

Quantenkohärenz in entarteten Exzitonsystemen

Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften
vorgelegt beim Fachbereich Physik
der Johann Wolfgang Goethe-Universität
in Frankfurt am Main

von
Oliver M. Schmitt
aus Würzburg

Frankfurt, März 2001
(DF1)

vom Fachbereich Physik Physik der
Johann Wolfgang Goethe-Universität als Dissertation angenommen.

Dekan: Prof. Dr. Werner Mäntele

Gutachter: Prof. Dr. H. Haug
Prof. Dr. L. Bányai

Datum der Disputation: 17. April 2001

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	5
2	Grundlagen	8
2.1	Exzitonen in Halbleitern	8
2.2	Die Bose-Einstein-Kondensation	10
2.3	Wechselwirkung mit anderen Quasiteilchen	14
2.4	Methoden der Vielteilchenphysik	20
2.4.1	Bewegungsgleichungsmethode	21
2.4.2	Diagrammtechnik	23
2.5	Vier-Wellen-Misch-Experimente	27
3	Polarisationszerfall durch X-X-Streuung in Quantendrähten	29
3.1	Exzitonen in Quantendrähten	30
3.2	Dephasierung durch Exziton-Exziton-Streuung	34
3.3	Ergebnisse und Diskussion	38
4	Exziton-Biexziton-Schwebungen in Quantendrähten	42
4.1	Biexzitonen in Quantendrähten	43
4.2	Kohärenz in Exziton-Biexziton-Korrelationen	45
4.3	Ergebnisse und Diskussion	48
5	Markov-Kinetik wechselwirkender Exzitonen	50
5.1	Kohärenz und Inkohärenz in der Diagrammtechnik	51
5.2	Die kinetischen Gleichungen	56
5.3	Numerische Lösung und Diskussion	59
6	Markov-Kinetik der Kondensation durch Phononenstreuung	66
6.1	Kinetik des Aufbaus der Kondensation	68
6.1.1	Ableitung markovscher Ratengleichungen im Kondensationsregime	68
6.1.2	Numerische Lösung und Diskussion der Ergebnisse	71

6.2	Optisch erzeugte Exzitonen	77
7	Quantenkinetik der Exziton-Kondensation	83
7.1	Die Hartree-Fock-Bogoljubov-Näherung für kondensierte Bosonen	84
7.1.1	Die selbstkonsistente HFB-Näherung im Gleichgewicht	85
7.1.2	Die selbstkonsistente zeitabhängige HFB-Näherung . .	89
7.2	Die quantenkinetischen Gleichungen	91
7.2.1	Die Rolle der Quantenkinetik in der Kinetik der Kondensation	91
7.2.2	Die Ableitung der quantenkinetischen Gleichungen . .	93
7.3	Numerische Auswertung und Ergebnisse	100
7.4	Diskussion	109
8	Zusammenfassung	113

Kapitel 1

Einleitung

Der elementare optische Anregungsprozess eines Halbleiters ist die gleichzeitige Erzeugung eines Elektron-Loch Paares durch ein Photon. Aufgrund der Anziehung zwischen den beiden Ladungsträgern bilden sich jedoch neue, gebundene Zweiteilchenzustände: die Exzitonen. So überrascht es kaum, dass diese „Wasserstoffatome der Halbleiterphysik“ in vielen optischen Experimenten eine bedeutende Rolle spielen und ihr Verständnis eine wichtige Aufgabe der Halbleitertheorie darstellt.

Ähnlich wie die Fermionen in Atomen, können auch Elektron und Loch im gebundenen Zustand unter gewissen Bedingungen ihre individuellen Eigenschaften verlieren und sich wie ein neues gemeinsames Teilchen verhalten, das allerdings bosonischen Charakter trägt. Diese bosonischen Exzitonen streuen bevorzugt in besetzte Zustände, thermalisieren zur Bose-Verteilung und verhalten sich auch in vielen anderen Aspekten wie massive Bosonen.

Selbstverständlich ist die Analogie zu bosonischen Atomen nicht perfekt: Ein wesentlicher Unterschied ist die auf den Zeitskalen atomarer Prozesse ultrakurze Lebensdauer von Exzitonen, die selten länger als Nanosekunden dauert. Deshalb ist das Exziton ein transitorisches Phänomen und seine zeitliche Kinetik rückt viel stärker in den Vordergrund, als dies bei den viel stabileren Atomen der Fall ist.

In dieser Arbeit wird genau diese Kinetik bosonischer Exzitonen behandelt. Vor allem ist dabei gerade die Kinetik entarteter Exzitonsysteme spannend, die weit vom klassischen Limes entfernt sind. Immer wieder zeigen solche Systeme überraschende Quantenphänomene, die in ihrer bosonischen Natur begründet sind. Es stellen sich dabei zum Beispiel die folgenden Fragen: Was passiert nach der Erzeugung von Exzitonen durch einen kohärenten Laser? Wie entwickelt sich das voll kohärente, rein quantenmechanische System irreversibel zum inkohärenten Gleichgewicht ohne jegliche Phase? Wie kann man grundsätzlich das Wechselspiel zwischen den kohärenzzerstörenden Streupro-

zessen und den rein quantenmechanischen und reversiblen kohärenten Prozessen verstehen?

Aber auch ein zweiter Themenkomplex rückt automatisch in den Vordergrund. Akzeptiert man nämlich den unter gewissen Bedingungen bosonischen Charakter der Exzitonen, so ist die Diskussion eines Phänomens unausweichlich: die Bose-Einstein-Kondensation. Dieser faszinierende Prozess ist in vieler Hinsicht komplementär zu den gewöhnlichen optischen Experimenten. Während in der Optik eine anfängliche quantenmechanische Phase (Polarisation) durch den Laser erzeugt wird, die dann in einen rein inkohärenten (phasenlosen) Zustand zerfällt, baut sich bei der Bose-Einstein-Kondensation eine quantenmechanische Phase aus einem inkohärenten und damit eher klassischen Zustand spontan auf. Diese Phase verhält sich dann ähnlich wie eine makroskopische Wellenfunktion, ganz so als würde es keine Streuung und Irreversibilität geben.

Eine kinetische Theorie entarteter Exzitonsysteme sollte sowohl den Zerfall von Quantenkohärenz nach gewöhnlichen optischen Experimenten als auch ihren Aufbau unter Kondensationsbedingungen beschreiben können. Dazu müssen sowohl die kohärente Dynamik als auch die irreversible Streuung mikroskopisch erfasst werden. Eine solche Theorie wird in dieser Arbeit entwickelt.

Dabei kann man sich von den Erfolgen (quanten-)kinetischer Theorien für Elektronen leiten lassen, die auf der Basis moderner Methoden der Vielteilchenphysik ähnliche Übergänge von Kohärenz zu Inkohärenz beschreiben können. Doch können Stoßterme, von denen man immer eine phasenzerstörende Wirkung erwartet, unter Kondensationsbedingungen eine Phase aufbauen und dann erhalten? Die Behandlung des spontanen Aufbaus von Quantenkohärenz mit Methoden der Vielteilchentheorie ist ein wesentlicher Beitrag dieser Arbeit.

Daran wird sich jedoch nur langsam herangetastet: Die Arbeit beginnt mit einer Einführung in die Grundlagen des Themas in Kapitel 2.

In Kapitel 3 wird dann nur die Dephasierung durch inkohärente Prozesse und in Kapitel 4 ein rein kohärentes Exzitonsystem untersucht. In diesen Kapiteln ergeben sich interessante Aussagen über die optischen Eigenschaften niederdimensionaler Quantensysteme.

In Kapitel 5 werden beide Welten, kohärente und inkohärente Physik, verbunden. Eine Exzitonkinetik wird formuliert, die den gesamten Prozess von der kohärenten Erzeugung der Exzitonen durch das Lichtfeld bis zur Dephasierung und Thermalisierung mikroskopisch beschreibt. Die Fähigkeit eines Bosonen-Systems zur Kondensation zeigt sich in diesem Kapitel erstmals in ihrem Einfluss auf die Dephasierung.

Die letzten beiden Kapitel 6 und 7 sind dann ganz der Kinetik der Kondensation gewidmet. In Kapitel 6 wird eine Kinetik entwickelt, in der das entartete Exzitonsystem oberhalb der kritischen Dichte tatsächlich kondensiert. Diese Kinetik der Kondensation wird anschließend im Detail untersucht. Auf die kohärenten Wechselwirkungsterme wird jedoch in diesem Kapitel völlig verzichtet.

Kapitel 7 ist in gewisser Weise der Höhepunkt dieser Arbeit. In heutigen Kondensationsexperimenten zeigen sich viele Aspekte wie z.B. die nichtlineare Schrödingergleichung und die Superfluidität, die Eigenschaften der Kondensation des wechselwirkenden Bose-Gases sind. In diesem Kapitel wird eine quantenkinetische Theorie der Kondensation des wechselwirkenden Bose-Gases formuliert und der zeitliche Aufbau dieses nichttrivialen kohärenten Zustandes kann erstmals simuliert werden. Mit der zeitlichen Entwicklung dieses Zustandes sind automatisch spektrale Veränderungen verbunden, die nur mit quantenkinetischen Methoden exakt berücksichtigt werden können.

Am Anfang jedes Kapitel steht eine spezielle Einleitung in den behandelten Sachverhalt mit den entsprechenden Verweisen auf die relevanten Arbeiten.

Kapitel 2

Grundlagen

In diesem Kapitel wird eine kurze Einführung in die physikalischen Grundlagen dieser Arbeit gegeben, sofern sie nicht elementar und Gegenstand allgemeiner Vorlesungen über Halbleitertheorie sind. Breitere Darstellungen der Fundamente der folgenden Kapiteln findet man zum Beispiel in den Lehrbüchern der Festkörpertheorie [1, 2], der Halbleitertheorie [3, 4] oder noch spezieller der Halbleiteroptik [5, 6, 7] und der Exzitonen [8].

2.1 Exzitonen in Halbleitern

In dieser Arbeit wird die Kinetik der Exzitonen in verschiedenen Halbleitern untersucht.

Halbleiter sind spezielle Festkörper, die am absoluten Temperaturnullpunkt $T = 0$ ein leeres Leitungsband und ein volles Valenzband aufweisen. Im Vergleich zum Isolator ist jedoch bei Halbleitern die Energielücke zwischen den beiden Bändern relativ klein.

Von diesen wiederum sind direkte Halbleiter, bei denen die wesentlichen Bandextrema im Mittelpunkt der Brioullinzone liegen, von besonderem Interesse. Sie sind am besten für optische Experimente zugänglich und dominieren auch die technologische Anwendungen der Halbleiteroptik (z.B. Laser).

In den folgenden Kapiteln werden theoretische Voraussagen und Berechnungen für die direkten Halbleiter (In)GaAs, ZnSe und Cu₂O gezeigt. Diese Halbleiter sind jedoch nur Paradigmen für die Gesamtklasse der direkten Halbleiter und repräsentieren die III-V-Halbleiter, die II-VI-Halbleiter und Halbleiter mit extrem großer Exzitonbindungsenergie.

Die wirklichen Bandstrukturen von Halbleitern sind häufig ausgesprochen kompliziert. Bei Anregungen an der Bandkante reicht jedoch eine parabolische Näherung für die Bänder oft aus. Wird der Anregungsmechanismus des

Halbleiters günstig gewählt, so reicht in vielen Fällen die Beschränkung auf nur ein Leitungsband und ein Valenzband. Diese Näherung ist in allen von uns betrachteten Fällen gültig. Daher kann im Weiteren einfach von Elektronen und Löchern (fehlende Elektronen in dem berücksichtigten Valenzband) gesprochen werden.

Die Elektronen und Löcher wechselwirken durch die Coulomb-Kräfte, wodurch der Halbleiter zu einem komplizierten Vielteilchensystem wird, dessen exakte Eigenzustände unbekannt sind. Die aus einem Loch und einem Elektron bestehenden Zweiteilchenanregungen nennt man Exzitonen.

In der Wannier-Näherung, die für stark delokalisierte Exzitonen gültig ist, reduzieren sich die komplizierten Gleichungen für das Exziton auf die einfache Wannier-Gleichung, die formal der Gleichung für das Wasserstoffatom entspricht. Während das Wasserstoffatom jedoch aus Elektron und Proton besteht, setzt sich das Wannier-Exziton aus Kristallelektron und Loch zusammen. Genauso wie das Wasserstoffatom besitzt auch das Wannier-Exziton gebundene Zustände und ein Anregungskontinuum, das im Wesentlichen durch freie Elektron-Loch-Paare beschrieben wird. Die Wannier-Näherung liefert hervorragende Ergebnisse für alle der erwähnten Halbleiter. Selbst in Cu_2O mit seinen im Vergleich relativ lokalisierten Exzitonen sind die Abweichungen von der Wannier-Näherung kaum messbar.

Alle weiteren Untersuchungen werden sich auf die Dynamik der gebundenen $1s$ -Zustände des Wannier-Exzitons beschränken. Das Wort Exziton wird daher synonym mit diesem gebundenen Zustand des Wannier-Exzitons verwendet und gelegentlich mit „X“ abgekürzt.

In atomaren Systemen zeigt sich, dass gebundene Zustände aus Fermionen in sehr guter Näherung als Bosonen beschrieben werden können, wenn der Gesamtspin des Zustandes ganzzahlig ist und innere Freiheitsgrade experimentell nicht aufgelöst werden. Die Erfolge einer solchen globalen Beschreibung des Atoms zeigen sich in besonders schöner Weise in den Phänomenen der Superfluidität und der atomaren Bose-Kondensation.

Obwohl selbst Exzitonen mit sehr großer Bindungsenergie im Vergleich zu Atomen schwach gebunden sind (siehe Tabelle 2.1), zeigt sich ihr bosonischer Charakter deutlich, wenn die Exzitonbindungsenergie sehr groß gegen alle anderen charakteristischen Energien ist und gleichzeitig das Verhältnis $na_B^3 \ll 1$ gültig ist. Dabei ist n die Dichte der Exzitonen und a_B ihr Radius. Die zweite Forderung ist äquivalent zu der Aussage, dass der Abstand der Exzitonen sehr groß gegenüber ihrem Radius ist, so dass sie sich kaum überlappen (siehe Abb. 2.1). Die Exzitonen besitzen dann einen Schwerpunktimпульs \vec{k} , der nicht mit dem Elektronenimpuls zu verwechseln ist.

Ein wesentlicher Unterschied zu Atomen ist die endliche und relevante Le-

Material	Bindungsenergie	Bohrscher Radius
GaAs	4meV	12nm
ZnSe	19meV	6nm
Cu ₂ O	150meV	0.7nm
H – Atom	13.6eV	0.05nm

Tabelle 2.1: Vergleich Exziton und Wasserstoffatom

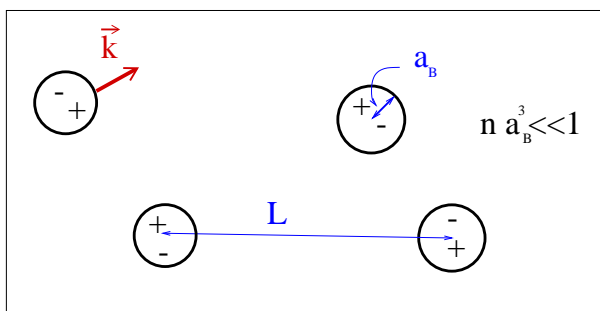


Abbildung 2.1: Das Exziton als wechselwirkendes Boson

lebensdauer dieser Zustände. Obwohl das Exziton im Prinzip ein stabiler Eigenzustand des Zweiteilchensystems ist, so handelt es sich in der Anwesenheit von anderen Teilchen um ein Quasiteilchen mit endlicher Lebensdauer. Dies muss bei experimentellen und theoretischen Analysen dieser Teilchen oft berücksichtigt werden.

2.2 Die Bose-Einstein-Kondensation

Beschreibt man Exzitonen als Bosonen, so ist man unmittelbar mit einer Besonderheit bosonischer Systeme konfrontiert, der Bose-Einstein-Kondensation (BEC) [9, 10].

Diese Kondensation ist ein Phasenübergang, der bei Bosonen oberhalb einer kritischen Dichte n_c (oder unterhalb einer kritischen Temperatur T_c) auftritt. Bei diesem wird plötzlich der energetisch niedrigste Zustand mit Impuls Null makroskopisch besetzt, d.h. die Besetzungszahl des niedrigsten Zustands wird proportional dem Probenvolumen. Zusätzlich entsteht eine spontane Symmetriebrechung bezüglich der Teilchenzahl und eine makroskopische Phase als Ordnungsparameter.

Ungewöhnlicherweise sind für diesen Phasenübergang keine Wechselwirkungs-

effekte notwendig, selbst Systeme wechselwirkungsfreier Bosonen können kondensieren. Alleine die Statistik der ununterscheidbaren Teilchen mit ganzzahligen Spin reicht zur Erklärung des Phänomens aus.

In diesem Abschnitt werden kurz die wesentlichen Züge der Bose-Kondensation anhand des freien Bose-Gases erläutert. Die nichttriviale Kondensation des wechselwirkenden Bose-Gases wird dann erst in Kapitel 7 behandelt. Die wesentlichen Begriffe wie Kondensation, Makroskopie und spontane Symmetriebrechung können an diesem einfachen Beispiel jedoch sehr gut veranschaulicht werden.

Man geht von freien Bosonen mit Impuls \vec{k} aus, bei denen es sich sowohl um bosonische Atome als auch zum Beispiel um $1s$ -Exzitonen mit Schwerpunktimpuls \vec{k} handeln kann.

Der Hamilton-Operator lautet dann

$$H = \sum_{\vec{k}} e_k a_{\vec{k}}^+ a_{\vec{k}}, \quad (2.1)$$

wobei die Bosonen ein quadratisches Spektrum aufweisen

$$e_k = \frac{\hbar^2 k^2}{2m}.$$

$a_{\vec{k}}$ und $a_{\vec{k}}^+$ sind die bosonischen Vernichtungs- und Erzeugungsoperatoren und erfüllen daher

$$[a_{\vec{k}}, a_{\vec{k}'}^+]_- = \delta_{\vec{k}, \vec{k}'}.$$

Im Gleichgewicht sind die Besetzungszahlen der Teilchen $n_k = \langle a_{\vec{k}}^+ a_{\vec{k}} \rangle$ durch die Bose-Verteilung mit der inversen thermischen Energie β und dem chemischen Potential μ gegeben durch

$$n_k = \frac{1}{e^{\beta(e_k - \mu)} - 1}. \quad (2.2)$$

Führt man nun naiv den thermodynamischen Limes (Kontinuumsliches) durch, so gilt für die Dichte des Systems

$$n = \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}} \frac{1}{e^{\beta(e_k - \mu)} - 1} \xrightarrow{V \rightarrow \infty} \frac{1}{(2\pi)^3} \int d^3 k \frac{1}{e^{\beta(e_k - \mu)} - 1}. \quad (2.3)$$

Da bei Bosonen für das chemische Potential $\mu \leq 0$ gilt, ist dieses Integral nach oben begrenzt durch den Wert bei $\mu = 0$

$$n_c = \frac{1}{(2\pi)^3} \int d^3 k \frac{1}{e^{\beta e_k} - 1} = \frac{1}{\sqrt{2\pi^2}} \Gamma\left(\frac{3}{2}\right) \zeta\left(\frac{3}{2}\right) \left(\frac{m}{\beta \hbar^2}\right)^{\frac{3}{2}}.$$

Für vorgegebene Dichten $n > n_c$ erhält man also innerhalb dieses naiven Vorgehens einen offensichtlichen Widerspruch!

Dieser wurde dadurch gelöst, dass man die Schwäche der Gleichung (2.3) für die Dichte erkannte. In der Tat wird der $k = 0$ Zustand oberhalb der kritischen Dichte makroskopisch und solange er in die Summe einbezogen bleibt, geht diese nicht zum Integral. Vielmehr gilt für $n > n_c$

$$n = \frac{1}{2\pi^3} \int d^3k n_k + \lim_{V \rightarrow \infty} \frac{n_0}{V} .$$

Der Begriff der Makroskopie hierbei bedeutet nichts anderes, als dass der zweite Term dieser Summe auch im Limes endlich bleibt. Während im thermodynamischen Limes das ganze Kontinuum der Zustände mit Dichte Null besetzt wird und nur das Integral aller eine endliche Dichte gibt, ist die Dichte im Zustand $k = 0$ endlich. Diese makroskopische Besetzung nennt man Kondensation. Der Kondensationspunkt $k = 0$ geht daher nicht zum Integral. Es wird später ein wesentlicher Punkt aller theoretischer Modelle in dieser Arbeit sein, dass makroskopische Größen von den Summen separiert werden und erst dann der Integrallimes durchgeführt wird. Obwohl dies häufig schon Gegenstand von Kursvorlesungen ist, gibt es dennoch zahlreiche Arbeiten, die Bosonen ohne diese notwendige Separierung behandeln. Die daraus resultierenden Inkonsistenzen werden in späteren Abschnitten noch weiter diskutiert. Auf eine mathematischere Diskussion, warum die Summe ohne Separation nicht zum Integral geht, wird hier verzichtet.

Zwei weitere wesentliche Konzepte der Theorie der Phasenübergänge sind die spontane Symmetriebrechung und die Existenz eines Ordnungsparameter.

Unter spontaner Symmetriebrechung versteht man den Umstand, dass bei Phasenübergängen die Symmetrie des fundamentalen Hamilton-Operators gebrochen wird. So sind zum Beispiel in einem einfachen Spinsystem, wie z.B. dem Ising-Modell, die Zustände „Spin nach oben“ und „Spin nach unten“ gleichberechtigt, in der geordneten Phase findet man jedoch entweder alle Spins nach oben oder alle Spins nach unten gerichtet. Da aber weder die Zustände des Systems noch seine Dichtematrix die Symmetrie brechen, war es lange nicht klar, wie diese gebrochene Symmetrie zu beschreiben ist. Dieses Problem löste Bogoljubov [11, 12] mit dem Konzept der sogenannten Quasimittelwerte, bei dem die Symmetriebrechung als Instabilität des Systems gedeutet wird. Auf jede infinitesimal kleine äußere Symmetriebrechung reagiert das System mit einer makroskopischen Symmetrieverletzung. Dieses Konzept erklärt das experimentelle Phänomen der Symmetriebrechung bei Phasenübergängen, da unter keinen experimentellen Bedingungen äußere Störungen

völlig auszuschließen sind. Darüber hinaus gibt es aber auch eine konkrete Berechnungsregel an: Um den Zustand der geordneten Phase zu finden, muss man eine Symmetriebrechung der Form $\lambda H'$ in den Hamilton-Operator einbauen, wobei H' ein symmetriebrechender Term und λ ein Kleinheitsparameter ist. Nach Bogoljubov ist die Dichtematrix des Systems dann gegeben durch

$$\rho = \lim_{\lambda \rightarrow 0} \lim_{\substack{V \rightarrow \infty \\ \rho = \text{konst.}}} \rho_\lambda, \quad (2.4)$$

wobei ρ_λ die Dichtematrix mit expliziter Symmetriebrechung ist. Dies ist die mathematische Formulierung des Instabilitätsgedankens: Erst wird die Symmetriebrechung eingebaut, dann der thermodynamische Limes durchgeführt und dann die Symmetriebrechung zu Null geführt.

Ein mit Symmetriebrechung verwandtes Konzept ist der Ordnungsparameter. Unter einem Ordnungsparameter versteht man eine Größe, die in der ungeordneten Phase Null und in der geordneten Phase endlich ist. Meist wählt man als Ordnungsparameter Größen, die eng mit der Symmetriebrechung verbunden sind und ein direktes Maß für diese geben. Um wieder das Beispiel des Magnetismus anzuführen, ist dort ein passender Ordnungsparameter die Magnetisierung der Probe.

Die Lehrbuchbehandlung der Kondensation des freien Bose-Gases kommt völlig ohne diese beiden Konzepte der Phasenübergangstheorie aus. Jedoch kann man zeigen, wie diese einzubauen sind. Die involvierte Symmetrie ist etwas komplizierter als im Beispiel der Magnetisierung. Es handelt sich um die Eichinvarianz gegenüber einer festen Phase ϕ . Aus $a_k \rightarrow a_k e^{i\phi}$ folgt nämlich $H \rightarrow H$ (oder einfacher: $e^{-iN\phi} H e^{+iN\phi} = H$). Es ist also keine Phase von a_k im System ausgezeichnet. Die spontane Symmetriebrechung der Bose-Kondensation zeigt sich dann jedoch gerade im Auszeichnen einer solchen Phase. Es gilt nämlich im kondensierten Zustand

$$p = \frac{1}{\sqrt{V}} \langle a_0 \rangle = \frac{1}{\sqrt{V}} |\langle a_0 \rangle| e^{i\phi} \neq 0. \quad (2.5)$$

Naheliegender definiert man genau dieses p als den Ordnungsparameter der BEC.

Die Aussage (2.5) erhält man, wenn man im bogoljubovschen Sinne

$$H_\lambda - \mu N = \sum_{\vec{k}} (e_{\vec{k}} - \mu) a_{\vec{k}}^\dagger a_{\vec{k}} + \lambda^* \sqrt{V} a_0 + \lambda \sqrt{V} a_0^\dagger,$$

untersucht. Es zeigt sich dann tatsächlich mit der Methode der Quasimittelwerte in der kondensierten Phase ein Ordnungsparameter mit der Phase von

$$\lambda = |\lambda|e^{i\phi}$$

$$p = \sqrt{\frac{n_0}{V}}e^{i\phi},$$

dessen Betragsquadrat das Kondensat ergibt [13]. Deshalb kann im Folgenden das Kondensat immer durch das Absolut-Quadrat des komplexen Ordnungsparameter p ausgedrückt werden.

Die BEC in der Gleichgewichtstheorie ist also immer mit dem Auftreten einer makroskopischen Phase (Kohärenz) verbunden.

2.3 Wechselwirkung mit anderen Quasiteilchen

Die Exzitonen in Halbleitern sind keine freien Teilchen, sondern wechselwirken untereinander und mit anderen Quasiteilchen. Zusätzlich werden sie vom Lichtfeld sowohl erzeugt als auch vernichtet und ihre komplexe Amplitude trägt zu den Quelltermen der Maxwell-Gleichungen bei. Diese Prozesse, bei denen das Exziton mit der Außenwelt wechselwirkt, werden in diesem Abschnitt kurz angeführt und erläutert. Dabei wird sich die Ausführung jedoch auf für diese Arbeit relevante Phänomene beschränken.

Zur Beschreibung der Wechselwirkungsprozesse in diesem Abschnitt soll das Bosonenbild für ein System von 1s-Exzitonen verwendet werden. Dabei wird von einfachen exzitonischen Zuständen ausgegangen. Erst in späteren Kapiteln wird die Theorie auch um andere Quantenzahlen und Komplikationen erweitert.

Beschränkt man sich auf zwei Bänder und vernachlässigt die Spin-Bahn-Kopplung, so ist der Einzelspin (\uparrow oder \downarrow) der Exzitonbestandteile Elektron (e) und Loch (h) eine gute Quantenzahl. In diesem Fall ist es bei Weitem günstiger, statt der Klassifizierung nach dem Gesamtdrehimpuls, die Einzelspins als Quantenzahlen zu wählen. Man erhält somit die vier Exzitonentypen $|e \uparrow h \downarrow\rangle$ und $|e \uparrow h \uparrow\rangle$ und die beiden dazu völlig umgeklappten Zustände. Dabei handelt es sich zwar nicht um das Singlett- und das Triplettexziton, aber in vieler Hinsicht entspricht $|e \uparrow h \downarrow\rangle$ dem Singlett und $|e \uparrow h \uparrow\rangle$ dem Triplett.

Die einzige weitere Quantenzahl ist dann der Schwerpunktimpuls \vec{k} und die Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren $a_{\vec{k},\nu}$ sind die elementaren Objekte der Theorie (ν ist die Quantenzahl des Spinzustandes). Gemäß unserer Grundannahme gelten für diese bosonische Vertauschungsrelationen $[a_{\vec{k},\nu}, a_{\vec{k}',\nu'}^+]_- = \delta_{\vec{k},\vec{k}'}\delta_{\nu,\nu'}$.

Baut man diese Operatoren aus Fermi-Operatoren auf, so kann man zeigen, dass diese Vertauschungsrelationen bei niederen Dichten näherungsweise gültig sind [5]. Dies klärt jedoch den Übergang von zusammengesetzten Fermionensystemen zu Bosonen nicht völlig, da dabei nicht die Konvergenz abstrakter operatorieller Kommutatoren oder Hamilton-Operatoren, sondern eher die Konvergenz physikalisch meßbarer Größen entscheidend ist. Daher ist dieser Übergang bis heute von großem Interesse (eines der Forschungsprojekte der Marburger Gruppe ist zum Beispiel diesem Problem gewidmet [14, 15]). Die ausgesprochen intuitive Existenz eines bosonischen Grenzwertes zusammengesetzter Fermionensysteme ist jedoch durch zahlreiche atomare und exzitonische Experimente belegt (ein Höhepunkt ist dabei sicher die BEC von Atomen) und wird daher als Grundannahme in dieser Arbeit postuliert, wobei die ebenfalls intuitive Begrenzung auf nicht überlappende Exzitonen mit großer Bindungsenergie stets im Auge behalten wird.

Im Weiteren sollen mit Hilfe dieser Bosonenannahme alle Wechselwirkungen der Exzitonen in bosonischen Operatoren ausgedrückt werden, wobei die Existenz ihrer fermionischen Konstituenten aber durchaus bei der Ableitung der richtigen Wechselwirkungsterme im Hamilton-Operator eingeht.

Eine der fundamentalen Quellen der Maxwell-Gleichungen ist die Polarisation \vec{P} , die ein Maß des inneren Feldes in der Probe ist, das von den mikroskopischen Strömen erzeugt wird. Eine detaillierte Ableitung des in Halbleitern im Allgemeinen verwendeten Ausdrucks für \vec{P} findet man zum Beispiel in [5, 16]. In den von uns betrachteten dipolerlaubten Halbleitern läßt sich die Polarisation \vec{P} als Dipoldichte und reine Interband-Polarisation formulieren,

$$\vec{P} = \langle \{ \int d^3r \vec{d}_{cv} \psi_{e\uparrow}(\vec{r}) \psi_{h\downarrow}(\vec{r}) + \text{h.c.} \} + \{ \text{„} \downarrow \text{“} \leftrightarrow \text{„} \uparrow \text{“} \} \rangle . \quad (2.6)$$

Dabei ist \vec{d}_{cv} das Dipolmatrixelement zwischen Leitungsband (c) und Valenzband (v), die Feldoperatoren $\psi_{e/h,\uparrow/\downarrow}(\vec{r})$ beschreiben Bloch-Elektronen und Löcher mit Spin aufwärts oder Spin abwärts. Die leichter interpretierbaren diagonalen Matrixelemente $\propto d_{\mu\mu}$, die mit der Dipoldichte der klassischen Physik korrespondieren, können vernachlässigt werden. Im Fall von Cu_2O ist Gleichung (2.6) nicht gültig, da dort erst die in diesem Ausdruck vernachlässigten Quadrupolmomente zur Polarisation beitragen. Dieser Fall wird jedoch in späteren Kapiteln noch ausführlicher diskutiert.

Ziel der Bosonentheorie ist die Formulierung aller Gleichungen durch bosonische Operatoren. Dies gelingt nur durch die starke Annahme eines verschwindenden Beitrags des Elektron-Loch-Kontinuums und der inneren fermionischen Freiheitsgrade des Exzitons. Für die Polarisation ist diese Entwicklung

in Bose-Operatoren schnell durchgeführt. Bei Vernachlässigung aller Zustände außer dem 1s-Exziton kann man die Paare $\langle \psi_{e\uparrow}(\vec{r}) \psi_{h\downarrow}(\vec{r}) \rangle$ direkt durch Exziton-Vernichtungsoperatoren ausdrücken und man erhält [5]

$$\vec{P} = \{\vec{d}^* \langle a_{0,e\uparrow h\downarrow} \rangle + h.c.\} + \{, \downarrow \leftrightarrow , \uparrow \}; \quad \vec{d} = \vec{d}_{cv} \int d^3 r \phi_{\vec{k}=0}(\vec{r}, \vec{r}). \quad (2.7)$$

Dabei ist $\phi_{\vec{k}}(\vec{r}_e, \vec{r}_h)$ die 1s-Exziton-Wellenfunktion und die Translationsinvarianz erlaubt wie schon im Elektron-Loch-Bild nur Polarisationsbeiträge vom Schwerpunktimпульс $\vec{k} = 0$. Ausgehend vom Elektron-Loch-Bild folgt zusätzlich, dass nur der Exzitonentyp mit entgegengesetztem Spin (z.B. $|e\uparrow h\downarrow\rangle$) zur Polarisation beiträgt.

Dies hat unmittelbare Konsequenzen für die Kopplung an ein kohärentes Lichtfeld, wie es in sehr guter Näherung von Lasern erzeugt wird. Setzt man den Kopplungsoperator als Produkt von Polarisationsoperator und Feld an, so erhält man

$$H_{XE} = \{\vec{d}\vec{E}(t)a_{0,e\uparrow h\downarrow}^+ + h.c.\} + \{, \downarrow \leftrightarrow , \uparrow \}. \quad (2.8)$$

Es wird also auch nur der Exzitonentyp $|e\uparrow h\downarrow\rangle$ bzw. $|e\downarrow h\uparrow\rangle$ vom Laser erzeugt! In diesem Abschnitt wird deshalb ausschließlich diese Exzitonengruppe analysiert und überdies noch angenommen, dass nur eine der beiden Möglichkeiten also z.B. $|e\uparrow h\downarrow\rangle$ und nicht $|e\downarrow h\uparrow\rangle$ vom Laser erzeugt wurden, so dass der Spinindex von nun an unterdrückt werden kann. Diese selektive Anregung kann in der Tat leicht durch die Verwendung zirkular polarisierten Lichts erreicht werden.

Die entscheidende Größe zur Berechnung der makroskopischen Polarisation in der Probe ist folglich die direkt mit dem Lichtfeld wechselwirkende Interbandpolarisation $p = \frac{1}{\sqrt{V}} \langle a_0 \rangle$. Da die Koeffizienten zwischen beiden Polarisierungen unerheblich sind, spricht man von der Interbandpolarisation oft einfach kürzer als Polarisation. Ein zentraler Punkt dieser Arbeit, der sehr häufig übersehen wird, ist die bei Exzitonen gültige **Identität der optischen Polarisation und des Ordnungsparameters der Bose-Einstein-Kondensation (Abschnitt 2.2)!**

Hier liegt ein wesentlicher Unterschied zu atomaren Systemen, der in späteren Kapiteln für interessante Voraussagen genutzt wird.

Für die anderen Größen und Operatoren ist die Entwicklung nicht immer so direkt, und es wurden in der Literatur verschiedene Wege vorgeschlagen, wie die Abbildung auf Bosonenoperatoren durchzuführen sei [17, 18]. Hier wird ein einfacher und durchsichtiger Weg für diese Abbildung gegangen, der

weniger fundamental ist, aber schnell zu den selben Ergebnissen wie kompliziertere Theorien kommt. In dieser Formulierung wird der die Grundform des Bosonen-Hamilton-Operator in intuitiver Form aufgestellt und dann einfach die noch freien Koeffizienten als Matrixelemente im zu Grunde liegenden Elektron-Loch-Bild berechnet. Da dies die optimale Bestimmung der Matrixelemente darstellt, ist nicht anzunehmen, dass andere Theorien mit der selben hamiltonischen Grundform zu besseren Ergebnissen kommen können, jedoch bleibt die Begründung der hamiltonischen Struktur außerhalb der Möglichkeiten dieses Zugangs.

Als weiteren Beitrag im Hamilton-Operator soll nun die Wechselwirkung der Exzitonen untereinander betrachtet werden. Die allgemeine Zweiteilchenwechselwirkung ist

$$H_{XX} = \frac{1}{4V} \sum_{\vec{k}, \vec{k}', \vec{q}} w_{\vec{q}} a_{\vec{k}+\vec{q}}^{\dagger} a_{\vec{k}'-\vec{q}}^{\dagger} a_{\vec{k}'} a_{\vec{k}}. \quad (2.9)$$

Die Ableitung des Matrixelementes $w_{\vec{q}}$ wird im Folgenden skizziert. Identifiziert man diese Größe im Bosonenbild so stellt sie im Wesentlichen das Matrixelement zwischen den Zwei-Exzitonen-Zuständen dar

$$w_{\vec{q}} =_{Boson} \langle \vec{k} + \vec{q}, \vec{k}' - \vec{q} | H_{XX} | \vec{k}', \vec{k} \rangle_{Boson} \quad (2.10)$$

Zusätzlich auftretende längliche Permutationsfaktoren, die hier weggelassen wurden, kürzen sich während der Ableitung in einfacher Weise heraus. Da die Exziton-Exziton-Wechselwirkung auf den Coulomb-Kräften zwischen Elektronen und Löchern beruhen soll, kann obiges Matrixelement auch direkt im zugrunde liegenden Fermionenbild berechnet werden. Bei diesem kommt die Wechselwirkung zweier Exzitonen durch die Coulomb-Effekte der Fermionen von Exziton 1 mit den Fermionen des Exzitons 2 zustande. Auf diese Weise erhält man im e-h Bild für die X-X-Kopplung $w_{\vec{q}}$ (wieder ohne Normierungen), indem man einfach die Mittelung im Fermionenbild durchführt

$$\begin{aligned} w_{\vec{q}} &=_{Fermionen} \langle \vec{k} + \vec{q}, \vec{k}' - \vec{q} | H_{XX} | \vec{k}', \vec{k} \rangle_{Fermionen} \\ &= \int d^3 r_{e1} \int d^3 r_{h1} \int d^3 r_{e2} \int d^3 r_{h2} \alpha_{\vec{k}+\vec{q}, \vec{k}'-\vec{q}}^*(\vec{r}_{e1}, \vec{r}_{h1}, \vec{r}_{e2}, \vec{r}_{h2}) \\ &\quad \times \left(V_{e_1 e_2} + V_{h_1 h_2} + V_{e_1 h_2} + V_{e_2 h_1} \right) \alpha_{\vec{k}, \vec{k}'}(\vec{r}_{e1}, \vec{r}_{h1}, \vec{r}_{e2}, \vec{r}_{h2}), \quad (2.11) \end{aligned}$$

wobei α die Zwei-Exzitonen-Wellenfunktion

$$\begin{aligned} \alpha_{\vec{k}, \vec{k}'}(\vec{r}_{e1}, \vec{r}_{h1}, \vec{r}_{e2}, \vec{r}_{h2}) &= \phi_{\vec{k}}(\vec{r}_{e1}, \vec{r}_{h1}) \phi_{\vec{k}'}(\vec{r}_{e2}, \vec{r}_{h2}) + \phi_{\vec{k}}(\vec{r}_{e2}, \vec{r}_{h2}) \phi_{\vec{k}'}(\vec{r}_{e1}, \vec{r}_{h1}) \\ &\quad - \phi_{\vec{k}}(\vec{r}_{e1}, \vec{r}_{h2}) \phi_{\vec{k}'}(\vec{r}_{e2}, \vec{r}_{h1}) - \phi_{\vec{k}}(\vec{r}_{e2}, \vec{r}_{h1}) \phi_{\vec{k}'}(\vec{r}_{e1}, \vec{r}_{h2}) \end{aligned}$$

und $V_{e_i h_j}$ das Coulomb-Potential zwischen dem Elektron i und dem Loch j darstellen. Die Wechselwirkungen innerhalb der Exzitonen $V_{e_1 h_1}$ und $V_{e_2 h_2}$ tragen dabei nicht zur Wechselwirkung sondern zur Bildung der Exzitonen bei.

Das Matrixelement lässt sich noch umformen zu

$$\begin{aligned}
 w_q &= \int d^3 r_{e1} \int d^3 r_{e2} \int d^3 r_{h1} \int d^3 r_{h2} \phi_{\vec{k}+\vec{q}}(\vec{r}_{e1}, \vec{r}_{h1}) \phi_{\vec{k}'-\vec{q}}(\vec{r}_{e2}, \vec{r}_{h2}) \\
 &\times \left(V_{e_1 e_2} + V_{h_1 h_2} + V_{e_1 h_2} + V_{e_2 h_1} \right) \\
 &\times \left(\phi_{\vec{k}}(\vec{r}_{e1}, \vec{r}_{h1}) \phi_{\vec{k}'}(\vec{r}_{e2}, \vec{r}_{h2}) + \phi_{\vec{k}}(\vec{r}_{e2}, \vec{r}_{h2}) \phi_{\vec{k}'}(\vec{r}_{e1}, \vec{r}_{h1}) \right. \\
 &\quad \left. - \phi_{\vec{k}}(\vec{r}_{e2}, \vec{r}_{h1}) \phi_{\vec{k}'}(\vec{r}_{e1}, \vec{r}_{h2}) - \phi_{\vec{k}}(\vec{r}_{e1}, \vec{r}_{h2}) \phi_{\vec{k}'}(\vec{r}_{e2}, \vec{r}_{h1}) \right) . \quad (2.12)
 \end{aligned}$$

Die ersten beiden Terme beschreiben die direkte Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Exzitonen. Die folgenden zwei Terme folgen aus den rein quantenmechanischen Austauschtermen zwischen Elektronen und Löchern. Während Erstere eher anziehender Natur sind, tragen die im allgemeinen größeren Austauschtermen vor allem zur abstoßenden Wechselwirkung bei. Für die Stoßeffekte sind die Austauschtermen bei Weitem wichtiger. Die Untersuchung wird daher, außer in Kapitel 4 über Biexzitonen, auf die Austauschtermen beschränkt. Man sieht sofort an den Argumenten der Wellenfunktionen, dass diese Terme näherungsweise nur beitragen, wenn alle Exzitonen höchstens a_B voneinander entfernt sind. Dies weist schon auf den sehr kurzreichweitigen Charakter dieser Wechselwirkung hin, die in den meisten Fällen ihre Modellierung mit einem Kontaktpotential ermöglicht.

Das 12fach Integral (2.12) lässt sich für den Fall einfacher, dreidimensionaler 1s-Exzitonen analytisch angeben, wenn man annimmt, dass ausschließlich kleine Exzitonenimpulse involviert sind. In dieser Näherung ergibt sich in unserer Notation (mit $\frac{1}{4}$ als Faktor von H_{XX}) [18]

$$w = \frac{52}{3} \pi a_B^3 E_R . \quad (2.13)$$

Hier steht E_R für die exzitonischen Rydberg-Energie.

Diese Kontaktpotentialnäherung für die Wechselwirkung der Exzitonen wird in weiten Teilen der Arbeit verwendet werden. Sie stellt sich besonders bei tiefen Temperaturen als geeignet dar, wenn in der Tat die Impulse der Exzitonen sehr klein gegen die anderen charakteristischen Impulse im System sind (z.B. gegen $\hbar a_B^{-1}$).

Obwohl der Ausdruck (2.12) aus der fundamentalen Elektron-Loch-Theorie

folgt, wird jedoch in manchen Arbeiten auch die Form

$$w = \frac{16\pi\hbar^2 a_B}{M_x} \quad (2.14)$$

verwendet. Dieser Ausdruck folgt direkt aus der Vorstellung eines Exzitons als harte Kugel mit dem Radius a_B .

Leider unterscheiden sich beide Ausdrücke für manche Halbleiter signifikant. Überdies sind die experimentellen Daten nicht ausreichend für eine klare Bevorzugung eines Ausdrucks.

In dieser Arbeit wählten wir zwar das Matrixelement (2.13), jedoch ändert ein moderater Fehler in der X-X-Kopplung w keine unserer eher qualitativen Aussagen. Außerdem ist der Unterschied beider Ausdrücke im Modellhalbleiter Cu_2O absolut irrelevant.

Ein anderer wesentlicher Wechselwirkungseffekt der Exzitonen ist die Kopplung an Phononen, die Quanten der Gitterschwingungen des Festkörpers. Man unterscheidet zwischen optischen (O) und akustischen (A) Moden, wobei diese jeweils in transversaler (T) oder longitudinaler (L) Ausrichtung auftreten.

Die Kopplung der transversalen Phononen ist allgemein wesentlich schwächer, da sie weder mit Dichteschwankungen noch Dipolen verbunden sind. Sie werden im Weiteren vernachlässigt.

Die LO-Phononen besitzen ein nahezu konstantes Anregungsspektrum, das durch eine Energielücke charakterisiert ist. Sie tragen zu den in den folgenden Kapiteln behandelten Phänomenen nicht bei, da diese sich alle bei kleinen Schwerpunktimpulsen abspielen. Die resonante Emission von LO-Phononen ist daher nicht möglich, die Absorption spielt wegen der niedrigen Temperaturen keine Rolle.

Ein wichtiger Beitrag in den verschiedenen untersuchten Halbleitern kommt jedoch von den LA-Phononen. Bei diesen Wellen schwingen die Elementarzellen in longitudinaler Richtung gegeneinander. Die daraus resultierenden propagierenden Dichtewellen bilden nur einen einzigen spektralen Ast, dessen Spektrum zumindest für die relevanten Impulse in sehr guter Näherung linear ist. Für die Energie der elementaren Anregungen $\hbar\omega_k$ gilt dann die Dispersionsbeziehung

$$\hbar\omega_k = \hbar ck, \quad (2.15)$$

mit der als isotrop angenommenen Schallgeschwindigkeit c .

Die LA-Phononen ändern als Dichtewellen lokal die Bandstruktur des Halbleiters. Diese Änderung der Bandkante übt sowohl auf die Elektronen als auch auf die Löcher eine Kraft aus, die das Exziton als Ganzes spürt. Dieser

Deformationspotentialansatz kann von den Konstituenten des Exzitons auf das Exziton selber übertragen werden [19, 20]. Hier sollen nur die Ergebnisse festgehalten und kurz diskutiert werden.

Im Grenzfall $ka_b \ll 1$ (langwelliger Grenzfall) erhält man für die Exziton-Phonon-Kopplung

$$H_{XP} = \sum_{\vec{k}} e_{\vec{k}} a_{\vec{k}}^{\dagger} a_{\vec{k}} + \sum_{\vec{q}} \hbar \omega_{\vec{q}} b_{\vec{q}}^{\dagger} b_{\vec{q}} + \frac{1}{\sqrt{V}} \sum_{\vec{k}, \vec{q}} g_{\vec{q}} a_{\vec{k}+\vec{q}}^{\dagger} a_{\vec{k}} (b_{\vec{q}} + b_{-\vec{q}}^{\dagger}) \quad (2.16)$$

mit den Phononenoperatoren $b_{\vec{q}}, b_{\vec{q}}^{\dagger}$ und dem Kopplungsmatrixelement

$$g_{\vec{q}} = G \sqrt{\hbar \omega_{\vec{q}}}. \quad (2.17)$$

Es handelt sich also um die selbe Kopplung wie für ein Elektron. Eine anschauliche Begründung dieses Sachverhalts liefert die folgende Überlegung: Geht man wieder von einem Exziton als Boson aus, so lautet der freie Hamilton-Operator mit bosonischen Feldoperatoren $\Phi(\vec{x})$

$$H_X = \int d^3x \Phi^{\dagger}(\vec{x}) \left(\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m} + E_g(\vec{u}) \right) \Phi(\vec{x}).$$

In der Theorie des Deformationspotentials untersucht man die Auswirkungen der Variation der Bandlücke E_g durch die Auslenkung der LA-Phononen. Diese Auswirkung ist identisch zu der Wirkung auf ein Elektron, da dieses durch den formal identischen Hamilton-Operator

$$H_e = \int d^3x \psi_e^{\dagger}(\vec{x}) \left(\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m} + E_g(\vec{u}) \right) \psi_e(\vec{x})$$

beschrieben wird. Die beiden Wechselwirkungsoperatoren (gegeben durch den ersten Term der Taylor-Entwicklung von $E_g(\vec{u})$) unterscheiden sich nur in den Vertauschungsrelationen der Feldoperatoren, die bei der Herleitung keine Rolle spielen.

Der Hamilton-Operator (2.16) enthält sowohl die Emission als auch die Absorption von Phononen durch die Exzitonen. Im Weiteren wird wichtig werden, dass $g_0 = 0$, was die Ableitung der kinetischen Gleichungen vereinfacht. Die Kopplungskonstante G ist durch die Materialparametern als $G^2 = \frac{D^2}{\rho c^2}$ gegeben, worin D die Bandkanten-Deformationspotential-Konstante und ρ die Massendichte des Kristalls ist.

2.4 Methoden der Vielteilchenphysik

Sowohl bei der X-X-Wechselwirkung H_{XX} als auch bei der Kopplung an die Phononen H_{XP} handelt es sich um Vielteilchen-Beiträge, die nicht exakt analytisch lösbar sind. Beide führen zu einer unendlichen Anzahl von

Freiheitsgraden, die simultan berücksichtigt werden müssten. Für die näherungsweise Behandlung der Kinetik solcher Vielteilchensysteme haben sich im Wesentlichen zwei Techniken etabliert, die Diagrammtechnik [21] und die Bewegungsgleichungsmethode [22, 23].

Die Diagrammtechnik führt die explizit zweizeitigen Green-Funktionen ein, deren Einzeitlimes die Kinetik bestimmt. Durch die zusätzliche Komplexität der zweiten Zeit erkaufte man sich im Ausgleich die Möglichkeit alle Beiträge der Kinetik nach Diagrammen zu klassifizieren. Die Unendlichkeit der Freiheitsgrade wird in dieser Technik durch eine unendliche Reihe von Diagrammen präsentiert, die nach physikalischen Kriterien abgebrochen werden kann.

Die Bewegungsgleichungsmethode stellt das gekoppelte System der N -Teilchendichtematrizen auf. Dabei spiegeln sich die Freiheitsgrade in einer unendlichen Anzahl von gekoppelten Gleichungen wieder. Die Hierarchie kann auf einer beliebigen Stufe durch Einteilchen-Faktorisierungen abgebrochen werden.

Während die beiden Techniken für die Kinetik von Bosonen bisher relativ wenig entwickelt wurden, konnten für Fermionen eine große Anzahl von Erfolgen verzeichnet werden. Dabei erwies sich je nach Fragestellung mal die Diagrammtechnik (z.B. bei der Abschirmung von Elektronen [24, 25]) und mal die Bewegungsgleichungsmethode (z.B. bei der Behandlung von Vierteilchen-Korrelationen [26]) als überlegen. Jedoch waren die Ergebnisse beider Techniken auch sehr häufig identisch, so dass nur ein technischer Vorteil der einen oder der anderen Methode bestand.

Letzterer Fall trifft für diese Arbeit zu, alle Ergebnisse können mit beiden Methoden abgeleitet werden. Der Charakter der in Kapitel 5 gemachten Näherungen geht über eine einfache Entwicklung nach der Kopplungskonstante hinaus. In diesem Fall ist eine Klassifizierung der verschiedenen Beiträge mit Hilfe von Diagrammen von großem Nutzen. Im letzten Kapitel wiederum werden alle Terme bis G^2 ohne Ausnahme in einer Spinornotation mitgenommen. Hierbei führt die Bewegungsgleichungsmethode schneller zum erwünschten Ergebnis.

Deshalb werden nun in diesem Abschnitt beide Methoden kurz angeschnitten. Dabei liegt der Schwerpunkt auf den Besonderheiten von Nichtgleichgewichts-Bosonen, die hier teilweise erstmals in dieser Weise diskutiert werden.

2.4.1 Bewegungsgleichungsmethode

Die Bewegungsgleichungsmethode ist sicher die leichter zugängliche Methode zur Ableitung kinetischer Gleichungen. Jedoch auch hier ist die Erweiterung auf bosonische Systeme mit Symmetriebrechung mit einigen Tücken verbun-

den. Auf diese Besonderheiten wird in der Literatur meist nicht eingegangen und sie sind die Quelle vieler falscher Publikationen.

Im Allgemeinen interessiert man sich bei der Bewegungsgleichungsmethode für die Kinetik bestimmter Einteilchen-Mittelwerte.

Für diese formuliert man die exakten Heisenberg-Gleichungen. Das führt auf Mittelwerte höherer Ordnung, für die man auf die selbe Weise Gleichungen erhält, die dann wieder an die noch höhere Ordnung koppeln.

Um diese unendliche Hierarchie von Bewegungsgleichungen zu schließen, müssen die Gleichungen auf einer bestimmten Ebene abgebrochen werden. Hierfür faktorisiert man Mittelwerte ab einer gewissen Größe durch die Annahme von Einteilchenbeziehungen.

Hier sollen nun die essenziellen Besonderheiten für Bosonen unter Kondensationsbedingungen erläutert werden.

- Wie auch schon in der Gleichgewichtstheorie des freien Bose-Gases, konvergieren nicht alle k -abhängigen Größen im thermodynamischen Limes gegen das Integral, d.h. an vielen Stellen der Herleitung gilt nicht $\frac{1}{V} \sum_{\vec{k}} \rightarrow \frac{1}{2\pi^3} \int d^3 k$. Will man daher die Bewegungsgleichungsmethode technisch richtig durchführen, ist es ratsam, reduzierte Operatoren $\tilde{a}_{\vec{k}} = a_{\vec{k}} - \langle a_{\vec{k}} \rangle$ einzuführen. Die Mittelwerte dieser Größen sind dann kontinuierlich und ihre Summen konvergieren im Limes gegen das Integral.
- Um sinnvolle Gleichungen zu erhalten (z.B. mit Teilchenzahlerhaltung und dem instantanen Gross-Pitajevski Term) ist es zwingend, die Heisenberg-Gleichungen für die Mittelwerte reduzierter Operatoren zu schreiben. Erhält man also zum Beispiel den Mittelwert $\langle aaa \rangle$ auf der rechten Seite einer Gleichung, muss er in die Form $\langle \tilde{a}\tilde{a}\tilde{a} \rangle + \text{Korrekturen}$ umgewandelt werden, so dass dann die nächste Gleichung nur noch für $\langle \tilde{a}\tilde{a}\tilde{a} \rangle$ formuliert werden muss.
- Außer den einfachen Besetzungszahlen gibt es auch die Möglichkeit von Anomalien. Die Einteilchendichtematrix besteht dann nicht nur aus der Verteilungsfunktion $n_k = \langle \tilde{a}_k^+ \tilde{a}_k \rangle$ sondern enthält auch $p = \frac{1}{\sqrt{V}} \langle a_0 \rangle$ und $F_k = \langle \tilde{a}_{-\vec{k}} \tilde{a}_{-\vec{k}} \rangle$, für die genauso Gleichungen formuliert werden müssen.
- Die Faktorisierungsregel gilt nur für Mittelwerte reduzierter Operatoren und es treten bei der Faktorisierung auch anomale Mittelwerte auf. Beispielhaft gilt

$$\langle \tilde{a}_1^+ \tilde{a}_2^+ \tilde{a}_3 \tilde{a}_4 \rangle \approx \langle \tilde{a}_1^+ \tilde{a}_2^+ \rangle \langle \tilde{a}_3 \tilde{a}_4 \rangle + \langle \tilde{a}_1^+ \tilde{a}_3 \rangle \langle \tilde{a}_2^+ \tilde{a}_4 \rangle + \langle \tilde{a}_1^+ \tilde{a}_4 \rangle \langle \tilde{a}_3^+ \tilde{a}_2 \rangle \quad (2.18)$$

Die Richtigkeit dieser Faktorisierungsregel kann man zeigen, indem man die linke Seite der obigen Gleichung unter Verwendung des allgemeinsten Einteilchen-Hamilton-Operator mit Symmetriebrechung berechnet.

Ein weniger expliziter Beweis führt jedoch (ohne Rechnung) genauso zum Ziel: Der allgemeine bosonische Einteilchen-Hamilton-Operator hat die Form

$$H = \sum_{\vec{k}} c_{\vec{k}}^1 a_{\vec{k}}^+ a_{\vec{k}} + \sum_{\vec{k}} \left(c_{\vec{k}}^2 a_{\vec{k}}^+ a_{\vec{k}} + \text{h.c.} \right) + (c^3 a_0 + \text{h.c.}) ,$$

mit den Koeffizienten c^i . Verschiebt man die Operatoren linear (Wechsel zu \tilde{a}), verschwindet der lineare Term. Dann ist jedoch H eine homogene quadratische Form und kann mit einer Bogoljubov-Transformation diagonalisiert werden. In den neuen Operatoren ist H diagonal und es gilt das triviale wicksche Theorem wie für freie Teilchen. Die Matrixstruktur der Bogoljubov-Transformation erhält jedoch die Faktorisierung und man erhält Gleichung (2.18). Dabei spielt z.B. die explizite Form der Bogoljubov-Koeffizienten keine Rolle.

- Auf den ersten Blick ist nicht klar, wie die Bewegungsgleichung eines reduzierten Operators ($\tilde{a}_{\vec{k}}$) aussieht, da der in diesem enthaltene Mittelwert $\langle a_0 \rangle$ kein Operator ist und daher nicht die Heisenberg-Gleichung erfüllt. Es gilt zum Beispiel

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle \tilde{a}_0 \tilde{a}_0 \rangle = \langle [a_0 a_0, H] \rangle - i\hbar \frac{\partial}{\partial t} (\langle a_0 \rangle \langle a_0 \rangle) ,$$

was aufgrund des zweiten Terms ein äußerst komplizierter und für die Bewegungsgleichungsmethode schlecht zugänglicher Ausdruck ist.

Hier kann man sich jedoch leicht behelfen: Da von der Kondensationstheorie im Gleichgewicht bekannt ist, dass die reduzierten Größen nicht makroskopisch werden, kann man sie einfach bei endlichem k berechnen und den Wert bei $k = 0$ ohne Fehler extrapolieren (ein nichtmakroskopischer Wert im Kontinuum spielt keine Rolle). Bei endlichen k gilt jedoch die einfache Heisenberg-Gleichung, da der komplizierte zweite Term in obigem Beispiel entfällt.

2.4.2 Diagrammtechnik

Ein weiterer Weg zum Ableiten der kinetischen Gleichungen ist die Diagrammtechnik. Dabei werden Nichtgleichgewichts-Green-Funktionen in der

Formulierung von Keldysch [27] verwendet. Eine vollständige Einführung in diese Technik würde den Rahmen dieser Arbeit sprengen und hat auch mittlerweile schon Einzug in viele Lehrbücher gefunden [28, 5].

Zunächst werden kurz die Ergebnisse der Diagrammtechnik zusammengestellt, wie sie für normale fermionische Systeme gelten. Anschließend stehen dann die Besonderheiten bei bosonischen Systemen mit Symmetriebrechung im Mittelpunkt des Interesses.

Der wesentliche Unterschied des Nichtgleichgewichtsfall zum Gleichgewicht bei $T = 0$ ist die Art der Mittelung, die nicht über den Grundzustand erfolgt. Daher kann die adiabatische Näherung der $T = 0$ Theorie nicht durchgeführt werden, denn Zustandsmischungen in Nichtgleichgewichtsensembles lassen sich nicht vernachlässigen.

Man kann nun aber nach Keldysch [27] eine leicht modifizierte Green-Funktion einführen, die eine Verallgemeinerung der $T = 0$ Theorie darstellt und eine zu dieser äquivalente diagrammatische Störungstheorie ermöglicht. Dazu definiert man eine Zeitkontur gemäß Abb. 2.2.

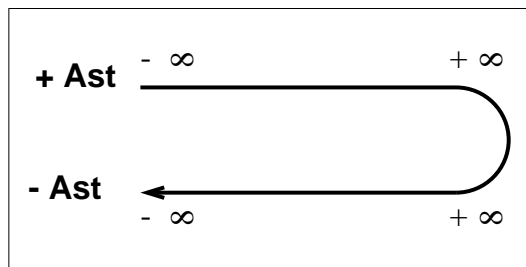


Abbildung 2.2: Zeitkontur

Nun wird jedem Operator einen Index $\nu = +, -$ (Keldysch-Index) zugeordnet, der festlegt, auf welchem Ast der Kontur sich der Operator befindet. Dadurch ist dann T_c , der Zeitordnungsoperator auf der Kontur, wohldefiniert. Als Nichtgleichgewichts-Green-Funktion oder Keldysch-Green-Funktion definiert man nun die Matrix

$$G_{\vec{k}}^{\nu_1 \nu_2}(t, t') = -\frac{i}{\hbar} \langle T_c a_{\vec{k}}(\nu_1 t) a_{\vec{k}}^{\dagger}(\nu_2 t') \rangle. \quad (2.19)$$

Die Analogie dieser Größe zur Green-Funktion bei $T = 0$ ist nahezu vollständig. Wie im einfachen $T = 0$ Fall können alle Beiträge der Störungstheorie durch Diagramme klassifiziert werden. Nur gehört zu jeder Real-Zeit t nun

ein Keldysch-Index ν , die durchgezogenen Linien müssen als Keldysch-Green-Funktionen interpretiert werden und über innere Keldysch-Indizes wird summiert, als handele es sich einfach um eine weitere diskrete Quantenzahl. Im Weiteren werden Zeiten auf der Kontur, z.B. $\{\nu_1 t_1\}$ durch eine Notation mit Ziffern ausgedrückt, z.B. $\{1\}$.

Mit dieser Technik ist nun der Ausgangspunkt für eine diagrammatische Behandlung des Nichtgleichgewichts geschaffen.

Um von den zweizeitigen Green-Funktionen zu kinetischen Gleichungen zu gelangen, betrachtet man ihre Diagonalelemente in der Zeitkoordinate. Diese enthalten die gewöhnliche Verteilungsfunktion

$$\langle a_k^+(t)a_k(t) \rangle = i\hbar G_k^{+-}(t, t). \quad (2.20)$$

Die zeitliche Formulierung der Dyson-Gleichung liefert dann die Bewegungsgleichungen für diese Diagonalelemente.

Diese Integrodifferentialgleichungen für die Diagonalelemente $G_k^{+-}(t, t)$ enthalten jedoch noch zweizeitige Größen, die man mit Hilfe des verallgemeinerten Kadanoff-Baym-Ansatz (für Fermionen siehe [29]) eliminiert. Bei diesem werden die Zweizeitpropagatoren $G_k^{+-}(t, t')$ und $G_k^{-+}(t, t')$ durch die entsprechenden Einzeitpropagatoren und retardierte bzw. avancierte Green-Funktionen ausgedrückt. Dies gelingt durch Annahme von Einteilchenbeziehungen (niedrigste Ordnung in der Kopplung). Für die in den retardierten und avancierten Funktionen enthaltenen, spektralen Eigenschaften werden dann an das Problem angepasste Näherungen durchgeführt.

Diese Lehrbuchkenntnisse werden nun auf die Theorie von Bosonen ausgedehnt. Obwohl natürlich auch bosonische Diagrammtechniken schon in der Literatur verwendet wurden, ist die Erweiterung auf zeitabhängige Probleme unerforschtes Terrain.

Betrachtet man bosonische Systeme mit nichtverschwindenden anomalen Mittelwerten und Kondensation, so sind zwei Punkte wesentlich für die Formulierung der Diagrammtechnik:

- Die Green-Funktionen müssen unbedingt mit reduzierten Operatoren $\tilde{a}_k^- = a_k^- - \langle a_k^- \rangle$ definiert werden. Dies eliminiert makroskopische Anteile bei $k = 0$. Die Keldysch-Green-Funktion (Keldysch-Indizes ν_1, ν_2) lautet dann

$$G_k^{\nu_1 \nu_2}(t, t') = -\frac{i}{\hbar} \langle T_c \tilde{a}_k^-(\nu_1 t) \tilde{a}_k^+(\nu_2 t') \rangle. \quad (2.21)$$

Nur in dieser Formulierung ist eine Diagrammtechnik mit ausschließlich zusammenhängenden Diagrammen möglich. Außer den Vakuumdiagrammen (Diagrammen mit keiner Verbindung zur Außenwelt), die

genauso wie in Fermionensystemen aus der Theorie herausfallen, existieren nämlich auch Diagramme aus zwei unzusammenhängenden Teilen, die jedoch jeweils mit der Außenwelt verbunden sind. Diese können nur durch Abziehen der kohärenten Amplituden eliminiert werden.

- Die gewöhnliche Keldysch-Green-Funktion (2.21) reicht nicht zur Beschreibung des Systems aus. Zusätzlich benötigt man noch die anomale Green-Funktion

$$F_{\vec{k}}^{\nu_1\nu_2}(t, t') = \langle T_c \tilde{a}_{\vec{k}}(\nu_1 t) \tilde{a}_{-\vec{k}}(\nu_2 t') \rangle \quad (2.22)$$

und die Bestimmung der kohärenten Amplitude p . Für die diagrammatische Berechnung von p müssen jedoch weitere Green-Funktionen mit ungerader Operatoren-Anzahl eingeführt werden. Darauf wird aber erst in den Kapiteln 3 und 5 eingegangen.

Die Dysongleichungen können wie in Abb. 2.3 diagrammatisch dargestellt werden. Dabei ist G^0 die freie Green-Funktion und mit N bzw. A werden die normale bzw. die anomale Selbstenergie (Σ^N bzw. Σ^A) gekennzeichnet.

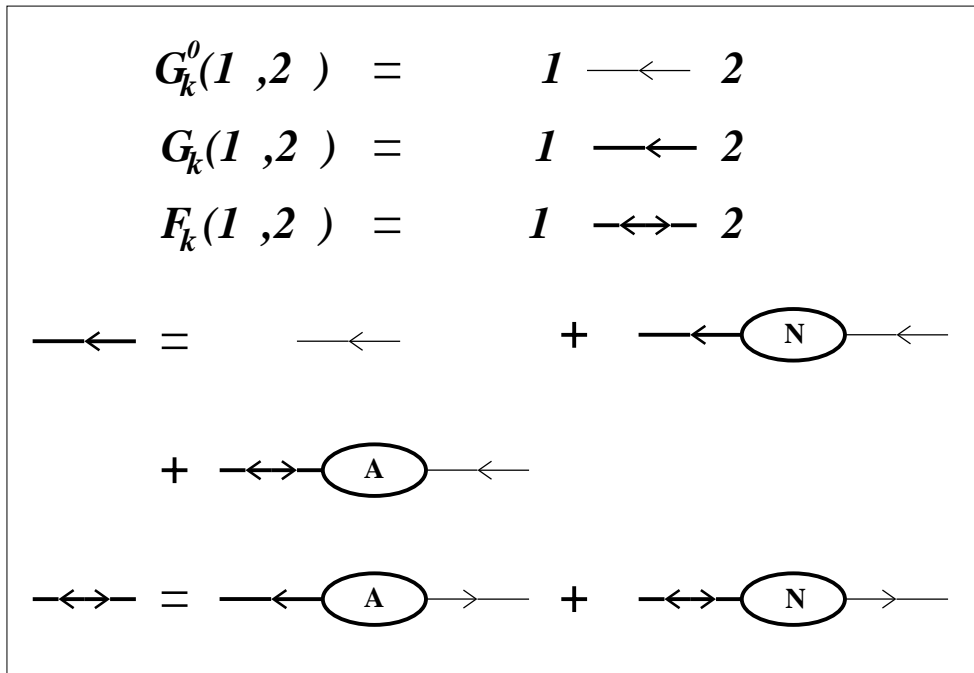


Abbildung 2.3: Die Dysongleichungen

Die differentielle Form der Dysongleichungen erhält man, indem man die integrale Form mit Kombinationen der Inversen von G^0 multipliziert, ähnlich wie auch für Fermionen [5, 21]. Allerdings erfordern die anomalen Propagatoren dabei verschiedenste Anordnungen der Zeiten von $G^{0,-1}$, die jedoch leicht zu erschließen sind.

Die Dysongleichungen lauten dann in analytischer Form

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} G_{\vec{k}}^{\ll}(1, 2) = \oint d3 \left(\Sigma_{\vec{k}}^{\ll}(1, 3) G_{\vec{k}}^{\ll}(3, 2) - G_{\vec{k}}^{\ll}(1, 3) \Sigma_{\vec{k}}^{\ll}(3, 2) \right. \\ \left. + \Sigma_{\vec{k}}^{\langle \rangle}(1, 3) F_{\vec{k}}^{\rangle \langle}(3, 2) - F_{\vec{k}}^{\langle \rangle}(1, 3) \Sigma_{\vec{k}}^{\rangle \langle}(3, 2) \right); \quad (2.23)$$

$$\left(i\hbar \frac{\partial}{\partial t} - 2e_k \right) F_{\vec{k}}^{\langle \rangle}(1, 2) = \oint d3 \left(\Sigma_{\vec{k}}^{\langle \rangle}(1, 3) G_{\vec{k}}^{\gg}(3, 2) + G_{\vec{k}}^{\ll}(1, 3) \Sigma_{\vec{k}}^{\langle \rangle}(3, 2) \right. \\ \left. + \Sigma_{\vec{k}}^{\ll}(1, 3) F_{\vec{k}}^{\langle \rangle}(3, 2) + F_{\vec{k}}^{\langle \rangle}(1, 3) \Sigma_{\vec{k}}^{\gg}(3, 2) \right). \quad (2.24)$$

Dabei stehen $>$ und $<$ für die Eingänge der Diagramme, also steht z.B. $\Sigma^{\rangle \langle}$ für alle anomalen irreduziblen Diagramme mit zwei Eingängen und es gilt in dieser Notation $G_{\vec{k}}^{\gg}(3, 2) = G_{\vec{k}}^{\ll}(2, 3)$.

Zwischen diesen Dysongleichungen und den Bewegungsgleichungen für n_k bzw. F_k steht (außer direkter Algebra) die Auswahl von Diagrammen, der verallgemeinerte Kadanoff-Baym-Ansatz und möglicherweise auch ein Markov-Limes. Die Bewegungsgleichung für p erfordert noch darüber hinausgehende Konzepte.

Alle diese Näherungen werden jedoch in den verschiedenen folgenden Kapitel individuell dem Problem angepasst und auf unterschiedliche Weise durchgeführt. Daher werden sie erst in den entsprechenden Kapiteln angeführt.

2.5 Vier-Wellen-Misch-Experimente

In dieser Arbeit wird in vielen Fällen die zeitliche Kinetik der makroskopischen Polarisation und ihr Zerfall durch mikroskopische Streuprozesse untersucht. Diese Dynamik ist nicht nur ein Produkt der Theorie, sondern kann konkret gemessen werden. Eine in der Halbleiterspektroskopie dafür weitverbreitete Methode ist das Vier-Wellen-Mischen(VWM) [7]. Diese wird nun kurz im Spezialfall des entarteten Vier-Wellen-Mischens und der selbstbeugenden Geometrie erläutert.

Beim Vier-Wellen-Mischen(VWM) werden zwei Pulse (Wellenvektor \vec{k}_1 und \vec{k}_2) mit einer Verzögerungszeit τ auf eine Probe fokussiert (siehe Abb. 2.4). Dabei erzeugen die beiden Pulse in der Probe ein Polarisationsgitter, an

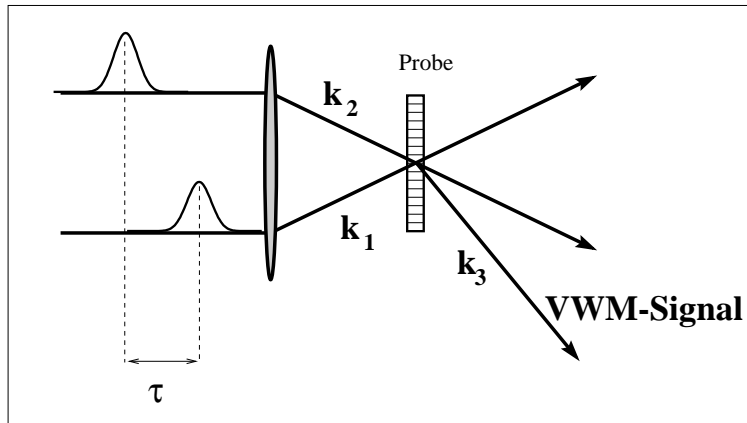


Abbildung 2.4: Skizze des Vier-Wellen-Mischens

dem der zweite Strahl dann selbst in Richtung $\vec{k}_3 = 2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ gebeugt wird (selbstbeugende Geometrie).

Das abgebeugte VWM-Signal ist dann proportional der Polarisation, die sich nach der Zeit τ noch in der Probe befindet. Man kann nun beispielsweise τ variieren, das gesamte VWM-Signal in der Echtzeit aufintegrieren und in Abhängigkeit von τ auftragen (zeitintegriertes VWM). Damit erhält man qualitativ den Zerfall der Polarisation in der Echtzeit.

Außer den vielen experimentellen Vorzügen dieser Technik [7] ist für die Theorie besonders interessant, dass im zeitintegrierten Signal der Zerfall nur durch die echte Dephasierung, gegeben durch die Dephasierungszeit T_2 , und nicht durch inhomogene Verbreiterung erzeugt wird. Deshalb ist aus dem VWM-Signal direkt T_2 abzulesen. Dabei wird im Allgemeinen angenommen, dass das zeitintegrierte VWM-Signal mit $\propto e^{-4\frac{\tau}{T_2}}$ zerfällt, was im Rahmen eines echten T_2 -Ansatzes richtig ist.

Bei manchen Analysen von Experimenten in dieser Arbeit wird in einem Einzugs-Experiment T_2 berechnet und dann mit dem T_2 aus VWM-Experimenten verglichen, das mit obiger Technik gewonnen wurde. Bei einigen anderen ist die wirkliche Form des VWM-Signals von Interesse. In diesen Fällen wird dann vollständig und direkt das in $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ abgestrahlte Signal berechnet.

Kapitel 3

Polarisationszerfall durch X-X-Streuung in Quantendrähten

In diesem Kapitel soll ein erster Aspekt behandelt werden, der die Kinetik der Quantenkohärenz in Halbleitern bestimmt: die kohärenzzerstörende Dephasierung durch X-X-Streuung. Hierfür wird der Polarisationszerfall nach Laseranregung durch die Wechselwirkung mit thermischen Exzitonen untersucht, die durch einen Laserprepuls generiert werden.

Motiviert wird diese Untersuchung durch die Realisierung neuer und interessanter Experimente zum Thema der Polarisationsdephasierung an quasi-eindimensionalen Halbleiterheterostrukturen, die in der Gruppe von Prof. Forchel in Würzburg durchgeführt wurden. Es handelt sich dabei um Vier-Wellen-Misch-Experimente an Quantendrähten mit unterschiedlich starker Einschnürung der Ladungsträger, bei denen die Dephasierungszeit in Abhängigkeit vom Grad der Einschnürung gemessen werden kann. Diese Abhängigkeit ist von möglichem technologischem Interesse und in der Literatur existieren widersprüchliche Meinungen, wie sich eine Variation der Einschnürung der Exzitonen auf deren Streuverhalten auswirkt, die mit entgegengesetzten intuitiven Argumenten begründet werden.

Dies macht eine quantitative theoretische und experimentelle Analyse der Dephasierungsgesetze sehr reizvoll.

Es soll hier eine Theorie der Dephasierung durch X-X-Streuung erarbeitet werden, die direkt mit den Würzburger Experimenten verglichen werden kann. In Abschnitt 3.1 wird die Theorie der Exzitonen für die Quantendrähte formuliert. Die Entwicklung der Polarisationskinetik wird in Abschnitt 3.2 durchgeführt. In Abschnitt 3.3 finden sich theoretische Simulationen der Experimente sowie eine Diskussion der theoretischen und experimentellen Ergebnisse.

Für eine Darstellung der Ergebnisse dieses Kapitels unter etwas anderen Gesichtspunkten und die Details der Experimente soll auf die Arbeit [30] verwiesen werden. Eine noch ausführlichere Analyse der experimentellen Techniken findet man in [31].

3.1 Exzitonen in Quantendrähten

Die gängigen Halbleiterheterostrukturen bestehen aus Schichten verschiedener Halbleitermaterialien mit unterschiedlicher Bandlücke. In diesen Strukturen sind Elektron und Loch durch die von der Variation der Bandkante erzeugten Potentiale auf mesoskopischen Skalen in ihrer Bewegung beschränkt, wodurch sich für diese Ladungsträger quasi-niederdimensionale Systeme ergeben. Man bezeichnet diese Einschränkung der Bewegungsfähigkeit auf mesoskopischer Skala im Englischen als „quantum-confinement“.

Die Theorie [32] und die technische Realisierung dieser Materialien ist inzwischen sehr weit fortgeschritten und mittlerweile sind niederdimensionale Halbleiternanostrukturen auch aus der Technologie nicht mehr wegzudenken (z.B. als Halbleiterlaser und Hochbeweglichkeitstransistoren [33]). Doch auch aus der Sicht der Grundlagenphysik bieten diese quasi-niederdimensionalen Nanosysteme mit ihrer flexiblen Strukturierbarkeit eine interessante Spielwiese für das Verständnis von Quantensysteme.

Im Rahmen dieser Arbeit ist zusätzlich die Tatsache wichtig, dass die Exzitonbindungsenergie im Allgemeinen bei einer Reduzierung der Dimensionalität stark zunimmt [5] (dies ist auch experimentell bestätigt z.B. in [34, 35]). Aus diesem Grund erwartet man dort bessere Ergebnisse von einer bosonischen Beschreibung der Exzitonen.

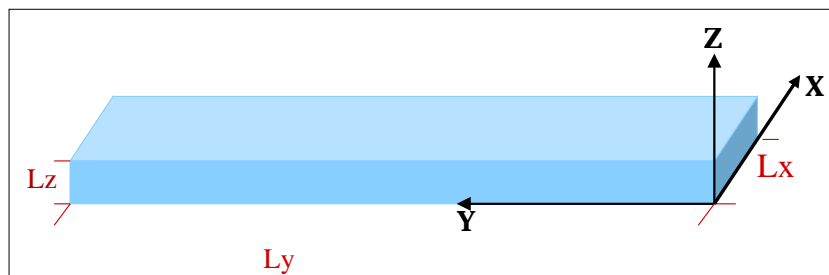


Abbildung 3.1: Skizze eines typischen Quantendrahtes im Grenzfall schwachen Confinements in x-Richtung

Die in Würzburg verwendeten InGaAs/GaAs-Quantendrähte sind ausführlich in [30] beschrieben. Für die theoretische Modellierung ist jedoch vor

allem wesentlich, dass die Ladungsträger bei diesen Heterostrukturen auf die Form eines Drahtes wie in Abb. 3.1 beschränkt sind. Bei diesem kann die y -Richtung als unbeschränkt angenommen werden (natürlich hat die echte Probe ein Ende, dies ist jedoch schon auf makroskopischer Skala und spielt deshalb keine Rolle). Die z - und die x -Richtung sind jeweils beschränkt.

Von Efros und Efros [36] stammt die folgende Klassifizierung für die Beschränkung: Durch einen Vergleich des bohrschen Radius a_B mit der Beschränkungslänge L spricht man von schwachem Confinement ($a_B \ll L$), von starkem Confinement ($a_B \gg L$) und dazwischen von mittlerem Confinement. Die Würzburger Quantendrähte weisen in z -Richtung ein starkes und in x -Richtung nur schwaches bis maximal mittleres Confinement auf.

Für diese spezielle Geometrie werden nun die in dieser Arbeit elementaren exzitonischen Anregungen abgeleitet.

Dafür ist die erste Annahme, dass die stark eingeschnürte z -Richtung eingefroren ist (nur der Grundzustand in z -Richtung trägt bei). Das führt im Limes $z \rightarrow 0$ zu einem Verhalten der Ladungsträger als Teilchen in zwei Dimensionen. Dies gilt jedoch nur für die Teilchenfreiheitsgrade, während das elektromagnetische Feld dreidimensional bleibt. Aufgrund dieser Mischung der Dimensionalität nennt man solche Systeme quasi-niederdimensional.

Die verbleibende Bewegung in der x - y Ebene wird nun im Rahmen der Theorie des schwachen Confinements behandelt. Diese Theorie macht die Annahme, dass $\lambda = \frac{a_B}{L_x} \ll 1$ gilt und somit dieses Verhältnis λ als Entwicklungsparameter verwendet werden kann.

Für die Exzitonen führt dieses Konzept zur Schwerpunktsquantisierung: Ist der bohrsche Radius klein gegen die Confinementsabmessung, so spürt die Schwerpunktswellenfunktion die Ränder sehr wohl, wohingegen die Relativbewegung von Elektron und Loch unbeeinflusst bleibt. Letztere würde nur den Effekt des Potentialtopfes spüren, wenn das Exziton sich im Randbereich des Topfes aufhalten würde und vom Rand weniger als a_B entfernt wäre. Gerade dieser Randbereich wird jedoch als vernachlässigbar klein angesehen.

Unter diesen Annahmen ergibt sich eine $1s$ -Exziton-Wellenfunktion von

$$\Psi_{N,k}(\vec{r}_e, \vec{r}_h) = \sqrt{\frac{2}{L_x L_y}} \exp(ikR_y) \sin\left(\frac{N\pi R_x}{L_x}\right) \psi_{1s}^{2D}(\vec{r}), \quad (3.1)$$

wobei \vec{R} und \vec{r} die Schwerpunkt- und Relativkoordinate des Exzitons beschreiben. Die Quantenzahl k kennzeichnet die freie Bewegung in y -Richtung und die diskrete Quantenzahl N die verschiedenen Subbänder infolge der

Schwerpunktsquantisierung in x -Richtung. Wie in den vorherigen Abschnitten kann man sich auf gegensätzlichen Elektronen- und Lochspin beschränken, da nur solche Exzitonen vom Lichtfeld erzeugt werden.

In der entsprechenden Bosonen-Basis kann man nun den Hamilton-Operator formulieren. Hierbei werden mehrere Subbänder aus der Schwerpunktsquantisierung, die X-X-Wechselwirkung und die Wechselwirkung der Exzitonen mit dem kohärenten Lichtfeld mitgenommen. Es handelt sich dabei um die Verallgemeinerung der Konzepte aus Abschnitt 2.3, wobei jetzt sowohl die zusätzliche Quantenzahl als auch die anderen Basiswellenfunktionen berücksichtigt werden.

Mit der Schwerpunktsquantenzahl $\nu = \{N, k\}$ ergibt sich

$$H = \sum_{\nu} e_{\nu} a_{\nu}^{\dagger} a_{\nu} + \frac{1}{4V} \sum_{\nu_1, \nu_2, \nu_3, \nu_4} w_{\nu_1, \nu_2, \nu_3, \nu_4} a_{\nu_1}^{\dagger} a_{\nu_2}^{\dagger} a_{\nu_3} a_{\nu_4} - \sum_{\nu} (d_{\nu} a_{\nu} E + h.c.), \quad (3.2)$$

und für das Licht-Exziton-Kopplungsmatrixelement erhält man

$$d_{\nu} = \int d^2 r_e d_{\nu, c} \Psi_{N, k}(\vec{r}_e, \vec{r}_e) \delta_{k, 0} = \sum_N d_{\nu c} \frac{4\sqrt{L_x L_y}}{\pi^{\frac{3}{2}} a_B N} (1 + (-1)^{(N+1)}) \delta_{k, 0}. \quad (3.3)$$

Es werden also nur ungeradzahlige Exzitonen-Subbänder angeregt !

Wesentlich komplizierter ist das Matrixelement der X-X-Wechselwirkung, das nicht analytisch berechnet werden kann. Aus Gl. (2.12) erhält man

$$\begin{aligned} \frac{w_{\nu_1, \nu_2, \nu_3, \nu_4}}{V} &= \int d^2 r_{e1} \int d^2 r_{e2} \int d^2 r_{h1} \int d^2 r_{h2} \Psi_{\nu_1}(\vec{r}_{e1}, \vec{r}_{h1}) \Psi_{\nu_2}(\vec{r}_{e2}, \vec{r}_{h2}) \\ &\times \left(V(\vec{r}_{e1} - \vec{r}_{e2}) + V(\vec{r}_{h1} - \vec{r}_{h2}) - V(\vec{r}_{e1} - \vec{r}_{h2}) - V(\vec{r}_{e2} - \vec{r}_{h1}) \right) \\ &\times \left(\Psi_{\nu_3}(\vec{r}_{e1}, \vec{r}_{h1}) \Psi_{\nu_4}(\vec{r}_{e2}, \vec{r}_{h2}) + \Psi_{\nu_3}(\vec{r}_{e2}, \vec{r}_{h2}) \Psi_{\nu_4}(\vec{r}_{e1}, \vec{r}_{h1}) \right. \\ &\quad \left. - \Psi_{\nu_3}(\vec{r}_{e2}, \vec{r}_{h1}) \Psi_{\nu_4}(\vec{r}_{e1}, \vec{r}_{h2}) - \Psi_{\nu_3}(\vec{r}_{e1}, \vec{r}_{h2}) \Psi_{\nu_4}(\vec{r}_{e2}, \vec{r}_{h1}) \right) \quad (3.4) \end{aligned}$$

mit $V(r) = \frac{e^2}{\epsilon_0 r}$.

Man kann nun dieses Matrixelement im Limes schwachen Confinements recht systematisch behandeln, indem man alle Terme nach dem Kleinheitsparameter der Theorie λ entwickelt. Hierbei ergibt sich der führende Beitrag der direkten Wechselwirkung als $\propto \lambda^2$, während sich für den führenden Austauschbeitrag eine Proportionalität zu λ herausstellt. Daher kann die direkte

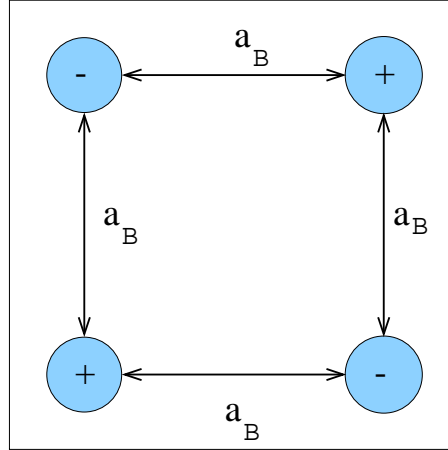


Abbildung 3.2: Veranschaulichung der Austauschwechselwirkung

Wechselwirkung vernachlässigt werden und für den Austauschterm wird in führender Ordnung in λ der Kontaktpotential-Ansatz exakt.

Dies lässt sich leicht an Abb. 3.2 veranschaulichen. Aufgrund der Anordnung von Wellenfunktionsargumenten und der räumlichen Beschränkung der Relativwellenfunktionen trägt die Austauschwechselwirkung nur bei, wenn alle Exzitonen maximal a_B voneinander entfernt sind. In einer Theorie in der a_B Kleinheitsparameter ist, wird diese Wechselwirkung in führender Ordnung ein Kontaktpotential.

In den Subbandindizes der Schwerpunktsbewegung ergeben sich jedoch Beiträge, die zu einer unterschiedlichen Gewichtung der Streuung zwischen diesen Bändern führen. Das Matrixelement erweist sich nach einiger Rechnung als

$$w_{\nu_1, \nu_2, \nu_3, \nu_4} = C_X \frac{a_B}{L_x} E_R \delta_{k_1+k_2, k_3+k_4} \alpha_{N_1, N_2, N_3, N_4} . \quad (3.5)$$

Hierbei wird mit α die Intersubband-Streuauswahlregel eingeführt:

$$\alpha_{N_1, N_2, N_3, N_4} = \frac{1}{8} \left(\delta_{N_1-N_2, N_3-N_4} + \delta_{N_1-N_2, -N_3+N_4} + \delta_{N_1+N_2, N_3+N_4} - \delta_{N_1-N_2, N_3+N_4} - \delta_{N_1-N_2, -N_3-N_4} - \delta_{N_1+N_2, N_3-N_4} - \delta_{N_1+N_2, -N_3+N_4} \right) . \quad (3.6)$$

Die Konstante C_x ist durch ein sechsfach-Integral gegeben, das numerisch mit der stochastischen Monte-Carlo Methode ausgewertet wurde.

3.2 Dephasierung durch Exziton-Exziton-Streuung

Zur Ableitung kinetischer Gleichungen für die X-X-Streuung in Quantendrähten in diesem Abschnitt wird nun die Diagrammtechnik (Abschnitt 2.4.2) verwendet.

Ein experimenteller Aspekt erleichtert die Ableitung jedoch erheblich: In den Experimenten der Würzburger Gruppe werden mit einem, dem eigentlichen Vier-Wellen-Mischen vorgeschalteten Laserpuls (Prepuls), Exzitonen erzeugt. Erst 40ps später wird der Polarisationszerfall einer kohärent erzeugten Exzitonenamplitude mit der Methode des Vier-Wellen-Mischens gemessen. Der Prepuls ist dabei wesentlich stärker als die als Test verwendeten Vier-Wellen-Misch-Pulse.

Bei dieser Anordnung kann man davon ausgehen, dass die in der Probe erzeugten Exzitonen inkohärent und in einem thermischen Quasigleichgewicht vorliegen (die Vorsilbe „Quasi“ wird im Folgenden in diesem Zusammenhang oft unterdrückt, da das „echte“ Gleichgewicht ohne jegliche Exzitonen wegen der fehlenden Rekombinationsprozesse in keinem unserer Modelle eine Rolle spielt). Diese Gleichgewichtsannahme erleichtert die Ableitung der Polarisationskinetik erheblich, da nur die Gleichung für den Polarisationszerfall durch X-X-Streuung an einer inkohärenten Gleichgewichtsverteilung formuliert werden muss und die anderen Komponenten der Einteilchendichtematrix vernachlässigt werden können.

Dafür muss jedoch eine diagrammatische Darstellung der kohärenten Amplitude $p_N = \frac{1}{\sqrt{V}} \langle a_{N,0}(t) \rangle$ entwickelt werden. Hierfür führt man, wie in der Keldysch-Diagrammtechnik üblich, den Propagator auf der Kontur

$$S_c = T_c e^{-\frac{i}{\hbar} \int d1 H_{int}(1)} \quad (3.7)$$

ein.

Die Störungsreihe für p bzw. p^* erhält man dann aus der für alle Green-Funktionen gültigen Darstellung

$$\langle a_{N,0}^+(t) \rangle = \frac{\langle T_c a_{N,0}^+(t, +) S_c \rangle_0}{\langle S_c \rangle_0}, \quad (3.8)$$

wobei die Mittelwerte über den ungestörten Zustand durchgeführt werden. Dies ist identisch zum Ausgangspunkt der üblicheren Diagrammtechnik der „normalen“ Green-Funktion und dazu analog erhält man die störtheoretische Beschreibung der Amplitude $\langle a \rangle$ durch die Entwicklung von S_c . Auch für $\langle a \rangle$

gilt, dass alle Elemente der Störungstheorie nach Diagrammen klassifizierbar sind.

Die diagrammatische Beschreibung der auftretenden Vertizes findet man in Abb. 3.3.

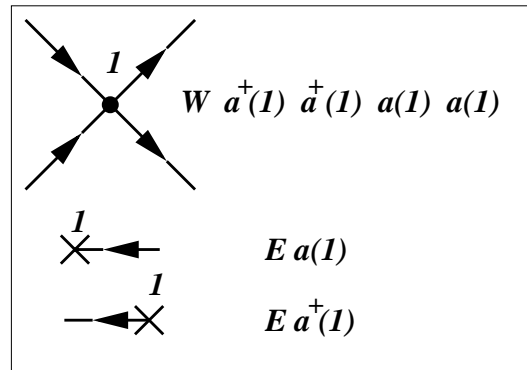


Abbildung 3.3: Diagrammatische Darstellung der Wechselwirkungsterme des Hamilton-Operators

Interessant ist die diagrammatische Interpretation der kohärenten Amplitude $\langle a \rangle$: Ihre Störungsreihe ergibt sich durch die Menge aller Diagramme, die einen Eingang haben (die Konturzeit $\{t, +\}$) und sich aus den Vertizes (Abb. 3.3) und freien Green-Funktionen konstruieren lassen. Für einige Beispieldiagramme dieser Reihe siehe Abb. 3.4.

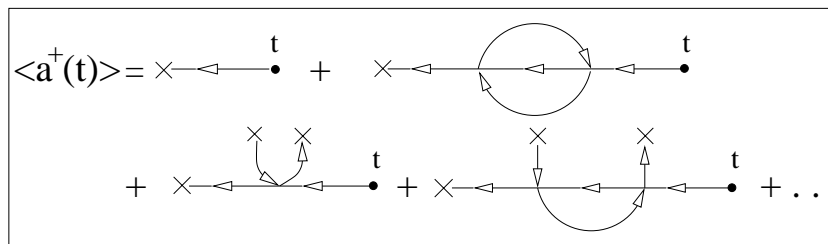


Abbildung 3.4: Einige Terme der Störungsreihe für die kohärente Amplitude p .

Die Störungsreihe muss man wie bei den „normalen“ Einteilchen-Green-Funktionen dann in einer Art Dyson-Gleichung aufsummieren, um über einfache störtheoretische Ansätze hinwegzukommen. Dieses Unterfangen wird

aber durch die möglichen Mehrdeutigkeiten erschwert, die aus der Verästelung der Diagramme entstehen. Jedoch für den Fall der Linearität im Feld, die hier für die Testpuls polarisation angenommen wird, kann eine Dyson-Gleichung wie in der ersten Zeile von Abb. 3.5 verwendet werden, bei der die Polarisation als ein voller, vom Lichtfeld beendeter Propagator dargestellt wird. Die diagrammatischen Näherungen erfolgen dann für die dort auftretende Green-Funktion. Diese Darstellung enthält zwar alle Diagramme, führt

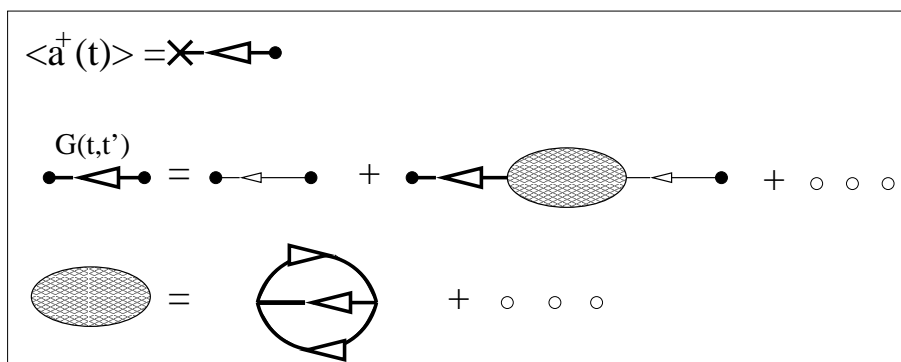


Abbildung 3.5: Dyson-Gleichung für p und diagrammatische Näherung für Polarisationsstreuung an inkohärenten Exzitonen

jedoch bei Diagrammen höherer Ordnung im Lichtfeld zu falschen Koeffizienten. In Kapitel 5 wird dann eine Aufsummierung eingeführt, die nicht mehr auf die hier untersuchten linearen Prozesse beschränkt ist.

Im Folgenden werden nun die konkreten Näherungen angegeben, um die entsprechenden kinetischen Gleichungen aus dieser Diagrammtechnik für die kohärente Amplitude zu erhalten. In der zweiten und dritten Zeile der Abb. 3.5 sind die Näherungen für Polarisationsstreuung an inkohärenten, thermischen Exzitonen angegeben. Die Punkte charakterisieren dabei die vernachlässigten Terme und damit die durchgeführten Vereinfachungen:

- Nur die niedrigste Ordnung im Lichtfeld in der Polarisationsgleichung wird berücksichtigt. Das eliminiert die anomale Selbstenergie und Streudiagramme mit offenen Linien, sowie kohärente Beiträge.
- Die vollen kinetischen Green-Funktionen werden durch thermische Green-Funktionen ersetzt. Das eliminiert die Kinetik der vom Prepuls erzeugten Ladungsträger. Danach ist keine weitere diagrammatische Annahme wie ein Kadanoff-Baym-Ansatz oder eine Wigner-Weisskopf-Näherung notwendig.

Außer den diagrammatischen Annahmen werden noch zusätzliche Näherungen eingeführt.

- Der Markov-Limes wird durchgeführt. Bei diesem wird angenommen, dass die dynamischen Größen für lange Zeiten langsam gegen die relevanten Zeitskalen (Gedächtnistiefe) variieren. In den auftretenden Zeitintegralen, z.B.

$$\int_0^t dt' e^{i(e_{N_2,k_2} + e_{N_3,k_3} - e_{N_1,k_1} - e_{N,0})(t-t')} p_N(t') n_{N_1,k_1} (1 + n_{N_2,k_2}) (1 + n_{N_3,k_3})$$

können dann die dynamischen Größen (hier nur p) vor das Integral gezogen werden, so dass sich typische Streuraten der Form

$$\pi p_N(t) n_{N_1,k_1} (1 + n_{N_2,k_2}) (1 + n_{N_3,k_3}) \delta(e_{N_3,k_3} + e_{N_2,k_2} - e_{N_1,k_1} - e_{N,0})$$

ergeben.

- Es wird angenommen, dass die Kopplung der Polarisation $p_N = \frac{1}{\sqrt{V}} \langle a_{N,0} \rangle$ an die anderen Polarisationen $p_{N' \neq N}$ (nichtdiagonale Polarisationsstreuung) wenig zu ihrer Dephasierung beiträgt. Die Streuung an der inkohärenten Besetzung der anderen Subbänder wird jedoch berücksichtigt.

Die resultierende Gleichung für die Polarisation des Subbandes N hat dann die Struktur

$$\frac{\partial}{\partial t} p_N(t) = -\frac{1}{T_{2,N}} p_N(t), \quad (3.9)$$

wobei $T_{2,N}$ eine von den Subbändern abhängige Dephasierungszeit ist. Diese ist gegeben durch

$$\begin{aligned} \frac{1}{T_{2,N}} &= -\frac{C_x^2 \lambda^2}{8\pi} \left(\frac{E_R}{k_B T} \right)^2 \sum_{N_1, N_2, N_3} \int_{-\infty}^{+\infty} dk \int_{-\infty}^{+\infty} dk' g_{N, N_1, N_2, N_3}^2 \\ &\times \left(n_{N_2, k} n_{N_3, k'} (1 + n_{N_1, (k+k')}) - (1 + n_{N_2, k}) (1 + n_{N_3, k'}) n_{N_1, (k+k')} \right) \\ &\times \delta_\gamma(e_{N_2, k} + e_{N_3, k'} - e_{N_1, (k+k')} - e_{N, 0}), \end{aligned} \quad (3.10)$$

wobei $\delta_\gamma(e)$ eine gaussisch verbreiterte Deltafunktion darstellt. Für die Erklärung der Experimente stellt sich die Polarisation im Subband $N = 1$ als dominant heraus, so dass dies den wesentlichen Beitrag zur Polarisation darstellt. Jedoch erzeugt der sehr viel stärkere Pumpimpuls inkohärente Besetzungen in vielen Subbändern, so dass die Streuung an Besetzungen von bis zu fünfzehn Subbändern inkorporiert werden müssen, um Konvergenz zu erreichen.

3.3 Ergebnisse und Diskussion

In diesem Abschnitt wird nun Gleichung (3.10) für die Bedingungen der Würzburger Experimente gelöst und das Resultat mit den experimentellen Ergebnissen verglichen.

Dazu bedarf es zunächst einer ausführlicheren Erläuterung der experimentellen Bedingungen. Die Experimente wurden an freistehenden InGaAs/GaAs Quantendrähten durchgeführt, wobei die laterale Confinementlänge L_x von 85nm bis 29nm variiert wurde ($a_B^{3D} = 11,6\text{nm}$). Der Prepuls trifft die Probe 40ps vor dem eigentlichen Experiment und erzeugt eine variable inkohärente Exzitonendichte unterhalb des Mottübergangs. Anschließend wird ein entartetes Vier-Wellen-Misch-Experiment am Schwerlochexziton durchgeführt. Aus dem Zerfall des zeitintegrierten Signals wird die Dephasierungszeit T_2 abgelesen. Die Badtemperatur beträgt $T = 20\text{K}$.

Die Numerik wird bei den selben Bedingungen durchgeführt. Jedoch nahmen die Experimentatoren an, dass jedes Photon des Prepulses ein Exziton erzeugt und schätzten daraus die Dichte ab. Um auch quantitative Übereinstimmung mit dem Experiment zu erzielen, muss aber angenommen werden, dass nur ein Sechstel der abgeschätzten Exzitonen an den Streuprozessen teilnimmt. Dies lässt sich damit begründen, dass nicht alle Photonen absorbiert oder sie teilweise in Fallen eingefangen werden. Letztere Annahme wird durch eine starke Rotverschiebung der Lumineszenz gegenüber der Absorption untermauert. Das für die Berechnung von T_2 notwendige chemische Potential μ wird aus der Dichte und der Temperatur berechnet.

Hochinteressant ist nun die Frage wie die Dephasierungszeit durch X-X-Streuung von der Drahtbreite L_x abhängt. Zwei wesentliche Prozesse arbeiten hier gegeneinander:

- Bei stärkerem Confinement werden die Abstände zwischen den Subbändern vergrößert. Der Phasenraum der Streuung wird also erheblich eingeschränkt. Die Streurrate wird reduziert.
- Andererseits ist eine Verstärkung der Matrixelemente der Coulomb-Wechselwirkung in stärker räumlich beschränkten Systemen zu erwarten („die Teilchen werden einfach zusammengedrückt“). Dieser Effekt zeigt sich zum Beispiel in den erhöhten Exzitonbindungsenergien in den Würzburger Quantendrähten bei stärkeren Confinement [37].

Zusätzlich ist diese Frage auch von technischem Interesse, da Kohärenz für viele Nanodevices essenziell ist.

Daher gab es in der Literatur schon früher experimentelle Untersuchungen des Problems. Oestreich et al. [38] fanden Hinweise auf eine reduzierte Streuung in 60nm breiten GaAs/Al_{0.30}Ga_{0.70}As Quantendrähten durch zeitaufgelöste Photolumineszenz-Spektroskopie. Dies wurde auf den reduzierten Phasenraum der eindimensionalen Exzitonen zurückgeführt. Im scharfen Kontrast dazu fanden Mayer et al. [39] eine verstärkte Streuung in ebenfalls 60nm breiten Quantendrähten im entarteten Vier-Wellen-Mischen. In beiden Studien konnte die Confinement Länge nicht variiert werden. Aufgrund der Probleme beim Übergang von 2D zu 1D erlaubte dies keine systematische Untersuchung des Einflusses der Drahtbreite auf die Dephasierungskinetik.

Diese Abhängigkeiten werden nun experimentell und theoretisch untersucht. In Abb. 3.6 ist die Abhängigkeit der Streurrate von der Dichte für zwei Quan-

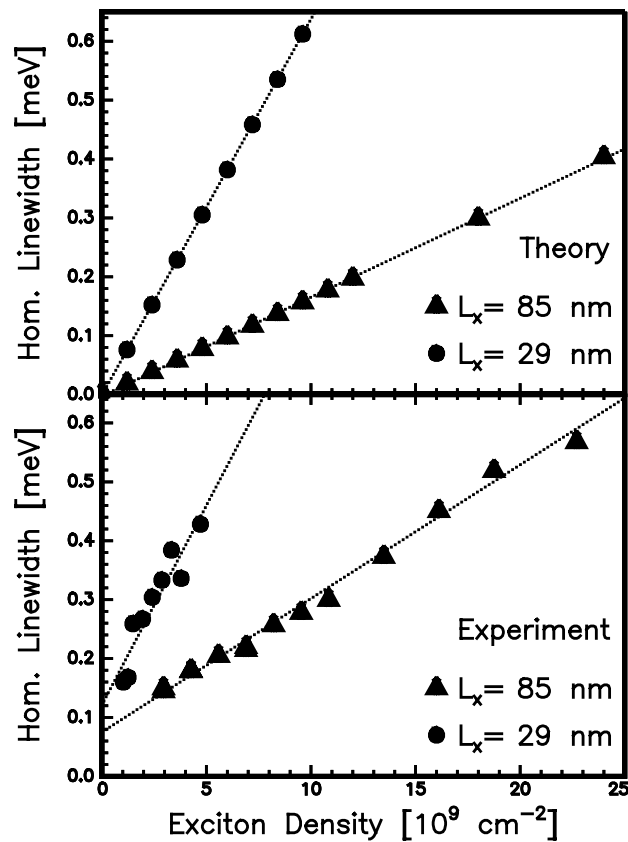


Abbildung 3.6: Dichteabhängigkeit der X-X-Streurate

tendrahtbreiten angegeben. Experimentell (untere Hälfte der Abb. 3.6) findet man eine lineare Zunahme mit der Dichte und einen endlichen Abschnitt auf der y-Achse, ähnlich wie es auch schon früher in zweidimensionalen Heterostrukturen gemessen wurde [40, 41]. Diese endliche homogene Linienbreite bei verschwindender Dichte $\Gamma(n=0) \neq 0$ ist auf dichteunabhängige Streuprozesse wie zum Beispiel Phononen zurückzuführen. Da diese Prozesse in der Theorie (obere Hälfte von Abb. 3.6) nicht berücksichtigt wurden $\Gamma(n=0) = 0$, kann man nur den dichteabhängigen Anteil vergleichen. Daher definiert man $\Gamma(n) = \gamma_{XX} n$ und vergleicht den Koeffizienten γ_{XX} .

Der Beitrag der X-X-Streuung γ_{XX} wurde in Abb. 3.7 in Abhängigkeit von der Drahtbreite untersucht.

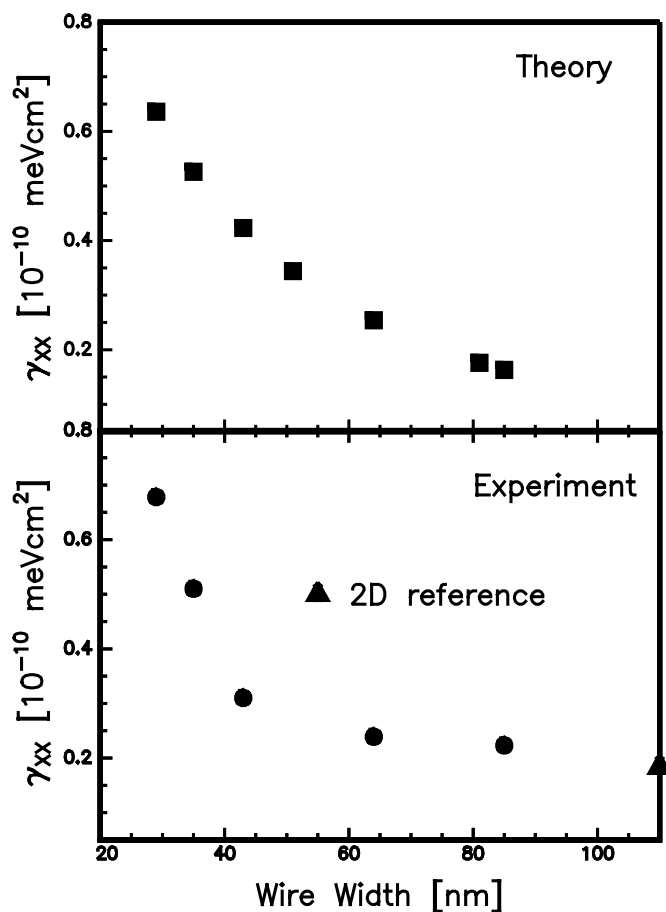


Abbildung 3.7: Abhängigkeit der X-X-Streurate von der Drahtbreite

Theorie und Experiment liefern eine deutliche Zunahme der Streuung mit stärkerem Confinement und stimmen gut im Verlauf des Gesetzes überein. Das beantwortet überzeugend die anfangs gestellte Frage: **Die Zunahme der Matrixelemente der X-X-Streuung bei stärkerem Confinement überwiegt gegenüber den Phasenraumeffekten. Die X-X-Streuung nimmt mit dem Confinement zu!**

Dieses Ergebnis ist mittlerweile auch experimentell von Wagner et al. [42] in ZnSe Quantendrähte gefunden worden.

Beide Effekte, die Linearität in der Dichte und die Zunahme für kleinere Drahtbreiten, können direkt an der Gleichung für die Dephasierungszeit (3.10) abgelesen werden.

Die homogene Linienbreite Γ hängt linear von der Exziton-Dichte ab, da der führende Term der Verteilungsfunktionen im Integralkern durch $(1+n)(1+n)n \approx n$ gegeben ist.

Die inverse Dephasierungszeit ist zum Quadrat der Austauschwechselwirkungs-Matrixelemente proportional und daher in niedrigster Ordnung proportional zu λ^2 . γ_{XX} ist daher invers proportional zum Quadrat der Drahtbreite L_x , was die beobachtete Zunahme der Streurrate Γ mit kleinerer Drahtbreite L_x erklärt. Das genaue numerische Ergebnis ist jedoch schon höherer Ordnung in λ und kann am besten mit einem kubischen Polynom angepasst werden $\Gamma = a\lambda^2 + b\lambda^3$.

Kapitel 4

Exziton-Biexziton-Schwebungen in Quantendrähten

Im letzten Abschnitt wurde nur die Wirkung rein inkohärenter Prozesse behandelt, bei denen die erzeugte Polarisation ausschließlich mit thermischen Exzitonen wechselwirkte. Der einzige durch die Theorie simulierte Effekt war der Polarisationszerfall durch inkohärente Stöße. Dies ist jedoch eine recht unvollständige Beschreibung der Polarisationskinetik, denn zusätzlich zu diesen Effekten tragen in entarteten Exzitonsystemen auch andere, rein kohärente Prozesse bei. Durch diese reversiblen Vorgänge wird die Kinetik der Polarisation sehr viel reichhaltiger als nur ein exponentieller Zerfall.

Das wird auch an den zeitintegrierten Vier-Wellen-Mischkurven (Abb. 4.1), deutlich, deren Zerfallszeit im letzten Kapitel erfolgreich beschrieben wurde. Die detaillierte Form der Kurven läßt sich nicht durch einen einfachen Zerfall beschreiben, die überlagerten Quantenschwebungen sind ein erstes Anzeichen für die Bedeutung kohärenter Prozesse. Diese Quantenschwebungen in den Würzburger Quantendrähten werden im Folgenden studiert. Die Details der Theorie findet man in [43], ausführlichere Experimente zur Natur der Schwebungen sind in [44] beschrieben.

Einer der wichtigsten kohärenten Effekte der Exzitonenkinetik in Halbleitern ist die Bildung eines Biexzitons (Exzitonmoleküls) aus zwei Exzitonen. Biexzitonen sind die gebundenen Vierteilchen-Zustände aus zwei Elektronen und zwei Löchern. Aufgrund des Pauli-Prinzips ist dabei die Spinstruktur in der jeweils die beiden Elektronen und die beiden Löcher entgegengesetzten Spin haben, z.B. $|e_1 \uparrow h_1 \downarrow, e_2 \downarrow h_2 \uparrow\rangle$, energetisch bevorzugt. Um diesen Zustand in die Theorie einzubeziehen, wird in diesem Kapitel die direkte Wechselwirkung zweier Exzitonen in soweit berücksichtigt, wie sie zur kohärenten Umwandlung eines $|e \uparrow, h \downarrow\rangle$ - und eines $|e \downarrow, h \uparrow\rangle$ -Exzitons in ein Molekül (M)

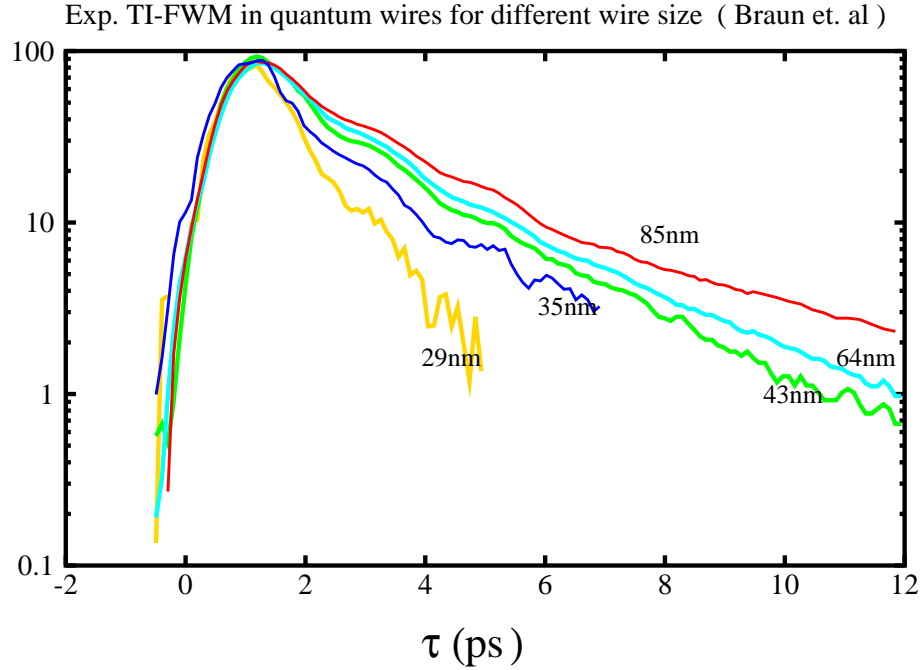


Abbildung 4.1: Experimentelle Daten aus der Würzburger Gruppe (Aufbau wie in [30]): Gemessenes zeitintegriertes VWM-Signal in Abhängigkeit von der Verzögerungszeit τ zwischen den beiden Pulsen für verschiedene Drahtbreiten.

beiträgt. Dieser Prozess kann die beobachteten Quanten-Schwebungen in den Würzburger VWM-Daten erklären, die den ersten experimentellen Hinweis auf Biexzitonen in quasi-eindimensionalen Heterostrukturen liefern (ähnliche X-M-Quantenschwebungen wurden in höherdimensionalen Strukturen auch von [45, 46, 47, 48] beobachtet).

4.1 Biexzitonen in Quantendrähten

Im Weiteren wird es wichtig sein die biexzitonischen Anregungen für die Quantendrähte aus Kapitel 3 unter den dortigen Näherungen abzuleiten ($L_z \rightarrow 0$ und schwaches Confinement in x-Richtung). Hierfür werden die Ansätze der Näherung des schwachen Confinements [36] auf das Viertelchenproblem verallgemeinert. Dabei erfolgt die Modellierung der Exzitonen konsistent genau wie im vorausgehenden Kapitel.

Die Annahme wird dafür beibehalten, dass das Confinement nur von der räumlich ausgedehnten Schwerpunktbewegung der Elektronen und Löcher

gespürt wird. Die Wellenfunktion faktorisiert dann in eine quantisierte Schwerpunktsbewegung und in die ungestörten Relativbewegung des 2D-Biexzitons,

$$\Phi_{N,K}(\vec{r}_{e1}, \vec{r}_{h1}, \vec{r}_{e2}, \vec{r}_{h2}) = \chi_{N,K}(\vec{R}) \phi_M(\vec{r}_{e1}, \vec{r}_{h1}, \vec{r}_{e2}, \vec{r}_{h2}) . \quad (4.1)$$

In dieser Gleichung beschreibt $\chi_{N,K}(\vec{R})$ die einhüllende Schwerpunktswellenfunktion mit dem Vierteilchen-Schwerpunkt

$$\vec{R} = \left(m_e(\vec{r}_{e1} + \vec{r}_{e2}) + m_h(\vec{r}_{h1} + \vec{r}_{h2}) \right) / (2m_e + 2m_h).$$

Diese Funktion zerfällt wie in Kapitel 3 in eine freie Bewegung in y-Richtung und stehenden Wellen im unendlichen Topf in x-Richtung.

Die ungestörte Relativ-Wellenfunktion in der x-y Ebene kann leider nicht analytisch berechnet werden, da die Lösung des Vierteilchenproblems in zwei Dimensionen unbekannt ist. In der Literatur findet sich jedoch ein sehr erfolgreicher Ansatz von Kleinman [49]

$$\begin{aligned} \phi_M &= \frac{1}{C} e^{-\frac{k}{4a_0}(s_1+s_2)} \cosh\left(\frac{\beta k}{4a_0}(t_1 - t_2)\right) \\ &\times \left(k \frac{r_{h2,h1}}{2a_0} e^{-k\rho \frac{r_{h2,h1}}{2a_0}} + \lambda e^{-k\tau \frac{r_{h2,h1}}{2a_0}} \right) \end{aligned} \quad (4.2)$$

mit den fünf variationellen Parametern $k, \beta, \rho, \lambda, \tau$. Die Funktionen s und t sind Kombinationen der Teilchenkoordinaten $\vec{r}_{e,h} = \vec{r}_e - \vec{r}_h$

$$s_i = r_{e_i,h1} + r_{e_i,h2} , \quad t_i = r_{e_i,h1} - r_{e_i,h2} , \quad (4.3)$$

und C ist die Normierungskonstante. Die einzigen materialabhängigen Parameter der Theorie sind dann die zweidimensionale Exzitonbindungsenergie E_R^{2D} und der zweidimensionale Exziton-Bohr-Radius a_0 . Die niedrigste und damit beste Molekül-Bindungsenergie in Bezug auf den Zweiexziton Zustand ist dann $e_{2D}^b = 0,146 E_R$. Man erhält sie mit den Koeffizienten $k=2,51$; $\beta=0,66$; $\rho=0,43$; $\lambda=0,42$; $\tau=0,28$; die auch in dieser Arbeit verwendet werden.

Durch die Diskretisierung der Anregungen in x-Richtung und die freie y-Bewegung ergeben sich wie im Fall der Exzitonen verschiedene Biexziton-Subbänder. Die Molekülenergie $e_{N,K}^M$ hängt daher von der diskreten Quantenzahl N und dem Schwerpunktsimpuls K ab.

$$e_{N,K}^M = e^M + \frac{\hbar^2 K^2}{4m_X} + \frac{\hbar^2}{4m_X} \left(\frac{N\pi}{L_x} \right)^2 . \quad (4.4)$$

In dieser Situation gibt es folglich einen unendlichen Satz von Molekül- und Exzitonsubbändern. Daher muss das Konzept der einfachen Bindungsenergie $e^b = 2e^X - e^M$ durch ein ganzes Spektrum von Bindungsenergien ersetzt

werden $e_{n_1, n_2, N}^b = e_{n_1}^X + e_{n_2}^X - e_N^M$. Die Exzitonen-Quantenzahlen werden in diesem Kapitel mit kleinen Buchstaben vom Biexziton abgehoben.

Als wichtiges Beispiel erhält man daraus für die Bindungsenergie des niederenergetischen Biexzitons im Verhältnis zu den niederenergetischen Exzitonen $e_{1,1,1}^b = e_{2D}^b + \frac{3}{4} \frac{\hbar^2}{m_X} \left(\frac{\pi}{L_x} \right)^2$. Diese Bindungsenergie nimmt mit abnehmender Drahtbreite zu.

4.2 Kohärenz in Exziton-Biexziton-Korrelationen

In diesem Absatz wird die kohärente Dynamik der Exzitonen und Biexzitonen in den Quantendrähten nach Anregung durch einen Laserpuls betrachtet.

Durch das Lichtfeld werden nur Exzitonen mit entgegengesetztem Elektron- und Lochspin angeregt. Die abstoßende Wechselwirkung zwischen Exzitonen der selben Spinstruktur wird wie im vorangegangenen Kapitel als Kontaktpotential berücksichtigt. Die anziehenden Effekte werden nur in der Form der Biexzitonbildung betrachtet, wo sie entscheidend beitragen.

Zusätzlich zu den Exzitonen wird also als weitere elementare Anregung das Molekül betrachtet. Dabei ist in unserem Zugang wesentlich, dass das Lichtfeld nur Exzitonen erzeugt und erst aus diesen über die Coulomb-Effekte das Molekül gebildet wird. Die Wichtigkeit dieses fundamentaleren Zugangs wurde schon in [50] erkannt und unterscheidet sich von früheren Behandlungen im Rahmen des sogenannten „giant oscillator model“ [51]. Bei diesem entsteht das Biexziton bei der Absorption eines Photons durch ein Exziton. Der Hamilton-Operator enthält die folgenden Beiträge

$$H = H_X + H_M + H_{XX} + H_{XM} + H_{XE} . \quad (4.5)$$

Mit den Quantenzahlen $\nu = (n, k)$, $\mu = (N, K)$ und der Quantenzahl des Exzitonentyps $\sigma = +, -$ für die beiden exzitonischen Spinzustände ergibt sich

$$H_X = \sum_{\nu, \sigma = \pm} e_{\nu}^X a_{\nu, \sigma}^+ a_{\nu, \sigma} , \quad H_M = \sum_{\mu} e_{\mu}^M c_{\mu}^+ c_{\mu} . \quad (4.6)$$

Dabei werden zusätzlich zu den bosonischen Exzitonen-Vernichtungsoperatoren $a_{\nu, \sigma}$ auch Bose-Operatoren c_{μ} für das Molekül eingeführt.

Der Anteil H_{XX} beschreibt wie in Kapitel 3 die Wechselwirkung zwischen Exzitonen gleicher Spinanordnung

$$H_{XX} = \frac{1}{4} \sum_{\{\nu_i\}, \sigma} w_{\nu_1, \nu_2; \nu_3, \nu_4} a_{\nu_1, \sigma}^{\dagger} a_{\nu_2, \sigma}^{\dagger} a_{\nu_3, \sigma} a_{\nu_4, \sigma} . \quad (4.7)$$

Für das Matrixelement gelten dabei wieder die Auswahlregeln aus Gleichung (3.5). H_{XE} beschreibt die Erzeugung und Vernichtung von Exzitonen durch das Lichtfeld in der Form

$$H_{XE} = -\frac{1}{2} \sum_{\nu, \sigma} (d_{\nu, \sigma}^* E^*(t) a_{\nu, \sigma} + h.c.) . \quad (4.8)$$

Durch die Verwendung linear polarisierten Lichts wird das Dipolmatrixelement $d_{\nu, \sigma}$ unabhängig vom Spinzustand $\sigma = \pm$ und die optischen Auswahlregeln für $d_{\nu} = d_{n, 0} \delta_{k, 0}$ sind wieder durch Gleichung (3.3) gegeben.

Der wirklich neue Term ist nun die Kopplung zweier Exzitonen unterschiedlicher Spinstruktur zum Molekül

$$H_{XM} = \sum_{\mu, \nu_1, \nu_2} (v_{\mu, \nu_1, \nu_2} c_{\mu}^{\dagger} a_{\nu_1, +} a_{\nu_2, -} + h.c.) . \quad (4.9)$$

Das Matrixelement v zwischen dem Zweiexzitonenzustand und dem Molekül muss wieder im Elektron-Loch-Bild ausgewertet werden. Man erhält das Matrixelement durch Gleichsetzen der Matrixelemente in der Bosonen- und der Fermionentheorie:

$$\langle BiX | H_{XM} | \sigma_+, \sigma_- \rangle_{Bosonen} = \langle BiX | H_{XM} | \sigma_+, \sigma_- \rangle_{Fermionen} .$$

Dabei muss jedoch berücksichtigt werden, dass dem Biexziton der Fermionentheorie (4.1) nicht der freie Zustand $c^+ | 0 \rangle$, sondern der durch H_{XM} schon renormierte Zustand entspricht, da in der Fermionentheorie die mögliche Umwandlung von Exzitonen zu Biexzitonen voll inkorporiert ist.

Als Ergebnis erhält man für das Kopplungsmatrixelement

$$\begin{aligned} v_{N, K; n_1, k_1, n_2, k_2} &= - (e_{n_1}^X + e_{n_2}^X - e_N^M) \int d^2 r_{e_1} \int d^2 r_{h_1} \int d^2 r_{e_2} \int d^2 r_{h_2} \\ &\times \Phi_M^*(\vec{r}_{e_1}, \vec{r}_{h_1}, \vec{r}_{e_2}, \vec{r}_{h_2}) \Psi_X(\vec{r}_{e_1}, \vec{r}_{h_1}) \Psi_X(\vec{r}_{e_2}, \vec{r}_{h_2}) . \end{aligned} \quad (4.10)$$

Das Ergebnis dieses Integrals ergibt die Impulserhaltung und neue Auswahlregeln für die Subbandabhängigkeit der Wechselwirkung

$$v_{N, K; n_1, k_1, n_2, k_2} = C_{MX} \delta_{K - k_1 - k_2} \beta_{N, n_1, n_2} . \quad (4.11)$$

Das sechsfach Integral C_{MX} wird wieder durch Monte-Carlo Integration ausgewertet.

Die Auswahlregeln sind durch

$$\begin{aligned} \beta_{N, n_1, n_2} &= -\frac{1}{4} \sum_{\pm} \left[(1 - \delta_{N, \pm n_1 \pm n_2}) \frac{1 + (-1)^{N \mp n_1 \mp n_2 + 1}}{(N \mp n_1 \mp n_2)} \right. \\ &\left. - (1 - \delta_{N, \pm n_1 \mp n_2}) \frac{1 + (-1)^{-(N \mp n_1 \pm n_2 - 1)}}{(N \mp n_1 \pm n_2)} \right] . \end{aligned} \quad (4.12)$$

gegeben.

Die kinetischen Gleichungen werden hier mit der Bewegungsgleichungsmethode abgeleitet. Als Näherung wird der rein kohärente Limes der Kinetik betrachtet, in dem nur kohärente Amplituden berücksichtigt werden. In diesem Modell treibt das Lichtfeld die Exziton-Amplitude $\langle a_{n,k=0,\sigma}(t) \rangle = \langle a_{n,\sigma}(t) \rangle$, die wiederum die Biexzitonamplitude $\langle c_{N,K=0}(t) \rangle = \langle c_N(t) \rangle$ kohärent und reversibel antreibt.

Man erhält die Bewegungsgleichungen, indem man die Heisenberg-Gleichung für $\langle a_N(t) \rangle$ und $\langle c_N(t) \rangle$ formuliert und dann nicht mehr iteriert, sondern alle Mittelwerte vollständig faktorisiert, also z.B.

$$\langle c_{N,K} a_{n,-k} \rangle \approx \langle c_N \rangle \langle a_n \rangle \quad (4.13)$$

(Bewegungsgleichungsmethode bis zu ersten Ordnung). Durch diese Näherung wird aufgrund der Translationsinvarianz, die alle endlichen Impulse eliminiert, das Mehrsubband System auf ein Mehrniveau System vereinfacht.

Bei den entstehenden Gleichungen handelt es sich um eine Gross-Pitajevski Gleichung für die Polarisation, die um die biexzitonischen Korrelationen erweitert ist

$$\begin{aligned} \left(\frac{d}{dt} - i\Delta_n^X \right) \langle a_{n,\pm}(t) \rangle &= -\frac{i}{\hbar} \sum_{N,n'} v_{N;n',n} \langle c_N \rangle \langle a_{n',\mp}^\dagger \rangle + \frac{i}{2\hbar} d_n E_0(t) \\ &- \frac{i}{2\hbar} \sum_{n_1, n_2, n_3} w_{n, n_1; n_2, n_3} \langle a_{n_1, \pm}^\dagger \rangle \langle a_{n_2, \pm} \rangle \langle a_{n_3, \pm} \rangle - \frac{\langle a_{n, \pm} \rangle}{T_{2,X}}, \end{aligned} \quad (4.14)$$

und die Rückkopplungsgleichung des Moleküls

$$\left(\frac{d}{dt} - i\Delta_N^M \right) \langle c_N(t) \rangle = -\frac{i}{\hbar} \sum_{n, n'} v_{N;n, n'} \langle a_{n,+} \rangle \langle a_{n',-} \rangle - \frac{\langle c_N \rangle}{T_{2,M}}. \quad (4.15)$$

Dabei wird die verallgemeinerte Verstimmung (Detuning) für die Exzitonen $\Delta_n^X = \hbar\omega - e_n^X$ und für die Biexzitonen $\Delta_N^M = 2\hbar\omega - e_N^M$ verwendet. Um realistische VWM-Signale berechnen zu können, werden den Gleichungen phänomenologische Dephasierungszeiten $T_{2,X}$ und $T_{2,M} = \frac{1}{2}T_{2,X}$ hinzugefügt.

Ähnliche Gleichungen in anderen Geometrien und Approximationsschemata wurden auch von anderen Autoren abgeleitet [50, 52, 53, 54, 55]. Ihr wesentliches Charakteristikum ist die ausschließlich von der Exzitonamplitude getriebene Molekülgleichung, in der das Lichtfeld nicht vorkommt.

4.3 Ergebnisse und Diskussion

Mit diesen Gleichungen wird direkt das zeitintegrierte VWM-Signal für ähnliche Anregungsbedingungen wie in [44] berechnet. Die Polarisationskomponente in die Vier-Wellen-Misch-Richtung $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ wird mit einer Phasenprojektions-technik extrahiert, wie z.B. in [21] beschrieben. Als Relaxationszeit wird $T_{2,x} = 8\text{ps}$ gewählt.

Beide VWM-Pulse sind 150fs lang und fest auf das 2D Referenz-Exziton gestimmt, was zu einer negativen Verstimmung bei der Berücksichtigung des Confinements führt. In Abb. 4.2 sind die berechneten TI-VWM-Kurven für verschiedene Intensitäten und Drahtbreiten dargestellt.

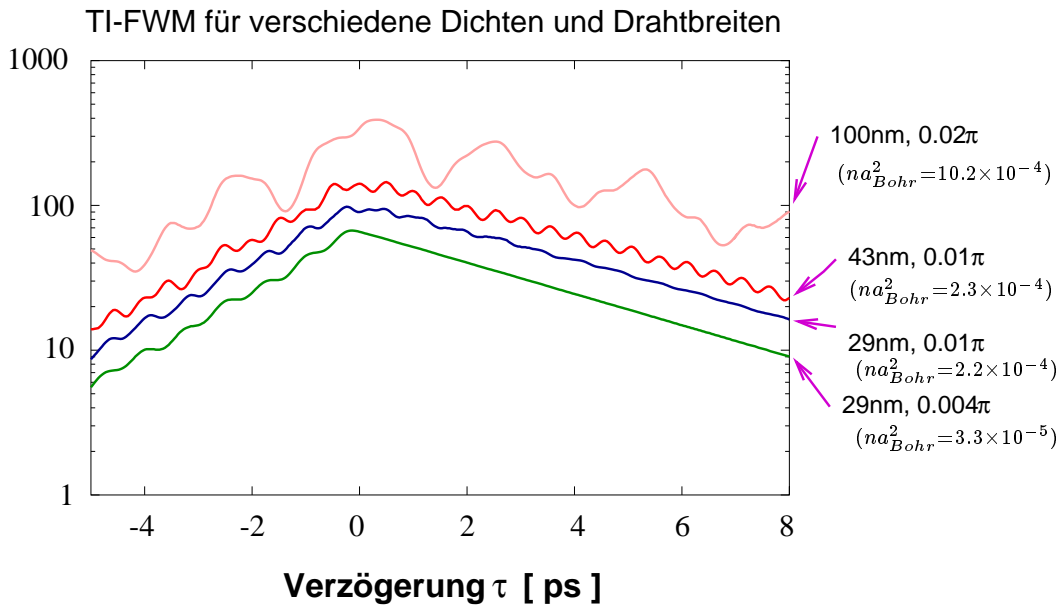


Abbildung 4.2: Mit X-M- und X-X-Kopplung berechnetes zeitintegriertes VWM-Signal in Abhängigkeit von der Verzögerungszeit τ für verschiedene Drahtbreiten und Intensitäten.

Die unterste Kurve für $L_x = 29\text{nm}$ entspricht einer extrem schwachen Anregung. Zusätzlich ist durch das starke Confinement der Abstand zwischen den Subbändern so groß, dass nur ein Exziton- und ein Molekülniveau angeregt werden. In der Tat verhält sich das System dann ähnlich wie ein idealer Quantenwell (in dem Sinn, dass es nur ein Exziton und ein Molekül gibt) und die Ergebnisse der χ_3 -Theorie für diese Systeme [52, 53] werden reproduziert. In dieser Entwicklung nach dem optischen Feld erhält man Exziton-Molekül Quantenschwebungen mit der Bindungsenergie des Biexzitons, allerdings nur

für negative Verzögerungszeiten. Für positive Verzögerungszeiten zeigt sich ein rein exponentieller Abfall.

In der darüberliegenden Kurve wird mit einer realistischeren Intensität gerechnet. Diese entspricht den kleinsten experimentellen Anregungen der Würzburger Gruppe, in denen ein VWM-Signal gemessen werden konnte. Überraschenderweise erhalten wir für diese Dichte schon Schwebungen auf der fallenden Seite des Signals. Der χ_3 -Limes ist also schon nicht mehr gültig. In [45, 46] wurde gezeigt, dass Unordnung auch im χ_3 -Limes Quantenschwebungen für positive Verzögerungszeiten induzieren kann. Wie die Rechnungen zeigen, sind jedoch solche Schwebungen kein gutes Indiz für Unordnung in niederdimensionalen Strukturen, da der χ_3 -Limes bei den meisten VWM-Experimenten dieser Art schon nicht mehr gültig ist. **Vielmehr implizieren die Ergebnisse, dass die Würzburger Quantenschwebungen selbst bei den kleinsten Dichten mit messbarem VWM-Signal eher auf Lichtfeldeffekte höherer Ordnung ($\geq \chi^5$) zurückzuführen sind.**

In der darüberliegenden Kurve mit $L_x = 43\text{nm}$ werden nun zwei Exzitonenniveaus angeregt (das erste und das dritte). Die beobachteten Oszillationen lassen sich durch eine Schwebung zwischen der Übergangsfrequenz des $n=1$ und des $n=3$ Exzitons und der Molekülbindungsenergie beschreiben, wobei bei negativer Verzögerung das Molekül stärker beiträgt. Erstere Oszillation wurde erstmals in [47] experimentell beobachtet.

In der obersten Kurve ist das Confinement sehr schwach, so dass viele (bis zu 11) Subbänder beitragen. **In diesem Fall geht das System bei starker Anregung leicht in irreguläres Verhalten über, was von Systemen vieler gekoppelter verstimmter Oszillatoren erwartet werden kann.** Diese Beispiele zeigen in klarer Weise den generellen Übergang von einfachsten Quantenschwebungen zu einer komplizierten kohärenten Exzitondynamik in Quantendrähten mit schwachen Confinement. Sie zeigen auch die Beschränktheit einfacher Ansätze (z.B. der störtheoretischen Entwicklung im Feld) für die Beschreibung dieser Experimente.

Dies war das letzte Beispiel für die Geometrie der Quantendrähte mit schwachen Confinement. Um die Diskussion der Kohärenz in entarteten Exzitonensystemen weniger speziell zu gestalten, werden von jetzt ab nur noch dreidimensionale unbeschränkte Geometrien behandelt. Die Erkenntnisse und Konzepte aus den beiden ersten Kapiteln sind jedoch äußerst hilfreich für das Verständnis der Folgenden.

Kapitel 5

Markov-Kinetik wechselwirkender Exzitonen

Bei der Behandlung wechselwirkender Exzitonen wurde in den letzten Kapiteln entweder der kohärente oder der vollständig inkohärente Grenzfall der kinetischen Prozesse untersucht. Diese einseitige Betrachtung ist auch der generelle Zugang für die Arbeiten über wechselwirkende bosonische Exzitonen in der Literatur [50, 56, 57, 59, 60]. Reale Experimente (wie auch schon die im vorherigen Kapitel beschriebenen Messungen) zeigen jedoch stets kohärentes und inkohärentes Verhalten.

So zeigen wechselwirkende Exzitonen zum Beispiel als kohärente Effekte die Licht-Exziton-Wechselwirkung, Quantenschwebungen, räumliche Interferenzeffekte, möglicherweise die Bose-Einstein-Kondensation wechselwirkender Exzitonen mit Renormierungen der spektralen Eigenschaften und verschiedene andere Arten kollektiven Verhaltens. Die irreversiblen Phänomene wie Exziton-Exziton-Streuung, Aufbau eines stationären Kondensates, Dephasierung und Thermalisierung der Exzitonen spielen jedoch ebenfalls eine wesentliche Rolle.

Die Diagrammtechnik ermöglicht die Behandlung beider Gruppen von Phänomenen auf der selben mikroskopischen Basis. Das Programm dieses Kapitels ist diese gemeinsame Beschreibung der kohärenten und inkohärenten Effekte für den Fall der abstoßenden Exziton-Exziton-Wechselwirkung. Als kohärente Effekte werden daher nicht wie im letzten Kapitel die Biexzitonen betrachtet, sondern die Gross-Pitajevski-Gleichung wird um alle Hartree-Fock-Terme erweitert. Zu diesen kohärenten Termen kommen dann in natürlicher Weise irreversible Stoßintegrale für alle Elemente der Einteilchendichtematrix.

Die Theorie dieses Kapitels ermöglicht somit die Verfolgung der Zeitentwick-

lung der gesamten Exzitonenkinetik auf mikroskopischem Niveau: Am Anfang des Prozesses wird nur Polarisation (kohärente Exzitonamplitude bei $k = 0$) erzeugt. Aus diesem rein kohärenten System entstehen allein durch die X-X-Wechselwirkung inkohärente Exzitonen, Dephasierung der Polarisation und Thermalisierung der Exzitonen.

Bei diesem Prozess stellt sich die Paaramplitude $F_k = \langle \tilde{a}_k \tilde{a}_{-k} \rangle$, die die Kohärenz eines Exzitonenaars bei k und $-k$ beschreibt, als absolut essenziell heraus. Obwohl die Bedeutung der Paaramplitude schon früher in anderen Halbleiterproblemen gefunden wurde [56, 57, 61], bekommt sie durch die folgende Untersuchung eine neue Qualität: Ohne Berücksichtigung der Paarkorrelationen gibt es keine Irreversibilität durch X-X-Streuung in Halbleitern. Eine einmal angeworfene kohärente Amplitude eines wechselwirkenden Exzitonengases oszilliert unendlich lange ungestört weiter, wenn die Paaramplituden F_k vernachlässigt werden.

Der umgekehrte Prozess zur Dephasierung einer rein kohärenten Amplitude p ist die Bose-Einstein-Kondensation (BEC), bei der eine kohärente Amplitude aus einem inkohärenten System entsteht. In diesem Forschungsgebiet sind kinetische Beschreibungen, die Kohärenz und Inkohärenz verbinden, ebenfalls kaum entwickelt, wie von verschiedenen Autoren bemerkt wurde [62, 63, 64]. Die hier entwickelte Theorie enthält daher prinzipiell auch im Fall überkritischer Bedingungen eine erweiterte Darstellung der Kinetik der Kondensationsprozesse im Vergleich zu den kinetischen Modellen in der Literatur.

Eine Besonderheit der exzitonischen Kondensation ist, dass die Polarisation gleichzeitig den Ordnungsparameter der Kondensation darstellt. Man erwartet daher intuitiv, dass bei Annäherung an die kritischen Dichten für eine BEC interessante Phänomene in der Polarisationskinetik auftreten. Dies wird ebenfalls Gegenstand der Untersuchung sein.

Der Inhalt dieses Kapitels ist mit zwei unterschiedlichen Schwerpunkten in [65] und [66] dargestellt.

5.1 Gemeinsame Behandlung von Kohärenz und Inkohärenz in der Diagrammtechnik

Ausgangspunkt der Betrachtung dieses Kapitels ist das Modell wechselwirkender, dipolerlaubter Exzitonen in drei Dimensionen, genau wie es in Abschnitt 2.3 bereits eingeführt wurde. Durch die ausschließliche Berücksichtigung der Austauschwechselwirkung reicht die Behandlung eines Exzitonentyps, da die beiden durch das Lichtfeld erzeugten Spinkonfigurationen nicht

wechselwirken. Die einzige Quantenzahl bleibt dann der Schwerpunktsimpuls \vec{k} und nach Abschnitt 2.3 gilt für den Hamilton-Operator bei der Modellierung der Austauschwechselwirkung durch ein Kontaktpotential

$$H = \sum_{\vec{k}} e_k a_{\vec{k}}^\dagger a_{\vec{k}} + \frac{1}{4V} \sum_{\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{q}} w a_{\vec{k}_1}^\dagger a_{\vec{k}_2}^\dagger a_{\vec{k}_1 + \vec{q}} a_{\vec{k}_2 - \vec{q}} - \sqrt{V} (dE(t) a_0^\dagger + h.c.) .$$

Im Gegensatz zu einer vollständigeren Beschreibung der Exzitonen sind in diesem Modell sowohl ihre endliche Lebenszeit als auch der Polaritoneffekt [67] vernachlässigt, obwohl diese durchaus wichtige Beiträge zur Kinetik liefern können [68, 69, 70]. Es ist jedoch zu erwarten, dass ihr qualitativer Beitrag zu den Kurzzeit-Phänomenen, die im Folgenden behandelt werden, nicht entscheidend ist.

Denn obwohl sich alle dreidimensionalen Exzitonen mit dem Lichtfeld mischen und damit die Polaritonen die eigentlich stabileren Quasiteilchen sind, können polaritonische Effekte experimentell durch Verwendung besonderer Geometrien (zum Beispiel sehr kleiner Proben) unterdrückt werden. Zusätzlich ist der Zerfall auf den unteren photonischen Ast sehr langsam und das Auftreten des polaritonischen Spektrums reagiert recht sensibel auf Dämpfungen. Wir werden daher prinzipiell annehmen, dass polaritonische Effekte unterdrückt sind oder keine Rolle spielen.

Die Einteilchendichtematrix beschreibt alle Einteilcheninformationen über das System. Sie enthält im bosonischen Fall sowohl den faktorisierten Anteil $p = \frac{1}{\sqrt{V}} \langle a_0 \rangle$ bei $\vec{k} = 0$, als auch die Besetzungszahl $n_k = \langle \tilde{a}_k^\dagger \tilde{a}_k \rangle$ und die anomalen Paarkorrelationen $F_k = \langle \tilde{a}_k \tilde{a}_{-k} \rangle$. Letztere werden häufig vernachlässigt, aber ihre wesentliche Bedeutung wird im Weiteren offensichtlich werden. Um bei $k = 0$ nicht doppelt zu zählen, gilt wieder $\tilde{a}_{\vec{k}} = a_{\vec{k}} - \langle a_{\vec{k}} \rangle$. Ziel dieses Kapitels ist die Formulierung einer geschlossenen und rein mikroskopischen Kinetik für alle Komponenten der Einteilchendichtematrix.

Hierfür wird im Gegensatz zu Kapitel 3 nicht mit der Diagrammtechnik für die kohärente Amplitude p selbst gestartet. Denn obwohl diese Amplitude störtheoretisch durch die Klasse aller Diagramme mit einem einzigen Ausgang gegeben ist, ist die Dyson-Aufsummierung dieser Reihe nur dann leicht durchführbar, wenn ausschließlich Diagramme mitgenommen werden, die linear im Lichtfeld sind. In diesem Fall sind nämlich Anfang und Ende der Diagramme wohl definiert, Doppelzählungen können leicht vermieden werden und man erhält die richtigen Koeffizienten der Diagramme. Um jedoch auch höhere Feldterme zu berücksichtigen, ist der Übergang zur Dreiteilchen-Green-Funktion, die immer wohl definierte Eingänge und Ausgänge besitzt, vorteilhaft.

Dafür formuliert man die exakte Bewegungsgleichung der kohärenten Amplitude p

$$\begin{aligned}
\frac{\partial p(t)}{\partial t} &= \frac{i}{\hbar\sqrt{V}} \langle [H(t), a_0(t)] \rangle = + \frac{i}{\hbar} \Delta_0 p(t) + \frac{i}{2\hbar} dE_0(t) \\
&- \underbrace{\frac{i}{2\hbar} w p(t)^2 p^*(t)}_{\text{GP}} - \underbrace{\frac{i}{\hbar} w p(t) \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}} n_k(t) - \frac{i}{2\hbar} w p^*(t) \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}} F_k(t)}_{\text{HFB}} \\
&- \underbrace{\frac{i}{2\hbar V} w \sum_{kq} \langle \tilde{a}_k^+(t) \tilde{a}_q(t) \tilde{a}_{\vec{k}-\vec{q}}(t) \rangle}_{\text{Korrel}} . \tag{5.1}
\end{aligned}$$

Da man sowohl in der Theorie der Kondensation als auch in der Theorie der Exzitonen in Halbleitern im Prinzip vom selben Hamilton-Operator ausgeht, ist die obige Gleichung (5.1) in beiden Feldern relevant. Dabei haben sich die unterschiedlichsten Namen für die einzelnen Terme der Gleichung je nach Wissenschaftsgebiet etabliert.

Der mit „GP“ gekennzeichnete Ausdruck ist der bekannte Gross-Pitajevski-Term, der auch als rechte Seite der nichtlinearen Schrödinger-Gleichung oder als hauptsächliche exzitonische Nichtlinearität bezeichnet wird. Wie schon die Namen andeuten, ist dieser Beitrag entscheidend für eine ganze Reihe faszinierender Interferenzexperimente mit atomaren Kondensaten und trägt bei nichtlinearen optischen Experimenten im exzitonischen Regime oft dominierend zum Signal bei. Auch die Möglichkeit exzitonischer Solitonen ist eng mit diesem Beitrag verbunden. Dieser Term ist rein kohärent und führt zu keinerlei Irreversibilität.

Es ergeben sich aber noch weitere kohärente Beiträge in der obigen Gleichung (5.1). Diese mit „HFB“ beschrifteten Terme beschreiben ein kohärentes Wechselspiel zwischen den verschiedenen Teilen der Einteilchendichtematrix. Sie koppeln die kohärente Amplitude p sowohl an die Besetzungszahlen n_k als auch an die Paarkorrelation F_k . Die Bezeichnung „HFB“ steht für „Hartree-Fock-Bogoljubov“ Näherung, da diese Terme auch durch ein Variationsprinzip abgeleitet werden können und die optimale Einteilchennäherung für die Kinetik in Bose-Systemen darstellen. Dieses Argument wird jedoch erst in Kapitel 7 vertieft. Aus der Perspektive des Elektron-Loch-Bildes betrachtet stellen diese Beiträge Korrelationen (Beiträge, die über Hartree-Fock hinausgehen) dar und werden deshalb oft als solche bezeichnet, obwohl der Begriff Korrelation aus der Sicht der Bosonentheorie nicht gerechtfertigt ist und dort für andere Terme gebraucht wird.

In den mit „Korrel“ bezeichneten Termen sind alle Effekte enthalten, die über

die bosonische mean-field Näherung hinausgehen und deshalb in dieser Arbeit als Korrelationen bezeichnet werden. Dazu gehören auch alle irreversiblen Prozesse wie zum Beispiel die Streuung. Diese Mittelwerte werden jetzt mit der Diagrammtechnik näherungsweise behandelt.

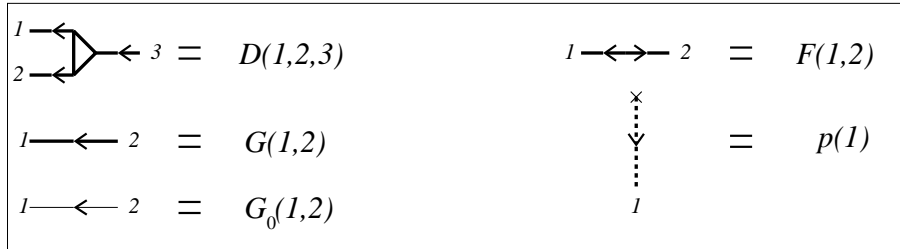


Abbildung 5.1: Diagrammatische Darstellung der elementaren Propagatoren

Der Drei-Punkt-Mittelwert auf der rechten Seite von Gleichung (5.1) (mit der Bezeichnung „Korrel“) kann durch die Drei-Punkt-Nichtgleichgewichts-Green-Funktion

$$D_{\vec{k}_1, \vec{k}_2}(1, 2, 3) = -\frac{i}{\hbar} \langle T_c \tilde{a}_{\vec{k}_1}(1) \tilde{a}_{\vec{k}_2}(2) \tilde{a}_{\vec{k}_1 + \vec{k}_2}^\dagger(3) \rangle \quad (5.2)$$

ausgedrückt werden, wenn die Zeiten gleichgesetzt werden und eine geeignete Anordnung auf der Kontur(+-) gewählt wird. Zusätzlich wird noch die gewöhnliche Einteilchen-Green-Funktion G (2.21) und die anomale Green-Funktion F (2.22) eingeführt, die mit den Komponenten der Einteilchendichtematrix n_k und F_k korrespondieren. Alle aufsummierten Diagramme mit einem Ausgang sind durch die Polarisation p gegeben. Die diagrammatische Darstellung dieser Propagatoren ist in Abbildung 5.1 angegeben. Die Vertizes (Lichtfeld und Boson-Boson) werden im Weiteren unverändert wie schon in Abb. 3.3 symbolisiert.

Um die unendliche Reihe von Diagrammen für alle diese Propagatoren zu behandeln, findet hier anfangs einen Standardweg der Diagrammtechnik Verwendung. Die Dyson-Gleichungen werden durch die Vernachlässigung von Vertexkorrekturen geschlossen und durch die Ersetzung der freien Propagatoren durch die selbstkonsistent berechneten (volle Linien) werden unendliche Teilreihen aufsummiert.

Durch die Möglichkeit, Exzitonen zu erzeugen und zu vernichten (offene Linien), sowie durch die anomalen Propagatoren ist die dann verbleibende Zahl von Diagrammen immer noch beträchtlich. Um diese weiter einzuschränken, wird eine zusätzliche Näherung verwendet:

- Die kohärenten Diagramme erster Ordnung in der X-X-Wechselwirkung, die die HFB-Näherung beschreiben, werden voll berücksichtigt.
- In der zweiten Ordnung wird der anomale Propagator F als weiterer Störparameter gewählt und nur die führende Ordnung in F betrachtet (was äquivalent zu einer Vernachlässigung aller Diagramme zweiter Ordnung ist, die F enthalten). Nur in der Gleichung des anomalen Propagators selbst werden die Beiträge erster Ordnung in F berücksichtigt, um effiziente Dämpfung zu ermöglichen. In dem Regime, in dem die Gleichungen später gelöst werden, erhält man tatsächlich kleine Anomalien F , so dass diese Näherung selbstkonsistent gerechtfertigt ist. Eine totale Vernachlässigung von anomalen Paarkorrelationen auch in den HFB-Diagrammen würde jedoch völlig falsche Ergebnisse liefern, wie noch gezeigt wird.

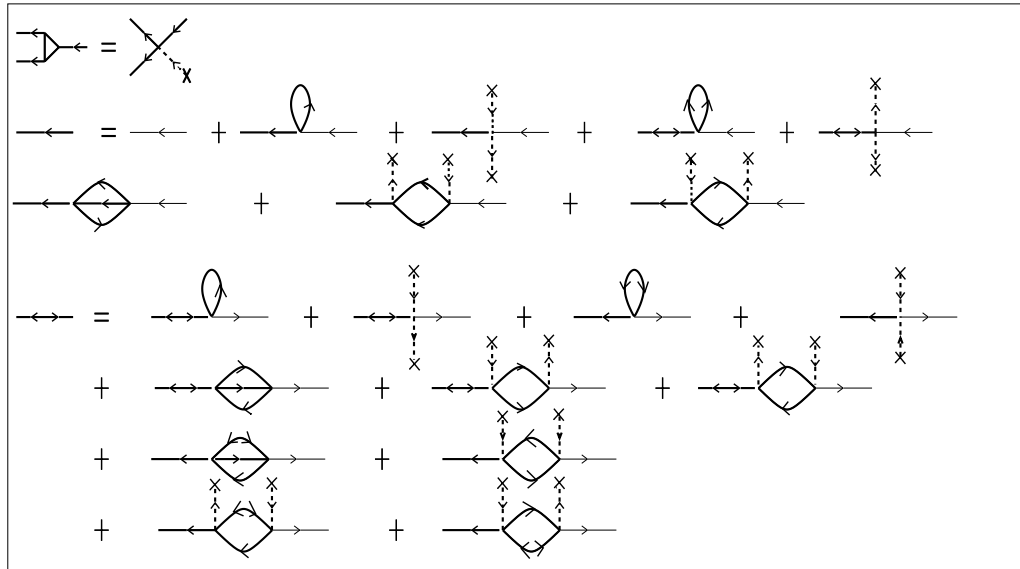


Abbildung 5.2: Berücksichtigte Diagramme in der Störungsreihe

Die diagrammatische Darstellung dieser Näherung ist in Abb. 5.2 abgebildet und wird im Folgenden erläutert.

In der Gleichung für die etwas ungewohnte Dreipunkt-Green-Funktion in der ersten Zeile von Abb. 5.2 erkennt man die Vernachlässigung der Vertexkorrekturen. An der Stelle des einfachen Punktes in der Mitte des Diagramms sitzt normalerweise der Vertex. Die Diagramme zweiter Ordnung

für die Dreipunkt-Green-Funktion, die man durch Ersetzen der einfachen Green-Funktionen durch Anomale erhält, wurden gemäß obigen Näherungsverfahrens vernachlässigt.

Die Dreipunkt-Green-Funktion beschreibt bei verschwindendem Lichtfeld die einzige scheinbare Inhomogenität in der Gleichung der kohärenten Amplitude p . Wie man in ihrem Diagramm jedoch sieht, bleibt sie proportional zu dieser Amplitude. Daraus folgt die Homogenität der Gleichung für p und der Ordnungsparameter kann nicht von alleine bei einer vollständig inkohärenten Anfangsbedingung anspringen ($p(t=0) = 0 \rightarrow p(t) = 0$ für alle $t > 0$). Das Phänomen ist dabei völlig unabhängig vom gewählten Vertex und daher in beliebiger Ordnung exakt. Diese Eigenschaft der Diagrammtechnik ist schon länger in der Lasertheorie bekannt und wird später ausführlicher unter einem anderen Blickwinkel diskutiert werden. Für das jetzige Problem, in dem die kohärente Amplitude anfangs durch das Lichtfeld angeregt wird, spielt sie keine bedeutende Rolle.

Bei den Diagrammen für die normale Green-Funktion G sieht man die Aufteilung in die kohärenten HFB-Diagramme erster Ordnung (zweite Zeile von Abb. 5.2) und verschiedene Stoßdiagramme (dritte Zeile). Dabei beschreibt das erste Stoßdiagramm die Streuung an inkohärenten Exzitonen und die beiden weiteren die Streuung an den kohärenten Exzitonen.

Die Diagramme für den anomalen Propagator F sind genauso angeordnet, nur dass sich die Anzahl der Stoßdiagramme durch die Mitnahme der ersten Ordnung in F deutlich erhöht.

5.2 Die kinetischen Gleichungen

Um von der zweizeitigen Diagrammtechnik auf die Bewegungsgleichungen für die einzeitige Einteilchendichtematrix zu kommen, werden die Methoden aus Abschnitt 2.4.2 über Diagrammtechnik umgesetzt. Ausgehend von den dort entwickelten Konzepten werden in diesem Abschnitt jedoch auch die individuelleren Aspekte wie die konkrete Form des verallgemeinerten Kadanoff-Baym-Ansatzes und die Approximation der retardierten Green-Funktion ausformuliert. Abschließend erfolgt die Diskussion der resultierenden kinetischen Bewegungsgleichungen.

Der Übergang zur einzeitigen Kinetik erfordert zwei miteinander konsistente Ansätze: den verallgemeinerten Kadanoff-Baym-Ansatz und die Bestimmung der retardierten Green-Funktion.

Für Ersteren wird in diesem Kapitel der Zusammenhang zwischen Zweizeit-Propagatoren und Einzeit-Propagatoren verwendet, wie er für freie Bosonen gültig ist. In dieser Näherung ergibt sich

$$G_k^<(t_1, t_2) = i\hbar \left(G_k^r(t_1, t_2) G_k^<(t_2, t_2) - G_k^<(t_1, t_1) G_k^a(t_1, t_2) \right) ; \quad (5.3)$$

$$F_k^<(t_1, t_2) = i\hbar \left(G_k^r(t_1, t_2) F_k^<(t_2, t_2) + F_k^<(t_1, t_1) G_k^{a*}(t_1, t_2) \right) . \quad (5.4)$$

Dabei sind G^r und G^a die „normale“ retardierte und avancierte Green-Funktion. Unter der Annahme der freien Propagation verschwinden die entsprechenden retardierten und avancierten anomalen Propagatoren.

Für die retardierte (avancierte) Green-Funktion ist die einzige mit diesem Ansatz konsistente Näherung ebenfalls die freie Entwicklung

$$G_k^r(t, t') = -\frac{i}{\hbar} \theta(t - t') \left\langle \left[\tilde{a}_{\vec{k}}^-(t), \tilde{a}_{\vec{k}}^+(t') \right]_- \right\rangle = -\frac{i}{\hbar} \theta(t - t') e^{-\frac{i}{\hbar} e_{\vec{k}}(t-t')} . \quad (5.5)$$

Beide Näherungen beschreiben die „spektralen“ Aspekte der Kinetik und führen in obiger Form zu Streuung zwischen Zuständen des freien Bose-Gases.

Nach Gleichsetzen der Zeiten auf der rechten Seite der Dyson-Gleichungen (2.23) und (2.24) und Verwendung des verallgemeinerten Kadanoff-Baym-Ansatzes (5.4) und (5.5) erhält man quantenkinetische Gleichungen für alle Komponenten der Einteilchendichtematrix. Diese enthalten noch explizite Gedächtnisintegrale als Stoßterme, vom schematischen Typ

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} n_{\vec{k}} &= -w^2 \int_{-i\infty}^t dt' \cos \left((e_{\vec{k}} + e_{\vec{k}'} - e_{\vec{k}+\vec{q}} - e_{\vec{k}-\vec{q}})(t - t') \right) \\ &\times n_{\vec{k}}(t') n_{\vec{k}'}(t') (1 + n_{\vec{k}+\vec{q}}(t')) (1 + n_{\vec{k}-\vec{q}}(t')) + \dots \end{aligned} \quad (5.6)$$

Als weitere Näherung wird in diesem Kapitel wieder der Markov-Limes eingeführt, in dem die Einteilchendichtematrix als langsam variierend angenommen wird und vor das Integral gezogen werden kann. Um sinnvolle Gleichungen zu erhalten, muss jedoch darauf geachtet werden, dass nicht $F_{\vec{k}}(t)$ langsam variiert, sondern nur $e^{-2\frac{i}{\hbar}\Delta_{\vec{k}}t} F_{\vec{k}}(t)$, und nur dieser Ausdruck vor das Integral gezogen werden darf. Dabei ist $\Delta_{\vec{k}} = \hbar\omega - e_{\vec{k}}$ wieder die k -abhängige Verstimmung. Der Markov-Limes führt zur exakten Erhaltung der kinetischen Energien $e_{\vec{k}}$ bei den Stoßprozessen.

Die Terme in den resultierenden Gleichungen entsprechen eins zu eins den in Abb. 5.2 dargestellten Diagrammen. Es ergeben sich wieder kohärente HFB-Terme und Stoßterme.

Die drei kohärenten Gleichungen für p , n_k und F_k sind durch die Gleichungen (5.7), (5.8) und (5.9) gegeben, die bekannten HFB-Gleichungen. Die erste Gleichung wurde schon diskutiert, der Dreipunkt-Mittelwert ist jetzt durch einen Stoßterm ersetzt. Die Gleichungen für n_k und F_k beschreiben die kohärente Rückkopplung dieser Größen an die Polarisation p .

$$\begin{aligned} \frac{\partial \mathbf{p}}{\partial \mathbf{t}} &= \frac{i}{\hbar} \Delta_0 p - \frac{i}{2\hbar} w p^2 p^* - \frac{i}{\hbar} w p \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}} n_k - \frac{i}{2\hbar} w p^* \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}} F_k \\ &+ \frac{i}{2\hbar} dE_0(t) + \left. \frac{\partial p}{\partial t} \right|_{col}; \end{aligned} \quad (5.7)$$

$$\frac{\partial \mathbf{n}_k}{\partial \mathbf{t}} = \frac{w}{\hbar} \Im \left[\left(p^2 + \frac{1}{V} \sum_{\vec{q}} F_q \right) F_k^* \right] + \left. \frac{\partial n_k}{\partial t} \right|_{col}; \quad (5.8)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \mathbf{F}_k}{\partial \mathbf{t}} &= \frac{2i\Delta_k}{\hbar} F_k - \frac{i}{2\hbar} w p^2 (1 + 2n_k) - \frac{2i}{\hbar} w F_k |p|^2 \\ &- \frac{i}{2\hbar} w (1 + 2n_k) \frac{1}{V} \sum_{\vec{q}} F_q - \frac{2i}{\hbar} w F_k \frac{1}{V} \sum_{\vec{q}} n_q + \left. \frac{\partial F_k}{\partial t} \right|_{col}. \end{aligned} \quad (5.9)$$

Der Stoßterm für die Polarisation ist durch

$$\begin{aligned} \left. \frac{\partial \mathbf{p}}{\partial \mathbf{t}} \right|_{col} &= \frac{\pi w^2}{2\hbar V^2} \sum_{\vec{k}, \vec{q}} \left(n_q n_{|\vec{k}-\vec{q}|} (1 + n_k) p - (1 + n_q) (1 + n_{|\vec{k}-\vec{q}|}) n_k p \right) \\ &\times \delta \left(e_{|\vec{k}-\vec{q}|} + e_q - e_k - e_0 \right) \end{aligned} \quad (5.10)$$

gegeben. Hier zerfällt die Polarisation nur in der Anwesenheit endlicher Exzitonenbesetzungszahlen. Ein Zerfall durch Streuung an ausschließlich kohärenten Exzitonen existiert in keiner Ordnung der Diagrammtechnik. Das Auftreten von energierhaltenden Deltafunktionen ist ein charakteristisches Merkmal des Markov-Limes.

Der Stoßterm der Besetzungszahlen ist

$$\begin{aligned} \left. \frac{\partial \mathbf{n}_k}{\partial \mathbf{t}} \right|_{col} &= \frac{\pi w^2}{\hbar V^2} \sum_{\vec{k}_1, \vec{q}} \left(n_{|\vec{k}+\vec{q}|} n_{|\vec{k}_1-\vec{q}|} (1 + n_{k_1}) (1 + n_k) - n_k n_{k_1} (1 + n_{|\vec{k}+\vec{q}|}) (1 + n_{|\vec{k}_1-\vec{q}|}) \right) \\ &\times \delta \left(e_{|\vec{k}+\vec{q}|} + e_{|\vec{k}_1-\vec{q}|} - e_k - e_{k_1} \right) \\ &+ \frac{2\pi w^2}{\hbar V} \sum_{\vec{q}} \left(n_{|\vec{k}+\vec{q}|} |p|^2 (1 + n_q) (1 + n_k) - (1 + n_{|\vec{k}+\vec{q}|}) |p|^2 n_q n_k \right) \delta \left(e_{|\vec{k}+\vec{q}|} + e_0 - e_q - e_k \right) \\ &+ \frac{\pi w^2}{\hbar V} \sum_{\vec{q}} \left(n_{|\vec{k}-\vec{q}|} n_q (1 + n_k) |p|^2 - (1 + n_{|\vec{k}-\vec{q}|}) (1 + n_q) n_k |p|^2 \right) \delta \left(e_{|\vec{k}-\vec{q}|} + e_q - e_k - e_0 \right). \end{aligned} \quad (5.11)$$

Dabei streuen die Exzitonen an inkohärenten Exziton-Besetzungszahlen und an Kohärenz (Polarisationsstreuung).

Die Stoßterme der anomalen Funktionen F_K sind durch einen längeren Ausdruck gegeben:

$$\begin{aligned}
\left. \frac{\partial \mathbf{F}_k}{\partial t} \right|_{\text{col}} &= \frac{\pi w^2}{\hbar V^2} \sum_{\vec{k}_1, \vec{q}} \left(n_{|\vec{k}+\vec{q}|} n_{|\vec{k}_1-\vec{q}|} (1+n_{k_1}) F_k - (1+n_{|\vec{k}+\vec{q}|}) (1+n_{|\vec{k}_1-\vec{q}|}) n_{k_1} F_k \right) \\
&\quad \times \delta \left(e_{|\vec{k}+\vec{q}|} + e_{|\vec{k}_1-\vec{q}|} - e_{k_1} - e_k \right) \tag{5.12} \\
&+ \frac{2\pi w^2}{\hbar V} \sum_{\vec{q}} \left(n_{|\vec{k}+\vec{q}|} |p|^2 (1+n_q) F_k - (1+n_{|\vec{k}+\vec{q}|}) |p|^2 n_q F_k \right) \delta \left(e_{|\vec{k}+\vec{q}|} + e_0 - e_k - e_q \right) \\
&+ \frac{\pi w^2}{\hbar V} \sum_{\vec{q}} \left(n_{|\vec{k}-\vec{q}|} n_q |p|^2 F_k - |p|^2 F_k (1+n_{|\vec{k}-\vec{q}|}) (1+n_q) \right) \delta \left(e_{|\vec{k}-\vec{q}|} + e_q - e_0 - e_k \right) \\
&+ \frac{2\pi w^2}{\hbar V} \sum_{\vec{q}} \left(p^2 (1+n_{|\vec{k}+\vec{q}|}) n_k n_q - n_{|\vec{k}+\vec{q}|} p^2 (1+n_q) (1+n_k) \right) \delta \left(e_{|\vec{k}+\vec{q}|} + e_0 - e_q - e_k \right) \\
&+ \frac{2\pi w^2}{\hbar V^2} \sum_{\vec{k}_1, \vec{q}} \left(n_k n_{k_1} (1+n_{|\vec{k}_1-\vec{q}|}) F_{|\vec{k}+\vec{q}|} - (1+n_{\vec{k}}) (1+n_{\vec{k}_1}) n_{|\vec{k}_1-\vec{q}|} F_{|\vec{k}+\vec{q}|} \right) \\
&\quad \times \delta \left(e_{|\vec{k}+\vec{q}|} + e_{|\vec{k}_1-\vec{q}|} - e_{k_1} - e_k \right) \\
&+ \frac{2\pi w^2}{\hbar V} \sum_{\vec{q}} \left(n_k n_{|\vec{q}-\vec{k}|} |p|^2 F_q - |p|^2 F_q (1+n_{|\vec{q}-\vec{k}|}) (1+n_k) \right) \delta \left(e_{|\vec{q}-\vec{k}|} + e_k - e_0 - e_q \right) \\
&+ \frac{2\pi w^2}{\hbar V} \sum_{\vec{q}} \left(F_q (1+n_{|\vec{k}-\vec{q}|}) n_k |p|^2 - (1+n_k) |p|^2 n_{|\vec{k}-\vec{q}|} F_q \right) \delta \left(e_0 + e_k - e_q - e_{|\vec{k}-\vec{q}|} \right),
\end{aligned}$$

Trotz der Länge dieses Ausdrucks ist seine Grundstruktur wieder einfach. Es handelt sich um die typische Form einer normalen bosonischen Boltzmann-Gleichung, nur dass die Besetzungszahlen auch durch andere Mittelwerte wie p und F_k ersetzt werden können.

5.3 Numerische Lösung und Diskussion

Vernachlässigt man Propagation, so werden mit dem kohärenten Lichtfeld immer nur Exzitonen bei $\vec{k} = 0$ erzeugt. Aufgrund der Impulserhaltung können zwei Exzitonen mit $\vec{k} = 0$ nur nach $-\vec{q}$ und $+\vec{q}$ gestreut werden (siehe Abb. 5.3).

Bei den Diskussionen der X-X-Streuung in der Boson-Näherung tritt immer wieder das folgende Argument auf: Dieser Streumechanismus sei durch die

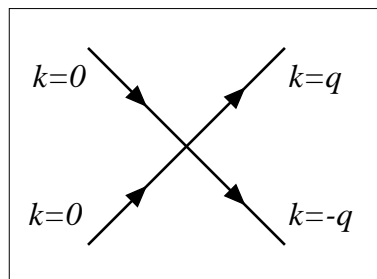


Abbildung 5.3: elementarer Streuprozess

Energieerhaltung offensichtlich verboten und deshalb könnten die Exzitonen nicht streuen und auch nicht thermalisieren.

In der Tat erfüllen auch alle abgeleiteten Stoßterme diese Eigenschaft und verschwinden in einem rein kohärenten System ($p \neq 0$, $F_k = 0$ und $n_k = 0$). Das impliziert die folgende Frage: Kann denn eine kohärente Amplitude durch X-X-Wechselwirkung wirklich nicht zerfallen?

Obige Argumente lassen jedoch außer Acht, dass wechselwirkende Exzitonen außer ihrer kinetischen Energie auch noch potentielle Energie tragen, die in ihrer Kohärenz gespeichert ist. Die mean-field Terme erhalten nur die Summe beider Energien und ermöglichen deshalb die Erzeugung von Exzitonenbesetzungen bei endlichem \vec{k} .

Der vollständige Satz der Gleichungen kann daher die Entstehung von Irreversibilität in rein kohärent erzeugten Systemen wechselwirkender Exzitonen erklären: In einem ersten Schritt wird die kohärente Amplitude p vom Laser angeregt. Diese Amplitude erzeugt anomale Korrelationen F_k via Gleichung (5.9) und diese wiederum erzeugen Exzitonenbesetzungen n_k über Gleichung (5.8). Bis zu diesem Punkt ist das System reversibel, doch nun können die Streuprozesse einsetzen und führen zu irreversibler Dephasierung und Thermalisierung. Diese Hierarchie von Prozessen ist in Abb. 5.4 skizziert.

Dabei ist ein wesentlicher Aspekt, dass jedes Einzelglied für den Gesamtprozess unverzichtbar ist, dass also die Vernachlässigung anomaler Korrelationen zu seiner Unterbrechung und damit zu einer unphysikalischen Kohärenzerhaltung geführt hätte.

Die Effizienz der Hierarchie zur Erzeugung thermalisierter Exzitonen zeigt sich in den numerischen Lösungen der kinetischen Gleichungen für ein Ein-Puls Experiment. Hierfür werden die Materialparameter des exzitonisch geprägten direkten II-VI-Halbleiters ZnSe gewählt. Der auf das Exziton gestimmte 700fs-Laserpuls erzeugt eine rein kohärente Dichte von

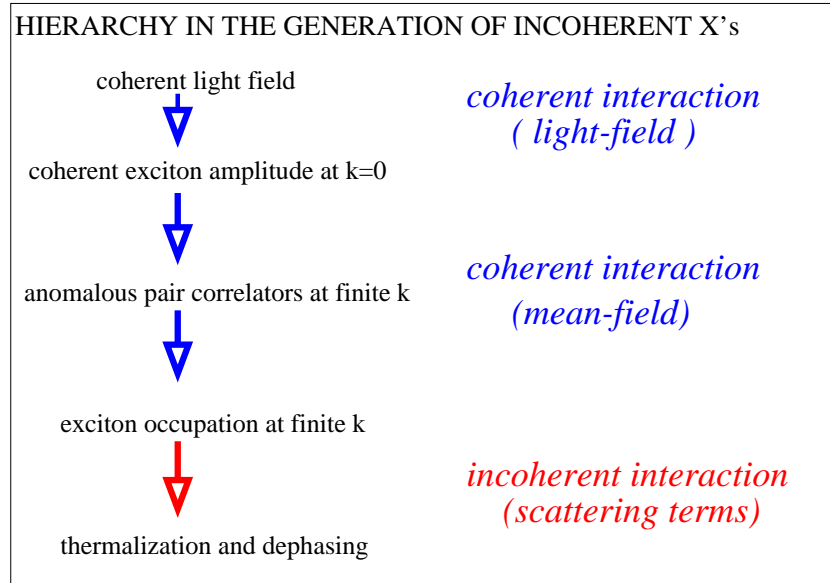


Abbildung 5.4: Hierarchie der Prozesse, die zur Entwicklung von der kohärenten Erzeugung bis zum inkohärenten Gleichgewicht beitragen.

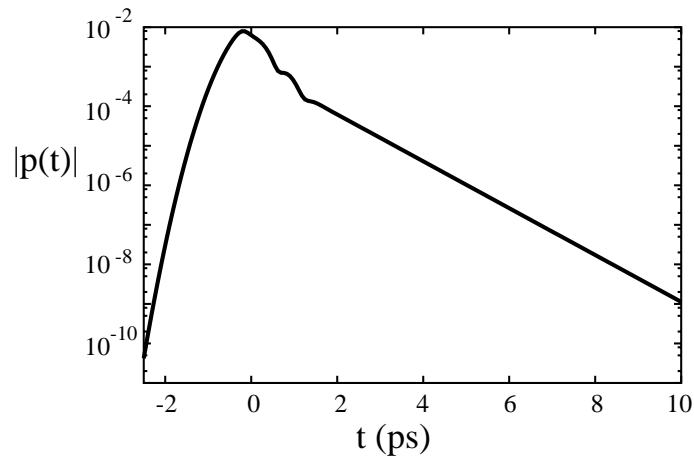


Abbildung 5.5: Zerfall der Polarisation $|p|$ mit der Zeit t .

$n = 1.8 \times 10^{17} \frac{1}{\text{cm}^3}$, ($na_B^3 \approx 0.01$), (weitere numerischen Details in [65]).

In Abb. 5.5 sieht man eine zerfallende Polarisation p , wie es auch intuitiv zu erwarten ist. Die schwachen Schwebungen, die dem Zerfall überlagert sind, sind die typischen kohärenten Oszillationen zwischen den Dichtanteilen $|p|^2$

und $\frac{1}{V} \sum_{\vec{k}} n_k$, wie sie für die mean-field Gleichungen charakteristisch sind. In Abb. 5.6 wird die Erzeugung von Exzitonenzahlen bei endlichen Impulsen $\vec{k} \neq 0$ und deren rasche Thermalisierung gezeigt. Der Endzustand ist eine perfekte Bose-Verteilung mit einem chemischen Potential μ und einer Temperatur T .

Die anomalen Funktionen F_k (Abb. 5.7) sind anfangs um das Intensitätsmaximum des Lichtpulses verteilt, zerfallen dann aber zweimal schneller als die Polarisation. Dieser schnelle Zerfall zu sehr kleinen Größen ist eine selbstkonsistente Rechtfertigung für die Vernachlässigung ihres Beitrags bei den auf

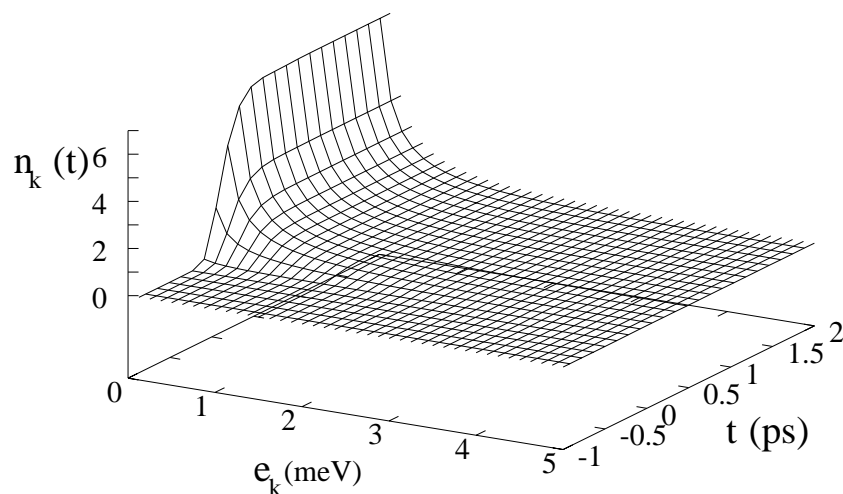


Abbildung 5.6: Thermalisierung der Verteilungsfunktion n_k der Exzitonen in der Zeit t .

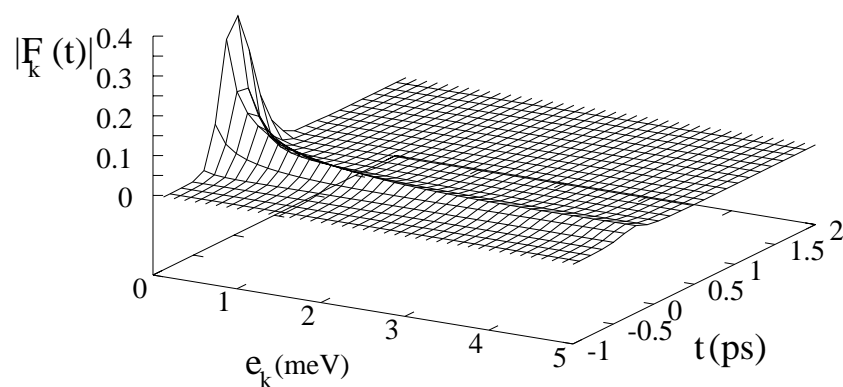


Abbildung 5.7: Zerfall der Paarfunktionen $|F_k|$ mit der Zeit t .

späteren Zeitskalen dominierenden Stoßprozessen.

Zusammenfassend kann man sagen, dass die abgeleiteten kinetischen Gleichungen ein plausibles Szenario für die Kinetik der Einteilchendichtematrix und dem Entstehen von Inkohärenz gemäß der erläuterten Hierarchie liefern.

Im Folgenden wird die Annäherung an eine mögliche Bose-Einstein-Kondensation untersucht, indem die Anregungsintensität und damit die Dichte erhöht wird. Obwohl dadurch auch die Temperatur zunimmt (durch die Terme der potentiellen Energie proportional zum Quadrat der Intensität) kann man sich dadurch im Phasendiagramm in Richtung der Kondensationsschwelle bewegen.

Die Resultate dieser Annäherung sind in Abb. 5.8 aufgetragen, wo alle Größen so skaliert sind, dass sie im selben Graph veranschaulicht werden können.

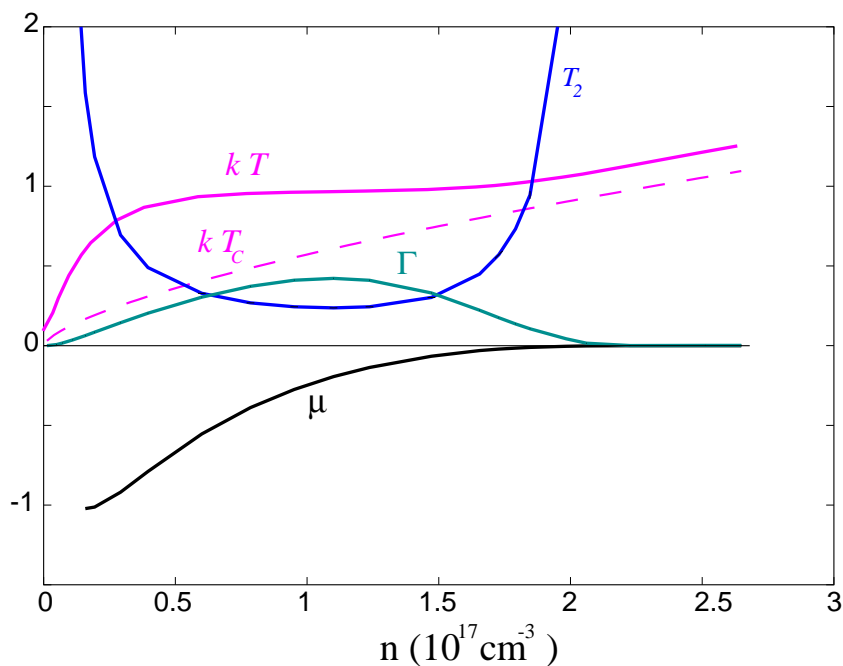


Abbildung 5.8: Die Abhängigkeit verschiedener Größen von der Anregungsdichte n zeigt die kritische Verlangsamung der Dephasierung in der Nähe von n_c .

Die gestrichelte Linie zeigt die Dichteabhängigkeit der kritischen Temperatur $T_c(n)$ für die BEC des idealen Gases. Im Vergleich dazu ist die Temperatur $T(n)$ aufgetragen, die asymptotisch von der Kinetik erreicht wird. Diese erhält man aus einer Anpassung der freien Bose-Verteilung an die asymptotische Verteilungsfunktion n_k . Offensichtlich findet eine Annäherung an die

kritischen Bedingungen statt, die Kondensation setzt jedoch nicht ein. Letzteres wird jedoch erst weiter unten diskutiert werden.

Der Wert des asymptotisch erreichten chemischen Potential $\mu(n)$ nähert sich dabei der Null von unten an, was ebenfalls die Entwicklung zu kritischen Bedingungen anzeigt.

Da der Polarisationszerfall stets exponentiell bleibt, läßt sich aus der numerischen Lösung der kinetischen Gleichungen wieder eine dichteabhängige Dephasierungszeit $T_2(n)$ bzw. eine dichteabhängige Streurrate $\Gamma(n) = 1/T_2(n)$ ablesen. Diese zeigen ein besonders interessantes Verhalten bei Annäherung an kritische Bedingungen. **Normalerweise erwartet man eine schnellere Dephasierung mit größerer Dichte in Form eines „excitation induced dephasing“, $\Gamma(n) = \gamma_0 n$. In der Tat reproduziert die Kinetik dieses Verhalten für kleine Dichten, aber mit größerer Dichte und der Zunahme der Entartung ergibt sich eine überraschende Reduzierung der Dephasierungsrate $\Gamma(n)$.**

Obwohl das System nicht wirklich kondensiert, haben die Gleichungen die Tendenz, die Polarisation (den Ordnungsparameter der Kondensation) zu erhalten. Dieses Verhalten kann als ein erster Vorläufer der BEC in Halbleitern interpretiert werden: die Kinetik spürt die Nähe der Kondensation, bei der ein endlicher Ordnungsparameter die erhaltene Gleichgewichtslösung ist. **Dies ist eine neue Form des „critical slowing down’s“, das schon bei anderen Phasenübergängen gefunden wurde.**

Der gefundene critical slowing down des Polarisationszerfalls ergibt eine neue Möglichkeit die BEC in Halbleitern zu untersuchen. **Diese „Anomale Dephasierung“ ist ein erstes experimentell beobachtbares Anzeichen für das Auftreten einer Kondensation.** Zusätzlich sollte der klare qualitative Charakter der Ergebnisse eine deutliche Unterscheidung von normalem Verhalten und dem Bereich um die kritische Dichte ermöglichen.

Abschließend bleibt die Frage, warum diese Markov-Kinetik keine wirkliche Kondensation beschreibt. Obwohl die Begründung hierfür im Laufe der Arbeit noch vertieft wird, soll das eigentliche Problem schon hier kurz andiskutiert werden.

Betrachtet man die Stoßterme der kinetischen Gleichungen, so enthalten sie Deltafunktionen, die eine Erhaltung der Freiteilchen-Energien e_k bei den Stoßprozessen erzwingen. Aufgrund der Natur der Boltzmann-Gleichung führt dies unmittelbar zu freien Bose-Verteilungen und damit oberhalb der kritischen Dichte n_c auch zu Kondensation [65].

Die Kondensatslösung der kohärenten Gleichungen ist jedoch nicht diese Kondensation freier Bosonen, die von den Stoßtermen erzwungen wird, sondern die davon unterschiedliche Kondensation des wechselwirkenden Bose-Gases.

Beide Lösungen sind also nicht kompatibel, was eine Kondensation in eine von beiden verhindert! Der einzige Ausweg des Systems ist daher seine Aufheizung (potentielle Energie wird in kinetische umgewandelt) und der stationäre nicht-kondensierte Zustand.

Es soll hier noch erwähnt werden, dass durch die geschickte Vernachlässigung mancher Terme (sowohl kohärente Beiträge als auch Stoßterme) in den abgeleiteten kinetischen Gleichungen das Kondensationsregime etwas besser beschrieben wird [71]. In dieser Näherung hat jedoch F_k keinerlei eigene Dynamik mehr und ist einfach durch die Werte der anderen Observablen gegeben. Für $n > n_c$ findet man eine stationäre Polarisierung, F_k hat aber einen endlichen Wert, der weder mit der Kondensation des freien Gases ($F_k = 0$) noch mit der des wechselwirkenden Gases (Kapitel 7) übereinstimmt. Unterhalb der kritischen Dichte zerfällt F_k nicht vollständig. Weiterhin sind die vernachlässigten kohärenten Terme für viele Effekte wichtig. Dieser phänomenologische Lösungsansatz bleibt also auch in vieler Hinsicht unbefriedigend.

Offensichtlich tritt in dieser Formulierung der Kinetik ein Widerspruch für $n \geq n_c$ auf, so dass hier eine neue Theorie erforderlich ist, welche die inkohärente und kohärente Welt auch oberhalb der kritischen Dichte konsistent verbindet. Eine solche Theorie wird im letzten Kapitel dieser Arbeit noch entwickelt werden.

Kapitel 6

Markov-Kinetik der Exziton-Kondensation durch Streuung an Phononen

Schon im letzten Kapitel zeigten sich die Auswirkungen der Bose-Einstein-Kondensation (BEC) bei der Untersuchung zur Dephasierung bosonischer Exzitonen. Ein tieferes Verständnis der Exzitonendynamik erfordert daher die Untersuchung der BEC-Kinetik, was Gegenstand dieses Kapitels sein wird. Hierfür wird der Einfachheit halber die Kondensationskinetik von Exzitonen in Wechselwirkung mit einem Bad akustischer Phononen untersucht, was bei niederen Dichten und kleinen Energien der relevante Streumechanismus in vielen Halbleitern darstellt. Dieser Wechselwirkungsmechanismus hat den Vorteil, dass ausschließlich irreversible Streuterme auftreten, da die kohärenten Terme durch die Annahme des thermischen Bades eliminiert werden.

Die Bose-Einstein-Kondensation ist ein faszinierendes Phänomen in Bose-Systemen, bei dem unterhalb der kritischen Temperatur der energetisch niedrigste Zustand durch eine makroskopische Anzahl von Teilchen besetzt wird (siehe Abschnitt 2.2). Dieser Phasenübergang ist gleichzeitig mit dem Aufbau einer makroskopischen Phase aus einem inkohärenten und damit eher klassischen System verbunden. Diese Phase genügt einer nichtlinearen Schrödinger-Gleichung, die eine Beobachtung von Interferenzphänomenen auf makroskopischer Skala erlaubt. Die Ähnlichkeit zur fundamentalen Schrödinger-Gleichung und die spontane Erzeugung von Kohärenz machen die mit der BEC verbundenen makroskopischen Quantenphänomene so interessant für die Wissenschaft und sogar für die breite Öffentlichkeit [72].

Mit der Superfluidität in flüssigem ^4He war schon lange ein Phänomen gefunden, dass auf eine BEC zurückgeführt wurde [73, 74]. Die Eigenschaften

einer dichten Flüssigkeit mit den dadurch bedingten starken effektiven Wechselwirkungen mit Hilfe der Vielteilchentheorie zu erklären, erwies sich jedoch als äußerst schwierig. Daher brachte in vieler Hinsicht erst das Jahr 1995 den Durchbruch bei der Beobachtung der BEC. In diesem Jahr fanden verschiedene Arbeitsgruppen die BEC von Alkali-Atomen, welche in einer atomaren Falle auf sehr niedrige Temperaturen abgekühlt worden waren [75, 76, 77]. Der Vorteil gegenüber superfluidem ^4He liegt in der schwachen Wechselwirkung der Atome untereinander: Durch die große Verdünnung und der daraus resultierenden schwachen effektiven Kopplung sind die kondensierten atomaren Gase theoretischen Beschreibungen leichter zugänglich als die hochkorrelierten superfluiden Quantenflüssigkeiten und die typischen BEC-Phänomene sind auch wesentlich besser zu beobachten. Nach diesen ersten Realisierungen in Alkali-Atomen folgten schnell weitere faszinierende experimentelle Erfolge wie die BEC der riesigen Menge von etwa 10^9 -Wasserstoffatomen [78], die Interferenzen zweier Kondensate [79], die Realisierung eines kohärenten atomischen Laserstrahls über eine Zeitdauer von 100ms in München [80] und die Beobachtung von quantisierten superfluiden Wirbeln [81, 82].

Auch in exzitonischen Systemen, die in dieser Arbeit im Mittelpunkt stehen, gibt es in den letzten Jahren erneute Hinweise auf langanhaltende kohärente Phänomene, stark entartete Bose-Gase und eine Art von Superfluidität bei hohen Exzitonendichten, bei der auch starke Interferenzen auftreten [83, 84, 85, 86, 87, 88]. Es ist jedoch im Gegensatz zu den atomaren Systemen noch umstritten, ob es sich hierbei tatsächlich um eine BEC, nur um Vorläufer-Phänomene oder gar um völlig „normale“ Phänomene handelt. Dabei erregt vor allem der anomale Transport (Superfluidität?) in [83, 84, 86] großes Interesse und führt zu den unterschiedlichsten Interpretationen (siehe die theoretischen Arbeiten [89, 90] und die unüberschaubare Menge der mit diesen verbundenen „Comments“ und „Replies“, sowie experimentelle Versuche an der selben Konfiguration [91]).

Die experimentelle Unsicherheit liegt zumindest zum Teil sicher daran, dass Exzitonen durch ihre begrenzte Lebensdauer nur zu einer transitorischen Kondensation in der Lage sind, die relativ schwer zu beobachten ist. Dies wiederum stellt die Kinetik der Kondensation stärker in den Mittelpunkt als dies in den langlebigen Gleichgewichtskondensationen von Atomen der Fall ist. Während jedoch die theoretischen Beschreibungen der Gleichgewichtszustände sehr weit entwickelt sind, ist die Kinetik der BEC theoretisch noch Neuland. Aus diesem Grund ist die Entwicklung einer Theorie der Kondensationskinetik wesentlich, um die Experimente zur exzitonischen BEC richtig zu deuten.

In diesem Kapitel wird die Kondensationskinetik von Exzitonen in Wechsel-

wirkung mit longitudinalen, akustischen Phononen (LA-Phononen) betrachtet. Dabei ist das Kapitel in zwei Teile gegliedert: Zunächst wird der Aufbau der Kondensation aus einem inkohärenten System untersucht, was eigentlich das typische Phänomen der Kondensation darstellt. Nach der Ableitung kinetischer Gleichungen werden einige fundamentale Fragen gestellt: Wie verhält sich die zeitliche Entwicklung des Kondensates? Von welchen Parametern hängen die Zeitskalen der Kondensation ab? Kann z.B. im Halbleiter Cu_2O eine Kondensation innerhalb der begrenzten Lebenszeit der Exzitonen stattfinden? Den Inhalt dieses Abschnitts findet man, verbunden mit zahlreichen zusätzlichen illustrativen Beispielen und mathematischen Beweisen in [13] und unter einer etwas anderen Perspektive in [92].

Im zweiten Abschnitt wird ein für Halbleiter typisches Phänomen untersucht: Was passiert, wenn in einem Halbleiter eine kohärente Amplitude durch den Laser so erzeugt wird, dass kritische Bedingungen erreicht werden? Damit ähnelt die Aufgabenstellung dem vorausgehenden Kapitel, nur dass nun durch Phononen dephasiert und die Kondensation tatsächlich erreicht wird. Die einfachere Struktur der Phononenstreuterme ermöglicht zusätzlich analytische Aussagen ohne großen Aufwand. Den Inhalt dieses Abschnittes findet man in [93], seine Kombination mit dem vorherigen Kapitel in [94].

6.1 Kinetik des Aufbaus der Kondensation

6.1.1 Ableitung markovscher Ratengleichungen im Kondensationsregime

In diesem Abschnitt wird gezeigt, wie die BEC in einem Ratengleichungsansatz beschrieben werden kann, bei dem nur Besetzungszahlen eine Rolle spielen (man bezeichnet solche Gleichungen oft auch als Bilanzgleichungen oder Boltzmann-Gleichungen). Bei diesem Zugang sind einige feine Punkte unbedingt zu beachten. In der Tat führten frühere Ansätze, die Kondensation mit Ratengleichungen zu beschreiben, zu überhaupt keiner Kondensation [59, 95], da wichtige Aspekte für den empfindlichen Kondensationsmechanismus übersehen wurden. Im Folgenden wird deshalb besonders auf diese Feinheiten eingegangen.

Die Betrachtung beschränkt sich dabei nur auf die Dynamik der Verteilungsfunktionen der nichtkondensierten Exzitonen $n_k = \langle \tilde{a}_k^+ \tilde{a}_k \rangle$ und das Kondensat $\nu_0 = n_0/V$. (Diese Notation weicht von [13] ab, um eine konsistente Notation in der Doktorarbeit zu ermöglichen. In Ref. [13] werden die Besetzungszahlen mit f_k bezeichnet und dann gilt $n_0 = f_0/V$.)

Ausgangspunkt der Ableitung ist der Wechselwirkungsoperator mit den aku-

stischen longitudinalen Phononen, Gleichung (2.16),

$$H_{XP} = \sum_{\vec{k}} e_{\vec{k}} a_{\vec{k}}^+ a_{\vec{k}} + \sum_{\vec{q}} \hbar \omega_{\vec{q}} b_{\vec{q}}^+ b_{\vec{q}} + \frac{1}{\sqrt{V}} \sum_{\vec{k}, \vec{q}} g_{\vec{q}} a_{\vec{k}+\vec{q}}^+ a_{\vec{k}} (b_{\vec{q}} + b_{-\vec{q}}^+) .$$

Die Bewegungsgleichungsmethode (Abschnitt 2.4.1) für die Besetzungszahlen n_k soll nun mit diesem Hamilton-Operator angewandt werden. Dabei werden im Gegensatz zu Abschnitt 2.4.1 alle Komponenten der Einteilchendichtematrix außer den Besetzungszahlen vernachlässigt. Die Phononen werden als thermisches Bad angenähert, was bei translationsinvarianten Geometrien mit einer kleinen Anzahl angeregter Nichtgleichgewichtsphononen gerechtfertigt ist. Jegliche Gedächtniseffekte werden wieder in einem Markov-Limes vernachlässigt.

Das Ergebnis ist die bekannte Boltzmann-Gleichung für Bosonen, wie man sie intuitiv auch ohne jegliche vielteilchentheoretische Herleitung formuliert hätte:

$$\frac{\partial}{\partial t} n_{\vec{k}} = -\frac{1}{V} \sum_{\vec{k}'} \left\{ W_{\vec{k}\vec{k}'} n_{\vec{k}} (1 + n_{\vec{k}'}) - (\vec{k} \rightleftharpoons \vec{k}') \right\} . \quad (6.1)$$

Dabei ist die Übergangsrate durch Fermis goldene Regel gegeben:

$$\begin{aligned} W_{\vec{k}\vec{k}'} &= \frac{2\pi G^2}{\hbar} |e_{\vec{k}} - e_{\vec{k}'}| \left[\mathcal{N}_{\vec{k}'-\vec{k}} \delta(e_{\vec{k}} - e_{\vec{k}'} + \hbar \omega_{\vec{k}'-\vec{k}}) \right. \\ &\quad \left. + (1 + \mathcal{N}_{\vec{k}-\vec{k}'}) \delta(e_{\vec{k}} - e_{\vec{k}'} - \hbar \omega_{\vec{k}-\vec{k}'}) \right] . \end{aligned} \quad (6.2)$$

Die thermische Phononenverteilung $N_{\vec{q}}$ ist durch die Bose-Verteilung mit dem chemischen Potential $\mu = 0$ und dem Temperaturfaktor $\beta = 1/kT$ gegeben

$$\mathcal{N}_{\vec{q}} = \frac{1}{e^{\beta \hbar \omega_{\vec{q}}} - 1} . \quad (6.3)$$

Unter Ausnutzung der Symmetrie $\omega_{\vec{k}-\vec{k}'} = \omega_{\vec{k}'-\vec{k}}$ und der Eigenschaft der Deltafunktion (Ersetzen von $\hbar \omega_{\vec{q}}$ durch Kombinationen von $e_{\vec{k}}$ und $e_{\vec{k}'}$), läßt sich die Streurrate auch kompakter als

$$W_{\vec{k}\vec{k}'} = \frac{2\pi G^2}{\hbar} \frac{|e_{\vec{k}} - e_{\vec{k}'}|}{|e^{\beta(e_{\vec{k}'} - e_{\vec{k}})} - 1|} \delta(|e_{\vec{k}} - e_{\vec{k}'}| - \hbar \omega_{\vec{k}-\vec{k}'}) \quad (6.4)$$

schreiben.

Die Deltafunktionen sind im diskreten Spektrum nicht definiert, so dass nun der thermodynamische Limes ($N \rightarrow \infty$, $V \rightarrow \infty$, $\rho = \text{const.}$) durchgeführt

werden muss. Mögliche Korrekturen zu diesem Limes werden im nächsten Abschnitt erläutert.

Wichtig bei diesem Grenzwert ist, dass nur nach einer Separierung des Kondensates die Summen in der diskreten Rategleichung (6.1) gegen Integrale konvergieren, genau wie bei den Summen der Gleichgewichtstheorie. Leider wurde dieser Sachverhalt in der Literatur häufig übersehen, was zu einer Unterdrückung jeglicher Kondensation führte.

Nach der Separierung kann der thermodynamische Limes problemlos durchgeführt werden und man erhält

$$\frac{\partial}{\partial t} n_{\vec{k}}(t) = - \int \frac{d^3 k'}{(2\pi)^3} \left\{ W_{\vec{k}\vec{k}'} n_{\vec{k}}(t) (1 + n_{\vec{k}'}(t)) - (\vec{k} \rightleftharpoons \vec{k}') \right\} \quad (6.5)$$

$$- [W_{\vec{k}0} n_{\vec{k}}(t) - W_{0\vec{k}} (1 + n_{\vec{k}}(t))] \nu_0(t) ,$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \nu_0(t) = \int \frac{d^3 k'}{(2\pi)^3} [W_{\vec{k}'0} n_{\vec{k}'}(t) - W_{0\vec{k}'} (1 + n_{\vec{k}'}(t))] \nu_0(t) \quad . \quad (6.6)$$

Bei der Kopplung der Verteilungsfunktion des Nichtkondensats an die Dichte des Kondensats (zweite Zeile von Gleichung (6.5)) tritt eine zusätzliche Komplikation auf: Die Streuraten in den kondensierten Zustand $W_{\vec{k}0}$ sind als Deltafunktionen nur unter dem Integral definiert, müssen also unbedingt regularisiert (verbreitert) werden. Andererseits ist bekannt, dass die Boltzmann-Gleichung unter anderem deshalb zur Gleichgewichtslösung führt, da die sogenannte „detaillierte Bilanz“

$$W_{\vec{k}\vec{k}'} = W_{\vec{k}'\vec{k}} e^{\beta(e_{\vec{k}} - e_{\vec{k}'})} \quad (6.7)$$

exakt eingehalten wird. Verbreitert man jedoch die Streuraten, die man als direktes Ergebnis aus Fermis goldener Regel erhält (6.2), so verliert man die detaillierte Bilanz, da die phononischen Energien nicht mehr zugunsten der exzitonischen eliminiert werden können. Die Lösung aus diesem Dilemma ist die Verbreiterung **nach** der expliziten Anwendung der Deltafunktion, also erst in der kompakten Streuraten (6.4). Dies kann entweder als eine phänomenologisch an der richtigen Stelle eingebaute Korrektur durch Lebenszeiteffekte der Exzitonen oder als eine endliche Verbreiterung des phononischen Spektrums begründet werden [13]. Im Folgenden wird angenommen, dass es sich um Lebenszeiteffekte handelt.

Als verbreiterte Übergangsrate erhält man dann

$$W_{\vec{k}\vec{k}'} = \frac{2G^2}{\hbar} \frac{|e_{\vec{k}} - e_{\vec{k}'}|}{|e^{\beta(e_{\vec{k}'} - e_{\vec{k}})} - 1| (|e_{\vec{k}} - e_{\vec{k}'}| - \hbar\omega_{\vec{k}-\vec{k}'})^2 + \gamma^2} \gamma \quad , \quad (6.8)$$

was bei endlicher, positiver Verbreiterung γ eine wohldefinierte Funktion darstellt.

Die Ratengleichungen des Kondensates im thermodynamischen Limes, Gl. (6.6), ist offensichtlich homogen. Dies bedeutet, dass zur Bildung einer Kondensation zumindest ein (allerdings beliebig kleiner) Kondensationskeim vorhanden sein muss.

Dies ist ähnlich wie in der Gleichgewichtstheorie, in der nach Bogoljubov der Phasenübergang als Instabilität definiert ist. Nur beim Einbringen einer infinitesimal kleinen Symmetriebrechung in den Hamilton-Operator reagiert das System mit einem makroskopisch die Symmetrie brechenden Phasenübergang. Wie bereits erwähnt, führt man in dieser Methode einen symmetriebrechenden Beitrag zum Hamilton-Operator $\lambda H'$ ein, berechnet das Ergebnis im thermodynamischen Limes und vollzieht dann den Grenzwert $\lambda \rightarrow 0$.

In unserem Modell können verschiedene Faktoren diesen anfänglichen Kondensationskeim erzeugen. In den folgenden beiden Rechnungen übernimmt die Anfangsbedingung die Rolle der Symmetriebrechung: Am Anfang der Simulation wird ein kleines Kondensat eingesetzt. Später werden alternativ Volumeneffekte behandelt. Wie in der Gleichgewichtstheorie ist dann das asymptotische Ergebnis von der Größe dieser Symmetriebrechung unabhängig.

6.1.2 Numerische Lösung und Diskussion der Ergebnisse

Im Folgenden werden die Ratengleichungen (6.5) und (6.6) für das Beispiel von Cu_2O gelöst, was zu einem vertieften Verständnis der Kondensationskinetik führt. Dieser Halbleiter stellt ein Referenzmaterial zur Beobachtung von bosonischen Effekten in Exzitonsystemen dar (für Übersichtsartikel zu speziellen Eigenschaften der Exzitonen in Cu_2O , siehe [96], und zur Exzitonen-Kondensation in Cu_2O , siehe [97, 98]). Dies liegt vor allem an der großen Bindungsenergie seiner Exzitonen (Tabelle 2.1) und deren langen Lebenszeiten, die für Paraexzitonen im Mikrosekunden und für Orthoexzitonen zumindest bei hunderten Nanosekunden liegen. In diesem Kapitel gilt unsere Aufmerksamkeit den Paraexzitonen. Dabei werden die, in der Literatur augenblicklich für Cu_2O sehr kontrovers diskutierten, möglichen Hochdichte-Effekte wie die vorgeschlagene Auger-Rekombination [99, 100] oder Paraexziton-Orthoexziton-Umwandlung [101] nicht berücksichtigt.

Die Kombination aus Energie- und Impulserhaltung beschränkt die Kopplung an das Kondensat auf den Impulswert $k_0 = 2mc/\hbar$. Daher ist es nützlich diesen Impuls k_0 als inverse Längeneinheit, $e_0 = \hbar^2 k_0^2 / 2m$ als Energieeinheit und $t_0 = \hbar / k_0^3 G^2$ als Zeiteinheit zu wählen. Diese Einheiten entsprechen in Cu_2O : $t_0 = 57,8 \text{ ps}$, $k_0^{-1} = 4,76 \text{ nm}$ und $e_0 = 0,62 \text{ meV}$.

In den Rechnungen werden als Umgebungsparameter eine Phononen-Temperatur von $T = 0,21e_0 = 1,5\text{K}$ ($n_c = 5,65 \times 10^{-3}k_0^3 = 5,23 \times 10^{16}\text{cm}^{-3}$) (entsprechend typischen Kondensationsexperimenten [83]) und als Verbreiterung $\gamma = 0,1e_0 = 62\mu\text{eV}$ gewählt. Der Versuch einer realistischeren Abschätzung der Lebenszeiteffekte und damit der Verbreiterung γ wird erst am Ende dieses Abschnittes versucht.

Der Erfolg der hier abgeleiteten Ratengleichungen bei der Simulation der BEC-Kinetik wird aus Abb. 6.1 und Abb. 6.2 ersichtlich .

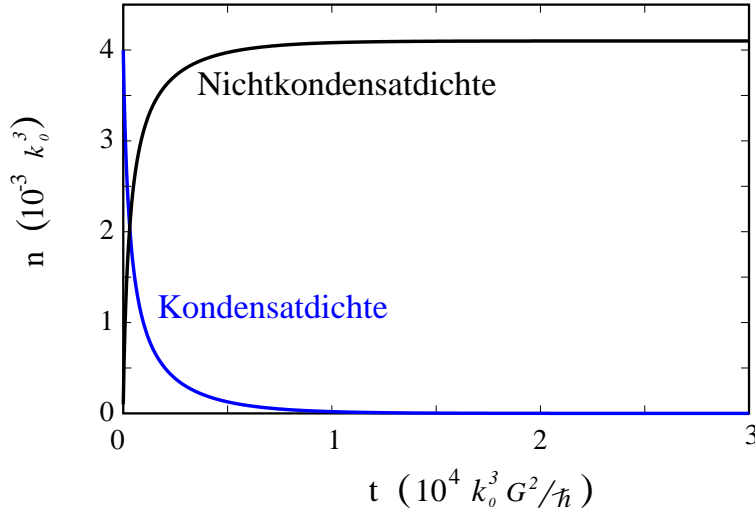


Abbildung 6.1: „Normale“ Kinetik für $n < n_c$: Eingezeichnet sind die Dichten des Kondensates und der nichtkondensierten Teilchen. Im Gleichgewicht sind alle Teilchen nichtkondensiert.

In Abb. 6.1 ist die Dichte unterkritisch gewählt ($n < n_c$) und alle Exzitonen sind als Anfangsbedingung ($t = 0$) im Zustand $k = 0$ kondensiert. Wie für unterkritische Bedingungen erwartet, zerfällt dieses Kondensat und verschwindet völlig. Gleichzeitig baut sich die Dichte der nichtkondensierten Exzitonen auf und erreicht asymptotisch die Gesamtdichte.

In Abb. 6.2 wird die Kinetik nun für eine überkritische Dichte ($n > n_c$) von $n = 9,4 \times 10^{-3}k_0^3$ gelöst, die fast vollständig im unkondensierten Zustand vorliegt. Dabei wird die Verteilungsfunktion der inkohärenten Exzitonen als Anfangsbedingung isotrop gewählt und gaussisch um $e = 0,7e_0$ mit einer Breite von $de = 0,3e_0$ verteilt. Nur etwa ein Prozent der Dichte wird als Kondensationskeim $n_0(0) = 10^{-4}k_0^3$ angenommen. Wieder wird der Gleichgewichtszustand von der Kinetik hergestellt: Das Kondensat wird zum Gleichgewichtswert aufgebaut, während die nichtkondensierte Dichte entsprechend

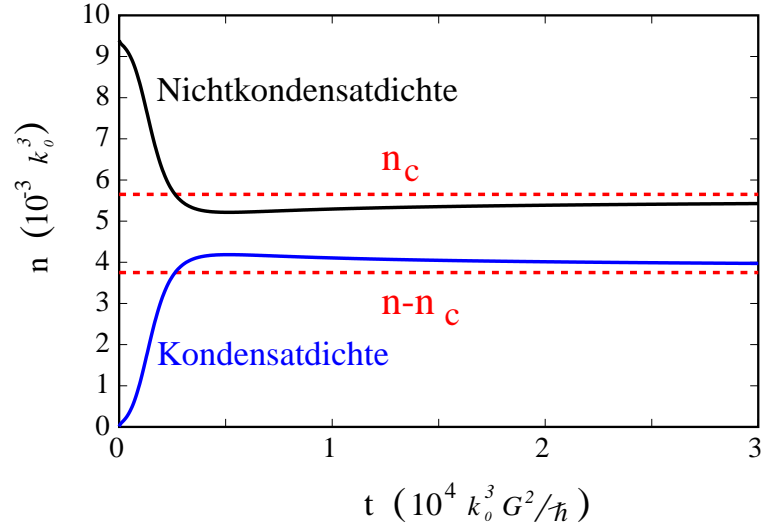


Abbildung 6.2: Kondensationskinetik für $n > n_c$: Eingezeichnet sind die Dichten des Kondensates und der nichtkondensierten Teilchen. Gestrichelt sind die zugehörigen Gleichgewichtswerte.

Exzitonen verliert.

Interessanterweise wird die Kondensation durch das Überschießen des Kondensates beschleunigt, das seinen Gleichgewichtswert $n - n_c$ von oben erreicht. Dadurch kann die Kondensation wesentlich schneller erfolgen, als von einer Analyse der Liapunov-Exponenten zu erwarten ist. Obwohl die asymptotische Annäherung an den stationären Wert sehr langsam ist (nicht-exponentiell), findet in diesem Szenario die Kondensation auf einer ganz anderen Zeitskala schon lange vor dem Eintreten in die Asymptotik statt. Ähnliche Szenarien wurden auch in der Kinetik von Lasern gefunden [102]. Das Phänomen des Überschießens könnte für eine mögliche Beobachtung der BEC in Halbleitern wichtig werden, da es dem Aufbau eines messbaren Kondensates gegenüber den Erwartungen aus der Linearisierung um den Gleichgewichtszustand (nur Annäherung gemäß eines Potenzgesetz [13]) deutlich beschleunigt.

Mit diesem langanhaltenden Kondensatüberschuss ist selbstverständlich eine Abweichung der Verteilungsfunktion n_k von der idealen Bose-Verteilung mit $\mu = 0$ verbunden. Diese Abweichung hat eine charakteristische Form, die tiefer begründet werden kann. Am deutlichsten wird der Unterschied zwischen der Gleichgewichtsverteilung und der Verteilungsfunktion, die am Ende der Rechnung zur Zeit t_f vorliegt, wenn nicht n_k sondern die bei $k = 0$

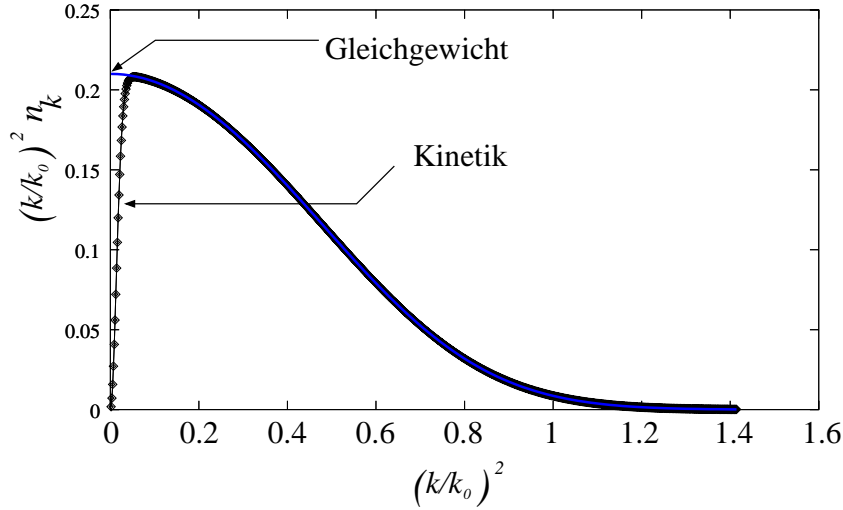


Abbildung 6.3: Die Verteilungsfunktion $e_k n_k(t_f)$ an der Endzeit der Rechnung t_f verglichen mit $e_k(1/(e^{\beta e_k} - 1))$.

endliche Kombination $e_k \times n_k$ aufgetragen wird. Dies ist in Abb. 6.3 gezeigt, in der ein signifikanter Unterschied der beiden Kurven bei kleinen k -Werten deutlich wird. Das numerische Ergebnis geht nicht gegen den endlichen Wert der Gleichgewichtslösung bei $k = 0$.

Das Fehlen von nichtkondensierten Teilchen bei kleinen k -Werten führt jedoch bedingt durch die Teilchenzahlerhaltung zu einer zu großen Anzahl von kondensierten Teilchen und ist damit eng mit dem Überschießen des Kondensates verbunden.

Man kann auch analytisch leicht zeigen, dass immer Teilchen bei kleinen k -Werten fehlen werden. Es gilt nämlich für den Stoßterm

$$\lim_{k \rightarrow 0} e_k \left. \frac{\partial}{\partial t} n_k(t) \right|_{coll} = 0 .$$

Ist nun zur Anfangszeit $\lim_{k \rightarrow 0} e_k n_k(0) = 0$, was für jede bei $k = 0$ nicht divergente Anfangsverteilung n_k der Fall ist, so verschwindet dieser Limes für alle Zeiten. Diese Regel über langanhaltende Abweichungen vom idealen Gleichgewicht ist nicht mit Besonderheiten des Phononenmodells verbunden, sondern gilt für eine große Klasse von möglichen Übergangsraten.

Die vorherigen Berechnungen haben gezeigt, dass bei Einführung eines Kondensationskeims als Anfangsbedingung die Kinetik für $n > n_c$ zu einer Kondensation führt. Unter Kondensationsbedingungen und ohne Kondensationskeim ist das System jedoch im instabilen Gleichgewicht und es ist auch ohne

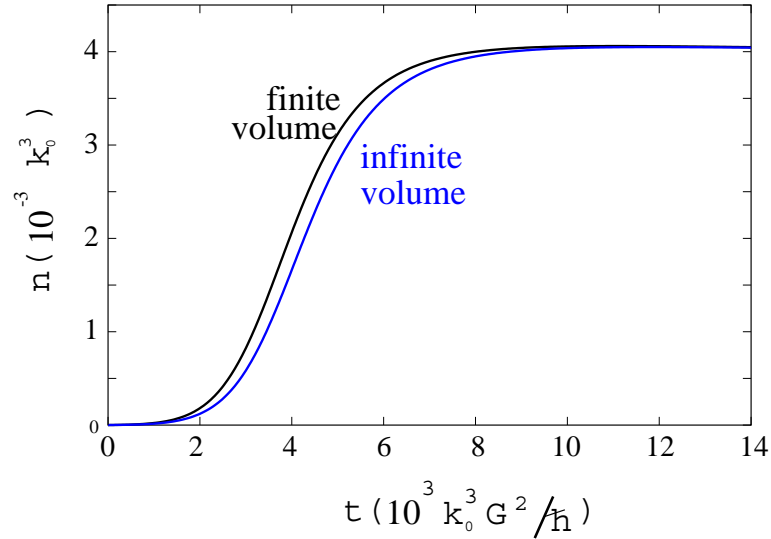


Abbildung 6.4: Kinetik mit endlichem Volumeneffekt ($V = 10^7 k_0^{-3}$) verglichen mit der Kinetik im thermodynamischen Limes mit Anfangsbedingung $n_0(0) = 10^{-7} k_0^3$.

spezielle Anfangsbedingung möglich, den initialen Auslöser zur Kondensation zu geben. Eine Möglichkeit ist die Theorie der Fluktuationen, die augenblicklich für atomare System zum Beispiel von Stoof ([103], Übersichtsartikel [104]) und Graham [105] ausgearbeitet wird. Dabei führt bildlich gesprochen das Zittern im instabilen Gleichgewicht zum Auslösen der Kondensation. Dieser Zugang soll hier jedoch nicht weiter vertieft werden.

Eine weitere Methode zum Starten der Kondensation sind Effekte, die vom endlichen Volumen herrühren. Obwohl der Integrallimes für unsere Gleichungen wichtig ist, da nur so einige Winkelintegrationen eliminiert werden können, behält man bei dieser Methode gewisse Terme proportional zu V^{-1} bei, gegenüber denen die Kinetik instabil ist. Bei diesem Zugang erzeugt die spontane Streuung in den Kondensatzustand, die im vollen thermodynamischen Limes verschwinden würde, den Kondensationskeim.

Beim Übergang zu den Ratengleichungen (6.5) und (6.6) im Kontinuum läßt man hierfür die Summen zum Integral gehen, aber die Terme $\propto V^{-1}$, die spontane Übergänge beschreiben, werden beibehalten.

Als Ergebnis dieses Verfahrens erhält man die Ratengleichungen

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} n_{\vec{k}} &= -\frac{1}{(2\pi)^3} \int d^3 k' \left\{ W_{\vec{k}\vec{k}'} n_{\vec{k}} (1 + n_{\vec{k}'}) - (\vec{k} \rightleftharpoons \vec{k}') \right\} \\ &\quad - \left[W_{\vec{k}0} n_{\vec{k}} \left(\nu_0 + \frac{1}{V} \right) - W_{0\vec{k}} (1 + n_{\vec{k}}) \nu_0 \right] , \\ \frac{\partial}{\partial t} \nu_0 &= \frac{1}{(2\pi)^3} \int d^3 k' \left[W_{\vec{k}'0} n_{\vec{k}'} \left(\nu_0 + \frac{1}{V} \right) - W_{0\vec{k}'} (1 + n_{\vec{k}'}) \nu_0 \right] , \end{aligned} \quad (6.9)$$

wobei die Terme $\propto 1/V$ die neuen Volumenkorrekturen darstellen. In Abb. 6.4 werden nun genau diese Gleichungen ohne Kondensationskeim in den Anfangsbedingungen ($n_0(0) = 0$) und einem Volumen von $V = 1\mu\text{m}^3$ gelöst. Das Ergebnis wird mit der Kinetik im thermodynamischen Limes verglichen, bei der jedoch die Anfangsbedingung des Kondensates durch $n_0(0) = V^{-1}$ gegeben ist. Man sieht, dass in der Version der Kinetik mit endlichem Volumeneffekt (6.9) das Kondensat von Null anspringt und sich die Ergebnisse der beiden Versionen im Weiteren kaum unterscheiden. Diese Rolle des Volumens ist dabei analog zu der Situation, die für Laser schon seit Längerem bekannt ist [106].

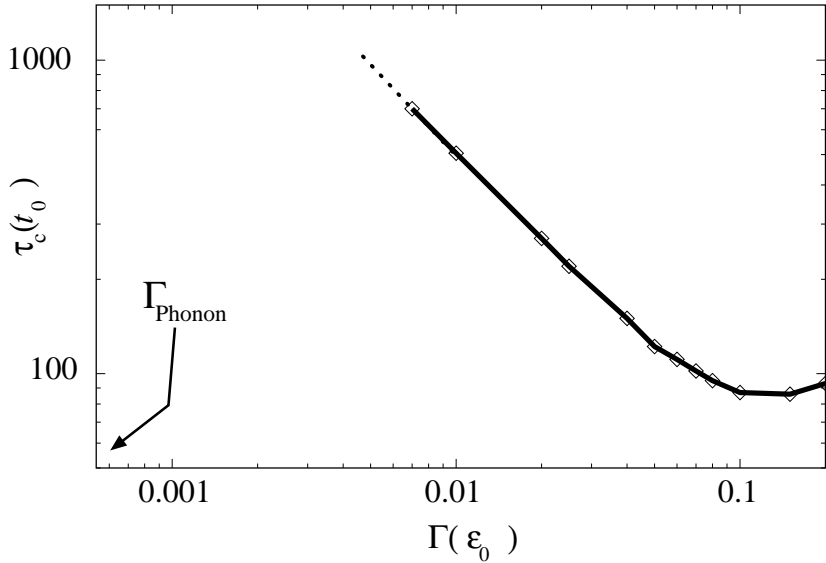


Abbildung 6.5: Abhängigkeit der Kondensationszeit von der Verbreiterung γ

Die Geschwindigkeit der Kondensation hängt stark von der Wahl der Verbreiterung γ ab: für $\gamma \rightarrow 0$ wird die Kondensation unendlich langsam, wird γ

allerdings zu groß, wird die Kinetik wieder ineffizient, da sich die verbreiterte Deltafunktion teilweise unterhalb des Spektrums ausdehnt. Definiert man als Kondensationszeit τ_c die Zeit, um die Hälfte des asymptotischen Kondensats zu erreichen, so erhält man für ihre Abhängigkeit von γ die Abb. 6.5. Diese Abhängigkeit läßt sich sehr gut für kleinere γ mit einem Potenzgesetz anpassen, was eine Extrapolation zu sehr kleinen Verbreiterungen ermöglicht, wie sie zum Beispiel durch die X-Phonon-Wechselwirkung selbst erzeugt werden. Für eine Voraussage der Exziton-Kondensationszeit in Cu_2O wird nun ein Probenvolumen von $V = 0,01\mu\text{m}^3$ und die erwähnte Verbreiterung durch X-Phonon-Streuung gewählt. Diese minimale Breite kann durch die inverse Lebensdauer

$$\frac{1}{\tau_{it}(k)} = \lim_{\gamma \rightarrow 0} \frac{1}{2\pi^3} \int d^3 k' W_{kk'} \quad (6.10)$$

und einer Mittelung der relevanten Zustände

$$\gamma = \frac{\hbar}{2} \left(\frac{1}{\tau_{it}(k_0)} + \frac{1}{\tau_{it}(0)} \right) \quad (6.11)$$

abgeschätzt werden, was zu $\gamma = 0,187\mu\text{eV} = 0,0003e_0$ führt. Ein Vergleich mit Abb. 6.5 liefert dann die Kondensationszeit $\tau_c = 1,954 \times 10^5 t_0 = 11,2\mu\text{s}$, die vergleichbar mit der Rekombinationszeit der Paraexzitonen in Cu_2O von etwa $10\mu\text{s}$ ist. Da aber eine untere Abschätzung der Verbreiterung gewählt wurde, kann man davon ausgehen, dass die weiteren Verbreiterungsmechanismen wie X-X-Streuung zu einer Kondensation in der Lebenszeit der Exzitonen führen sollten. **Im Gegensatz zu früheren Arbeiten ergibt sich also die Möglichkeit einer Kondensation innerhalb der Lebensdauer der Exzitonen.**

6.2 Optisch erzeugte Exzitonen

In diesem Abschnitt wird erneut das X-Phonon-System untersucht, nur dass nun am Anfang des Prozesses eine rein kohärente Amplitude durch den Laser über einen Dipolübergang erzeugt wird. Es wird sich zeigen, dass sich diese Polarisation und ihre Dephasierung in der Nähe der BEC wieder ungewöhnlich verhalten, wie man es auf Grund der Identität von Ordnungsparameter der BEC und Polarisation erwarten kann. Obwohl die Besonderheiten optischer Eigenschaften kondensierter Exzitonen schon gelegentlich für zeitabhängige Messungen untersucht wurden [107, 108], stellen dieser Abschnitt und die Ausführung im vorhergehenden Kapitel die erste systematische Untersuchung der Dephasierungskinetik in der Nähe der exzitonischen BEC dar. Im Falle der Streuung an Phononen ergeben sich jedoch im Gegensatz zur

X-X-Streuung in Kapitel 5 sowohl numerisch als auch analytisch einfache Gesetzmäßigkeiten, die sehr hilfreich bei der experimentellen Untersuchung der BEC in Halbleitern sein können.

Zum Hamilton-Operator H_{XP} des letzten Abschnittes kommt in diesem Abschnitt nur noch die Dipol-Kopplung an den kohärenten Laser H_{XE} hinzu und statt der Bewegungsgleichung für ν_0 interessiert in optischen Experimenten eher die Gleichung für die Polarisation p .

In der Bewegungsgleichung für die Polarisation p und die Besetzungszahlen n_k werden nun die selben Näherungen angewendet, die zu den Ratengleichungen (6.5) und (6.6) führten. Zusätzlich werden in der p -Gleichung die Hauptwertterme vernachlässigt, deren Einfluss auf den Absolutbetrag der Polarisation $|p|$ in diesem Problem gering ist. Man erhält auf diese Weise die Gleichungen

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} n_{\vec{k}} &= -\frac{1}{(2\pi)^3} \int d^3 k' \left\{ W_{\vec{k}\vec{k}'} n_{\vec{k}} (1 + n_{\vec{k}'}) - (\vec{k} \rightleftharpoons \vec{k}') \right\} \\ &\quad - [W_{\vec{k}0} n_{\vec{k}} - W_{0\vec{k}} (1 + n_{\vec{k}})] |p|^2 \end{aligned} \quad (6.12)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} p &= \frac{1}{16\pi^3} \int d^3 k' [W_{\vec{k}'0} n_{\vec{k}'} - W_{0\vec{k}'} (1 + n_{\vec{k}'})] p \\ &\quad + \frac{i}{2\hbar} dE_0(t) \quad . \end{aligned} \quad (6.13)$$

Die Übergangsraten und alle weiteren Größen sind dabei wie in den vorherigen Kapiteln definiert.

Im Folgenden werden die Konsequenzen der kinetischen Gleichungen (6.12) und (6.13) nach Laserpulsanregung verschiedener Intensität studiert.

Als ein Beispiel werden wieder ZnSe-Parameter bei der niedrigen Temperatur von $T = 0,5K$ und auf das Exziton gestimmte Laser-Pulse mit einer Länge von 2,5ns gewählt. Obwohl eine BEC im direkten II-VI-Halbleiter ZnSe aus verschiedenen Gründen erschwert ist, dient er mit seinen dipolerlaubten Exzitonen sehr gut zur Veranschaulichung unserer Konzepte.

In den Abbildungen 6.6 und 6.7 erkennt man eine Lichtpuls-induzierte Kondensation: Bei Anregungen unterhalb der kritischen Dichte (Abb. 6.6) zerfällt der Betrag der Polarisation $|p|$ exponentiell und verschwindet völlig, wie man es von den üblichen optischen Experimenten kennt. Bei stärkerer optischer Anregung zu überkritischen Dichten (Abb. 6.7) nähert sich die Polarisation nichtexponentiell ihrem endlichen stationären Wert, der durch das Anspringen der Kondensation endlich ist. Dieser Wert ist durch die Anregungsdichte n und die Phonontemperatur T in der Form $|p^0| = \sqrt{(n - n_c(T))}$ gegeben, wie von der Gleichgewichtstheorie des freien Bose-Gases vorausgesagt wird.

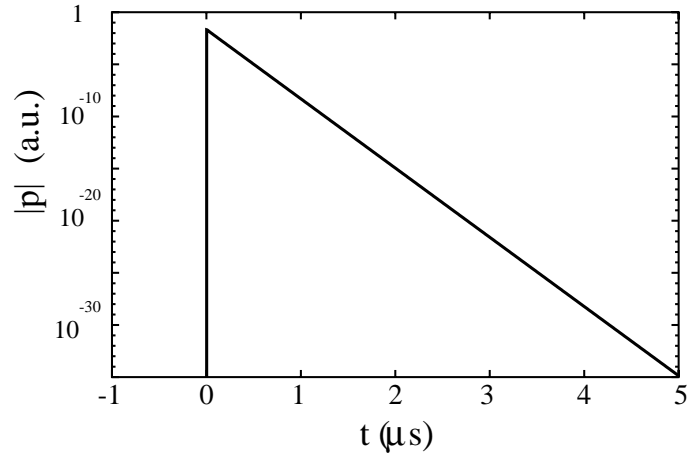


Abbildung 6.6: Vollständige exponentielle Dephasierung von $|p|$ für Anregungen mit $n < n_c$.

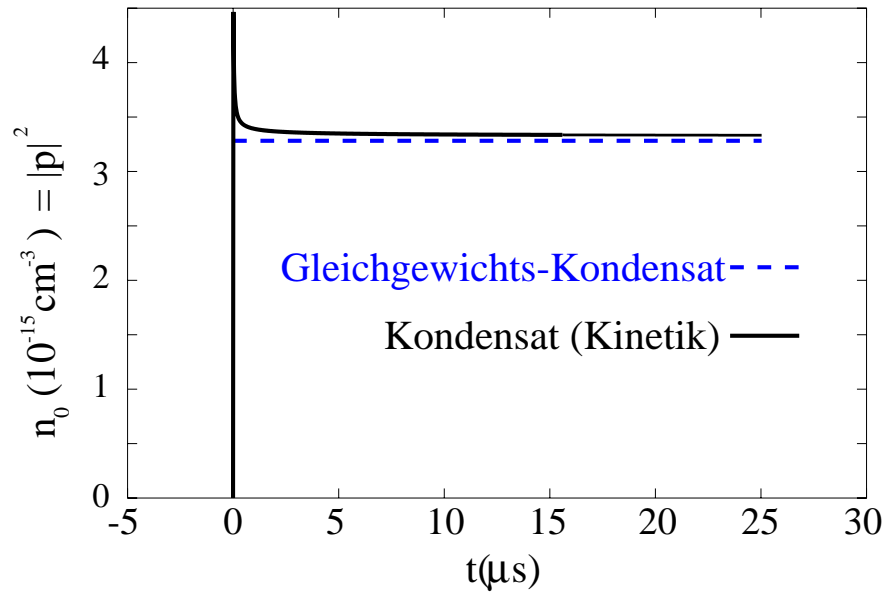


Abbildung 6.7: Nicht-exponentielle Annäherung von $|p|$ (durchgezogene Linie) zum endlichen Gleichgewichtswert der BEC, $|p^0| = \sqrt{n - n_c(T)}$ (gestrichelte Linie).

Die Lichtpuls induzierte Kondensation unterscheidet sich von der „normalen“ Kondensation des vorausgehenden Abschnitts allein darin, dass anfangs nur Kondensat im Halbleiter erzeugt wird und sich die unkondensierten Dich-

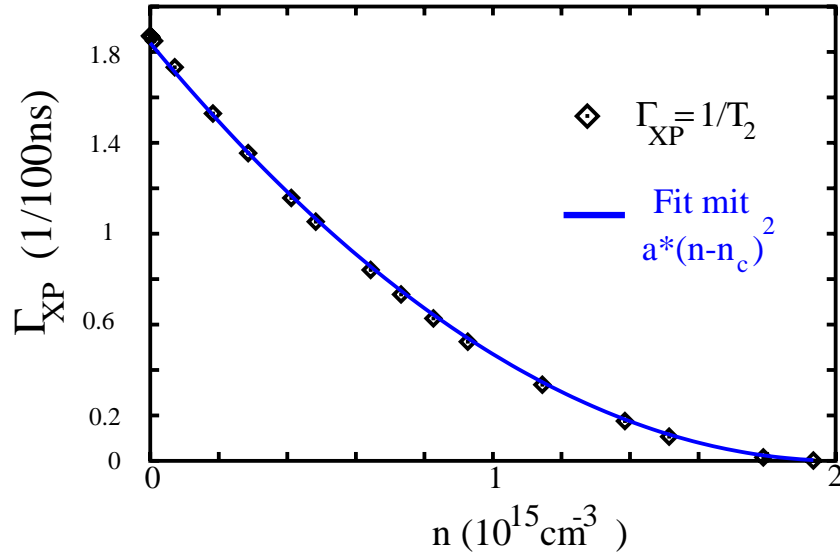


Abbildung 6.8: Dichteabhängigkeit der Dephasierungsrate Γ_{XP} für $n_c = 2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$.

ten erst aufbauen müssen. Der asymptotische Zustand ist aber ebenfalls der Gleichgewichtszustand der Kondensation.

Selbstverständlich wäre dieser Zustand in realen Experimenten nicht völlig stationär und die endliche Lebensdauer der Exzitonen würde eine zusätzliche Dephasierung erzeugen.

Über den Zerfall unterhalb der kritischen Dichte $n < n_c$ sind noch weitergehende und interessante Aussagen möglich. In diesem Regime erfolgt der Zerfall exponentiell, so dass sowohl eine Dephasierungszeit T_2 als auch eine Dephasierungsrate durch Phononstreuung $\Gamma_{XP} = 1/T_2$ definierbar sind. Besonders die Abhängigkeit der Dephasierungsrate von der Anregungsdichte n ist dabei interessant, wenn man sich der kritischen Dichte n_c für eine BEC von unten nähert.

Es wird im Allgemeinen angenommen, dass die Dephasierungsrate durch X-Phonon-Streuung näherungsweise unabhängig von der Dichte ist. In unserem Modell wird dieses Verhalten für moderate Dichten und hohe Temperaturen reproduziert, **jedoch erhält man eine beträchtliche Reduzierung der Dephasierungsrate in der Nähe der kritischen Dichte, wie in Abb. 6.8 gezeigt wird. Die Dichteabhängigkeit der Dephasierungsrate lässt sich extrem gut durch ein quadratisches Gesetz**

$$\Gamma_{XP} \propto (n - n_c)^2 \quad (6.14)$$

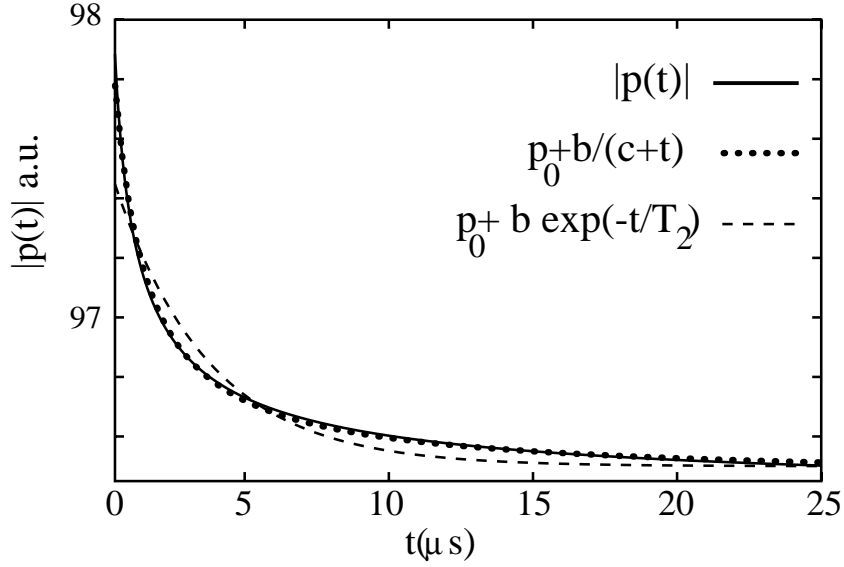


Abbildung 6.9: Asymptotische Kinetik von $|p(t)|$ für Anregungen mit $n > n_c$. Anpassung durch Potenzgesetz (punktierte Linie) und durch Exponentialgesetz (gestrichelte Linie).

anpassen, welches an der kritischen Dichte verschwindet.

Diese Anpassung ist ebenfalls in Abb. 6.8 gezeigt. Die charakteristische Verlangsamung der X-Phonon-Dephasierung $\Gamma_{XP}(n)$ kann als erstes experimentelles Indiz für eine Annäherung an eine BEC dienen. Dieses „critical slowing down“ der Dephasierung wurde auch für die X-X-Streuung in Kapitel 5 gefunden, doch im Fall der X-Phonon-Streuung ist die Gesetzmäßigkeit der Verlangsamung deutlich einfacher.

Das quadratische Gesetz (6.14) kann durch Linearisierung der kinetischen Gleichungen (6.13) und (6.12) um ihre stationären Lösungen $|p^0|$ und n_k^0 analytisch abgeleitet werden.

Unterhalb der kritischen Dichte erhält man für die Abweichung $\delta p(t)$ vom Gleichgewichtswert $p^0 = 0$ in linearer Näherung:

$$\frac{\partial}{\partial t} \delta p(t) = \frac{1}{2V} \sum_{\vec{k}'} [W_{\vec{k}'0} n_{\vec{k}'}^0 - W_{0\vec{k}'} (1 + n_{\vec{k}'}^0)] \delta p(t) . \quad (6.15)$$

Aus dem zeitunabhängigen Vorfaktor von $\delta p(t)$ läßt sich sofort schließen, dass der asymptotische Zerfall der Polarisation δp exponentiell ist und dass gilt

$$\Gamma_{XP} = \frac{1}{T_2} = \frac{1}{2V} (1 - e^{\beta\mu}) \sum_{\vec{k}} W_{\vec{k}0} \frac{1}{e^{\beta\epsilon_k} - e^{\beta\mu}} . \quad (6.16)$$

Weiterhin gilt $(1 - e^{\beta\mu}) \propto (n - n_c)^2$ als exakte thermodynamische Beziehung für die führenden Terme bei $\mu \approx 0$ und $n \approx n_c$. Dies erklärt das quadratische Gesetz für die Dichteabhängigkeit des Zerfalls [93].

Während die Polarisation $|p|$ für $n < n_c$ exponentiell verschwindet, erreicht sie ihren stationären Wert $|p^0| = \sqrt{n - n_c} \neq 0$, wenn die angeregte Dichte den kritischen Wert n_c übersteigt. Aber im scharfen Kontrast zum unterkritischen Verhalten ist diese Annäherung nicht mehr durch ein Exponentialgesetz gegeben. Statt dessen läßt sich die asymptotische Kinetik hervorragend durch ein einfaches Potenzgesetz

$$|p(t)| = |p^0| + a/(t + b), \quad (6.17)$$

anpassen, wie in Abb. 6.9 gezeigt wird. Dieses Potenzgesetz kann wieder bei einer experimentellen Beobachtung der BEC nützlich sein: Der langsame nichtexponentielle Zerfall der Polarisation könnte in Kohärenz-sensitiven Experimenten ein klares Kennzeichen der BEC geben, das selbst dann beobachtbar wäre, wenn das asymptotische Kondensat zu klein für eine zweifelsfreie Beobachtung ist.

Für die Asymptotik der BEC zeigte P. Gartner in [13], dass die Annäherung nichtexponentiell und wahrscheinlich als Potenzgesetz erfolgt. Der Grund hierfür liegt im kontinuierlichen lückenlosen Spektrum der Stoßoperatoren für überkritische Bedingungen. Dies erklärt die Dynamik der Polarisation für $n > n_c$ [93].

Kapitel 7

Quantenkinetik der Kondensation wechselwirkender Exzitonen im Phononen-Bad

Bereits bei der Untersuchung der Dephasierungskinetik durch die Exziton-Exziton-Streuung (Kapitel 5) wurde belegt, dass die kohärente Wechselwirkung der Exzitonen untereinander entscheidend die Dynamik beeinflusst. Bei der Kondensation der Exzitonen (Kapitel 6) wurden deren Anteil jedoch vernachlässigt und nur die inkohärenten Stöße berücksichtigt, die den extremen Niederdichte Limes dominieren.

Es ist allerdings aus der Gleichgewichtstheorie der Bose-Einstein-Kondensation bekannt, dass dieselben kohärenten Terme aus Kapitel 5 auch für die BEC essenziell sind, in der sie den gravierenden Unterschied der BEC des freien Bose-Gases und der sogenannten BEC des wechselwirkenden Bose-Gases verursachen. Nur mit der Berücksichtigung kohärenter Terme ist es möglich, die Gleichgewichtsexperimente aus der atomaren BEC und der Superfluidität zu klären [109, 110]. Dichteprofile in atomaren Fallen [110], Interferenzexperimente mit atomaren Kondensaten [110], Eigenschaften der Antwortfunktionen von superfluiden Flüssigkeiten und auch das gesamte Phänomen der Superfluidität [111, 112] sind nur einige Beispiele von Effekten, die nur in wechselwirkenden Bose-Gasen verstanden werden können. Deshalb müssen kohärente Wechselwirkungseffekte auch in eine kinetische Theorie der Kondensation unbedingt eingebaut werden.

Die Formulierung einer solchen Kinetik, die sowohl irreversible Stoßprozesse als auch die kohärenten Wechselwirkungseffekte selbst unter Kondensationsbedingungen konsistent enthält und damit den zeitlichen Aufbau der Kondensation des wechselwirkenden Bose-Gases in der Zeit beschreiben kann, erfordert eine ganze Reihe neuer Konzepte.

Hierfür wird in Abschnitt 7.1 die mean-field Beschreibung des wechselwirkenden Bose-Gases sowohl als Gleichgewichtsproblem als auch als Näherung für die kohärente zeitliche Kinetik analysiert.

In Abschnitt 7.2 wird dann dieses wechselwirkende Bose-Gas an ein thermisches Phononen-Bad angekoppelt. Eine nicht-markovsche Quantenkinetik wird abgeleitet und erläutert, bei der die kohärente X-X-Kinetik um phononische Stoßterme ergänzt wird. Diese Stoßterme haben die spektralen Veränderungen, die während der Kondensation des wechselwirkenden Bose-Gases ablaufen, exakt eingebaut, sind also in jedem Zeitpunkt in Einklang mit der kohärenten Dynamik. Dadurch erreicht das System den in Abschnitt 7.1 beschriebenen stark kohärenten Kondensationszustand und dessen zeitlicher Aufbau kann erstmals theoretisch untersucht werden.

Einen stark komprimierten Abriss der Quantenkinetik der BEC findet man auch in [113].

7.1 Die Hartree-Fock-Bogoljubov-Näherung für kondensierte Bosonen

In diesem Abschnitt wird ein System miteinander wechselwirkender Exzitonen in der kohärenten mean-field Näherung eingehend untersucht. Diese kohärenten Beiträge der X-X-Wechselwirkung wurden in Abschnitt 5.1 schon diagrammatisch abgeleitet und erläutert. Hier sollen sie jedoch unter einem anderen Blickwinkel beleuchtet werden. Dabei liegt der Fokus auf ihrer hamiltonischen Formulierung (erstmal formuliert für $T = 0$ von Girardeau und Arnowitt [114]) und ihrem Einfluss bei der Bose-Einstein-Kondensation.

Viele Aspekte der hamiltonischen Formulierung und des durch sie gegebenen großkanonischen Gleichgewichtsproblems sind schon sehr lange Gegenstand gründlicher Forschung [111, 115, 116] und erfreuen sich einer Wiederentdeckung durch das Aufkommen neuer Daten aus Kondensationsexperimenten [117, 118, 119, 120, 121]. In keiner dieser Veröffentlichungen werden jedoch die vollen Informationen (Hamilton-Operator, selbstkonsistente Gleichungen usw.) durch die Komponenten der Einteilchendichtematrix n_k , F_k und p ausgedrückt. Da dies aber für die Herleitung der Quantenkinetik gebraucht wird, bedarf es einer erneuten Ableitung und Diskussion der entsprechenden Terme. Dabei ermöglicht das des-Cloizeaux-Prinzip die benötigte Darstellung durch dynamische Variablen.

Zusätzlich wurden auch einige Aspekte der zeitabhängigen Anwendung der HFB-Näherung und ihrer stationären Lösungen in der Literatur nicht diskutiert, die in dieser Arbeit eine wichtige Rolle spielen und deshalb in diesem

Abschnitt erarbeitet werden.

Im Zusammenhang mit der Kondensation spricht man bei der kohärenten X-X-Wechselwirkung von der Hartree-Fock-Bogoljubov (HFB) Näherung, die verschiedenen Beiträge ähneln aber sehr denen, die in der Optik oft als Korrelationen bezeichnet werden, da man hierbei vom Elektron-Loch Bild ausgeht. In dieser Arbeit wird jedoch weiterhin die Sichtweise der Bosonen-Theorie eingenommen, in der stattdessen alle Terme, die über die HFB-Näherung hinausgehen, als Korrelationen bezeichnet werden.

Die tiefere Rechtfertigung und Definition der HFB-Näherung liegt in ihrer Eigenschaft als beste Einteilchennäherung für die X-X-Wechselwirkung im Sinne der thermodynamischen Variationsrechnung. Um die Möglichkeit einer Kondensation jedoch nicht von Anfang an auszuschließen, werden bei dieser auch anomale Mittelwerte berücksichtigt, was sie von der bekannteren Hartree-Fock-Näherung in einfachen Fermionen-Systemen unterscheidet.

Ihre hamiltonische Formulierung und das Gleichgewichtsproblem im Rahmen dieser Näherung findet man in Unterabschnitt 7.1.1, die zeitabhängige Formulierung wird in Unterabschnitt 7.1.2 analysiert.

7.1.1 Die selbstkonsistente HFB-Näherung im Gleichgewicht

In diesem Abschnitt wird die großkanonische Gleichgewichtstheorie der Boson-Boson-Wechselwirkung in der HFB-Näherung behandelt. Dabei wird kurz jeweils auf die Ableitung ihrer hamiltonischen Formulierung, auf die entsprechenden Quasiteilchen und die selbstkonsistenten Gleichungen, die das Gleichgewichtsproblem lösen, eingegangen.

Zur Herleitung des HFB-Hamilton-Operators geht man von der vollständigen X-X-Wechselwirkung aus

$$H_{XX} = \sum_{\vec{k}} (e_k - \mu) a_{\vec{k}}^{\dagger} a_{\vec{k}} + \frac{w}{4V} \sum_{\vec{k}\vec{k}'\vec{q}} a_{\vec{k}}^{\dagger} a_{\vec{k}'}^{\dagger} a_{\vec{k}'-\vec{q}} a_{\vec{k}+\vec{q}}. \quad (7.1)$$

Der allgemeinste translationsinvariante großkanonische Einteilchen-Hamilton-Operator hat dann die Form

$$H_t = \sum_{\vec{k}} E_k a_{\vec{k}}^{\dagger} a_{\vec{k}} + \frac{1}{2} \sum_{\vec{k}} \left(c_k^* a_{\vec{k}}^{\dagger} a_{-\vec{k}} + c_k a_{\vec{k}}^{\dagger} a_{-\vec{k}}^{\dagger} \right) + \lambda^* a_0 + \lambda a_0^{\dagger}. \quad (7.2)$$

Die noch unbekanntenen Koeffizienten E_k , c_k und λ dieses „Test“-Hamilton-Operators werden später so bestimmt, dass er die optimale Näherung zur

vollständigen X-X-Wechselwirkung darstellt. In seiner Form wird die Möglichkeit anomaler Mittelwerte in Bosonensystemen explizit berücksichtigt. Dieser Hamilton-Operator kann als quadratische Form mit linearer Verschiebung durch eine Bogoljubov-Transformation mit den bosonischen Quasiteilchenoperatoren $A_{\vec{k}}$ diagonalisiert werden

$$a_{\vec{k}} = u_k A_{\vec{k}} + v_k A_{-\vec{k}}^+ + \langle a_0 \rangle \delta_{\vec{k},0} . \quad (7.3)$$

Bis auf konstante Terme ergibt sich die in der Quasiteilchenbasis diagonale Form

$$H_t = \sum_{\vec{k}} \epsilon_k A_{\vec{k}}^+ A_{\vec{k}} ; \quad \epsilon_k = \sqrt{E_k^2 - |c_k|^2} . \quad (7.4)$$

Nicht mehr die Verteilungsfunktion der Ausgangsbosonen (Exzitonen), sondern die Quasiteilchenverteilungsfunktion ist nun durch eine Bose-Verteilung gegeben

$$\phi_k = \langle A_k^+ A_k \rangle = \frac{1}{e^{\beta \epsilon_k} - 1} . \quad (7.5)$$

Die Einteilchendichtematrix der Exzitonen lässt sich mit Hilfe der Bogoljubov-Transformationen (7.3) durch Quasiteilchenverteilungsfunktionen ausdrücken

$$\begin{aligned} n_k &= \frac{E_k}{\epsilon_k} \left(\phi_k + \frac{1}{2} \right) - \frac{1}{2} \\ F_k &= -\frac{c_k}{\epsilon_k} \left(\phi_k + \frac{1}{2} \right) \\ p &= \frac{1}{\sqrt{V}} \left(\frac{-\lambda E_0 + \lambda^* c_0}{\epsilon_0^2} \right) . \end{aligned} \quad (7.6)$$

Damit ist diese unter Zuhilfenahme von Gleichung 7.5 völlig durch die noch unbekanntenen Koeffizienten des HFB-Hamilton-Operators gegeben.

Weiterhin ergibt sich das großkanonische Potential als

$$\begin{aligned} \frac{1}{V} G &= \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}} \epsilon_k n_k - \mu n + \frac{w}{2} n^2 + \frac{w}{4} |p|^2 + \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}} |F_k|^2 - \frac{w}{2} |p|^4 \\ &+ \frac{1}{\beta V} \sum_{\vec{k}} (\phi_k \ln(\phi_k) - (1 + \phi_k) \ln(1 + \phi_k)) . \end{aligned} \quad (7.7)$$

Um den „Test“-Hamilton-Operator H_t zu optimieren, wird nun das thermodynamische Variationsprinzip [122, 123] verwendet. Gemäß diesem Prinzip müssen die Koeffizienten von H_t so gewählt werden, dass der Ausdruck

$$\langle H_{XX} - \mu N + \frac{1}{\beta} \ln(\rho_t) \rangle_t \quad (7.8)$$

minimal wird. Dabei ist $\rho_t = \frac{1}{Z} e^{-\beta(H_t - \mu N)}$ der statistische Operator zu H_t und die Mittelung erfolgt bezüglich ρ_t .

Das Funktional (7.8) wird exakt und absolut minimiert vom echten (unbekannten) statistischen Operator ρ . Die beste Einteilchennäherung ist dann der Einteilchen-Operator ρ_t (bzw. H_t), der das Funktional in der Unterklasse der Einteilchen-Operatoren minimiert.

Nach des-Cloizeaux [124] erhält man die Lösung dieser Extremalaufgabe durch die Ableitungen

$$E_k = \frac{\partial \langle H_{XX} \rangle_t}{\partial \langle a_k^+ a_{\bar{k}} \rangle_t}; \quad \frac{1}{2} c_k = \frac{\partial \langle H_{XX} \rangle_t}{\partial \langle a_k^+ a_{-\bar{k}}^+ \rangle_t}; \quad \lambda = \frac{\partial \langle H_{XX} \rangle_t}{\partial \langle a_0^+ \rangle_t}. \quad (7.9)$$

Für die Mittelung mit ρ_t gilt direkt das wicksche Theorem in der in Abschnitt 2.4.1 angegebenen Form. Dies zeigt sich sofort durch Einsetzen der Operatoren A_k und anschließender Anwendung des elementaren wickschen Theorems für die freien Quasiteilchen.

Durch das wicksche Theorem zerfällt $\langle H_{XX} \rangle_t$ in Zwei- und Ein-Operator-Mittelwerte

$$\begin{aligned} \langle H_{xx} \rangle_t &= \sum_{\bar{k}} (e_k - \mu) \langle a_k^+ a_k \rangle_t + \frac{w}{2V} \sum_{\bar{k}, \bar{k}'} \langle a_k^+ a_k \rangle_t \langle a_{k'}^+ a_{k'} \rangle_t \\ &+ \frac{w}{4V} \sum_{\bar{k}, \bar{k}'} \langle a_k^+ a_{-\bar{k}}^+ \rangle_t \langle a_{k'} a_{-\bar{k}'} \rangle_t - \frac{w}{2V} |\langle a_0 \rangle|^4 \end{aligned} \quad (7.10)$$

und die Ableitungen in Gl. (7.9) können leicht durchgeführt werden:

$$E_k = e_k - \mu + wn; \quad c_k = c = \frac{w}{2} \left(p^2 + \frac{1}{V} \sum_{\bar{k}'} F_{k'} \right); \quad \lambda = -\frac{w}{V} |p|^2 p. \quad (7.11)$$

Mit den Beziehungen (7.11) und der Definition

$$\tilde{\mu} = \mu - wn \quad (7.12)$$

erhält man den HFB-Hamilton-Operator H_{HFB}

$$\begin{aligned} H_{HFB} &= \sum_{\bar{k}} (e_k - \tilde{\mu}) a_k^+ a_{\bar{k}} + \frac{1}{2} \sum_{\bar{k}} (c a_k^+ a_{-\bar{k}}^+ + h.c.) \\ &- \sqrt{V} (w |p|^2 p a_0^+ + h.c.). \end{aligned} \quad (7.13)$$

Dabei stellt sich c als impulsunabhängig heraus und liefert ein Maß für die Anomalie des Systems, n ist die Gesamtdichte der Exzitonen.

Phänomenologisch erhält man den Hamilton-Operator 7.13 auch aus der vollen Wechselwirkung mit der Verwendung eines Rezeptes vom Typ

$$\tilde{a}^+ \tilde{a}^+ \tilde{a} \tilde{a} = 2 \langle \tilde{a}^+ \tilde{a} \rangle \tilde{a}^+ \tilde{a} + \langle \tilde{a}^+ \tilde{a}^+ \rangle \tilde{a} \tilde{a} + \tilde{a}^+ \tilde{a}^+ \langle \tilde{a} \tilde{a} \rangle .$$

Dabei ist aber wieder der konsequente Übergang zu den reduzierten Operatoren \tilde{a} notwendig zum Erhalt der richtigen Näherung, was besonders bei dem Beitrag mit vier verschwindenden Impulsen zu einer längeren Rechnung führt.

Die Lösung dieses selbstkonsistenten Hamilton-Operators (7.13) liegt nun in der numerischen Bestimmung der sechs Größen F_k , n_k , p , c , $\tilde{\mu}$ und λ bei vorgegebener Temperatur T und mittlerer Dichte n . Die drei algebraischen Gleichungen (7.6) und die drei Gleichungen aus dem Variationsprinzip (7.11) reichen aus, um alle diese Variablen zu bestimmen. Die Elimination dreier Variablen (λ , E_k und n_k) ergibt für $n > n_c$ das selbstkonsistente Gleichungssystem

$$|p|^2 + \frac{1}{(2\pi)^3} \int d^3 k \left(\frac{e_k - \tilde{\mu}}{\epsilon_k} \frac{1}{(e^{\beta \epsilon_k} - 1)} + \frac{1}{2} \left(\frac{e_k - \tilde{\mu}}{\epsilon_k} - 1 \right) \right) = n , \quad (7.14)$$

$$|c| = \frac{w}{2} \left(|p|^2 - \frac{|c|}{(2\pi)^3} \int d^3 k \left(\frac{1}{\epsilon_k} \left(\frac{1}{e^{\beta \epsilon_k} - 1} + \frac{1}{2} \right) \right) \right) , \quad (7.15)$$

$$\tilde{\mu} = |c| - w|p|^2 . \quad (7.16)$$

Die numerische Berechnung dieser Gleichungen für eine gegebene mittlere Dichte und Temperatur entspricht der vollständigen Lösung des Gleichgewichtsproblems, denn die danach noch unbekanntenen Variablen können aus den ersten beiden Gleichungen von (7.6) und der letzten Gleichung von (7.11) berechnet werden, wenn $|p|$, $|c|$ und $\tilde{\mu}$ bekannt sind. Für $n < n_c$ verschwinden die anomalen Mittelwerte in H_{HFB} und die Theorie reduziert sich auf das freie Bose-Gas mit einer trivialen Energieverschiebung.

Ein wesentliches Merkmal der Gleichgewichtstheorie des wechselwirkenden Bose-Gases ist daher ebenfalls die Existenz einer kritische Dichte n_c für eine BEC. Diese fällt genau mit der kritischen Dichte des freien Bose-Gases zusammen. Das ist leicht einzusehen, denn das im nichtkondensierten Zustand auf das freie Bose-Gas reduzierte System hat auch die bekannte obere Dichtegrenze (2.2).

Unglücklicherweise ist die Gleichgewichtstheorie im kondensierten Zustand und in der Kontaktpotentialnäherung Cut-Off abhängig. Dies wird in den

selbstkonsistenten Gleichungen (7.14) und (7.15) deutlich, die beide divergente Integrale erhalten (der reine $\int d^3k \frac{1}{2}$ und der $\int d^3k \frac{1}{2\epsilon_k}$ Term). In einer vollständigeren Theorie [115] müsste die k -Abhängigkeit der Matrixelemente der X-X-Streuung mitgenommen werden und dann über einen großen k -Raum integriert werden. Da in dieser Arbeit jedoch die Kinetik im Vordergrund steht, wird hier der k -Raum nur soweit mitgenommen, dass die konvergenten Terme richtig behandelt sind. Danach werden die divergenten Term beim selben Wellenvektor abgeschnitten. Diese Näherung ist jedoch weit verbreitet und sollte qualitativ gute Ergebnisse bringen.

Einfache Theorien der Superfluidität [125] gehen von der Annahme aus, dass für die Erklärung der Superfluidität ein lineares Spektrum der Quasiteilchen notwendig ist. Das Bogoljubov-Modell, in dem die Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren des Kondensates durch komplexe Zahlen ersetzt werden, erfüllt diese Bedingung. Die bogoljubovsche Formulierung wird verallgemeinert durch die HFB-Theorie, in der Fluktuationen dieser Operatoren zugelassen werden. Es ist auf den ersten Blick überraschend, dass die allgemeinere und aus Sicht der Theorie bessere HFB-Näherung nicht zu einem linearen Quasiteilchenspektrum führt. In der HFB-Näherung erhält man

$$\epsilon_k = \sqrt{(e_k + wn - \mu)^2 - |c|^2}. \quad (7.17)$$

Ist nun $\sum_{\vec{k}} F_k \neq 0$ nimmt dieses Gesetz asymptotisch für $k \rightarrow 0$ die Form

$$\epsilon_k = \sqrt{a_1 k^2 + a_2} \approx \sqrt{a_2} + \frac{a_1}{2\sqrt{a_2}} k^2 + \dots \quad (7.18)$$

mit den beiden Konstanten a_1 und a_2 . Für $F_k = 0$, eine Bedingung des Bogoljubov-Modells, erhält man wieder das lineare Spektrum. Hohenberg und Martin zeigten jedoch in [111], dass nicht ein lineares Quasiteilchenspektrum, sondern eine bestimmte Dichte-Antwortfunktion ohne Anregungslücke das richtige Kriterium für Superfluidität ist. Die HFB-Näherung beschreibt in diesem Sinne die Superfluidität (siehe hierzu [126, 112]).

7.1.2 Die selbstkonsistente zeitabhängige HFB-Näherung

Die HFB-Näherung kann auch dazu dienen, die zeitliche Entwicklung des Systems zu beschreiben.

Dazu wird direkt der Hamilton-Operator (7.13) in einer zeitabhängigen Formulierung verwendet

$$\begin{aligned}
 H_{HFB} &= \sum_{\vec{k}} (e_k + wn(t)) a_{\vec{k}}^{\dagger} a_{\vec{k}} + \frac{1}{2} \sum_{\vec{k}} (c(t) a_{\vec{k}}^{\dagger} a_{-\vec{k}}^{\dagger} + h.c.) \\
 &- \sqrt{V} (w|p(t)|^2 p(t) a_0^{\dagger} + h.c.) .
 \end{aligned} \tag{7.19}$$

Im Gegensatz zum letzten Abschnitt, wo das Interesse im großkanonischen Ensemble lag, ist die zeitliche Dynamik direkt durch den Hamilton-Operator gegeben, so dass der μ -Term entfällt.

Berechnet man den Kommutator von p , n_k und F_k mit H_{HFB} also z.B.

$$i\hbar \frac{d}{dt} p(t) = \frac{i\hbar}{\sqrt{V}} \frac{d}{dt} \langle a_0(t) \rangle = \frac{1}{\sqrt{V}} \langle [a_0(t), H_{HFB}(t)]_- \rangle , \tag{7.20}$$

so erhält man dieselben kohärenten Gleichungen (5.7), (5.8) und (5.9) wie in Kapitel 5. Trotz dieser offensichtlichen Äquivalenz zur Diagrammtechnik wird die hamiltonische Formulierung in diesem Kapitel wesentlich zum Verständnis der technischen Schritte und der physikalischen Effekte beitragen. Natürlich sind alle Aussagen über die kohärenten Gleichungen in Kapitel 5 auch für die HFB-Dynamik gültig. Wenn man über eine Kondensationsdynamik mit diesen kohärenten Gleichungen spricht, muss man sich aber noch über einige zusätzliche Fakten Klarheit schaffen, die im Folgenden erläutert werden.

Die kohärenten HFB-Gleichungen können keine echte Kondensationsdynamik beschreiben, denn das reversible Gleichungssystem kennt keinen ausgezeichneten Endzustand, sondern zeigt nur reversibles oszillatorisches Verhalten. Jedoch gibt es durchaus ausgezeichnete Lösungen, die das zeitliche Äquivalent der Gleichgewichtskondensation darstellen. Diese stationären Lösungen zeichnen sich durch die Bedingungen

$$|p(t)| = |p_0| , \quad |F_k(t)| = |F_{k,0}| , \quad n_k(t) = n_{k,0} , \tag{7.21}$$

aus, wobei $|p_0|$, $|F_{k,0}|$ und $n_{k,0}$ zeitunabhängige Konstanten sind. Man kann in der Tat direkt anhand der Gleichungen zeigen, dass diese Stationaritätsbedingungen zu den Selbstkonsistenzgleichungen der Gleichgewichtstheorie ((7.14) und (7.15)) führen. Die Gleichgewichtsgrößen $|p_{eq}|$, $|F_{eq}|$ und $n_{k,eq}$ sind also gleichzeitig die stationären Lösungen der kohärenten Gleichungen. Während die Gleichgewichtstheorie aber keine Aussage über die Phase der komplexen Lösungen macht, kommt in der Kinetik die Besonderheit einer zusätzlichen Forderung hinzu: **Die Mittelwerte aller Operatoren, die nicht mit der Teilchenzahl kommutieren, oszillieren mit Vielfachen des chemischen Potentials μ .**

Es gilt genauer

$$p_0(t) = |p_{eq}|e^{-i\mu t} ; F_{k,0}(t) = |F_{k,eq}|e^{-2i\mu t} . \quad (7.22)$$

Diese Beziehung zwischen Gleichgewichtstheorie und dynamischer Theorie ist bereits aus grundsätzlichen Überlegungen einsichtig, auch ohne auf die Details der Gleichungen einzugehen. In der Tat gilt aufgrund der zyklischen Vertauschbarkeit unter der Spur, dass für die Gleichgewichtslösung eines beliebigen Operator O gilt

$$\langle [O_{eq}, H_{eq} - \mu N]_- \rangle = 0 \quad (7.23)$$

und damit für seine kinetische Entwicklung

$$i\hbar \frac{d}{dt} \langle O_{eq}(t) \rangle = \langle [O_{eq}(t), H_{eq}(t)]_- \rangle = \mu \langle [O_{eq}(t), N]_- \rangle , \quad (7.24)$$

was für ungerade Produkte von Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren eine Rotation in der komplexen Ebene mit Vielfachen von μ ergibt. Vertauscht O mit N , so resultiert dies in einer exakt konstanten Zeitentwicklung der Gleichgewichtslösung.

Eigenschaft der irreversiblen Anteile der Kinetik muss es demnach sein, die Einteilchendichtematrix asymptotisch zur stationären Lösung der kohärenten Gleichungen zu bringen, die durch die Gleichgewichtstheorie gegeben ist. Des Weiteren muss es Charakter der Stoßterme sein, die Rotation einiger Beiträge mit Vielfachen von μ erst zu initiieren und dann ungestört zu erhalten.

7.2 Die quantenkinetischen Gleichungen

7.2.1 Die Rolle der Quantenkinetik in der Kinetik der Kondensation

In diesem Abschnitt soll eine Kinetik der Kondensation des wechselwirkenden Bose-Gases formuliert werden. Dafür müssen mit der HFB-Kinetik und ihrem Phasenübergang konsistente Streuterme abgeleitet werden.

Dabei zeigen sich jedoch offensichtliche Schwierigkeiten unabhängig vom Streuprozess:

Für die X-X-Streuung wurden schon in Kapitel 5 den kohärenten HFB-Termen zahlreiche markovsche Stoßterme hinzugefügt. Obwohl diese Beschreibung für Dichten $n < n_c$ gute Ergebnisse lieferte, konnte das Kondensationsregime nicht erreicht werden.

In [71] wurde durch geschickte Vernachlässigung einiger HFB- und Stoßterm-Beiträge zwar unter BEC Bedingungen ein stationärer endlicher Ordnungsparameter erreicht, doch der resultierende „Phasenübergang“ war weder durch die BEC des freien noch durch die des wechselwirkenden Gases gegeben. Auch blieb unklar, warum diese in der Gleichgewichtstheorie wichtigen Terme vernachlässigt werden können und die anomale Funktion verlor jegliche eigene Dynamik.

Für die X-Phonon-Streuung wurde in [93] das selbe Phänomen gezeigt: Kaum werden die kohärenten X-X-Wechselwirkungsterme nicht mehr vernachlässigt, geht die Kondensationslösung der Markov-Kinetik verloren. Die Rettungsversuche nach den analogen Vernachlässigungsmethoden wie für die X-X-Streuung in [71], brachten wieder nur die selben partiellen Verbesserungen oberhalb der kritischen Dichte.

In beiden Fällen kann die Kinetik der Kondensation des wechselwirkenden Bose-Gases durch Markov-Stoßterme nicht beschrieben werden.

Die Schwäche der Markov-Stoßterme im Kondensationsregime liegt jedoch nicht daran, welche Stoßbeiträge berücksichtigt werden, sondern in der Boltzmann-Struktur und der damit verbundenen Erhaltung der Energien freier Teilchen bei den Stoßprozessen.

Die Terme mit den Deltafunktionen und der Energien freier Teilchen e_k der Form

$$\propto \delta(e_{k_1} - e_{k_2} \pm \hbar\omega_q)$$

erzwingen nämlich immer Bose-Verteilungen der freien Teilchen und damit Kondensationen mit

$$n_k = \frac{1}{e^{\beta e_k} - 1} .$$

Im Gegensatz dazu erfordert die Kondensation des wechselwirkenden Gases die Verteilung der Quasiteilchen ϕ_k gemäß ihrer Quasiteilchenenergien ϵ_k

$$\phi_k = \frac{1}{e^{\beta \epsilon_k} - 1} .$$

Dies wiederum hat eine komplizierte Verteilung von n_k zu Folge, die sich nicht mit einer Bose-Verteilung beschreiben läßt.

Um über das Bild „Stöße (von ansonsten) freier Teilchen“ hinwegzukommen, müssen die spektralen Informationen über die Quasiteilchen in die Theorie der Stoßterme richtig eingebracht werden. Dafür reicht es nicht, die Quasiteilchenenergien in die Deltafunktionen der bestehenden Gleichungen einzusetzen, da es sich eben um die Energien der Quasiteilchen und nicht um die

renormierte Energie der Teilchen handelt. Ein Wechsel in die Quasiteilchenbasis und eine markovsche Beschreibung in dieser Basis, wie es bei zeitunabhängigen Quasiteilchen häufig durchgeführt wird [127], wird durch die Zeitabhängigkeit der Quasiteilchenbasis enorm verkompliziert. Die dafür notwendigen adiabatischen Näherungen beim Einbringen der neuen Energien und Zustände werden durch das Auftreten unbestimmter Phasen (Berry-Phase) und dem schnell oszillierenden HFB-Hamilton-Operator unmöglich. Die markovsche Kinetik hat bei diesem Kondensationsphänom deutlich ihre Grenzen erreicht.

In den letzten Jahren wurde jedoch in verschiedenen Gebieten der Physik der sogenannte quantenkinetische Formalismus eingeführt und mit Erfolg angewandt [21, 22]. Dieser Formalismus basiert auf kinetischen Gleichungen bei denen die markovschen Stoßterme durch komplexe Gedächtnisintegrale ersetzt werden. In fast allen Fällen wurde die Quantenkinetik bisher hauptsächlich angewandt, um die auf kurzen Zeiten wichtige Energie-Zeit Unschärfe und weitere Kurzzeitphänomene zu behandeln. Der Formalismus ermöglicht aber auch den Einbau von beliebigen spektralen Eigenschaften in die Gedächtniskerne der Stoßintegrale, was schon in verschiedenen Arbeiten ausgenutzt wurde [21, 22]. Das Konzept „von Stößen freier Teilchen“ wird dabei durch die „Streuung korrelierter Teilchen“ ersetzt.

In diesem Sinne ist das Langzeitproblem der Kondensation ein typischer Kandidat für die Anwendung der Quantenkinetik. Mit quantenkinetischen Methoden kann nämlich die spektrale Existenz von Quasiteilchen in die Kinetik eingebaut werden.

Diese Aufgabenstellung wird in diesem Abschnitt explizit durchgeführt.

7.2.2 Die Ableitung der quantenkinetischen Gleichungen

In diesem Teilabschnitt wird die BEC-Kinetik für ein System wechselwirkender Exzitonen abgeleitet. Als irreversiblen Streumechanismus wird die Streuung der Exzitonen mit longitudinalen akustischen Phononen gewählt, ein wesentlicher Beitrag bei Kondensationsexperimenten in Halbleitern. Die Wechselwirkung der Exzitonen untereinander wird auf der Ebene der mean-field Näherung behandelt.

Der Hamilton-Operator besteht aus dem HFB-Hamilton-Operator H_{HFB} , dem Beitrag der freien longitudinalen akustischen Phononen H_P , sowie der Wechselwirkung zwischen Exzitonen und Phononen H_{XP}

$$H = H_{HFB} + H_P + H_{XP} \quad (7.25)$$

$$\begin{aligned}
 H_{HFB}(t) = & \sum_{\vec{k}} (e_k + wn) a_{\vec{k}}^{\dagger} a_{\vec{k}} + \frac{1}{2} \sum_{\vec{k}} (c(t) a_{\vec{k}}^{\dagger} a_{-\vec{k}}^{\dagger} + h.c.) \\
 & - \sqrt{V} (w |p(t)|^2 p(t) a_0^{\dagger} + h.c.) , \quad (7.26)
 \end{aligned}$$

$$H_P = \sum_{\vec{k}} \hbar \omega_k b_{\vec{k}}^{\dagger} b_{\vec{k}} , \quad (7.27)$$

$$H_{XP} = \frac{1}{\sqrt{V}} \sum_{\vec{k}, \vec{q}} g_{\vec{q}} a_{\vec{k}+\vec{q}}^{\dagger} a_{\vec{k}} (b_{\vec{q}} + b_{-\vec{q}}^{\dagger}) . \quad (7.28)$$

Die Kinetik der verschiedenen Komponenten der Einteilchendichtematrix n_k , F_k und p wird nun mit der Bewegungsgleichungsmethode berechnet. Dabei erfolgt der Abbruch der Hierarchie, dass die HFB-Dynamik vollständig berücksichtigt wird. Bei der dabei notwendigen Zerschlagung höherer Korrelationen müssen natürlich wieder alle anomalen Mittelwerte mitgenommen werden.

Daher liefert diese Methode Gleichungen mit einer sehr großen Anzahl verschiedener Terme. Diesem Komplexitätsproblem wird man am ehesten durch eine Einführung einer neuen Notation gerecht. Man definiert eine Spinornotation für die verschiedenen Bose-Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren:

$$a_{\vec{k},i} = \begin{cases} a_{\vec{k}} & \text{für } i = 1 \\ a_{-\vec{k}}^{\dagger} & \text{für } i = 2 \end{cases} . \quad (7.29)$$

Genauso lassen sich verallgemeinerte Phononen-Operatoren $b_{\vec{k},i}$ definieren. Diese Spinoroperatoren erfüllen ungewöhnliche Vertauschungsrelationen

$$[a_{k,i}, a_{k',j}]_{-} = i \sigma_{ij}^y \delta_{k,-k'} , \quad (7.30)$$

wobei mit $\sigma^{x/y/z}$ die Paulimatrizen abgekürzt sind:

$$\sigma^x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} ; \quad \sigma^y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} ; \quad \sigma^z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} . \quad (7.31)$$

Diese Vertauschungsrelationen sind aber technisch leicht zu handhaben, wodurch der Formalismus nicht nur bei der Darstellung sondern auch bei der Ableitung der Gleichungen von großem Nutzen ist. Mit der Gleichung für das Objekt $\langle a_{k,i} a_{k,j} \rangle$ leitet man zum Beispiel die Gleichungen für n_k und F_k gleichzeitig ab und erhält das Ergebnis sofort als überschaubare Summation über die Spinorindizes.

Zuerst wird nur die HFB-Dynamik in der Spinornotation formuliert. Die kalligraphischen Buchstaben kennzeichnen dabei 2×2 -Matrizen in den Spinorindizes.

Die HFB-Dynamik kann in der Spinornotation ausgedrückt werden als

$$i\hbar \frac{d}{dt} a_{k,i}(t) \Big|_{coh} = [a_{k,i}, H_{HFB}]_- = \sum_j \mathcal{H}_{k,ij}^0(t) a_{k,j}(t) + \delta_{k,0} s_i(t) \quad (7.32)$$

mit der Definition der nicht selbst-adjungierten Matrix \mathcal{H}_k^0

$$\mathcal{H}_k^0 := \begin{pmatrix} (e_k + wn) & c \\ -c^* & -(e_k + wn) \end{pmatrix}$$

und der linearen Verschiebung bei $\vec{k} = 0$

$$s_i(t) = -\sqrt{V} w |p|^2 \sigma_{ii}^z p_i(t).$$

Definiert man $\mathcal{T}_{k,ij}(t, t')$ über

$$i\hbar \frac{\partial \mathcal{T}_{k,ij}(t, t')}{\partial t} = \sum_l \mathcal{H}_{k,il}^0(t) \mathcal{T}_{k,lj}(t, t'); \quad \mathcal{T}_{k,ij}(t', t') = \delta_{ij}, \quad (7.33)$$

so lautet die formale Lösung der HFB-Dynamik (7.32) in der Spinornotation

$$a_{k,i}(t) = \mathcal{T}_{k,ij}(t, t_0) a_{k,j}(t_0) + c_{k,i}(t, t_0). \quad (7.34)$$

Dabei ist die Inhomogenität bei $\vec{k} = 0$ gegeben durch

$$c_{k,i}(t, t_0) := \int_{t_0}^t dt' \mathcal{T}_{k,ij}(t, t') s_j(t') \delta_{k,0}. \quad (7.35)$$

Man sieht also, dass \mathcal{T}_k die Evolutionsmatrix der HFB-Dynamik ist. Für sie gilt auch bei $\vec{k} = 0$

$$\mathcal{T}_k(t, t') = \mathcal{T}_k(t, t_0) \mathcal{T}_k(t_0, t').$$

Die Phononen-Entwicklung ist in diesem Modell trivial. Um jedoch die Endgleichungen in symmetrische Form zu bringen, kann man die Phononen-Dynamik ebenfalls in Spinornotation aufschreiben

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} b_{k,i}(t) = \hbar \omega_k \sigma_{ii}^z b_{k,i}(t) \quad (7.36)$$

und mit dem Phononen-Propagator

$$i\hbar \frac{d}{dt} \mathcal{D}_{k,ii}(t, t') = \hbar \omega_k \sigma_{ii}^z \mathcal{D}_{k,ii}(t, t'); \quad \mathcal{D}_{k,ii}(t', t') = \delta_{ii},$$

formal lösen zu

$$b_{k,i}(t) = \mathcal{D}_{k,ii}(t, t_0)b_{k,i}(t_0).$$

Die durch den HFB-Propagator \mathcal{T} ausgedrückte HFB-Dynamik und die durch den Phononen-Propagator \mathcal{D} ausgedrückte Phononen-Dynamik werden sowohl in die kohärenten Anteile als auch in die Streuintegrale der vollen Kinetik eingebaut.

Jetzt erfolgt die Ableitung der vollen quantenkinetischen Gleichungen. Hierfür werden erst die Komponenten der Einteilchendichtematrix n_k , F_k und p durch die folgenden Größen in der Spinornotation mit gleichem Inhalt ersetzt:

$$p_i = \frac{1}{\sqrt{V}}\langle a_{0,i} \rangle; \quad \rho_{k,ij} = \langle \tilde{a}_{-\vec{k},i} \tilde{a}_{\vec{k},j} \rangle; \quad N_{k,ij} = \langle b_{-k,i} b_{k,j} \rangle. \quad (7.37)$$

Um diese Notation noch einmal explizit zu erläutern, enthält die Spinorpolarisation p_i sowohl p als auch das komplexkonjugierte p^* . Der unfaktorierte Anteil der Einteilchendichtematrix in der Spinornotation $\rho_{k,ij}$ beinhaltet in der Diagonalen die anomalen Funktionen (z.B. $\rho_{k,11} = F_k$) und in der Nichtdiagonalen die Verteilungsfunktion n_k und $(1+n_k)$ (z.B. $\rho_{k,21} = n_k$). Obwohl keine anomalen Phononen-Mittelwerte mitgenommen werden, wird mit der Einteilchendichtematrix der Phononen $N_{k,ij}$ aus Symmetriegründen eine den Exzitonen analoge Notation verwendet.

Eine ausführliche Darstellung der Bewegungsgleichungsmethode und ihrer Modifikation im Bosonenfall wurde in Abschnitt 2.4.1 angesprochen. Hier soll nun die Hierarchie von Bewegungsgleichungen in quantenkinetischer Form für den Hamilton-Operator (7.25) abgeleitet werden. Dabei tritt durch das Auftreten komplizierter anomaler Mittelwerte wie bereits an anderer Stelle die folgende Besonderheit auf: Um sinnvolle Gleichungen zu erhalten, müssen die einzelnen Iterationsschritte der Bewegungsgleichungsmethode unbedingt für die Mittelwerte reduzierter Operatoren formuliert werden. Betrachtet man dann einen typischen Mittelwert der Bewegungsgleichungsmethode, z.B.

$$\langle \tilde{a}_{\vec{k}}^+(t) \tilde{a}_{\vec{k}'}(t) b_q(t) \rangle,$$

so ist in einer exakten Betrachtung die Ableitung nicht nur durch den Kommutator sondern auch durch Ableitungen nach den $\langle a_{\vec{k}}(t) \rangle$ in der elementaren Definition der $\tilde{\sim}$ -Operatoren gegeben. Diese sind a priori unbekannt. Um dieses Problem zu umgehen, muss man in der Bewegungsgleichungsmethode annehmen, dass alle $\tilde{\sim}$ -Größen kontinuierlich bei $k = 0$ sind. Das heißt dann wiederum, dass ihre Gleichung auch bei $k \neq 0$ geschrieben werden kann, wo das Problem der unklaren Ableitung nicht auftritt. Eine solche Näherung

könnte jedoch nur zu falschen Ergebnissen führen, wenn eine $\tilde{}$ -Größe makroskopisch würde. Jegliche Makroskopie außer in p wird also durch unsere Näherung in Analogie zur Gleichgewichtstheorie ausgeschlossen. Dies wird während der ganzen Ableitung ausgenutzt.

Für die explizite Herleitung geht man von den elementaren heisenbergschen Gleichungen aus

$$i\hbar \frac{d}{dt} p_i(t) = \frac{1}{\sqrt{V}} (\langle [a_{0,i}(t), H_{HFB}(t)]_- + [a_{0,i}(t), H_{XP}]_- \rangle) \quad (7.38)$$

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho_{\vec{k},ij}(t) = \langle [a_{-\vec{k},i}(t) a_{\vec{k},j}(t), H_{HFB}(t)]_- + [a_{-\vec{k},i}(t) a_{\vec{k},j}(t), H_{XP}]_- \rangle. \quad (7.39)$$

Dabei wird gemäß der obigen Diskussion in der zweiten Zeile $\vec{k} \neq 0$ gesetzt, so dass reduzierte und normale Operatoren zusammenfallen. Die Wirkung von $\frac{d}{dt}|_{HFB}$ auf $a_{\vec{k},i}$ ist mit Gleichung (7.32) ausreichend beschrieben, die ersten Kommutatoren müssen nicht mehr durch Vertauschen berechnet werden. Für die Kommutatoren mit H_{XP} muss dieser in die Spinornotation gesetzt werden:

$$H_{XP} = \frac{1}{\sqrt{V}} \sum_{\vec{k}, \vec{q}, j} g_q a_{-\vec{k}-\vec{q},2} a_{\vec{k},1} b_{q,j}.$$

und dann gemäß der neuen Vertauschungsregel (7.30) kommutiert werden. Nach dem Kommutieren ergibt sich

$$i\hbar \frac{d}{dt} p_i(t) = \overbrace{\sum_j \mathcal{H}_{0,ij}^0(t) p_j(t) + s_i(t)}^{\text{HFB}} + \overbrace{\frac{1}{V} \sum_{\vec{k}, j} g_k \sigma_{ii}^z B_{k,ij}(t)}^{\text{Korrel}}; \quad (7.40)$$

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho_{k,ij}(t) = \overbrace{\sum_l \left(\mathcal{H}_{k,il}(t) \rho_{k,lj}(t) + \mathcal{H}_{k,jl} \rho_{k,il}(t) \right)}^{\text{HFB}} \quad (7.41)$$

$$+ \overbrace{\sum_l g_k \left(\sigma_{jj}^z p_j B_{k,il} + \sigma_{ii}^z p_i B_{-k,jl} \right)}^{\text{Korrel}} + \overbrace{\frac{1}{\sqrt{V}} \sum_{\vec{q}} g_q \left(\sigma_{jj}^z C_{-\vec{k}, \vec{k}-\vec{q}, \vec{q}} + \sigma_{ii}^z C_{-\vec{k}-\vec{q}, \vec{k}, \vec{q}} \right)}^{\text{Korrel}}.$$

Dabei werden die Terme nach ihrer Herkunft mit „Ph“ für die Beiträge der ungestörten Phononen, mit „HFB“ für die mean-field Beiträge und mit „Korrel“ für Korrelationsbeiträge beschriftet. Während Erstere auf dieser Stufe noch nicht auftreten, liefern die „HFB“-Terme in diesen Gleichungen schon die volle HFB-Kinetik aus Abschnitt 7.1.2. In den Korrelationsbeiträgen sieht man die Kopplung der Einteilchendichtematrix an die höheren

Korrelatoren

$$B_{k,ij} = \langle \tilde{a}_{-k,i} b_{k,j} \rangle ; C_{\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}_3} = \langle \tilde{a}_{\vec{k}_1} \tilde{a}_{\vec{k}_2} b_{\vec{k}_3, j} \rangle. \quad (7.42)$$

Die Größe C wird im Allgemeinen als phononenassistierte Dichtematrix bezeichnet. Da die Dichtematrix jedoch in unserem Fall auch anomale Mittelwerte enthält, gilt dies auch für ihre phononenassistierte Form.

Für die Korrelatoren erhält man durch erneutes Kommutieren unter der Bedingung $\vec{k}, \vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}_3 \neq 0$ ebenfalls Gleichungen

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d}{dt} B_{k,ij}(t) &= \overbrace{\sum_l \mathcal{H}_{k,il}^0 B_{k,il}}^{\text{HFB}} + \overbrace{\hbar\omega_k \sigma_{jj}^z B_{k,ij}}^{\text{Ph}} \\ &+ \overbrace{\frac{1}{\sqrt{V}} \sum_{\vec{q}, l} g_{\vec{q}} \sigma_{ii}^z \langle a_{-\vec{k}-\vec{q}, i} b_{\vec{q}, l} b_{\vec{k}, j} \rangle}_{\text{Korrel}} + \overbrace{\frac{1}{\sqrt{V}} \sum_{\vec{q}} g_{\vec{k}} \sigma_{jj}^z \langle a_{-\vec{k}, i} a_{\vec{k}-\vec{q}, 2} a_{\vec{q}, 1} \rangle}_{\text{Korrel}} ; \\ i\hbar \frac{\partial}{\partial t} C_{\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}_3}(t) &= \overbrace{\sum_m \left(\mathcal{H}_{k_1, im}^0(t) C_{\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}_3}(t) + \mathcal{H}_{k_2, jm}^0(t) C_{\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}_3}(t) \right)}^{\text{HFB}} \\ &+ \overbrace{\hbar\omega_k \sigma_{ll}^z C_{\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}_3}(t)}^{\text{Ph}} \\ &+ \overbrace{\frac{1}{\sqrt{V}} \sum_{\vec{q}, m} g_{\vec{q}} \left(\sigma_{jj}^z \langle a_{\vec{k}_1, i} a_{\vec{k}_2 - \vec{q}, j} b_{\vec{q}, m} b_{\vec{k}_3, l} \rangle + \sigma_{ii}^z \langle a_{\vec{k}_1 - \vec{q}, i} a_{\vec{k}_2, j} b_{\vec{q}, m} b_{\vec{k}_3, l} \rangle \right)}^{\text{Korrel}} \\ &+ \overbrace{\sum_{\vec{k}} g_{\vec{k}_3} \sigma_{ll}^z \langle a_{\vec{k}_1, i} a_{\vec{k}_2, j} a_{\vec{k}_3 - \vec{k}, 2} a_{\vec{k}, 1} \rangle}_{\text{Korrel}}. \end{aligned} \quad (7.44)$$

Da diese Gleichungen nur durch die X-Phonon-Kopplung überhaupt an die Einteilchendichtematrix ankoppeln, handelt es sich bei den HFB-Termen in dieser Gleichung vom Standpunkt der Kinetik der Einteilchendichtematrix aus schon um Mischeffekte der X-Phonon- und der HFB-Wechselwirkung.

Nun erfolgt der wesentliche Schritt zum korrekten Einbau der HFB-Wechselwirkung. Die obigen Gleichungen (7.43) und (7.44) werden dabei formal integriert, wobei der homogene HFB-Anteil exakt in den Integralkernen berücksichtigt wird.

Hierfür soll die Summe aller Korrelationsterme in Gl. (7.43) (drei-Operatormittelwerte) mit $\mathcal{R}_k(t)$ und die Summe aller Korrelationsterme in Gl. (7.44) (fünf-Operatormittelwerte) mit $S_{\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}_3}(t)$ abgekürzt werden.

Formale Integration liefert dann

$$B_{k,ij}(t) = -\frac{i}{\hbar} \sum_l \int_0^t dt' \mathcal{T}_{k,il}(t, t') \mathcal{R}_{k,lj}(t') \mathcal{D}_{k,jj}(t, t'); \quad (7.45)$$

$$C_{\bar{k}_1, \bar{k}_2, \bar{k}_3}(t) = -\frac{i}{\hbar} \sum_{mn} \int_0^t dt' \mathcal{T}_{k_1,im}(t, t') \mathcal{T}_{k_2,jn}(t, t') \mathcal{D}_{k_3,ll}(t, t') S_{\bar{k}_1, \bar{k}_2, \bar{k}_3}(t'). \quad (7.46)$$

Um das Gleichungssystem zu schließen, wendet man auf \mathcal{R} und S das wick-sche Theorem an:

$$\begin{aligned} \mathcal{R}_{k,ij}(t) &\approx \sigma_{ii}^z N_{k,\bar{j}j} p_i(t) + \sigma_{jj}^z \left(\rho_{k,i2}(t) p_1(t) + \rho_{k,i1}(t) p_2(t) \right), \\ S_{k_1, \bar{k}_2, \bar{k}_3}(t) &\approx N_{k_3, \bar{l}} \left(\sigma_{jj}^z \rho_{k_1,ij}(t) + \sigma_{ii}^z \rho_{k_2,ij}(t) \right) \\ &\quad + \sigma_{ll}^z \left(\rho_{k_1,i1}(t) \rho_{k_2,j2}(t) + \rho_{k_2,j1}(t) \rho_{k_1,i2}(t) \right). \end{aligned} \quad (7.47)$$

Für alle Indizes wird $\bar{n} \neq n$ benutzt.

Setzt man diese Gleichungen in die Gleichungen für die Einteilchendichtematrix p_i (7.40) und $\rho_{k,ij}$ (7.41) ein, so erhält man die quantenkinetischen Gleichungen.

Die endgültig resultierenden Gleichungen bestehen aus einem rein kohärenten Beitrag und einem Stoßterm, der jedoch in seiner quantenkinetischen Form ebenfalls Kohärenz partiell enthält:

$$\frac{\partial}{\partial t} p(t) = \frac{\partial}{\partial t} p(t) \Big|_{coh} + \frac{\partial}{\partial t} p(t) \Big|_{coll}; \quad (7.48)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_{k,ij}(t) = \frac{\partial}{\partial t} \rho_{k,ij}(t) \Big|_{coh} + \frac{\partial}{\partial t} \rho_{k,ij}(t) \Big|_{coll}. \quad (7.49)$$

Die kohärenten Beiträge sind dann gegeben durch

$$\frac{\partial}{\partial t} p_i(t) \Big|_{coh} = -i \sum_j \mathcal{H}_{0,ij}^0(t) p_j(t) - \frac{i}{\sqrt{V}} s_i(t), \quad (7.50)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_{k,ij} \Big|_{coh} = -i \sum_l \left(\mathcal{H}_{k,il}^0(t) \rho_{k,lj} + \mathcal{H}_{k,jl}^0(t) \rho_{k,il} \right) \quad (7.51)$$

mit dem kubischen Gross-Pitajevski Term

$$s_i(t) = -\sqrt{V} w |p(t)|^2 \sigma_{ii}^z p_i(t).$$

Zusätzlich muss man zu den rein kohärenten Termen (7.50) und (7.51) die Streuterme addieren, die durch die Wechselwirkung mit den Phononen eingebracht werden.

$$\frac{\partial}{\partial t} p_i(t) \Big|_{coll} = - \int_0^t dt' \sum_{\bar{k}, j, l} g_k^2 \mathcal{D}_{k,jj}(t, t') \sigma_{ii}^z \mathcal{T}_{k,il}(t, t') \mathcal{R}_{k,lj}(t'), \quad (7.52)$$

$$\begin{aligned}
\left. \frac{\partial}{\partial t} \rho_{k,ij} \right|_{coll} &= - \sum_{l,m} g_k^2 \int_0^t dt' \mathcal{D}_{k,ll}(t, t') \left(\sigma_{jj}^z p_j(t) \mathcal{T}_{k,im}(t, t') + (i \rightleftharpoons j) \right) \mathcal{R}_{k,ml}(t') \\
&- \sum_{\vec{q}, l, m, n} \frac{g_q^2}{V} \int_0^t dt' \mathcal{D}_{q,ll}(t, t') \left(\sigma_{jj}^z \mathcal{T}_{k,im}(t, t') \mathcal{T}_{|\vec{k}-\vec{q}|,jn}(t, t') \mathcal{S}_{\substack{-\vec{k}, \vec{k}-\vec{q}, \vec{q} \\ mnl}}(t') \right. \\
&+ \left. \sigma_{ii}^z \mathcal{T}_{|\vec{k}+\vec{q}|,im}(t, t') \mathcal{T}_{k,jn}(t, t') \mathcal{S}_{\substack{-\vec{k}-\vec{q}, k, q \\ m, n, l}}(t') \right). \tag{7.53}
\end{aligned}$$

Die Funktionen \mathcal{R} und \mathcal{S} sind Kombinationen der generalisierten Besetzungsfaktoren der Anfangs- und Endzustände. **Diese Kombinationen aus Komponenten der Einteilchendichtematrix gehen an der früheren Zeit t' in die Gleichungen ein, was charakteristisch für die quantenkinetische Natur der Kinetik ist.**

Der Gedächtniskern ist determiniert durch den Phononen-Propagator $\mathcal{D}_k(t, t') = e^{-i\omega_k \sigma^z (t-t')}$ und die Teilchen-Propagator Funktion $\mathcal{T}_k(t, t')$, welche die von $\mathcal{H}_k^0(t)$ generierte HFB-Evolution beschreibt.

Die HFB-Evolutionsmatrix $\mathcal{T}_k(t, t')$ ersetzt dabei die freien Propagatoren $e^{ie_k(t-t')}$ in den Streutermen durch die HFB-Dynamik ohne irgendwelche adiabatische Näherungen. Auf diese Weise wird der wichtige selbstkonsistente zeitliche Aufbau des Quasiteilchenspektrums berücksichtigt.

Das obige Verfahren kann auch in der Sprache der Diagrammtechnik formuliert werden: Für $t > t'$ ist die Evolutionsmatrix $\mathcal{T}_k(t, t')$ bis auf eine Phase identisch mit der retardierten HFB-Green-Funktion und es wird hier ein um anomale Funktionen erweiterter Kadanoff-Baym Ansatz mit den retardierten Green-Funktionen der HFB-Theorie verwendet.

Die quantenkinetischen Gleichungen (7.48), (7.49) müssen gemeinsam mit der Gleichung für die HFB-Evolutionsmatrix (7.33) numerisch gelöst werden.

7.3 Numerische Auswertung und Ergebnisse

Durch das Einbringen der HFB-Evolution in die Streuraten kann man hoffen, dass die Kinetik zum nichttrivialen großkanonischen Gleichgewicht des wechselwirkenden Bose-Gases (Abschnitt 7.1.1) führt. Einen exakten analytischen Beweis für dieses intuitive Argument gibt es jedoch nicht. In diesem Abschnitt wird jedoch durch die numerische Lösung der Gleichungen diese Aussage belegt, indem jeweils die Asymptotik der Kinetik mit der entsprechenden Lösung des Gleichgewichtsproblems verglichen wird.

Wie auch schon die Kinetik in vorherigen Kapitel erfüllen die deterministischen quantenkinetischen Gleichungen die Symmetrien des grundlegenden

Hamilton-Operatoren H_{XX} . Da der Hamilton-Operator die Teilchenzahl erhält, wird bei einem Anfangszustand mit exakter Teilchenzahl ($p = 0$ und $F_k = 0$) diese auch immer erhalten, d.h. die anomale Mittelwerte p und F_k bleiben stets Null, wenn sie anfänglich Null waren.

Obwohl H_{HFB} nicht mehr exakt mit der Teilchenzahl vertauscht (nur die mittlere Teilchenzahl, nicht jedoch die exakte Teilchenzahl ist erhalten), hat er auf folgende Weise die selbe Eigenschaft wie die fundamentale Wechselwirkung H_{XX} : Ist anfänglich $p(0) = 0$ und $F_k(0) = 0$, so erhält $H_{HFB}(0)$ die Teilchenzahl exakt ($[H_{HFB}(0), N]_- = 0$). Daher kann auch im nächsten Zeitschritt $t = dt$ die Teilchenzahl nicht gebrochen werden und das Argument setzt sich für alle Zeiten fort.

Die Gleichungen beschreiben jedoch spontane Symmetriebrechung in der Zeit so wie schon die einfachen Boltzmann-Gleichungen.

Nun werden die quantenkinetischen Gleichungen numerisch für Kondensationsbedingungen gelöst. Hierfür werden die Materialparameter von Cu_2O , eine Phononen-Temperatur von $T = 1,5\text{K}$ und eine superkritische Dichte von $n = 1,76 \times 10^{17}\text{cm}^{-3}$ gewählt, was experimentellen Gegebenheiten in typischen Exzitonen-Kondensationsexperimenten [83] entspricht. Um jedoch die numerischen Rechnungen zu beschleunigen, wird die Phononen-Kopplungskonstante mit $g = 70$ gewählt, also doppelt so hoch wie der Wert, der für g in der Literatur berichtet wird. Die X-X-Kopplungsstärke w wird um die typischen Kopplungsstärken in Cu_2O herum variiert und die ersten Abbildungen zeigen Ergebnisse für $w_1 = 10^6\mu\text{eVnm}^3$ und $w_2 = 5 \times 10^5\mu\text{eVnm}^3$. Als Anfangsbedingung wird ein anfänglicher Kondensationskeim $p(0)$ eingebracht, der weniger als 1% des Endwertes $p(\infty)$ ausmacht. Die Paarkorrelation $F_k(0)$ wird Null gesetzt und die X-Verteilung n_k wird anfänglich durch eine Gauss-Verteilung gegeben, die bei $k = 0,2\text{nm}^{-1}$ mit einer Breite von $dk = 0,1\text{nm}^{-1}$ zentriert ist. Um Unstetigkeiten in den Gleichungen zu vermeiden, wird die Anfangsbedingungen kontinuierlich über einen Zeitraum von 6ps eingeschaltet.

Die Resultate der Kinetik sollen mit den stationären Ergebnissen der HFB-Gleichgewichtstheorie verglichen werden. Dafür werden auch die selbstkonsistenten Gleichungen aus Abschnitt 7.1.1 ((7.14) und (7.15)) für die selben Umgebungsparameter numerisch gelöst.

Für die Numerik wird die lokale Runge-Kutta Methode auf einem diskretem k -Gitter verwendet. Jedoch zerfällt aufgrund dieser Diskretisierung der Integralkern nicht monoton in der Zeitdifferenz ($t - t'$), sondern man erhält unvermeidlich destabilisierende Wiederkehrzeiten. Um diese zu dämpfen, wird ein zusätzlicher langsamer exponentieller Zerfall in die Gedächtnisker-

ne eingebaut $\mathcal{T}_k(t, t') \rightarrow \mathcal{T}_k(t, t')e^{-\gamma(t-t')}$ ($\gamma = 1/300ps$). In den folgenden Rechnungen werden nur zehn k -Punkte verwendet, eine Erhöhung der Anzahl der k -Punkte bringt überraschenderweise keine qualitative Änderung im Ergebnis. Die Gleichgewichtstheorie wird auf dem selben endlichen Gitter gelöst, um einen quantitativen Vergleich mit der Asymptotik der Kinetik zu ermöglichen.

In Abbildung 7.1 ist die Kinetik des Ordnungsparameters p in Abhängigkeit von der Zeit aufgetragen.

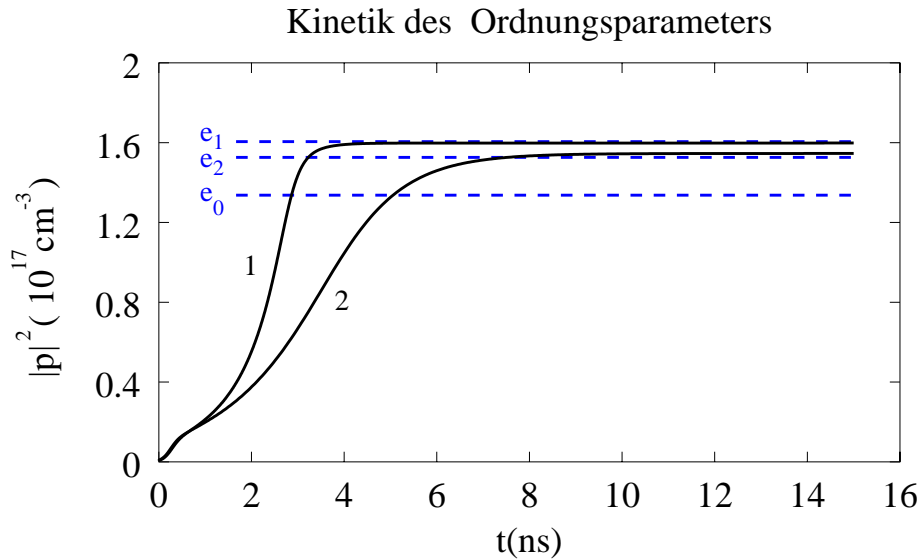


Abbildung 7.1: Kinetik der Ordnungsparameter p . Kurven 1 und 2: $|p(t)|^2$ für jeweils $w = w_1$ und $w = w_2$. Die gestrichelten Linien e_1 und e_2 stellen die jeweiligen HFB-Gleichgewichtslösungen dar. e_0 ist die Gleichgewichtslösung des freien Bose-Gases.

Dabei wird die Rechnung mit zwei unterschiedlichen X-X-Kopplungskonstanten $w_1 = 10^6 \mu\text{eVnm}^3$ und $w_2 = 5 \times 10^5 \mu\text{eVnm}^3$ durchgeführt. Diese Kopplungen liegen im Bereich der typischen X-X-Kopplung in Cu_2O . Zusätzlich sind als gestrichelte Linien die zeitunabhängigen Lösungen der HFB-Gleichgewichtstheorie eingezeichnet.

An dieser Abbildung erkennt man bereits in sehr schöner Weise den Erfolg der vollen quantenkinetischen Beschreibung. Man erhält für die Anfangsbedingung $n > n_c$ eine Kondensation: Das anfangs verschwindend kleine Kondensat $|p|^2$ wird von den Gleichungen zu einem großen stationären Wert aufgebaut. Wie schon bei den einfacheren Theorien der Kondensation z.B. in

Kapitel 6, ändern die Stoßterme bei $n > n_c$ ihr Vorzeichen. Statt wie gewöhnlich zu dephasieren, bauen sie eine kohärente Amplitude auf. Der besondere Erfolg der vollen Quantenkinetik liegt jedoch darin, dass das asymptotische Kondensat durch das Gleichgewicht des wechselwirkenden Bose-Gases beschrieben wird! Kurve 1 relaxiert gegen den Gleichgewichtswert e_1 und Kurve 2 gegen e_2 . Man sieht auch, dass der Abstand zum Gleichgewicht des freien Gases e_0 erheblich ist.

Eine vielleicht noch überzeugendere Übereinstimmung findet man für den HFB-Parameter $c(t)$, der eine Art Dichte der Anomalie des Systems darstellt. Da diese Größe bei der Kondensation des freien Bose-Gases verschwindet, ist die Abweichung im wechselwirkenden System besonders groß. In Abbildung 7.2 wird die Kinetik von $|c(t)|$ mit der Voraussage der Gleichgewichtstheorie verglichen: Die Anomalie $|c(t)|$ baut sich durch die Kinetik im Laufe der Zeit auf und erreicht asymptotisch die Ergebnisse der Gleichgewichtstheorie.

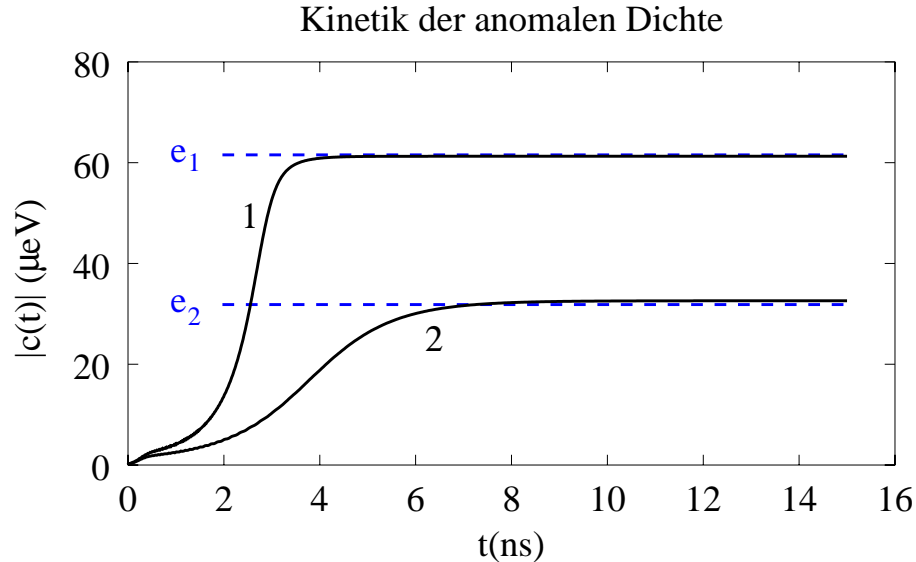


Abbildung 7.2: Kinetik der anomalen Dichte $|c(t)|$. Kurven 1 und 2: $|c(t)|$ für jeweils $w = w_1$ und $w = w_2$. Die gestrichelten Linien e_1 und e_2 stellen die jeweiligen HFB-Gleichgewichtslösungen dar. Für das ideale Gas gilt $|c| = 0$.

Am Ende der Kinetik werden die Verteilungsfunktionen n_k und die anomalen Funktionen F_k stationär. Daher kann ihre Verteilung mit dem Gleichgewichtsergebnis verglichen werden. Dieser Vergleich wird für $w = w_1$ in Abbildung 7.3 gezeigt, wo die HFB-Gleichgewichtsverteilungsfunktionen n_k

(Kurve 1) und F_k (Kurve 2) dargestellt werden. Die Dreiecke und Rauten sind die entsprechenden asymptotischen Ergebnisse der Kinetik und zeigen eine überzeugende Übereinstimmung mit den Gleichgewichtsfunktionen.

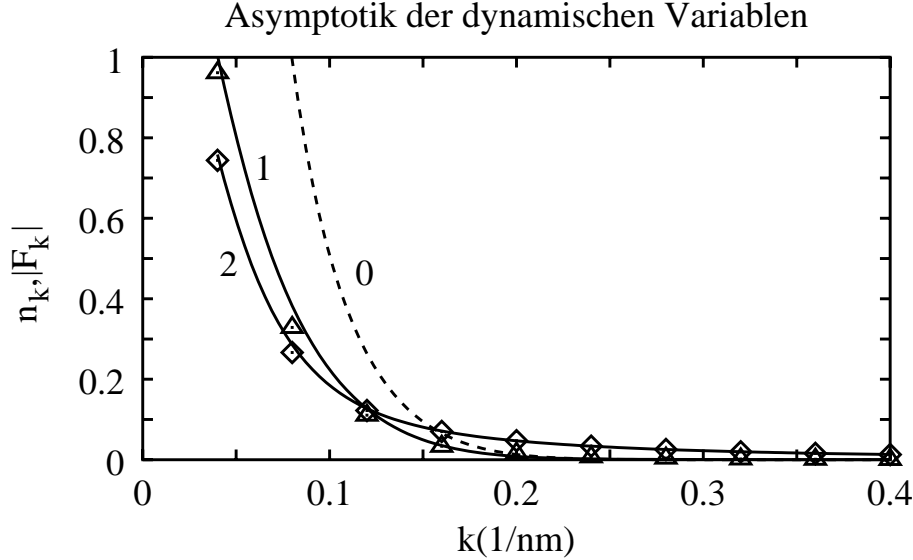


Abbildung 7.3: Asymptotische Verteilungsfunktionen n_k (\triangle) und $|F_k|$ (\diamond) der Kinetik und die entsprechenden Gleichgewichtskurven (Kurve 1 und 2) für $w = w_1$. Kurve 0 ist die Gleichgewichtskurve des idealen Bose-Gases für n_k (in diesem Fall ist $F_k = 0$).

Einen sehr interessanten Untersuchungsgegenstand stellt auch die zeitliche Dynamik des großkanonischen Potentials G dar. Aus der Thermodynamik ist bekannt, dass diese Größe im Gleichgewicht minimal ist. Zusätzlich beinhaltet sie eine große Aussagekraft, denn mit einem richtigen Ergebnis für das großkanonische Potential sind automatisch alle denkbaren thermodynamischen Größen richtig bestimmt, so dass man mit dieser Größe eine globale Beschreibung der Thermodynamik erhält.

Für die Numerik kann man G' definieren, in dem alle zeitlich konstanten und daher uninteressanten Terme entfernt sind

$$\begin{aligned} \frac{1}{V}G'(t) &= \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}} e_k n_k(t) + \frac{w}{4} |p^2(t)| + \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}} |F_k(t)|^2 - \frac{w}{2} |p(t)|^4 \\ &+ \frac{1}{\beta V} \sum_{\vec{k}} \left(\phi_k(t) \ln(\phi_k(t)) - (1 + \phi_k(t)) \ln(1 + \phi_k(t)) \right). \end{aligned} \quad (7.54)$$

Die zeitliche Kinetik von $G'(t)$ wird mit dem Gleichgewichtsergebnis in Abbildung 7.4 verglichen. Man sieht wieder, dass für $w = w_1$ und $w = w_2$ die

Übereinstimmung recht gut ist.

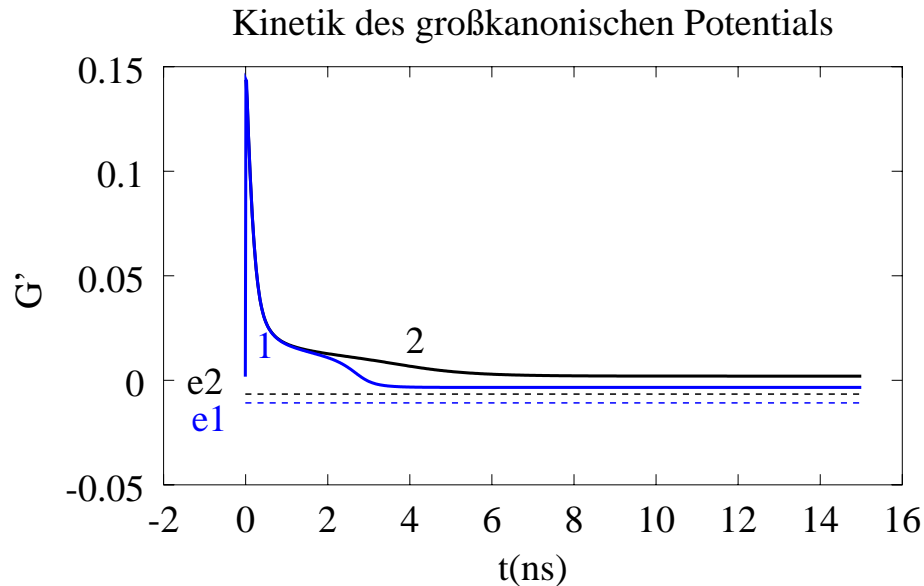


Abbildung 7.4: Kinetik des großkanonischen Potentials $G'(t)$. Kurve 1 und 2: $G'(t)$ für jeweils $w = w_1$ und $w = w_2$. Die gestrichelten Linien e_1 und e_2 stellen die jeweiligen HFB-Gleichgewichtslösungen dar.

In allen beschriebenen Fällen erreicht die Kinetik asymptotisch die Voraussagen der Gleichgewichtstheorie und man kann daher davon ausgehen, dass in sehr guter Näherung die Kinetik des wechselwirkenden Bose-Gases beschrieben wird.

Obwohl dies in den ersten beiden Bildern (Abb. 7.1 und 7.2) mit dem Auge kaum aufzulösen ist, gibt es natürlich noch Abweichungen der asymptotischen numerischen Kinetik von den Ergebnissen der Gleichgewichtstheorie, wie zum Beispiel in den beiden Abb. 7.3 und 7.4 zu erkennen ist. Da es sich um numerische Rechnungen handelt, wird man keine exakte Übereinstimmung erwarten können, dennoch ist es sehr instruktiv, die Abweichungen systematisch zu untersuchen. In unserem Fall sind sie reduzierbar auf zwei Hauptquellen mit durchaus physikalischem Inhalt, also nicht nur in Rundungsfehlern begründet.

Der wichtigste Effekt sind Energiekorrekturen durch die akustischen Phononen: In der Quantenkinetik werden auch die komplexen Beiträge der Stoßterme berücksichtigt. Diese Terme ergeben im Markov-Limes die bekannten Hauptwertterme, die in Boltzmann-Gleichungen vernachlässigt werden und

als zeitabhängige Energiekorrekturen interpretiert werden können. Durch sie verhalten sich die quantenkinetischen Stoßterme nicht mehr als ein ideales Bad, sondern führen auch asymptotisch zu Abweichungen vom reinen HFB-Gleichgewicht ohne phononische Korrekturen. Durch unsere Berechnung mit erhöhter Kopplungskonstante werden diese Energiekorrekturen noch verstärkt und machen einen großen Teil der beobachtbaren Unterschiede aus.

Ein weiterer Effekt, der zu Abweichungen führt, ist die phänomenologische zusätzliche Dämpfung des Integralkerns mit γ . Diese führt für große Zeiten zu lorentzisch verbreiterten Deltafunktionen in den asymptotischen Quasiteilchenenergien, deren automatische Verbreiterung zu einer Verletzung der detaillierten Bilanz führt, und damit auch zu Abweichungen vom Gleichgewicht (eine bessere Kinetik mit den geschickter verbreiterten Deltafunktionen des letzten Kapitels als Limes, ist formulierbar, führt allerdings zu größerem numerischem Aufwand bei ihrer Lösung).

Beide Effekte verschwinden bei sehr langen numerischen Rechnungen (mit kleiner Kopplungskonstante bzw. mit einer sinnvollen Kombination aus kleiner Dämpfung und feinem Impulsraumgitter) und sind daher sicher kein Argument gegen den Erfolg dieser kinetischen Behandlung der Kondensation.

Die bisherigen Berechnungen waren auf die zwei physikalisch sinnvollen Kopplungskonstanten $w = w_1$ und $w = w_2$ beschränkt, für die man asymptotische Stationarität und gute Übereinstimmung mit der Gleichgewichtstheorie fand. Um nun aber die Gültigkeit dieser Aussage in einem größeren Parameterbereich für w zu belegen, wird die Kinetik für viele X-X-Kopplungen durchgerechnet, der asymptotische Wert entnommen und mit dem Gleichgewicht verglichen. Auf diese Weise erhält man aus einer ganzen Reihe von numerischen Einzelsimulationen eine Kurve, in der die Abhängigkeit der Asymptotik der Kinetik und der Gleichgewichtstheorie von der X-X-Kopplung deutlich wird. In den entsprechenden Abbildungen Abb. 7.5, Abb. 7.6 und Abb. 7.7 sind die Übereinstimmungen also im gesamten Parameterbereich für w sehr gut. Selbst in Abb. 7.7 sind die Abstände zwischen asymptotischer Kinetik und HFB-Gleichgewicht sehr gering. Man sieht aber in dieser Abbildung deutlich, dass die Differenz der beiden Kurven eine konstante Verschiebung ist, was eben charakteristisch für die w unabhängige Energiekorrektur der Phononen ist.

Natürlich bezieht sich die mehrmals erwähnte Stationarität auf die Absolutbeträge der komplexen Größen. In der Analyse der stationären HFB-Theorie wurde schon gezeigt, dass im zeitlich stationären Kondensat alle komplexen Mittelwerte mit μ rotieren (Gl. (7.22)). Es ist wohl eine der faszinierendsten Eigenschaften der quantenkinetischen Stoßterme, dass sie in der Tat diese Rotation erst antreiben und dann permanent erhalten. In Abb. 7.8 wird ge-

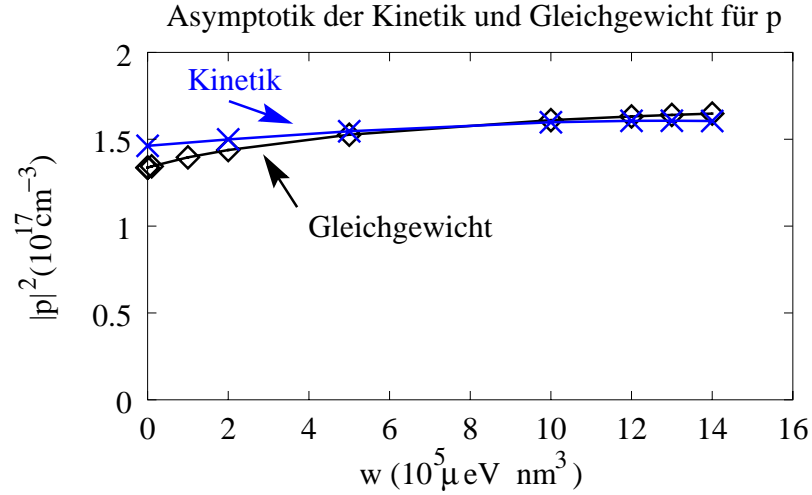


Abbildung 7.5: Vergleich zwischen der asymptotischen Polarisation $|p|$ der vollen Kinetik (x) und dem entsprechenden Gleichgewichtswert der HFB-Theorie (\diamond). Gezeigt ist die Abhängigkeit von der X-X-Wechselwirkung w . Die durchgezogenen Linien sind einfache Verbindungen der berechneten Punkte zur Veranschaulichung der Gesetzmäßigkeit.

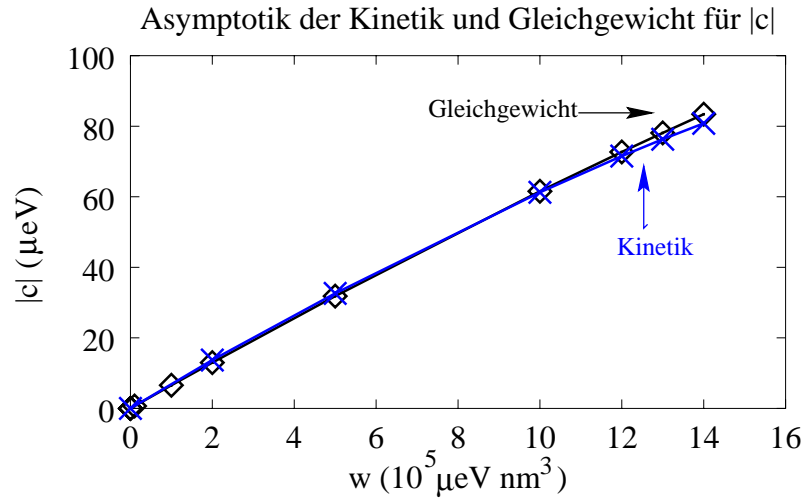


Abbildung 7.6: Vergleich zwischen der asymptotischen anomalen Dichte $|c|$ der vollen Kinetik (x) und dem entsprechenden Gleichgewichtswert der HFB-Theorie (\diamond). Gezeigt ist die Abhängigkeit von der X-X-Wechselwirkung w .

zeigt, dass asymptotisch p mit μ und $\sum_k F_k$ mit 2μ rotieren, wie in der HFB-Theorie gefordert.

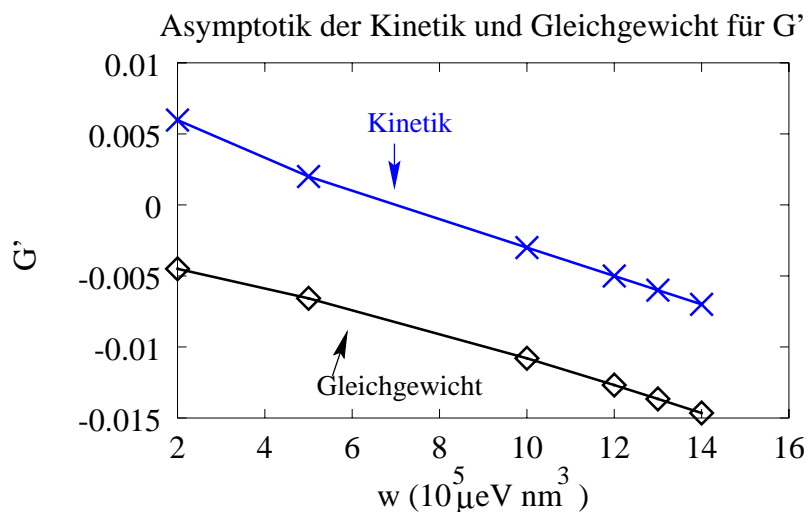


Abbildung 7.7: Vergleich zwischen dem asymptotischen großkanonischen Potential G' der vollen Kinetik (x) und dem entsprechenden Gleichgewichtswert der HFB-Theorie (\diamond). Gezeigt ist die Abhängigkeit von der X-X-Wechselwirkung w .

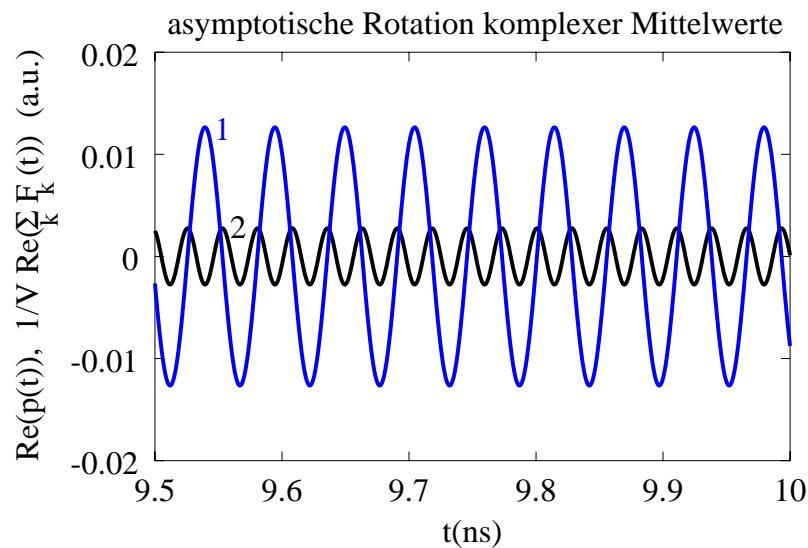


Abbildung 7.8: Asymptotische Dynamik des Realteils der Polarisation $p(t)$ (Kurve 1) und der Summe der anomalen Funktionen $\frac{1}{V} \sum_{\vec{k}} F_k(t)$ (Kurve 2).

7.4 Diskussion

Zuletzt wurde an zahlreichen Beispielen belegt, dass mit einer quantenkinetischen Formulierung die BEC des wechselwirkenden Bose-Gases beschrieben werden kann. Nun sollen die physikalischen Konsequenzen diskutiert werden, die aus der Kinetik gezogen werden können.

Zuerst ergeben sich Konsequenzen für die Kondensation von Exzitonen in Cu_2O . In Abb. 7.1 erkennt man, dass sowohl die Größe des asymptotischen Kondensates als auch die Kondensationsgeschwindigkeit von der Wechselwirkung w abhängt. In beiden Punkten weichen die Voraussagen der wechselwirkenden Theorie signifikant von der freien Theorie ab.

Obwohl dies für den asymptotischen Wert des Kondensates aus der Gleichgewichtstheorie eigentlich schon lange bekannt sein sollte, wird diese Tatsache in der Literatur meistens übersehen. Die Abschätzung von Kondensatanteilen werden im Allgemeinen auf der Basis der freien Theorie durchgeführt, obwohl in den entsprechenden Dichtebereichen die Wechselwirkungseffekte essenziell sind.

Ganz neu und brisant ist die Aussage über die Kondensationsgeschwindigkeit. Aus Abb. 7.1 kann entnommen werden, dass die Geschwindigkeit der Kondensation nicht nur durch die Phononen bestimmt ist, sondern auch mit der Kopplungsstärke der kohärenten X-X-Wechselwirkung zunimmt!

Bei der typischen X-X-Wechselwirkung in Cu_2O wird die Kinetik durch den kohärenten Aufbau der Quasiteilchen wesentlich schneller. Bekannte Verlangsamungseffekte, wie zum Beispiel die Phononen-„Bottle-neck“, spielen überhaupt keine Rolle!

In der Literatur gibt es jedoch viele Kondensationszeitabschätzungen auf der Basis der Boltzmann-Gleichung mit freien Teilchen. Alle diese Ergebnisse scheinen im Rahmen der genaueren Quantenkinetik zumindest fragwürdig und zukünftige Voraussagen sollten durchaus mit quantenkinetischen Methoden überprüft werden.

In Abb. 7.3 wurden die asymptotische Verteilungsfunktion und die Gleichgewichtsverteilungen gezeigt. Hieraus kann man wieder experimentell relevante Konsequenzen für Cu_2O extrahieren. Der Vergleich der freien Theorie auf der einen Seite (Kurve 0) und der HFB-Theorie (Kurve 1) bzw. der Asymptotik auf der anderen Seite zeigt erhebliche Unterschiede, da eben bei letzteren nicht die Exzitonen, sondern die HFB-Quasiteilchen Bose-verteilt sind.

Die Exziton-Verteilungsfunktion der wechselwirkenden Theorie divergiert nicht bei $k = 0$ und die Verteilung ist bei kleinen k -Werten wesentlich flacher als eine Bose-Funktion mit $\mu = 0$, hat aber längere Ausläufer.

In verschiedenen Veröffentlichungen [128, 129] wurde mit zweifelhaftem Erfolg versucht, experimentelle X-Verteilungen mit Bose-Verteilungen und $\mu = 0$ anzufitten. Dies geschah in dem festen Glauben, dass dies die wahre Verteilungsfunktion eines Kondensates sei. Wieder erscheinen diese Versuche im Rahmen unserer Theorie als wenig überzeugend.

Es soll jedoch zu diesem Punkt noch einmal einschränkend erwähnt werden, dass für eine echt quantitative Voraussage der HFB-Verteilungsfunktion wahrscheinlich ein größerer k -Raum und die Impulsabhängigkeit der X-X-Wechselwirkung mitgenommen werden müssen. Doch weist unser Zugang schon ausreichend auf die qualitative Wichtigkeit und den Trend der Wechselwirkungseffekte hin.

Jetzt werden die theoretischen, materialunabhängigen Konsequenzen aus den Gleichungen erläutert. In Abb. 7.4 wurde die Kinetik des großkanonischen Potentials gezeigt. In der Tat wird dort asymptotisch der minimale Wert der Gleichgewichtstheorie erreicht.

Darüber hinaus zeigt sich jedoch eine weitere interessante Eigenschaft: Das großkanonische Potential ist sowohl bei den gezeigten als auch bei allen anderen berechneten Kurven eine mit der Zeit streng monoton fallende Funktion. Man kann dies sehr gut mit dem \mathcal{H} -Theorem der klassischen Boltzmann-Gleichung vergleichen. In unserem Fall liegt jedoch im Gegensatz zu diesem nur ein „numerischer Beweis“ für die Monotonie von G vor, da die analytische Behandlung der quantenkinetischen Gleichungen durch ihre wesentliche Nichtlokalität und Nichtlinearität erschwert wird.

Von großem Interesse ist sicher die Rotation der komplexen Größen im stationären Zustand (Abb. 7.8). Obwohl diese Aussage für die HFB-Theorie leicht zu belegen war (Gl. (7.22)), scheint sie von größerer Allgemeinheit. Die Aussage zur Rotation kann durch Einführung der vollen Dichtematrix ρ zusammengefasst werden zur asymptotischen Dynamik

$$\rho(t) \xrightarrow{t \rightarrow \infty} \frac{1}{Z} e^{\frac{i}{\hbar} \mu N t} e^{-\beta(H_{eq}^{HFB} - \mu N)} e^{-\frac{i}{\hbar} \mu N t} . \quad (7.55)$$

Diese Aussage geht immer dann in die einfache großkanonische Dichtematrix über, wenn der Teilchenzahloperator N mit H vertauscht.

In der Tat ist dieses Theorem für jeden beliebigen Hamilton-Operator H_{ssb} relevant, der spontane Symmetriebrechung (ssb) bezüglich der Teilchenzahlerhaltung aufweist. Dies gilt auch für den Fall, dass er mathematisch mit N kommutiert.

Hierfür kann man einen heuristischen Beweis angeben, bei dem die Standardmotivation zur Ableitung von Boltzmann-Gleichungen auf den Fall mit Symmetriebrechung verallgemeinert wird.

Hierfür betrachtet man ein System mit Reservoir und seine Gesamt-Dichtematrix ρ . Der Hamiltonoperator H_{ssb} hat spontane Symmetriebrechung in Bezug auf die Teilchenzahl. Um nun eine Dynamik zum großkanonischen Gleichgewicht zu erhalten, definiert man $\rho'(t)$ durch

$$\rho'(t) = e^{-\frac{i}{\hbar}\mu N t} \rho(t) e^{+\frac{i}{\hbar}\mu N t} .$$

Für diesen Operator ist die Bewegungsgleichung gegeben durch

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho'(t) = [H_{ssb} - \mu N + H_{bath} + H_{int}, \rho'(t)]_- .$$

Dabei ist H_{bath} das Bad und H_{int} seine Wechselwirkung zum Subsystem H . Von dieser Gleichung kann man nun erwarten, dass im van-Hove-Limes die Dichtematrix des Subsystems $\rho'_{sub}(t)$ in einer Art Boltzmann-Gleichung zum großkanonischen Gleichgewicht geht. Jedoch, wie schon mehrmals in dieser Arbeit gezeigt, konvergiert bei symmetriebrechender Anfangsbedingung $\rho'_{sub}(0)$ das System in das kondensierte Gleichgewicht mit Symmetriebrechung. Diesen Zustand kann nach Bogoljubov durch einen Bogoljubov-Limes ausgedrückt werden:

$$\rho'_{sub} = \lim_{\eta \rightarrow 0} \frac{1}{Z} e^{\beta(H_{ssb} - \mu N + \eta N^\pm)} ,$$

wobei N^\pm ein Term mit expliziter Symmetriebrechung ist. Für ρ_{sub} gilt dann

$$\rho_{sub}(t) = e^{-\frac{i}{\hbar}\mu N t} \rho'_{sub}(t) e^{+\frac{i}{\hbar}\mu N t} ,$$

und die Exponentialfunktionen können wegen des symmetriebrechenden Terms nicht mit ρ vertauscht werden.

In diesem Sinne kann man annehmen, dass mit dem Rotationstheorem eine allgemeine neue Eigenschaft symmetriebrechender Systeme gefunden wurde, was großes Potential in seiner Auswirkung auf verschiedenste Wissenschaftsfelder hat.

Ein weiteres wesentliches theoretisches Ergebnis dieser Arbeit ist eine sehr generelle Aussage: **Nicht nur im Ultrakurzzeitbereich, sondern auch im Fall zeitabhängiger Spektren (wenn „ H_0 “ von der Zeit abhängt) ist die Quantenkinetik die passende Theorie. Reine Boltzmann Zugänge sind kein adäquates Mittel zur Beschreibung solcher Kinetik!** Aus diesem Grund scheint die Quantenkinetik auch hervorragend geeignet für atomare Kondensationsexperimente, wie sie gerade großes Aufsehen erregen. Ihre Anwendung in diesem Bereich ist noch nicht untersucht und ist sehr vielversprechend. Denn gerade in diesen Experimenten scheinen die kohärenten

und die inkohärenten Wechselwirkungsprozesse wesentlich zum allgemeinen Verständnis.

Der hier entwickelte Formalismus läßt sich auch für atomare Experimente umformulieren: Ob bosonisches Exziton oder bosonisches Atom ist gleichgültig, jedoch müssen die Parameter und die Wechselwirkung angepasst werden. Sowohl die Boson-Boson Streuung als auch die spektralen Modifikationen durch die atomare Falle lassen sich im vorgestellten Formalismus behandeln. Da überdies das atomare Problem vom numerischen Standpunkt her lösbar sein sollte, kann man noch zahlreiche Anwendungen der Quantenkinetik in der Theorie der Bose-Kondensation erwarten.

Die Anwendung der Quantenkinetik in atomaren Systemen wurde zwar schon angedacht (zumindest erschienen Artikel mit einer entsprechenden Überschrift), doch diese Ansätze haben sehr wenig mit dem in dieser Arbeit entwickelten Formalismus gemein. Obwohl Gardiner [130] das Wort Quantenkinetik für seine Gleichungen benutzt, vernachlässigt er nach langen Herleitungen in einem Mastergleichungsformalismus alle Anomalien und den Ordnungsparameter und löst eine einfache Markov-Ratengleichung für die Besetzungszahlen in einer atomaren Falle. Dieser Zugang ähnelt konzeptionell eher den Ausführungen in Kapitel 6. Eine andere Arbeit über „Quantenkinetik“ von Walser [131] geht über diese Näherung hinaus und berücksichtigt auch anomale Funktionen. Jedoch auch in dieser Arbeit wird ein Markov-Limes durchgeführt, so dass in unserem Sinne keinerlei quantenkinetische Konzepte benutzt werden. Die dort resultierenden Gleichungen haben konzeptionelle Ähnlichkeit mit der Kinetik aus Kapitel 5, ihre numerische Lösung wird jedoch in der Arbeit [131] nicht diskutiert.

Weitergehende Vorstellungen von der Anwendung dieser Methoden auf die Kinetik anderer Hartree-Fock Systeme, wie zum Beispiel die Spinkinetik in Heisenberg-Magneten, sind zwar etwas spekulativ, aber durchaus vorstellbar. **Der Formalismus scheint passend für die Kinetik jedes Hartree-Fock-Systems mit Phasenübergang, unabhängig vom wesentlichen Streumechanismus. Dies wäre eine große Ausdehnung des Anwendungsbereichs der Quantenkinetik, der bisher fast ausschließlich auf schnelle Prozesse beschränkt wurde.**

Kapitel 8

Zusammenfassung

Die Kinetik der Quantenkohärenz entarteter bosonischer Exzitonen bietet ein reiches Spektrum von interessanten Phänomenen, die in dieser Arbeit unter vielfältigen Aspekten untersucht wurden. Dabei lag das Interesse vor allem im Wechselspiel von kohärenten und inkohärenten Prozessen, die mit Hilfe der Vielteilchentheorie auf gemeinsamer Basis behandelt werden konnten. Dies ermöglichte die Beschreibung zweier völlig gegensätzlicher Prozesse:

- Den Übergang einer nach Laserpulsanregung rein kohärenten Amplitude in eine Gleichgewichtsverteilung inkohärenter Bosonen unter totalem Verlust jeglicher Phase (Zerfall von Quantenkohärenz).
- Den entgegengesetzten Vorgang des spontanen Aufbaus einer makroskopischen kohärenten Amplitude aus einer inkohärenten Verteilung von Exzitonen, den typischen Vorgang in einer Bose-Einstein-Kondensation (Aufbau von Quantenkohärenz).

Die Arbeit begann mit einer getrennten Untersuchung der inkohärenten und der kohärenten Eigenschaften von Exzitonen in Quantendrähten. In diese Halbleiternanostrukturen führt das schwache Confinement zu Subbändern für Exzitonen und Biexzitonen, die sich auch in den komplizierten Auswahlregeln der Exziton-Exziton- und der Exziton-Biexziton-Wechselwirkung bemerkbar machen. Dabei ergibt sich in sehr guter Übereinstimmung mit Experimenten in Würzburg ein überraschendes Phänomen: Streuraten werden durch stärkeres Confinement nicht immer vermindert. In der Tat wurde eine Erhöhung der Exziton-Exziton-Streuung bei kleinerer Drahtbreite gefunden. Experimentell und theoretisch skalieren die Streuraten dabei mit dem inversen Quadrat der Confinement-Länge $\Gamma_{XX} \propto 1/L_x^2$. Dies könnte durchaus auch Auswirkungen auf den Bau optischer Devices haben, bei denen die Streuraten im Allgemeinen minimiert werden soll. Weiterhin wurde gezeigt, dass das Exzitonsystem

durch die Kopplung an Biexzitonen für höhere Intensitäten in völlig irreguläres Verhalten übergeht.

Daran anschließend wurde eine vereinheitlichende Kinetik mit Hilfe der Nichtgleichgewicht-Diagrammtechnik formuliert, die kohärentes und inkohärentes Verhalten gemeinsam auf mikroskopischer Skala beschreibt.

Die bosonische Diagrammtechnik war dabei zwar von Methoden für Nichtgleichgewichtsfermionen inspiriert, viele fundamentale Aspekte ohne Analogie in Fermionensystemen oder bosonischen Gleichgewichtssystemen mussten jedoch in dieser Arbeit neu entwickelt werden.

Für die gesamte bosonische Einteilchendichtematrix, die sowohl eine kohärente Amplitude $\langle a_0(t) \rangle$ als auch Besetzungszahlen $\langle a_k^+(t)a_k(t) \rangle$ und Paarkorrelationen $\langle a_k(t)a_{-k}(t) \rangle$ bei endlichen Impulsen k enthält, wurde eine Markov-Kinetik entwickelt. Mit deren Hilfe wurde dann die Dephasierungskinetik einer exzitonen Polarisation nach Anregung mit einem kohärenten Laserpuls untersucht. Dabei konnte der gesamte Übergang von kohärent erzeugten Exzitonen zu einer inkohärenten Gleichgewichtsverteilung allein aufgrund der Exziton-Exziton-Wechselwirkung auf mikroskopischer Ebene simuliert und verstanden werden. Erstaunlicherweise stellt sich bei diesem Prozess die Berücksichtigung der Paarkorrelationen $F_k = \langle a_k a_{-k} \rangle$, die zwei Exzitonen mit Impuls k und $-k$ korrelieren, als absolut notwendig heraus. Ohne diese Korrelation zerfällt eine einmal kohärent angeregte Exzitonpolarisation überhaupt nicht durch Exziton-Exziton-Streuung und das System bleibt völlig kohärent. Bei diesen Berechnungen zur Dephasierung zeigte sich auch erstmals in dieser Arbeit, dass die prinzipielle Fähigkeit der Exzitonen zu einer Kondensation selbst unterhalb der kritischen Dichte die Kinetik der Polarisation beeinflusst. Dabei spielt eine Besonderheit der Kondensation von Exzitonen eine wesentliche Rolle, die keine Äquivalenz in atomaren Systemen hat: die Identität des Ordnungsparameters der Bose-Einstein-Kondensation (BEC) mit der direkt messbaren optischen Polarisation. So zeigt sich ein auf den ersten Blick überraschendes Phänomen: In der Nähe des Phasenübergangs verliert die allgemein anerkannte lineare Dichteabhängigkeit der Dephasierungsrate $\Gamma_{XX}(n) = \gamma n$ („excitation induced dephasing“) ihre Gültigkeit. Stattdessen erhält man eine signifikante Verlangsamung der Polarisationsdephasierung, wie man sie aus vielen Phasenübergängen für die Dynamik des Ordnungsparameters kennt („critical slowing down“). Diese Tendenz der Gleichungen die Quantenkohärenz der Interband-Polarisation in der Nähe der Kondensation zu erhalten, kann als erstes experimentell messbares Kriterium für eine Annäherung an den Phasenübergang verwendet werden. Aufgrund der unvermeidlich kurzen Exziton-Lebensdauer eignet sich dieses Nichtgleichgewichtsphänomen für eine Beobachtung der BEC von Exzitonen möglicherweise bes-

ser als die üblichen Gleichgewichtsargumente.

Um die Kinetik der Kondensation besser zu verstehen, wurde danach die Markov-Kinetik von Exzitonen in Wechselwirkung mit einem Phononenbad behandelt. Als Anfangsbedingung wurde sowohl eine inkohärente Verteilung als auch eine rein kohärente Amplitude untersucht, die durch einen Lichtpuls erzeugt wurde.

Bei der Herleitung der markovschen Ratengleichungen im Kondensationsregime sind beim thermodynamischen Limes und bei der Behandlung der detaillierten Bilanz einige subtile Punkte unbedingt zu beachten. Durch deren konsequente Berücksichtigung wurden Ratengleichungen erhalten, die von den Literatur-üblichen abweichen. Die abgeleiteten Stoßterme wechseln oberhalb der kritischen Dichte für eine BEC spontan das Vorzeichen, was zum Aufbau eines Kondensates und erstmals auch asymptotisch zu einer Bose-Einstein-Kondensation des freien Bose-Gases innerhalb der Lebenszeit der Paraexzitonen von Cu_2O führt.

Auch die Dephasierungsrate der Polarisation nach Laserpulsanregung aufgrund von Phononenstreuung Γ_{XP} zeigt in der Nähe des Phasenübergangs Abweichungen von der erwarteten Dichteunabhängigkeit und verschwindet quadratisch an der kritischen Dichte n_c : $\Gamma_{XP}(n) \propto (n - n_c)^2$. Das Zerfallsgesetz ändert sich bei höheren Intensitäten in eine Potenzgesetzrelaxation zur stationären BEC. Beide Gesetze haben große experimentelle Relevanz bei der Suche nach einer BEC in Halbleitern.

Obwohl in der Markov-Kinetik die BEC des freien Bose-Gases erfolgreich simuliert wurde, geht diese Eigenschaft bei der Mitnahme der kohärenten Exziton-Exziton-Wechselwirkung sofort verloren. Die Gleichungen beschreiben dann entweder den Aufbau oder den Zerfall der Quantenkohärenz falsch. Der Grund hierfür wurde in der Unstimmigkeit zwischen markovschen Stoßtermen mit festen Energien und dem Aufbau des kohärenten Bose-Einstein-Kondensats des wechselwirkenden Bose-Gases gefunden, bei dem die Energien der Quasiteilchen zeitabhängig werden.

Dieses Dilemma konnte im letzten Kapitel durch eine quantenkinetische Formulierung der Kinetik mit expliziten Gedächtnisintegralen als Stoßterme gelöst werden. Dabei werden die Deltafunktionen durch komplexe Integralkerne ersetzt, bei denen die zeitliche Evolution der Quasiteilchenspektren exakt berücksichtigt werden.

Mit dieser Methode gelingt es erstmals, den zeitlichen Aufbau der BEC des wechselwirkenden Bose-Gases erfolgreich zu simulieren. Die involvierten Zeitskalen der Kondensation, die asymptotischen Verteilungsfunktionen der Exzitonen und die Kondensatanteile weichen dabei unter den Bedingungen typi-

scher Experimente in Cu_2O stark vom freien Gas ab. Die Beträge aller anomalen Größen (also auch p und F_k) erreichen den von der Gleichgewichtstheorie mit Wechselwirkung vorausgesagten Wert, oszillieren jedoch asymptotisch mit Vielfachen des chemischen Potentials, das in dieser Kondensation nicht verschwindet.

Die erste theoretische Realisierung des Aufbaus der nichttrivialen BEC eines wechselwirkenden Bose-Gases, mit der allein z.B. viele Interferenzexperimente und Superfluidität erklärbar sind, ist von großem fundamentalen Interesse. Sie weist auch über das Thema dieser Arbeit hinaus und könnte Anstoß für ähnliche Simulationen der Kondensation in atomaren Fallen und anderen „mean-field“ Phasenübergänge geben.

Literaturverzeichnis

- [1] O. Madelung, Introduction to Solid State Theory, Springer, Berlin, 1978
- [2] J.M. Ziman, Principles of the Theory of Solids, Cambridge University Press, London, 1972
- [3] D.K. Ferry, Semiconductors, Macmillan, New York, 1991
- [4] A.I. Anselm, Einführung in die Halbleiterteorie, Akademie Verlag Berlin, Berlin, 1964
- [5] H. Haug and S.W. Koch, Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors, World Scientific, Singapore, 1994
- [6] N. Petyghamberian, S.W. Koch, and A. Mysyrowicz, Introduction to Semiconductor Optics, Trentice Hall, Englewood Cliffs, 1993
- [7] J. Shah, Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures, Springer, Berlin, 1996
- [8] D.C. Reynolds and T.C. Collins, Excitons, their Properties and Uses, Academic Press, New York, 1981
- [9] S.N. Bose, Z. Phys. **26**, 178 (1924)
- [10] A. Einstein, Sitzber. Kgl. Preuss. Akad. Wiss., 261 (1924) und 3 (1925)
- [11] N.N. Bogolubov, Physica **26S**, 1 (1960)
- [12] V.I. Yukalov and A.S. Shumovsky, Lectures on Phase Transitions, World Scientific, Singapore, 1990
- [13] L. Bányai, P. Gartner, **O.M. Schmitt**, and H. Haug, Phys. Rev. B **61**, 8823 (2000)

-
- [14] M. Kira, W. Hoyer, F. Jahnke, and S.W. Koch, *phys. stat. sol. (b)* **221**, 301 (2000)
 - [15] M. Kira, F. Jahnke, S.W. Koch, J.D. Berger, D.V. Wick, T.R. Nelson, Jr., and H.M. Gibbs, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5170 (1997)
 - [16] L. Bányai and S.W. Koch, *Semiconductor Quantum Dots*, World Scientific, 1993
 - [17] T. Usui, *Prog. Theor. Phys.* **23**, 787 (1960)
 - [18] H. Haug and S. Schmitt-Rink, *Prog. Quant. Electr.* **9**, 3 (1984)
 - [19] A.I. Ansel'm and Iu.A. Firsov, *Sov. Phys. JETP* **1**, 139 (1954)
 - [20] Y. Toyozawa, *Prog. Theo. Phys.* **20**, 53 (1958)
 - [21] H. Haug and A.P. Jauho, *Quantum Kinetics in Transport and Optics of Semiconductors*, Springer, Berlin, 1996
 - [22] M. Bonitz, *Quantum Kinetic Theory*, Teubner, Stuttgart, 1998
 - [23] T. Kuhn, *Ladungsträgerdynamik in Halbleitersystemen fern vom Gleichgewicht: Elektronisches Rauschen und kohärente Prozesse*, Habilitation, Shaker, Aachen (1994)
 - [24] L.A. Bányai, Q.T. Vu, B. Mieck, and H. Haug, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 882 (1998)
 - [25] Q.T. Vu and H. Haug, *Phys. Rev. B* **62**, 7179 (2000)
 - [26] G. Bartels, A. Stahl, V.M. Axt, B. Haase, U. Neukirch and J. Gutowski, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5880 (1998)
 - [27] L.V.Keldysh, *JETP* **20**, 1018 (1965)
 - [28] E.M.Lifshitz and L.P.Pitajewski, *Landau/Lifshitz Band X: Physikalische Kinetik*, Akademie Verlag 1983
 - [29] P. Lipavsky, V. Spicka, and B. Velicky, *Phys. Rev. B* **34**, 6933 (1986)
 - [30] W. Braun, M. Bayer, A. Forchel, **O.M. Schmitt**, L. Bányai, and H. Haug, *Phys. Rev. B* **57**, 12364 (1998)
 - [31] W. Braun, *Dissertation Bayerische Julius-Maximilians-Universität Würzburg* (1998)

-
- [32] G. Bastard, *Wave Mechanics Applied to Semiconductor Heterostructures*, Les Editions de Physique, Paris (1988)
- [33] C. Weisbuch and B. Vinter, *Quantum Semiconductor Structures: Fundamentals and Applications*, Academic Press, San Diego, 1991
- [34] M. Kohl, D. Heitmann, P. Grambov, and K. Ploog, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 2124 (1989)
- [35] F. Rossi, G. Goldoni, and E. Molinari, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 3257 (1997)
- [36] A.L. Efros and A.L. Efros, *Sov. Phys. Semicond.* **16**, 772 (1982)
- [37] W. Braun, M. Bayer, A. Forchel, H. Zull, J.P. Reithmaier, A.I. Filin, S.N. Walck, and T.L. Reinecke, *Phys. Rev. B* **55**, 9290 (1997)
- [38] M. Oestreich, W.W. Rühle, H. Lage, D. Heitmann and K. Ploog, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1682 (1993)
- [39] E.J. Mayer, J.O. White, G.O. Smith, H. Lage, D. Heitmann, K. Ploog and J. Kuhl, *Phys. Rev. B* **49**, 2993 (1994)
- [40] A. Honold, L. Schultheis, J. Kuhl, and C.W. Tu, *Phys. Rev B* **40**, 6442 (1989)
- [41] D.S. Kim, J. Shah, J.E. Cunningham, T.C. Damen, W. Schäfer, M. Hartmann, and S. Schmitt-Rink, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1006 (1992)
- [42] H.P. Wagner, W. Langbein, J.M. Hvam, G. Bacher, T. Kümmel, and A. Forchel, *Phys. Rev. B* **57**, 1797 (1998)
- [43] **O.M. Schmitt**, L. Bányai, and H. Haug, *Solid State Comm.* **111**, 741 (1999)
- [44] T. Baars, W. Braun, M. Bayer, and A. Forchel *Phys. Rev. B* **58**, R1750 (1998)
- [45] E.J. Mayer, G.O. Smith, V. Heuckeroth, J. Kuhl, K. Bott, A. Schulze, T. Meier, D. Bernhardt, S.W. Koch, P. Thomas, R. Hey, and K. Ploog, *Phys. Rev. B* **50**, 14730 (1994)
- [46] T.F. Albrecht, K. Bott, T. Meier, A. Schulze, M. Koch, S.T. Cundiff, J. Feldmann, W. Stolz, P. Thomas, S.W. Koch, and E.O. Göbel, *Phys. Rev. B* **54**, 4436 (1996)

-
- [47] E.J. Mayer, J.O. White, G.O. Smith, H. Lage, D. Heitmann, K. Ploog, and J. Kuhl, *Phys. Rev. B* **49**, 2993 (1994)
- [48] D. Oberhauser, K.H. Pantke, W. Langbein, V.G. Lyssenko, H. Kalt, J.M. Hvam, G. Weinmann, and C. Klingshirn, *phys. stat. sol. b* **173**, 53 (1993)
- [49] D.A. Kleinman, *Phys. Rev. B* **28**, 871 (1983)
- [50] A.L. Ivanov and H. Haug, *Phys. Rev. B* **48**, 1490 (1993)
- [51] E. Hanamura, *Solid State Comm.* **12**, 95 (1973)
- [52] W. Schäfer, D.S. Kim, J. Shah, T.C. Damen, J.E. Cunningham, K.W. Goosen, L.N. Pfeiffer, and K. Köhler, *Phys. Rev. B* **53**, 16429 (1996)
- [53] G. Bartels, V.M. Axt, K. Victor, A. Stahl, P. Leisching, and K. Köhler, *Phys. Rev. B* **51**, 11217 (1995)
- [54] V.M. Axt and A. Stahl, *Z. Phys. B* **93**, 195 (1994)
- [55] Th. Östreich, K. Schönhammer, and L.J. Sham, *Phys. Rev. Lett* **74**, 4698 (1995)
- [56] I.V. Belousov and V.V. Frolov, *Phys. Rev. B* **54**, 2523 (1996)
- [57] L.V. Keldysh in Ref. [58], p. 246
- [58] A. Griffin, D.W. Snoke and S. Stringari, eds., *Bose-Einstein Condensation*, Cambridge University Press, Cambridge, 1995
- [59] D.W. Snoke and J.P. Wolfe, *Phys. Rev. B* **39**, 4030 (1989)
- [60] W. Zhao, P. Stenius, and A. Immamoglu, *Phys. Rev. B* **56**, 5306 (1997)
- [61] V.M. Axt, K. Victor, and T. Kuhn, *phys. stat. sol.(b)* **206**, 189 (1998)
- [62] Yu. Kagan in Ref. [58], p. 202
- [63] Yu. Kagan and B.V. Svistunov, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 3331 (1997)
- [64] D.V. Semikoz and I.I. Tkachev, *Phys. Rev. D* **55**, 489 (1997)
- [65] **O.M. Schmitt**, L. Bányai, and H. Haug, *Phys. Rev. B* **60**, 16506 (1999)

-
- [66] **O.M. Schmitt**, L. Bányai, and H. Haug, *Journal of Lum.* **87-89**, 168 (2000)
- [67] A.L. Ivanov, H. Haug, and L.V. Keldysh. *Phys. Rep.* **296**, 237 (1998)
- [68] S.G. Tikhodeev, *Sov. Phys. JETP* **70**, 380 (1990)
- [69] C.Ell. A.L. Ivanov, and H. Haug, *Phys. Rev. B* **57**, 9663 (1998)
- [70] D.B. Tran Thoai and H. Haug, *Solid State Comm.* **115**, 379 (2000)
- [71] D.B. Tran Thoai and H. Haug, *Solid State Comm.* **116**, 253 (2000)
- [72] G.P. Collins, *Spektrum der Wissenschaft* **2**, 50 (2001)
- [73] L. Tisza, *Nature*, **141**, 913 (1938)
- [74] L.D. Landau, *J. Phys. USSR* **5**, 71 (1941)
- [75] M.H. Anderson, J.R. Ensher, M.R. Matthews, C.E. Wiemann, and E.A. Cornell *Science* **269**, 198 (1995)
- [76] K.B. Davis, M.O. Mewes, M.R. Andrews, N.J. van Druten, D.S. Durfee, D.M. Kurn, and W. Ketterle, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 3969 (1995)
- [77] C.C. Bradley, C.A. Sackett, J.J. Tollet, and R. Hulet, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1687 (1995)
- [78] D.G. Fried, T.C. Killian, L. Willmann, D. Landhuis, S.C. Moss, D. Kleppner, and T.J. Greytak, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 3811 (1998)
- [79] M.R. Andrews, C.G. Townsend, H.-J. Miesner, D.S. Durfee, D.M. Kurn, and W. Ketterle, *Science* **275**, 637 (1997)
- [80] I. Bloch, T.W. Hänsch, and T. Esslinger, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3008 (1999)
- [81] M.R. Matthews, B.P. Anderson, P.C. Haljan, D.S. Hall, C.E. Wieman, and E.A. Cornell, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2498 (1999)
- [82] C. Raman, M. Köhl, R. Onofrio, D.S. Durfee, C.E. Kuklewicz, Z. Hadzibabic, and W. Ketterle, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2502 (1999)
- [83] A. Mysyrowicz, E. Benson, and E. Fortin, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 896 (1996)
- [84] E. Fortin, S. Fafard, and A. Mysrowicz, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 896 (1996)

-
- [85] E. Benson, E. Fortin, B. Prade, and A. Mysyrowicz, *Europhys. Lett.* **40**, 311 (1997)
- [86] L.V. Butov and A. Filin, *Phys. Rev. B* **58**, 1980 (1998)
- [87] J.L. Lin and J.P. Wolfe, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1222 (1993)
- [88] T. Goto, M. Y. Shen, S. Koyama, and T. Yokuchi, *Phys. Rev. B* **55**, 7609 (1997)
- [89] G.A. Bulatov, N.A. Gippius, and S.G. Tikhodeev, *Solid State Commun.* **99**, 93 (1996)
- [90] I. Loutsenko and D. Roubtsov, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 3011 (1997)
- [91] A. Jolk and C. Klingshirn, *phys. stat. sol. (b)* **206**, 841 (1998)
- [92] H. Haug, *Journal of Lum.* **83-84**, 69 (1999)
- [93] **O.M. Schmitt**, D.B. Tran Thoai, P. Gartner, and H.Haug, *Eur. Phys. J. B* **16**, 217 (2000)
- [94] **O.M. Schmitt**, P. Gartner, L. Bányai, D.B. Tran Thoai, and H. Haug. *phys. stat. sol. (b)*, **221**, 221 (2000)
- [95] A. L. Ivanov, C. Ell, and H. Haug, *Phys. Rev. E* **55**, 6363 (1997)
- [96] V.T. Agekyan, *phys. stat. sol. (a)* **43**, 11 (1977)
- [97] J.P. Wolfe, J.L. Lin, and D.W. Snoke in [58]
- [98] D. Snoke, *Science* **273**, 1351 (1996)
- [99] K.E. O'Hara, J.R. Gullingsrud, and J.P. Wolfe, *Phys. Rev. B* **60**, 10872 (1999)
- [100] K.E. O'Hara, L. O. Suilleabhain, and J.P. Wolfe, *Phys. Rev. B* **60**, 10565 (1999)
- [101] G.M. Kavoulakis and A. Mysyrowicz, *Phys. Rev. B* **61**, 16619 (2000)
- [102] S. Schuster and H. Haug. *J. Opt. Soc. Am. B* **13**, 1605 (1996)
- [103] H.T.C. Stoof, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 768 (1997)
- [104] H.T.C. Stoof, *J. Low Temp. Phys.* **114**, 11 (1999)

-
- [105] R. Graham, Phys. Rev. Lett. **81**, 5262 (1998)
- [106] H. Haug, Phys. Rev. **184**, 338 (1969)
- [107] Th. Östreich, T. Portengen, and L.J. Sham, Solid State Comm. **100**, 325 (1996)
- [108] J.A. Leegwater and S. Mukamel, Chem. Phys. Lett. **217**, 456(1994)
- [109] A.S. Parkins and D.F. Walls, Physics Reports **303**, 1 (1998)
- [110] F. Dalfovo, S. Giorgini, L.P. Pitajevskii, and S.Stringari, Rev. Mod. Phys. **71**, 463 (1999)
- [111] P.C. Hohenberg and P.C. Martin, Ann. Phys. (N.Y.) **34**, 291 (1965)
- [112] K. Huang in [58]
- [113] **O.M. Schmitt**, D.B. Tran Thoai, P. Gartner, L. Bányai, and H. Haug, Phys. Rev. Lett. **86**, 3839 (2001)
- [114] M. Girardeau and R. Arnowitt, Phys. Rev. **113**, 755 (1959)
- [115] P. Dörre, H. Haug, and D. B. Tran Thoai, J. Low Temp. Phys. **35**, 465 (1979)
- [116] H. Haug and H.H. Kranz, Z. Phys. B **53**, 151 (1983)
- [117] H. Shi, G. Verechaka, and A. Griffin, Phys. Rev. B **50**, 1119 (1994)
- [118] M. Imamovic-Tomasovic and A. Griffin, Phys. Rev. A **60**, 494 (1999)
- [119] H. Shi and A. Griffin, Physics Reports **304**, 1 (1998)
- [120] Y. Pomeau and S. Rica, Europhys. Lett. **51**, 20 (2000)
- [121] M. Rusch and K. Burnett, Phys. Rev. A **59**, 3851 (1999)
- [122] D.N. Subarev, Statistische Thermodynamik des Nichtgleichgewichts, Akademie Verlag, Berlin, 1976
- [123] H. Haug, Statistische Physik, Vieweg Verlag, Braunschweig/Wiesbaden, 1997
- [124] J. des Cloizeaux in C. DeWitt, and R. Balian, eds., Problème à N corps, Gordon and Breach, New York, 1968

-
- [125] L. Landau and E.M. Lifschitz, *Statistische Physik Teil 2*, Akademie Verlag, Berlin, 1978
- [126] M.D. Girardeau, *Phys. Rev. A*, **58**, 775 (1998)
- [127] L.V. Keldysh, *phys. stat. sol. (b)*, **188**, 11 (1995)
- [128] Jia Ling Lin and J.P. Wolfe, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1222 (1993)
- [129] D. W. Snoke, J. P. Wolfe, and A. Mysyrowicz, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2544 (1990)
- [130] C.W. Gardiner, M.D. Lee, R.J. Ballagh, M.J. Davis, and P.Zoller, *Phys. Rev. Lett.* **24**, 5266 (1998)
- [131] R. Walser, J. Williams, J. Cooper, and M. Holland, *Phys. Rev. A* **59**, 3878 (1999)

Lebenslauf

Oliver Maximilian Schmitt
Geburt: 27.08.71 Würzburg
Familienstand: ledig
Staatsangehörigkeit: deutsch

- 1982-1991 Wirsberg-Gymnasium Würzburg
- 1991 Abitur am Wirsberg-Gymnasium Würzburg
- 1993 Vordiplom in Physik
- Dez. 1995 Beginn der Diplomarbeit unter Betreuung von Prof. Dr. H. Haug,
Thema: Theoretische Halbleiterphysik und -optik (Quantenkinetik)
Titel der Arbeit „Bestimmung der Hartree-Fock-Green-Funktion
im Rahmen der Quantenkinetik für ein lösbares Modell “
- 1995-1997 Leitung von Übungsgruppen zur Theoretischen Physik
(Tutorenstelle)
- Nov.1996 Diplom mit Auszeichnung im Fach Physik
- Dez.1996 Anstellung als wissenschaftlicher Mitarbeiter
im Rahmen einer Promotion
in der Arbeitsgruppe Prof. Dr. H. Haug (Univ. Frankfurt)
Fortführung der Arbeit an der Theorie von Halbleitern
- Mai 1997 Aufstockung der BAT2a/2 auf eine ganze BAT2a Stelle
Begründung: halbtägige Beschäftigung zur Administration
der heterogenen IT-Umgebung der Festkörperphysik (bis 2001)
- Dez.1998 Teilnahme und Vortrag auf dem internationalen Workshop
in Coeur d'Alene (Idaho)
- Aug.1999 Eingeladener Vortrag auf der ICL'99 in Osaka (Japan)
Auszeichnung mit dem „YOUNG RESEARCHER AWARD ICL 99 “
„...for excellent contributions to physics as a Young Researcher“

Publikationen und Konferenzen

Publikationsliste

1. W. Braun, M. Bayer, A. Forchel, O.M. Schmitt, L. Bányai, H. Haug, Phys. Rev. B **57**, 12364 (1998)
2. M. Bayer *et al.*, Proceedings of SPIE, **3277**, 119 (1998)
3. O.M. Schmitt, L. Bányai, H. Haug, Solid State Comm. **111**, 741 (1999)
4. O.M. Schmitt, L. Bányai, H. Haug, Phys. Rev. B **60**, 16506 (1999)
5. L. Bányai, P. Gartner, O.M. Schmitt, H. Haug, Phys. Rev. B **61**, 8823 (2000)
6. O.M. Schmitt, L. Bányai, H. Haug, Journal of Lum. **87-89**, 168 (2000)
7. O.M. Schmitt, D.B. Tran Thoai, P. Gartner, H. Haug, Eur. Phys. J. B **16**, 217 (2000)
8. O.M. Schmitt, P. Gartner, L. Bányai, D.B. Tran Thoai, H. Haug, phys. stat. sol. (b), **221**, 221 (2000)
9. O.M. Schmitt, D.B. Tran Thoai, P. Gartner, L. Bányai, H. Haug, Phys. Rev. Lett. **86**, 3839 (2001)

Vorträge und Konferenzbeiträge

- internationale Konferenzen
 - Nonlinear Optics and Excitation Kinetics in Semiconductors (NOEKS), Rostock (Germany), 1997
 - Radiative Processes and Dephasing in Semiconductors (RPDS), Coeur d'Alene (USA), 1998
 - International Conference on Luminescence and Optical Spectroscopy of Condensed Matter (ICL), Osaka (Japan) **invited talk**, 1999
 - Nonlinear Optics and Excitation Kinetics in Semiconductors (NOEKS), Marburg (Germany), 2000
- Nationale Kolloquien und Konferenzen
 - Frühjahrstagung der Halbleiterphysik, Regensburg, 1996
 - DPG-Schwerpunktkolloquien Bad Honnef, 1999 und 2000
 - Eingeladene Vorträge in den Kolloquien der Festkörpertheorie in Marburg (Prof. Koch/Prof. Knorr) und Münster (Prof. Kuhn/Axt), 2000
- internationaler Wissenschaftspreis: Young Researcher Award ICL99 for excellent contributions to physics, verliehen in Osaka (Japan)

Danksagung

Mein besonderer Dank gilt Professor Hartmut Haug für die freundliche Aufnahme in seine Arbeitsgruppe, für die Vergabe dieses hochinteressanten Promotionsthemas, seine diese Arbeit initiierenden Ideen, die zahlreichen Ratschläge bei ihrer Durchführung und die ständige Bereitschaft zur Diskussion. Weiterhin für die Möglichkeit, mich auf zahlreichen Konferenzen unter anderem in den USA und Japan mit internationalen Wissenschaftlern auszutauschen. Dies eröffnete mir immer wieder neue Perspektiven auf mein Forschungsthema und war eine beständige Motivationsquelle für meine Promotion. Auch für seine Unterstützung bei meiner Entwicklung außerhalb der Welt der Physik, zu der er in langen Mittagstischdiskussionen in der Frankfurter Mensa, während unseres gemeinsamen Konferenzbesuchs in Idaho und im Kampf gegen meine Ignoranz guter Weine beitrug.

Ich danke Professor Ladislaus Bányai für seine Unterstützung meiner Promotion, die sich von fundamentalen theoretischen Beiträgen bis zu technischen Tricks bei ihrer numerischen Umsetzung erstreckte. Auch für die langen Diskussionen, die mir Leben und Kultur Osteuropas näher brachten und bei denen ich von seinem „etwas anderen Blick auf die Welt“ oft profitieren konnte. Gemeinsame Tage vor dem Bildschirm haben uns zusammengeschweißt.

Gerald Meinert war während der ganzen Zeit der Promotion mein treuer Zimmergenosse. Es war nicht immer ganz einfach — aber letztendlich wirklich gut! Ich danke ihm für seine oft strapazierte Geduld und für die langen, nicht selten heftig geführten Diskussionen.

Well, Dr. Paul Gartner — he delighted me with the best coffee which one can probably prepare on our old coffee machine. Furthermore, a lot of the equilibrium stuff in this work is due to his marvelous analytic abilities and serendipity.

Ohne Dr. Bao Tran Thoai's unermüdlichen (im wahrsten Sinne des Wortes) Einsatz wäre die Quantenkinetik der Kondensation niemals in dieser kurzen Zeit entstanden.

Allen anderen Mitgliedern und Gästen unserer Arbeitsgruppe verdanke ich die gute Arbeitsatmosphäre während meiner Promotion und zahlreiche interessante Hinweise, dabei besonders Dr. T. Vu, Dr. B. Mieck, Dr. A. Ivanov, Prof. L.V. Keldysh und Dr. A. Dzyubenko.

Mein Dank gilt den Würzburger Experimentalphysikern Dr. W. Braun, T. Baars, Dr. M. Bayer und Prof. A. Forchel für die produktive Zusammenarbeit.

Für ihre Unterstützung bei Problemlösungen auf dem Computer danke ich besonders Henning Weber und Dr. Dagmar Cords vom HRZ.

Der DFG und der Hermann Wilkomm-Stiftung gilt mein Dank für ihre großzügige Unterstützung meiner Konferenzzreisen.

Nicht zuletzt danke ich ganz besonders meiner Freundin Anke Friese für ihre unerschöpfliche moralische Unterstützung meiner Forschungsarbeit.