_0^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\right)\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t) = \mu_0\frac{\partial^2}{\partial t^2}\boldsymbol{P}_{\mathrm{QW}}(\boldsymbol{r},t) - \frac{1}{\epsilon_0}\mathrm{grad}\ \mathrm{div}\boldsymbol{P}(\boldsymbol{r},t). \tag{2.86}$$

Anschließend wird sowohl für das elektrische Feld als auch für die Polarisation zwischen Komponenten in der Ebene des Quantenfilms und senkrecht dazu unterschieden:

$$\boldsymbol{E} = \boldsymbol{E}_{\parallel} + \boldsymbol{E}_z, \qquad\qquad \boldsymbol{P} = \boldsymbol{P}_{\parallel} + \boldsymbol{P}_z. \tag{2.87}$$

Mit einer Fouriertransformation bzgl. der Argumente in der Ebene des Quantenfilms $\boldsymbol{\rho}$ für alle Komponenten des elektrischen Feldes und der Polarisation, z.B.

$$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{\rho},z,t) = \frac{1}{A}\sum_{\boldsymbol{q}_{\parallel}} e^{i\boldsymbol{q}_{\parallel}\boldsymbol{\rho}}\boldsymbol{E}(\boldsymbol{q}_{\parallel},z,t), \tag{2.88}$$

gelangt man zu zwei gekoppelten Wellengleichungen für die Feldkomponenten:

$$\begin{aligned}\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - q_{\parallel}^2 - \frac{n^2(z)}{c_0^2}\right)\boldsymbol{E}_{\parallel}(\boldsymbol{q}_{\parallel},z,t) &= \mu_0\frac{\partial^2}{\partial t^2}\boldsymbol{P}_{\mathrm{QW},\parallel}(\boldsymbol{q}_{\parallel},z,t) \\ &\quad - \frac{i\boldsymbol{q}_{\parallel}}{\epsilon_0}\left(i\boldsymbol{q}_{\parallel}\boldsymbol{P}_{\parallel}(\boldsymbol{q}_{\parallel},z,t) + \frac{\partial}{\partial z}P_z(\boldsymbol{q}_{\parallel},z,t)\right),\end{aligned} \tag{2.89}$$

$$\begin{aligned}\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - q_{\parallel}^2 - \frac{n^2(z)}{c_0^2}\right)E_z(\boldsymbol{q}_{\parallel},z,t) &= \mu_0\frac{\partial^2}{\partial t^2}P_{\mathrm{QW},z}(\boldsymbol{q}_{\parallel},z,t) \\ &\quad - \frac{i}{\epsilon_0}\frac{\partial}{\partial z}\left(i\boldsymbol{q}_{\parallel}\boldsymbol{P}_{\parallel}(\boldsymbol{q}_{\parallel},z,t) + \frac{\partial}{\partial z}P_z(\boldsymbol{q}_{\parallel},z,t)\right).\end{aligned} \tag{2.90}$$

Wenn das externe optische Feld in Wachstumsrichtung durch den Quantenfilm propagiert, sind die Gleichungen (2.89) und (2.90) entkoppelt, da für diesen Fall $\boldsymbol{q}_{\parallel} = 0$ gilt. Desweiteren verschwindet die z-Komponente der Polarisation P_z mit der Annahme, daß nur das unterste Subband an der resonanten Anregung zwischen dem

Schwerloch-Valenzband und dem Leitungsband beteiligt ist. Mit diesen Annahmen folgt die inhomogene Wellengleichung für das elektrische Feld,

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\right) E(z,t) = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} P(z,t), \tag{2.91}$$

wobei $E = E_\parallel$ und $P = P_{\mathrm{QW},\parallel}$ zur Abkürzung benutzt wurden. Die Gleichung (2.91) soll für einen dünnen Quantenfilm gelöst werden. Dünn heißt in diesem Zusammenhang, daß die Wellenlänge des optischen Lichtfeldes um drei Größenordnungen über der Ausdehnung des Quantenfilms liegt und somit

$$P(z,t) = P(t)\delta(z) \tag{2.92}$$

gewählt werden kann. Eine spezielle Lösung von Gleichung (2.91) erhält man durch Fouriertransformation bezüglich der Orts- und Zeitargumente:

$$E(z,t) = \int \frac{dk}{2\pi} \int \frac{d\omega}{2\pi} e^{i(kz-\omega t)} E(k,\omega). \tag{2.93}$$

Mit der fouriertransformierten Polarisation

$$P(t) = \int \frac{d\omega}{2\pi} e^{-i\omega t} P(\omega) \tag{2.94}$$

und der Relation

$$\delta(z) = \int \frac{dk}{2\pi} e^{ikz} \tag{2.95}$$

ergibt sich die Lösung von Gleichung (2.91) im Fourierraum:

$$E(k,\omega) = \mu_0 \frac{\omega^2}{k^2 - \frac{\omega^2}{c^2}} P(\omega). \tag{2.96}$$

Es folgt nun die Rücktransformation zunächst vom Impuls- in den Ortsraum

$$E(z,\omega) = \int \frac{dk}{2\pi} e^{ikz} E(k,\omega) = e^{i\frac{\omega}{c}|z|} \frac{i\mu_0\omega^2 P(\omega)}{2\frac{\omega}{c}}. \tag{2.97}$$

Die verbleibende Rücktransformation von dem Frequenz- in den Zeitraum führt auf die spezielle Lösung der inhomogenen Wellengleichung (2.91)

$$E(z,t) = -\frac{\mu_0 c}{2} \frac{\partial}{\partial t} P\left(t - \frac{|z|}{c}\right). \tag{2.98}$$

Die allgemeine Lösung der inhomogenen Wellengleichung für einen dünnen Quantenfilm ergibt sich durch Ergänzung der homogenen Lösung als

$$E(z,t) = -\frac{\mu_0 c}{2} \frac{\partial}{\partial t} P\left(t - \frac{|z|}{c}\right) + C_+ E_0^+\left(t - \frac{z}{c}\right) + C_- E_0^-\left(t + \frac{z}{c}\right), \tag{2.99}$$

wobei $E_0^+(t - \frac{|z|}{c})$ die vorwärts laufende freie Lösung und $E_0^-(t + \frac{|z|}{c})$ die rückwärts laufende freie Lösung bezeichnet.

Mit den Randbedingungen $C_+ = 1$ und $C_- = 0$ wird eine von links eingestrahlte Welle beschrieben. Damit ergeben sich das transmittierte Feld (vorwärts propagierende Lösung für $z > 0$) [37]

$$T = E^+\left(t - \frac{z}{c}\right) = E_0^+\left(t - \frac{z}{c}\right) - \frac{\mu_0 c}{2}\frac{\partial}{\partial t}P\left(t - \frac{z}{c}\right), \tag{2.100}$$

das reflektierte Feld (rückwärts propagierende Lösung für $z < 0$)

$$R = E^-\left(t + \frac{z}{c}\right) = -\frac{\mu_0 c}{2}\frac{\partial}{\partial t}P\left(t + \frac{z}{c}\right), \tag{2.101}$$

sowie das Feld an der Stelle des Quantenfilms ($z = 0$)

$$E_{QW}(t) = E_0^+(t) - \frac{\mu_0 c}{2}\frac{\partial}{\partial t}P(t). \tag{2.102}$$

Gleichung (2.102) ergibt im Zusammenhang mit den Differentialgleichungen auf Hartree-Fock-Niveau, d.h. den Halbleiter-Bloch-Gleichungen, und den in Abschnitt 3.2 einzuführenden Differentialgleichungen, die über das Hartree-Fock-Niveau hinaus gehen, ein Selbstkonsistenzproblem. Am Beispiel der Halbleiter-Bloch-Gleichungen erkennt man, daß die Dynamik der exzitonischen Übergangsamplitude (2.66), welche an die Bewegungsgleichung der Elektronen- und Loch-Besetzung (2.66) gekoppelt ist, die makroskopische Polarisation (2.52) bestimmt, die nach Gleichung (2.102) das Feld im Quantenfilm modifiziert. Dieses geänderte optische Feld geht wiederum in die Halbleiter-Bloch-Gleichungen ein. Im Folgenden wird der Index QW zur Vereinfachung der Notation nicht explizit angegeben. Alle optischen Felder, welche in die Bewegungsgleichungen eingehen, sind daher als optische Felder an der Stelle des Quantenfilms zu verstehen.

Lineare optische Eigenschaften

Als Beispiel für die Propagation des optischen Feldes durch einen Halbleiter dienen hier die optischen Eigenschaften eines 8 nm GaAs-Quantenfilms. Aus der Transmission T (2.100) und der Reflexion R (2.101) eines Quantenfilms ergibt sich aufgrund der Energieerhaltung die Absorption

$$A = 1 - T - R. \tag{2.103}$$

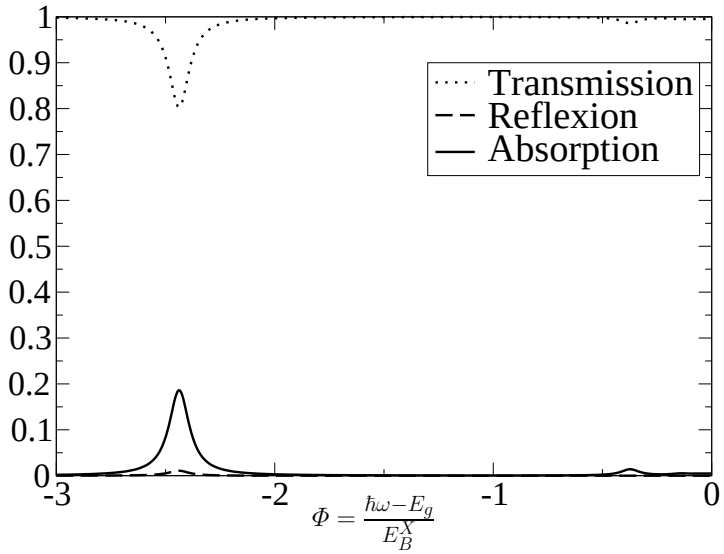

Abbildung 2.3.: Lineare optische Eigenschaften am Beispiel eines Quantenfilms in Abhängigkeit von der Verstimmung Φ.

Die gezeigten numerischen Rechnungen in Abbildung 2.3 wurden für den Fall linearer optischer Anregung durchgeführt, wobei die Anregung senkrecht zur Ebene des Quantenfilms erfolgt. Die Verstimmung Φ bezeichnet die energetische Position relativ zur Bandlückenenergie in Einheiten der 3d-Exziton-Bindungsenergie. Die Linienbreite der Resonanzen wird nicht alleine durch die in den Halbleiter-Bloch-Gleichungen eingeführte phänomenologische Dämpfung bestimmt, sondern auch durch Propagationseffekte. Durch das optische Feld wird im Medium eine makroskopische Polarisation erzeugt. Diese wiederum erzeugt durch die Ankopplung der Halbleiter-Bloch-Gleichungen an die Maxwell-Gleichungen ein optisches Feld. Im Volumenmaterial breitet sich eine gekoppelte Anregung aus Polarisation und optischem Feld durch den Kristall aus[6]. Im hier betrachteten Quantenfilm ist die Polarisation auf die Ebene des Quantenfilms beschränkt. Das Licht läuft daher nicht durch den Quantenfilm. Bei der Propagation durch den Kristall treten für das optische Feld Verluste in Form von Absorption und Reflexion auf, wodurch das transmittierte optische Feld nicht dem eingestrahlten optischen Feld entspricht. Diese Propagationsverluste werden in der Literatur als strahlende Verbreiterung bezeichnet und es gibt sie nur in Systemen, die aufgrund nicht translationsinvarianter Richtungen keine Impulserhaltung gewährleisten. Am Beispiel des Quantenfilms ist dies die Richtung senkrecht zur Quantenfilmebene, in welcher der Impuls nicht erhalten bleibt. Die Stärke der strahlenden Verbreiterung wird nach [37] durch die Stärke der Licht-Materie-Wechselwirkung bestimmt, die sich neben anderen Materialparametern maßgeblich durch die Dipol-

[6]Diese gekoppelte Anregung wird im Volumenmaterial als Polariton bezeichnet [38, 41, 42].

kopplung ergibt.

Neben der strahlenden Verbreiterung erhält man auch eine strahlende Verschiebung, wenn die betrachteten Annahmen für die Näherung (2.92) nicht mehr gelten.

3. Dynamisch kontrollierter Abbruch

Einführung

Die theoretische Beschreibung der exzitonischen Übergangsamplitude wird zunächst in Abschnitt 3.1 nach der sogenannten DCT-Theorie erweitert, wobei diese sich auf bestimmte Ordnungen im optischen anregenden Lichtfeld beschränkt. Anschließend werden in Abschnitt 3.2 mit diesen Erkenntnissen Bewegungsgleichungen abgeleitet, die bis zur dritten Ordnung im optischen Feld exakt sind. In Abschnitt 3.3 wird eine alternative Herleitung der bis zur dritten Ordnung im optischen Feld exakten Bewegungsgleichungen mit Hilfe von Nicht-Gleichgewichts-Greenschen-Funktionen und Feynman-Diagrammen vorgestellt. Zur Vereinfachung der numerischen Berechnung erfolgt in Abschnitt 3.4 ein Basiswechsel, um dann in der Exziton-Basis ein Differentialgleichungssystem zu erhalten, welches die Grundlage zur Beschreibung der optischen Spektroskopie im darauffolgenden Kapitel 4 bildet.

3.1. DCT-Formalismus

In diesem Kapitel soll die theoretische Beschreibung der exzitonischen Übergangsamplitude $P^{eh}_{\boldsymbol{k}} = \langle e^{\dagger}_{\boldsymbol{k}} h^{\dagger}_{-\boldsymbol{k}} \rangle$, welche eine Wahrscheinlichkeitsamplitude für einen Ein-Teilchen Interband-Übergang ist, erweitert werden. Der Ansatzpunkt für diese Erweiterung ist die durch die Coulomb-Wechselwirkung entstandene unendliche Hierarchie an Bewegungsgleichungen (vgl. Erläuterungen zu Abbildung 2.1 in Abschnitt 2.1). Es gibt verschiedene Möglichkeiten, diese unendliche Hierarchie über Hartree-Fock-Niveau hinaus abzubrechen. Eine davon ist bei der Hartree-Fock-Näherung für einen über diese Näherung hinaus gehenden korrelierten Rest eine Bewegungsgleichung aufzustellen. Die in diesen Gleichungen vorkommenden 6er EW werden in 2er EW faktorisiert und die verbleibende Bewegungsgleichung für 4er EW wird dann in Markov-Näherung gelöst [43]. Jedoch orientiert sich diese Methode nicht an expe-

rimentell einstellbaren Parametern. Um einen Vergleich von theoretischen und experimentellen Ergebnissen herstellen zu können, wird in dieser Arbeit ein anderer Weg eingeschlagen. Dieser orientiert sich daran, daß es nach [29, 30] möglich ist, die nichtlineare optische Antwort eines Halbleiters nach Ordnungen des optisch anregenden Lichtfeldes zu entwickeln. Die Intensität des anregenden optischen Lichtfeldes ist dann über die Intensität des den Halbleiter anregenden Lasers eine dem Experiment zugängliche Größe. Diese sogenannte DCT-Theorie (engl.: dynamics-controlled truncation) berücksichtigt alle Terme der unendlichen Hierarchie bis zu einer bestimmten Ordnung im optischen Feld.

Alle nötigen dynamischen Informationen sind in den Erwartungswerten der in Normalordnung stehenden Operatorprodukte

$$\langle\{N,M\}\rangle \equiv \langle a^\dagger(\alpha_N)a^\dagger(\alpha_{N-1})\cdots a^\dagger(\alpha_1)a(\beta_1)\cdots a(\beta_M)\rangle \tag{3.1}$$

enthalten. Der Index α (β) ist eine abkürzende Schreibweise und enthält den Bandindex, die z-Komponente des Gesamtdrehimpulses und den Impuls $\boldsymbol{k}$. Nach [29–31] lassen sich die Erwartungswerte der unendlichen Hierarchie nach Ordnungen im optischen Feld klassifizieren. Dabei muß unterschieden werden, ob die Anzahl der Erzeuger N und die Anzahl der Vernichter M gerade

$$\langle a^\dagger(\alpha_{2N})\cdots a^\dagger(\alpha_1)a(\beta_1)\cdots a(\beta_{2M})\rangle = O(E^{N+M}) \tag{3.2}$$

oder ungerade

$$\langle a^\dagger(\alpha_{2N+1})\cdots a^\dagger(\alpha_1)a(\beta_1)\cdots a(\beta_{2M+1})\rangle = O(E^{N+M+2}) \tag{3.3}$$

ist. Der Beweis hierfür steht in [31, Anhang A]. Die Anzahl der benötigten Gleichungen, um z.B. die exzitonische Übergangsamplitude in $\chi^{(n)}$ zu beschreiben, kann weiter reduziert werden, wenn der Halbleiter sich vor der Anregung mit dem optischen Lichtfeld im Grundzustand befindet. Wie ebenfalls in [31, Anhang A] gezeigt, läßt sich der Erwartungswert $\langle\{N,M\}\rangle$ in seiner minimalen Ordnung im Feld faktorisieren:

$$\begin{aligned}&\langle a^\dagger(\alpha_{2N})\cdots a^\dagger(\alpha_1)a(\beta_1)\cdots a(\beta_{2M})\rangle \\ &= \langle a^\dagger(\alpha_{2N})\cdots a^\dagger(\alpha_1)\rangle\ \langle a(\beta_1)\cdots a(\beta_{2M})\rangle + O(E^{N+M+2})\end{aligned} \tag{3.4}$$

und

$$\begin{aligned}&\langle a^\dagger(\alpha_{2N+1})\cdots a^\dagger(\alpha_1)a(\beta_1)\cdots a(\beta_{2M+1})\rangle \\ &= \sum_{\delta_1}\langle a^\dagger(\alpha_{2N+1})\cdots a^\dagger(\alpha_1)a^\dagger(\delta_1)\rangle\ \langle a(\delta_1)a(\beta_1)\cdots a(\beta_{2M+1})\rangle + O(E^{N+M+4}).\end{aligned} \tag{3.5}$$

Diese Faktorisierung kann natürlich auch über diese minimale Ordnung hinaus geführt werden [39, Kapitel 9.1.1], was aber bei Betrachtungen bis zur dritten Ordnung im optischen Feld nicht notwendig ist.

Eine weitere wichtige Eigenschaft ist, daß das externe Feld die Operatoren $\{N, M\}$ nur an die Operatoren $\{N-1, M+1\}$, $\{N+1, M-1\}$, $\{N-2, M\}$ und $\{N, M-2\}$ koppelt und das Coulomb-Potential die Operatoren $\{N, M\}$ nur an die Operatoren $\{N, M\}$ und $\{N+1, M+1\}$ koppelt [29, 31]. Damit werden im $\chi^{(3)}$-Regime nach den Gleichungen (3.2) und (3.3) die in Tabelle 3.1 zusammengestellten Erwartungswerte benötigt. Die Elektron- und Loch-Operatoren treten, ggf. nach einer Faktorisierung, immer paarweise auf.

Erwartungswert	physikalische Größe
$\langle\{1,1\}\rangle$	Elektron- bzw. Lochbesetzung
$\langle\{2,2\}\rangle$	exzitonische Besetzung, Dichte-Dichte-Korrelation
$\langle\{2,0\}\rangle$, $\langle\{0,2\}\rangle$	exzitonische Übergangsamplitude
$\langle\{4,0\}\rangle$, $\langle\{0,4\}\rangle$	biexzitonische Übergangsamplitude
$\langle\{6,0\}\rangle$, $\langle\{0,6\}\rangle$	triexzitonische Übergangsamplitude
$\langle\{3,1\}\rangle$, $\langle\{1,3\}\rangle$	elektronen- bzw. löcherassistierter Übergang
$\langle\{4,2\}\rangle$, $\langle\{2,4\}\rangle$	Exziton-Biexziton-Übergang

Tabelle 3.1.: Erwartungswerte in $\chi^{(3)}$.

Die Ladungsträgerdynamik ergibt sich in $\chi^{(3)}$ allein aus den in Tabelle 3.1 aufgeführten Erwartungswerten der exzitonischen und biexzitonischen Übergangsamplitude. Dies ist zu verstehen, wenn man die verbleibenden Erwartungswerte genauer betrachtet. Die Elektronen- (Loch-) Besetzung und die löcher- bzw. elektronenassistierten Übergänge lassen sich mit Gleichung (3.5) auf ein Produkt von exzitonischen Übergangsamplituden zurückführen:

$$\langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}} e'_{\boldsymbol{k}}\rangle = \sum_h \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}} h^\dagger_{-\boldsymbol{k}}\rangle\langle h_{-\boldsymbol{k}} e'_{\boldsymbol{k}}\rangle = \sum_h P^{eh}_{\boldsymbol{k}} (P^{e'h}_{\boldsymbol{k}})^* \tag{3.6}$$

bzw.

$$\langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}} h'^\dagger_{\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} h^\dagger_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}} h'_{\boldsymbol{k}'}\rangle = \sum_{e\boldsymbol{k}''} \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}} h'^\dagger_{\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} h^\dagger_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}} e'^\dagger_{\boldsymbol{k}''}\rangle\langle e'_{\boldsymbol{k}''} h'_{\boldsymbol{k}'}\rangle + O(E^5). \tag{3.7}$$

Die exzitonische Besetzung

$$\langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}} h^\dagger_{\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}} h_{\boldsymbol{k}'} e_{\boldsymbol{k}}\rangle \tag{3.8}$$

und die Dichte-Dichte-Korrelation des Leitungsbandes

$$\langle e'^\dagger_{\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} e^\dagger_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}} e'_{\boldsymbol{k}'} e_{\boldsymbol{k}}\rangle \tag{3.9}$$

stehen als Inhomogenitäten in der Bewegungsgleichung für die elektronische Besetzung (2.62). Da die elektronische Besetzung in Gleichung (3.6) faktorisiert wurde,

brauchen die vier Operatoren enthaltenden Erwartungswerte (3.8) und (3.9) in $\chi^{(3)}$ nicht weiter betrachtet zu werden. Entsprechendes gilt natürlich auch für die Bewegungsgleichung der Löcherbesetzung, in der die exzitonische Besetzung und die Dichte-Dichte-Korrelation des Valenzbandes als Inhomogenitäten vorhanden sind. Die triexzitonische Übergangsamplitude und der nach Gleichung (3.4) faktorisierte Exziton-Biexziton-Übergang

$$\langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}_1} h^\dagger_{\boldsymbol{k}_2} e^\dagger_{\boldsymbol{k}_3} h'^\dagger_{\boldsymbol{k}_i} h'_{\boldsymbol{k}_i} e_{\boldsymbol{k}_4}\rangle = \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}_1} h^\dagger_{\boldsymbol{k}_2} e^\dagger_{\boldsymbol{k}_3} h'^\dagger_{\boldsymbol{k}_i}\rangle\langle h'_{\boldsymbol{k}_i} e_{\boldsymbol{k}_4}\rangle + O(E^5) \tag{3.10}$$

koppeln von der biexzitonischen Übergangsamplitude an die exzitonische Übergangsamplitude in einer höheren als der dritten Ordnung im optischen Feld zurück und sind daher in $\chi^{(3)}$ zu vernachlässigen.

Eine weitere Systematisierung der DCT-Theorie findet sich in Referenz [44], in der die verschiedenen physikalischen Größen aus Tabelle 3.1 in eine drei-dimensionale Grafik eingetragen werden, welche von der maximalen Anzahl der Elektron- oder Lochoperatoren, der Anzahl effektiv erzeugter Ladungsträger und der Anzahl von Erzeuger-Vernichter-Paaren eines Ladungsträgertyps abhängen.

3.2. Biexzitonische Nichtlinearitäten

Bei der Berücksichtigung von kohärenten optischen Nichtlinearitäten bis zur dritten Ordnung im optischen Feld $\boldsymbol{E}$ werden die 4er EW in der Bewegungsgleichung der exzitonischen Übergangsamplitude $P^{eh}_{\boldsymbol{k}}$ (2.61) durch das $\chi^{(3)}$-Entkopplungsschema ersetzt (vgl. Gleichungen (3.5) und (3.7)). Daher stehen in der Bewegungsgleichung der exzitonischen Übergangsamplitude auch biexzitonische Übergangsamplituden

$$b^{eh'e'h}_{\boldsymbol{k}_1\boldsymbol{k}_2\boldsymbol{k}_3\boldsymbol{k}_4} = \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}_1} h'^\dagger_{-\boldsymbol{k}_2} e'^\dagger_{\boldsymbol{k}_3} h^\dagger_{-\boldsymbol{k}_4}\rangle. \tag{3.11}$$

Damit in der Bewegungsgleichung der exzitonischen Übergangsamplitude die Hartree-Fock-Beiträge explizit weiter auftreten, wird die biexzitonische Korrelationsfunktion

$$\begin{aligned} B^{eh'e'h}_{\boldsymbol{k}_1\boldsymbol{k}_2\boldsymbol{k}_3\boldsymbol{k}_4} =& \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}_1} h'^\dagger_{-\boldsymbol{k}_2} e'^\dagger_{\boldsymbol{k}_3} h^\dagger_{-\boldsymbol{k}_4}\rangle \\ & - \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}_1} h'^\dagger_{-\boldsymbol{k}_2}\rangle\langle e'^\dagger_{\boldsymbol{k}_3} h^\dagger_{-\boldsymbol{k}_4}\rangle\delta_{\boldsymbol{k}_1\boldsymbol{k}_2}\delta_{\boldsymbol{k}_3\boldsymbol{k}_4} + \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}_1} h^\dagger_{-\boldsymbol{k}_4}\rangle\langle e'^\dagger_{\boldsymbol{k}_3} h'^\dagger_{-\boldsymbol{k}_2}\rangle\delta_{\boldsymbol{k}_1\boldsymbol{k}_4}\delta_{\boldsymbol{k}_3\boldsymbol{k}_2} \\ =& b^{eh'e'h}_{\boldsymbol{k}_1\boldsymbol{k}_2\boldsymbol{k}_3\boldsymbol{k}_4} - P^{eh'}_{\boldsymbol{k}_1} P^{e'h}_{\boldsymbol{k}_3}\delta_{\boldsymbol{k}_1\boldsymbol{k}_2}\delta_{\boldsymbol{k}_3\boldsymbol{k}_4} + P^{eh}_{\boldsymbol{k}_1} P^{e'h'}_{\boldsymbol{k}_3}\delta_{\boldsymbol{k}_1\boldsymbol{k}_4}\delta_{\boldsymbol{k}_3\boldsymbol{k}_2}. \end{aligned} \tag{3.12}$$

eingeführt. Dabei wird $B^{eh'e'h}_{\boldsymbol{k}_1\boldsymbol{k}_2\boldsymbol{k}_3\boldsymbol{k}_4}$ als Wahrscheinlichkeitsamplitude für einen Zwei-Teilchen-Prozeß $b^{eh'e'h}_{\boldsymbol{k}_1\boldsymbol{k}_2\boldsymbol{k}_3\boldsymbol{k}_4}$ geschrieben von denen die Hartree-Fock-Terme abgezogen

werden. Anschließend werden die biexzitonischen Übergangsamplituden durch die biexzitonischen Korrelationsfunktionen und die Hartree-Fock-Terme ersetzt. Somit ist die Bewegungsgleichung für $P^{eh}_{\boldsymbol{k}}$ gegeben durch

$$\begin{aligned}
&\left(-i\hbar\frac{\partial}{\partial t}-\epsilon^{e}_{\boldsymbol{k}}-\epsilon^{h}_{\boldsymbol{k}}\right)P^{eh}_{\boldsymbol{k}}+\sum_{\boldsymbol{q}}V_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}}P^{eh}_{\boldsymbol{q}}=-\boldsymbol{d}^{he}\boldsymbol{E}\\
&+\sum_{e'}\boldsymbol{d}^{he'}\boldsymbol{E}\sum_{h'}P^{eh'}_{\boldsymbol{k}}P^{e'h'*}_{\boldsymbol{k}}+\sum_{h'}\boldsymbol{d}^{h'e}\boldsymbol{E}\sum_{e'}P^{e'h}_{\boldsymbol{k}}P^{e'h'*}_{\boldsymbol{k}}\\
&+\sum_{\boldsymbol{q}e'h'}V_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}}\,[\,P^{eh'}_{\boldsymbol{q}}(P^{e'h'}_{\boldsymbol{k}})^{*}P^{e'h}_{\boldsymbol{k}}+P^{eh'}_{\boldsymbol{k}}(P^{e'h'}_{\boldsymbol{k}})^{*}P^{e'h}_{\boldsymbol{q}}\\
&\qquad\qquad-P^{eh'}_{\boldsymbol{q}}(P^{e'h'}_{\boldsymbol{q}})^{*}P^{e'h}_{\boldsymbol{k}}-P^{eh'}_{\boldsymbol{k}}(P^{e'h'}_{\boldsymbol{q}})^{*}P^{e'h}_{\boldsymbol{q}}\,]\\
&+\sum_{\boldsymbol{k}'\boldsymbol{q}e'h'}V_{\boldsymbol{q}}\,(P^{e'h'}_{\boldsymbol{k}'})^{*}\,[\,B^{eh'e'h}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}}-B^{eh'e'h}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}}\\
&\qquad\qquad+B^{eh'e'h}_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}}-B^{eh'e'h}_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}}\,].
\end{aligned}\tag{3.13}$$

Eine alleinige Betrachtung der ersten Zeile von Gleichung (3.13) beschränkt die Beschreibung auf lineare optische Eigenschaften mittels der Wannier-Gleichung im Impulsraum. Dies ist eine Schrödingergleichung für die Relativbewegung eines Elektron-Loch-Paares, vgl. Gleichung (2.70) in Abschnitt 2.1. Hieraus läßt sich das lineare Exziton-Absorptionsspektrum berechnen. Die verbleibenden Terme in Gleichung (3.13) beschreiben zusammen mit einer für die biexzitonischen Korrelationsfunktion einzuführenden Bewegungsgleichung die folgenden Nichtlinearitäten. Die zweite Zeile beschreibt das Phasenraumfüllen im kohärentem Limes mit $\sum_{h} P^{eh}_{\boldsymbol{k}}(P^{e'h}_{\boldsymbol{k}})^{*}=f^{ee'}_{\boldsymbol{k}}$ und $\sum_{e'} P^{e'h}_{\boldsymbol{k}}(P^{e'h'}_{\boldsymbol{k}})^{*}=f^{h'h}_{\boldsymbol{k}}$. Dies ist äquivalent zu den Halbleiter-Bloch-Gleichungen, wenn diese in dritter Ordnung im optischen Feld gelöst werden, wo die Rabi Energie $\boldsymbol{dE}$ um $\boldsymbol{dE}(f^{ee'}_{\boldsymbol{k}}+f^{h'h}_{\boldsymbol{k}})$ reduziert ist. Die nächsten zwei Zeilen zeigen die optischen Nichtlinearitäten durch Coulomb-Austausch Beiträge, die sich aufgrund der wiederum in $\chi^{(3)}$ ausgewerteten HF-Terme in Gleichung (3.12) ergeben und die letzten beiden Zeilen sind Nichtlinearitäten, die über HF hinaus gehen.

Diese Beiträge werden durch die biexzitonische Korrelationsfunktion bestimmt, welche einer eigenen Bewegungsgleichung genügt. Die Herleitung hierfür beginnt mit der Berechnung der Zeitableitung von B und läßt sich mit Hilfe der Produktregel

schreiben als

$$
\begin{aligned}
i\hbar\frac{d}{dt}B^{eh'e'h}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}} &= i\hbar\frac{d}{dt}\Big[\langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}h'^\dagger_{-\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}}e'^\dagger_{\boldsymbol{k}'}h^\dagger_{-\boldsymbol{k}}\rangle \\
&- \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}h'^\dagger_{-\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}}\rangle\langle e'^\dagger_{\boldsymbol{k}'}h^\dagger_{-\boldsymbol{k}}\rangle\delta_{\boldsymbol{k}\boldsymbol{k}'} + \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}h^\dagger_{-\boldsymbol{k}}\rangle\langle e'^\dagger_{\boldsymbol{k}'}h'^\dagger_{-\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}}\rangle\delta_{\boldsymbol{q},\boldsymbol{0}}\Big] \\
&= i\hbar\Big[\langle \dot{e}^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}h'^\dagger_{-\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}}e'^\dagger_{\boldsymbol{k}'}h^\dagger_{-\boldsymbol{k}}\rangle + \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}\dot{h}'^\dagger_{-\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}}e'^\dagger_{\boldsymbol{k}'}h^\dagger_{-\boldsymbol{k}}\rangle \\
&+ \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}h'^\dagger_{-\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}}\dot{e}'^\dagger_{\boldsymbol{k}'}h^\dagger_{-\boldsymbol{k}}\rangle + \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}h'^\dagger_{-\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}}e'^\dagger_{\boldsymbol{k}'}\dot{h}^\dagger_{-\boldsymbol{k}}\rangle \\
&- \langle \dot{e}^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}h'^\dagger_{-\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}}\rangle\langle e'^\dagger_{\boldsymbol{k}'}h^\dagger_{-\boldsymbol{k}}\rangle\delta_{\boldsymbol{k}\boldsymbol{k}'} - \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}\dot{h}'^\dagger_{-\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}}\rangle\langle e'^\dagger_{\boldsymbol{k}'}h^\dagger_{-\boldsymbol{k}}\rangle\delta_{\boldsymbol{k}\boldsymbol{k}'} \\
&- \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}h'^\dagger_{-\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}}\rangle\langle \dot{e}'^\dagger_{\boldsymbol{k}'}h^\dagger_{-\boldsymbol{k}}\rangle\delta_{\boldsymbol{k}\boldsymbol{k}'} - \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}h'^\dagger_{-\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}}\rangle\langle e'^\dagger_{\boldsymbol{k}'}\dot{h}^\dagger_{-\boldsymbol{k}}\rangle\delta_{\boldsymbol{k}\boldsymbol{k}'} \\
&+ \langle \dot{e}^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}h^\dagger_{-\boldsymbol{k}}\rangle\langle e'^\dagger_{\boldsymbol{k}'}h'^\dagger_{-\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}}\rangle\delta_{\boldsymbol{q},\boldsymbol{0}} + \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}\dot{h}^\dagger_{-\boldsymbol{k}}\rangle\langle e'^\dagger_{\boldsymbol{k}'}h'^\dagger_{-\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}}\rangle\delta_{\boldsymbol{q},\boldsymbol{0}} \\
&+ \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}h^\dagger_{-\boldsymbol{k}}\rangle\langle \dot{e}'^\dagger_{\boldsymbol{k}'}h'^\dagger_{-\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}}\rangle\delta_{\boldsymbol{q},\boldsymbol{0}} + \langle e^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}h^\dagger_{-\boldsymbol{k}}\rangle\langle e'^\dagger_{\boldsymbol{k}'}\dot{h}'^\dagger_{-\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}}\rangle\delta_{\boldsymbol{q},\boldsymbol{0}}\Big].
\end{aligned}
\tag{3.14}
$$

Die Zeitableitungen der Erzeuger für die Elektronen bzw. Löcher werden durch Gleichung (2.58) bzw. (2.60) substituiert. Man betrachtet nun einzeln die Beiträge zu B, die aus den einzelnen Anteilen des Hamiltonoperators Gleichung (2.47) - (2.49) stammen. Daraus folgt für den kinetischen Anteil:

$$
i\hbar\frac{d}{dt}B^{eh'e'h}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}}\Big|_{\text{kin}} = -\left(\epsilon^e_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}} + \epsilon^{h'}_{\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} + \epsilon^{e'}_{\boldsymbol{k}'} + \epsilon^h_{\boldsymbol{k}}\right)B^{eh'e'h}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}} \tag{3.15}
$$

Der Anteil durch die Dipolwechselwirkung liefert keinen Beitrag, da sich dieser heraushebt, während in dem Anteil der Coulomb-Wechselwirkung 6er EW stehen. Diese werden zunächst in Normalordnung gebracht. Wie im vorigen Kapitel erwähnt, kann der Exziton-Biexziton-Übergang vernachlässigt werden, da dieser in Gleichung (3.13) zu Termen von mindestens vierter Ordnung im optischen Feld führen würde. Mit den drei Anteilen für B folgt die Bewegungsgleichung der biexzitonischen Korrelationsfunktion:

$$
\begin{aligned}
&\left(-i\hbar\frac{\partial}{\partial t} - \epsilon^e_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}} - \epsilon^{h'}_{\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} - \epsilon^{e'}_{\boldsymbol{k}'} - \epsilon^h_{\boldsymbol{k}}\right)B^{eh'e'h}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}} \\
&- \sum_{\boldsymbol{q}'}V_{\boldsymbol{q}'}\Big[B^{eh'e'h}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}',\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}',\boldsymbol{k}} + B^{eh'e'h}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}-\boldsymbol{q}',\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}'} \\
&\qquad - B^{eh'e'h}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}',\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}',\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}} - B^{eh'e'h}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}',\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}'} \\
&\qquad - B^{eh'e'h}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}',\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}'} - B^{eh'e'h}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}-\boldsymbol{q}',\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}',\boldsymbol{k}}\Big] \\
&= -V_{\boldsymbol{q}}\left(P^{eh}_{\boldsymbol{k}} - P^{eh}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}\right)\left(P^{e'h'}_{\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} - P^{e'h'}_{\boldsymbol{k}'}\right) + V_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{k}'}\left(P^{eh'}_{\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} - P^{eh'}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}}\right)\left(P^{e'h}_{\boldsymbol{k}} - P^{e'h}_{\boldsymbol{k}'}\right).
\end{aligned}
\tag{3.16}
$$

Diese Gleichung enthält 6 Coulomb-Terme (Zeile 2-4), um alle möglichen Elektron-Elektron-, Loch-Loch- und Elektron-Loch-Wechselwirkungen korrelierter Zwei-Elektronen-Zwei-Löcher-Zustände zu beschreiben. Die letzte Zeile ist der inhomogene Quellterm, welcher die biexzitonische Korrelationsfunktion treibt und nur von der exzitonischen Übergangsamplitude abhängt. Insgesamt stellen die Gleichungen (3.13) und (3.16) ein gekoppeltes aber geschlossenes Bewegungsgleichungssystem dar.

Zur Veranschaulichung der biexzitonischen Korrelationsfunktion wird hierfür eine Fouriertransformation vom Impulsraum in den Ortsraum vorgenommen.

$$\begin{aligned} i\hbar\frac{d}{dt}B^{eh'e'h}_{\boldsymbol{r}_1\boldsymbol{r}_2\boldsymbol{r}_3\boldsymbol{r}_4} &= \left(\frac{\hbar^2}{2m_e}\Delta_{\boldsymbol{r}_1}+\frac{\hbar^2}{2m_{h'}}\Delta_{\boldsymbol{r}_2}+\frac{\hbar^2}{2m_{e'}}\Delta_{\boldsymbol{r}_3}+\frac{\hbar^2}{2m_h}\Delta_{\boldsymbol{r}_4}\right)B^{eh'e'h}_{\boldsymbol{r}_1\boldsymbol{r}_2\boldsymbol{r}_3\boldsymbol{r}_4} \\ &\quad + \left(V_{\boldsymbol{r}_1-\boldsymbol{r}_4}+V_{\boldsymbol{r}_2-\boldsymbol{r}_3}+V_{\boldsymbol{r}_1-\boldsymbol{r}_2}+V_{\boldsymbol{r}_3-\boldsymbol{r}_4}-V_{\boldsymbol{r}_2-\boldsymbol{r}_4}-V_{\boldsymbol{r}_1-\boldsymbol{r}_3}\right)B^{eh'e'h}_{\boldsymbol{r}_1\boldsymbol{r}_2\boldsymbol{r}_3\boldsymbol{r}_4} \\ &\quad - \int d^2r\, V_{\boldsymbol{r}}\left[(\Psi^{eh}_{\boldsymbol{r}_4}-\Psi^{eh}_{\boldsymbol{r}_1})(\Psi^{e'h'}_{\boldsymbol{r}_2-\boldsymbol{r}}-\Psi^{e'h'}_{\boldsymbol{r}_3+\boldsymbol{r}})+(\Psi^{eh'}_{\boldsymbol{r}_2}-\Psi^{eh'}_{\boldsymbol{r}_1})(\Psi^{e'h}_{\boldsymbol{r}_4-\boldsymbol{r}}-\Psi^{e'h}_{\boldsymbol{r}_3+\boldsymbol{r}})\right] \end{aligned} \tag{3.17}$$

Die Bewegungsgleichung der biexzitonischen Korrelationsfunktion enthält die kinetischen Energien der zwei Elektronen und zwei Löcher. $\frac{\hbar^2}{2m_e}\Delta_{\boldsymbol{r}_1}$ beschreibt den Operator der kinetischen Energie des Elektrons mit Spin e am Ort $\boldsymbol{r}_1$. Die 6 verschiedenen Möglichkeiten der Coulomb-Wechselwirkung der Teilchen miteinander, die durch die zweite Zeile von Gleichung (3.17) beschrieben werden, sind in Abbildung 3.1 anschaulich dargestellt.

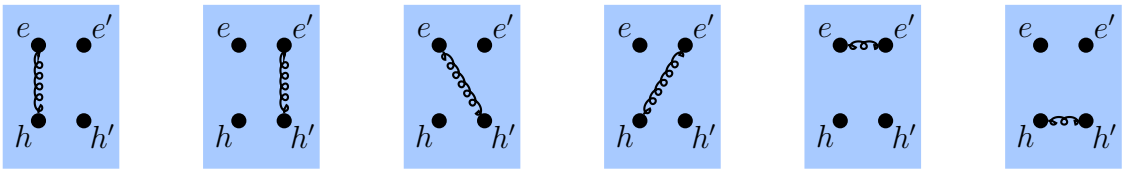

Abbildung 3.1.: Skizze zur Veranschaulichung der möglichen Wechselwirkungen zwischen den Elektronen und Löchern beim Biexziton.

Gleichung (3.17) beschreibt ein quantenmechanisches Vier-Teilchen-Problem, wie es in der Form eines Wasserstoffmoleküls auch schon aus der Molekülphysik als Heitler-London-Problem [45] bekannt ist. Man spricht im Zusammenhang mit einem Halbleiter deshalb auch von einer verallgemeinerten Heitler-London-Gleichung.

Erweiterungsmöglichkeiten und Grenzen des Modells

Es gibt zwei wesentliche Möglichkeiten, das hier vorgestellte Modell zu erweitern. Zum einen können in den Hamiltonoperator noch mehr Wechselwirkungen aufgenommen

werden und zum anderen kann die unendliche Hierarchie der Bewegungsgleichungen unter anderen Gesichtspunkten abgebrochen werden.

Eine Möglichkeit, den Hamiltonoperator zu erweitern, besteht darin, den Einfluß von Magnetfeldern mit zu berücksichtigen [46, 47]. Dies ist jedoch für die Untersuchungen in dieser Arbeit nicht von Interesse.

In dieser Arbeit sind die Bewegungsgleichungen in $\chi^{(3)}$ abgeleitet worden, da die Auswertung der $\chi^{(5)}$-Terme im Quantenfilm die derzeitigen Möglichkeiten von Supercomputern übersteigt. In der Literatur finden sich Lösungen der $\chi^{(5)}$-Entwicklungen im Rahmen z.B. eines ein-dimensionalen Tight-Binding-Modells [48].

Die DCT-Theorie ist im kohärenten Regime eine gut geeignete Theorie, um in einem Theorie-Experiment-Vergleich z.B. die Transmission eines optischen Feldes durch einen Quantenfilm zu bestimmen (vgl. Abschnitt 4). Aber genau dort liegt auch der Schwachpunkt der Theorie, denn sie enthält keinen Übergang vom kohärenten Regime in das inkohärente Regime. Dieses Defizit läßt sich nicht beheben, da nicht bekannt ist, wie man inkohärente Prozesse mit in die Theorie aufnehmen kann. Aus diesem Grund wird eine alternative Herleitung der Bewegungsgleichungen der exzitonischen Übergangsamplitude und der biexzitonischen Korrelationsfunktion mit Hilfe von Greenschen Funktionen in Abschnitt 3.3 vorgestellt, für welche die Berücksichtigung inkohärenter Prozesse bekannt ist [49–51]. Es ist nicht die Aufgabe dieser Arbeit, die inkohärenten Prozesse in die Theorie mit einzubauen, denn dies würde den zeitlichen Rahmen sprengen. Die alternative Herleitung im anschließenden Abschnitt 3.3 bietet jedoch den Ausgangspunkt dafür.

3.3. Greensche Funktionen im Nichtgleichgewicht

In diesem Abschnitt wird eine alternative Herleitung der Bewegungsgleichungen (3.13) und (3.16) mit Hilfe der Feynman-Diagrammtechnik vorgestellt. Die zur Herleitung verwendeten Greenschen Funktionen sind zur Beschreibung von Vielteilchensystemen sehr verbreitet. Auch mit dieser Technik kann man wie in der DCT-Theorie die Beiträge zur Polarisation auf Prozesse bis zu einer bestimmten Ordnung im optischen Feld beschränken. Darüber hinaus bieten die Greenschen Funktionen jedoch ein großes Potential für Erweiterungsmöglichkeiten. Insbesondere die mikroskopische Beschreibung inkohärenter Prozesse ist damit möglich [49–51].

Ausgangspunkt für die Herleitung ist eine allgemeine quantenstatistische Beschreibung von wechselwirkenden Vielteilchensystemen. Es werden zur Beschreibung dy-

namischer Prozesse die Greenschen Funktionen (GF) als verallgemeinerte Dichtematrizen eingeführt, wobei die Verallgemeinerung darin besteht, daß die Greenschen Funktionen zweizeitige Erwartungswerte sind, deren Operatoren einer Zeitordnung genügen.

Es wird ein mit der DCT-Theorie übereinstimmendes Resultat erzielt, in dem wieder die volle Störungsreihe in der Coulomb-Wechselwirkung systematisch bis zu einer gegebenen Ordnung im optischen Feld (dritte Ordnung in diesem Fall) enthalten ist. Die grundlegenden Annahmen bzw. physikalischen Eigenschaften dafür sind:

1. Das zu betrachtende System befindet sich vor der Anregung mit dem optischen Lichtfeld im Grundzustand, d.h. das Valenzband ist voll gefüllt und das Leitungsband ist leer.

2. Die Coulomb-Wechselwirkung ist instantan.

3. Die Coulomb-Wechselwirkung erhält die Teilchenzahl separat für jedes einzelne Band.

Der betrachtete Hamiltonoperator (2.3) setzt sich aus einem wechselwirkungsfreien Anteil H_0 und einem wechselwirkenden Anteil $H_{\mathrm{WW}} = H_L + H_{\mathrm{Coul}}$ zusammen:

$$\begin{aligned} H &= H_0 + H_{\mathrm{WW}} = H_0 + H_L + H_{\mathrm{Coul}} \\ &= \sum_{\boldsymbol{k}\lambda s} \epsilon^{\lambda}_{\boldsymbol{k}} a^{\dagger}_{\boldsymbol{k}\lambda s} a_{\boldsymbol{k}\lambda s} + \sum_{\boldsymbol{k}s} \left[\chi_{cv}(t) a^{\dagger}_{\boldsymbol{k}cs} a_{\boldsymbol{k}vs} + \chi_{vc}(t) a^{\dagger}_{\boldsymbol{k}vs} a_{\boldsymbol{k}cs} \right] \\ &+ \frac{1}{2V} \sum_{ss'} \sum_{\lambda\lambda'} \sum_{\boldsymbol{k}\boldsymbol{k}'\boldsymbol{q}} a^{\dagger}_{\lambda,\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},s}(t) a^{\dagger}_{\lambda',\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q},s'}(t) a_{\lambda'\boldsymbol{k}'s'}(t) a_{\lambda\boldsymbol{k}s}(t) V_{\boldsymbol{q}}, \end{aligned} \tag{3.18}$$

mit der freien Rabi-Energie $\chi_{cv}(t) = -\boldsymbol{d}^{cv}\boldsymbol{E}(t)$ und der entsprechend komplex konjugierten Größe $\chi_{vc}(t) = -\boldsymbol{d}^{vc}\boldsymbol{E}(t)$.

Die Greensche Funktion ist definiert als

$$G(1,1') = \frac{1}{i\hbar} \langle T[a_H(1) a^{\dagger}_H(1')] \rangle \tag{3.19}$$

mit den Argumenten $1 = \{\boldsymbol{k}_1, \lambda_1, s_1, t_1\}$, dem Zeitordnungsoperator T und dem Heisenberg-Operator zur Erzeugung von Elektronen $a^{\dagger}_H(1')$ bzw. Vernichtung von Elektronen $a_H(1)$. Letztere schreiben sich in der Wechselwirkungsdarstellung (Dirac-Darstellung)

$$a_H(t) = S(t_0, t) a_D(t) S(t, t_0), \tag{3.20}$$

wobei t_0 die Zeit ist, zu der sich das System im Vielteilchen-Grundzustand $|\Phi(t_0)\rangle$ befindet, $a_D(t)$ ein Operator im Dirac-Bild ist und der Zeitentwicklungsoperator S

durch

$$S(t,t_0) = Te^{-\frac{i}{\hbar}\int_{t_0}^{t} d\tau H^D_{\mathrm{WW}}(\tau)} \tag{3.21}$$

gegeben ist. Der Wechselwirkungshamiltonoperator in der Wechselwirkungsdarstellung ist durch

$$H^D_{\mathrm{WW}}(t) = e^{\frac{i}{\hbar}H_0(t-t_0)} H_{\mathrm{WW}} e^{-\frac{i}{\hbar}H_0(t-t_0)} \tag{3.22}$$

gegeben. Mit (3.20) folgt aus (3.19):

$$\begin{aligned}
G(1,1') &= \frac{1}{i\hbar}\langle T[a_H(1)a_H^\dagger(1')]\rangle \\
&= \frac{1}{i\hbar}\begin{cases} \langle a_H(1)a_H^\dagger(1')\rangle & t_1 > t_1' \\ -\langle a_H^\dagger(1')a_H(1)\rangle & t_1' > t_1 \end{cases} \\
&= \frac{1}{i\hbar}\begin{cases} \langle S(t_0,t_1)a_D(1)S(t_1,t_0)S(t_0,t_1')a_D^\dagger(1')S(t_1',t_0)\rangle & t_1 > t_1' \\ -\langle S(t_0,t_1')a_D^\dagger(1')S(t_1',t_0)S(t_0,t_1)a_D(1)S(t_1.t_0)\rangle & t_1' > t_1 \end{cases} \\
&= \frac{1}{i\hbar}\begin{cases} \langle S(t_0,\infty)S(\infty,t_1)a_D(1)S(t_1,t_0)S(t_0,t_1')a_D^\dagger(1')S(t_1',t_0)\rangle & t_1 > t_1' \\ -\langle S(t_0,\infty)S(\infty,t_1')a_D^\dagger(1')S(t_1',t_0)S(t_0,t_1)a_D(1)S(t_1.t_0)\rangle & t_1' > t_1. \end{cases}
\end{aligned} \tag{3.23}$$

Im Folgenden wird der Index D für das Dirac-Bild weggelassen. Weiterhin läßt sich das Ergebnis mit $t_0 \to -\infty$ und dem Zeitordnungsoperator zusammenfassen:

$$G(1,1') = \frac{1}{i\hbar}\langle S(-\infty,\infty)T[S(\infty,-\infty)a(1)a^\dagger(1')]\rangle. \tag{3.24}$$

In dieser Gleichung ist $S(\infty,-\infty)$ zeitgeordnet und $S(-\infty,\infty)$ antizeitgeordnet. In der Grundzustandstheorie ($T = 0$) wird das adiabatische Theorem von Gell-Mann und Low [52] benutzt, um den Erwartungswert in Gleichung (3.24) umzuschreiben auf

$$G(1,1') = \frac{1}{i\hbar}\langle S(-\infty,\infty)\rangle\langle T[S(\infty,-\infty)a(1)a^\dagger(1')]\rangle. \tag{3.25}$$

Keldysh-Technik

In Anwesenheit einer nichtadiabatischen (schnell veränderlichen) Störung ist die Aufspaltung nach Gleichung (3.25) nicht mehr möglich. Deswegen hat man im gleichen Erwartungswert eine Anordnung von Operatoren, die in ihren Zeitargumenten von rechts nach links von $-\infty$ nach ∞ zunimmt und dann zurückgeht von ∞ nach $-\infty$. Um weiterhin eine einheitliche Zeitordnung zu erhalten wird ein einheitliches Ordnungsprinzip, die Keldysh-Kontur Ordnung, eingeführt.

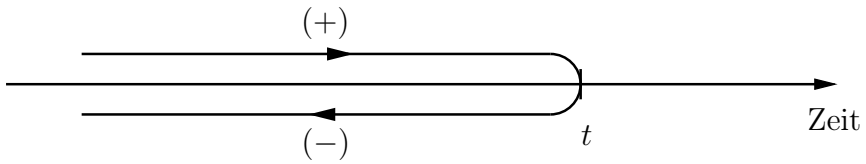

Abbildung 3.2.: Keldysh Zeitkontur.

Die Zeitordnung der Operatoren in Gleichung (3.24) hängt davon ab, ob sie in $S(\infty, -\infty)$ oder in $S(-\infty, \infty)$ enthalten sind. Um diesen Unterschied im Auge zu behalten, wird ein zusätzlicher Index an die Zeitargumente geschrieben - der sogenannte Zweig-Index. Die Zeiten, die zu den in $S(\infty, -\infty)$ enthaltenen Operatoren gehören, sind als leicht über der Zeitachse liegend anschaulich dargestellt. Sie werden dem oberen Zweig der Keldysh-Kontur zugeordnet und mit dem Zweig-Index $(+)$ bezeichnet. Die Zeiten der in $S(-\infty, \infty)$ enthaltenen Operatoren sind als leicht unterhalb der Zeitachse liegend dargestellt. Diese gehören zum unteren Zweig und werden mit dem Zweig-Index $(-)$ bezeichnet (vgl. Abbildung 3.2).

Wenn man die Zeitordnung der Gleichung (3.24) explizit aufschreibt, dann folgen die Zeitargumente von rechts nach links gelesen dem auf der Kontur dargestellten Pfeil. Dies ist die zunehmende Anordnung der Zeiten im Keldyshen Sinne. Zeiten auf dem oberen Zweig nehmen von links nach rechts zu und Zeiten auf dem unteren Zweig nehmen von rechts nach links zu. Jede beliebige Zeit auf dem oberen Zweig ist kleiner als jede beliebige Zeit auf dem unteren Zweig.

Die anschauliche Darstellung der Zweige als leicht oberhalb oder unterhalb der Zeitachse liegend ist nicht so zu verstehen, daß die Zeitargumente um einen kleinen Imaginärteil erweitert werden müßten. Dies ist eine einfache Methode, um eine reelle physikalische Zeit als Argument der in $S(\infty, -\infty)$ oder $S(-\infty, \infty)$ enthaltenen Operatoren erscheinen zu lassen. Die Keldysh-Zeiten sind also nur für die Anordnung der Operatoren im Erwartungswert von Gleichung (3.24) wichtig. Bezeichnet man mit T_C den Kontur-Zeit-Ordnungs-Operator, so ist die Nichtgleichgewichts-GF definiert als

$$G(1, 1') = \frac{1}{i\hbar}\langle T_C[a(1)a^\dagger(1')]\rangle \tag{3.26}$$

mit den Argumenten $1, 1'$, die jetzt zusätzlich den Zweig-Index enthalten. In [53] ist gezeigt, daß die Feynman-Diagramm-Technik wie in der Gleichgewichtstheorie aus Gleichung (3.26) folgt, mit dem einzigen Unterschied, daß die Integrationen über gewöhnliche Zeiten durch Integrationen über die Keldysh-Zeiten ersetzt werden müssen. Alle vorkommenden Zeiten sind Zeiten auf der Keldysh-Kontur (vgl. Abbildung 3.2) und die Zeitordnung entspricht der Anordnung auf der Keldysh-Kontur.

Damit die Notation übersichtlicher wird kennzeichnen im Folgenden c und v nicht nur den Bandindex, sondern auch die z-Komponente des Gesamtdrehimpulses[1].

Wir sind an der exzitonischen Übergangsamplitude

$$P_{\boldsymbol{k}}^{cv*} = \langle v_{\boldsymbol{k}}^{\dagger}(t) c_{\boldsymbol{k}}(t) \rangle \tag{3.27}$$

interessiert, die mit dem Propagator $G^<$ zusammenhängt:

$$P_{\boldsymbol{k}}^{cv*} = -i\hbar G_{cv}^{<}(\boldsymbol{k}, t, t). \tag{3.28}$$

Die Diagonalität der Dichtematrixelemente im Impuls $\boldsymbol{k}$ überträgt sich natürlich auch auf die Propagatoren und Greenschen Funktionen. Die Propagatoren hängen allgemein mit der Greenschen Funktion (3.26) zusammen,

$$G^<(1,1') = G(1_+, 1'_-) = \frac{1}{i\hbar}\langle T_C[a(1_+)a^{\dagger}(1'_-)]\rangle = -\frac{1}{i\hbar}\langle a^{\dagger}(1')a(1)\rangle, \tag{3.29}$$

$$G^>(1,1') = G(1_-, 1'_+) = \frac{1}{i\hbar}\langle T_C[a(1_+)a^{\dagger}(1'_-)]\rangle = \frac{1}{i\hbar}\langle a(1)a^{\dagger}(1')\rangle, \tag{3.30}$$

und beschreiben die Propagation eines Lochs von 1 nach $1'$ bzw. eines Teilchens von $1'$ nach 1. Für verschiedene Bänder sind sie für gleiche Zeiten aufgrund der fundamentalen Vertauschungsrelationen für Fermionen identisch:

$$G_{cv}^{<}(\boldsymbol{k}, t, t) = G_{cv}^{>}(\boldsymbol{k}, t, t). \tag{3.31}$$

Die ungestörte Einteilchen-Greensche Funktion ist durch

$$g_{\boldsymbol{k},\lambda}(t,t') = \frac{1}{i\hbar}\langle T_C\left[a_{\boldsymbol{k}\lambda}(t)a_{\boldsymbol{k}\lambda}^{\dagger}(t')\right]\rangle \tag{3.32}$$

gegeben. Die Zeitabhängigkeit der Operatoren ist trivial über H_0 definiert und der Erwartungswert wird mit dem ungestörten Grundzustand gebildet. Daraus ergibt sich:

$$g_{\boldsymbol{k},c}(t,t') = \frac{1}{i\hbar}e^{-\frac{i}{\hbar}\epsilon_{\boldsymbol{k}}^{c}(t-t')}\Theta(t-t'), \tag{3.33}$$

$$g_{\boldsymbol{k},v}(t,t') = -\frac{1}{i\hbar}e^{-\frac{i}{\hbar}\epsilon_{\boldsymbol{k}}^{v}(t-t')}\Theta(t'-t). \tag{3.34}$$

Die Θ-Funktion in (3.33) drückt die Tatsache aus, daß die Leitungsband-GF nur für $t > t'$ ungleich Null ist, weil im gegenteiligen Fall ($t < t'$) der Zeitordnungsoperator die Anwendung eines Vernichtungsoperators auf das Vakuum bewirken würde, wie man an Gleichung (3.32) sieht. Das Elektron propagiert nur vorwärts in der Zeit. Im

[1] Dies ist analog zu Abschnitt 2.1, wo die z-Komponente des Gesamtdrehimpulses im cv-Bild explizit mitgeschrieben und beim Übergang ins eh-Bild ebenfalls in die Notation der Operatoren gesteckt wurde (vgl. Seite 14).

Vergleich dazu ergibt die Valenzband-GF aufgrund der Θ-Funktion in (3.34) nur für $t < t'$ einen nichtverschwindenen Beitrag. Die Löcher propagieren formal rückwärts in der Zeit. Diese Tatsache wird in den Diagrammen durch folgende Konventionen repräsentiert: a) Die Richtung des Pfeils der ungestörten Greenschen Funktion wird so gewählt, daß er vom ersten zum zweiten Zeitargument zeigt. b) Die größere Zeit wird immer links von der kleineren Zeit angeordnet (in Engl.: „late goes left“).

Es soll betont werden, daß diese Anordnungen reine Konvention sind, da sie Zeitordnungen im Keldyshen Sinne beinhalten. Mit diesen Konventionen läuft die Leitungsband-GF immer von links nach rechts und die Valenzband-GF immer von rechts nach links (vgl. Abbildung 3.3).

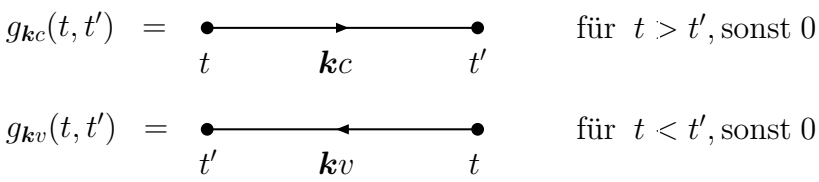

Abbildung 3.3.: Freie Greensche Funktionen.

Aus den Gleichungen (3.33) und (3.34) folgt die Halbgruppen-Eigenschaft der freien Greenschen Funktionen:

$$g_{\boldsymbol{k},c}(t,t') = i\hbar g_{\boldsymbol{k},c}(t,t_1) g_{\boldsymbol{k},c}(t_1,t') \qquad \text{für } t > t_1 > t', \tag{3.35}$$

$$g_{\boldsymbol{k},v}(t',t) = -i\hbar g_{\boldsymbol{k},v}(t',t_1) g_{\boldsymbol{k},v}(t_1,t) \qquad \text{für } t < t_1 < t', \tag{3.36}$$

welche in Abbildung 3.4 diagrammatisch veranschaulicht ist.

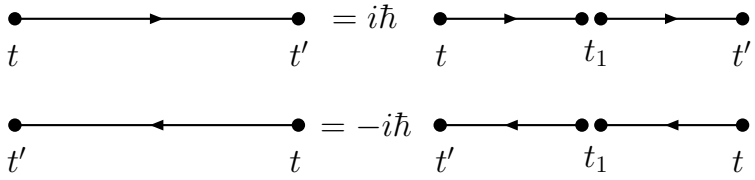

Abbildung 3.4.: Halbgruppen-Eigenschaft der Greenschen Funktionen.

Die freie Greensche Funktion $g_{\boldsymbol{k},c}(t,t')$ ($g_{\boldsymbol{k},v}(t',t)$) wird durch Einfügen eines Vertexes zwischen t und t' in zwei freie Greensche Funktionen faktorisiert. Dies führt mit Gleichung (3.33) bzw. (3.34) dazu, daß der zusätzliche Vertex einen Faktor $i\hbar$ (- $i\hbar$) liefert.

Diagramme

Die unendliche Störungsreihe, welche aus Gleichung (3.26) folgt [53], enthält die Streuterme der Coulomb-Wechselwirkung und des optischen Feldes bis zur unendlichen Ordnung. Bei der Beschränkung auf $\chi^{(3)}$ (vgl. Abschnitt 3.1) werden alle Diagramme vernachlässigt, deren Streuterme größer als dritter Ordnung im optischen Feld sind.

Jedes Diagramm beginnt mit einer einlaufenden Leitungsbandlinie und endet mit einer auslaufenden Valenzbandlinie. Um diese beiden Linien miteinander zu verbinden, ist eine Richtungsänderung notwendig. Die einzige Möglichkeit hierfür wird durch das optische Feld bereitgestellt. Dies kann man auch im Hamiltonoperator sehen, da H_L der einzige Anteil im Hamiltonoperator (3.18) ist, der Interbandübergänge zwischen dem Leitungs- und Valenzband beschreibt. Die Anzahl der Richtungsänderungen entspricht der Ordnung im optischen Feld, so daß es in $\chi^{(3)}$ bis zu drei Richtungsänderungen gibt. Gerade Ordnungen im optischen Feld können nicht auftreten, da dies nicht mit einer auslaufenden Valenzbandlinie vereinbar ist. Daraus ergeben sich die grundlegenden Diagramme in $\chi^{(1)}$ und $\chi^{(3)}$.

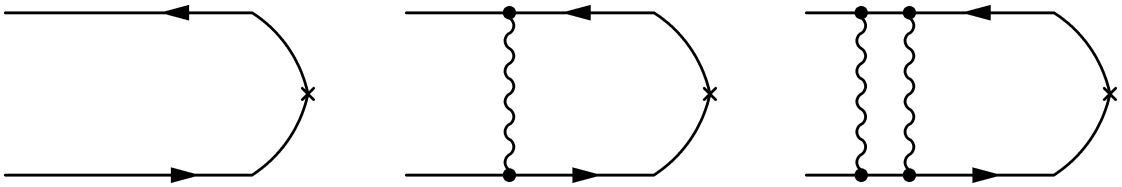

Abbildung 3.5.: Einige Beispiele für Feynman-Graphen in $\chi^{(1)}$.

Abbildung 3.5 zeigt Beispiele für Diagramme, die linear im optischen Feld sind. Die beiden möglichen Streuereignisse sind im Falle des optischen Feldes durch Kreuze und im Falle der Coulomb-Wechselwirkung durch geschlängelte Linien symbolisiert. Die Anzahl der Streuereignisse gibt die jeweilige Ordnung an, so daß alle drei Diagramme das optische Feld in erster Ordnung und von links nach rechts die Coulomb-Wechselwirkung in nullter, erster und zweiter Ordnung enthalten. Alle folgenden Diagramme sind zeitgeordnet gezeichnet, so daß senkrecht übereinander liegenden Punkten zugeordnete Ereignisse auf dem Diagramm gleichzeitig statt finden. Das führt dazu, daß die instantane Coulomb-Wechselwirkung immer durch eine vertikale geschlängelte Linie dargestellt wird.

In Abbildung 3.6 sind die zwei grundlegenden Diagrammtypen in $\chi^{(3)}$ gezeigt. In der dritten Ordnung im optischen Feld erhält man weiterhin eine unendliche Störungsreihe bzgl. der Coulomb-Wechselwirkung. Um diese Reihe aufzustellen muß in den einzelnen Summanden, deren Diagrammdarstellung entweder vom Typ 1 oder

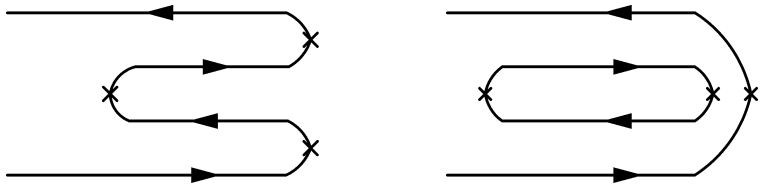

Abbildung 3.6.: Die zwei grundlegenden Diagrammtypen in $\chi^{(3)}$. Links Typ 1 und rechts Typ 2.

vom Typ 2 ist, die Coulomb-Wechselwirkung in jeder beliebigen Ordnung hinzugefügt werden. Dabei sind für jede Ordnung alle Möglichkeiten der Anordnung der Coulomb-Wechselwirkungslinien zu berücksichtigen. An dieser Stelle kann man jedoch die Klasse der Diagramme, die in der englischen Literatur [54, 55] als Tadpole-Diagramme bezeichnet werden und singuläre Coulombbeiträge ($V_{\boldsymbol{q}=\boldsymbol{0}}$) enthalten (vgl. Abbildung 3.7), von der Betrachtung ausschließen, da sie aufgrund der Ladungsneutralität im Halbleiter einen verschwindenden Beitrag liefern [55].

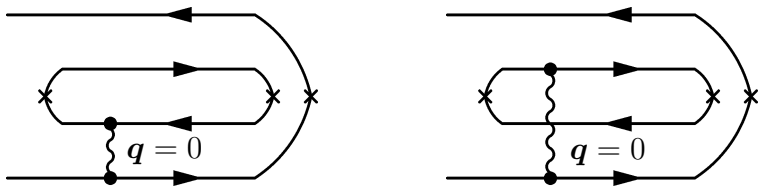

Abbildung 3.7.: Zwei Tadpole-Diagramme.

Regeln zur Beschreibung der Dynamik für die Feynman-Diagramme

Als nächstes werden Regeln für die Zeitableitung der durch die Diagramme beschriebenen Greenschen Funktionen hergeleitet. Die Dynamik der Einteilchen-Greenschen Funktionen (3.33) und (3.34) ergibt sich zu

$$i\hbar\frac{\partial}{\partial t}g_{\boldsymbol{k},c}(t,t') = \epsilon^c_{\boldsymbol{k}}g_{\boldsymbol{k},c}(t,t') + \delta(t-t'), \tag{3.37}$$

$$-i\hbar\frac{\partial}{\partial t}g_{\boldsymbol{k},v}(t,t') = \epsilon^v_{\boldsymbol{k}}g_{\boldsymbol{k},v}(t,t') + \delta(t'-t). \tag{3.38}$$

Um die Dynamik des einzeitigen von der externen Zeit t abhängigen Propagators $G^<_{cv}(\boldsymbol{k},t,t)$ und mit Gleichung (3.28) damit auch die Dynamik der exzitonischen Übergangsamplitude zu bestimmen, muß man die Dynamik aller Summanden der unendlichen Störungsreihe bestimmen. Dabei sind die in Abbildung 3.8 gezeigten

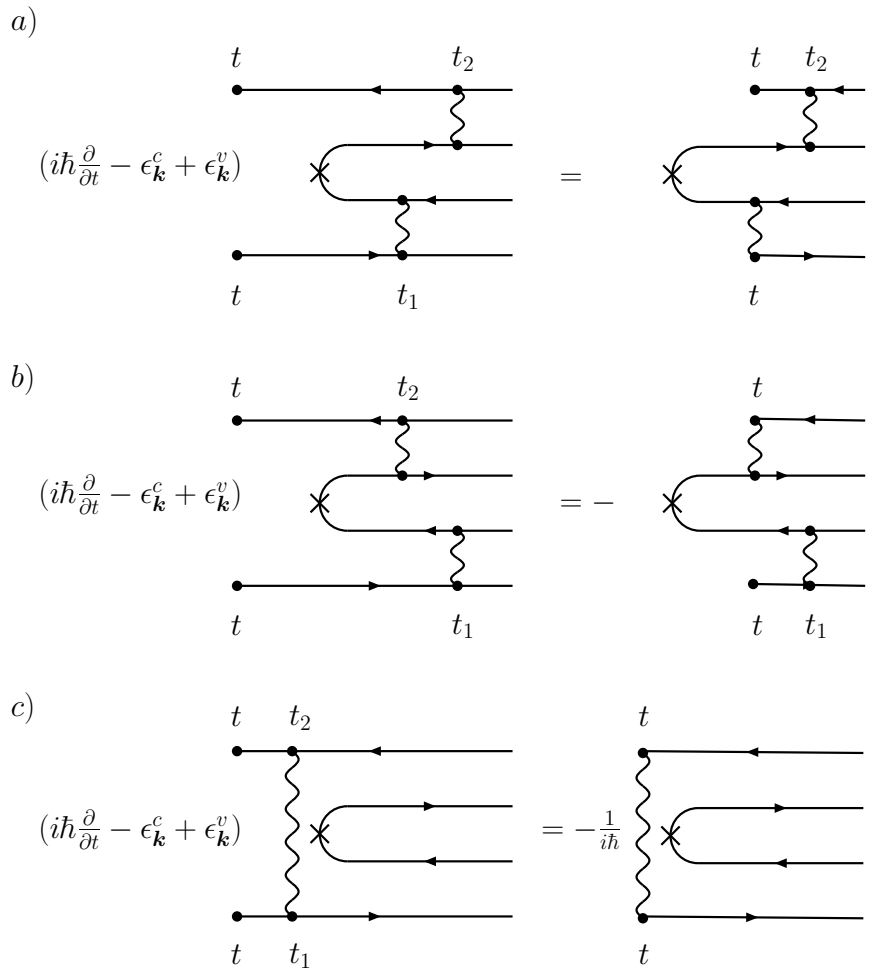

Abbildung 3.8.: Klasse der $\chi^{(3)}$-Diagramme. Fallunterscheidungen für die Streuereignisse, die am dichtesten an der externen Zeit t liegen: a) $t_1 > t_2$, b) $t_2 > t_1$ und c) $t_1 = t_2$.

drei Fälle zu unterscheiden. In allen drei Fällen ist die externe Zeit t mit der Zeit zum nächsten Streuereignis t_1 bzw. t_2 durch freie Greensche Funktionen verbunden. Alle möglichen Wechselwirkungen zwischen t_1 und t_2 sind in $X(t_1, t_2)$ verborgen und in Abbildung 3.8 nicht gezeigt. Damit ergibt sich der Propagator zu

$$G^<_{cv}(\boldsymbol{k}, t, t) = \int g_{\boldsymbol{k},c}(t, t_1) X(t_1, t_2) g_{\boldsymbol{k},v}(t_2, t) dt_1 dt_2. \tag{3.39}$$

Nach den Regeln für Feynman-Graphen (siehe z.B. [54]) wird über die inneren Indizes bei diskreten Variablen summiert (z.B. z-Komponente des Gesamtdrehimpulses) und bei kontinuierlichen Variablen integriert (z.B. Zeit t_2).

Es folgt eine Diskussion der drei Fälle:
a) $t_1 > t_2$

$$G^<_{cv}(\boldsymbol{k},t,t) = \int g_{\boldsymbol{k},c}(t,t_1)X(t_1,t_2)g_{\boldsymbol{k},v}(t_2,t)dt_1dt_2 \tag{3.40}$$

$$= -i\hbar \int g_{\boldsymbol{k},c}(t,t_1)X(t_1,t_2)g_{\boldsymbol{k},v}(t_2,t_1)g_{\boldsymbol{k},v}(t_1,t)dt_1dt_2 \tag{3.41}$$

$$= -i\hbar \int \frac{1}{i\hbar}e^{-\frac{i}{\hbar}\epsilon^c_{\boldsymbol{k}}(t-t_1)}\Theta(t-t_1)X(t_1,t_2)g_{\boldsymbol{k},v}(t_2,t_1)(-\frac{1}{i\hbar})e^{-\frac{i}{\hbar}\epsilon^v_{\boldsymbol{k}}(t_1-t)}\Theta(t-t_1)dt_1dt_2 \tag{3.42}$$

$$= \int \frac{1}{i\hbar}e^{-\frac{i}{\hbar}(\epsilon^c_{\boldsymbol{k}}-\epsilon^v_{\boldsymbol{k}})(t-t_1)}\Theta(t-t_1)X(t_1,t_2)g_{\boldsymbol{k},v}(t_2,t_1)dt_1dt_2 \tag{3.43}$$

Dabei wird im ersten Schritt die Halbgruppeneigenschaft der Greenschen Funktionen verwendet. Im nächsten Schritt werden die Greenschen Funktionen, welche die externe Zeit enthalten, durch ihre explizite Gestalt ausgedrückt. Unter Benutzung von

$$\left(i\hbar\frac{\partial}{\partial t} - \epsilon^c_{\boldsymbol{k}} + \epsilon^v_{\boldsymbol{k}}\right)\frac{1}{i\hbar}e^{-\frac{i}{\hbar}(\epsilon^c_{\boldsymbol{k}}-\epsilon^v_{\boldsymbol{k}})(t-t_1)}\Theta(t-t_1) = \delta(t-t_1) \tag{3.44}$$

erhält man die Bewegungsgleichung

$$\left(i\hbar\frac{\partial}{\partial t} - \epsilon^c_{\boldsymbol{k}} + \epsilon^v_{\boldsymbol{k}}\right)G^<_{cv}(\boldsymbol{k},t,t) = \int \delta(t-t_1)X(t_1,t_2)g_{\boldsymbol{k},v}(t_2,t_1)dt_1dt_2 \tag{3.45}$$

$$= \int X(t,t_2)g_{\boldsymbol{k},v}(t_2,t)dt_2. \tag{3.46}$$

Die Zeitableitung ändert das Diagramm so, daß die Linien der freien Greenschen Funktionen bis zur Zeit t_1 entfernt werden und t zur neuen externen Zeit wird (vgl. (a) in Abbildung 3.8).

b) $t_2 < t_1$

$$G^<_{cv}(\boldsymbol{k},t,t) = \int g_{\boldsymbol{k},c}(t,t_1)X(t_1,t_2)g_{\boldsymbol{k},v}(t_2,t)dt_1dt_2 \tag{3.47}$$

$$= i\hbar \int g_{\boldsymbol{k},c}(t,t_2)g_{\boldsymbol{k},c}(t_2,t_1)X(t_1,t_2)g_{\boldsymbol{k},v}(t_2,t)dt_1dt_2 \tag{3.48}$$

$$= - \int \frac{1}{i\hbar}e^{-\frac{i}{\hbar}(\epsilon^c_{\boldsymbol{k}}-\epsilon^v_{\boldsymbol{k}})(t-t_2)}\Theta(t-t_2)g_{\boldsymbol{k},c}(t_2,t_1)X(t_1,t_2)dt_1dt_2 \tag{3.49}$$

Mit Gleichung (3.44) erhält man die Bewegungsgleichung

$$\left(i\hbar\frac{\partial}{\partial t} - \epsilon^c_{\boldsymbol{k}} + \epsilon^v_{\boldsymbol{k}}\right) G^<_{cv}(\boldsymbol{k},t,t) = -\int \delta(t-t_2) g_{\boldsymbol{k},c}(t_2,t_1) X(t_1,t_2) dt_1 dt_2 \tag{3.50}$$

$$= -\int g_{\boldsymbol{k},c}(t,t_1) X(t_1,t) dt_1. \tag{3.51}$$

Diese Bewegungsgleichung ist in Abbildung 3.8 (b) dargestellt. Die Linien der freien Greenschen Funktionen werden durch Anwendung der Zeitableitung auf das Diagramm bis zur Zeit t_2 entfernt und das daraus folgende Diagramm mit der externen Zeit t wird mit dem Vorfaktor -1 versehen.

c) $t_1 = t_2$

$$G^<_{cv}(\boldsymbol{k},t,t) = \int g_{\boldsymbol{k},c}(t,t_1) X(t_1,t_1) g_{\boldsymbol{k},v}(t_1,t) dt_1 \tag{3.52}$$

$$= \left(-\frac{1}{i\hbar}\right) \int \frac{1}{i\hbar} e^{-\frac{i}{\hbar}(\epsilon^c_{\boldsymbol{k}} - \epsilon^v_{\boldsymbol{k}})(t-t_1)} \Theta(t-t_1) X(t_1,t_1) dt_1 \tag{3.53}$$

Mit Gleichung (3.44) erhält man die Bewegungsgleichung

$$\left(i\hbar\frac{\partial}{\partial t} - \epsilon^c_{\boldsymbol{k}} + \epsilon^v_{\boldsymbol{k}}\right) G^<_{cv}(\boldsymbol{k},t,t) = -\frac{1}{i\hbar}\int \delta(t-t_1) X(t_1,t_1) dt_1 \tag{3.54}$$

$$= -\frac{1}{i\hbar} X(t,t). \tag{3.55}$$

Die Zeitableitung ändert das Diagramm so, daß die Linien der freien Greenschen Funktionen bis zur Zeit $t_1 = t_2$ entfernt werden und t zur neuen externen Zeit wird. Zusätzlich erhält man einen Vorfaktor $-\frac{1}{i\hbar}$ (vgl. (c) in Abbildung 3.8).

In Abbildung 3.9 ist ein Beispiel für die Zeitableitung eines Feynman-Diagramms in $\chi^{(3)}$ gezeigt, in dem das „erste“ Streuereignis eine mit der einlaufenden freien Leitungsband-GF verbundene Coulomb-Wechselwirkung ist. Um zwischen den verschiedenen freien Leitungs- und Valenzband-GF zu unterscheiden, werden für erstere die Indizes c und c' und für letztere die Indizes v und v' verwendet. Die Zeitableitung führt dazu (vgl. Diskussion zu Abbildung 3.8), daß die freien GF-Linien bis zur neuen externen Zeit entfernt werden. Im nächsten Schritt wird die Coulomb-Wechselwirkungslinie separiert. Dies führt auf einen Vorfaktor $i\hbar V_{\boldsymbol{q}}$. Anschließend wird die freie GF $g_{\boldsymbol{k},c'}$ durch Ausnutzung der Halbgruppeneigenschaft (3.35) aufgespalten und man erhält $i\hbar$ als weiteren Vorfaktor. Alle möglichen Streuereignisse, die nach dem ersten Streuereignis auftreten, werden in einer Größe „versteckt“, die später als Zweiteilchen-GF identifiziert wird. In dem Diagramm, welches sich in der zweiten Zeile und zweiten Spalte der Abbildung 3.9 befindet, ist der Teil, der sich links der Zeit t befindet die Ein-Teilchen-GF $G^<_{v'c'}(\boldsymbol{k}',t,t)$ und der mit vier horizontalen Linien gezeichnete Teil auf der rechten Seite die Zwei-Teilchen-GF (siehe unten).

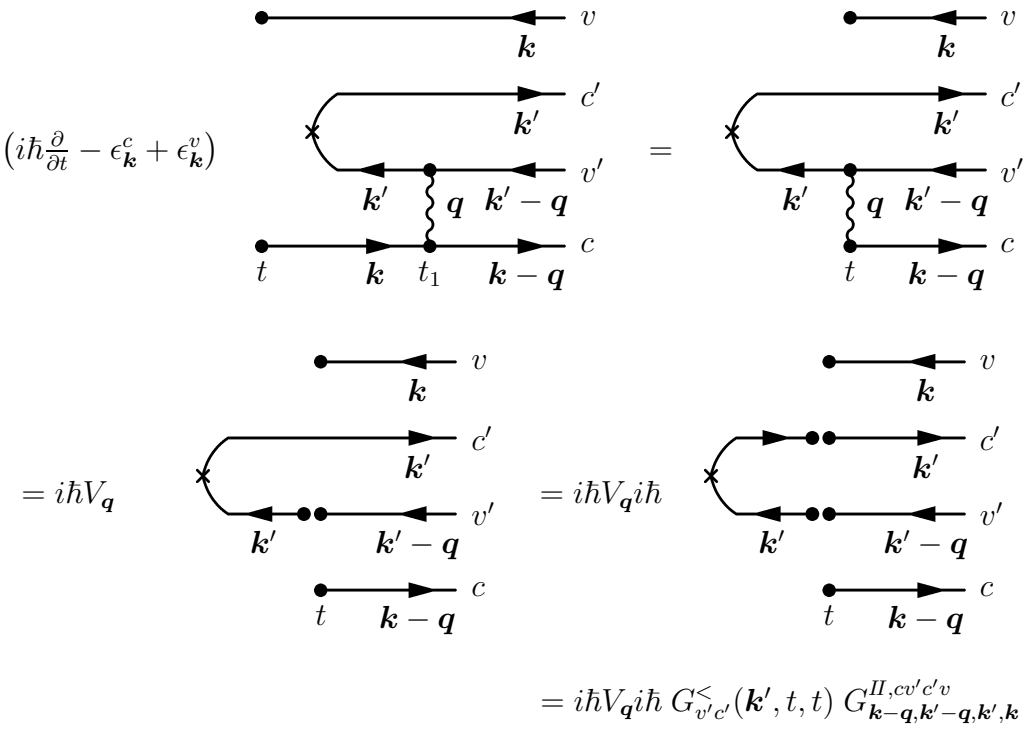

Abbildung 3.9.: Zeitliche Entwicklung der durch die Feynman-Diagramme beschriebenen Greenschen Funktionen.

Aufstellen der Bewegungsgleichung

Mit diesen Regeln kann nun die Bewegungsgleichung für $G^<$ aufgestellt werden. Für das „erste“ Streuereignis gibt es in $\chi^{(1)}$ zwei Möglichkeiten, eine für das optische Feld und eine für die Coulomb-Wechselwirkung (vgl. (a) und (b) in Abbildung 3.10) und in $\chi^{(3)}$ exzistieren sechs Möglichkeiten, zwei für das optische Feld und vier für die Coulomb-Wechselwirkung (vgl. (c) bis (h) in Abbildung 3.10).

$$\begin{aligned}
&\left(i\hbar\frac{\partial}{\partial t} - \epsilon^c_{\boldsymbol{k}} + \epsilon^v_{\boldsymbol{k}}\right) G^<_{cv}(\boldsymbol{k}, t, t) = \chi_{cv}\left[-\frac{1}{i\hbar}\right] + i\hbar V_{\boldsymbol{q}}\left[-\frac{1}{i\hbar}\right] G^<_{cv}(\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}, t, t) \qquad (3.56)\\
&+ \chi_{cv'}\left[i\hbar\right] G^<_{v'c'}(\boldsymbol{k}, t, t) G^<_{c'v}(\boldsymbol{k}, t, t) + G^<_{cv'}(\boldsymbol{k}, t, t) G^<_{v'c'}(\boldsymbol{k}, t, t)\chi_{c'v}\left[i\hbar\right]\\
&+ i\hbar V_{\boldsymbol{q}} i\hbar G^<_{v'c'}(\boldsymbol{k}', t, t)\left[G^{II,cv'c'v}_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}} + G^{II,cv'c'v}_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}} - G^{II,cv'c'v}_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}} - G^{II,cv'c'v}_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}}\right]
\end{aligned}$$

Die Summation über die inneren Indizes, in diesem Fall $\boldsymbol{k}'$, $\boldsymbol{q}$, c' und v', wird hier und im Folgenden zur besseren Übersichtlichkeit nicht explizit mitgeschrieben.

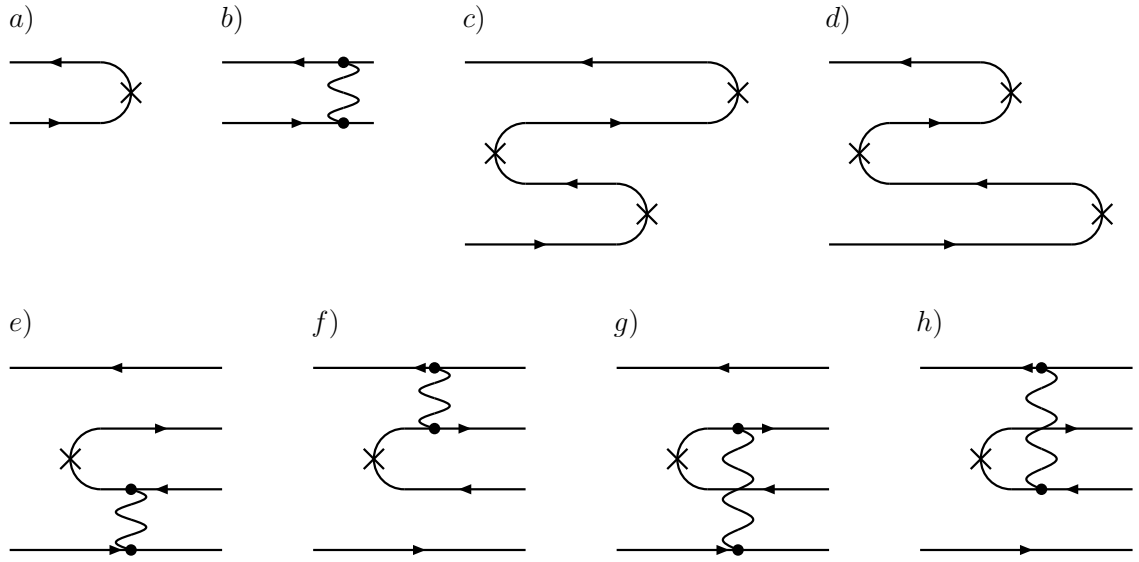

Abbildung 3.10.: Grafische Darstellung der acht Summanden in Gleichung (3.56). Die „ersten“ Streuereignisse sind: in $\chi^{(1)}$ a) das optische Feld und b) die Coulomb-Wechselwirkung und in $\chi^{(3)}$ c) - d) das optische Feld und e) - h) die Coulomb-Wechselwirkung. Die Impulse sind zur besseren Übersicht nicht dargestellt. Das Diagramm e) findet man mit den entsprechenden Impulsen in Abbildung 3.9 und die Impulse der anderen Diagramme lassen sich entsprechend konstruieren.

Die Zweiteilchen-GF

$$G^{II,cv'c'v}_{\boldsymbol{k}_1,\boldsymbol{k}_2,\boldsymbol{k}_3,\boldsymbol{k}_4} = \frac{1}{(i\hbar)^2} \langle\, c_{\boldsymbol{k}_1}(t)\; v^{\dagger}_{\boldsymbol{k}_2}(t)\; c'_{\boldsymbol{k}_3}(t)\; v^{\dagger}_{\boldsymbol{k}_4}(t) \,\rangle \tag{3.57}$$

setzt sich aus einem verbundenen Anteil $\widetilde{G}^{II,cv'c'v}_{\boldsymbol{k}_1,\boldsymbol{k}_2,\boldsymbol{k}_3,\boldsymbol{k}_4}$ und zwei unverbundenen Anteilen zusammen:

$$\begin{aligned} G^{II,cv'c'v}_{\boldsymbol{k}_1,\boldsymbol{k}_2,\boldsymbol{k}_3,\boldsymbol{k}_4} = \widetilde{G}^{II,cv'c'v}_{\boldsymbol{k}_1,\boldsymbol{k}_2,\boldsymbol{k}_3,\boldsymbol{k}_4} &+ \delta_{\boldsymbol{k}_1\boldsymbol{k}_2}\delta_{\boldsymbol{k}_3\boldsymbol{k}_4} G^{<}_{cv'}(\boldsymbol{k}_1,t,t) G^{<}_{c'v}(\boldsymbol{k}_3,t,t) \\ &- \delta_{\boldsymbol{k}_1\boldsymbol{k}_4}\delta_{\boldsymbol{k}_2\boldsymbol{k}_3} G^{<}_{cv}(\boldsymbol{k}_1,t,t) G^{<}_{c'v'}(\boldsymbol{k}_3,t,t). \end{aligned} \tag{3.58}$$

Dies ist in Abbildung 3.11 anschaulich dargestellt. Die grauen Ovale stehen für alle möglichen weiteren Streuereignisse. Das verbundene Diagramm repräsentiert somit die ganze Diagrammfamilie der Zweiteilchen-GF $\widetilde{G}^{II,cv'c'v}_{\boldsymbol{k}_1,\boldsymbol{k}_2,\boldsymbol{k}_3,\boldsymbol{k}_4}$ in $\chi^{(3)}$.

Der zweite unverbundene Anteil trägt nicht bei, da dieser seinen Ursprung in einem Tadpole-Diagramm hat[2]. Dies kann man auch direkt an der Gleichung (3.56) unter

[2]Alle Tadpole-Diagramme sind in $\chi^{(3)}$ eine Teilmenge der Diagrammen (e) bis (h) in Abbildung 3.10 vom Typ 2.

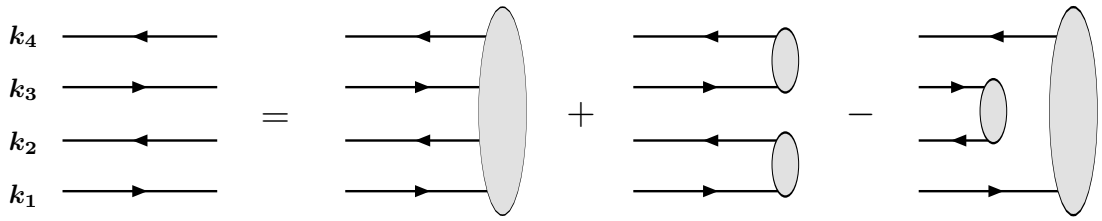

Abbildung 3.11.: Zerlegung der Diagrammfamilie von Zweiteilchen-Greenschen Funktionen in verbundene und unverbundene Anteile als Veranschaulichung von Gleichung (3.58).

Berücksichtigung der Reihenfolge der Impulse aus Gleichung (3.58) ablesen, denn $\delta_{\boldsymbol{k}_1\boldsymbol{k}_4}$ führt in allen vier Termen zu $\boldsymbol{q} = 0$. Dieser Hartree-Term trägt jedoch aufgrund der Ladungsträgerneutralität nicht bei.

$$\begin{aligned}
&\left(i\hbar\frac{\partial}{\partial t} - \epsilon^c_{\boldsymbol{k}} + \epsilon^v_{\boldsymbol{k}}\right) G^<_{cv}(\boldsymbol{k},t,t) + V_{\boldsymbol{q}}\, G^<_{cv}(\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q},t,t) = \left[-\frac{1}{i\hbar}\right]\chi_{cv} \qquad (3.59)\\
&+ i\hbar\Big[\chi_{cv'}\, G^<_{v'c'}(\boldsymbol{k},t,t)\, G^<_{c'v}(\boldsymbol{k},t,t) + G^<_{cv'}(\boldsymbol{k},t,t)\, G^<_{v'c'}(\boldsymbol{k},t,t)\, \chi_{c'v}\Big]\\
&+ (i\hbar)^2 V_{\boldsymbol{q}} G^<_{v'c'}(\boldsymbol{k},t,t)\Big[G^<_{cv'}(\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q},t,t)G^<_{c'v}(\boldsymbol{k},t,t) + G^<_{cv'}(\boldsymbol{k},t,t)G^<_{c'v}(\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q},t,t)\Big]\\
&- (i\hbar)^2 V_{\boldsymbol{q}} G^<_{v'c'}(\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q},t,t)\Big[G^<_{cv'}(\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q},t,t)G^<_{c'v}(\boldsymbol{k},t,t) + G^<_{cv'}(\boldsymbol{k},t,t)G^<_{c'v}(\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q},t,t)\Big]\\
&+ (i\hbar)^2 V_{\boldsymbol{q}} G^<_{v'c'}(\boldsymbol{k}',t,t)\left[\widetilde{G}^{II,cv'c'v}_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}} + \widetilde{G}^{II,cv'c'v}_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}} - \widetilde{G}^{II,cv'c'v}_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}} - \widetilde{G}^{II,cv'c'v}_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}}\right]
\end{aligned}$$

Die Gleichung (3.59) entspricht genau der Bewegungsgleichung für die exzitonische Übergangsamplitude (3.13). Um dies zu sehen wird Gleichung (3.59) ins Elektron-Loch-Bild umgeschrieben und der Propagator und die Zweiteilchen-GF durch die entsprechenden Erwartungswerte ersetzt. Anschließend wird mit $-i\hbar$ multipliziert und komplex konjugiert.

Bei der Zweiteilchen-GF $\widetilde{G}^{II,cv'c'v}_{\boldsymbol{k}_1,\boldsymbol{k}_2,\boldsymbol{k}_3,\boldsymbol{k}_4}$ ist das erste Ereignis einer Wechselwirkung immer die Coulomb-Wechselwirkung. Wenn das erste Streuereignis durch das optische Feld hervorgerufen werden würde (vgl. Abbildung 3.12), wäre das zugehörige Diagramm bereits nicht mehr verbunden. Da jedoch die Dynamik der verbundenen Diagramme betrachtet werden soll, ist dieser Fall auszuschließen.

Es gibt 6 verschiedene Möglichkeiten die Linien der vier freien Greenschen Funktionen mit einer Coulomb-Wechselwirkungslinie zu verbinden. Dabei gibt es zwei prinzipiell unterschiedliche Beiträge: Die Verbindung von freien Greenschen Funktionen zum gleichen Bandindex (vgl. Abbildung 3.13) und zu verschiedenen Bandindizes (vgl. Abbildung 3.14).

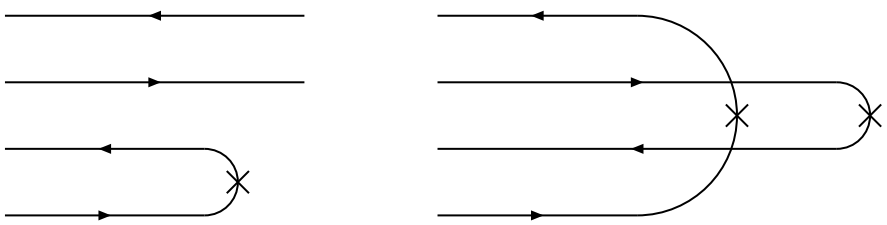

Abbildung 3.12.: Das optische Feld als „erstes“ Streuereignis.

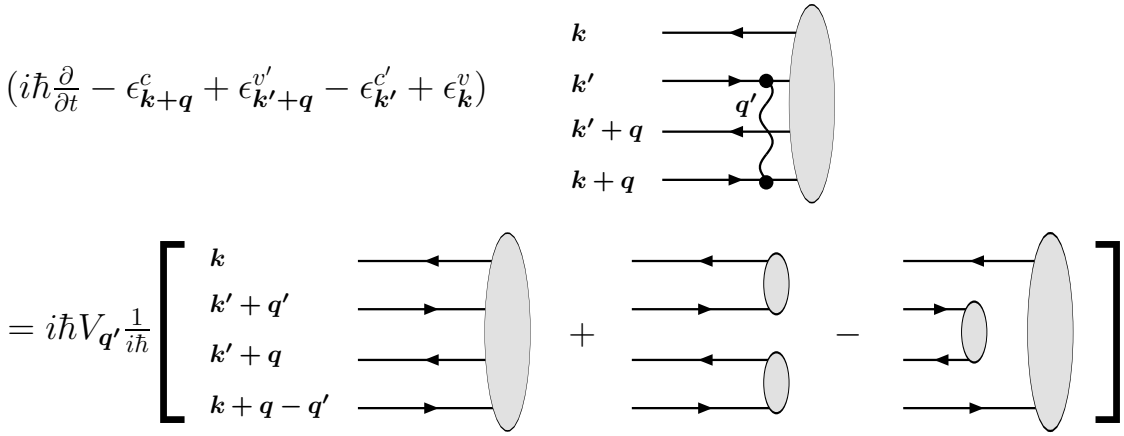

Abbildung 3.13.: Dynamik der Zweiteilchen-Greenschen Funktion. Die der externen Zeit t am nächsten liegende Coulomb-Wechselwirkungslinie verbindet zwei einlaufende Greensche Funktionslinien.

Betrachtet man nun wieder die Dynamik dieser Familie von Diagrammen, so führt das Separieren der ersten Coulomb-Wechselwirkungslinie dazu, daß das ursprünglich verbundene Diagramm danach entweder immer noch verbunden ist oder in zwei unverbundene Anteile zerfällt. Die Zeitableitung ist in den Abbildungen 3.13 und 3.14 dargestellt, wobei in letzterer das rechte unverbundene Diagramm nicht existiert, da die einzelnen Anteile nur einlaufende bzw. auslaufende Linien haben. Dies führt auf

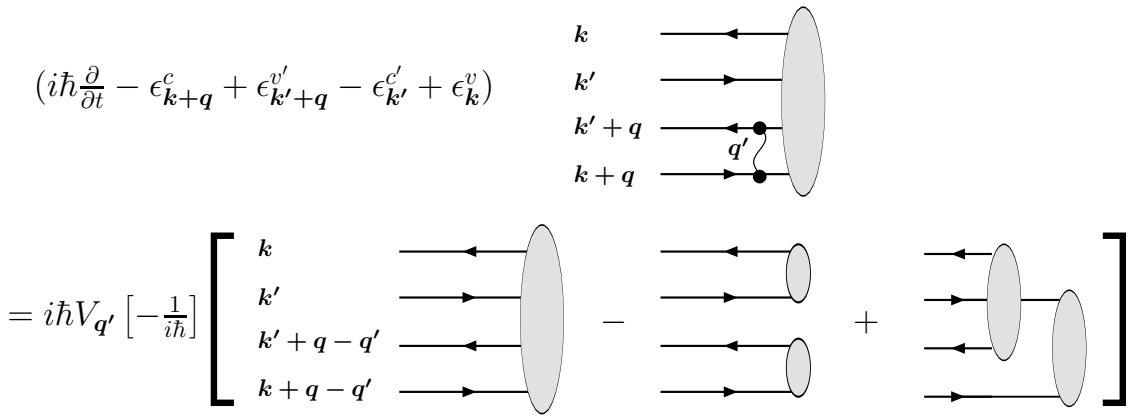

Abbildung 3.14.: Dynamik der Zweiteilchen-Greenschen Funktion. Die der externen Zeit t am nächsten liegende Coulomb-Wechselwirkungslinie verbindet eine aus- und einlaufende Greensche Funktionslinie.

die Bewegungsgleichung für die Zweiteilchen-Greensche Funktion:

$$\begin{aligned}
&\left(i\hbar\frac{\partial}{\partial t} - \epsilon^{c}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}} + \epsilon^{v}_{\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} - \epsilon^{c'}_{\boldsymbol{k}'} + \epsilon^{v}_{\boldsymbol{k}}\right)\widetilde{G}^{II,cv'c'v}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}} = \qquad (3.60)\\
&V_{q'}\Big[\widetilde{G}^{II,cv'c'v}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}-\boldsymbol{q}',\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}',\boldsymbol{k}} + \widetilde{G}^{II,cv'c'v}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}',\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}'} - \widetilde{G}^{II,cv'c'v}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}-\boldsymbol{q}',\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}-\boldsymbol{q}',\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}}\\
&- \widetilde{G}^{II,cv'c'v}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}-\boldsymbol{q}',\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}'} - \widetilde{G}^{II,cv'c'v}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}-\boldsymbol{q}',\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}',\boldsymbol{k}} - \widetilde{G}^{II,cv'c'v}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{q}',\boldsymbol{k}-\boldsymbol{q}'}\Big]\\
&+\Big[V_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{k}'}G^{<}_{cv'}(\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},t,t)G^{<}_{c'v}(\boldsymbol{k},t,t) - V_{\boldsymbol{q}}G^{<}_{cv}(\boldsymbol{k},t,t)G^{<}_{c'v'}(\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},t,t)\\
&+ V_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{k}'}G^{<}_{cv'}(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},t,t)G^{<}_{c'v}(\boldsymbol{k}',t,t) - V_{\boldsymbol{q}}G^{<}_{cv}(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},t,t)G^{<}_{c'v'}(\boldsymbol{k}',t,t)\\
&+ V_{\boldsymbol{q}}G^{<}_{cv}(\boldsymbol{k},t,t)G^{<}_{c'v'}(\boldsymbol{k}',t,t) - V_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{k}'}G^{<}_{cv'}(\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},t,t)G^{<}_{c'v}(\boldsymbol{k}',t,t)\\
&- V_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{k}'}G^{<}_{cv'}(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},t,t)G^{<}_{c'v}(\boldsymbol{k},t,t) + V_{\boldsymbol{q}}G^{<}_{cv}(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},t,t)G^{<}_{c'v'}(\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},t,t)\Big].
\end{aligned}$$

Die letzte eckige Klammer kann auf

$$\begin{aligned}
&V_{\boldsymbol{q}}[G^{<}_{cv}(\boldsymbol{k}) - G^{<}_{cv}(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q})][G^{<}_{c'v'}(\boldsymbol{k}') - G^{<}_{c'v'}(\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q})]\\
-&V_{\boldsymbol{k}-\boldsymbol{k}'}[G^{<}_{c'v}(\boldsymbol{k}) - G^{<}_{c'v}(\boldsymbol{k}')][G^{<}_{cv'}(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}) - G^{<}_{cv'}(\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q})]
\end{aligned}$$

umgeschrieben werden. Unter Benutzung von Gleichung (3.28) und Identifikation von $\widetilde{G}^{II}$ mit der komplex konjugierten Größe der biexzitonischen Korrelationsfunktion (3.12) ergibt sich, daß Gleichung (3.60) identisch mit der Bewegungsgleichung der exzitonischen Übergangsamplitude (3.16) ist.

In diesem Abschnitt ist eine zu der Bewegungsgleichungsmethode alternative Herleitung des Bewegungsgleichungssystems in $\chi^{(3)}$ mit Hilfe der Nichtgleichgewichts-Greenschen-Funktions-Technik vorgestellt worden.

Die hier vorgestellte Herleitung unterscheidet sich von den aus der Literatur [56] bekannten Herleitungen. Der Unterschied besteht darin, daß in [56] die Graphen nicht über die Zeitachse aufgetragen werden und deswegen die Vorteile einer graphischen Zeitordnung nicht benutzt werden können. Das führt auf eine lange Liste von Regeln, welche eine Aussage darüber machen, welche Diagramme beitragen und welche verschwinden.

Die Erweiterung der Theorie um eine mikroskopische Beschreibung inkohärenter Prozesse mit Hilfe der Greenschen Funktionen im Nichtgleichgewicht ist jetzt nach z.B. [49] möglich.

3.4. Auswertung des Formalismus

In diesem Abschnitt wird zunächst die Berücksichtigung der in Abschnitt 2.2 eingeführten Propagationseffekte in dem Bewegungsgleichungssystem aus Abschnitt 3.2 diskutiert. Anschließend werden die Auswahlregeln für optische Übergänge und die Energie des gebundenen Biexzitons anhand eines Energieschemas vorgestellt. Die Entwicklung nach exzitonischen Eigenfunktionen, um den numerischen Aufwand zur Lösung des Bewegungsgleichungssystem aus Abschnitt 3.2 drastisch zu reduzieren, bilden den Schluß des Kapitels.

Propagationseffekte

Die Berücksichtigung der Propagationseffekte des optischen Lichtfeldes macht es notwendig die Gleichungen (3.13) und (3.16) selbstkonsistent mit Gleichung (2.102) und (2.52) zu lösen[3]. Die Vorgehensweise ist in Abbildung (3.15) dargestellt. Ausgangspunkt ist die Bewegungsgleichung für die exzitonische Übergangsamplitude. Zur Bestimmung dieser Größe muß die gekoppelte Bewegungsgleichung für die biexzitonische Korrelationsfunktion mitgelöst werden. Mit der exzitonischen Übergangsamplitude und dem Dipolmatrixelement läßt sich nach Gleichung (2.52) die makroskopische Polarisation berechnen, welche das Feld an der Stelle des Quantenfilms nach Gleichung (2.102) modifiziert. Das geänderte optische Feld beeinflußt wieder die exzitonische Übergangsamplitude und damit auch die biexzitonische Korrelationsfunktion.

[3]Der Index QW wird ab Seite 26 nicht mehr explizit angegeben. Alle optischen Felder, welche in die Bewegungsgleichungen eingehen, sind aber weiterhin als optische Felder an der Stelle des Quantenfilms zu verstehen.

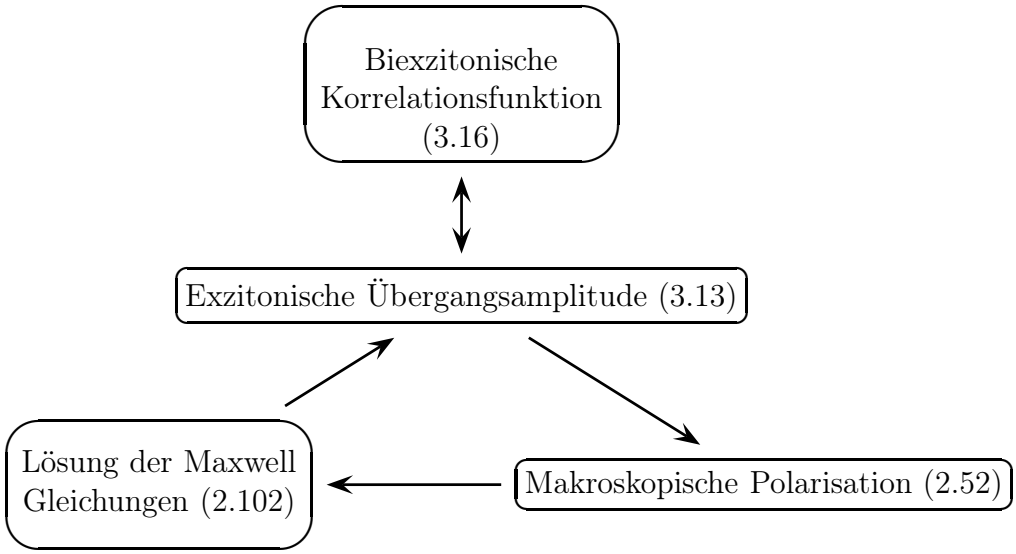

Abbildung 3.15.: Veranschaulichung des Selbstkonsistenzproblems bei der Berechnung der exzitonischen Übergangsamplitude unter Berücksichtigung von Propagationseffekten.

Auswahlregeln

Um zu wissen, welche optischen Übergänge mit einem Laser in einem Quantenfilm mit Zink-Blende-Symmetrie angeregt werden können, müssen die entsprechenden Auswahlregeln betrachtet werden. Die optischen Dipolmatrixelemente schreiben sich für zirkular polarisiertes Licht [39] als

$$d^{cv} = \frac{1}{\sqrt{2}}\langle c|\boldsymbol{d}(\boldsymbol{e}_x \pm i\boldsymbol{e}_y)|v\rangle = -\frac{e}{\sqrt{2}}\langle c|x \pm iy|v\rangle. \tag{3.61}$$

Für s-artige Leitungsbandzustände $|c, j_z = \pm\frac{1}{2}\rangle$ ergibt sich für σ_+ zirkular polarisiertes Licht

$$d^{\sigma_+}_{-\frac{1}{2},-\frac{3}{2}} = -\frac{e}{\sqrt{2}}\langle c, j_z = -\frac{1}{2}|x + iy|v, j_z = -\frac{3}{2}\rangle = d. \tag{3.62}$$

Die erlaubten optischen Übergänge für zirkular polarisiertes Licht sind im Fall von Schwerloch-Exzitonen [39],

$$\boldsymbol{d}^{\sigma_+}_{-\frac{1}{2},-\frac{3}{2}} = d\boldsymbol{\sigma}_+ \qquad\qquad \boldsymbol{d}^{\sigma_-}_{\frac{1}{2},\frac{3}{2}} = d\boldsymbol{\sigma}_- \tag{3.63}$$

und für Leichtloch-Exzitonen,

$$\boldsymbol{d}^{\sigma_-}_{-\frac{1}{2},\frac{1}{2}} = \frac{d}{\sqrt{3}}\boldsymbol{\sigma}_- \qquad\qquad \boldsymbol{d}^{\sigma_+}_{\frac{1}{2},-\frac{1}{2}} = \frac{d}{\sqrt{3}}\boldsymbol{\sigma}_+ \tag{3.64}$$

In Abbildung 3.16 ist dies anschaulich dargestellt. Dort bezeichnet σ_+ (σ_-) zirkular polarisiertes Licht, welches die z-Komponente des Gesamtdrehimpulses um +1 (-1) ändert.

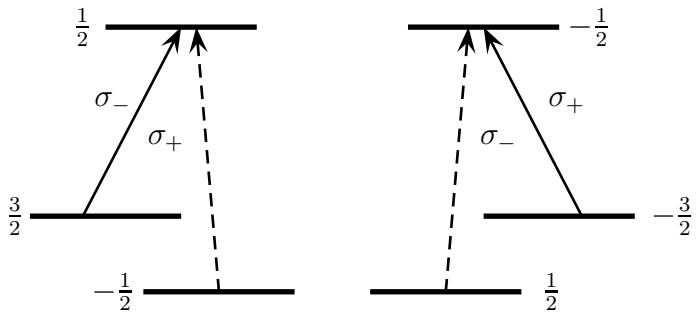

Abbildung 3.16.: Elektronische Dipol-Übergänge mit Angabe der z-Komponente des Gesamtdrehimpulses und Art der zirkularen Anregung

Die Stärke der Dipolkopplung ist für Leichtloch-Exzitonen gegenüber den Schwerloch-Exzitonen um den Faktor $\frac{1}{\sqrt{3}}$ kleiner. Dies ist, zusammen mit der Tatsache, daß der Übergang vom Leichtloch-Valenzband ins Leitungsband in einem anderen energetischen Bereich liegt als der Übergang vom Schwerloch-Valenzband ins Leitungsband, der Grund dafür, eines dieser beiden Valenzbänder nicht in der theoretischen Beschreibung zu berücksichtigen. Welches Band in Betracht gezogen werden muß, hängt von dem Materialsystem und der Art vorhandener Verspannungen ab (vgl. Abschnitt 2.1).

Zur Veranschaulichung der Energie eines gebundenen Biexzitons dient Abbildung (3.17). Dort erkennt man zunächst, daß nach den Auswahlregeln durch links und rechts zirkular polarisiertes Licht ein Exziton erzeugt werden kann, dessen Energie um die Exziton-Bindungsenergie E_B^X gegenüber der Bandlückenenergie E_g abgesenkt ist. Zur Erzeugung eines gebundenen Biexzitons ist es notwendig, mit der Kombination aus σ^+- und σ^--Licht anzuregen. Das gebundene Biexziton besteht somit aus zwei Exzitonen mit unterschiedlicher Spinpolarisation, die zur energetischen Position jeweils mit $E_g - E_B^X$ beitragen und zusätzlich um die Biexziton-Bindungsenergie abgesenkt sind.

Entwicklung nach exzitonischen Eigenfunktionen

Da es numerisch sehr aufwendig ist, die Gleichungen (3.13) und (3.16) im Impulsraum zu lösen, wird ein Basiswechsel vorgenommen. Dazu wird die exzitonische Übergangs-

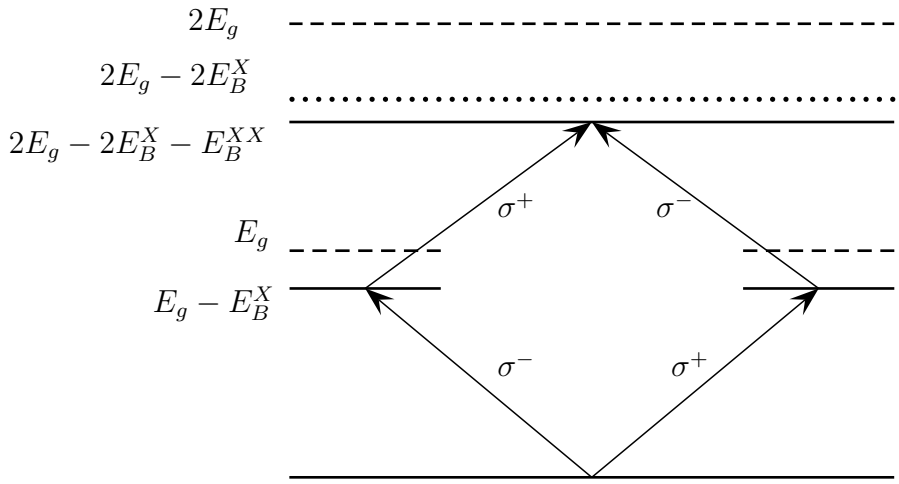

Abbildung 3.17.: Energieschema zur Veranschaulichung der exzitonischen und biexzitonischen Bindungsenergie.

amplitude nach exzitonischen Eigenfunktionen $\Phi_n(\boldsymbol{k})$ entwickelt [57, 58]:

$$P_{\boldsymbol{k}}^{eh} = \sum_n P_n^{eh} \Phi_n(\boldsymbol{k}). \tag{3.65}$$

Die entsprechende Entwicklung der biexzitonischen Korrelationsfunktion erfordert einige zusätzliche Überlegungen [57]. Die biexzitonische Korrelationsfunktion besitzt bzgl. des Austausches der Elektronen die Symmetrieeigenschaft

$$B^{ehe'h'}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} = -B^{e'heh'}_{\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} \tag{3.66}$$

und bzgl. des Austausches der Löcher die Symmetrieeigenschaft

$$B^{ehe'h'}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} = -B^{eh'e'h}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}}. \tag{3.67}$$

Um diese Symmetrieeigenschaften bei der Eigenfunktionsentwicklung für jeden Term der Entwicklung sicherzustellen, wird wie folgt eine Summe von Hilfsgrößen eingeführt:

$$\begin{aligned} B^{ehe'h'}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} =& \widetilde{B}^{ehe'h'}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} - \widetilde{B}^{e'heh'}_{\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} \\ & - \widetilde{B}^{eh'e'h}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}} + \widetilde{B}^{e'h'eh}_{\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}}. \end{aligned} \tag{3.68}$$

Diese Hilfsgrößen werden dann nach Produkten aus exzitonischen Eigenfunktionen entwickelt:

$$\widetilde{B}^{ehe'h'}_{\boldsymbol{k}_1,\boldsymbol{k}_2,\boldsymbol{k}_3,\boldsymbol{k}_4} = \sum_{nm} \Phi_n(\alpha\boldsymbol{k}_1 + \beta\boldsymbol{k}_2)\Phi_m(\alpha\boldsymbol{k}_3 + \beta\boldsymbol{k}_4) B_{nm}^{e'heh'}(\boldsymbol{k}_1 - \boldsymbol{k}_2), \tag{3.69}$$

wobei $\alpha = \frac{m_h}{m_e+m_h}$ und $\beta = \frac{m_e}{m_e+m_h}$ die Elektronenmasse m_e und Lochmasse m_h enthalten. Gleichung (3.69) berücksichtigt weiterhin, daß die Elektronen und Löcher unterschiedliche Impulse haben können. Zur Bestimmung der Eigenfunktionen $\Phi_n(\boldsymbol{k})$ betrachtet man die Schrödingergleichung für das Exziton mit verschwindendem Schwerpunktimpuls:

$$\left(\frac{\hbar^2\boldsymbol{k}^2}{2\mu} + E_e(0) + E_h(0)\right)\Phi_n(\boldsymbol{k}) - \sum_{\boldsymbol{k}'} V(\boldsymbol{k}-\boldsymbol{k}')\Phi_n(\boldsymbol{k}') = E_n\Phi_n(\boldsymbol{k}). \tag{3.70}$$

Hierbei bezeichnet $\mu = \frac{m_e m_h}{m_e+m_h}$ die reduzierte effektive Masse des Exzitons und $E_e(0)$ ($E_h(0)$) die Einteilchenenergie des Elektrons (Loches) für $\boldsymbol{k} = 0$. Da die benötigten Eigenfunktionen nicht nur von $\boldsymbol{k}$, sondern z.B. auch von $\boldsymbol{k}+\alpha\boldsymbol{q}$ abhängen, wird eine entsprechende Ersetzung in Gleichung (3.70) vorgenommen:

$$\boldsymbol{k} \to \boldsymbol{k} + \alpha\boldsymbol{q} \qquad , \qquad \boldsymbol{k}' \to \boldsymbol{k}' + \alpha\boldsymbol{q}. \tag{3.71}$$

Dies führt mit

$$\frac{\hbar^2(\boldsymbol{k}+\alpha\boldsymbol{q})^2}{2\mu} = \frac{\hbar^2(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q})^2}{2m_e} + \frac{\hbar^2\boldsymbol{k}^2}{2m_h} - \frac{\hbar^2\boldsymbol{q}^2}{2M} \tag{3.72}$$

auf die Schrödinger-Gleichung:

$$\begin{aligned}&\left[\frac{\hbar^2(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q})^2}{2m_e} + \frac{\hbar^2\boldsymbol{k}^2}{2m_h} + E_e(0) + E_h(0)\right]\Phi_n(\boldsymbol{k}+\alpha\boldsymbol{q}) \\ &- \sum_{\boldsymbol{k}'} V(\boldsymbol{k}-\boldsymbol{k}')\Phi_n(\boldsymbol{k}'+\alpha\boldsymbol{q}) = \widetilde{E}_n(\boldsymbol{q})\Phi_n(\boldsymbol{k}+\alpha\boldsymbol{q}).\end{aligned} \tag{3.73}$$

Die kinetische Energie der Elektronen ist durch $\epsilon^e_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}} = \frac{\hbar^2(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q})^2}{2m_e} + E_e(0)$ und die kinetische Energie der Löcher durch $\epsilon^h_{\boldsymbol{k}} = \frac{\hbar^2\boldsymbol{k}^2}{2m_h} + E_h(0)$ gegeben. Die Energieeigenwerte sind jetzt vom Schwerpunktimpuls $\boldsymbol{q}$ abhängig:

$$\widetilde{E}_n(\boldsymbol{q}) = E_n + \frac{\hbar^2\boldsymbol{q}^2}{2M}. \tag{3.74}$$

Somit bezeichnet der zweite Summand der Gleichung (3.74) die kinetische Energie der Schwerpunktbewegung des Exzitons. Anschließend wird Gleichung (3.69) in Gleichung (3.68) eingesetzt:

$$\begin{aligned}B^{ehe'h'}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} = \sum_{nm} \big[&\Phi_n(\boldsymbol{k}+\alpha\boldsymbol{q})\Phi_m(\boldsymbol{k}'+\beta\boldsymbol{q})b^{ehe'h'}_{nm}(\boldsymbol{q}) \\ &-\Phi_n(\alpha\boldsymbol{k}'+\beta\boldsymbol{k})\Phi_m(\alpha\boldsymbol{k}+\beta\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q})b^{e'heh'}_{nm}(\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{k})\big],\end{aligned} \tag{3.75}$$

wobei neue Entwicklungskoeffizienten

$$b^{ehe'h'}_{nm}(\boldsymbol{q}) = B^{ehe'h'}_{nm}(\boldsymbol{q}) + B^{e'h'eh}_{nm}(-\boldsymbol{q}) \tag{3.76}$$

entstehen. In Analogie zum H_2-Molekühl wird nun zwischen zwei elektronischen Spin-Konfigurationen unterschieden, der elektronischen Spin-Singulett-Konfiguration $b^{ehe'h'-}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}}$ und der elektronischen Spin-Triplett-Konfiguration $b^{ehe'h'+}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}}$. Diese Unterscheidung hat den Vorteil, daß dadurch die weiter unten einzuführende Hamilton-Matrix $H^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}')$ blockdiagonal bzgl. der z-Komponente des Gesamtdrehimpulses wird. Die beiden elektronischen Spin-Konfigurationen ergeben sich zu

$$b^{ehe'h'\lambda}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} = \frac{1}{2}\left(b^{ehe'h'}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} + \lambda\ b^{e'heh'}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}}\right), \tag{3.77}$$

wobei $\lambda = -1$ die antisymmetrische Linearkombination und $\lambda = +1$ die symmetrische Linearkombination bezeichnet. Durch Einsetzen von (3.75) in (3.77) ergibt sich:

$$\begin{aligned} b^{ehe'h'\lambda}_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q},\boldsymbol{k},\boldsymbol{k}',\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q}} = \sum_{mn}\Big[&\Phi_n(\boldsymbol{k}+\alpha\boldsymbol{q})\Phi_m(\boldsymbol{k}'+\beta\boldsymbol{q})b_{ehe'h'\lambda}(\boldsymbol{q}) \\ &- \lambda\Phi_n(\alpha\boldsymbol{k}'+\beta\boldsymbol{k})\Phi_m(\alpha\boldsymbol{k}+\beta\boldsymbol{k}'+\boldsymbol{q})b_{ehe'h'\lambda}(\boldsymbol{k}'-\boldsymbol{k})\Big], \end{aligned} \tag{3.78}$$

mit den Entwicklungskoeffizienten

$$b_{ehe'h'\lambda}(\boldsymbol{q}) = \frac{1}{2}\left[b^{ehe'h'}_{nm}(\boldsymbol{q}) + \lambda b^{e'heh'}_{nm}(\boldsymbol{q})\right]. \tag{3.79}$$

Wenn man in der Exziton-Basis den vollständigen Satz der Basiszustände berücksichtigt, ist die Rechnung noch aufwendiger als in der k-Basis. Es genügt jedoch, sich auf den Hauptbeitrag in Form der 1s-Exziton-Wellenfunktion ($n = m = 1$) zu beschränken, weil alle anderen gebundenen Zustände des Exzitons energetisch hinreichend weit entfernt liegen. Zur Abkürzung wird im Folgenden

$$p_{eh} \equiv P^{eh}_{1s} \qquad , \qquad \Phi(\boldsymbol{k}) \equiv \Phi_{1s}(\boldsymbol{k}) \tag{3.80}$$

benutzt. Durch Einsetzen der Gleichungen (3.77), (3.78) und (3.65) in die Gleichungen (3.13) und (3.16) ergibt sich die Bewegungsgleichung für den Entwicklungskoeffizienten der exzitonischen Übergangsamplitude

$$\begin{aligned} i\hbar\frac{d}{dt}\,p_{eh} = &\left(\epsilon_{eh}(0) - i\gamma_2\right)p_{eh} - \Omega_{eh}\,\tilde{\Phi}^*(0) \\ &+ \sum_{e'h'}\left[\,\Omega_{e'h}\,A\,p_{eh'}\,p^*_{e'h'} + \,\Omega_{eh'}\,A\,p_{e'h}\,p^*_{e'h'}\right] \\ &+ \sum_{e'h'} V^{HF}\,p_{e'h}\,p_{eh'}\,p^*_{e'h'} \\ &+ \sum_{e'h'\lambda\boldsymbol{q}'} p^*_{e'h'}\,W^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q}',0)\ b_{ehe'h'\lambda}(\boldsymbol{q}'), \end{aligned} \tag{3.81}$$

und die daran gekoppelten Bewegungsgleichungen für die Entwicklungskoeffizienten (3.79), welche über Gleichung (3.77) und (3.78) im Zusammenhang zur biexzitonischen Korrelationsfunktion stehen:

$$\begin{aligned} i\hbar\frac{d}{dt}b_{ehe'h'\lambda}(\boldsymbol{q}) = &\sum_{\boldsymbol{q}'} H^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}')b_{ehe'h'\lambda}(\boldsymbol{q}') - i\gamma_b b_{ehe'h'\lambda}(\boldsymbol{q}) \\ &+ \sum_{\boldsymbol{q}'} \frac{1}{2}\left(1-\lambda S\right)^{-1}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}')\, W^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q}',0) \\ &\qquad \times \left[p_{eh}p_{e'h'} + \lambda p_{e'h}p_{eh'}\right]. \end{aligned} \tag{3.82}$$

In diese Gleichungen gehen folgende die 1s-Exziton-Wellenfunktion $\Phi(\boldsymbol{k})$ enthaltende Matrixelemente ein:

Die Überlapp-Matrix

$$S(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}') = \sum_{\boldsymbol{k}} \Phi(\boldsymbol{k}+\alpha\boldsymbol{q})\,\Phi(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}'+\beta\boldsymbol{q})\,\Phi(\boldsymbol{k}+\alpha\boldsymbol{q}')\,\Phi(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{q}+\beta\boldsymbol{q}'), \tag{3.83}$$

der Pauli-Blocking-Beitrag

$$A = \sum_{\boldsymbol{k}} \Phi(\boldsymbol{k})\,\Phi(\boldsymbol{k})\,\Phi(\boldsymbol{k}), \tag{3.84}$$

die direkte Exziton-Exziton-Wechselwirkungs-Matrix

$$W^{C}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}') = V(\boldsymbol{q}-\boldsymbol{q}')M(\boldsymbol{q}-\boldsymbol{q}')\,M(\boldsymbol{q}'-\boldsymbol{q}), \tag{3.85}$$

mit

$$M(\boldsymbol{q}) = \sum_{\boldsymbol{k}} \Phi(\boldsymbol{k})\left[\Phi(\boldsymbol{k}+\beta\boldsymbol{q}) - \Phi(\boldsymbol{k}-\alpha\boldsymbol{q})\right], \tag{3.86}$$

und die Austausch-Exziton-Exziton-Wechselwirkungs-Matrix

$$\begin{aligned} W^{XC}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}') = &\sum_{\boldsymbol{k}\boldsymbol{k}'} V(\boldsymbol{k}-\boldsymbol{k}')\Phi(\boldsymbol{k}+\alpha(\boldsymbol{q}-\boldsymbol{q}'))\,\Phi(\boldsymbol{k}'+\beta(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}')) \\ &\times \Big[\Phi(\boldsymbol{k}) - \Phi(\boldsymbol{k}')\Big]\Big[\Phi(\boldsymbol{k}+\alpha(\boldsymbol{q}-\boldsymbol{q}')+\beta(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}')) \\ &\qquad - \Phi(\boldsymbol{k}'+\alpha(\boldsymbol{q}-\boldsymbol{q}')+\beta(\boldsymbol{q}+\boldsymbol{q}'))\Big]. \end{aligned} \tag{3.87}$$

Die in den Differentialgleichungen auftretende Matrix $W^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}')$ berechnet sich aus der Summe ($\lambda = 1$) bzw. Differenz ($\lambda = -1$) der direkten und der Austausch-Exziton-Exziton-Wechselwirkungs-Matrix:

$$W^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}') = W^{C}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}') + \lambda W^{XC}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}'). \tag{3.88}$$

Detaillierte Betrachtungen der direkten Exziton-Exziton-Wechselwirkungs-Matrix und der Austausch-Exziton-Exziton-Wechselwirkungs-Matrix finden sich in [58, 59]. Gleichung (3.82) hat formal die Gestalt einer inhomogenen Schrödinger-Gleichung für das aus vier Fermionen bestehende System in der Zwei-Exziton-Basis. Der effektive Zwei-Exziton-Hamiltonoperator ist durch

$$H_{\lambda}^{XX}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}') = 2\widetilde{E}_{1s}(\boldsymbol{q})\delta_{\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}'} + \sum_{\boldsymbol{k}} (1-\lambda S)^{-1}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{k}) W_{\lambda}^{XX}(\boldsymbol{k},\boldsymbol{q}') \tag{3.89}$$

gegeben und bestimmt die spektralen Eigenschaften der biexzitonischen Korrelationsfunktion, welche den gebundenen biexzitonischen Zustand und das Exziton-Exziton-Streukontinuum mit einschließt. Desweiteren bezeichnet $\tilde{\Phi}(0)$ den 1s-Beitrag der exzitonischen Wellenfunktion im Ortsraum am Ort $\boldsymbol{r} = \boldsymbol{0}$, welcher sich schreiben läßt als

$$\tilde{\Phi}(\boldsymbol{r}=\boldsymbol{0}) = \frac{1}{A}\sum_{\boldsymbol{k}} \Phi(\boldsymbol{k}), \tag{3.90}$$

und $\Omega_{eh} = \boldsymbol{d}^{eh}\boldsymbol{E}$ die freie Rabi-Energie. In Gleichung (3.81) geht als phänomenologische Konstante γ_2 ein, welche proportional zur inversen Dephasierungszeit T_2 ist. Eine weitere phänomenologische Dephasierungsrate ist durch γ_b für die biexzitonische Korrelationsfunktion eingeführt worden und wird wie in [58] $\gamma_b = 2\gamma_2$ gesetzt.

Die Koeffizienten $b_{ehe'h'\lambda}(\boldsymbol{q})$ werden nur benötigt, um den Koeffizienten p_{eh} zu berechnen. Mit diesem läßt sich wiederum die makroskopische Polarisation mit den Gleichungen (3.65) und (2.52) berechnen. Der Einfachheit halber wird im Folgenden p_{eh} als exzitonische Übergangsamplitude und $b_{ehe'h'\lambda}(\boldsymbol{q})$ als biexzitonische Korrelationsfunktion bezeichnet.

4. Optische Anregungen und ihre Realisierungen

Einleitung

In diesem Kapitel werden unterschiedliche Methoden betrachtet, mit denen die optische Anregung eines Halbleiters untersucht werden kann. Die numerischen Ergebnisse hierzu werden in Kapitel 5 für einen 5 nm dicken ZnSe-Quantenfilm vorgestellt.

Die einfachste Möglichkeit, einen Quantenfilm optisch anzuregen besteht darin, daß ein einzelner Puls auf die Probe trifft und in dieser eine makroskopische Polarisation erzeugt. Informationen über die Art der Anregung können dann aus dem transmittierten oder reflektierten optischen Feld gewonnen werden. Ein lineares Transmissionsspektrum (vgl. Abschnitt 2.2) erhält man, wenn die Intensität des anregenden Lichtpulses so gering ist, daß es genügt, die im Medium induzierte optische Polarisation bzw. die zugehörige Suszeptibilität nur in linearer Ordnung im optischen Feld zu betrachten.

In diesem und dem nächsten Kapitel ist die nichtlineare Optik Gegenstand der Untersuchung. Spektren nichtlinearer optischer Anregung lassen sich sowohl mit einem Lichtpuls als auch mit zwei Lichtpulsen, die aus zwei unterschiedlichen Raumrichtungen auf den Quantenfilm treffen, aufnehmen. Im letzteren Fall werden verschiedene Techniken unterschieden, je nachdem, ob man anschließend das transmittierte optische Feld in einer der Richtungen der einfallenden Pulse oder ein abgebeugtes optisches Feld in bestimmten Richtungen untersucht. Es handelt sich hierbei um die Pump-Test-Technik (engl.: pump and probe) bzw. um die Technik des Wellenmischens. Die zugrundeliegende Anregung beider Techniken ist folgendermaßen: Auf die Probe trifft zuerst ein sogenannter Pumppuls aus der Richtung $\boldsymbol{k}_1$, der nichtlineare Beiträge zur makroskopischen Polarisation im Medium liefert, die mindestens quadratisch im optischen Feld sind. Mit einer variablen Verzögerungszeit dazu folgt ein sogenannter Testpuls aus der Richtung $\boldsymbol{k}_2$. Die wichtigste Eigenschaft des Testpulses ist, daß dieser lineare Polarisationsbeiträge liefert und somit keine Besetzungsände-

rungen[1] in den beiden betrachteten Bändern hervorrufen kann. Der Testpuls wechselwirkt mit der pumpinduzierten Polarisation. Diese Wechselwirkung verändert das Transmissionssignal des Testpulses und erzeugt zusätzliche Signale in anderen Raumrichtungen.

In Abschnitt 4.2 wird die Technik des Vier-Wellen-Mischens (engl.: four wave mixing) vorgestellt. Sie ist eine wichtige Methode, um Nichtlinearitäten von mindestens dritter Ordnung im optisch anregenden Lichtfeld hintergrundfrei zu beobachten. Damit ist gemeint, daß es zum abgebeugten Signal keine linearen Beiträge gibt. Zur Untersuchung nichtlinearer Effekte ist dies besonders wichtig, da oft die nichtlinearen Beiträge zu einer optischen Meßgröße viel kleiner sind als die linearen Beiträge.

Weiterhin kann die Probe auch mit zwei Testpulsen aus einer Richtung und einem Pumppuls aus einer anderen Richtung angeregt werden. Diese Konfiguration wird für die kohärente Kontrolle benötigt und in Abschnitt 4.3 näher erläutert. Die Grundidee ist folgende: Man kontrolliert im kohärenten Regime durch destruktive bzw. konstruktive Interferenz die im Medium durch jeden einzelnen Puls erzeugte Polarisation zu einer Gesamtpolarisation. Die kohärente Kontrolle kann dann durch die Zeitverzögerung t_{int} der beiden Testpulse zueinander gesteuert werden.

Die Untersuchung von polarisations- und intensitätsabhängigen Vier-Wellen-Mischen (VWM) wird in Anhang B vorgestellt. Die Grundlage hierfür bilden die gekoppelten Bewegungsgleichungen der exzitonischen Übergangsamplitude und der biexzitonischen Korrelation in χ^3 (vgl. Abschnitt 3.2). Die Auswertung ihrer Dynamik ist jedoch selbstkonsistent erweitert bis zu einer beliebigen Ordnung im optischen Feld. Desweiteren wird keiner der beiden Pulse als schwach angenommen, womit die Unterscheidung zwischen Pump- und Testpuls entfällt.

Beschreibung der anregenden optischen Felder

Das gesamte elektrische Feld ist die Summe aus Pump- und Testfeld. Jedes dieser Felder kann dargestellt werden als

$$\boldsymbol{E}^{n_1 n_2}(t) = \tilde{\boldsymbol{E}}^{n_1 n_2}(t) f(t) e^{-i\Phi t/\tau_b}, \tag{4.1}$$

wobei mit $n_1 = 1$ und $n_2 = 0$ das Pumpfeld und mit $n_1 = 0$ und $n_2 = 1$ das Testfeld bezeichnet wird. Gleichung (4.1) ist in exzitonischen Einheiten aufgeführt und enthält die Feldamplitude $|\tilde{\boldsymbol{E}}^{n_1 n_2}(t)|$, eine einhüllende Funktion $f(t)$ und einen

[1] Vgl. Erklärungen zu den Halbleiter-Bloch-Gleichungen in Abschnitt 2.1 ab Seite 19.

Phasenfaktor $e^{-i\Phi t/\tau_b}$, der die Trägerschwingung beschreibt. Dabei ist $\tau_b = \frac{\hbar}{E_B^X}$ umgekehrt proportional zur Trägerfrequenz. Die einhüllende Funktion wird im folgenden als gaußförmig

$$f(t) = e^{-(t/a\tau_g)^2} \tag{4.2}$$

angenommen. Damit τ_g die Halbwertsbreite des Pulses auf halber Höhe des Maximums[2] angibt, folgt für die Konstante $a = (2 * \sqrt{\ln 2})^{-1} \approx 0.6$.

Die Orientierung der Wellenvektoren $\boldsymbol{k}_1$ und $\boldsymbol{k}_2$ gibt die Einfallsrichtungen der Pulse an:

$$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t) = \boldsymbol{E}_{\text{Pump}}(\boldsymbol{r},t) + \boldsymbol{E}_{\text{Test}}(\boldsymbol{r},t) = \boldsymbol{E}^{10}(t)e^{i\boldsymbol{k}_1\boldsymbol{r}} + \boldsymbol{E}^{01}(t)e^{i\boldsymbol{k}_2\boldsymbol{r}}. \tag{4.3}$$

Die exzitonische Übergangsamplitude und die biexzitonische Korrelationsfunktion[3] werden in entsprechende Fourierreihen mit verschiedenen Phasenfaktoren entwickelt:

$$p(\boldsymbol{r},t) = \sum_{\substack{n_1,n_2=-1 \\ n_1+n_2=1}}^{2} p^{n_1n_2}(t)\, e^{i(n_1\boldsymbol{k}_1+n_2\boldsymbol{k}_2)\boldsymbol{r}}, \tag{4.4}$$

$$b(\boldsymbol{r},t) = \sum_{\substack{n_1,n_2=0 \\ n_1+n_2=2}}^{2} b^{n_1n_2}(t)\, e^{i(n_1\boldsymbol{k}_1+n_2\boldsymbol{k}_2)\boldsymbol{r}}. \tag{4.5}$$

Die Einschränkungen in der Summation für $p(\boldsymbol{r},t)$ und $b(\boldsymbol{r},t)$ resultieren aus der Rotating Wave Approximation (RWA)[39]. Dies wird deutlich, wenn man den Hamiltonoperator der Licht-Materie-Wechselwirkung (2.26) für $\boldsymbol{q} = 0$ betrachtet. Das optische Feld ist durch

$$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t) = \text{Re}\left[\boldsymbol{E}_0(\boldsymbol{r},t)e^{i\omega t}\right] = \frac{1}{2}\left[\boldsymbol{E}_0(\boldsymbol{r},t)e^{i\omega t} + \boldsymbol{E}_0^*(\boldsymbol{r},t)e^{-i\omega t}\right] \tag{4.6}$$

gegeben. Dies wird in Gleichung (2.26) eingesetzt und die Zeitentwicklung der Operatoren im Wechselwirkungsbild $a_{\lambda\boldsymbol{k}s}(t) = a_{\lambda\boldsymbol{k}s}e^{-i\frac{1}{\hbar}\epsilon_{\boldsymbol{k}}^{\lambda}t}$ benutzt. Dann folgt

$$H_L = -\frac{1}{2}\sum_{\boldsymbol{k}s} \boldsymbol{d}\left[\boldsymbol{E}_0(\boldsymbol{r},t)c_{\boldsymbol{k}s}^{\dagger}v_{\boldsymbol{k}s}e^{i(\frac{1}{\hbar}\epsilon_{\boldsymbol{k}}^{c}-\frac{1}{\hbar}\epsilon_{\boldsymbol{k}}^{v}+\omega)t} + \boldsymbol{E}_0^*(\boldsymbol{r},t)c_{\boldsymbol{k}s}^{\dagger}v_{\boldsymbol{k}s}e^{i(\frac{1}{\hbar}\epsilon_{\boldsymbol{k}}^{c}-\frac{1}{\hbar}\epsilon_{\boldsymbol{k}}^{v}-\omega)t}\right] + \text{h.c.} \tag{4.7}$$

Da $\epsilon_{\boldsymbol{k}}^c - \epsilon_{\boldsymbol{k}}^v$ am Γ-Punkt gerade die Bandlückenenergie ist und die optische Anregung ebenfalls energetisch im Bereich der Bandlückenenergie liegt ($\hbar\omega \approx E_g$), beschreibt der erste Summand einen schnell oszillierenden nicht-resonanten Anteil und der zweite Summand einen im Vergleich zum ersten Summanden um drei Größenordnungen

[2] Engl.: Full Width at Half Maximum (FWHM).

[3] Abkürzende Sprechweise, vgl. Bemerkungen zu der Entwicklung nach exzitonischen Eigenfunktionen des Abschnitts 3.4.

langsamer oszillierenden resonanten Anteil des Hamiltonoperators H_L. Die RWA-Näherung besteht nun gerade darin, den nicht-resonanten Beitrag (erster Summand) zu vernachlässigen:

$$H_L = -\frac{1}{2}\sum_{\boldsymbol{ks}} \boldsymbol{d}\boldsymbol{E}_0^*(\boldsymbol{r},t)c_{\boldsymbol{ks}}^\dagger v_{\boldsymbol{ks}} e^{-i\omega t} + \boldsymbol{d}^*\boldsymbol{E}_0(\boldsymbol{r},t)v_{\boldsymbol{ks}}^\dagger c_{\boldsymbol{ks}} e^{i\omega t}. \tag{4.8}$$

Wie in Abbildung 4.1) gezeigt wird, setzt sich die exzitonische Übergangsamplitude in Abhängigkeit der Ordnung des optischen Feldes derart zusammen, daß die Ordnung in E_0 immer um 1 größer als die Ordnung in E_0^* ist[4]:

$$p(t) = \sum_n (E_0)^n (E_0^*)^{n-1}. \tag{4.9}$$

Für den Fall zweier aus unterschiedlichen Richtungen einfallender Pulse führt dies auf:

$$p(t) = \sum_n \left[E^{10}e^{i\boldsymbol{k}_1\boldsymbol{r}} + E^{01}e^{i\boldsymbol{k}_2\boldsymbol{r}}\right]^n \left[(E^{10})^* e^{-i\boldsymbol{k}_1\boldsymbol{r}} + (E^{01})^* e^{-i\boldsymbol{k}_2\boldsymbol{r}}\right]^{n-1}. \tag{4.10}$$

Dies läßt sich mit dem binomischen Satz weiter umschreiben,

$$\begin{aligned} p(t) =& \sum_n \sum_{p=0}^{n} \binom{n}{p} \left(E^{10}e^{i\boldsymbol{k}_1\boldsymbol{r}}\right)^{n-p} \left(E^{01}e^{i\boldsymbol{k}_2\boldsymbol{r}}\right)^{p} \\ & \times \sum_{p'=0}^{n-1} \binom{n-1}{p'} \left(E^{10^*}e^{-i\boldsymbol{k}_1\boldsymbol{r}}\right)^{n-1-p'} \left(E^{01^*}e^{-i\boldsymbol{k}_2\boldsymbol{r}}\right)^{p'} \\ =& \sum_{n,p,p'} \binom{n}{p}\binom{n-1}{p'} (E^{10})^{n-p}(E^{01})^p (E^{10^*})^{n-1-p'}(E^{01^*})^{p'} e^{in_1\boldsymbol{k}_1\boldsymbol{r}} e^{in_2\boldsymbol{k}_2\boldsymbol{r}}, \end{aligned} \tag{4.11}$$

mit $n_1 = p' - p + 1$ und $n_2 = p - p'$. Daraus ergibt sich die Einschränkung in der Summation in Gleichung (4.4) als $n_1 + n_2 = 1$.

Abbildung 4.1 zeigt am Beispiel eines $\chi^{(5)}$-Diagramms die Gültigkeit der Gleichung (4.9). Die exzitonische Übergangsamplitude hängt von einer ungeraden Anzahl von Ordnungen im optischen Feld ab. Mit Gleichung (3.28), den Erläuterungen auf Seite 42 im Abschnitt 3.3 und dem Hamiltonoperator (4.8) trägt das optische Feld bei einem Wechsel von einer Leitungsband-GF zu einer Valenzband-GF mit E_0^* und bei einem Wechsel von einer Valenzband-GF zu einer Leitungsband-GF mit E_0 bei.

Die Einschränkung der p-Summation schränkt wiederum die Summation für $b(\boldsymbol{r},t)$ nach (3.82) ein. Dazu betrachtet man das in $b^{n_1 n_2}(t)$ vorkommende Produkt $p^{m_1 m_2}(t)*$

[4] Vgl. Gleichung (2.66) der Halbleiter-Bloch-Gleichungen und Gleichung (3.13) des Bewegungsgleichungssystems in $\chi^{(3)}$.

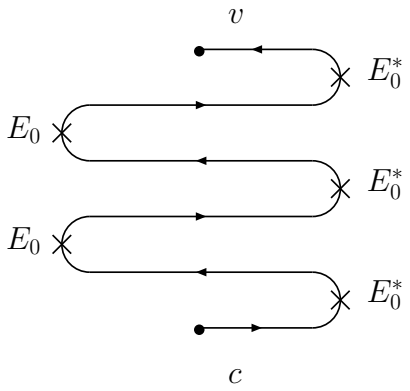

Abbildung 4.1.: Die Abhängigkeit der exzitonischen Übergangsamplitude von den Ordnungen im optischen Feld am Beispiel eines $\chi^{(5)}$-Diagramms.

$p^{m_3 m_4}(t)$, welches die Inhomogenität der Differentialgleichung (3.82) darstellt. Da nach Voraussetzung $\sum_{i=1}^{2} m_i = 1$ und $\sum_{i=3}^{4} m_i = 1$ ist, muß $\sum_{i=1}^{4} m_i = 2 = \sum_{i=1}^{2} n_i$ ergeben.

Die verschiedenen Möglichkeiten der optischen Anregung sind in Tabelle 4.1 zusammengefaßt. Da bei der selbstkonsistenten Erweiterung des VWM über $\chi^{(3)}$ hinaus

	Anregung			Detektion	Abschnitt
	$\boldsymbol{k}_2$	$\boldsymbol{k}_2$	$\boldsymbol{k}_1$		
lineares Spektrum	$\boldsymbol{E}_{\text{Test}}$			$\boldsymbol{k}_2$	2.2
Pump-Test-Technik	$\boldsymbol{E}_{\text{Test}}$		$\boldsymbol{E}_{\text{pump}}$	$\boldsymbol{k}_2$	4.1
VWM	$\boldsymbol{E}_{\text{Test}}$		$\boldsymbol{E}_{\text{pump}}$	$2\boldsymbol{k}_1 - \boldsymbol{k}_2$	4.2
SKE-VWM[5]	$\boldsymbol{E}_2$		$\boldsymbol{E}_1$	$2\boldsymbol{k}_1 - \boldsymbol{k}_2$	Anhang B
VWM & koh. Kontr.	$\boldsymbol{E}_{\text{Test}}$	$\boldsymbol{E}_{\text{Test}}$	$\boldsymbol{E}_{\text{pump}}$	$2\boldsymbol{k}_1 - \boldsymbol{k}_2$	4.3

Tabelle 4.1.: Übersicht über die verschiedenen Anregungs- und Detektionsmöglichkeiten.

die Intensitäten gleich sein können, werden die Felder in $\boldsymbol{k}_2$-Richtung ($\boldsymbol{k}_1$-Richtung) anstatt durch $\boldsymbol{E}_{\text{Test}}$ ($\boldsymbol{E}_{\text{pump}}$) mit $\boldsymbol{E}_2$ ($\boldsymbol{E}_1$) bezeichnet.

Lineare Anregung: Ko-linear und gekreuzt-linear

Die Anregung des Mediums erfolgt durch zwei optische Lichtfelder:

$$\boldsymbol{E} = \boldsymbol{E}_1 + \boldsymbol{E}_2 = E^{10}\boldsymbol{e}_1 e^{i\boldsymbol{k}_1\boldsymbol{r}} + E^{01}\boldsymbol{e}_2 e^{i\boldsymbol{k}_2\boldsymbol{r}}. \tag{4.12}$$

Der Phasenfaktor bestimmt die Einfallsrichtung und $\boldsymbol{e}_1$ ($\boldsymbol{e}_2$) den Polarisationsvektor des jeweiligen Pulses.

Lineare Polarisation läßt sich als Linearkombination von zirkularer Polarisation schreiben:

$$\boldsymbol{e}_x = \frac{1}{\sqrt{2}}(\boldsymbol{\sigma}_+ + \boldsymbol{\sigma}_-), \tag{4.13}$$

$$\boldsymbol{e}_y = \frac{-i}{\sqrt{2}}(\boldsymbol{\sigma}_+ - \boldsymbol{\sigma}_-). \tag{4.14}$$

Dieses Vorgehen wählt man, da für die zirkulare Polarisation die Auswahlregeln (vgl. Abschnitt 3.4) bekannt sind. Damit sei mit $\boldsymbol{e}_1 = \boldsymbol{e}_x$ der $\boldsymbol{k}_1$-Puls o.B.d.A. in der x-Richtung polarisiert. Den Polarisationsvektor des $\boldsymbol{k}_2$-Pulses kann man nun als Linearkombination aus linearer Polarisation in x-Richtung und y-Richtung ansetzen:

$$\boldsymbol{e}_2 = c(x_0\boldsymbol{e}_x + y_0\boldsymbol{e}_y). \tag{4.15}$$

Durch Einsetzen von Gleichung (4.13) und (4.14) in Gleichung (4.15) und Bestimmung der Konstanten c über die Normierung des Einheitsvektors folgt

$$\boldsymbol{e}_2 = a^+\boldsymbol{\sigma}_+ + a^-\boldsymbol{\sigma}_-, \tag{4.16}$$

wobei $a^\pm = \frac{x_0 \mp i y_0}{\sqrt{2({x_0}^2+{y_0}^2)}}$ ist. Mit $\tan\phi = \frac{y_0}{x_0}$ läßt sich ein beliebiger Winkel im Bereich $0^\circ \leq \phi < 90^\circ$ wählen. Dazu gibt man den Winkel und ein x_0 vor und bestimmt das zugehörige y_0. Hierin sind natürlich die Spezialfälle der ko-linearen Polarisation ($y_0 = 0$) und der gekreuzt-linearen Polarisation ($x_0 = 0$) enthalten.

4.1. Pump-Test-Technik

Wie in der Einleitung von Kapitel 4 beschrieben, kann man mit der Pump-Test-Technik in $\boldsymbol{k}_2$-Richtung ein nichtlineares Transmissionsspektrum aufnehmen. Aus den Gleichungen (4.4) und (4.5) werden hier nur folgende Summanden benötigt:

$$p = p^{10}e^{i\boldsymbol{k}_1\boldsymbol{r}} + p^{01}e^{i\boldsymbol{k}_2\boldsymbol{r}}, \tag{4.17}$$

[5] Selbstkonsistente Erweiterung des Vier-Wellen-Mischens über $\chi^{(3)}$ hinaus.

$$b = b^{11} e^{i(\boldsymbol{k}_1+\boldsymbol{k}_2)\boldsymbol{r}}. \tag{4.18}$$

Alle weiteren Summanden der Reihen (4.4) und (4.5) tragen nur in anderen Richtungen, wie z.B. den VWM-Richtungen $2\boldsymbol{k}_1 - \boldsymbol{k}_2$ bzw. $2\boldsymbol{k}_2 - \boldsymbol{k}_1$ bei. Für die Pump-Test-Technik werden die Differentialgleichungen für p^{10}, p^{01} und b^{11} numerisch gelöst, wobei sich der zur makroskopischen Polarisation in Transmissionsrichtung beitragende Anteil der exzitonischen Übergangsamplitude p^{01} als Summe aus einem linearen Beitrag ${}^{l}p^{01}_{eh}$ und einem nichtlinearen Beitrag ${}^{nl}p^{01}_{eh}$ zusammensetzt. Die Abkürzungen l und nl geben an, ob p linear bzw. nichtlinear vom optischen Feld abhängt.

$\sigma^+\sigma^+$-Anregung

Das Einsetzen von (4.17) in (3.81), (4.18) in (3.82) und das Sortieren nach Phasenfaktoren liefert sowohl für $\sigma^+\sigma^+$-Anregung als auch für $\sigma^+\sigma^-$-Anregung ein Bewegungsgleichungssystem. An dieser Stelle wird zunächst die $\sigma^+\sigma^+$-Anregung näher besprochen, um anschließend nur noch auf die Unterschiede zur $\sigma^+\sigma^-$-Anregung einzugehen. Aus der Tatsache, daß es hier nur zwei mögliche optische Übergänge gibt folgt die Vorgehensweise bei der Summation der z-Komponenten des Gesamtdrehimpulses. Dies sei an einem Beispiel verdeutlicht. In der Bewegungsgleichung für die exzitonische Übergangsamplitude in Transmissionsrichtung gibt es unter anderem folgenden Beitrag:

$$i\hbar\frac{d}{dt}\,{}^{nl}p^{01}_{eh} = \sum_{e'h'} \Omega^{01}_{e'h} A\; {}^{l}p^{10}_{eh'}\; {}^{l}p^{10}_{e'h'}{}^{*} + \cdots \tag{4.19}$$

Die z-Komponenten der Gesamtdrehimpulse der Elektronen e (Löcher h) sind durch ${}^{nl}p^{01}_{eh}$ so festgelegt, daß sie nach den Auswahlregeln (vgl. Abschnitt 3.4) einem der beiden möglichen Übergänge vom Valenz- ins Leitungsband durch rechts- bzw. linkszirkular polarisiertem Licht entsprechen. Daraus folgt aus der Summation über e' für $\Omega^{01}_{e'h}$, daß für den Elektronenspin $e' = e$ gilt, da alle anderen Übergänge aufgrund der Auswahlregeln verboten sind. Unter Berücksichtigung der Summation der z-Komponenten der Gesamtdrehimpulse ergibt sich folgendes Differentialgleichungssystem:

$$i\hbar\frac{d}{dt}\,{}^{l}p^{10}_{eh} = (\epsilon_{eh}(0) - i\gamma_2)\;{}^{l}p^{10}_{eh} - \;\Omega^{10}_{eh}\,\tilde{\Phi}^*(0), \tag{4.20}$$

$$i\hbar\frac{d}{dt}\,{}^{l}p^{01}_{eh} = (\epsilon_{eh}(0) - i\gamma_2)\;{}^{l}p^{01}_{eh} - \;\Omega^{01}_{eh}\,\tilde{\Phi}^*(0), \tag{4.21}$$

$$
\begin{aligned}
i\hbar\frac{d}{dt}\ {}^{nl}p^{01}_{eh} = &(\epsilon_{eh}(0) - i\gamma_2)\ {}^{nl}p^{01}_{eh} - \ \Omega^{01}_{eh}\ \tilde{\Phi}^*(0) \\
&+ 2\,\Omega^{01}_{eh}\,A\ {}^{l}p^{10}_{eh}\ {}^{l}p^{10^*}_{eh} + 2\,\Omega^{10}_{eh}\,A\ {}^{l}p^{01}_{eh}\ {}^{l}p^{10^*}_{eh} \\
&+ 2\,V^{HF}\ {}^{l}p^{01}_{eh}\ {}^{l}p^{10}_{eh}\ {}^{l}p^{10^*}_{eh} \\
&+ \sum_{\lambda\,\boldsymbol{q}'}\ {}^{l}p^{10^*}_{eh}\,W^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q}',0)\ b^{11}_{eheh\lambda}(\boldsymbol{q}'),
\end{aligned}
\tag{4.22}
$$

$$
\begin{aligned}
i\hbar\frac{d}{dt}\,b^{11}_{eheh\lambda}(\boldsymbol{q}) = &\sum_{\boldsymbol{q}'} H^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}')\,b^{11}_{eheh\lambda}(\boldsymbol{q}') - i\gamma_b\,b^{11}_{eheh\lambda}(\boldsymbol{q}) \\
&+ \sum_{\boldsymbol{q}'}\frac{1}{2}\,(1-\lambda S)^{-1}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}')\,W^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q}',0) \\
&\qquad \times \left[2\ {}^{l}p^{01}_{eh}\ {}^{l}p^{10}_{eh} + 2\lambda\ {}^{l}p^{01}_{eh}\ {}^{l}p^{10}_{eh}\right].
\end{aligned}
\tag{4.23}
$$

Die zweite und dritte Zeile der Gleichung (4.22) sind die Hartree-Fock-Nichtlinearitäten (vgl. Gleichung (3.13) und Erläuterungen im Text in Abschnitt 3.2). Desweiteren ist b^{11}_{eheh-} für alle Zeiten Null, da für $\lambda = -1$ der Quellterm der Differentialgleichung verschwindet.

$\sigma^+\sigma^-$-Anregung

Für die $\sigma^+\sigma^-$-Anregung ergeben sich gegenüber der $\sigma^+\sigma^+$-Anregung nur Änderungen im nichtlinearen Anteil der exzitonischen Übergangsamplitude

$$
\begin{aligned}
i\hbar\frac{d}{dt}\ {}^{nl}p^{01}_{eh} = &(\epsilon_{eh}(0) - i\gamma_2)\ {}^{nl}p^{01}_{eh} - \ \Omega^{01}_{eh}\ \tilde{\Phi}^*(0) \\
&+ \sum_{\lambda\,\boldsymbol{q}'}\ {}^{l}p^{10^*}_{eh}\,W^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q}',0)\ b^{11}_{eheh\lambda}(\boldsymbol{q}')
\end{aligned}
\tag{4.24}
$$

und in der biexzitonischen Korrelationsfunktion

$$
\begin{aligned}
i\hbar\frac{d}{dt}\,b^{11}_{eheh\lambda}(\boldsymbol{q}) = &\sum_{\boldsymbol{q}'} H^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}')\,b^{11}_{eheh\lambda}(\boldsymbol{q}') - i\gamma_b\,b^{11}_{eheh\lambda}(\boldsymbol{q}) \\
&+ \sum_{\boldsymbol{q}'}\frac{1}{2}\,(1-\lambda S)^{-1}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}')\,W^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q}',0)\ {}^{l}p^{01}_{eh}\ {}^{l}p^{10}_{eh}.
\end{aligned}
\tag{4.25}
$$

Die Ursache für die fehlenden Hartree-Fock-Terme in Gleichung (4.24) ist, daß in der Hartree-Fock-Näherung unterschiedliche Spinsubsysteme nicht gekoppelt werden.

Aus der Gesamtheit aller möglichen z-Komponenten des Gesamtdrehimpulses für das Leitungs- und Valenzband werden diejenigen Paare, welche nach den Auswahlregeln (vgl. Abschnitt 3.4) durch einen mit σ_-- oder σ_+-Licht angeregten optischen Übergang gehören, als Spinsubsystem bezeichnet. Die Hartree-Fock-Nichtlinearitäten und die biexzitonischen Nichtlinearitäten in Gleichung (4.22) setzen sich aus Beiträgen zusammen, in denen das optische Feld in dritter Ordnung eingeht. Diese enthalten ein Produkt aus drei Faktoren, die jeweils proportional zum optischen Feld sind. Insbesondere gehen die Felder in $\boldsymbol{k}_1$-Richtung durch zwei zueinander komplex konjugierte Felder quadratisch ein. Da die Phasenfaktoren der Summanden in der Differentialgleichung die Richtung angeben, trägt in (4.22) die $\boldsymbol{k}_1$-Richtung nicht bei und es bleibt die $\boldsymbol{k}_2$-Richtung übrig.

Man erkennt an den obigen Gleichungen, daß man ein lineares Transmissionsspektrum für den Spezialfall eines verschwindenden Pumppulses erhält. Dafür verschwinden sowohl für σ_-- als auch für σ_+-Licht der Quellterm für die biexzitonische Übergangsamplitude und die Quellterme der nichtlinearen exzitonischen Übergangsamplitude.

4.2. Vier-Wellen-Mischen

Die Dynamik des Vier-Wellen-Mischens ergibt sich für die $(2\boldsymbol{k}_1 - \boldsymbol{k}_2)$-Richtung aus den exzitonischen Übergangsamplituden p^{10}, p^{01} und p^{2-1} und der biexzitonischen Korrelationsfunktion b^{20}. Die Herleitung ist analog zu der in Abschnitt 4.1. Das optische Feld setzt sich jetzt nicht wie in Gleichung (4.3) aus zwei Beiträgen zusammen, sondern aufgrund der Berücksichtigung von Propagationseffekten (vgl. Abschnitt 2.2) aus je einem zusätzlichen Beitrag für die VWM-Richtungen $2\boldsymbol{k}_1 - \boldsymbol{k}_2$ bzw. $2\boldsymbol{k}_2 - \boldsymbol{k}_1$:

$$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t) = \sum_{\substack{n_1,n_2=-1 \\ n_1+n_2=1}}^{2} \boldsymbol{E}^{n_1 n_2}(t)\, e^{i(n_1\boldsymbol{k}_1+n_2\boldsymbol{k}_2)\boldsymbol{r}}. \tag{4.26}$$

Dabei werden mit $\boldsymbol{E}^{2-1}$ bzw. $\boldsymbol{E}^{-12}$ die optischen Felder in den VWM-Richtungen bezeichnet.

Zirkulare Polarisation

Im Fall der ko-zirkularen Anregung $\sigma^+\sigma^+$ gibt es zwei lineare Anteile zur exzitonischen Übergangsamplitude in den beiden Pulsrichtungen $\boldsymbol{k}_1$ und $\boldsymbol{k}_2$,

$$i\hbar\frac{d}{dt}\ {}^{l}p^{10}_{eh} = (\epsilon_{eh}(0) - i\gamma_2)\ {}^{l}p^{10}_{eh} - \ \Omega^{10}_{eh}\,\tilde{\Phi}^*(0), \tag{4.27}$$

$$i\hbar\frac{d}{dt}\ {}^{l}p^{01}_{eh} = (\epsilon_{eh}(0) - i\gamma_2)\ {}^{l}p^{01}_{eh} - \ \Omega^{01}_{eh}\,\tilde{\Phi}^*(0), \tag{4.28}$$

einen nichtlinearen Anteil in der VWM-Richtung $2\boldsymbol{k}_1 - \boldsymbol{k}_2$,

$$\begin{aligned} i\hbar\frac{d}{dt}\ {}^{nl}p^{2-1}_{eh} =& (\epsilon_{eh}(0) - i\gamma_2)\ {}^{nl}p^{2-1}_{eh} - \Omega^{2-1}_{eh}\tilde{\Phi}^*(0) \\ &+ 2\,\Omega^{10}_{eh}\,A\ {}^{l}p^{10}_{eh}\ {}^{l}p^{01\,*}_{eh} \\ &+ 2\,V^{HF}\ {}^{l}p^{10}_{eh}\ {}^{l}p^{10}_{eh}\ {}^{l}p^{01\,*}_{eh} \\ &+ \sum_{\lambda\,\boldsymbol{q}'}\ {}^{l}p^{01\,*}_{eh}\,W^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q}',0)\ b^{20}_{eheh\lambda}(\boldsymbol{q}'), \end{aligned} \tag{4.29}$$

und einen Beitrag der biexzitonischen Korrelationsfunktion,

$$\begin{aligned} i\hbar\frac{d}{dt}\,b^{20}_{eheh\lambda}(\boldsymbol{q}) =& \sum_{\boldsymbol{q}'}\ H^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}')\,b^{20}_{eheh\lambda}(\boldsymbol{q}') - i\gamma_b\,b^{20}_{eheh\lambda}(\boldsymbol{q}) \\ &+ \sum_{\boldsymbol{q}'}\frac{1}{2}\,(1-\lambda S)^{-1}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}')\,W^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q}',0) \\ &\quad\times\left[\ {}^{l}p^{10}_{eh}\ {}^{l}p^{10}_{eh} + \lambda\ {}^{l}p^{10}_{eh}\ {}^{l}p^{10}_{eh}\right]. \end{aligned} \tag{4.30}$$

Hierbei bezeichnet Ω^{2-1}_{eh} die freie Rabi-Energie, in der das optische Feld in Richtung $2\boldsymbol{k}_1 - \boldsymbol{k}_2$ enthalten ist. Der zugehörige Term in Gleichung (4.29) existiert nur bei der Berücksichtigung von Propagationseffekten (vgl. Abschnitt 2.2).

Bei der $\sigma^+\sigma^-$-Anregung verschwindet der Quellterm in der Differentialgleichung für b. Daher ist b zu allen Zeiten Null. Da aber das b für diese Anregung der einzige Quellterm der Differentialgleichung für p ist, bleibt auch das p zu allen Zeiten Null. Im Medium liegt also für die $\sigma^+\sigma^-$-Anregung keine makroskopische Polarisation in $(2\boldsymbol{k}_1 - \boldsymbol{k}_2)$- Richtung vor und es wird kein optisches Feld in diese Richtung transmittiert.

Lineare Polarisation

Zur theoretischen Beschreibung zweier linear polarisierter optischer Felder, deren zugehörige Polarisationsvektoren einen beliebigen Winkel miteinander einschließen,

benötigt man im Prinzip die Gleichungen (4.27) bis (4.30). Diese werden jetzt jedoch nach den beiden möglichen zirkularen Anregungen unterschieden. Daraus ergeben sich 4 lineare Differentialgleichungen der exzitonischen Übergangsamplitude,

$$i\hbar\frac{d}{dt}\ {}^{l}p_{eh}^{10(+)} = (\epsilon_{eh}(0) - i\gamma_2)\ {}^{l}p_{eh}^{10(+)} - \ \Omega_{eh}^{10}\,\tilde{\Phi}^{*}(0), \tag{4.31}$$

$$i\hbar\frac{d}{dt}\ {}^{l}p_{eh}^{10(-)} = (\epsilon_{eh}(0) - i\gamma_2)\ {}^{l}p_{eh}^{10(-)} - \ \Omega_{eh}^{10}\,\tilde{\Phi}^{*}(0), \tag{4.32}$$

$$i\hbar\frac{d}{dt}\ {}^{l}p_{eh}^{01(+)} = (\epsilon_{eh}(0) - i\gamma_2)\ {}^{l}p_{eh}^{01(+)} - \ \Omega_{eh}^{10}\,\tilde{\Phi}^{*}(0), \tag{4.33}$$

$$i\hbar\frac{d}{dt}\ {}^{l}p_{eh}^{01(-)} = (\epsilon_{eh}(0) - i\gamma_2)\ {}^{l}p_{eh}^{01(-)} - \ \Omega_{eh}^{10}\,\tilde{\Phi}^{*}(0), \tag{4.34}$$

zwei nichtlineare in VWM-Richtung,

$$\begin{aligned} i\hbar\frac{d}{dt}\ {}^{nl}p_{eh}^{2-1(+)} = &(\epsilon_{eh}(0) - i\gamma_2)\ {}^{nl}p_{eh}^{2-1(+)} - \Omega_{eh}^{2-1(+)}\tilde{\Phi}^{*}(0) \\ &+ 2\,\Omega_{eh}^{10(+)}\,A\ {}^{l}p_{eh}^{10(+)}\ {}^{l}p_{eh}^{01(+)^{*}} \\ &+ V^{HF}\ {}^{l}p_{eh}^{10(+)}\ {}^{l}p_{eh}^{10(+)}\ {}^{l}p_{eh}^{01(+)^{*}} \\ &+ \sum_{\lambda\,\boldsymbol{q}'}\ {}^{l}p_{eh}^{01(+)^{*}}\,W_{\lambda}^{XX}(\boldsymbol{q}',0)\ b_{ehe h\lambda}^{20(++)}(\boldsymbol{q}') \\ &+ \sum_{\lambda\,\boldsymbol{q}'}\ {}^{l}p_{e'h'}^{01(-)^{*}}\,W_{\lambda}^{XX}(\boldsymbol{q}',0)\ b_{ehe'h'\lambda}^{20(+-)}(\boldsymbol{q}'), \end{aligned} \tag{4.35}$$

$$\begin{aligned} i\hbar\frac{d}{dt}\ {}^{nl}p_{eh}^{2-1(-)} = &(\epsilon_{eh}(0) - i\gamma_2)\ {}^{nl}p_{eh}^{2-1(-)} - \Omega_{eh}^{2-1(-)}\tilde{\Phi}^{*}(0) \\ &+ 2\,\Omega_{eh}^{10(-)}\,A\ {}^{l}p_{eh}^{10(-)}\ {}^{l}p_{eh}^{01(-)^{*}} \\ &+ V^{HF}\ {}^{l}p_{eh}^{10(-)}\ {}^{l}p_{eh}^{10(-)}\ {}^{l}p_{eh}^{01(-)^{*}} \\ &+ \sum_{\lambda\,\boldsymbol{q}'}\ {}^{l}p_{e'h'}^{01(+)^{*}}\,W_{\lambda}^{XX}(\boldsymbol{q}',0)\ b_{ehe'h'\lambda}^{20(-+)}(\boldsymbol{q}') \\ &+ \sum_{\lambda\,\boldsymbol{q}'}\ {}^{l}p_{eh}^{01(-)^{*}}\,W_{\lambda}^{XX}(\boldsymbol{q}',0)\ b_{ehe h\lambda}^{20(--)}(\boldsymbol{q}'), \end{aligned} \tag{4.36}$$

und die vier Bewegungsgleichungen für die biexzitonische Korrelationsfunktion,

$$\begin{aligned} i\hbar\frac{d}{dt}\,b_{ehe h\lambda}^{20(++)}(\boldsymbol{q}) = &\sum_{\boldsymbol{q}'}\ H_{\lambda}^{XX}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}')\,b_{ehe h\lambda}^{20(++)}(\boldsymbol{q}') - i\gamma_b\,b_{ehe h\lambda}^{20(++)}(\boldsymbol{q}) \\ &+ \sum_{\boldsymbol{q}'}\frac{1}{2}\,(1-\lambda S)^{-1}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}')\,W_{\lambda}^{XX}(\boldsymbol{q}',0) \\ &\quad\times\left[\ {}^{l}p_{eh}^{10(+)}\ {}^{l}p_{eh}^{10(+)} + \lambda\ {}^{l}p_{eh}^{10(+)}\ {}^{l}p_{eh}^{10(+)}\right], \end{aligned} \tag{4.37}$$

$$i\hbar\frac{d}{dt}\,b^{20(+-)}_{eheh\lambda}(\boldsymbol{q}) = \sum_{\boldsymbol{q}'} H^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}')\,b^{20(+-)}_{eheh\lambda}(\boldsymbol{q}') - i\gamma_b\,b^{20(+-)}_{eheh\lambda}(\boldsymbol{q}) + \sum_{\boldsymbol{q}'}\frac{1}{2}\,(1-\lambda S)^{-1}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}')\,W^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q}',0) \times\left[\,{}^{l}p^{10(+)}_{eh}\;{}^{l}p^{10(-)}_{e'h'}\right], \tag{4.38}$$

$$i\hbar\frac{d}{dt}\,b^{20(-+)}_{eheh\lambda}(\boldsymbol{q}) = \sum_{\boldsymbol{q}'} H^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}')\,b^{20(-+)}_{eheh\lambda}(\boldsymbol{q}') - i\gamma_b\,b^{20(-+)}_{eheh\lambda}(\boldsymbol{q}) + \sum_{\boldsymbol{q}'}\frac{1}{2}\,(1-\lambda S)^{-1}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}')\,W^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q}',0) \times\left[\,{}^{l}p^{10(-)}_{eh}\;{}^{l}p^{10(+)}_{e'h'}\right], \tag{4.39}$$

$$i\hbar\frac{d}{dt}\,b^{20(--)}_{eheh\lambda}(\boldsymbol{q}) = \sum_{\boldsymbol{q}'} H^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}')\,b^{20(--)}_{eheh\lambda}(\boldsymbol{q}') - i\gamma_b\,b^{20(--)}_{eheh\lambda}(\boldsymbol{q}) + \sum_{\boldsymbol{q}'}\frac{1}{2}\,(1-\lambda S)^{-1}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}')\,W^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q}',0) \times\left[\,{}^{l}p^{10(-)}_{eh}\;{}^{l}p^{10(-)}_{eh} + \lambda\;{}^{l}p^{10(-)}_{eh}\;{}^{l}p^{10(-)}_{eh}\right]. \tag{4.40}$$

Die vorgestellten gekoppelten Bewegungsgleichungen können im $\chi^{(3)}$-Regime gelöst werden. Die Intensität in VWM-Richtung berechnet aus den optischen Feldern $E^{2-1(+)}$ und $E^{2-1(-)}$ in diese Richtung zu

$$I_{\mathrm{VWM}} = |E^{2-1(+)}|^2 + |E^{2-1(-)}|^2. \tag{4.41}$$

In Abschnitt 5.3 wird ein Theorie-Experiment-Vergleich für das VWM vorgenommen. Dies geschieht für spezielle Anregungsbedingungen, d.h. die Intensität des den Quantenfilm anregenden Lasers ist so groß, daß $\chi^{(5)}$-Effekte wichtig werden. Deshalb werden die Gleichungen (4.31) bis (4.40) im Anhang B selbstkonsistent erweitert.

4.3. Kohärente Kontrolle

In diesem Abschnitt wird der Begriff der kohärenten Kontrolle der Polarisation im Medium eingeführt, welche man z.B. in Verbindung mit der Vier-Wellen-Misch-Technik auswerten kann. Es treffen zwei optische Lichtpulse aus $\boldsymbol{k}_2$-Richtung und

ein optischer Lichtpuls aus $\boldsymbol{k}_1$-Richtung auf das Medium und erzeugen jeweils eine makroskopische Polarisation im Medium. Die $\boldsymbol{k}_2$-Pulse sind zueinander um t_{int} und der $\boldsymbol{k}_1$-Puls ist zum ersten $\boldsymbol{k}_2$-Puls um t_{del} verzögert. Diese Anregungssituation ist in Abbildung 4.2 dargestellt. Im kohärenten Regime treffen die beiden über t_{int} phasengekoppelten $\boldsymbol{k}_2$-Pulse auf den Festkörper. Diese erzeugen kohärente Polarisationen im Medium. Je nach Phasenlage zwischen den beiden Pulsen interferieren die Polarisationen konstruktiv oder destruktiv miteinander. Dadurch läßt sich die Gesamtpolarisation im Medium abschwächen oder verstärken. Dieses Vorgehen ist nur im kohärenten Zeitregime anwendbar, weil sonst die im Medium erzeugte makroskopische Polarisation durch die in der Einleitung beschriebenen inkohärenten Effekte, wie z.B. der Streuung der Ladungsträger untereinander, zerstört wird.

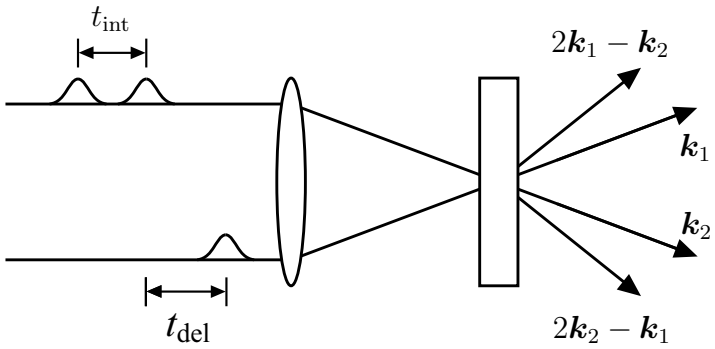

Abbildung 4.2.: Skizze zur kohärenten Kontrolle

Die Polarisation ist jedoch nicht die einzige Größe, die sich kohärent kontrollieren läßt. Weiterhin lassen sich auch exzitonische Besetzungen und exzitonische Spin-Orientierungen kohärent kontrollieren [1]. Darauf wird in dieser Arbeit jedoch nicht eingegangen.

5. Diskussion der Ergebnisse

Einleitung

In diesem Kapitel werden Ergebnisse zum Vier-Wellen-Mischen (VWM) vorgestellt. Die Auswirkung der Lichtpolarisation auf das VWM-Spektrum wird in Abschnitt 5.1 diskutiert. Es werden dabei sowohl linear als auch zirkular polarisierte Lichtpulse in Betracht gezogen, welche den Quantenfilm optisch anregen. Im darauffolgenden Abschnitt 5.2 wird die kohärente Kontrolle der makroskopischen Polarisation im Medium anhand verschiedener Anregungssituationen besprochen. Der letzte Abschnitt 5.3 beschäftigt sich mit polarisations- und intensitätsabhängigem VWM. Die theoretischen Ergebnisse werden dort mit experimentellen Ergebnissen verglichen. In den ersten beiden Abschnitten werden die in Kapitel 4 vorgestellten Bewegungsgleichungen für das VWM im $\chi^{(3)}$-Regime zur numerischen Berechnung der Ergebnisse herangezogen. Zur Beschreibung bestimmter nichtlinearer Effekte, die nur in höheren als der dritten Ordnung im optischen Feld auftreten, wird in Abschnitt 5.3 das Bewegungsgleichungssystem über $\chi^{(3)}$ hinaus benutzt (vgl. Abschnitt 4.2).

5.1. Vier-Wellen-Misch-Spektren für verschiedene Lichtpolarisationen

In diesem Abschnitt werden VWM-Spektren in $(2\boldsymbol{k}_1 - \boldsymbol{k}_2)$-Richtung für verschiedene Lichtpolarisationen der zwei optischen Felder aus den Richtungen $\boldsymbol{k}_1$ und $\boldsymbol{k}_2$ gezeigt. Die theoretischen Grundlagen hierfür sind in Abschnitt 4.2 vorgestellt worden. Der Pumppuls (Testpuls) hat eine Rabi-Energie von $\Omega^{10} = 0.06$ ($\Omega^{01} = 10^{-4}$) in Einheiten der Rydberg-Energie des 3d-Exzitons E_B^X. In Abbildung 5.1 sind spektral aufgelöste VWM-Spektren für einen 5 nm ZnSe Quantenfilm dargestellt.

Diese erhält man durch Lösung der Differentialgleichungen (4.27) - (4.30) bzw. (4.31) - (4.40) und anschließender Fouriertransformation des zeitaufgelösten VWM-Signals in ein spektral aufgelöstes VWM-Signal. Um das Biexziton gut sehen zu können ist

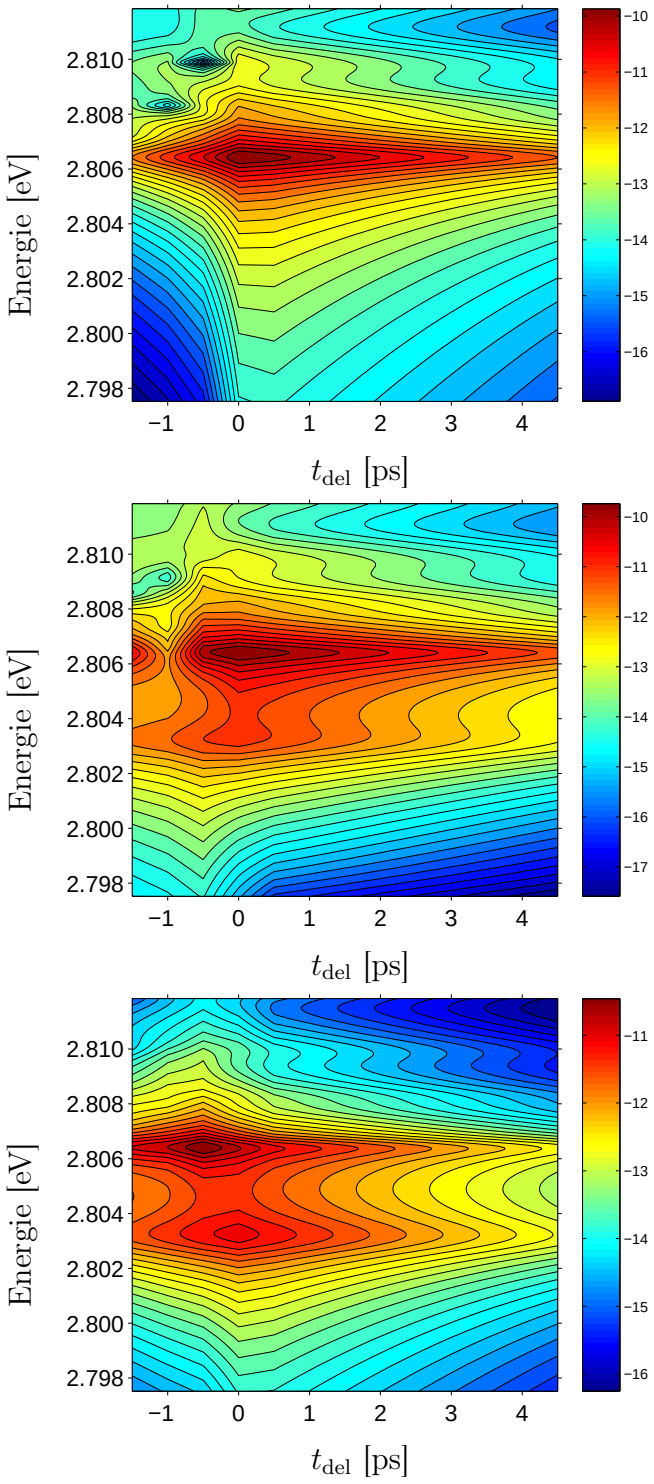

Abbildung 5.1.: Spektral aufgelöstes VWM-Signal in Abhängigkeit von der Verzögerungszeit t_{del} zwischen den anregenden Lichtpulsen. Von oben nach unten wurde mit ko-zirkularer, ko-linearer und gekreuzt-linearer Polarisation der Lichtpulse auf der spektralen Position der biexzitonischen Resonanz angeregt.

das VWM-Signal logarithmisch aufgetragen. Die Anregung mit zwei Pulsen mit einer Halbwertsbreite von 169.7 fs erfolgt zentral auf der Biexzitonresonanz bei 2.8031 eV. In jedem dieser drei Bilder ist das VWM-Signal in willkürlichen Einheiten über der Energie (entsprechend der Fouriertransformation) für verschiedene Verzögerungszeiten t_{del} aufgetragen. Von oben nach unten handelt es sich um ko-zirkulare, ko-lineare und gekreuzt-lineare Anregung. Die exzitonische Resonanz liegt bei 2.8064 eV und die biexzitonische Resonanz liegt unter der exzitonischen Resonanz bei 2.8031 eV. Daraus ergibt sich eine Biexzitonbindungsenergie von $E_B^{\mathrm{XX}} = 3.3$ meV. Bei der ko-zirkularen und ko-linearen Anregung ist das Exziton stark und für gekreuzt-lineare Anregung schwach ausgebildet. Das gebundene Biexziton ist für ko-zirkulare Anregung nicht, für ko-lineare und gekreuzt-lineare Anregung gut zu erkennen. Im Fall der gekreuzt-linearen Anregung ist die VWM-Intensität an der Stelle der biexzitonischen Resonanz sogar unwesentlich schwächer als die VWM-Intensität an der exzitonischen Resonanz. Dies ist für einen Schnitt bei $t_{\mathrm{del}} = 0$ parallel zur Energie-Achse besonders gut zu erkennen und in Abbildung 5.2 dargestellt.

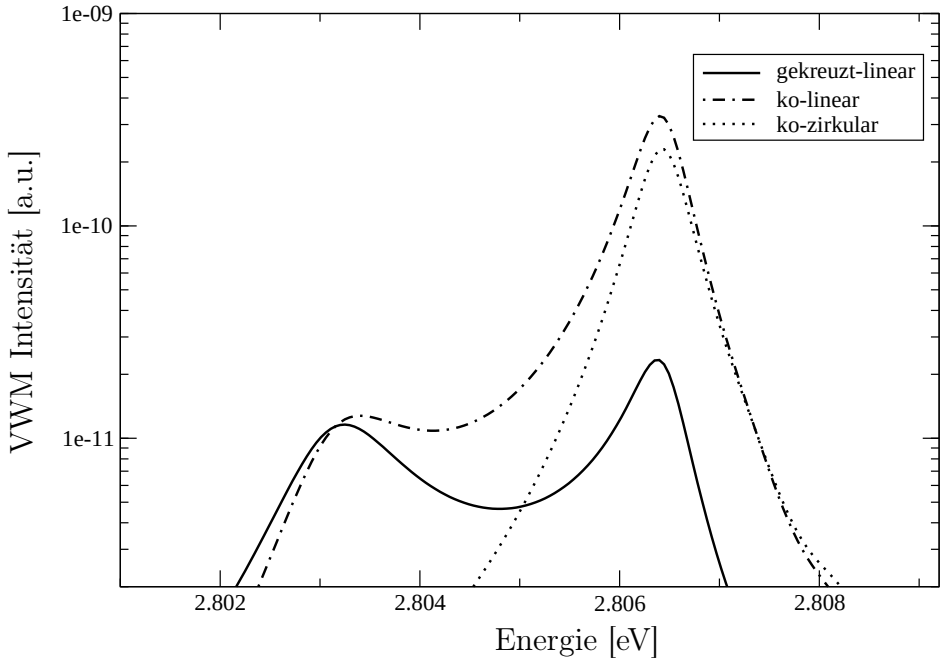

Abbildung 5.2.: Schnitte parallel zur Energie-Achse für $t_{\mathrm{del}} = 0$ ps für alle drei Lichtpolarisationen aus Abbildung 5.1.

Die beobachtete Abhängigkeit der Stärke der biexzitonischen Resonanz von der Lichtpolarisation ist in guter Übereinstimmung mit experimentellen Ergebnissen von H. G. Breunig [60].

5.2. Kohärente Kontrolle

Nachdem das Prinzip der kohärenten Kontrolle in Abschnitt 4.3 erklärt worden ist, muß für die numerische Berechnung zwischen den Möglichkeiten unterschieden werden, in welcher Reihenfolge die optischen Pulse auf den Quantenfilm treffen. Dies ist in Abbildung 5.3 skizziert. Dort treffen unabhängig vom Betrag der Zeiten t_{int} und t_{del} im Fall b) der einzelne Puls und im Fall c) das Pulspaar zuerst auf den Quantenfilm. In den Abbildungen 5.3 a) und d) hingegen, für den Fall, daß $|t_{\mathrm{int}}| > |t_{\mathrm{del}}|$ ist, liegt der einzelne Puls zwischen den beiden Pulsen. Nur für $|t_{\mathrm{int}}| < |t_{\mathrm{del}}|$ erreicht in Abbildung 5.3 a) der einzelne Puls und in 5.3 d) das Pulspaar zuerst den Quantenfilm.

Zunächst sind die in Abbildung 5.3 gezeigten Fälle für einen festen Betrag von $|t_{\mathrm{del}}| = 0.3$ ps und einem vom Betrag festen Zeitintervall von $|t_{\mathrm{int}}| = [0.623, 0.629]$ ps in Abbildung 5.4 für gekreuzt-lineare Anregung dargestellt. Für diese Art der Anregung ist das Biexziton besonders gut zu sehen (vgl. Diskussion zu Abbildung 5.1).

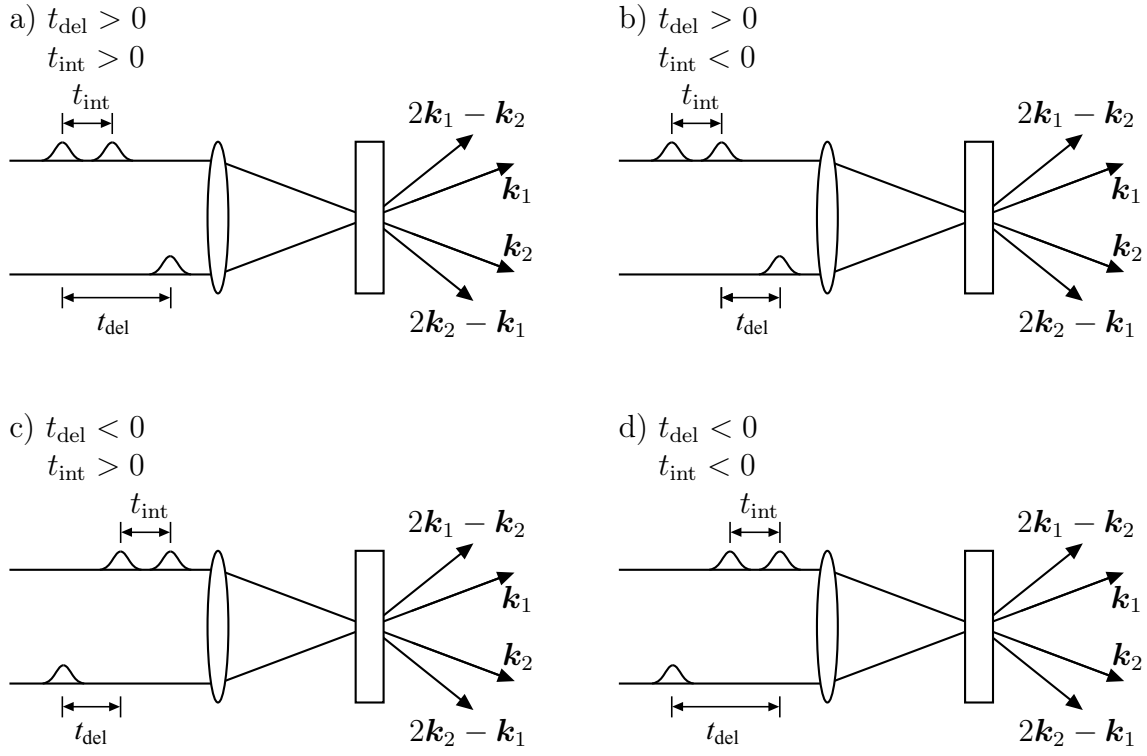

Abbildung 5.3.: Reihenfolge, in der die Pulse auf den Quantenfilm treffen.

Bei allen vorgestellten numerischen Rechnungen für einen 5 nm ZnSe Quantenfilm

beträgt die Rabi-Energie in Einheiten der Rydberg-Energie E_B^X des 3d-Exzitons für den Pumppuls $\Omega^{10} = 0.06$ und den Testpuls $\Omega^{01} = 10^{-4}$. Abbildung 5.4 zeigt Konturdiagramme für die Intensität des VWM-Signals in $(2\boldsymbol{k}_1 - \boldsymbol{k}_2)$-Richtung, welches über die Energie und die Verzögerungszeit t_{int} des phasengekoppelten Pulspaares aufgetragen ist. Die spektrale Position des Maximums der anregenden Pulse liegt auf der biexzitonischen Resonanz. Ausgehend von Abbildung 5.4 b), für welche die größte Phasenverschiebung zwischen der exzitonischen und biexzitonischen Resonanz auftritt, verkleinert sich diese, wenn, wie in Abbildung 5.4 a) und d), der einzelne Puls zwischen dem Pulspaar liegt. Wenn das Pulspaar vor dem einzelnen Puls die Probe erreicht (vgl. c) in Abbildung 5.4) tritt keine Phasenverschiebung auf. Dieses Verhalten ist von T. Voß [61] experimentell bestätigt worden.

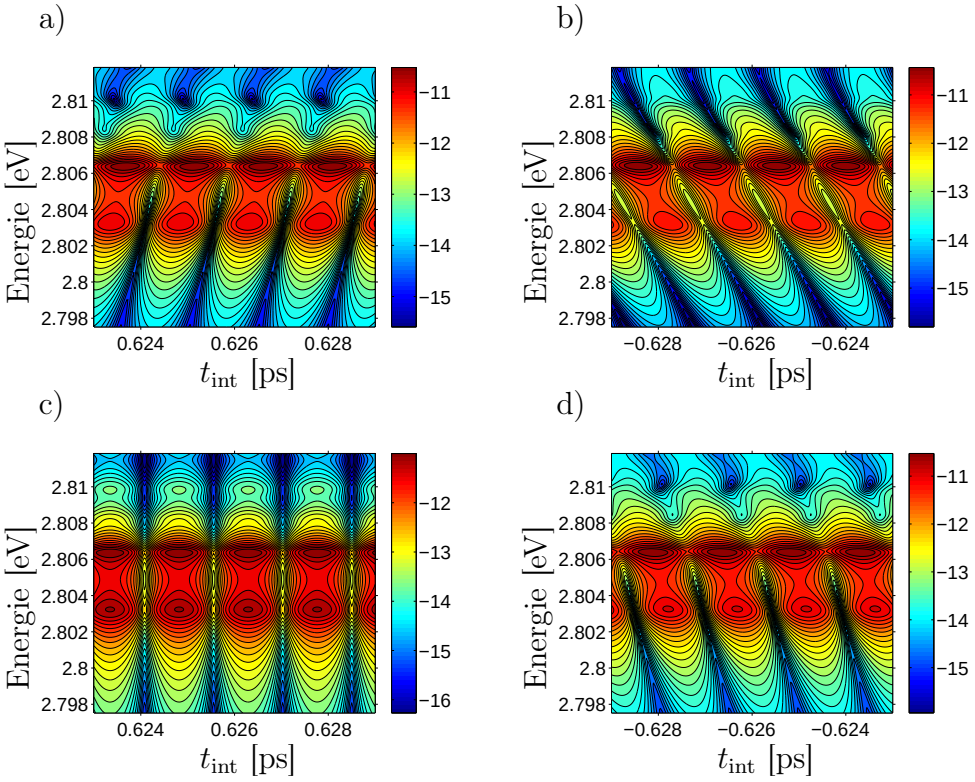

Abbildung 5.4.: Konturdarstellung zum kohärent kontrollierten VWM für eine Verzögerungszeit $|t_{\text{del}}| = 0.3$ ps. Die Reihenfolge der Pulse und Vorzeichen der Zeiten t_{del} und t_{int} ist entsprechend Abbildung 5.3 a) - d) gewählt. Die logarithmische Farbskala gibt die Intensität des VWM-Signals an.

Von besonderem Interesse sind gedachte Schnitte parallel zur t_{int}-Achse an der Stelle der exzitonischen und biexzitonischen Resonanz. Die Ursache der dort auftretenden

Oszillationen ist, daß durch die Änderung der Phasenlage zwischen dem Pulspaar über t_{int} abwechselnd die makroskopischen Polarisationen im Quantenfilm destruktiv und konstruktiv überlagert werden. Der Abstand zwischen den Maxima und Minima beträgt ungefähr 0.75 fs. Wählt man eine feste Verzögerungszeit t_{int}, so daß zu dieser Zeit an der energetischen Position des Exzitons die Intensität des VWM-Signals maximal ist, so liegt dieses Maximum nicht notwendigerweise über dem Maximum an der energetischen Position des Biexzitons. Die damit verbundene Phasenverschiebung hängt natürlich von den Verzögerungszeiten t_{del} und t_{int} ab. Der energetische

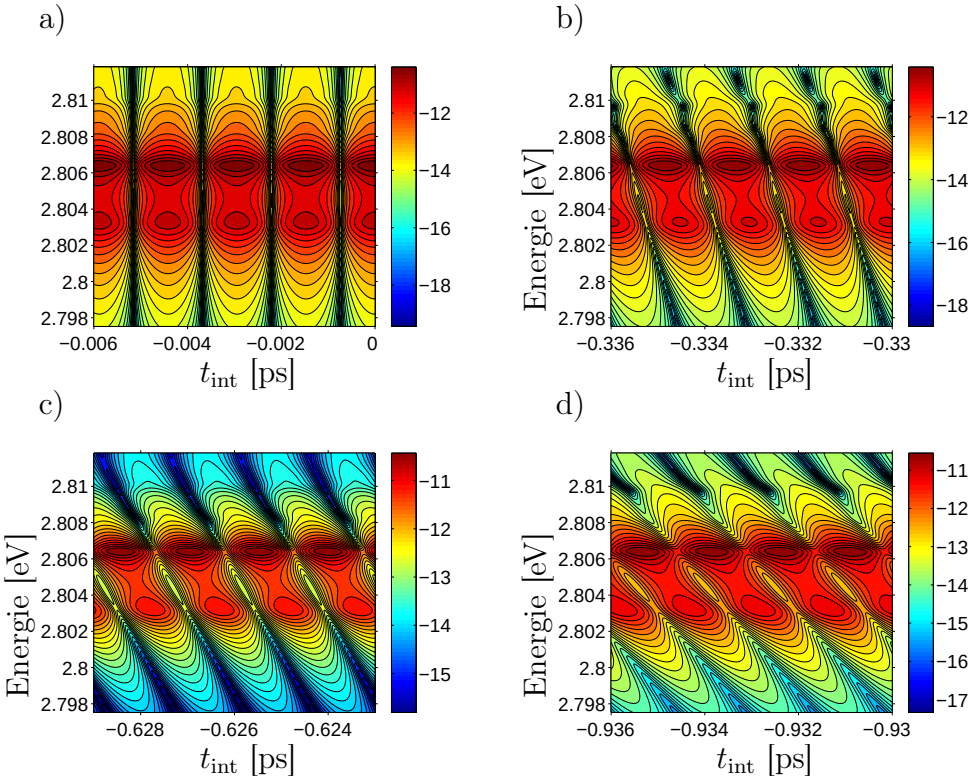

Abbildung 5.5.: Konturdarstellung zum kohärent kontrollierten VWM für eine Verzögerungszeit $t_{\text{del}} = +0.3$ ps. Die Reihenfolge der Pulse und Vorzeichen der Zeiten t_{del} und t_{int} ist entsprechend Abbildung 5.3 b) gewählt. Die logarithmische Farbskala gibt die Intensität des VWM-Signals an.

Abstand zwischen der exzitonischen und biexzitonischen Resonanz entspricht der Biexziton-Bindungsenergie E_B^{XX}.

In Abbildung 5.5 wird bei einer fest vorgegebenen Verzögerungszeit $t_{\text{del}} = 0.3$ ps die Zeit t_{int} variiert und somit die Phasenlage zwischen der exzitonischen Resonanz und der biexzitonischen Resonanz geändert. Die Reihenfolge, in welcher die optischen

Pulse auf den Quantenfilm treffen, entspricht der aus Abbildung 5.3 b). Für den Spezialfall, daß die Phasenverschiebung zwischen der exzitonischen und biexzitonischen Energie so gewählt ist, daß das Maximum an der energetischen Position des Exzitons über dem Minimum der energetischen Position des Biexzitons liegt, läßt sich die makroskopische Gesamtpolarisation im Quantenfilm optimal kohärent kontrollieren. Somit kann man gezielt das transmittierte optische Feld in $(2\boldsymbol{k}_1 - \boldsymbol{k}_2)$-Richtung auf der spektralen Position des Biexzitons für eine feste Zeit t_{int} maximal verstärken, während es minimal auf der energetischen Position des Exzitons wird.

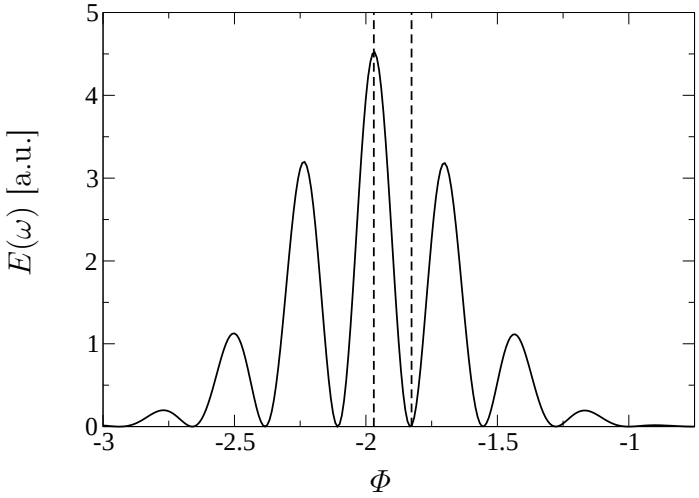

Abbildung 5.6.: Fouriertransformation des aus zwei Pulsen bestehenden Anregungsfeldes in $\boldsymbol{k}_2$-Richtung für $t_{\mathrm{int}} = -0.6271$ fs. Die Verstimmung ist durch $\Phi = \frac{\hbar\omega - E_g}{E_B^X}$ gegeben. Die linke (rechte) senkrechte Linie kennzeichnet die energetische Position der biexzitonischen (exzitonischen) Resonanz.

Abbildung 5.6 zeigt die Fouriertransformation der beiden phasengekoppelten Pulse aus der $\boldsymbol{k}_2$-Richtung für $t_{\mathrm{int}} = -0.6271$ fs. Diese Zeit entspricht einer Phasenverschiebung $\Delta\varphi = \pi$ und berechnet sich gemäß dem energetischen Abstand E_B^{XX} zwischen der exzitonischen und biexzitonischen Resonanz aus

$$\Delta\varphi = \frac{E_B^{\mathrm{XX}}}{\hbar} t_{\mathrm{int}}. \tag{5.1}$$

Die linke (rechte) senkrechte Linie kennzeichnet die energetische Position der biexzitonischen (exzitonischen) Resonanz. Man erkennt, daß für den Fall $\Delta\varphi = \pi$ die biexzitonische Resonanz maximal angeregt wird, während die exzitonische Resonanz gar nicht angeregt wird. Maximale Phasenverschiebung bedeutet, daß ein Minimum der exzitonischen Resonanz über einem Maximum der biexzitonischen Resonanz liegt und umgekehrt. Die Fouriertransformation der beiden phasengekoppelten Pulse ist

jedoch nur ein Baustein zum Verständnis der VWM-Signale bei der kohärenten Kontrolle. Die reale Situation im Quantenfilm ist komplizierter, denn erstens werden im Quantenfilm die Polarisationen und nicht die optischen Felder überlagert. Zweitens zerfällt die vom ersten Puls erzeugte Polarisation bis der zweite Puls wiederum eine Polarisation anregt, und drittens müssen die Propagationseffekte berücksichtigt werden. Einen Beleg dafür, daß die tatsächliche Situation im Quantenfilm komplizierter ist, findet man z.B. bei einem Schnitt parallel zur t_{int}-Achse auf der energetischen Position des Biexzitons (vgl. d) in Abbildung 5.5), der keine symmetrische Form des Maximums liefert.

5.3. Polarisations- und Intensitätsabhängiges Vier-Wellen-Mischen

In diesem Abschnitt wird für einen einzelnen ZnSe Quantenfilm die Intensitäts- und Polarisationsabhängigkeit eines spektral aufgelösten transienten VWM-Signals (TVWM-Signals[1]) untersucht und ein Vergleich zwischen Theorie und Experiment vorgestellt. In [62] werden VWM-Messungen mit zwei auf den Halbleiter auftreffenden Pulsen gleicher Intensität präsentiert und mit den Ergebnissen eines theoretischen Modells von Smirl et al. [63] verglichen. Dieses Modell benutzt eine phänomenologische Behandlung der Korrelationseffekte, um die optischen Bloch-Gleichungen [64] zu erweitern und damit z.B. Licht-Polarisations-Zustände mit transienten Vier-Wellen-Misch-Experimenten [63, 65, 66] oder anregungsinduzierte Resonanzverschiebungen mit TVWM [67] zu beschreiben. In früheren Untersuchungen der Polarisationsabhängigkeit in TVWM-Experimenten [48] wurde ein festes Intensitätsverhältnis der beiden einfallenden Pulse benutzt. Hierzu wurde von Langbein et al. [48] eine mikroskopische eindimensionale Tight-Binding-Theorie in $\chi^{(5)}$ vorgestellt, wobei die damit berechneten numerischen Ergebnisse mit den Experimenten übereinstimmen. Andererseits konnten für erhöhte Intensitäten verschiedene Aspekte in kürzlich durchgeführten TVWM-Experimenten [62], in denen zwei einfallende Pulse gleicher Intensität verwendet wurden, nicht mit den erweiterten optischen Bloch-Gleichungen erklärt werden.

Im Folgenden wird der Einfluß sowohl der Intensität als auch der Polarisation der beiden einfallenden Pulse systematisch untersucht. Das zugrundeliegende Modell basiert auf den Bewegungsgleichungen für die exzitonische Übergangsamplitude (3.13) und die biexzitonische Korrelationsfunktion (3.16), welche nach der DCT-Theorie alle Coulomb-Wechselwirkungen bis zur 3. Ordnung im optischen Feld enthalten. Die-

[1] Engl.: Transient four wave mixing

se Bewegungsgleichungen werden zunächst in die Exziton-Basis transformiert (vgl. (3.81) und (3.82)) und dann für das VWM-Signal zweier linear polarisierter Pulse ausgewertet (vgl. (4.31) bis (4.40)). Um bzgl. der Intensität erhöhte Anregungsbedingungen richtig zu beschreiben, wird die numerische Berechnung der kohärenten Dynamik selbstkonsistent erweitert (vgl. Anhang B), so daß die exzitonischen und biexzitonischen Nichtlinearitäten bis zu einer beliebigen Ordnung im optischen Feld beitragen. Das führt auf 8 Bewegungsgleichungen für die exzitonische Übergangsamplitude und 28 Bewegungsgleichungen für die biexzitonische Übergangsamplitude, welche selbstkonsistent inklusive der Propagationseffekte gelöst werden müssen (siehe Anhang B). Mit dieser Vorgehensweise sind natürlich nur Unterklassen der Nichtlinearitäten in fünfter und höherer Ordnung enthalten. Die mikroskopischen Berechnungen reproduzieren jedoch sowohl das experimentell beobachtete intensitätsabhängige Auftreten der Exziton-Biexziton-Oszillationen als auch deren Polarisationsabhängigkeit für höhere Intensitäten.

Experiment

Die theoretischen Ergebnisse dieser Arbeit sollen im Folgenden mit Experimenten von Lars Wischmeier et al. aus der Arbeitsgruppe von Prof. J. Gutowski, Institut für Festkörperphysik der Universität Bremen verglichen werden. In diesen Experimenten wird ein frequenzverdoppelter Ti:Saphir Laser als Quelle zur Erzeugung eines zeitintegrierten VWM Signals verwendet. Der Laser emittiert 110 fs Pulse mit einer Wiederholungsrate von 82 MHz. Das VWM Signal wird von zwei Pulsen mit einer variablen Verzögerungszeit generiert, die auf der Probe aus den Richtungen $\boldsymbol{k}_1$ und $\boldsymbol{k}_2$ überlagert werden. Eine positive Verzögerungszeit bedeutet, daß dem Puls aus $\boldsymbol{k}_1$-Richtung der aus $\boldsymbol{k}_2$-Richtung vorausgeht. Beide Pulse sind linear polarisiert und die zugehörigen Polarisationsvektoren schließen einen Winkel ϕ_{pol} ein. Die Intensität kann für jeden Puls einzeln variiert werden. Das spektral aufgelöste VWM-Signal in $(2\boldsymbol{k}_2-\boldsymbol{k}_1)$-Richtung wird mit einer Kombination aus einem Spektrometer und einer mit flüssigem Stickstoff gekühlten CCD (charge-coupled device)-Kamera aufgenommen. Die Detektion des Signals erfolgt nicht polarisationsabhängig. Die zentrale Anregungsenergie des Pulses liegt 5 meV unterhalb der gebundenen biexzitonischen Resonanz, um damit ausschließlich das Schwerloch Exziton-Biexziton-System anzuregen. Der Leicht-Loch-Übergang ist aufgrund von Ladungsträgereinschluß und Verspannungen zu höheren Energien verschoben. Der verwendete 10 nm $ZnSe/ZnS_{0.07}Se_{0.93}$ Quantenfilm ist mittels Molekularstrahlepitaxie (engl. Molecular Beam Epitaxy, MBE) auf einem GaAs Substrat gewachsen worden. Für Experimente in Transmissionsgeometrie wird die Probe anschließend von dem Substrat entfernt, auf einer Glasplatte aufgebracht und in einem Kryostaten auf 4 K gekühlt.

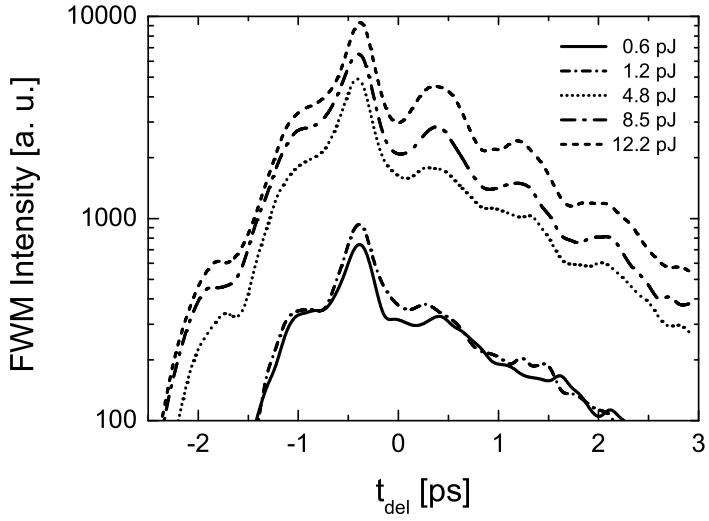

Abbildung 5.7.: Experiment: VWM-Signal vs. Verzögerungszeit für verschiedene Intensitäten des $\boldsymbol{k}_1$-Pulses auf der spektralen Position der exzitonischen Resonanz. Beide Pulse sind linear polarisiert und schließen einen Winkel $\phi_{\mathrm{pol}} = 75°$ ein. Die Energie des $\boldsymbol{k}_1$-Pulses wird von 0.6 bis 12.2 pJ variiert, während die Energie des $\boldsymbol{k}_1$-Pulses auf 12.2 pJ festgehalten ist

Abbildung 5.7 zeigt die Intensitätsabhängigkeit des VWM-Signals auf der spektralen Position der exzitonischen Resonanz gegenüber der Verzögerungszeit für einen Winkel $\phi_{\mathrm{pol}} = 75°$ zwischen den beiden einfallenden Pulsen. Für diesen Winkel ist das VWM-Signal an der exzitonischen Resonanz am besten zu sehen [62]. Während die Intensität des $\boldsymbol{k}_1$-Pulses variiert wird, bleibt die Intensität des $\boldsymbol{k}_2$-Pulses immer konstant auf dem höchsten verwendeten Wert.

Für niedrige Intensitäten des $\boldsymbol{k}_1$-Pulses beobachtet man aufgrund der simultanen Anregung der exzitonischen und biexzitonischen Zustände nur für negative Verzögerungszeiten t_{del} Oszillationen für das exzitonische VWM-Signal. Das Verhalten für niedrige Intensitäten ist konsistent mit dem Smirl-Modell [63]. Jedoch treten für höhere Intensitäten auch Oszillationen für positive Verzögerungszeiten auf, was nicht mit den erweiterten optischen Bloch-Gleichungen erklärt werden kann.

In Abbildung 5.8 wird das detektierte VWM-Signal für verschiedene Anregungsintensitäten aber jeweils gleicher Intensität beider Pulse gegenüber der Verzögerungszeit aufgetragen. Bei abfallender Intensität nehmen die Oszillationen für positive Verzö-

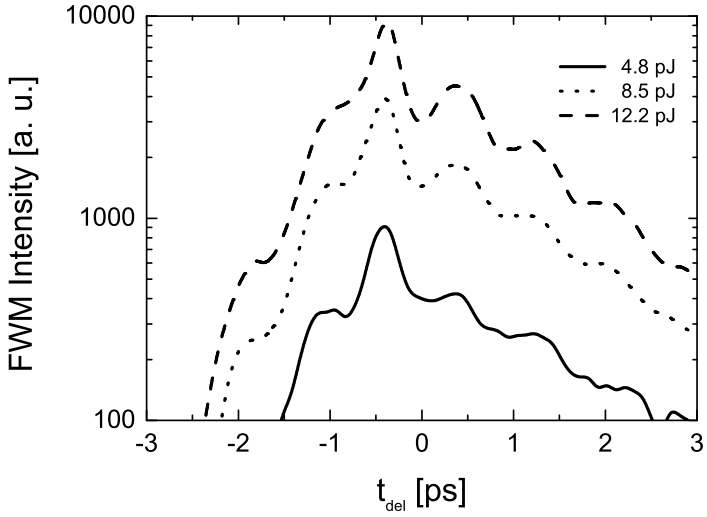

Abbildung 5.8.: Experiment: VWM-Signal vs. Verzögerungszeit für gleiche Intensitäten beider Pulse, welche linear polarisiert sind und einen Winkel von $\phi_{\mathrm{pol}} = 75°$ einschließen. Die Pulsenergien sind von 4.8 bis 12.2 pJ variiert worden. Die Signal-Detektion ist an der spektralen Position der exzitonischen Resonanz.

gerungszeit ab, während die Struktur der Oszillationen für negative Verzögerungszeiten nahezu unverändert bleibt. Dieses Verhalten zeigt, daß Oszillationen für negative Verzögerungszeiten sogar schon im $\chi^{(3)}$-Limes auftreten, welcher für geringe Intensitäten erreicht wird. Es werden keine Oszillationen an der spektralen Position der biexzitonischen Resonanz gefunden (auf eine Abbildung hierzu wurde verzichtet).

Die Ergebnisse für die Variation des Winkels ϕ_{pol} zwischen den beiden Polarisationsrichtungen der beiden Pulse von 90° (gekreuzt-lineare Anregung) bis 0° (ko-lineare Anregung) bei einer festen Puls-Energie von 8.5 pJ und gleicher Intensität beider Pulse sind in dem Hauptteil (Inset) der Abbildung 5.9 für die Detektion an der spektralen Position der exzitonischen (biexzitonischen) Resonanz gezeigt. Erhöht man den Winkel ϕ_{pol} von 0° bis 90°, verschwinden die Exziton-Biexziton Oszillationen für negative Verzögerungszeiten, während für positive Verzögerungszeiten die Oszillationen mit größer werdendem Winkel ϕ_{pol} ansteigen und die Dephasierungszeiten abfallen. Auch die Signalamplitude hängt stark von ϕ_{pol} ab. Man erhält nur leichte Oszillationen für den ko-linearen Fall an der biexzitonischen Resonanz.

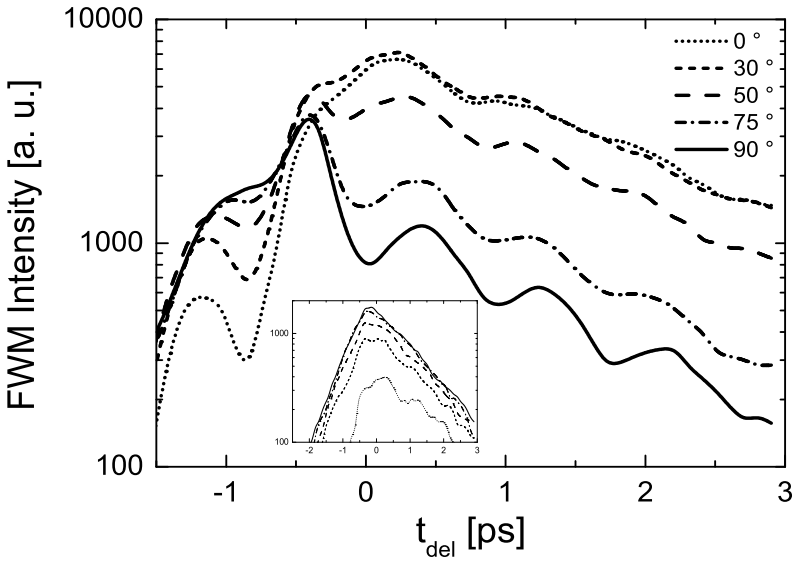

Abbildung 5.9.: Experiment: VWM-Signal vs. Verzögerungszeit für gleiche Intensitäten aber unterschiedlichen Winkeln zwischen den Polarisationsvektoren der beiden Pulse. Das Signal wird an der spektralen Position der exzitonischen Resonanz (Hauptteil) oder der biexzitonischen Resonanz (Inset) detektiert. Beide Pulsenergien betragen jeweils 8.5 pJ.

Numerische Resultate und Diskussion

Die folgenden vier Abbildungen zeigen das spektral aufgelöste VWM-Signal in $2\boldsymbol{k}_2 - \boldsymbol{k}_1$-Richtung auf der spektralen Position der exzitonischen Resonanz, welches gegenüber der Verzögerungszeit der beiden externen Pulse aufgetragen ist. In allen Abbildungen (außer Abbildung 5.12) sind die zwei einfallenden Pulse linear polarisiert (mit einem eingeschlossenen Winkel von 75°).

An dieser Stelle muß erwähnt werden, daß aufgrund der Beschränkung auf 1s-Zustände der Eigenfunktionsentwicklung die Biexzitonenbindungsenergie systematisch etwas zu klein ausfällt. Dies kann jedoch durch kleinere Quantenfilmdicken im Vergleich zum Experiment kompensiert werden[2], um die passenden Modulationsfrequenzen und die richtigen spektralen Positionen zu erhalten.

Um durch die Angabe der freien Rabi-Energie dE in den folgenden Abbildungen

[2]Kleinere Quantenfilmdicken führen zu einer Einschränkung der Beweglichkeit der Elektronen und Löcher, die das Biexziton bilden, wodurch der Einfluß der Coulombwechselwirkung größer wird. Vergleichbar hierzu ist die Exzitonbindungsenergie aus gleichen Gründen von der Quantenfilmdicke abhängig (vgl. Abbildung 2.2)

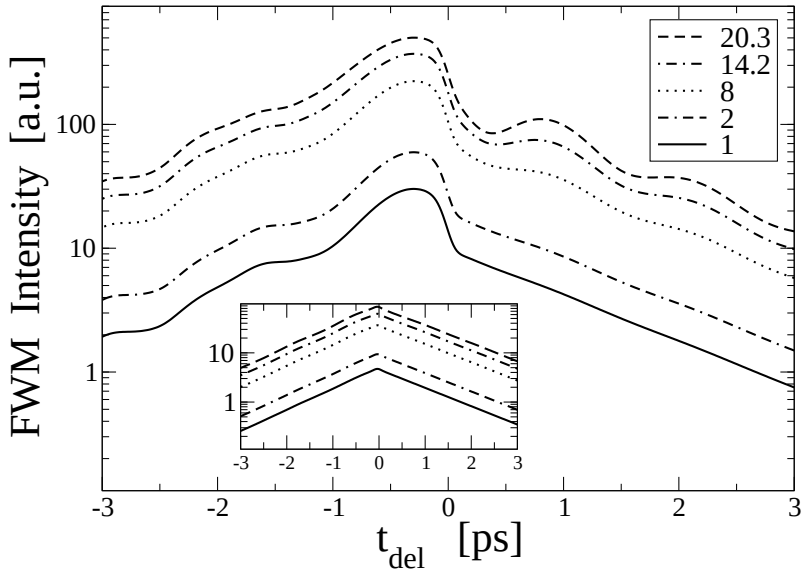

Abbildung 5.10.: Theoretisches Ergebnis für die gleichen Anregungs- und Detektionsbedingungen wie in Abbildung 5.7 für verschiedene normalisierte Intensitäten des $\boldsymbol{k}_1$-Pulses. Die niedrigste Intensität entspricht einer Rabi-Energie von $dE/E_B^X = 2.2 \cdot 10^{-3}$ in Einheiten der Rydberg-Energie des 3d-Exzitons E_B^X. Zusätzlich ist im Inset das VWM-Signal an der spektralen Position der biexzitonischen Rsonanz dargestellt.

eine Information über die Anregungsintensität zu erhalten, ist es für lineare Lichtpolarisation im Gegensatz zur zirkularen Lichtpolarisation zweckmäßig, das Produkt der Beträge von $\boldsymbol{d}$ und $\boldsymbol{E}$ zu betrachten. Die bisher verwendete Angabe in Form des Skalarproduktes $\boldsymbol{dE}$ würde hier, je nach Wahl des Dipolvektors (vgl. Auswahlregeln in Abschnitt 3.4) und des Feldstärkevektors $\boldsymbol{E} = E_+\boldsymbol{\sigma}_+ + E_-\boldsymbol{\sigma}_-$ ($\boldsymbol{\sigma}_+\boldsymbol{\sigma}_- = 0$), die Information nur auf einen der beiden erlaubten Schwerloch-Exziton-Übergänge beschränken.

Wie schon bei den experimentellen Ergebnissen diskutiert, erkennt man Oszillationen für die Detektion an der exzitonischen Resonanz und positive Verzögerungszeiten, welche nicht mit dem Modell der erweiterten optischen Bloch-Gleichungen [62] erklärt werden können. Die numerischen Rechnungen in Abbildung 5.10 reproduzieren dieses Verhalten für steigende Intensität des $\boldsymbol{k}_1$-Pulses, während die größte Intensität für den $\boldsymbol{k}_2$-Puls verwendet wird. In Übereinstimmung mit dem Experiment verschwinden die Oszillationen für positive Verzögerungszeiten, wenn die Intensität des $\boldsymbol{k}_1$-Pulses reduziert wird. Wie in [48] diskutiert wird, treten Oszillationen für negative Verzögerungszeit aufgrund Effekte dritter Ordnung auf, während für positive Verzögerungszeit die Nichtlinearitäten fünfter Ordnung zu Schwebungen bei

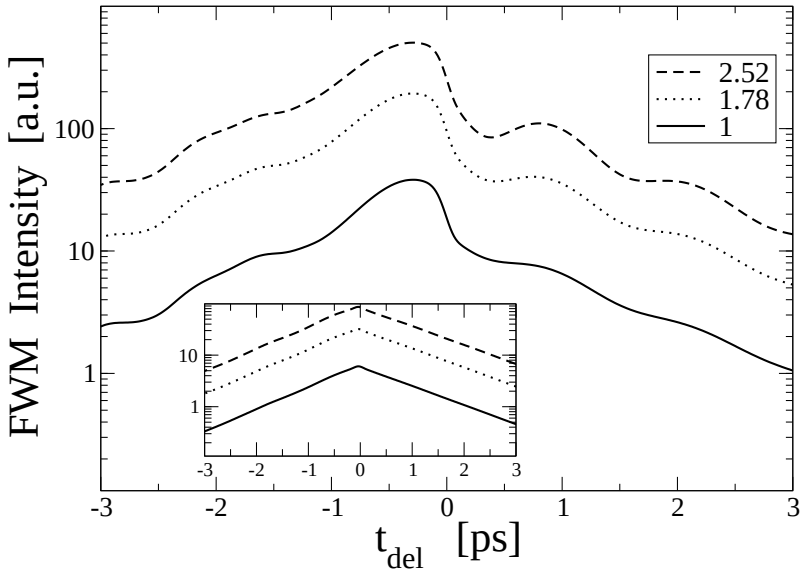

Abbildung 5.11.: Theoretisches Ergebnis für die gleichen Anregungs- und Detektionsbedingungen wie in Abbildung 5.8. Die niedrigste Intensität entspricht einer Rabi-Energie von $dE/E_B^X = 6.3 \cdot 10^{-3}$ in Einheiten der Rydberg-Energie des 3d-Exzitons E_B^X. Zusätzlich ist im Inset das VWM-Signal an der spektralen Position der biexzitonischen Rsonanz dargestellt.

höheren Anregungsintensitäten führen. Dieser Parametersatz zeigt keine Oszillationen am Biexziton.

In Abbildung 5.11 werden Pulse mit gleicher Intensität betrachtet. Bei ansteigender Intensität nimmt die Amplitude der Oszillationen für positive Zeitverzögerung zu, während die Oszillationen für negative Zeitverzögerung erhalten bleiben. Auch hier gibt es keine Oszillationen an der biexzitonischen Resonanz - was in Übereinstimmung mit den Messungen ist.

Die Variation des eingeschlossenen Winkels zwischen den Polarisationsvektoren der beiden Pulse von 90° bis 0° ist in Abbildung 5.12 gezeigt. Gekreuzt-lineare Anregung und $t_{\mathrm{delay}} > 0$ führen zur Abnahme der Oszillationen, wenn man den Winkel gegen Null Grad gehen läßt. Für negative Zeitverzögerung ist das Verhalten jedoch umgekehrt. Von 0° bis 90° nehmen die Oszillationen zu und zeigen ein nichtharmonisches Verhalten. Nur für 0° zeigt das Inset leichte Oszillationen am Biexziton. Während die diskutierten Eigenschaften in Übereinstimmung mit den experimentellen Resultaten aus Abbildung 5.9 stehen, gibt es kleine Abweichungen in einigen Details. Das gemessene Signal für 0° zeigt einen stärkeren Abfall für ansteigende negative Zeitverzögerung als für 90°, was jedoch nicht in den numerischen Resultaten reproduziert

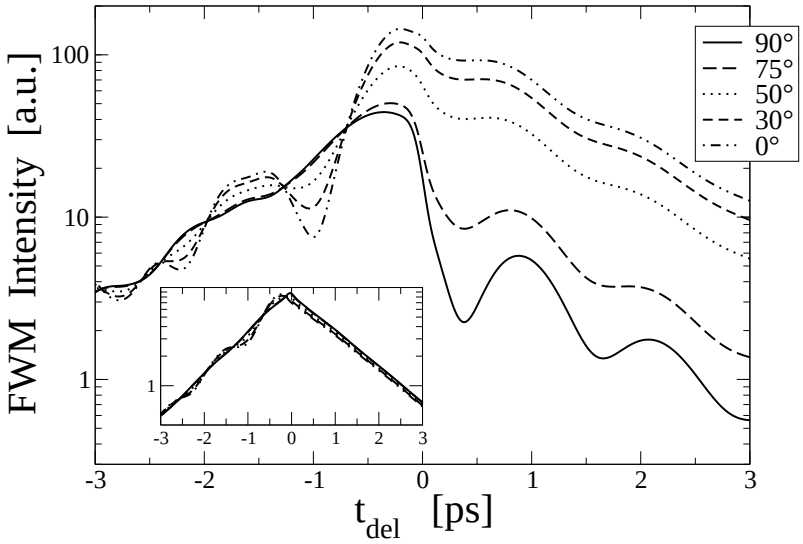

Abbildung 5.12.: Theoretisches Ergebnis für die gleichen Anregungs- und Detektionsbedingungen wie in Abbildung 5.9 und einer Rabi-Energie von $dE/E_B^X = 10^{-2}$ in Einheiten der Rydberg-Energie des 3d-Exzitons E_B^X. Das Inset zeigt das VWM-Signal am Biexziton.

werden kann. Die Ursache hierfür ist unklar und kann möglicherweise an den vernachlässigten Beiträgen der fünften oder höheren Ordnung liegen.

Mit Hilfe der Ergebnisse in Abbildung 5.13 kann gezeigt werden, daß im Rahmen der vorgestellten Theorie bereits ein anregungs-induziertes Dephasieren erhalten wird. Hierzu wird wieder der Fall betrachtet, daß beide Pulse die gleiche Intensität haben. Die durchgezogene Linie ist äquivalent zu der gestrichelten Linie aus Abbildung 5.10. Zu beachten ist, daß in Abbildung 5.11 die Intensität nur in einem relativ kleinen Bereich geändert ist, während in Abbildung 5.13 die Intensität von der unteren zur oberen Kurve um den Faktor 64 größer ist. Anregungs-induziertes Dephasieren führt zu einem schnelleren Zerfall des Signals am Exziton. Gleichzeitig werden aufgrund von Nichtlinearitäten höherer Ordnung gut ausgeprägte Oszillationen am Biexziton sichtbar. In den bisher durchgeführten Experimenten ist dieser Intensitätsbereich nicht erreichbar.

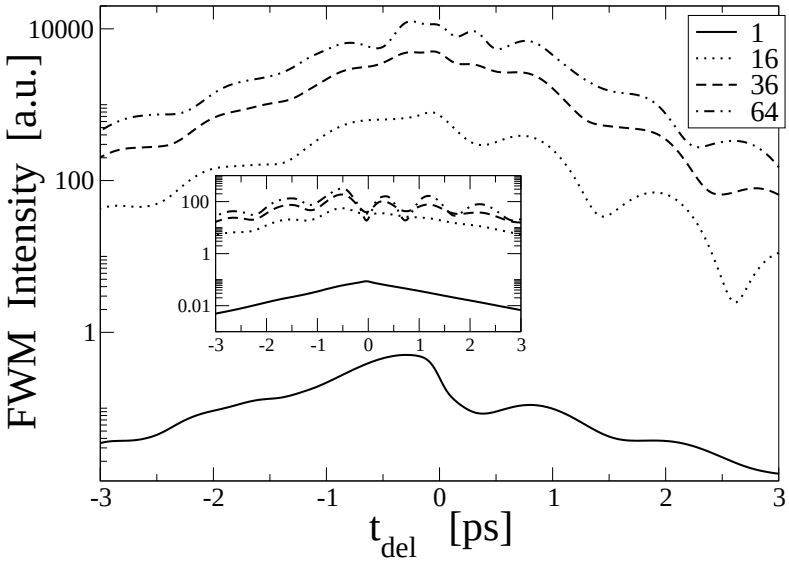

Abbildung 5.13.: Theorie: VWM-Signal vs. Verzögerungszeit für gleiche Intensitäten der beiden Pulse, welche linear polarisiert sind und deren Polarisationsvektoren einen Winkel von 75° einschließen. Die niedrigste Intensität entspricht einer Rabi-Energie von $dE/E_B^X = 10^{-2}$ in Einheiten der Rydberg-Energie des 3d-Exzitons E_B^X. Anregungs-induziertes Dephasieren wird an der exzitonischen Resonanz beobachtet. Für sehr hohe Intensitäten treten Oszillationen an der biexzitonischen Resonanz (Inset) auf.

6. Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden Untersuchungen zu kohärenten optischen Anregungen in Halbleiter-Quantenfilmen durchgeführt. Dafür ist für die theoretische Beschreibung die Anregungsdynamik im kohärenten Zeitregime betrachtet worden. Das bei der Untersuchung dynamischer Prozesse wie der makroskopischen Polarisation aufgrund der Coulomb-Wechselwirkung auftretende Hierarchie-Problem wurde auf unterschiedlichem Niveau abgebrochen. Zunächst gab die Diskussion der Halbleiter-Bloch-Gleichungen, welche aus der Hartree-Fock-Näherung folgte, einen grundlegenden Einblick in die Welt optischer Anregungen. Insbesondere wurde das wichtige Konzept des Exzitons vorgestellt. Bei der Erweiterung der theoretischen Beschreibung wurde eine Methode zum Abbruch der unendlichen Hierarchie verwendet, die als Abbruchkriterium einen experimentell kontrollierbaren Parameter in Form der Intensität heranzieht und in der Literatur als Dynamisch Kontrollierter Abbruch bekannt ist. Die nichtlineare optische Antwort des Quantenfilms ist nach Ordnungen des optisch anregenden Lichtfeldes klassifiziert worden. Mit dieser Vorgehensweise wurde ein Bewegungsgleichungssystem hergeleitet, mit dem sich nichtlineare Effekte optischer Größen wie der makroskopischen Polarisation bis zur dritten Ordnung im optischen Feld mikroskopisch beschreiben lassen.

Der Nachteil dieser Herangehensweise ist, daß mit ihr keine mikrokopische Beschreibung inkohärenter Prozesse, wie die Streuung der Ladungsträger miteinander, beschrieben werden kann. Deshalb wurde das Bewegungsgleichungssystem mit Hilfe von Nichtgleichgewichts-Greenschen Funktionen alternativ zur Heisenberg-Bewegungsgleichungs-Methode abgeleitet. Damit kann die theoretische Beschreibung durch Hinzunahme inkohärenter Prozesse erweitert werden.

Zur Untersuchung der kohärenten optischen Nichtlinearitäten wurde die Pump-Test-Technik, das Vier-Wellen-Mischen und die kohärente Kontrolle der makroskopischen Polarisation vorgestellt. Deren Beschreibung wurde im Rahmen der vorgestellten Vielteilchentheorie erläutert, was einen direkten Theorie-Experiment-Vergleich ermöglichte.

Für die numerische Berechnung der vorgestellten Ergebnisse erfolgte ein Basiswechsel von der Bloch-Basis in die Exziton-Basis. Sowohl für das polarisations- und intensi-

tätsabhängige Vier-Wellen-Mischen als auch für die kohärente Kontrolle der makroskopischen Polarisation im Medium ergab ein Vergleich mit entsprechenden Experimenten gute Übereinstimmung. Dabei konnte man die Notwendigkeit einer voll mikroskopischen Beschreibung gegenüber einer phänomenologischen Beschreibung daran erkennen, daß das letztere Modell nur in bestimmten Grenzfällen das Experiment erklären konnte.

Im Hochdichtefall führen Pauli-Blocking, Streuprozesse und Abschirmung zur Ionisation der exzitonischen Resonanzen. Die numerische Auswertung hierzu bleibt zukünftigen Rechnergenerationen vorbehalten, da der Computeraufwand drastisch ansteigt und bereits die in dieser Arbeit dargestellten Modellberechnungen die Möglichkeiten der vorhandenen Supercomputer ausschöpfen.

A. Ankopplung des elektromagnetischen Feldes

Die Ankopplung des mechanischen Impulses $\boldsymbol{p}$ an den elektromagnetischen Impuls $q\boldsymbol{A}$ gelingt mit der in der Literatur [32] als minimale Substitution bekannte Ersetzungsvorschrift:

$$\boldsymbol{p} \to \boldsymbol{p} - q\boldsymbol{A}(\boldsymbol{r}, t). \tag{A.1}$$

Dabei bezeichnet $\boldsymbol{A}(\boldsymbol{r}, t)$ das elektromagnetische Vektorpotential und q die Ladung. Daraus ergibt sich der Einteilchen-Hamiltonoperator H_{LM} der Licht-Materie-Wechselwirkung in erster Quantisierung zu

$$H_{\mathrm{LM}} = \sum_{j=1}^{N} \frac{1}{2m_j} \left[\boldsymbol{p}_j - q_j \boldsymbol{A}(\boldsymbol{r}_j, t)\right]^2 + U(\boldsymbol{r}_j) \tag{A.2}$$

mit dem gitterperiodischen Potential $U(\boldsymbol{r}_j)$. Die zugehörige Hamiltonfunktion liefert in der kanonischen Theorie die Newtonschen Bewegungsgleichungen und die Maxwellgleichungen [32]. Die Impulse $\boldsymbol{p}_j$ in (A.2) sind um den zeitabhängigen Ausdruck $q_j \boldsymbol{A}(\boldsymbol{r}_j, t)$ verschoben. Gesucht ist eine zeitabhängige unitäre Transformation, welche in Dipolnäherung[1] das Quadrat des Vektorpotentials $\boldsymbol{A}$ in (A.2) entfernt, um somit die Gleichungen (2.4) und (2.5) mit $q_j = e$ zu erhalten. Da eine unitäre Transformation die physikalischen Eigenschaften eines Systems unbeeinflußt läßt, bleiben Erwartungswerte unverändert,

$$\langle \Phi | C | \Phi \rangle = \langle \Phi' | C' | \Phi' \rangle, \tag{A.3}$$

und die Schrödinger-Gleichung forminvariant

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Phi\rangle = H |\Phi\rangle \quad \Longleftrightarrow \quad i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Phi'\rangle = H' |\Phi'\rangle. \tag{A.4}$$

In Gleichung (A.3) wurden mit einem unitären Operator T ebenso die Zustände $|\Phi\rangle$,

$$|\Phi'\rangle = T |\Phi\rangle \quad \Longleftrightarrow \quad T^\dagger |\Phi'\rangle = |\Phi\rangle, \tag{A.5}$$

[1] Unter der Dipolnäherung versteht man in diesem Zusammenhang die Vernachlässigung der Variation des Vektorpotentials $\boldsymbol{A}$ über der Ausdehnung einer Elementarzelle im Kristallgitter (vgl. Anmerkungen zur Dipolnäherung in Kapitel 2 auf Seite 9).

als auch der Operator C,

$$C' = TCT^\dagger \quad \Longleftrightarrow \quad T^\dagger C' T = C, \tag{A.6}$$

transformiert. Setzt man (A.5) und (A.6) in Gleichung (A.4) ein, so ergibt sich die Transformationsvorschrift für den Hamiltonoperator:

$$H' = i\hbar \frac{\partial T}{\partial t} T^\dagger + THT^\dagger. \tag{A.7}$$

Der unitäre Operator

$$T = e^{-\frac{i}{\hbar} \sum\limits_{j=1}^{N} q_j \boldsymbol{r}_j \boldsymbol{A}(\boldsymbol{r}_j, t)} \tag{A.8}$$

ist so definiert, daß $\boldsymbol{p}$ auf $\boldsymbol{p} + q\boldsymbol{A}$ verschoben wird. Um die Transformation (A.7) durchzuführen, wird zunächst $THT^\dagger$ schrittweise unter Ausnutzung der Ortsdarstellung des Impulsoperators $\boldsymbol{p}_l$ berechnet:

$$T\boldsymbol{p}_l T^\dagger = T\left(-i\hbar \frac{\partial}{\partial \boldsymbol{r}_l}\right) T^\dagger = -i\hbar \left(T \frac{\partial T^\dagger}{\partial \boldsymbol{r}_l} + TT^\dagger \frac{\partial}{\partial \boldsymbol{r}_l}\right) \tag{A.9}$$

mit

$$\frac{\partial T^\dagger}{\partial \boldsymbol{r}_l} = \frac{i}{\hbar} q_l \boldsymbol{A}(\boldsymbol{r}_l, t) T^\dagger + \frac{i}{\hbar} q_l \boldsymbol{r}_l \frac{\partial}{\partial \boldsymbol{r}_l} \boldsymbol{A}(\boldsymbol{r}_l, t) T^\dagger. \tag{A.10}$$

In der Dipolnäherung ist $\frac{\partial}{\partial \boldsymbol{r}_l} \boldsymbol{A}(\boldsymbol{r}_l, t) = 0$. Mit der Kommutatorrelation

$$[T, \boldsymbol{A}]_- = 0 \tag{A.11}$$

folgt aus (A.9)

$$T\boldsymbol{p}_l T^\dagger = q_l \boldsymbol{A} + \boldsymbol{p}_l. \tag{A.12}$$

Um $THT^\dagger$ mit (A.2) auszurechnen, ersetzt man entsprechend des Hamiltonoperators (A.2) in (A.12)

$$\boldsymbol{p} \rightarrow \boldsymbol{p} - q\boldsymbol{A}(t). \tag{A.13}$$

Damit folgt:

$$\begin{aligned} T(\boldsymbol{p} - q\boldsymbol{A})^2 T^\dagger &= T(\boldsymbol{p} - q\boldsymbol{A})(\boldsymbol{p} - q\boldsymbol{A}) T^\dagger \\ &= T(\boldsymbol{p} - q\boldsymbol{A}) T^\dagger T(\boldsymbol{p} - q\boldsymbol{A}) T^\dagger \\ &= (T\boldsymbol{p}T^\dagger - q\boldsymbol{A}TT^\dagger)(T\boldsymbol{p}T^\dagger - q\boldsymbol{A}TT^\dagger) \\ &= (\boldsymbol{p} + q\boldsymbol{A} - q\boldsymbol{A})(\boldsymbol{p} + q\boldsymbol{A} - q\boldsymbol{A}) \\ &= \boldsymbol{p}^2. \end{aligned}$$

Da auch das gitterperiodische Potential $U(\boldsymbol{r})$ mit dem unitären Translationsoperator T vertauscht,

$$[T, U(\boldsymbol{r})]_- = 0, \tag{A.14}$$

ergibt sich:

$$THT^{\dagger} = \sum_{j=1}^{N} \frac{p_j^2}{2m_j} + U(\boldsymbol{r}_j). \tag{A.15}$$

Der erste Summand der Gleichung (A.7) berechnet sich zu

$$i\hbar \frac{\partial T}{\partial t} T^{\dagger} = \sum_{j=1}^{N} q_j \boldsymbol{r}_j \frac{\partial \boldsymbol{A}}{\partial t}. \tag{A.16}$$

Nach dem Zerlegungssatz der Elektrodynamik [68] läßt sich $\boldsymbol{E}$ als Summe eines rotationsfreien (longitudinalen) und eines divergenzfreien (transversalen) Anteils schreiben:

$$\begin{aligned} \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t) &= \boldsymbol{E}_{\mathrm{L}}(\boldsymbol{r},t) + \boldsymbol{E}_{\mathrm{T}}(\boldsymbol{r},t), \\ \mathrm{rot}\boldsymbol{E}_{\mathrm{L}}(\boldsymbol{r},t) = 0 \quad &, \quad \mathrm{div}\boldsymbol{E}_{\mathrm{T}}(\boldsymbol{r},t) = 0. \end{aligned} \tag{A.17}$$

Unter Ausnutzung des Zerlegungssatzes (A.17)

$$\mathrm{rot}\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t) = \mathrm{rot}\boldsymbol{E}_{\mathrm{T}}(\boldsymbol{r},t) = -\frac{\partial}{\partial t}\boldsymbol{B}(\boldsymbol{r},t) = -\frac{\partial}{\partial t}\mathrm{rot}\boldsymbol{A}(\boldsymbol{r},t) \tag{A.18}$$

ergibt sich das transversale elektrische Feld als partielle Zeitableitung des Vektorpotentials

$$\boldsymbol{E}_T(t) = -\frac{\partial}{\partial t}\boldsymbol{A}(t) \tag{A.19}$$

und damit

$$i\hbar \frac{\partial T}{\partial t} T^{\dagger} = -\sum_{j=1}^{N} \boldsymbol{d}_j \boldsymbol{E}_T(t) \tag{A.20}$$

mit dem elektrischen Dipolmoment $\boldsymbol{d}_j = q_j\ \boldsymbol{r}_j$. Daraus folgt durch Einsetzen der Gleichungen (A.15) und (A.20) in (A.7) der unitär transformierte Hamiltonoperator der Licht-Materie-Wechselwirkung in erster Quantisierung:

$$H_{\mathrm{LM}} = \sum_{j=1}^{N} \left[\frac{\boldsymbol{p}_j^2}{2m_j} + U(\boldsymbol{r}_j) - \boldsymbol{d}_j \boldsymbol{E}_T(t) \right]. \tag{A.21}$$

Schreibt man diesen Operator in die zweite Quantisierung um, so ergeben sich die Gleichungen (2.4) und (2.5).

B. Über $\chi^{(3)}$ hinaus

Im Folgenden wird ein Bewegungsgleichungssystem vorgestellt, welches zur Berechnung von VWM-Intensitäten in Abschnitt 5.3 verwendet wird. Ausgangspunkt für die folgenden Gleichungen sind die Bewegungsgleichungen der exzitonischen Übergangsamplitude (3.81) und der biexzitonischen Korrelationsfunktion (3.82) in $\chi^{(3)}$. Während eine systematische Behandlung höherer Nichtlinearitäten eine Erweiterung der Bewegungsgleichungen (3.81) und (3.82) erfordern würde, so erhält man eine eingeschränkte Klasse von Effekten höherer Ordnung, indem die Gleichungen (3.81) und (3.82) selbstkonsistent bis zu einer beliebigen Ordnung im optischen Feld gelöst werden. Dafür werden (4.26), (4.4) und (4.5) in die Bewegungsgleichungen (3.81) und (3.82) eingesetzt, nach Phasenfaktoren sortiert und die beiden möglichen zirkularen Anregungen unterschieden. Die selbstkonsistente Erweiterung erfordert jedoch, daß in Gleichung (4.5) die Anzahl der Summanden erweitert werden muß:

$$b(\boldsymbol{r},t) = \sum_{\substack{n_1,n_2=-2 \\ n_1+n_2=2}}^{4} b^{n_1 n_2}(t)\, e^{i(n_1\boldsymbol{k}_1+n_2\boldsymbol{k}_2)\boldsymbol{r}}. \tag{B.1}$$

Insbesondere ist bei dieser Vorgehensweise in keinem der beiden Pulse linearisiert worden. Deswegen sind die p-Gleichungen alle nicht-linear, so daß der Index nl weggelassen wird.

In den Formeln werden folgende Abkürzungen benutzt:

$$\Sigma^{20}_{++} = \sum_{\lambda\,\boldsymbol{q}'} W^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q}',0)\; b^{20(++)}_{\lambda}(\boldsymbol{q}')$$

$$\overset{H}{{}_b}\Sigma^{20(++)}_{\lambda}(\boldsymbol{q}) = \sum_{\boldsymbol{q}'} \left(H^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}') - i\gamma_b\delta_{\boldsymbol{q}\boldsymbol{q}'} \right)\; b^{20(++)}_{\lambda}(\boldsymbol{q}')$$

$$\overset{S}{{}_W}\Sigma_{\lambda}(\boldsymbol{q}) = \sum_{\boldsymbol{q}'} \tfrac{1}{2}\,(1-\lambda S)^{-1}(\boldsymbol{q},\boldsymbol{q}')\, W^{XX}_{\lambda}(\boldsymbol{q}',0)$$

Die Richtung der in der Rabi-Energie Ω enthaltenen optischen Felder ist durch einen entsprechenden Index gekennzeichnet. Propagationseffekte nach Abschnitt (2.2) sind hier berücksichtigt worden.

Das Ergebnis dieser Erweiterungen mündet in ein gekoppeltes Differentialgleichungssystem aus 8 Bewegungsgleichungen für die exzitonische Übergangsamplitude und 28 Bewegungsgleichungen für die biexzitonische Korrelationsfunktion. Die Indizes + und − bezeichnen die beiden möglichen optischen Übergänge. Im Folgenden werden diese Bewegungsgleichungen aufgeführt. Bewegungsgleichungen für die nichtlinearen exzitonischen Übergangsamplituden in $\boldsymbol{k}_2$-Richtung:

$$
\begin{aligned}
i\hbar\frac{d}{dt}p_+^{01} &= (\epsilon(0)-i\gamma_2)\,p_+^{01} - \Omega_+^{01}\tilde{\Phi}^*(0)\\
&+2A\big[\,\Omega_+^{01}\,p_+^{01}p_+^{01^*} + 2\,\Omega_+^{12}\,p_+^{10}p_+^{01^*} + \,\Omega_+^{10}\,p_+^{10}p_+^{21^*} + 2\,\Omega_+^{10}\,p_+^{01}p_+^{10^*}\\
&\quad +2\,\Omega_+^{21}\,p_+^{12}p_+^{10^*} + 2\,\Omega_+^{21}\,p_+^{01}p_+^{21^*} + 2\,\Omega_+^{12}\,p_+^{01}p_+^{12^*}\big]\\
&+V^{HF}\big[p_+^{01}p_+^{01}p_+^{01^*} + 2p_+^{12}p_+^{10}p_+^{01^*} + p_+^{10}p_+^{10}p_+^{21^*} + 2p_+^{10}p_+^{01}p_+^{10^*}\\
&\quad +2p_+^{21}p_+^{12}p_+^{10^*} + 2p_+^{21}p_+^{01}p_+^{21^*} + 2p_+^{12}p_+^{01}p_+^{12^*}\big]\\
&\quad +\Sigma_{++}^{11}p_+^{10^*} + \Sigma_{+-}^{11}p_-^{10^*} + \Sigma_{++}^{02}p_+^{01^*} + \Sigma_{+-}^{02}p_-^{01^*} + \Sigma_{++}^{13}p_+^{12^*} + \Sigma_{+-}^{13}p_-^{12^*},
\end{aligned}
$$

$$
\begin{aligned}
i\hbar\frac{d}{dt}p_-^{01} &= (\epsilon(0)-i\gamma_2)\,p_-^{01} - \Omega_-^{01}\tilde{\Phi}^*(0)\\
&+2A\big[\,\Omega_-^{01}\,p_-^{01}p_-^{01^*} + 2\,\Omega_-^{12}\,p_-^{10}p_-^{01^*} + \,\Omega_-^{10}\,p_-^{10}p_-^{21^*} + 2\,\Omega_-^{10}\,p_-^{01}p_-^{10^*}\\
&\quad +2\,\Omega_-^{21}\,p_-^{12}p_-^{10^*} + 2\,\Omega_-^{21}\,p_-^{01}p_-^{21^*} + 2\,\Omega_-^{12}\,p_-^{01}p_-^{12^*}\big]\\
&+V^{HF}\big[p_-^{01}p_-^{01}p_-^{01^*} + 2p_-^{12}p_-^{10}p_-^{01^*} + p_-^{10}p_-^{10}p_-^{21^*} + 2p_-^{10}p_-^{01}p_-^{10^*}\\
&\quad +2p_-^{21}p_-^{12}p_-^{10^*} + 2p_-^{21}p_-^{01}p_-^{21^*} + 2p_-^{12}p_-^{01}p_-^{12^*}\big]\\
&\quad +\Sigma_{-+}^{11}p_+^{10^*} + \Sigma_{--}^{11}p_-^{10^*} + \Sigma_{-+}^{02}p_+^{01^*} + \Sigma_{--}^{02}p_-^{01^*} + \Sigma_{-+}^{13}p_+^{12^*} + \Sigma_{--}^{13}p_-^{12^*}.
\end{aligned}
$$

Bewegungsgleichungen für die nichtlinearen exzitonischen Übergangsamplituden in $\boldsymbol{k}_1$-Richtung:

$$
\begin{aligned}
i\hbar\frac{d}{dt}p_+^{10} &= (\epsilon(0)-i\gamma_2)\,p_+^{10} - \Omega_+^{10}\tilde{\Phi}^*(0)\\
&+2A\big[\,\Omega_+^{10}\,p_+^{10}p_+^{10^*} + 2\,\Omega_+^{21}\,p_+^{01}p_+^{10^*} + 2\,\Omega_+^{10}\,p_+^{01}p_+^{01^*} + \,\Omega_+^{01}\,p_+^{01}p_+^{12^*} +\\
&\quad +2\,\Omega_+^{21}\,p_+^{12}p_+^{01^*} + 2\,\Omega_+^{21}\,p_+^{10}p_+^{21^*} + 2\,\Omega_+^{12}\,p_+^{10}p_+^{12^*}\big]\\
&+V^{HF}\big[p_+^{10}p_+^{10}p_+^{10^*} + 2p_+^{21}p_+^{01}p_+^{10^*} + 2p_+^{10}p_+^{01}p_+^{01^*} + p_+^{01}p_+^{01}p_+^{12^*}\\
&\quad +2p_+^{21}p_+^{12}p_+^{01^*} + 2p_+^{21}p_+^{10}p_+^{21^*} + 2p_+^{12}p_+^{10}p_+^{12^*}\big]\\
&\quad +\Sigma_{++}^{11}p_+^{01^*} + \Sigma_{+-}^{11}p_-^{01^*} + \Sigma_{++}^{20}p_+^{10^*} + \Sigma_{+-}^{20}p_-^{10^*} + \Sigma_{++}^{31}p_+^{21^*} + \Sigma_{+-}^{31}p_-^{21^*},
\end{aligned}
$$

$$
\begin{aligned}
i\hbar\frac{d}{dt}p_{-}^{10} &= (\epsilon(0)-i\gamma_2)\,p_{-}^{10} - \Omega_{-}^{10}\tilde{\Phi}^{*}(0) \\
&+2A\big[\,\Omega_{-}^{10}\,p_{-}^{10}p_{-}^{10*} + 2\,\Omega_{-}^{21}\,p_{-}^{01}p_{-}^{10*} + 2\,\Omega_{-}^{10}\,p_{-}^{01}p_{-}^{01*} + \,\Omega_{-}^{01}\,p_{-}^{01}p_{+}^{12*} \\
&\quad +2\,\Omega_{-}^{21}\,p_{-}^{12}p_{-}^{01*} + 2\,\Omega_{-}^{21}\,p_{-}^{10}p_{-}^{21*} + 2\,\Omega_{-}^{12}\,p_{-}^{10}p_{-}^{12*}\big] \\
&+V^{HF}\big[p_{-}^{10}p_{-}^{10}p_{-}^{10*} + 2p_{-}^{21}p_{-}^{01}p_{-}^{10*} + 2p_{-}^{10}p_{-}^{01}p_{-}^{01*} \\
&\quad +p_{-}^{01}p_{-}^{01}p_{-}^{12*} + 2p_{-}^{21}p_{-}^{12}p_{-}^{01*} + 2p_{-}^{21}p_{-}^{10}p_{-}^{21*} + 2p_{-}^{12}p_{-}^{10}p_{-}^{12*}\big] \\
&\quad +\Sigma_{-+}^{11}p_{+}^{01*} + \Sigma_{--}^{11}p_{-}^{01*} + \Sigma_{-+}^{20}p_{+}^{10*} + \Sigma_{--}^{20}p_{-}^{10*} + \Sigma_{-+}^{31}p_{+}^{21*} + \Sigma_{--}^{31}p_{-}^{21*}.
\end{aligned}
$$

Bewegungsgleichungen für die nichtlinearen exzitonischen Übergangsamplituden in $(2\boldsymbol{k}_1 - \boldsymbol{k}_2)$-Richtung:

$$
\begin{aligned}
i\hbar\frac{d}{dt}p_{+}^{21} &= (\epsilon(0)-i\gamma_2)\,p_{+}^{21} - \Omega_{+}^{21}\tilde{\Phi}^{*}(0) \\
&+2A\big[\,\Omega_{+}^{10}\,p_{+}^{10}p_{+}^{01*} + 2\,\Omega_{+}^{21}\,p_{+}^{10}p_{+}^{10*} + 2\,\Omega_{+}^{21}\,p_{+}^{01}p_{+}^{01*} + 2\,\Omega_{+}^{10}\,p_{+}^{01}p_{+}^{12*} \\
&\quad +\Omega_{+}^{21}\,p_{+}^{21}p_{+}^{21*} + 2\,\Omega_{+}^{21}\,p_{+}^{12}p_{+}^{12*}\big] \\
&+V^{HF}\big[p_{+}^{10}p_{+}^{10}p_{+}^{01*} + 2p_{+}^{21}p_{+}^{10}p_{+}^{10*} + 2p_{+}^{21}p_{+}^{01}p_{+}^{01*} + 2p_{+}^{10}p_{+}^{01}p_{+}^{12*} \\
&\quad +p_{+}^{21}p_{+}^{21}p_{+}^{21*} + 2p_{+}^{21}p_{+}^{12}p_{+}^{12*}\big] \\
&\quad +\Sigma_{++}^{20}p_{+}^{01*} + \Sigma_{+-}^{20}p_{-}^{01*} + \Sigma_{++}^{31}p_{+}^{10*} + \Sigma_{+-}^{31}p_{-}^{10*} + \Sigma_{++}^{42}p_{+}^{21*} + \Sigma_{+-}^{42}p_{-}^{21*},
\end{aligned}
$$

$$
\begin{aligned}
i\hbar\frac{d}{dt}p_{-}^{21} &= (\epsilon(0)-i\gamma_2)\,p_{-}^{21} - \Omega_{-}^{21}\tilde{\Phi}^{*}(0) \\
&+2A\big[\,\Omega_{-}^{10}\,p_{-}^{10}p_{-}^{01*} + 2\,\Omega_{-}^{21}\,p_{-}^{10}p_{-}^{10*} + 2\,\Omega_{-}^{21}\,p_{-}^{01}p_{-}^{01*} + 2\,\Omega_{-}^{10}\,p_{-}^{01}p_{-}^{12*} \\
&\quad +\Omega_{-}^{21}\,p_{-}^{21}p_{-}^{21*} + 2\,\Omega_{-}^{21}\,p_{-}^{12}p_{-}^{12*}\big] \\
&+V^{HF}\big[p_{-}^{10}p_{-}^{10}p_{-}^{01*} + 2p_{-}^{21}p_{-}^{10}p_{-}^{10*} + 2p_{-}^{21}p_{-}^{01}p_{-}^{01*} + 2p_{-}^{10}p_{-}^{01}p_{-}^{12*} \\
&\quad +p_{-}^{21}p_{-}^{21}p_{-}^{21*} + 2p_{-}^{21}p_{-}^{12}p_{-}^{12*}\big] \\
&\quad +\Sigma_{-+}^{20}p_{+}^{01*} + \Sigma_{--}^{20}p_{-}^{01*} + \Sigma_{-+}^{31}p_{+}^{10*} + \Sigma_{--}^{31}p_{-}^{10*} + \Sigma_{-+}^{42}p_{+}^{21*} + \Sigma_{--}^{42}p_{-}^{21*}.
\end{aligned}
$$

Bewegungsgleichungen für die nichtlinearen exzitonischen Übergangsamplituden in $(2\boldsymbol{k}_2 - \boldsymbol{k}_1)$-Richtung:

$$
\begin{aligned}
i\hbar\frac{d}{dt}p_+^{12} &= (\epsilon(0) - i\gamma_2)\, p_+^{12} - \Omega_+^{12}\tilde{\Phi}^*(0) \\
&+2A\big[\,\Omega_+^{01}\, p_+^{01}p_+^{10^*} + 2\,\Omega_+^{12}\, p_+^{10}p_+^{10^*} + 2\,\Omega_+^{12}\, p_+^{01}p_+^{01^*} + 2\,\Omega_+^{10}\, p_+^{01}p_+^{21^*} \\
&\quad +2\,\Omega_+^{21}\, p_+^{12}p_+^{21^*} + \,\Omega_+^{12}\, p_+^{12}p_+^{12^*}\big] \\
&+V^{HF}\big[p_+^{01}p_+^{10}p_+^{10^*} + 2p_+^{12}p_+^{10}p_+^{10^*} + 2p_+^{12}p_+^{01}p_+^{01^*} + 2p_+^{10}p_+^{01}p_+^{21^*} \\
&\quad +2p_+^{21}p_+^{12}p_+^{21^*} + p_+^{12}p_+^{12}p_+^{12^*}\big] \\
&\quad +\Sigma_{++}^{02}p_+^{10^*} + \Sigma_{+-}^{02}p_-^{10^*} + \Sigma_{++}^{13}p_+^{01^*} + \Sigma_{+-}^{13}p_-^{01^*} + \Sigma_{++}^{24}p_+^{12^*} + \Sigma_{+-}^{24}p_-^{12^*},
\end{aligned}
$$

$$
\begin{aligned}
i\hbar\frac{d}{dt}p_-^{12} &= (\epsilon(0) - i\gamma_2)\, p_-^{12} - \Omega_-^{12}\tilde{\Phi}^*(0) \\
&+2A\big[\,\Omega_-^{01}\, p_-^{01}p_-^{10^*} + 2\,\Omega_-^{12}\, p_-^{10}p_-^{10^*} + 2\,\Omega_-^{12}\, p_-^{01}p_-^{01^*} + 2\,\Omega_-^{10}\, p_-^{01}p_-^{21^*} \\
&\quad +2\,\Omega_-^{21}\, p_-^{12}p_-^{21^*} + \,\Omega_-^{12}\, p_-^{12}p_-^{12^*}\big] \\
&+V^{HF}\big[p_-^{01}p_-^{01}p_-^{10^*} + 2p_-^{12}p_-^{10}p_-^{10^*} + 2p_-^{12}p_-^{01}p_-^{01^*} + 2p_-^{10}p_-^{01}p_-^{21^*} \\
&\quad +2p_-^{21}p_-^{12}p_-^{21^*} + p_-^{12}p_-^{12}p_-^{12^*}\big] \\
&\quad +\Sigma_{-+}^{02}p_+^{10^*} + \Sigma_{--}^{02}p_-^{10^*} + \Sigma_{-+}^{13}p_+^{01^*} + \Sigma_{--}^{13}p_-^{01^*} + \Sigma_{-+}^{24}p_+^{12^*} + \Sigma_{--}^{24}p_-^{12^*}.
\end{aligned}
$$

Bewegungsgleichungen für die biexzitonischen Korrelationsfunktionen:

$$
\begin{aligned}
i\hbar\frac{d}{dt}\, b_\lambda^{20(++)}(\boldsymbol{q}) &= \quad {}_b^H\Sigma_\lambda^{20(++)}(\boldsymbol{q}) + \,{}_W^S\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[p_+^{10}p_+^{10} + 2p_+^{01}p_+^{21}\big]\big[1+\lambda\big], \\
i\hbar\frac{d}{dt}\, b_\lambda^{20(+-)}(\boldsymbol{q}) &= \quad {}_b^H\Sigma_\lambda^{20(+-)}(\boldsymbol{q}) + \,{}_W^S\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[p_+^{10}p_-^{10} + p_+^{01}p_-^{21} + p_+^{21}p_-^{01}\big], \\
i\hbar\frac{d}{dt}\, b_\lambda^{20(-+)}(\boldsymbol{q}) &= \quad {}_b^H\Sigma_\lambda^{20(-+)}(\boldsymbol{q}) + \,{}_W^S\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[p_-^{10}p_+^{10} + p_-^{01}p_+^{21} + p_-^{21}p_+^{01}\big], \\
i\hbar\frac{d}{dt}\, b_\lambda^{20(--)}(\boldsymbol{q}) &= \quad {}_b^H\Sigma_\lambda^{20(--)}(\boldsymbol{q}) + \,{}_W^S\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[p_-^{10}p_-^{10} + 2p_-^{01}p_-^{21}\big]\big[1+\lambda\big],
\end{aligned}
$$

$$
\begin{aligned}
i\hbar\frac{d}{dt}\, b_\lambda^{02(++)}(\boldsymbol{q}) &= \quad {}_b^H\Sigma_\lambda^{02(++)}(\boldsymbol{q}) + \,{}_W^S\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[p_+^{01}p_+^{01} + 2p_+^{10}p_+^{12}\big]\big[1+\lambda\big], \\
i\hbar\frac{d}{dt}\, b_\lambda^{02(+-)}(\boldsymbol{q}) &= \quad {}_b^H\Sigma_\lambda^{02(+-)}(\boldsymbol{q}) + \,{}_W^S\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[p_+^{01}p_-^{01} + p_+^{10}p_-^{12} + p_+^{12}p_-^{10}\big], \\
i\hbar\frac{d}{dt}\, b_\lambda^{02(-+)}(\boldsymbol{q}) &= \quad {}_b^H\Sigma_\lambda^{02(-+)}(\boldsymbol{q}) + \,{}_W^S\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[p_-^{01}p_+^{01} + p_-^{10}p_+^{12} + p_-^{12}p_+^{10}\big], \\
i\hbar\frac{d}{dt}\, b_\lambda^{02(--)}(\boldsymbol{q}) &= \quad {}_b^H\Sigma_\lambda^{02(--)}(\boldsymbol{q}) + \,{}_W^S\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[p_-^{01}p_-^{01} + 2p_-^{10}p_-^{12}\big]\big[1+\lambda\big],
\end{aligned}
$$

$$
\begin{aligned}
i\hbar\frac{d}{dt}\,b_\lambda^{11(++)}(\boldsymbol{q}) &= {}^{H}_{b}\Sigma_\lambda^{11(++)}(\boldsymbol{q}) + {}^{S}_{W}\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[2p_+^{10}p_+^{01} + 2p_+^{12}p_+^{21}\big]\big[1+\lambda\big],\\
i\hbar\frac{d}{dt}\,b_\lambda^{11(+-)}(\boldsymbol{q}) &= {}^{H}_{b}\Sigma_\lambda^{11(+-)}(\boldsymbol{q}) + {}^{S}_{W}\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[p_+^{10}p_-^{01} + p_+^{01}p_-^{10} + p_+^{12}p_-^{21} + p_+^{21}p_-^{12}\big],\\
i\hbar\frac{d}{dt}\,b_\lambda^{11(-+)}(\boldsymbol{q}) &= {}^{H}_{b}\Sigma_\lambda^{11(-+)}(\boldsymbol{q}) + {}^{S}_{W}\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[p_-^{10}p_+^{01} + p_-^{01}p_+^{10} + p_-^{12}p_+^{21} + p_-^{21}p_+^{12}\big],\\
i\hbar\frac{d}{dt}\,b_\lambda^{11(--)}(\boldsymbol{q}) &= {}^{H}_{b}\Sigma_\lambda^{11(--)}(\boldsymbol{q}) + {}^{S}_{W}\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[2p_-^{10}p_-^{01} + 2p_-^{12}p_-^{21}\big]\big[1+\lambda\big],
\end{aligned}
$$

$$
\begin{aligned}
i\hbar\frac{d}{dt}\,b_\lambda^{31(++)}(\boldsymbol{q}) &= {}^{H}_{b}\Sigma_\lambda^{31(++)}(\boldsymbol{q}) + {}^{S}_{W}\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[2p_+^{10}p_+^{21}\big]\big[1+\lambda\big],\\
i\hbar\frac{d}{dt}\,b_\lambda^{31(+-)}(\boldsymbol{q}) &= {}^{H}_{b}\Sigma_\lambda^{31(+-)}(\boldsymbol{q}) + {}^{S}_{W}\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[p_+^{10}p_-^{21} + p_+^{21}p_-^{10}\big],\\
i\hbar\frac{d}{dt}\,b_\lambda^{31(-+)}(\boldsymbol{q}) &= {}^{H}_{b}\Sigma_\lambda^{31(-+)}(\boldsymbol{q}) + {}^{S}_{W}\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[p_-^{10}p_+^{21} + p_-^{21}p_+^{10}\big],\\
i\hbar\frac{d}{dt}\,b_\lambda^{31(--)}(\boldsymbol{q}) &= {}^{H}_{b}\Sigma_\lambda^{31(--)}(\boldsymbol{q}) + {}^{S}_{W}\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[2p_-^{10}p_-^{21}\big]\big[1+\lambda\big],
\end{aligned}
$$

$$
\begin{aligned}
i\hbar\frac{d}{dt}\,b_\lambda^{13(++)}(\boldsymbol{q}) &= {}^{H}_{b}\Sigma_\lambda^{13(++)}(\boldsymbol{q}) + {}^{S}_{W}\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[2p_+^{01}p_+^{12}\big]\big[1+\lambda\big],\\
i\hbar\frac{d}{dt}\,b_\lambda^{13(+-)}(\boldsymbol{q}) &= {}^{H}_{b}\Sigma_\lambda^{13(+-)}(\boldsymbol{q}) + {}^{S}_{W}\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[p_+^{01}p_-^{12} + p_+^{12}p_-^{01}\big],\\
i\hbar\frac{d}{dt}\,b_\lambda^{13(-+)}(\boldsymbol{q}) &= {}^{H}_{b}\Sigma_\lambda^{13(-+)}(\boldsymbol{q}) + {}^{S}_{W}\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[p_-^{01}p_+^{12} + p_-^{12}p_+^{01}\big],\\
i\hbar\frac{d}{dt}\,b_\lambda^{13(--)}(\boldsymbol{q}) &= {}^{H}_{b}\Sigma_\lambda^{13(--)}(\boldsymbol{q}) + {}^{S}_{W}\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[2p_-^{01}p_-^{12}\big]\big[1+\lambda\big],
\end{aligned}
$$

$$
\begin{aligned}
i\hbar\frac{d}{dt}\,b_\lambda^{42(++)}(\boldsymbol{q}) &= {}^{H}_{b}\Sigma_\lambda^{42(++)}(\boldsymbol{q}) + {}^{S}_{W}\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[p_+^{21}p_+^{21}\big]\big[1+\lambda\big],\\
i\hbar\frac{d}{dt}\,b_\lambda^{42(+-)}(\boldsymbol{q}) &= {}^{H}_{b}\Sigma_\lambda^{42(+-)}(\boldsymbol{q}) + {}^{S}_{W}\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[p_+^{21}p_-^{21}\big],\\
i\hbar\frac{d}{dt}\,b_\lambda^{42(-+)}(\boldsymbol{q}) &= {}^{H}_{b}\Sigma_\lambda^{42(-+)}(\boldsymbol{q}) + {}^{S}_{W}\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[p_-^{21}p_+^{21}\big],\\
i\hbar\frac{d}{dt}\,b_\lambda^{42(--)}(\boldsymbol{q}) &= {}^{H}_{b}\Sigma_\lambda^{42(--)}(\boldsymbol{q}) + {}^{S}_{W}\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[p_-^{21}p_-^{21}\big]\big[1+\lambda\big],
\end{aligned}
$$

$$
\begin{aligned}
i\hbar\frac{d}{dt}\,b_\lambda^{24(++)}(\boldsymbol{q}) &= {}^{H}_{b}\Sigma_\lambda^{24(++)}(\boldsymbol{q}) + {}^{S}_{W}\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[p_+^{12}p_+^{12}\big]\big[1+\lambda\big],\\
i\hbar\frac{d}{dt}\,b_\lambda^{24(+-)}(\boldsymbol{q}) &= {}^{H}_{b}\Sigma_\lambda^{24(+-)}(\boldsymbol{q}) + {}^{S}_{W}\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[p_+^{12}p_-^{12}\big],\\
i\hbar\frac{d}{dt}\,b_\lambda^{24(-+)}(\boldsymbol{q}) &= {}^{H}_{b}\Sigma_\lambda^{24(-+)}(\boldsymbol{q}) + {}^{S}_{W}\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[p_-^{12}p_+^{12}\big],\\
i\hbar\frac{d}{dt}\,b_\lambda^{24(--)}(\boldsymbol{q}) &= {}^{H}_{b}\Sigma_\lambda^{24(--)}(\boldsymbol{q}) + {}^{S}_{W}\Sigma_\lambda(\boldsymbol{q})\big[p_-^{12}p_-^{12}\big]\big[1+\lambda\big].
\end{aligned}
$$

C. Parameterliste

		ZnSe	**GaAs**	
E_g	[eV]	2.85	1.51	Bandlückenenergie (3d)
E_B^X	[meV]	23.85	4.20	Exziton-Bindungsenergie (3d)
m_e	$[m_0]$	0.16	0.067	Elektronenmasse
m_h	$[m_0]$	0.78	0.457	Lochmasse
n_b		2.95	3.71	Hintergrundbrechungsindex
$a0$	[Å]	34.69	124.65	Exziton-Bohrradius
d_{cv}/e	[Å]	2.5	5	optisches Dipolmatrixelement

Literaturverzeichnis

[1] J. Shah. *Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures*. Springer-Verlag, Berlin, second edition, 1999.

[2] R. Grundwald and G. Steinmeyer. Regenbögen in Raum und Zeit. *Physik Unserer Zeit*, (**5**):218, 2004.

[3] M. C. Phillips, H. Wang, I. Rumyantsev, N. H. Kwong, R. Takayama, and R. Binder. Electromagnetically Induced Transparency in Semiconductors via Biexciton Coherence. *Phys. Rev. Lett.*, **91**:183602, 2003.

[4] T. Li, H. Wang, N. H. Kwong, and R. Binder. Electromagnetically induced transparency via electron spin coherence in a quantum well waveguide. *Optics Express*, **11**:3298, 2003.

[5] A. P. Heberle, J. J. Baumberg, and K. Köhler. Ultrafast Coherent Control and Destruction of Excitons in Quantum Wells. *Phys. Rev. Lett.*, **75**:2598, 1995.

[6] J. Erland, V. G. Lyssenko, and J. M. Hvam. Optical coherent control in semiconductors: Fringe contrast and inhomogeneous broadening. *Phys. Rev. B*, **63**:155317, 2001.

[7] H. G. Breunig, T. Voss, I. Rückmann, and J. Gutowski. Coherent control of biexcitonic polarization. *Phys. Rev. B*, **66**:193302, 2002.

[8] H. G. Breunig, T. Voss, I. Rückmann, J. Gutowski, V. M. Axt, and T. Kuhn. Influence of higher Coulomb correlations on optical coherent-control signals from a ZnSe quantum well. *J. Opt. Soc. Am. B*, **20**:1769, 2003.

[9] K. Leo, M. Wegener, J. Shah, D. S. Chemla, E. O. Göbel, T. C. Damen, S. Schmitt-Rink, and W. Schäfer. Effects of Coherent Polarization Interactions

on Time-Resolved Degenerate Four-Wave Mixing. *Phys. Rev. Lett.*, **65**:1340, 1990.

[10] M. Wegener, D. S. Chemla, S. Schmitt-Rink, and W. Schäfer. Line Shape of time-resolved four-wave mixing. *Phys. Rev. A*, **42**:5675, 1990.

[11] D. S. Kim, J. Shah, T. C. Damen, W. Schäfer, F. Jahnke, S. Schmitt-Rink, and K. Köhler. Unusually Slow Temporal Evolution of Femtosecond Four-Wave-Mixing Signals in Intrinsic GaAs Quantum Wells: Direct Evidence for the Dominance of Interaction Effects. *Phys. Rev. Lett.*, **69**:2725, 1992.

[12] S. Weiss, M. A. Mycek, J. Y. Bigot, S. Schmitt-Rink, and D. S. Chemla. Collective Effects in Excitonic Free Induction Decay: Do Semiconductors and Atoms Emit Light in Different Ways? *Phys. Rev. Lett.*, **69**:2685, 1992.

[13] K. Bott, O. Heller, D. Bennhardt, S. T. Cundiff, P. Thomas, E. J. Mayer, G. O. Smith, R. Eccleston, J. Kuhl, and K. Ploog. Influence of exciton-exciton interactions on the coherent optical response in GaAs quantum wells. *Phys. Rev. B*, **48**:17418, 1993.

[14] H. Wang, K. Ferrio, D. C. Steel, Y. Z. Hu, R. Binder, and S. W. Koch. Transient Nonlinear Optical Response from Excitation Induced Dephasing in GaAs. *Phys. Rev. Lett.*, **71**:1261, 1993.

[15] Y. Z. Hu, R. Binder, S. W. Koch, S. T. Cundiff, H. Wang, and D. G. Steel. Excitation and polarization effects in semiconductor four-wave-mixing spectroscopy. *Phys. Rev. B*, **49**:14382, 1994.

[16] C. Sieh, T. Meier, F. Jahnke, A. Knorr, S. W. Koch, P. Brick, M. Hübner, C. Ell, J. Prineas, G. Khitrova, and H. M. Gibbs. Coulomb Memory Signatures in the Excitonic Optical Stark Effect. *Phys. Rev. Lett.*, **82**:3112, 1999.

[17] U. Neukirch, S. R. Bolton, L. J. Sham, and D. S. Chemla. Electronic four-particle correlations in semiconductors: Renormalization of coherent pump-probe oscillations. *Phys. Rev. B*, **61**:7835, 2000.

[18] R. Binder, S. W. Koch, M. Lindberg, W. Schäfer, and F. Jahnke. Transient many-body effects in the semiconductor optical stark effect: A numerical study. *Phys. Rev. B*, **43**:6520, 1991.

[19] P. Brick, C. Ell, S. Chatterjee, G. Khitrova, H. M. Gibbs, T. Meier, C. Sieh, and

S. W. Koch. Influence of light holes on the heavy-hole excitonic optical Stark effect. *Phys. Rev. B*, **64**:075323, 2001.

[20] A. Maruani, J. L. Oudar, E. Batifol, and D. S. Chemla. Nonlinear Spectroscopy of Biexcitons in CuCl by Resonant Coherent Scattering. *Phys. Rev. Lett.*, **41**:1372, 1978.

[21] R. Hellmann, S. T. Cundiff, M. Koch, J. Feldmann, E. O. Göbel, B. Kuhn-Heinrich, D. R. Yakovlev, A. Waag, and G. Landwehr. Exciton dynamics in disordered quantum wells: Localized and delocalized regimes. *Phys. Rev. B*, **50**:14651, 1994.

[22] X. Marie, P. Le Jeune, T. Amand, M. Brousseau, J. Barrau, and M. Paillard. Coherent Control of the Optical Orientation of Excitons in Quantum Wells. *Phys. Rev. Lett.*, **79**:3222, 1997.

[23] P. C. M. Planken, I. Brener, M. Nuss, M. S. C. Luo, and S. L. Chuang. Coherent control of terahertz charge oscillations in a coupled quantum well using phase-locked optical pulses. *Phys. Rev. B*, **48**:4903, 1993.

[24] M. S. C. Luo, S. L. Chuang, P. C. M. Planken, I. Brener, and M. C. Nuss. Coherent double-pulse control of quantum beats in a coupled quantum well. *Phys. Rev. B*, **48**:11043, 1993.

[25] L. K. Grover. Quantum Computers Can Search Arbitrarily Large Databases by a Single Query. *Phys. Rev. Lett.*, **79**:4709, 1997.

[26] M. A. Nielsen and I. L. Chuang. Programmable Quantum Gate Arrays. *Phys. Rev. Lett.*, **79**:321, 1997.

[27] W. Langbein, J. M. Hvam, M. Umlauff, H. Kalt, B. Jobst, and D. Hommel. Binding-energy distribution and dephasing of localized biexcitons. *Phys. Rev. B*, **55**:R7383, 1997.

[28] D. Birkedal, J. Singh, V. G. Lyssenko, J. Erland, and J. M. Hvam. Binding of Quasi-Two-Dimensional Biexcitons. *Phys. Rev. Lett.*, **76**:672, 1996.

[29] V. M. Axt and A. Stahl. A dynamics-controlled truncation scheme for the hierarchy of density matrices in semiconductor optics. *Z. Physik B*, **93**:195, 1994.

[30] V. M. Axt and A. Stahl. The role of the biexciton in a dynamic density matrix theory of the semiconductor band edge. *Z. Physik B*, **93**:205, 1994.

[31] M. Lindberg, Y.Z. Hu, R. Binder, and S.W. Koch. $\chi^{(3)}$ formalism in optically excited semiconductors and its applications in four-wave-mixing spectroskopy. *Phys. Rev. B*, **50**:18060, 1994.

[32] L. I. Schiff. *Quantum Mechanics*. McGraw-Hill, third edition, 1968.

[33] G. Czycholl. *Theoretische Festkörperphysik*. Vieweg-Verlag, Braunschweig/Wiesbaden, erste Edition, 2000.

[34] R. Binder and S. W. Koch. Nonequilibrium Semiconductor Dynamics. *Prog. Quant. Electr.*, **19**:307, 1995.

[35] W. W. Chow and S. W. Koch. *Semiconductor-Laser Fundamentals*. Springer, Berlin, first edition, 1999.

[36] G. Bastard. *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*. les éditions de physique, Paris, first edition, 1996.

[37] F. Jahnke, M. Kira, and S. W. Koch. Linear and nonlinear optical properties of excitons in semiconductor quantum wells and microcavities. *Z. Phys. B*, **104**:559, 1997.

[38] H. Haug and S.W. Koch. *Quantum theory of the electronic and optical properties of semiconductors*. World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., London, third edition, 2001.

[39] W. Schäfer and M. Wegener. *Semiconductor Optics and Transport Phenomena*. Springer, Berlin, first edition, 2002.

[40] Y. R. Shen. *The Principles of Nonlinear Optics*. Wiley, New Jersey, first edition, 2003.

[41] H. C. Schneider, F. Jahnke, S. W. Koch, J. Tignon, T. Hasche, and D. S. Chemla. Polariton propagation in high quality semiconductors: Microscopic theory and experiment versus additional boundary conditions. *Phys. Rev. B*, **63**:045202, 2001.

[42] J. J. Hopfield. Theory of the contribution of excitons to the complex dielectric constant of crystals. *Phys. Rev.*, **112**:1555, 1958.

[43] T. Kuhn. *Density matrix theory of coherent ultrafast dynamics.* Theory of Transport Properties of Semiconductor Nanostructurs, Hg. E. Schoell (Chapman and Hall), London, 1998.

[44] K. Victor, V. M. Axt, and A. Stahl. Hierarchy of density matrices in coherent semiconductor optics. *Phys. Rev. B*, **51**:14164, 1995.

[45] H. Haken and H. C. Wolf. *Molekülphysik und Quantenchemie.* Springer-Verlag, Berlin, zweite Edition, 1994.

[46] S. Bar-Ad and I. Bar-Joseph. Absorption Quantum Beats of Magnetoexcitons in GaAs Heterostructures. *Phys. Rev. Lett.*, **66**:2491, 1991.

[47] S. Bar-Ad and I. Bar-Joseph. Exciton Spin Dynamics in GaAs Heterostructures. *Phys. Rev. Lett.*, **68**:349, 1992.

[48] W. Langbein, T. Meier, S. W. Koch, and J. M. Hvam. Spectral signatures of χ^5 processes in four-wave mixing of homogeneously broadened excitons. *J. Opt. Am. B*, **18**:1318, 2001.

[49] W. Schäfer, R. Lövenich, N. A. Fromer, and D. S. Chemla. From Coherently Excited Highly Correlated States to Incoherent Relaxation Processes in Semiconductors. *Phys. Rev. Lett.*, **86**:344, 2001.

[50] W. Schäfer, R. Lövenich, N. Fromer, and D. S. Chemla. Formation and Decay of Coherent Four-Particle Correlations in Semiconductors: A Green's Function Theory. *Phys. Stat. Sol. (b)*, **221**:195, 2000.

[51] R. Lövenich, C. W. Hägele, D. S. Chemla, and W. Schäfer. Semiconductor polarization dynamics from the coherent to the incoherent regime: Theory and experiment. *Phys. Rev. B*, **66**:045306, 2002.

[52] W. Nolting. *Grundkurs Theoretische Physik. Bd. 7: Viel-Teilchen-Theorie.* Springer, Berlin, fünfte Edition, 2002.

[53] H. Haug and A. P. Jauho. *Quantum Kinetics in Transport and Optics of Semiconductors.* Springer, Berlin, first edition, 1996.

[54] R. D. Mattuck. *A Guide to Feynman Diagrams in the Many-Body Problem.* Dover, New York, second edition, 1992.

[55] A. L. Fetter and J. D. Walecka. *Quantum Theory of Many-Particle Systems*. Dover, New York, first edition, 2003.

[56] N. H. Kwong and R. Binder. Green's function approach to the dynamics-controlled truncation formalism: Derivation of the $\chi^{(3)}$ equations of motion. *Phys. Rev. B*, **61**:8341, 2000.

[57] W. Schäfer, D.S. Kim, J. Shah, T.C. Damen, J.E. Cunningham, K.W. Goossen, L.N. Pfeiffer, and K. Köhler. Femtosecond coherent fields induced by many-particle correlations in transient four-wave mixing. *Phys. Rev. B*, **53**:16429, 1996.

[58] R. Takayama, N.H. Kwong, M. Kuwata-Gonokami I. Rumyantsev, and R. Binder. T-Matrix analysis of biexcitonic correlations in the nonlinear optical response of semiconductor quantum wells. *Eur. Phys. J. B*, **25**:445, 2002.

[59] S. Schumacher. *A Microscopic Theory for Polariton Propagation in Linear and Nonlinear Semiconductor Optics*, Dissertation, Universität Bremen, 2004.

[60] H. G. Breunig. *Einfluss optischer Nichtlinearitäten auf die kohärente Kontrolle von exzitonischen Anregungen in ZnSe-Quantentrögen*, Dissertation, Universität Bremen, 2003.

[61] T. Voß. *Optische kohärente Kontrolle des Exziton-Biexziton-Systems in Zinkselenid-Quantentrögen*, Dissertation, Universität Bremen, 2004.

[62] H. G. Breunig, T. Voss, I. Rückmann, and J. Gutowski. Polarization dependence of excitonic and biexcitonic contributions to FWM signals. *Phys. Stat. Sol. (c)*, **0**:1445, 2003.

[63] A. L. Smirl. Coherent exciton dynamics: time-resolved polarimetry. In A. Miller, M. Ebrahimzadeh, and D. M. Finlayson, editors, *Semiconductor quantum optoelectronics*. Institute of Physics Publishing, 1999.

[64] T. Yajima and Y. Taira. Spatial Optical Parametric Coupling of Picosecond Light Pulses and Transverse Relaxation Effect in Resonant Media. *J. Phys. Soc. Japan*, **47**:1620, 1979.

[65] J. A. Bolger, A. E. Paul, and A. L. Smirl. Ultrafast ellipsometry of coherent processes and exciton-exciton interactions in quantum wells at negative delays. *Phys. Rev. B*, **54**:11666, 1996.

[66] A. L. Smirl, M. J. Stevens, X. Chen, and O. Buccafusca. Heavy-hole and light-hole oscillations in the coherent emission from quantum wells: Evidence for exciton-exciton correlations. *Phys. Rev. B*, **60**:8267, 1999.

[67] J. M. Shacklette and S. T. Cundiff. Role of excitation-induced shift in the coherent optical response of semiconductors. *Phys. Rev. B*, **66**:045309, 2002.

[68] W. Nolting. *Grundkurs Theoretische Physik. Bd. 3: Elektrodynamik*. Springer, Berlin, fünfte Edition, 2000.

Abbildungsverzeichnis

2.1. Skizze zur Veranschaulichung des Hierarchieproblems 18
2.2. Lineares Absorptionsspektrum im zwei- und drei-dimensionalen System, sowie im 8 nm GaAs-Quantenfilm. 22
2.3. Lineare optische Eigenschaften am Beispiel eines Quantenfilms in Abhängigkeit von der Verstimmung Φ. 27

3.1. Skizze zur Veranschaulichung der möglichen Wechselwirkungen zwischen den Elektronen und Löchern beim Biexziton. 35
3.2. Keldysh Zeitkontur. 39
3.3. Freie Greensche Funktionen. 41
3.4. Halbgruppen-Eigenschaft der Greenschen Funktionen. 41
3.5. Einige Beispiele für Feynman-Graphen in $\chi^{(1)}$. 42
3.6. Die zwei grundlegenden Diagrammtypen in $\chi^{(3)}$. Links Typ 1 und rechts Typ 2. 43
3.7. Zwei Tadpole-Diagramme. 43
3.8. Klasse der $\chi^{(3)}$-Diagramme. Fallunterscheidungen für die Streuereignisse, die am dichtesten an der externen Zeit t liegen: a) $t_1 > t_2$, b) $t_2 > t_1$ und c) $t_1 = t_2$. 44
3.9. Zeitliche Entwicklung der durch die Feynman-Diagramme beschriebenen Greenschen Funktionen. 47
3.10. Grafische Darstellung der acht Summanden in Gleichung (3.56). Die „ersten“ Streuereignisse sind: in $\chi^{(1)}$ a) das optische Feld und b) die Coulomb-Wechselwirkung und in $\chi^{(3)}$ c) - d) das optische Feld und e) - h) die Coulomb-Wechselwirkung. Die Impulse sind zur besseren Übersicht nicht dargestellt. Das Diagramm e) findet man mit den entsprechenden Impulsen in Abbildung 3.9 und die Impulse der anderen Diagramme lassen sich entsprechend konstruieren. 48
3.11. Zerlegung der Diagrammfamilie von Zweiteilchen-Greenschen Funktionen in verbundene und unverbundene Anteile als Veranschaulichung von Gleichung (3.58). 49
3.12. Das optische Feld als „erstes“ Streuereignis. 50

3.13. Dynamik der Zweiteilchen-Greenschen Funktion. Die der externen Zeit t am nächsten liegende Coulomb-Wechselwirkungslinie verbindet zwei einlaufende Greensche Funktionslinien. 50

3.14. Dynamik der Zweiteilchen-Greenschen Funktion. Die der externen Zeit t am nächsten liegende Coulomb-Wechselwirkungslinie verbindet eine aus- und einlaufende Greensche Funktionslinie. 51

3.15. Veranschaulichung des Selbstkonsistenzproblems bei der Berechnung der exzitonischen Übergangsamplitude unter Berücksichtigung von Propagationseffekten. 53

3.16. Elektronische Dipol-Übergänge mit Angabe der z-Komponente des Gesamtdrehimpulses und Art der zirkularen Anregung 54

3.17. Energieschema zur Veranschaulichung der exzitonischen und biexzitonischen Bindungsenergie. 55

4.1. Die Abhängigkeit der exzitonischen Übergangsamplitude von den Ordnungen im optischen Feld am Beispiel eines $\chi^{(5)}$-Diagramms. 65

4.2. Skizze zur kohärenten Kontrolle 73

5.1. Spektral aufgelöstes VWM-Signal in Abhängigkeit von der Verzögerungszeit t_{del} zwischen den anregenden Lichtpulsen. Von oben nach unten wurde mit ko-zirkularer, ko-linearer und gekreuzt-linearer Polarisation der Lichtpulse auf der spektralen Position der biexzitonischen Resonanz angeregt. 76

5.2. Schnitte parallel zur Energie-Achse für $t_{\mathrm{del}} = 0$ ps für alle drei Lichtpolarisationen aus Abbildung 5.1. 77

5.3. Reihenfolge, in der die Pulse auf den Quantenfilm treffen. 78

5.4. Konturdarstellung zum kohärent kontrollierten VWM für eine Verzögerungszeit $|t_{\mathrm{del}}| = 0.3$ ps. Die Reihenfolge der Pulse und Vorzeichen der Zeiten t_{del} und t_{int} ist entsprechend Abbildung 5.3 a) - d) gewählt. Die logarithmische Farbskala gibt die Intensität des VWM-Signals an. 79

5.5. Konturdarstellung zum kohärent kontrollierten VWM für eine Verzögerungszeit $t_{\mathrm{del}} = +0.3$ ps. Die Reihenfolge der Pulse und Vorzeichen der Zeiten t_{del} und t_{int} ist entsprechend Abbildung 5.3 b) gewählt. Die logarithmische Farbskala gibt die Intensität des VWM-Signals an. . . 80

5.6. Fouriertransformation des aus zwei Pulsen bestehenden Anregungsfeldes in $\boldsymbol{k}_2$-Richtung für $t_{\mathrm{int}} = -0.6271$ fs. Die Verstimmung ist durch $\Phi = \frac{\hbar\omega - E_g}{E_B^X}$ gegeben. Die linke (rechte) senkrechte Linie kennzeichnet die energetische Position der biexzitonischen (exzitonischen) Resonanz. 81

5.7. Experiment: VWM-Signal vs. Verzögerungszeit für verschiedene Intensitäten des $\boldsymbol{k}_1$-Pulses auf der spektralen Position der exzitonischen Resonanz. Beide Pulse sind linear polarisiert und schließen einen Winkel $\phi_{\text{pol}} = 75°$ ein. Die Energie des $\boldsymbol{k}_1$-Pulses wird von 0.6 bis 12.2 pJ variiert, während die Energie des $\boldsymbol{k}_1$-Pulses auf 12.2 pJ festgehalten ist 84
5.8. Experiment: VWM-Signal vs. Verzögerungszeit für gleiche Intensitäten beider Pulse, welche linear polarisiert sind und einen Winkel von $\phi_{\text{pol}} = 75°$ einschließen. Die Pulsenergien sind von 4.8 bis 12.2 pJ variiert worden. Die Signal-Detektion ist an der spektralen Position der exzitonischen Resonanz. 85
5.9. Experiment: VWM-Signal vs. Verzögerungszeit für gleiche Intensitäten aber unterschiedlichen Winkeln zwischen den Polarisationsvektoren der beiden Pulse. Das Signal wird an der spektralen Position der exzitonischen Resonanz (Hauptteil) oder der biexzitonischen Resonanz (Inset) detektiert. Beide Pulsenergien betragen jeweils 8.5 pJ. 86
5.10. Theoretisches Ergebnis für die gleichen Anregungs- und Detektionsbedingungen wie in Abbildung 5.7 für verschiedene normalisierte Intensitäten des $\boldsymbol{k}_1$-Pulses. Die niedrigste Intensität entspricht einer Rabi-Energie von $dE/E_B^X = 2.2 \cdot 10^{-3}$ in Einheiten der Rydberg-Energie des 3d-Exzitons E_B^X. Zusätzlich ist im Inset das VWM-Signal an der spektralen Position der biexzitonischen Rsonanz dargestellt. 87
5.11. Theoretisches Ergebnis für die gleichen Anregungs- und Detektionsbedingungen wie in Abbildung 5.8. Die niedrigste Intensität entspricht einer Rabi-Energie von $dE/E_B^X = 6.3 \cdot 10^{-3}$ in Einheiten der Rydberg-Energie des 3d-Exzitons E_B^X. Zusätzlich ist im Inset das VWM-Signal an der spektralen Position der biexzitonischen Rsonanz dargestellt. . 88
5.12. Theoretisches Ergebnis für die gleichen Anregungs- und Detektionsbedingungen wie in Abbildung 5.9 und einer Rabi-Energie von $dE/E_B^X = 10^{-2}$ in Einheiten der Rydberg-Energie des 3d-Exzitons E_B^X. Das Inset zeigt das VWM-Signal am Biexziton. 89
5.13. Theorie: VWM-Signal vs. Verzögerungszeit für gleiche Intensitäten der beiden Pulse, welche linear polarisiert sind und deren Polarisationsvektoren einen Winkel von 75° einschließen. Die niedrigste Intensität entspricht einer Rabi-Energie von $dE/E_B^X = 10^{-2}$ in Einheiten der Rydberg-Energie des 3d-Exzitons E_B^X. Anregungs-induziertes Dephasieren wird an der exzitonischen Resonanz beobachtet. Für sehr hohe Intensitäten treten Oszillationen an der biexzitonischen Resonanz (Inset) auf. 90

Danksagung

Bei meinem Doktorvater Herrn Prof. Dr. Frank Jahnke bedanke ich mich für die intensive Betreuung dieser Arbeit.

Mein spezieller Dank geht an Stefan Schumacher für die Zusammenarbeit und die vielen fruchtbaren Diskussionen.

Desweiteren möchte ich mich bei allen Mitgliedern meiner Arbeitsgruppe für Halbleiterphysik bedanken. Insbesondere danke ich Herrn Dr. Paul Gartner für sein scheinbar unerschöpfliches Wissen, die vielen Diskussionen und die Zusammenarbeit am Kapitel 3.3. Ich bedanke mich weiterhin bei meinen Bürokollegen Torben Roland Nielsen und Jan Seebeck für Diskussionen und die angenehme Atmosphäre. Michael Lorke und Stefan Schulz danke ich für Ideen zur Verbesserung dieser Dissertation.

Für die Bereitstellung experimenteller Ergebnisse und die Zusammenarbeit bedanke ich mich bei Prof. Dr. J. Gutowski, Tobias Voß und Lars Wischmeier.

Außerdem danke ich Thorsten Bettges und Golo Hamer für die Durchsicht der Dissertationsschrift.

Schließlich danke ich meiner Frau Yuhui für ihre Geduld und ihr Verständnis für meine Arbeit und den angenehmen Ausgleich. Meinen Eltern danke ich für ihre Unterstützung.