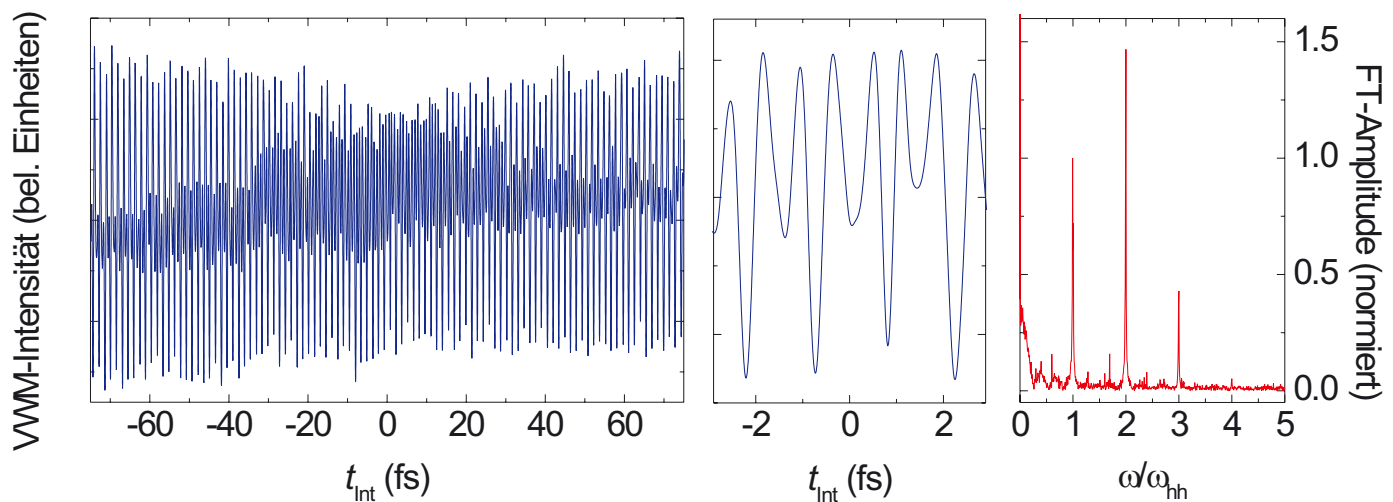

Einfluss optischer Nichtlinearitäten auf die kohärente Kontrolle von exzitonischen Anregungen in ZnSe-Quantentrögen



Einfluss optischer Nichtlinearitäten auf die kohärente Kontrolle von exzitonischen Anregungen in ZnSe-Quantentrögen

Vom Fachbereich für Physik und Elektrotechnik
der Universität Bremen

zur Erlangung des akademischen Grades eines
Doktor der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)
genehmigte Dissertation

von

Hans Georg Breunig
Master of Science
aus Berlin

1. Gutachter: Prof. Dr. J. Gutowski
2. Gutachter: Prof. Dr. W. Staude

Eingereicht am: 12.06.2003
Tag des Promotionskolloquiums: 10.07.2003

Bibliografische Information Der Deutschen Bibliothek

Die Deutsche Bibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über <http://dnb.ddb.de> abrufbar.

1. Aufl. - Göttingen : Cuvillier, 2003

Zugl.: Bremen, Univ., Diss., 2003

ISBN 3-89873-851-5

⊕ CUVILLIER VERLAG, Göttingen 2003

Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen

Telefon: 0551-54724-0

Telefax: 0551-54724-21

www.cuvillier.de

Alle Rechte vorbehalten. Ohne ausdrückliche Genehmigung des Verlages ist es nicht gestattet, das Buch oder Teile daraus auf fotomechanischem Weg (Fotokopie, Mikrokopie) zu vervielfältigen.

1. Auflage, 2003

Gedruckt auf säurefreiem Papier

ISBN 3-89873-851-5

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	5
2	Theoretische Grundlagen	9
2.1	Optische Eigenschaften von Halbleitern	9
2.2	Optische Blochgleichungen	11
2.3	Vielteilcheneffekte in Halbleitern	14
2.3.1	Coulomb-Wechselwirkung	14
2.3.2	Biexzitonen	15
2.3.3	Phasenraumfüllen	15
2.3.4	Abschirmung	16
2.3.5	Renormierung der Bandkante	16
2.3.6	Renormierung des treibenden Lichtfeldes	16
2.4	Halbleiter-Blochgleichungen	17
2.5	Dynamics-Controlled-Truncation Scheme	21
2.6	Bandstruktur von ZnSe	24
2.7	Prinzip des Wellen-Mischens	25
2.8	Prinzip der kohärenten Kontrolle durch zwei phasengekoppelte Pulse . . .	27
3	Stand der Forschung	29
3.1	Kohärente Dynamik in Halbleitern	29
3.1.1	Vier-Wellen-Misch-Signale mit kolinear, gekreuzt-linear und kozirkular polarisierten Anregungspulsen	32
3.2	Kohärente Kontrolle in Halbleitern	34

4	Experiment	43
4.1	Experimenteller Aufbau	43
4.1.1	Lasersystem	43
4.1.2	Frequenzverdoppelung und externe Prismenkompensation	47
4.1.3	Versuchsaufbau	48
4.1.4	Interferometer	52
4.1.5	Pockelszellen	55
4.1.6	Proben	55
4.2	Optische Eigenschaften der ZnSe-Heterostrukturen	56
4.2.1	Spektrale Lage der Resonanzen	56
4.2.2	Kalibrierung der Anregungsleistung	57
5	Ergebnisse	59
5.1	Pump-Test-Messungen mit phasengekoppelten Pulsen	59
5.2	Vier-Wellen-Mischen mit phasengekoppelten Pulsen	67
5.2.1	Vergleich mit theoretischen Ergebnissen	73
5.3	Wellen-Misch-Signale unterschiedlich polarisierter Pulse	76
5.3.1	Vier-Wellen-Mischen	76
5.3.2	Interferometrisches Vier-Wellen-Mischen	78
5.3.3	Sechs-Wellen-Mischen	80
5.3.4	Interferometrisches Sechs-Wellen-Mischen	83
5.3.5	Vergleich mit theoretischen Ergebnissen	85
5.4	Kohärente Kontrolle der biexzitonischen Polarisation	92
5.5	Polarisationswinkel des Vier-Wellen-Misch-Signals	97
5.5.1	Vergleich mit theoretischen Ergebnissen	101
6	Zusammenfassung	107
7	Anhang	109
	Abbildungsverzeichnis	114
	Literaturverzeichnis	117

1 Einleitung

Die Untersuchung der kohärenten Dynamik in Halbleitern bietet die Möglichkeit fundamentale quantenmechanische Prozesse in Festkörpern zu studieren. Um Prozesse dieser Art nicht nur experimentell zu beobachten, sondern darüber hinaus gezielt manipulieren zu können bedarf es der Kontrolle über Amplitude und Phase der quantenmechanischen Wellenfunktion. Die Methodik dieser kohärenten Kontrolle beruht darauf, dass eine optisch induzierte Anregung während des sogenannten kohärenten Zeitregimes die Phase des anregenden Lichtfeldes beibehält. Solange diese Phaseninformation erhalten bleibt, kann ein zweiter Laserpuls, mit der vom ersten Puls induzierten Anregung wechselwirken. Auf diese Weise ist es möglich optische Anregungen um Größenordnungen schneller zu verstärken oder auszulöschen als dies durch Relaxationsprozesse geschehen würde.

Die Technik der optischen kohärenten Kontrolle von Anregungen findet bereits in ganz unterschiedlichen Bereichen wie physikalische Chemie, Atom-, Molekül- [1–5] und Halbleiterphysik Anwendung. In Halbleitern spielt der exzitonischen Zustand – eine elementare Kristallanregung, welche die optischen Eigenschaften von Halbleitern in der Nähe der Bandkante maßgeblich bestimmt [6] – eine herausragende Rolle. Mit der Entwicklung von Lasersystemen, die Pulse mit Pulsdauern im Femtosekundenbereich und damit weit unterhalb der Dephasierungszeit von Exzitonen erzeugen [7], ist die Voraussetzung dafür geschaffen worden, quantenmechanische Zustände in Halbleitern aktiv zu kontrollieren und gezielt einzustellen. Bereits bei den ersten Untersuchungen zur kohärenten Kontrolle der Besetzung von exzitonischen Zuständen [8] und von Spinzuständen [9] war dabei die Frage nach der Anwendbarkeit der Methode für rein optische Schalter von Interesse.

Die ersten grundlegenden Experimente zur kohärenten Kontrolle von Anregungen in Halbleitern [8–11], insbesondere der exzitonischen Polarisierung, waren hauptsächlich an der Demonstration der grundlegenden Effekte interessiert, weniger an dem für diese Experimente als störend empfundenen Einfluss von Korrelationseffekten [12]. In optisch angeregten Halbleitern sind jedoch die durch die Anregungen induzierten Ladungsträger durch die Coulomb-Wechselwirkung miteinander korreliert [13–15]. Eine vollständige mikroskopische Beschreibung solcher Vielteilchensysteme ist nicht möglich. Näherungsweise kann so ein System mit dem Modell eines mittleren Hintergrundfeldes, das auf jeden Ladungsträger gleichermaßen wirkt, beschrieben werden. Jedoch spielen Coulomb-Korrelationen zwischen wenigen angeregten Ladungsträgern für die Antwort auf optische Anregungen eine entscheidende Rolle, die durch ein mittleres Hintergrundfeld nicht berücksichtigt werden kann [16]. So wechselwirken Exzitonen untereinander und können gebundene Zustände (Biexzitonen)

bilden. Vor diesem Hintergrund erhebt sich die Frage, wie die Korrelationseffekte auf die kohärente Kontrolle der Anregungen wirken und ob darüber hinaus diese selbst Gegenstand der Kontrolle sein können. Die Problematik der Wirkung der Korrelationseffekte wird noch dadurch verstärkt, dass die Experimente im allgemeinen bei möglichst geringen Anregungsleistungen durchgeführt werden, um optische Nichtlinearitäten zu minimieren. Unter diesen Bedingungen kann sich jedoch, da nicht genügend viele Streuprozesse stattfinden können, kein mittleres Feld aufbauen, wodurch der relative Einfluss der Coulomb-Korrelationen noch verstärkt wird [16].

Die Auswirkungen von Korrelationseffekten auf die kohärente Kontrolle von Anregungen in Halbleitern wurde bisher bei experimentellen Arbeiten kaum beachtet. Diese Auswirkungen zu untersuchen steht im Mittelpunkt der vorliegenden Arbeit, wobei die kohärente Kontrolle der exzitonischen Polarisierung und die Rolle, die in diesem Zusammenhang die Korrelationen spielen, im Vordergrund stehen.

Es ist bei experimentellen Untersuchungen in dieser Richtung vorteilhaft, Materialien mit besonders ausgeprägten Resonanzen zu verwenden. Hier bieten sich Halbleiter-Nanostrukturen an, die mit großer Genauigkeit und höchster Reinheit hergestellt werden können. In diesen als Quantentrögen bezeichneten Strukturen werden exzitonische Effekte durch die laterale Eingrenzung der Elektron- und Lochwellenfunktionen verstärkt [17]. Um für die Untersuchungen ein möglichst einfaches Modellsystem zu haben, wurden für die vorliegende Arbeit qualitativ hochwertige Halbleiterquantentröge aus dem Verbindungshalbleiter ZnSe eingesetzt. Dieser Halbleiter ist wegen seiner direkten Bandlücke, seiner vergleichsweise hohen Exzitonbindungsenergie und der großen Oszillatorstärke der entsprechenden Resonanz für die Versuche besonders geeignet.

Für die Untersuchungen der kohärenten Dynamik werden Pump-Abfrage- und Wellen-Misch-Experimente benutzt und mit der Technik der kohärenten Kontrolle kombiniert. Die Pump-Abfrage-Spektroskopie [18] wird verwendet, um das dynamische Verhalten der exzitonischen Polarisierung zu untersuchen. Dieses Verfahren eignet sich insbesondere zum Abfragen einer inkohärenten Exzitonendichte, die aus der Kontrolle der Polarisierung im kohärenten Zeitregime entstanden ist. In Wellen-Misch-Experimenten [18] wird in der ersten und zweiten Beugungsordnung ein Signal untersucht, das als unmittelbare Folge der in der Probe angeregten kohärenten Polarisierung entsteht. Da die Wellen-Misch-Signale zum einen direkt mit der kohärenten Polarisierung verknüpft sind und zum anderen in eine hintergrundfreie Richtungen emittiert werden, sind sie besonders geeignet den Beitrag von Nichtlinearitäten auf den Signalverlauf zu untersuchen. Durch umfangreiche systematische Messungen mit verschiedenen Anregungsintensitäten und verschiedenen Polarisierungszuständen gelingt es insbesondere den Beitrag bestimmter Korrelationen, wie der biexzitonischen Polarisierung, deren Erzeugung Spinauswahlregeln unterliegt, zu identifizieren. In diesem Zusammenhang wird auch die separate kohärente Kontrolle der exzitonischen und biexzitonischen Polarisierung demonstriert. Wichtige Hinweise auf den spezifischen Einfluss einzelner Korrelationen ergeben sich durch den Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit mikroskopischen Rechnungen auf verschiedenen Verfeinerungsstufen, die auf der Me-

thode des dynamisch kontrollierten Abbruchs der Gleichungshierarchien (engl. Dynamics-controlled truncation, DCT) [19, 20] basieren. Diese Rechnungen wurden von V. M. Axt durchgeführt.

Darüber hinaus wird der Einfluss der biexzitonischen Polarisation auf den Polarisationswinkel des zeitlich integrierten Vier-Wellen-Misch-Signals zweier linear polarisierter Anregungspulse studiert. Die Ergebnisse werden mit theoretischen Rechnungen, die auf phänomenologisch erweiterten Blochgleichungen für das Exziton-Biexziton-System beruhen, verglichen. Durch die Kombination der experimentellen und theoretischen Untersuchungen gelingt es den unterschiedliche Einfluss von Beiträgen dritter und höherer Ordnung im elektrischen Feld auf das Signal zu bestimmen.

2 Theoretische Grundlagen

2.1 Optische Eigenschaften von Halbleitern

Dieses Kapitel gibt einen Überblick über die theoretische Beschreibung der Wechselwirkungen zwischen elektromagnetischer Strahlung und einem Halbleitersystem, soweit diese zur Interpretation der experimentellen Ergebnisse notwendig ist. Dabei wird besonderer Wert auf die Beschreibung der Vorgänge im kohärenten Regime gelegt. Der Begriff des kohärenten Regimes bezieht sich auf das Zeitregime während und unmittelbar nach einer optischen Anregung durch einen ultrakurzen Laserpuls, in dem die optischen Anregungen eine feste Phasenbeziehung untereinander und in Bezug auf das anregende Lichtfeld haben.

Eine vollständige quantenmechanische Beschreibung der Wechselwirkung zwischen elektromagnetischer Strahlung und dem Halbleiter ist aufgrund der Natur des Vielteilchenproblems nicht möglich. Die Beschreibung kann nur durch geeignete Näherungen gelingen. Ein erster Schritt das Problem zu vereinfachen, besteht in einer halbklassischen Beschreibung, in der das anregende optische Feld klassisch und das Ladungsträgersystem quantenmechanisch behandelt wird. Die klassische Beschreibung des Lichtfeldes ist unter der Voraussetzung, dass der Laserpuls eine große Anzahl von Photonen enthält, gerechtfertigt. In dieser semiklassischen Beschreibung koppelt das äußere Feld durch die Dipolwechselwirkung an das System. Die optische Anregung führt im kohärenten Regime zur Bildung einer makroskopischen Polarisation P . Diese wirkt in den Maxwellgleichungen als Quellterm und beschreibt die lineare und nichtlineare optische Antwort des Systems. Es gilt:

$$P = \chi(E)E \quad (2.1)$$

Der Suszeptibilitätstensor χ ist selbst eine Funktion der Feldstärke E . Er beschreibt die Materialeigenschaften und ist mit dem Brechungsindex und dem Absorptionskoeffizienten verknüpft [21]. Ziel einer theoretischen Beschreibung ist die Bestimmung von P beziehungsweise $\chi(E)$.

In atomaren Systemen lässt sich die Wechselwirkung zwischen einem zeitlich veränderlichen Lichtfeld und einem optischen Übergang durch die optischen Blochgleichungen beschreiben. Dabei ist es, insbesondere bei resonanter Anregung eines einzelnen atomaren Übergangs möglich, das Problem auf die Anregung eines reinen Zwei-Niveau-Systems zu reduzieren.

Die elektronischen Zustände im Halbleiter sind ungleich komplizierter als im Atom, jedoch ähneln die exzitonenischen Zustände in einem Halbleiter in sehr grober Näherung einem

Ensemble von Zwei-Niveau-Systemen [22]. Insbesondere verfügen Exzitonen über wohldefinierte Energieniveaus, die mit einem spektral schmalbandigem Laser angeregt werden können, so dass das Lichtfeld, wie bei Atomen, näherungsweise an zwei isolierte Energieniveaus koppelt. Die exzitonischen Kontinuumszustände können als inhomogene Verbreiterung angesehen werden [18]. Es ist daher gerechtfertigt, die theoretische Beschreibung der Wechselwirkung zwischen elektromagnetischer Strahlung und einem Halbleitersystem mit der Beschreibung der dynamischen Vorgänge im Zwei-Niveau-System zu beginnen. Dieses Vorgehen führt zu den sogenannten optischen Blochgleichungen, die in Abschnitt 2.2 beschrieben werden. In diesem Zusammenhang wird auch kurz skizziert, wie sich aus den Bewegungsgleichungen das experimentell beobachtbare Vier-Wellen-Misch-Signal berechnen lässt.

Im allgemeinen führen die festkörperspezifischen Vielteilcheneffekte, insbesondere die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Ladungsträgern, zu zusätzlichen Nichtlinearitäten, welche die optische Antwort eines Halbleiters erheblich beeinflussen. Einige der Vielteilcheneffekte und die damit verbundenen optischen Nichtlinearitäten sind im Abschnitt 2.3 kurz zusammengefasst.

Wie eine Reihe experimenteller und theoretischer Arbeiten schon zu Beginn der 1990er Jahre demonstriert hat [23–28], lässt sich aufgrund des Einflusses der Vielteilcheneffekte die Dynamik einer optischen Anregung in Halbleitern in vielen Fällen nicht durch die optischen Blochgleichungen beschreiben. Es ist jedoch möglich die optischen Blochgleichungen durch Einbeziehen der Coulomb-Wechselwirkung zu erweitern. Dieses führt zu den Halbleiter-Blochgleichungen. Letzteren liegt die Annahme einer isotropen und parabolischen Bandstruktur zugrunde, wobei die Coulomb-Wechselwirkungen zwischen den Ladungsträgern durch die Annahme eines mittleren Hintergrundfeldes (Mean-Field-Ansatz) behandelt werden. Die Halbleiter-Blochgleichungen werden im Abschnitt 2.4 dargestellt. Für die theoretische Beschreibung der Experimente der vorliegenden Arbeit reicht der Mean-Field-Ansatz allerdings nicht aus. Eine Methode, in der Beschreibung darüber hinaus zu gehen und weitere Coulomb-Korrelationen, insbesondere biexzitonische Zustände, zu berücksichtigen, stellt das sogenannte Dynamics Controlled Truncation (DCT) Scheme dar. Diese Verfahren ermöglicht die systematische Auswahl der relevanten dynamischen Variablen einer störungstheoretischen Entwicklung des Vielteilchenproblems im externen elektrischen Feld. Die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit zur kohärenten Kontrolle (siehe Abschnitt 5.2) konnten durch mikroskopische Rechnungen, die auf dem DCT-Ansatz basieren, sehr gut reproduziert werden. Der Vergleich zwischen Experiment und Theorie ermöglichte darüber hinaus die Identifikation der Effekte einzelner Korrelationsbeiträge. Diese mikroskopische Beschreibung wird in Abschnitt 2.5 kurz dargestellt.

Eine einfache, qualitative Beschreibung des Exziton-Biexziton-Systems gelingt mit dem im Anhang vorgestellten Fünf-Niveau-System für das sich optische Blochgleichungen aufstellen lassen. Weitere Vielteilcheneffekte werden dabei phänomenologisch berücksichtigt.

2.2 Optische Blochgleichungen

Die Wechselwirkungen zwischen Photonen und einem Ladungsträgersystem lassen sich quantenmechanisch mit Hilfe des Dichtematrix-Formalismus darstellen. Dieser dient zur Beschreibung von Systemen, bei denen man keine Informationen über alle möglichen quantenmechanischen Zustände hat, sondern lediglich die klassischen Wahrscheinlichkeiten für die Besetzung der verschiedenen Zustände kennt. Die Dynamik des Systems ergibt sich dann aus den Bewegungsgleichungen der Dichtematrix [14].

Der Dichtematrixoperator ρ ist durch

$$\rho = \sum_j w_j |\psi_j\rangle \langle \psi_j| \quad (2.2)$$

definiert, wobei w_j den Anteil des Systems im Zustand $|\psi_j\rangle$ angibt. Im Halbleiter entsprechen die Zustandsvektoren $|\psi_j\rangle$ den Bloch-Zuständen [14]. Im einfachsten Fall betrachtet man ein Ensemble von unabhängigen Zwei-Niveau-Systemen mit einem angeregten Niveau $|\alpha\rangle$ und einem Grundzustand $|\beta\rangle$. Die einzelnen Elemente der Dichtematrix sind mit $n, m = \alpha, \beta$ gegeben durch:

$$\rho_{nm}(t) = \langle n | \rho(t) | m \rangle = \begin{pmatrix} n_\alpha & \psi \\ \psi^* & n_\beta \end{pmatrix} \quad (2.3)$$

n_α und n_β sind die Erwartungswerte der Besetzungsdichte der Zustände $|\alpha\rangle$ und $|\beta\rangle$. ψ bezeichnet die Übergangsamplitude zwischen den beiden Zuständen. Die Bewegungsgleichungen der Dichtematrixelemente ergeben sich aus der Heisenberg-Gleichung:

$$\dot{\rho} = \frac{i}{\hbar} [\rho, \mathcal{H}] \quad (2.4)$$

Der Hamiltonoperator $\mathcal{H}$ des optisch angeregten Systems lässt sich als Summe eines zeitunabhängigen Operators $\mathcal{H}_0$ des ungestörten Systems, eines Wechselwirkungsoperators $\mathcal{H}_{\text{int}}$ und eines Operators $\mathcal{H}_{\text{rel}}$, der die Relaxationprozesse des Systems in den Grundzustand beschreibt, darstellen:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_{\text{int}} + \mathcal{H}_{\text{rel}} \quad (2.5)$$

Mit $\mathcal{H}_0$ allein ergeben sich die Energieeigenwerte und Eigenfunktionen des ungestörten Zwei-Niveau-Systems [18]. Der Operator $\mathcal{H}_{\text{int}}$ drückt die Wechselwirkung mit dem elektrischen Feld des eingestrahlten Lichtes aus. In der Dipolnäherung ergibt sich für diesen Beitrag: $\mathcal{H}_{\text{int}} = -\mu \cdot \mathbf{E}$. Dabei ist $\mathbf{E}$ der elektrische Feldvektor und μ das Matrixelement, das den Grundzustand mit dem angeregten Zustand koppelt. Der Relaxationsterm $\mathcal{H}_{\text{rel}}$ beschreibt Prozesse, die das Ensemble zurück in das thermische Gleichgewicht bringen. Diese lassen sich nicht analytisch darstellen und müssen durch geeignete Näherungen beschrieben werden. Die einfachste Möglichkeit besteht darin, die Relaxationsprozesse durch

phänomenologische Zerfallsraten zu beschreiben. Für $\mathcal{H}_{\text{rel}}$ ergeben sich dann aus 2.4 folgende Gleichungen:

$$\frac{i}{\hbar}[\rho, \mathcal{H}_{\text{rel}}]_{\alpha\beta} = -\psi\gamma \quad (2.6)$$

$$\frac{i}{\hbar}[\rho, \mathcal{H}_{\text{rel}}]_{\alpha\alpha} = -n_\alpha\gamma_e \quad (2.7)$$

Dabei beschreibt $\gamma_e = 1/T_1$ den Zerfall der Besetzung des oberen Zustandes mit der Lebensdauer T_1 . Im realen Halbleiter nimmt die Besetzung dieses Zustandes durch Effekte wie Rekombination oder Anregung ins Leitungsbandkontinuum, die durch Stöße der Ladungsträger untereinander oder mit Phononen ausgelöst werden, ab. Die Dephasierungsrate der Nicht-Diagonal-Elemente, die sich aus dem Abbau der Besetzung und der Dephasierung durch Stöße ergibt, repräsentiert $\gamma = 1/T_2$. Dadurch erhält man aus den Bewegungsgleichungen der Elemente der Dichtematrix die optischen Blochgleichungen mit Relaxation für ein Zwei-Niveau-System.

$$\frac{d}{dt}\psi = -i(\omega_\alpha - \omega_\beta)\psi - \frac{i}{\hbar}(n_\alpha - n_\beta)\mu \cdot \mathbf{E} - \frac{\psi}{T_2} \quad (2.8)$$

$$\frac{d}{dt}n_\alpha = -\frac{i}{\hbar}(\mu \cdot \mathbf{E}\psi^* - \mu^* \cdot \mathbf{E}^*\psi) - \frac{n_\alpha}{T_1} \quad (2.9)$$

$$\frac{d}{dt}n_\beta = -\frac{i}{\hbar}(\mu \cdot \mathbf{E}\psi^* - \mu^* \cdot \mathbf{E}^*\psi) - \frac{n_\beta}{T_1} \quad (2.10)$$

Der Energieabstand zwischen den zwei Niveaus ist $\hbar(\omega_\alpha - \omega_\beta)$. Die Größe $\mu \cdot \mathbf{E}$ ist ein Maß für die Stärke der Kopplung des äußeren Lichtfeldes an das Zwei-Niveau-System und wird als Rabi-Energie bezeichnet. Die einzige Nichtlinearität im obigen Gleichungssystem entsteht durch die Kopplung der verschiedenen Gleichungen. Sie führt dazu, dass die Besetzungsdichten nicht größer als eins werden. Der Ausdruck $(n_\alpha - n_\beta)$ in Gleichung 2.8 kann sowohl positiv als auch negativ werden. Das externe Feld wirkt daher dämpfend oder treibend auf die kohärenten Übergangsamplituden und die Besetzungsdichten. Das durch diesen Zusammenhang bedingte Sättigungsverhalten wird als „Pauli-Blocking“ bezeichnet.

Aus den Gleichungen lässt sich die makroskopische Polarisation P für ein System von N Oszillatoren berechnen: $P = N(\mu^*\psi + \mu\psi^*)$. Diese Polarisation wirkt als Quelle in den Maxwellgleichungen und führt zu einer abgestrahlten Lichtintensität $I \propto |P|^2$.

Beschreibung des Vier-Wellen-Mischens durch die optischen Blochgleichungen

An dieser Stelle soll die Beschreibung von Vier-Wellen-Misch-Experimenten durch die optischen Blochgleichungen erläutert werden. Das Prinzip dieser Experimente ist in Abschnitt 2.7 beschrieben.

Um ein Vier-Wellen-Misch-Experiment mit zwei Pulsen aus den Richtungen $\mathbf{k}_1$ und $\mathbf{k}_2$, die zur Zeit t_1 beziehungsweise t_2 auf die Probe treffen, zu simulieren, muss das anregende Feld im Modell entsprechend angesetzt werden:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_1(\mathbf{r}, t - t_1)e^{i(\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} - \omega(t-t_1))} + \mathbf{E}_2(\mathbf{r}, t - t_2)e^{i(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} - \omega(t-t_2))} \quad (2.11)$$

$\mathbf{E}_1(t - t_1)$ und $\mathbf{E}_2(t - t_2)$ sind dabei die zeitlichen Einhüllenden der anregenden Lichtpulse mit den Wellenvektoren $\mathbf{k}_1$ ($\mathbf{k}_1$ -Puls) und $\mathbf{k}_2$ ($\mathbf{k}_2$ -Puls) sowie der Zentralfrequenz ω . Der Zeitabstand zwischen den Pulsen ist durch die Verzögerungszeit $t_d = t_2 - t_1$ gegeben.

Zur Beschreibung des Vier-Wellen-Misch-Signals, das in Richtung $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ emittiert wird, müssen die Terme, die als Quelle einer Emission in diese Richtung wirken, betrachtet werden.

In nichtlinearen Experimenten bleibt selbst bei Anregung mit Laserlicht der angeregte nichtlineare Anteil der Polarisation im Vergleich zum linearen klein, so dass sich die Polarisation nach Potenzen des elektrischen Feldes entwickeln lässt:

$$P = \chi^{(1)}\mathbf{E} + \chi^{(2)}\mathbf{E}^2 + \chi^{(3)}\mathbf{E}^3 + \dots \quad (2.12)$$

$\chi^{(1)}$ entspricht der linearen Suszeptibilität, alle höheren Terme den nichtlinearen Beiträgen. Entsprechend lässt sich auf die Polarisation im Dichtematrixformalismus nach Potenzen des Feldes entwickeln, so dass sich die Gleichungen in einem Iterationsschema nach Ordnungen im elektrischen Feld entwickeln lassen. Dazu stellt man die Besetzungen n und die Polarisation ψ formal durch einer Reihe dar:

$$\begin{aligned} n &= n^{(0)} + n^{(1)} + n^{(2)} + n^{(3)} + \dots \\ \psi &= \psi^{(0)} + \psi^{(1)} + \psi^{(2)} + \psi^{(3)} + \dots \end{aligned}$$

Im allgemeinen gilt $\psi^{(0)} = 0$, da keine permanente Polarisation im System vorhanden ist. Durch Einsetzen dieses Ansatzes in die optischen Blochgleichungen lassen diese sich bis zur gewünschten Ordnung im Feld entwickeln. Für sehr kleine Laserintensitäten ist es ausreichend, sich auf die Polarisation dritter Ordnung zu beschränken. Um Effekte höherer Ordnung im Feld zu erfassen, muss die Iteration dann explizit auf höhere Ordnungen erweitert werden. Alternativ ist es möglich die Blochgleichungen numerisch in beliebiger Ordnung im Feld zu lösen und erst anschließend die Beiträge, die zu einer Emission in die untersuchte Richtung führen, herauszusortieren. Durch die Verwendung von Deltafunktionen zur Beschreibung der Anregungspulse ergeben sich für die optischen Blochgleichungen analytische Lösungen, die sich mit Hilfe der zeitabhängigen Störungsrechnung bis zur dritten Ordnung im Feld entwickeln lassen. Für den Polarisationsterm dritter Ordnung $\psi_{221}^{(3)}$, der zur Emission des Vier-Wellen-Misch-Signals in Richtung $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ führt, gilt [18]:

$$\psi_{221}^{(3)} = -\frac{i}{\hbar^3} (\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}_2)^2 \boldsymbol{\mu}^* \cdot \mathbf{E}_1^* e^{-i\omega t} e^{i(2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1) \cdot \mathbf{r}} e^{-i(\omega_{\alpha\beta} - \omega)(t - 2t_d)} e^{-t/T_2} \Theta(t_d) \Theta(t - t_d) \quad , \quad (2.13)$$

wobei Θ die Stufenfunktion ist. Aus $\psi_{221}^{(3)}$ ergibt sich die makroskopische Polarisation $P_{221}^{(3)} \propto \Theta(t - t_d) e^{2(t - t_d)/T_2}$ und die Intensität $I_{221}^{(3)}$ des zeitlich integrierten Vier-Wellen-Misch-Signals als Funktion der Verzögerungszeit:

$$I_{221}^{(3)} = \int |P_{221}^{(3)}|^2 dt \propto e^{(-2t_d/T_2)} \quad (2.14)$$