

THEORIE DER ERZEUGUNG EINZELNER PHOTONEN
MIT OPTISCH GETRIEBENEN ZWEIPHOTONEN-
PROZESSEN IN HALBLEITERQUANTENPUNKTEN

DISSERTATION

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

dem Department Physik
der Universität Paderborn
vorgelegt von

DOMINIK BREDDERMANN

aus Herdecke

Paderborn, im März 2018



UNIVERSITÄT PADERBORN
Die Universität der Informationsgesellschaft

Erstgutachter: Prof. Dr. Stefan Schumacher

Zweitgutachter: Prof. Dr. Torsten Meier

Kurzfassung

Die kontrollierte Erzeugung einzelner Photonen auf Abruf (*on demand*) ist eine Grundvoraussetzung für die Quanteninformationstechnologie. In diesem Kontext sind sogenannte *Zweiphotonen-Raman-Prozesse* in Dreiniveausystemen in Λ -Konfiguration experimentell wie auch theoretisch ausgiebig untersucht worden: Hierbei wird das System, ausgehend von einem der beiden Grundzustände, derart durch einen nichtresonanten Laserpuls angeregt, dass es unter Emission eines Photons in den anderen Grundzustand übergeht. Das so erzeugte Einzelphoton erbt die Linienbreite des Lasers, und seine Emissionsfrequenz ist zur Laserfrequenz komplementär. Insofern sind Zweiphotonen-Raman-Prozesse extrem vielversprechend als Grundbaustein für Einzelphotonenquellen, die eine rein optische Kontrolle über die spektralen Eigenschaften des emittierten Photons zum Zeitpunkt seiner Erzeugung gewährleisten, sodass beispielsweise eine flexible Feinabstimmung von Frequenz und Bandbreite auf einen Empfänger in Quantennetzwerken möglich ist. Bisher ist allerdings experimentell – trotz theoretischer Vorhersagen – aus Raman-Prozessen keine für Quantenkommunikationsnetzwerke ausreichend große Emissionswahrscheinlichkeit (On-Demand-Verhalten) realisiert worden.

Vor diesem Hintergrund knüpft diese theoretische Arbeit in zweierlei Hinsicht an die Weiterentwicklung von auf Raman-Prozessen operierenden Einzelphotonenquellen an.

Zum einen betrachten wir in dieser Arbeit einen speziellen Zweiphotonenprozess, nämlich zwischen Biexziton und Grundzustand in halbleiterbasierten Quantenpunkt-Mikroresonator-Systemen, den wir insbesondere durch eine spektrale Untersuchung ebenfalls als Raman-Prozess klassifizieren werden. Neuartig ist hierbei die Erzeugung von Raman-Photonen aus einem *angeregten Zustand* heraus. Zudem erlaubt dieser Prozess aufgrund der für die Biexzitonkonfiguration spezifischen optischen Auswahlregeln neben den aus Λ -Systemen bekannten Eigenschaften der Frequenz- und Linienbreitenkontrolle zusätzlich auch die Kontrolle über den *Polarisationszustand* des Einzelphotons. Im Rahmen dieser Arbeit untersuchen wir zunächst die Dynamik sowie die spektralen Eigenschaften der Einzelphotonenemission aus dem Biexziton genauer. Wir zeigen, dass nicht nur die Frequenz und Linienbreite sondern auch die *Linienform* durch den Kontrolllaser bestimmt sind.

Zum anderen nehmen wir die erwähnte bislang erfolglose experimentelle Realisierung der On-Demand-Emission zum Anlass, um Zweiphotonen-Raman-Prozesse *allgemein* grundlegend neu zu untersuchen. Dazu entwickeln wir ein *mikroskopisches* Rahmenkon-

zept auf Basis der Heisenberg-Bewegungsgleichung in Kombination mit der Methode der *Cluster-Entwicklung*. Diese Methode ist bisher noch nicht zur theoretischen Erforschung der Raman-Prozesse angewandt worden. Sie ermöglicht eine vereinheitlichende und *eindeutige* Definition eines Raman-Photons über den Anregungsprozess selbst, nämlich über die in der Cluster-Entwicklung identifizierbare *Raman-Korrelation*. Darüber hinaus etablieren wir daraus ein Optimierungskriterium für die Raman-Emission. Wir analysieren in einem ersten Schritt konsistent und systematisch resonatorgestützte Raman-Prozesse in vier fundamentalen Dreiniveausystemen – zwei Leiter- (Ξ -)Konfigurationen, eine Λ - und eine V-Konfiguration. Die Systeme gruppieren sich in zwei Klassen, Λ - und V-artig, welche sich durch unterschiedliche Raman-Emissionscharakteristik und Raman-Emissionswahrscheinlichkeit auszeichnen. Ferner finden wir, dass sowohl anregungsinduzierte *Energieverschiebungen* als auch quantenmechanische *Interferenzeffekte* auftreten und insbesondere für zur Steigerung der Emissionswahrscheinlichkeit benötigte wachsende Anregungsintensitäten relevant werden. Diesen Sachverhalt machen wir unter anderem für die unerreichte On-Demand-Emission verantwortlich. Wir finden, dass Raman-Prozesse unter Berücksichtigung dieser Effekte tatsächlich On-Demand-Emission zulassen. Unseren in dieser Arbeit etablierten Formalismus übertragen wir abschließend auf die Einzelphotonenemission aus dem Biexziton. Wir präsentieren erste grundlegende Erkenntnisse zur Verbesserung des System- und Anregungsdesigns, um On-Demand-Verhalten einer auf dem Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand basierenden Einzelphotonenquelle zu erreichen.

Abstract

The controlled generation of single photons *on demand* is a basic requirement of the quantum-information technology. In this context, so-called *two-photon Raman processes* in three-level systems in Λ -configuration have been thoroughly investigated experimentally and theoretically. To drive the Raman process starting from one of the two ground states, the system is excited by a non-resonant control-laser pulse such that it relaxes to the other ground state via the emission of a single photon. This photon inherits the linewidth of the control laser, and its frequency is complementary to the laser frequency. Hence, two-photon Raman processes are extremely promising as a basic building block of single-photon sources allowing for the on-the-fly all-optical control of the single photon's spectral properties. This enables, for example, to flexibly fine-tune the frequency and bandwidth with respect to a receiver in quantum networks. However, until now on-demand performance which is crucial for quantum-networking applications has not been realized experimentally – despite the theoretical predictions.

In this context, the theoretical study presented in this thesis is connected with the further development of Raman-process-based single-photon sources in two respects.

On the one hand, we consider a certain two-photon process in semiconductor-based quantum-dot microresonator systems, namely the two-photon process between the biexciton and ground state. In particular, we will classify this process as a Raman process by the analysis of the spectral properties of the emission. The novelty of this scheme is that the Raman emission is stimulated starting from an *excited state*. Furthermore, in contrast to the Λ -Raman process this scheme additionally allows for all-optical and on-the-fly control of the single photon's *polarization state* due to the configuration-specific optical selection rules. At first, we will investigate the Raman process from the biexciton to the ground state by an in-depth analysis of the dynamics and the spectral properties of the emission. We will show that not only the frequency and linewidth are controllable by the laser field but also the *spectral shape* of the single photon.

On the other hand, we use the fact that on-demand performance has not yet been achieved in experiments as the starting point to investigate two-photon Raman processes in a *fundamentally reoriented* manner. Here, we develop a *microscopic* framework based on the Heisenberg equation of motion in combination with the *cluster-expansion approach* which has not been applied yet to describe and analyze two-photon Raman processes. This method allows for a standardized and *unambiguous* definition of a Raman-Photon via the

corresponding excitation path itself – via the *Raman correlation* which can be identified in the cluster expansion. In addition to that, we establish an optimization criterion for the Raman emission. In a first step, we consistently and fully systematically analyze cavity-enhanced Raman processes in fundamental three-level systems in four different electronic configurations – two ladder- (Ξ -)configurations, one Λ - und one V-configuration. These systems can be divided into two classes, which we call Λ - and V-type, which exhibit strongly different Raman-emission characteristics and Raman-emission probabilities. Furthermore we find that excitation-induced *energy shifts* as well as quantum mechanical *interference effects* can occur. In particular, these effects become relevant for elevated laser powers which are crucial for entering the on-demand regime. Among others, we make this issue responsible for the experimentally experienced limitations of the emission probability. Our findings show that taking energy shifts and interference effects into account, Raman processes actually allow for on-demand performance. Finally, we generalize our new framework to describe the single-photon emission from the biexciton. We present first fundamental insights for the optimization potential of the system and excitation design to bring the Raman emission of the biexciton into the on-demand regime.

Wissenschaftliche Beiträge

Die folgende Auflistung umfasst die im Rahmen dieser Arbeit entstandenen Publikationen in Fachzeitschriften mit unabhängiger Begutachtung (*Peer-Review*) sowie alle Beiträge in Erstautorenschaft zu internationalen Konferenzen.

Publikationen

- [P1] Dirk Heinze, **Dominik Breddermann**, Artur Zrenner und Stefan Schumacher. *A quantum dot single-photon source with on-the-fly all-optical polarization control and timed emission*. Nat. Commun. **6**, 8473 (2015).
- [P2] **Dominik Breddermann**, Dirk Heinze, Rolf Binder, Artur Zrenner und Stefan Schumacher. *All-optical tailoring of single-photon spectra in a quantum-dot microcavity system*. Phys. Rev. B **94**, 165310 (2016).
- [P3] **Dominik Breddermann**, Tom Praschan, Dirk Heinze, Rolf Binder und Stefan Schumacher. *Microscopic theory of cavity-enhanced single-photon emission from optical two-photon Raman processes*. Phys. Rev. B **97**, 125303 (2018). *Editors' Suggestion*.

Konferenzbeiträge

- [K1] **Dominik Breddermann**, Dirk Heinze, Artur Zrenner und Stefan Schumacher. *Single-photon emission from a partly stimulated two-photon emission in semiconductor quantum dots* (Poster). 79. Jahrestagung der DPG und DPG-Frühjahrstagung, Berlin, Deutschland (15.-20. März 2015).
- [K2] **Dominik Breddermann**, Dirk Heinze, Rolf Binder, Artur Zrenner und Stefan Schumacher. *All-optical control of quantum-dot single-photon emission* (Vortrag). SPIE Photonics West, San Francisco, USA (13.-18. Februar 2016).
- [K3] **Dominik Breddermann**, Dirk Heinze, Rolf Binder, Artur Zrenner und Stefan Schumacher. *All-optical control of the spectral properties of a single photon emitted from*

a quantum-dot microcavity system (Poster). 13th International Workshop on Non-linear Optics and Excitation Kinetics in Semiconductors, Dortmund, Deutschland (09.-13. Oktober 2016).

[K4] **Dominik Breddermann**, Dirk Heinze, Rolf Binder, Artur Zrenner und Stefan Schumacher. *All-optical tailoring of single-photon spectra in quantum-dot microcavity systems* (Poster). DPG-Frühjahrstagung, Dresden, Deutschland (19.-24. März 2017).

[K5] **Dominik Breddermann**, Tom Praschan, Dirk Heinze, Rolf Binder und Stefan Schumacher. *All-optical control of the spectral properties of a single photon emitted from a quantum-dot microcavity system*. IOP International Conference on Optics of Excitons in Confined Systems, Bath, UK (10.-15. September 2017).

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. Theoretische Beschreibung der Quantenpunktemission	15
2.1. Hamilton-Operatoren	15
2.1.1. Vierniveaumodell des Quantenpunktes	15
2.1.2. Fundamentale Dreiniveausysteme	18
2.2. Bewegungsgleichungen	20
2.2.1. Von-Neumann-Gleichung	20
2.2.2. Heisenberg-Gleichung und Cluster-Entwicklung	21
2.3. Emissionsspektrum	24
3. Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand	27
3.1. Vorüberlegungen zu Systemdesign und Anregungsbedingungen	28
3.2. Dynamik der Einzelphotonenemission	30
3.3. Spektrale Eigenschaften der Einzelphotonenemission	35
3.3.1. Emissionsfrequenz der Einzelphotonenemission	36
3.3.2. Linienbreite und Linienform des Einzelphotons	39
3.4. Analytische Lösung des reduzierten Modells für beliebige Laserhüllkurven	41
3.4.1. Lösung der Emissionsdynamik	42
3.4.2. Untersuchung des Eberly-Wodkiewicz-Spektrums	46
4. Zweiphotonen-Raman-Prozesse in fundamentalen Dreiniveausystemen	53
4.1. Vereinheitlichende Beschreibung Λ - und V-artiger Systeme	53
4.2. Bewegungsgleichungen der Photonenemission	56
4.2.1. Raman-Korrelationsgleichung	58
4.2.2. Emissionszerlegung und Raman-Population	61
4.3. Analyse der Emissionswahrscheinlichkeit	64
4.3.1. Emissionskarten: Raman-Photon vs. Quanteninterferenz	67
4.3.2. Input-Output-Kennlinien der Raman-Emission	70
4.3.3. Zeitabhängigkeit der Frequenzverschiebung	74
4.3.4. Resonanter Raman-Prozess und Quanteninterferenz	78

5. Mikroskopische Analyse der Raman-Emission aus dem Biexziton	83
5.1. Bewegungsgleichungen der Emission	84
5.2. Raman-Emissionscharakteristik des Biexzitons	91
5.2.1. Raman-Emissionskarten	91
5.2.2. Input-Output-Kennlinien der Raman-Emission	94
5.2.3. Spektrale Analyse der optimierten Raman-Emission	98
5.2.4. Simulation des vollen Anregungszyklus	101
6. Zusammenfassung und Ausblick	105
A. Ergänzende Betrachtungen zur Emission aus dem Biexziton	111
A.1. Behandlung von Polarisations- und strahlendem Zerfall	111
A.1.1. Einfluss von strahlendem Zerfall auf die Raman-Emission	112
A.2. Reduzierende Modellbildung	113
A.2.1. Emissionsdynamik	114
A.2.2. Wiener-Khintchine-Spektrum	116
A.2.3. Zeitabhängigkeit der Stark-Verschiebung	118
A.3. Initialisierung des Biexzitons	119
B. Ergänzende Betrachtungen zum Raman-Prozess in Dreiniveausystemen	121
B.1. Singlet-Doublet-Triplet-Gleichungen	121
B.1.1. SDT-Gleichungen für Λ -artige Systeme	122
B.1.2. SDT-Gleichungen für V-artige Systeme	122
B.1.3. Von-Neumann-Lösung vs. Cluster-Entwicklungslösung	123
B.1.4. Einfluss von strahlendem Zerfall auf den Raman-Prozess	125
B.2. Analytische Diskussion der SDT-Gleichungen	125
B.2.1. Quasistationäre Lösung	126
B.2.2. Zeitabhängigkeit der Stark-Verschiebung	127
Literaturverzeichnis	131
Danksagung	141

Einzelphotonen mit wohlkontrollierbaren optischen Eigenschaften wie Linienbreite und -form, Wellenlänge, Polarisationszustand sowie dem Emissionszeitpunkt sind im Kontext der Anwendung in der Quanteninformationstechnologie ein elementarer Grundbaustein zur Codierung und Übertragung von Information (engl. *qubit*) [1–5]. In diesem Zusammenhang stellen insbesondere Halbleiterquantenpunkte als quasineuldimensionale Nanostrukturen (*künstliche Atome*) aufgrund ihrer durch entsprechende Epitaxieverfahren gezielt modellierbaren optischen Eigenschaften vielversprechende Materialsysteme dar [6–10]. In den letzten zwei Jahrzehnten sind vielfältige erfolgreiche experimentelle Realisierungen zur kontrollierten Erzeugung einzelner Photonen auf Abruf (engl. *on demand*) demonstriert worden [4, 11–19]. On-Demand-Emission liegt ab einer Emissionswahrscheinlichkeit von etwa 67% vor, was als Mindestanforderung für den Betrieb von Quanteninformationsnetzwerken berechnet werden kann [18, 20, 21]. Darauf werden wir zu einem späteren Zeitpunkt dieser Einführung nochmals zu sprechen kommen. Darüber hinaus lassen sich Quantenpunkt-Mikroresonator-Systeme mittlerweile derart miniaturisieren, dass sogar erste Komplettlösungen zur Einzelphotonenemission im Chip-Format [22,23] realisiert werden konnten. Über die Einzelphotonenerzeugung hinaus sind Quantenpunkte auch als Materialsysteme für Laser [24–26] sowie zur Erzeugung polarisationsverschränkter Photonen [27–33] erfolgreich erforscht worden.

Die oben zitierten Ansätze erlauben oftmals nur die Kontrolle über eine Teilmenge der zu Beginn erwähnten Eigenschaften des Einzelphotons. Insbesondere ist die Linienbreite in vielen Anregungsschemata durch die materialspezifische Zeitskala des spontanen Zerfalls der elektronischen Zustände fixiert [11, 16, 34, 35]. Diese Linienbreite konnte zwar auch schon unterschritten werden [36], allerdings dann auf Kosten der Emissionswahrscheinlichkeit. Eine andere Grundidee besteht darin, ein einzelnes Photon aus einer beliebigen Emissionsquelle *nach* seiner Erzeugung spektral zu manipulieren. Dies ist zum Beispiel durch elektrooptische Modulation möglich [37,38] oder durch Summenfrequenzspektroskopie [39, 40]. Solche Prozesse haben oftmals den Nachteil, dass sie eine sehr geringe Effizienz aufweisen oder die Intensität des Einzelphotons beeinträchtigen.

In der vorliegenden Arbeit beschäftigen wir uns mit einem neuen Konzept, welches die rein optische Steuerung aller angeführten Parameter ermöglicht: Wir betrachten die durch einen optischen Resonator verstärkte Einzelphotonenemission aus dem Biexziton – einem *angeregten* Zustand in Halbleiterquantenpunkten – mittels eines durch einen Kontrolllaser getriebenen Zweiphotonenprozesses, der das System in seinen Grundzu-

1. Einleitung

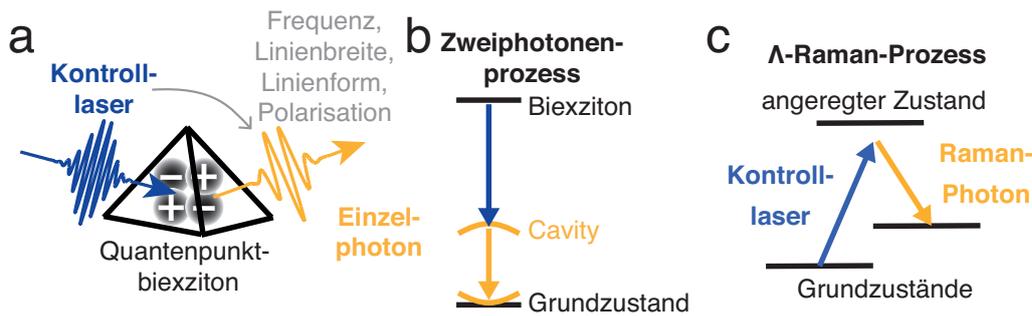


Abbildung 1.1.: Kontrollierte Einzelphotonenerzeugung aus dem Biexziton und Zweiphotonen-Raman-Prozess im Λ -System. Wir zeigen (a) schematisch die stimulierte Einzelphotonenerzeugung aus der Zweiphotonenemission des Biexzitons. Das Biexziton ist eine angeregte Konfiguration aus zwei Elektron-Loch-Paaren (grau schattierte Kreise, Löcher mit (+) und Elektronen mit (-) gekennzeichnet) in einem Halbleiterquantenpunkt, symbolisiert durch die Pyramide. (b) Hierbei wird das besetzte biexzitonische Niveau durch einen Kontrolllaser (blauer Pfeil), welcher mit sämtlichen elektronischen Übergängen (in dieser Darstellung nicht eingezeichnet) nichtresonant eingestellt ist, derart stimuliert, dass die zur Überbrückung in den Grundzustand fehlende Energie durch die Emission eines zweiten Photons (gelber Pfeil) beigetragen wird. Dieses Einzelphoton wird durch einen optischen Mikrospektor (gelbe Klammern) verstärkt. Das so erzeugte Photon erbt dabei die spektralen Eigenschaften des Lasers. (c) Zum Vergleich ist der Zweiphotonen-Raman-Prozess zwischen den beiden Grundzuständen eines Dreiniveausystems in Λ -Konfiguration gezeigt. Ausgehend vom besetzten Grundzustand wird das System durch einen nichtresonanten Laser angeregt (blauer Pfeil), energetisch entweder unterhalb oder oberhalb des nächsten angeregten Zustandes. Dabei geht das System unter Emission eines energetisch passenden zweiten Photons (gelber Pfeil) in den anderen Grundzustand über. Das so erzeugte Raman-Photon erbt dabei ebenfalls die spektralen Eigenschaften des Kontrolllasers. Typischerweise haben die beiden optisch erlaubten Übergänge zueinander orthogonale Dipolmomente.

stand überführt (siehe Abb. 1.1a und Abb. 1.1b). Ähnlich zu stimulierter parametrischer Fluoreszenz [41] (engl. *parametric down conversion*) in einem nichtlinearen Kristall wird eines der beiden Photonen durch den Laser stimuliert, das zweite dazu energetisch komplementär emittiert. Dieser Prozess ermöglicht die Kontrolle über Emissionszeitpunkt, Polarisationszustand, Emissionsfrequenz, Linienbreite und -form durch den Kontrolllaser, und wir werden in dieser Arbeit die fundamentale physikalische Ergründung dieses Mechanismus und seiner spektralen Eigenschaften vornehmen.

Eine noch viel engere *physikalische* Verwandtschaft des halbstimulierten Zweiphotonenprozesses zwischen Biexziton und Grundzustand wird jedoch mit sogenannten optischen *Zweiphotonen-Raman-Prozessen* augenfällig, die ebenfalls die spektrale Formbarkeit sowie die Frequenzsteuerung des emittierten *Raman-Photons* durch einen Kontrolllaser zulassen. Am meisten untersucht und diskutiert ist wohl der Raman-Prozess in Dreiniveausystemen in Λ -Konfiguration (siehe Abb. 1.1c): Das System wird ausgehend von einem der beiden Grundzustände unterhalb oder oberhalb des realen angeregten Zustandes durch einen Kontrolllaser auf ein oftmals als *virtuell* bezeichnetes Niveau angeregt. Es relaxiert anschließend von dort aus in den anderen der beiden Grundzustände unter Emission eines einzelnen Photons, das als *Raman-Photon* bezeichnet wird. Wir werden unter anderem in dieser Arbeit anhand der optischen Eigenschaften zeigen, dass wir den Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand ebenfalls als optischen Raman-Prozess klassifizieren können. Zweiphotonen-Raman-Prozesse sind seit vielen Jahrzehnten bereits in atomaren Dreiniveausystemen studiert worden [42–46], auch zur

Anwendung in Quantennetzwerken [47]. Damit einhergehend sind zudem Quanteninterferenzphänomene – also die quantenmechanische Interferenz verschiedener Anregungs- und Emissionspfade – von Zweiphotonenprozessen in Dreiniveausystemen untersucht worden. Eines der bekanntesten Phänomene ist vermutlich die *elektromagnetisch induzierte Transparenz* (engl. *electromagnetically induced transparency*, EIT), die sich als anregungsinduzierte dunkle Linie im Absorptionsspektrum äußert [48–50]. In den letzten ein bis zwei Jahrzehnten sind Raman-Prozesse wieder zunehmend in den Fokus der Forschung gerückt, da natürlich auch zahlreiche neue Realisierungsmöglichkeiten in unterschiedlichen Dreiniveauekonfigurationen in Halbleiterquantenpunkten möglich geworden sind [51–55]. Aber auch im Kontext der Konstruktion von Nanophotonikplattformen und anderen optoelektronischen Bauteilen spielen Raman-Prozesse aufgrund ihrer besonderen optischen Eigenschaften vermehrt eine zentrale Rolle [56–59].

Obwohl also Zweiphotonen-Raman-Prozesse und ihre optischen Eigenschaften seit langer Zeit sehr intensiv untersucht worden sind, konnten Einzelphotonenquellen nach dem Raman-Prinzip bisher – trotz theoretischer Vorhersagen [45,60] – experimentell *nicht* im On-Demand-Limes realisiert werden, weder in atomaren Systemen [45, 46] noch in Quantenpunkten [21]. Zudem haben in jüngerer Vergangenheit experimentelle Daten immer wieder offene Fragen aufgeworfen, beispielsweise zum scheinbar widersprüchlichen Verhalten der Emissionslinienbreite im Vergleich zur Emissionsintensität des resonanten Raman-Prozesses (siehe *Supplementary Information* in Quelle [54]). Aus diesem Grunde ist offensichtlich ein völlig neues und vor allen Dingen *mikroskopisches* Verständnis der Raman-Physik von Nöten, um auf dem Gebiet der auf Raman-Prozessen basierenden Einzelphotonenquellen Fortschritte zu erzielen und insbesondere deren Emissionswahrscheinlichkeit zu steigern. Hier besteht ein weiterer Anknüpfungspunkt der vorliegenden Arbeit: Wir werden eine vereinheitlichende mikroskopische Beschreibung aller zur Einzelphotonenemission konfigurierten Zweiphotonen-Raman-Prozesse in Mehrniveausystemen vornehmen und die Diskussion der physikalischen Eigenschaften der Raman-Prozesse völlig neu aufrollen. Bevor wir im Laufe dieses Einleitungskapitels weiter ins Detail gehen und damit einhergehend die Gliederung der vorliegenden Arbeit genauer umreißen, wollen wir zunächst einen kompakten Überblick über die Grundlagen der optischen Eigenschaften von Halbleiterquantenpunkten geben, deren Verständnis wir für die weiteren Ausführungen benötigen.

Um die fundamentalen optischen Eigenschaften von Halbleiterquantenpunkten, die auch für das Grundverständnis der in dieser Arbeit diskutierten Anregungsprozesse und der verwendeten Modellbildung [9, 61] elementar sind, kurz zu motivieren, zeigen wir in Abb. 1.2a eine schematische Energiebanddarstellung eines typischen Halbleiterquantenpunktes entlang einer gewählten Raumrichtung: Die lokal auf einer Skala des exzitonen Bohr-Radius in allen drei Raumrichtungen dimensionsreduzierte Kristallstruktur bildet einen Quantentopf für die Elektronen im Leitungs- sowie für die Löcher im Valenzband des Halbleitermaterials (typisch sind beispielsweise GaAs- oder InAs-basierte Verbindungen), was zur Ausbildung *diskreter* Eigenzustände führt. Diese koppeln jeweils an das Kontinuum des einbettenden Materials (engl. *wetting layer*). Für optische Anregungen nahe der Bandlücke (eV-Skala) beobachtet man daher ein diskretes Emissionsspektrum, welches maßgeblich durch die Quasiteilchenanregungen charakterisiert ist. Neben einfachen gebundenen Elektron-Loch-Paaren (*Exzitonen*) sind auch Konfigurationen höherer Ordnung stabil wie die paarweise Bindung zwischen Exzitonen (*Biexzitonen*) [64–66]. In Abb. 1.2b haben wir die relevanten optisch aktiven Zustände skizziert: Der experimen-

1. Einleitung

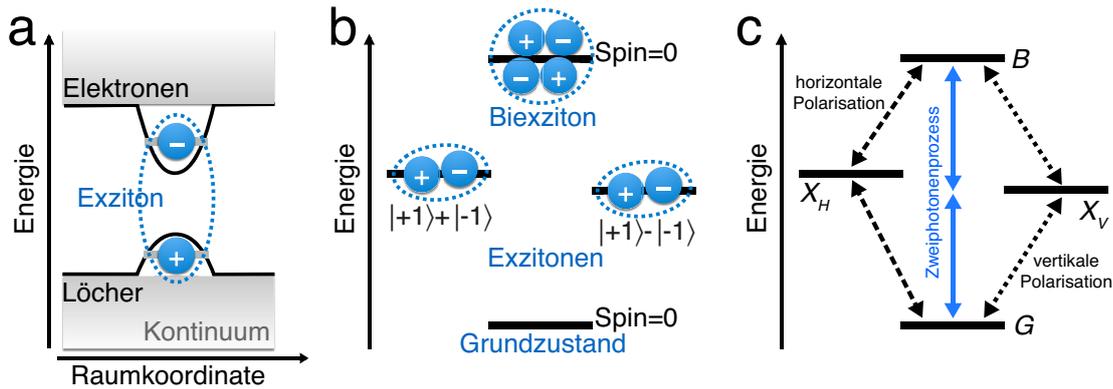


Abbildung 1.2.: Vierniveaumodell des Quantenpunktes. (a) Schematische Darstellung des dreidimensionalen Potentialtopfes (schwarze durchgezogene Linie) für Elektronen (-) im Leitungsband und Löcher (+) im Valenzband eines Halbleiterquantenpunktes für eine gewählte Raumrichtung. Exemplarisch ist jeweils eines der diskreten Energieniveaus für Elektronen und Löcher eingezeichnet (graue durchgezogene Linien), welche einen exzitonischen Zustand (gestrichelte Ellipse) formen können. Das Quasikontinuum des einbettenden Materials (*wetting layer*) ist durch die grau schattierten Flächen angedeutet. Unsere Darstellung orientiert sich an den Quellen [9, 61]. (b) Abbildung auf ein Vierniveauschema bestehend aus dem Grundzustand ohne Elektron-Loch-Anregungen und den niedrigsten relevanten optisch aktiven Quasiteilchenzuständen, zwei im Allgemeinen feinstrukturaufgespaltenen Exzitonen und einem gebundenen Exzitonenzustand (Biexziton). Die Konfigurationen zeichnen sich durch ihre Drehimpulszustände aus. (c) Resultierende Auswahlregeln des Vierniveausystems. Die optisch erlaubten Übergänge sind durch schwarze Doppelpfeile markiert. Die gestrichelt markierten Übergänge wechselwirken mit horizontal polarisiertem Licht, die gepunktet markierten mit vertikal polarisiertem. Die Zweiphotonenaktivität des Biexzitons ist durch blaue Doppelpfeile illustriert. Unsere Skizzen (c,d) orientieren sich an der Darstellung in den Quellen [62, 63] für GaAs- bzw. InAs-Quantenpunkte.

telle Befund zeigt, dass das Materialsystem hauptsächlich charakterisiert wird durch das ladungs- und spinneutrale Biexziton – bestehend aus zwei Elektronen mit Spin $\pm 1/2$ und zwei Löchern mit Spin $\pm 3/2$ – sowie durch vier exzitonische Zustände, die sich durch ihre Drehimpulsquantenzahlen $\pm 1, \pm 2$ klassifizieren lassen [62, 63, 67, 68]. Lediglich die ± 1 -Zustände sind optisch aktiv, und sie weisen in der Regel eine Feinstrukturaufspaltung (μeV -Skala) aufgrund der Austauschwechselwirkung von Elektronen und Löchern auf, während die beiden dunklen Exzitonen energetisch viel tiefer liegen. Die beiden optisch aktiven Exzitonen sind daher hauptsächlich durch die symmetrischen und antisymmetrischen Konfigurationen der ± 1 -Zustände charakterisiert, was auf die in Abb. 1.2c skizzierten Auswahlregeln für die Wechselwirkung mit linear polarisiertem Licht (hier horizontal und vertikal genannt) führt. Anders formuliert ist das Emissionsspektrum eines Halbleiterquantenpunktes von der sogenannten *Biexziton-Exziton-Kaskade* dominiert [63, 67, 69]. Die Energien dieser Konfigurationen sind durch das Design des Materialsystems festgelegt und damit über das Wachstumsverfahren kontrollierbar [68]. Es ist ferner möglich, Quantenpunkte unmittelbar im Fabrikationsprozess mithilfe von Lithographieverfahren in einen maßgeschneiderten optischen Mikroresonator (engl. *microcavity*, oder kurz *cavity*) zu integrieren [9, 70], um eine gewünschte Emissionsfrequenz entsprechend zu verstärken. Über das Design des Resonators eröffnet sich auch eine weitere Möglichkeit der spektralen Manipulation des Photons, beispielsweise durch Mikroresonatoren (engl. *whispering gallery resonator*) [71]. Nicht zuletzt erlaubt auch die

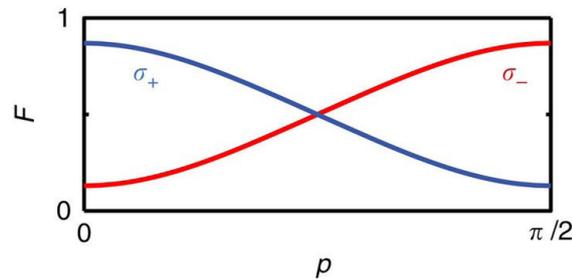


Abbildung 1.3.: Kontrolle über die Polarisation des Einzelphotons. Gezeigt sind die σ_+ -polarisierten (blaue Linie) und σ_- -polarisierten Anteile F (rote Linie) der laserinduzierten Photonenpopulation aus dem in Abb. 1.1b skizzierten Zweiphotonenprozess. Der Polarisationsparameter p des Kontrolllasers beschreibt für $p = 0$ rein σ_- -zirkular polarisiertes und für $p = \pi/2$ rein σ_+ -zirkular polarisiertes Licht. Diese Originalabbildung inklusive der detaillierten Beschreibung der genaueren physikalischen Parameter befindet sich in Publikation [P1].

gezielte mechanische Verspannung von Quantenpunkten eine Variation der Emissionswellenlänge [72]. Bemerkenswert ist zudem, dass die geeignete räumliche Gruppierung von zwei oder mehr Quantenpunkten sogar die Herstellung maßgeschneiderter *künstlicher Moleküle* zulässt [73–75]. Ferner können die elektronischen Konfigurationen und damit einhergehend die optischen Auswahlregeln sowohl in einzelnen geladenen Quantenpunkten als auch in geladenen Quantenpunktmolekülen [73] gezielt mithilfe von externen Magnetfeldern manipuliert werden, was insbesondere die gängige Realisierung von quantenpunkt-basierten Λ -Konfigurationen [Abb. 1.1c] darstellt [21, 53, 54, 76]. Aufgrund dieser vielfältigen Möglichkeiten sind Quantenpunktsysteme als besonders flexibel gestaltbare Nanostrukturen extrem relevant für den technischen Fortschritt in der Quanteninformationstechnologie.

Über die elementaren Einzelphotonenübergänge der Biexziton-Exziton-Kaskade hinaus ist bereits theoretisch wie experimentell gezeigt worden, dass das Biexziton auch über einen *Zweiphotonenprozess* an den Grundzustand koppelt [77], wie auch in Abb. 1.2c durch die blauen Pfeile angedeutet ist. Dieser Prozess kann sowohl spontan [78–80] stattfinden als auch durch Laserfelder getrieben und damit in seiner Wahrscheinlichkeit deutlich erhöht werden. Dies ist zum einen über die *entartete* Zweiphotonenresonanz möglich [33, 81], wobei der Laser auf die Hälfte der Übergangsenergie zwischen Biexziton und Grundzustand eingestellt wird, was zu Rabi-Oszillationen zwischen den beiden Zuständen führt. Zum anderen ist auch der *nichtentartete* Zweiphotonenprozess ansteuerbar [82–84], was durch die Anregung mit zwei Lasern unterschiedlicher Frequenz, die sich zur Übergangsfrequenz zwischen Biexziton und Grundzustand addieren, gelingt. Diese Verfahren ermöglichen eine robuste Initialisierung des Biexzitons ausgehend vom Grundzustand.

Dieser Initialisierungsprozess ist eine Grundvoraussetzung für den anfangs eingeführten *halbstimulierten* nichtentarteten Zweiphotonenprozess vom Biexziton in den Grundzustand, dessen Untersuchung Gegenstand dieser Arbeit ist, und der im Wesentlichen eine Umkehrung des Initialisierungsprozesses darstellt. Mit den oben umrissenen Eigenschaften der optisch aktiven Konfigurationen in Halbleiterquantenpunkten wird nun deutlich, warum dieser Prozess die einzigartige Möglichkeit der Steuerung des Polarisationszustandes des emittierten Einzelphotons ermöglicht: Anfangszustand (Biexziton) wie auch

1. Einleitung

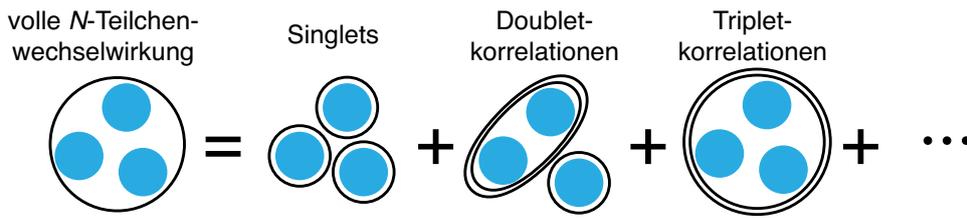


Abbildung 1.4.: Schematische Darstellung der Cluster-Entwicklung. Die Cluster-Entwicklung zerlegt eine Größe, welche aus der Wechselwirkung von N Teilchen (z.B. Coulomb- oder Licht-Materie-Wechselwirkung, dargestellt durch einfach linierte Ellipsen) hervorgeht, in alle niederrangigeren Wechselwirkungsbeiträge. Diese sogenannten *korrelierten Cluster* sind durch die doppelt linierten Ellipsen gekennzeichnet und werden entsprechend ihrer Wechselwirkungshierarchie als *Singlets*, *Doublets*, *Triplets* usw. bezeichnet. Die hier gezeigte Darstellung orientiert sich an den Quellen [85, 86].

Endzustand (Grundzustand) sind *spinneutrale* Konfigurationen. Das aber heißt, dass beispielsweise das Einstrahlen eines σ_+ -zirkular polarisierten Kontrolllasers aufgrund dieser Auswahlregeln ausgleichend zur Emission eines *komplementär*, also σ_- -polarisierten Photons führen muss. Dies ist explizit theoretisch in Publikation [P1] nachgewiesen worden. Da die Untersuchung dieser Eigenschaft nicht Gegenstand dieser Arbeit ist, zeigen wir lediglich zur Veranschaulichung die Originalabbildung aus Publikation [P1] in Abb. 1.3: Sie trägt den σ_+ - und σ_- -polarisierten Anteil des Einzelphotons gegenüber dem durchgestimmten – hier reellwertig parametrisierten – Polarisationszustand p des Kontrolllasers von σ_- hin zu σ_+ über dazwischenliegende elliptisch polarisierte Zustände auf. Die beiden Anteile verlaufen sinusförmig gegenphasig und zeigen somit das aufgrund der Spineigenschaften erwartete Verhalten. Anders formuliert und über das gezeigte Beispiel hinausgehend ist es möglich, durch die Wahl der Kontrolllaserpolarisation – neben den linear polarisierten Zuständen H und V – jeden *beliebigen* Zustand elliptischer Polarisation zu erzeugen.

An diesem Punkt haben wir nun eine kurze Vorschau über die grundlegenden optischen Eigenschaften des hier zur Einzelphotonenerzeugung betrachteten Zweiphotonenprozesses zwischen Biexziton und Grundzustand erhalten. Wir haben aber auch eine Zusammenfassung der fundamentalen optischen Eigenschaften von Halbleiterquantenpunkten gegeben sowie einen Überblick über einige wichtige Meilensteine des Fortschritts im Forschungsumfeld quantenpunktbasierter Einzelphotonenquellen. Im Folgenden möchten wir nun genauer aufzeigen, inwiefern die im Rahmen dieser Arbeit präsentierten Studien, die teilweise in den Publikationen [P1-P3] veröffentlicht sind, an jenen Fortschritt anknüpfen und diesen fortführen. Im Zuge dessen wollen wir auch einen genaueren Überblick über den Aufbau dieser Arbeit und ihre Beiträge zu den Publikationen [P1-P3] geben.

Im nächstfolgenden Kapitel, Kapitel 2, führen wir als Erstes in die Modellbildung von Halbleiterquantenpunkt-Mikroresonator-Systemen auf Basis von *Jaynes-Cummings-Modellen* ein [9, 61] und definieren die hier verwendeten Hamilton-Operatoren. Ebenso geben wir eine Zusammenfassung über die relevanten Bewegungsgleichungen zur Berechnung der Systemdynamik. Wir nutzen zur Berechnung der Anregungsdynamik die *Von-Neumann-Gleichung*, die die Zeitentwicklung des Dichteoperators im Schrödinger-Bild beschreibt. Auf dieser Ebene findet die weitere Modellbildung für Verlust- und Zerfallsprozesse statt, die mithilfe sogenannter *Lindblad-Terme* durch phänomenologische Dämpfungskonstanten berücksichtigt werden können. Hier schließen wir in unsere Be-

schreibung eine endliche Lebensdauer der Photonen im Resonator ein sowie den Zerfall elektronischer Kohärenzen. Zudem berücksichtigen wir strahlenden Zerfall der elektronischen Besetzungen über von der Resonatormode verschiedene Moden. Diese Beschreibung lässt eine besonders kompakte numerische Umsetzung als endlichdimensionale Matrix-Vektor-Gleichungen zu, da oftmals – wie auch hier – eine Reduzierung auf endlichdimensionale Hilbert-Räume aus der Anfangsbedingung heraus gelingt [61]. Eine äquivalente Beschreibung stellt die Heisenberg-Bewegungsgleichung für die Observablen selbst dar, die aus der Von-Neumann-Gleichung unter Transformation ins Heisenberg-Bild hervorgeht. In der Heisenberg-Darstellung (bzw. im *Ehrenfest-Theorem* [87]) sieht man sich mit dem sogenannten *Hierarchieproblem* konfrontiert, da N -Teilchengrößen an $(N + 1)$ -Teilchengrößen koppeln. Um die Hierarchie physikalisch sinnvoll und systematisch abzubrechen, verwenden wir im Rahmen dieser Arbeit die erfolgreiche Methode der *Cluster-Entwicklung* [85, 86] (siehe Abb.1.4), die die vollen N -Teilchenerwartungswerte faktorisiert in Ein- (*Singlets*), Zwei- (*Doublets*), Dreiteilchen- (*Triplets*) und höherrangige Beiträge (*korrelierte Cluster*). Die Cluster-Entwicklung stellt also hier eine Entwicklung in der Hierarchie der Licht-Materie-Wechselwirkung dar und ermöglicht, ausgehend vom zu beschreibenden Anregungsprozess, ein konsistentes Schließen des Bewegungsgleichungssatzes. Da das Heisenberg-Bild ja die Dynamik der Observablen selbst beschreibt, also eine *mikroskopische* Sicht auf die Anregungspfade und deren Kopplungsmechanismen zulässt, wird oft bei der kombinierten Beschreibung durch Heisenberg-Gleichung und Cluster-Entwicklung von einer *mikroskopischen Theorie* gesprochen. Diese Methode ist bisher noch *nicht* auf die Beschreibung der Zweiphotonen-Raman-Prozesse angewandt worden, weshalb wir uns durch die mikroskopische Sicht völlig neue physikalische Einsichten verschaffen können. Im letzten Teil des Kapitels führen wir noch die Berechnung von Emissionsspektren sowohl für stationäre (*Wiener-Khintchine-Spektrum*) [61] als auch zeitaufgelöst (*Eberly-Wodkiewicz-Spektrum*) [88] für gepulste Anregungen ein. Insgesamt betrachten wir also im Laufe dieser Arbeit die Emission sowohl in ihrer Dynamik als auch spektral aufgelöst.

In Kapitel 3 nähern wir uns dem Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand in einem wohlkontrollierbaren Anregungsgrenzfall, in dem die Untersuchung erster fundamentaler optischer Eigenschaften des Zweiphotonenprozesses – Ansteuerung durch den Kontrolllaser, Abstimmbarkeit von Frequenz und Linienbreite des Einzelphotons – möglich wird: Zum einen betrachten wir einen Resonator mit einer vergleichsweise kurzen Photonenlebensdauer, der stark von den elektronischen Resonanzen verstimmt ist und keinerlei spektralen Überlapp mit diesen aufweist. Zum andern ist auch der Kontrolllaser weder mit den elektronischen Übergängen noch mit dem Resonator spektral überlappend. Dies schließt die unerwünschte Ansteuerung anderer Emissionspfade aus und führt zu annähernd stationären Besetzungen. Wir zeigen in einer ersten numerischen Simulation auf Basis der Von-Neumann-Gleichung, dass die Stimulation des Zweiphotonenprozesses tatsächlich durch den horizontal polarisierten Kontrolllaser gelingt und zu einer kohärenten Photonenpopulation, dem *Einzelphoton*, in der Resonatormode führt. Wir finden zudem erste Anzeichen dafür, dass der Kontrolllaser Verschiebungen der Übergangsenergien (*Stark-Verschiebungen* [89,90]) induziert. In dem betrachteten Anregungslimes gelingt auf Basis der Heisenberg-Gleichung zunächst ohne explizite Verwendung der Cluster-Entwicklung begleitend eine reduzierende Modellbildung, die die Emissionsdynamik des stimulierten Zweiphotonenprozesses im Wesentlichen auf die Kopplung der drei fundamentalen *photonenassistierten Polarisierungen* der H -Mode

1. Einleitung

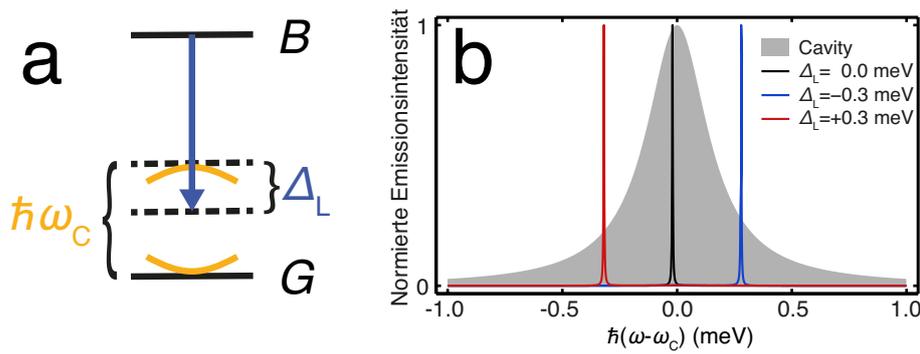


Abbildung 1.5.: Steuerung der Emissionsfrequenz. (a) Abgebildet ist eine Illustration der Definition der Verstimmung Δ_L des Kontrolllasers (blauer Pfeil) als Abweichung von der elementaren Resonanzbedingung, bei der sich die Anregungsfrequenz des Lasers ω_L und des Resonators ω_C (symbolisiert durch die gelben Klammern) zur Energiedifferenz zwischen Biexziton B und Grundzustand G addieren. Die gestrichelten Linien dienen als Hilfslinien. (b) Für eine monochromatische Anregung mit variierender Verstimmung, $\Delta_L = -0.3$ meV (blaue Linie), $\Delta_L = 0.0$ meV (schwarze Linie) und $\Delta_L = +0.3$ meV (rote Linie), ist die normierte Intensität der Einzelphotonenemission im Vergleich zur Resonanzlinie der Cavity (grau schattierte Fläche) gezeigt. Die genaueren physikalischen Parameter dieses Beispiels zusammen mit einer detaillierten Diskussion finden sich in der Besprechung von Abb. 3.4 in Kapitel 3.

zurückführt, die sich der Biexziton-Exziton-Kaskade und dem durch das gewünschte Einzelphoton assistierten Prozess zuordnen lassen. Im Grenzfall stationärer Anregung wird es möglich, sowohl einen expliziten Ausdruck für die Optimalverstimmung des Kontrolllasers gegenüber der elementaren Resonanzbedingung herzuleiten, die die induzierte Stark-Verschiebung kompensiert, als auch erste grundlegende Abhängigkeiten zwischen den physikalischen Parametern zu erschließen. Diese analytischen Betrachtungen haben einen signifikanten Beitrag zur Publikation [P1] beigesteuert, in der das Konzept erstmalig vorgestellt und insbesondere hinsichtlich seiner Polarisationskontrolle untersucht worden ist.

Im zweiten Teil des Kapitels wenden wir uns dann den spektralen Eigenschaften der Einzelphotonenemission zu. Wir zeigen im Limes stationärer Anregung die Abstimbarkeit der Emissionsfrequenz innerhalb der Cavity-Resonanzlinie durch Variieren der Laserfrequenz und erkennen, dass die Linienbreite des Einzelphotons die Cavity-Linienbreite deutlich unterschreiten kann (siehe Abb. 1.5). Es gelingt die Übertragung der reduzierenden Modellbildung auf das Wiener-Khintchine-Spektrum, und wir leiten analytische Zusammenhänge für das Emissionsspektrum her. Weiterhin demonstrieren wir für gepulste Anregung, dass die Linienbreite des Einzelphotons im Wesentlichen durch die spektrale Breite des Pulses gegeben ist. Diese spektralen Eigenschaften klassifizieren den stimulierten Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand als *Raman-Prozess*. Wir motivieren ferner durch die Überlagerung mehrerer Kontrollpulse, dass das Spektrum des Einzelphotons durch das Design des Kontrollpulses maßgeschneidert werden kann.

Abschließend lösen wir im dritten und letzten Teil des Kapitels das reduzierte Modell sowohl für die Dynamik als auch für das Spektrum der Einzelphotonenemission für *beliebige* Laserhüllkurven. Insbesondere und bemerkenswerterweise finden wir erste Hinweise darauf, dass die Raman-Photonenemission aus dem Biexziton nicht nur über die durch den Kontrolllaser induzierte elektronische Polarisation induziert, sondern auch durch die *vermeintlich parasitäre* inkohärente Hintergrundemission aus dem Biexziton gespeist wird.

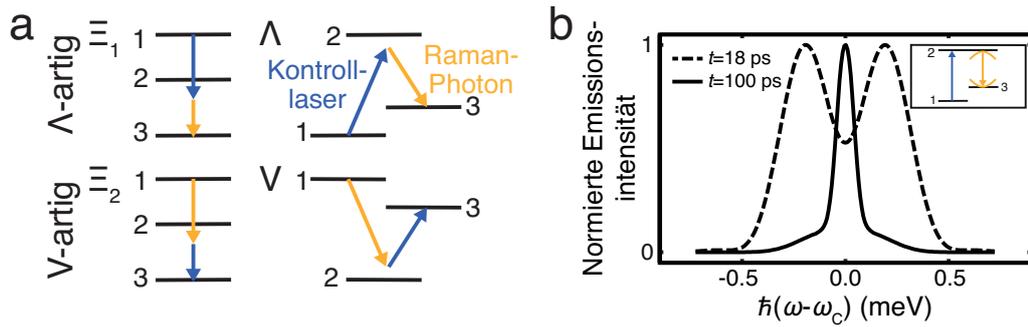


Abbildung 1.6.: Raman-Prozesse in Dreineiveausystemen. (a) Skizziert sind die zur Erzeugung von Raman-Photonen (gelbe Pfeile) möglichen Konfigurationen von Dreineiveausystemen. Dabei seien jeweils die Übergänge $1 \leftrightarrow 2$ sowie $2 \leftrightarrow 3$ optisch erlaubt. Die beiden Übergänge koppeln ferner an zwei zueinander orthogonale Lichtmoden. Ein Photon des Raman-Prozesses wird durch einen Kontrolllaser (blauer Pfeil) derart getrieben, dass die Emission des zweiten – des *Raman-Photons* (gelber Pfeil) – erzwungen wird, hier in eine Resonatormode. Wir klassifizieren die Konfigurationen Ξ_1 und Λ als Λ -artig (Raman-Emission aus dem Übergang $2 \leftrightarrow 3$), und Konfigurationen Ξ_2 und V als V -artig (Raman-Emission aus dem Übergang $1 \leftrightarrow 2$). (b) Wir zeigen ein Beispiel für das zeitaufgelöste Emissionsspektrum $S(t, \omega) = \text{Re} \int_0^t dt' \int_0^{t-t'} d\tau e^{-i\omega\tau} G^{(1)}(t', \tau)$ [88] des *resonanten Raman-Prozesses* in einer Λ -Konfiguration um die Resonatorfrequenz ω_C herum. Hierbei sind sowohl der Kontrolllaser – hier ein 18 ps langer 5π -Rechteckpuls – als auch die Cavity resonant mit den elektronischen Übergängen (siehe Nebenbild). Ferner bezeichne $G^{(1)}$ die Autokorrelationsfunktion der Resonatorphotonen. Wir zeigen zwei repräsentative Zeitpunkte, einen Schnappschuss auf der Zeitskala des Raman-Prozesses ($t = 18$ ps, gestrichelte Linie) und einen weiteren auf der Zeitskala der inkohärenten Emission ($t = 100$ ps, durchgezogene Linie). Beide Spektren sind auf ihr Maximum normiert, da sie sich um einen Faktor 30 unterscheiden. Die physikalischen Parameter orientieren sich an experimentellen Daten aus Quelle [54]. Eine ausführliche Analyse dieses Szenarios befindet sich in Kapitel 4 im Rahmen der Diskussion von Abb. 4.9.

Die in Kapitel 3 präsentierten numerischen Simulationsergebnisse zur spektralen Untersuchung des Raman-Prozesses zwischen Biexziton und Grundzustand sowie die im Zuge dessen entwickelten analytischen Einsichten sind in Publikation [P2] zusammengefasst und veröffentlicht. Abschließend können wir aus Kapitel 3 schließen, dass die Physik des Raman-Prozesses zwischen Biexziton und Grundzustand – und der Raman-Prozesse im Allgemeinen – weitaus komplizierter ist, als bisher angenommen und einer systematischen *mikroskopischen* Analyse für beliebige Anregungsintensitäten, Laser- und Cavity-Verstimmungen bedarf. Insbesondere für die Untersuchung des *On-Demand-Potentials* ist eine genaue Kenntnis der Rollen der verschiedenen möglichen Anregungs- und Emissionspfade unumgänglich. Ferner stellt sich die Frage, ob und – wenn ja – wie sich der Raman-Prozess zwischen Biexziton und Grundzustand von dem Raman-Prozess in einem Λ -System unterscheidet, wie er beispielsweise in den Quellen [21, 53] im Kontext der Einzelphotonenemission diskutiert wird. Aus diesem Grunde reduzieren wir zunächst die Komplexität der Problemstellung und widmen uns der systematischen und vergleichenden mikroskopischen Untersuchung der Einzelphotonenemission aus Zweiphotonen-Raman-Prozessen in generischen Dreineiveausystemen.

Ausgehend von den vorangegangenen Einsichten etablieren wir in Kapitel 4 dann eine neue vereinheitlichende und systematische mikroskopische Beschreibung der Zweiphotonen-Raman-Prozesse auf Basis der Heisenberg-Bewegungsgleichung in Kombination

1. Einleitung

mit der *Cluster-Entwicklung* [85]. Diese Technik ist bisher noch nicht zur Untersuchung der Raman-Prozesse herangezogen worden. Daher spielt Kapitel 4 nicht nur eine zentrale Rolle für diese Arbeit sondern stellt auch einen wichtigen Beitrag zur Weiterentwicklung von auf Raman-Prozessen basierenden optoelektronischen Bauelementen – insbesondere von Einzelphotonenquellen – dar. Das gesamte in diesem Kapitel entwickelte Rahmenkonzept sowie die meisten dort vorgestellten Ergebnisse sind daher als umfangreicher Grundlagenartikel in Publikation [P3] veröffentlicht. In unsere Analyse schließen wir alle zur Einzelphotonenemission aus Raman-Prozessen möglichen Konfigurationen von Dreiniveausystemen mit zwei optisch erlaubten Übergängen ein: Dementsprechend betrachten wir explizit eine Λ -Konfiguration, eine V-Konfiguration sowie zwei Leiter (Ξ -)Konfigurationen (siehe Abb. 1.6a). Dabei nehmen wir in diesem Kapitel zunächst die typische Situation an, dass der Kontrolllaser (blauer Pfeil) und der das Raman-Photon (gelber Pfeil) verstärkende Resonator zueinander orthogonal polarisiert seien. Jene vier fundamentalen Systemkonfigurationen und auch Überlagerungen derer – in Form eines Doppel- Λ -Systems [21, 54] oder unseres Biexziton-Grundzustand-Prozesses [P1, P2] – stellen die Grundbausteine für auf Raman-Prozessen basierende resonatorgestützte Einzelphotonenquellen in Quantenpunkten oder Quantenpunktmolekülen dar. Wir fassen je zwei Konfigurationen zu einer *Systemklasse* zusammen: Entweder koppelt der Resonator an den Zielzustand 3 (Λ -artig) oder an den Anfangszustand 1 (V-artig). Auf diese Weise gelingt eine Reduzierung der Diskussion der Raman-Emissionsdynamik auf die vergleichende Betrachtung der beiden Klassen anstelle der vier expliziten Konfigurationen.

Die über die Cluster-Entwicklung ermöglichte mikroskopische Sichtweise auf die Raman-Prozesse verschafft uns physikalische Einblicke in die zur Gesamtdynamik beitragenden Anregungs- und Emissionspfade, die über die aus optischen Spektren extrahierbaren Informationen weit hinausgehen. Um diesen Sachverhalt zu motivieren, greifen wir auf ein Ergebnis aus Kapitel 4 vor: Abbildung 1.6b zeigt zwei repräsentative Schnappschüsse der Cavity-Emission eines *resonanten* Raman-Prozesses in einer Λ -Konfiguration. Dabei sind sowohl der Kontrolllaser als auch die Cavity resonant mit dem jeweiligen elektronischen Übergang. Auf der kohärenten Zeitskala, auf der auch der Raman-Prozess angesiedelt ist (gestrichelte Linie), ist die Resonanzlinie mittig deutlich eingeschnitten, was als Kennzeichen von *destruktiver quantenmechanischer Interferenz* verschiedener Anregungspfade bekannt ist [91]. Interferenzphänomene sind allgemein bekannt im Zusammenhang mit optischen Anregungen in Dreiniveau- oder Dreibandsystemen in null- oder höherdimensionalen Halbleiternanostrukturen [92–96]. Speziell EIT [97, 98] ist als ein durch Zweiphotonenanregungen hervorgerufenen Interferenzphänomen eingehend untersucht worden, welches zu einem Einschnitt oder gar einer dunklen Linie im Absorptionsspektrum führen kann [99–101]. In unserem Beispiel aus Abb. 1.6b verschwindet das Interferenzmerkmal für eine Messdauer, die auf der Zeitskala der inkohärenten Emission angesiedelt ist (durchgezogene Linie). Diese Beobachtung wirft unmittelbar die Frage auf, welcher Prozess die destruktive Interferenz induziert und ob wir die Emissionslinie innerhalb der Cavity als *Raman-Photon* identifizieren können. Wir möchten an dieser Stelle besonders betonen, dass wir insbesondere im Falle der *resonanten* Raman-Anregung das Emissionsspektrum in einer Messung weder durch Polarisationsfilterung noch durch spektrale Filterung in seine Anregungsbeiträge zerlegen könnten – hier schafft ausschließliche eine *mikroskopische Theorie* Abhilfe, die stets eine systematische und physikalisch konsistente Aufgliederung der Messgrößen in alle teilhabenden Anregungsprozesse gewährleistet. Im Gegensatz zu bisher auf der Beschreibung im Schrödinger-

Bild basierenden Ansätzen, wird uns die Cluster-Entwicklung eine neue universelle sowie leicht auf beliebige Mehrniveausysteme übertragbare Definition eines durch einen Resonator verstärkten *Raman-Photons* ermöglichen – und zwar über den in der Korrelationsentwicklung im Heisenberg-Bild eindeutig identifizierbaren Anregungsprozess, der *Raman-Korrelation*, selbst. Im Schrödinger-Bild wurden Raman-Photonen meist durch die Inversion des Systems in den Zielzustand unter Photonenemission definiert [60]: Der Zielzustand kann aber meist nicht nur durch das Raman-Protokoll sondern darüber hinaus auch über konkurrierende Anregungspfade angesteuert werden, was dann oftmals zu einer Überschätzung der Emissionswahrscheinlichkeit im Vergleich zum Experiment führen kann [45]. Zudem geht unser Ansatz über die Beschreibung durch sogenannte *effektive Hamilton-Operatoren* hinaus [47, 102], die aus dem adiabatischen Eliminieren des Zwischenzustandes aus dem vollen Hamilton-Operator durch eine entsprechende Transformation [103] hervorgehen. Solcherlei Ansätze sind allerdings auf den stark nichtresonanten Grenzfall des Raman-Prozesses beschränkt, der für die Überführung in den On-Demand-Limes nicht geeignet ist. In dieser Arbeit folgen wir stattdessen hauptsächlich Quelle [104], in der vermittels einer mikroskopischen Emissionszerlegung erfolgreich ein unerwartetes Oszillationsverhalten in der gemessenen Emission aus einem Halbleiterquantenpunktensemble als Signatur eines anregungsinduzierten Quantengedächtniseffektes identifiziert werden konnte.

Entsprechend werden wir die dort auf ein Ensemble von Zweiniveausystemen angewandte Vorgehensweise auf die in Abb. 1.6 eingeführten Dreiniveausysteme übertragen und eine Zerlegung der gesamten Population der Resonatorphotonen N in die zur Emissionsquelle S korrespondierenden Beiträge N_S etablieren,

$$N = \sum_S N_S. \quad (1.1)$$

Die Emissionsquellen S entsprechen den zur Gesamtemission beitragenden Anregungspfaden, die wir dann in unserer mikroskopischen Analyse in Kapitel 4 spezifizieren werden. Die Zerlegung werden wir anschließend auf die zugeordneten Emissionswahrscheinlichkeiten, $\mathcal{P} = \sum_S \mathcal{P}_S$, übertragen. Mit anderen Worten kann der Raman-Prozess vermittels dieser Zerlegung durch eine *einzigste Kenngröße* charakterisiert werden – durch die dem Raman-Pfad, $S = R$, zugeordnete Emissionswahrscheinlichkeit. Dies ermöglicht die Bereitstellung geeigneter Werkzeuge zur Untersuchung der Emission: Zum einen werden wir die Raman-Wahrscheinlichkeit sowohl zweidimensional gegen die Laser- und Cavity-Verstimmungen auftragen (*Emissionskarten*) als auch in Form von *Input-Output-Kennlinien* in Abhängigkeit von der Anregungsintensität darstellen können. Mithilfe dieser Werkzeuge werden wir systematisch untersuchen, wie Effizienz und Emissionswahrscheinlichkeit einer Raman-Photonenquelle in den On-Demand-Limes überführt werden können, $\mathcal{P} \approx \mathcal{P}_R \rightarrow 100\%$. Wir werden ferner feststellen, dass unsere Definitionen sogar dazu geeignet sind anzuzeigen, ob tatsächlich ein *Raman-Photon* emittiert wird oder durch den Raman-Pfad lediglich destruktive Interferenz mit anderen Quellen S induziert wird.

Abschließend werden wir in Kapitel 5 den aus der Cluster-Entwicklung resultierenden Formalismus zur Untersuchung der Raman-Prozesse in den fundamentalen Drei-

1. Einleitung

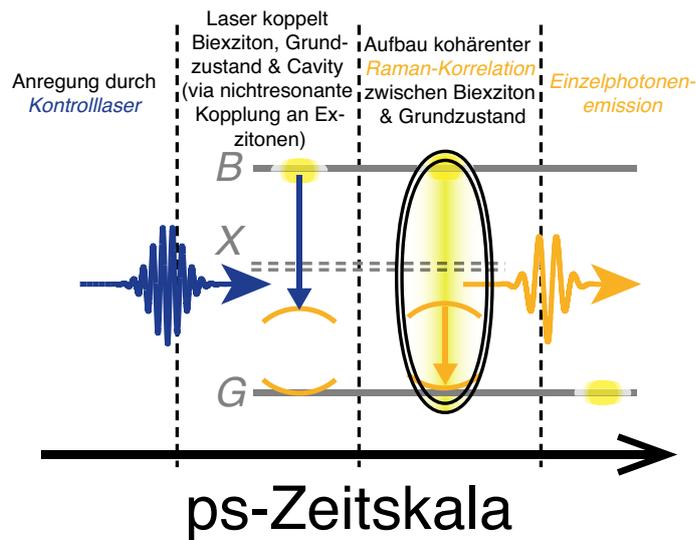


Abbildung 1.7.: Kontrollierte Einzelphotonenerzeugung aus dem Quantenpunktbiexziton. Skizziert ist ein sequentielles Schema des Emissionszyklus, beruhend auf dem vom Biexziton in den Grundzustand gerichteten Raman-Prozess. Der Kontrolllaser ist weiterhin blau, das Raman-Photon gelb markiert. Der Emissionszyklus ist in der Sprache der Cluster-Entwicklung formuliert, die in Kapitel 4 zunächst für Raman-Prozesse in Dreiniveausystemen etabliert und anschließend in Kapitel 5 auf das volle Vierniveausystem übertragen wird. Die hier gezeigte Darstellung präzisiert die in Abb. 1.1 gezeigte Skizze des Emissionsmechanismus.

niveausystemen und die daraus gewonnenen Erkenntnisse auf den Raman-Prozess zwischen Biexziton und Grundzustand übertragen. Dieses Kapitel stellt daher insbesondere auch eine Verallgemeinerung unserer Auftaktuntersuchungen aus Kapitel 3 für beliebige Resonator- und Laserverstimmungen sowie Anregungsintensitäten dar. Dies haben wir in dem in Abb. 1.7 gezeigten Schema illustriert, das den zu Beginn anhand von Abb. 1.1 umrissenen Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand nun kompakt in die Sprache der Cluster-Entwicklung übersetzt. Diese Formulierung lässt schließlich eine vereinheitlichende Beschreibung *aller* Raman-Prozesse zu, denn die gesamte Physik eines jeden Raman-Prozesses ist nunmehr stets in seiner zugeordneten Raman-Korrelation verschlüsselt. Entsprechend können wir nun die physikalischen Abläufe des Emissionsschemas sequentiell folgendermaßen kompakt gliedern: Der eingestrahelte Kontrolllaser koppelt – in der Regel nichtresonant mit den elektronischen Übergängen – an das Quantenpunkt-Mikroresonator-System derart, dass der Aufbau von strahlender *Raman-Korrelation* zwischen Biexziton und Grundzustand induziert wird. Damit einhergehend relaxiert das System unter Emission eines *Raman-Photons* in den Grundzustand. Wir werden wieder Emissionskarten für variierende Laser- und Resonatorverstimmungen bereitstellen sowie von der Anregungsintensität des Kontrolllasers abhängige Kennlinien der Raman-Emission berechnen. Wir werden im Rahmen unserer Untersuchungen in diesem Kapitel feststellen, dass sich die Eigenschaften der Λ - und V -artigen Raman-Emission in der Raman-Emission aus dem Biexziton überlagern und je nach Wahl des Systemdesigns gezielt einzeln bevorzugt oder sogar gewinnbringend kombiniert werden können. Ferner werden wir die in der Sprache der Cluster-Entwicklung entwickelten Einsichten wieder zurück auf die Darstellung durch Spektren übertragen und abschließend einen optimierten vollen *On-Demand-Zyklus* zur Einzelphotonenerzeugung – bestehend aus Biexziton-

initialisierung und Raman-Emissionszyklus – zeigen. Eine zentrale Erkenntnis unserer mikroskopischen Untersuchungen wird dabei sein, dass die in Kapitel 3 für die vereinfachten Anregungsbedingungen gefundene lasergestützte Umwandlung der inkohärenten Emission aus dem Biexziton in kohärente Raman-Photonenemission tatsächlich im On-Demand-Limes erhalten bleibt und gewinnbringend genutzt werden kann. Dieses Kapitel schließt dann den Ergebnisteil der vorliegenden Arbeit ab.

Zum Schluss geben wir anschließend in Kapitel 6 eine kompakte Zusammenfassung aller im Rahmen dieser Arbeit gewonnenen Erkenntnisse, die wir nochmals abschließend mit dem bisherigen Forschungsstand in Zusammenhang setzen wollen. Damit einhergehend werden wir noch einige vielversprechende Perspektiven für die Weiterentwicklung der hier eingeführten Konzepte und Optimierungsansätze für zukünftige Untersuchungen aufzeigen.

Zunächst werden wir im folgenden Kapitel wie bereits oben angekündigt ausgehend von der Einführung der verwendeten Hamilton-Operatoren mit einem kompakten Überblick über die grundlegende Modellbildung zur Beschreibung der Emissionsdynamik beginnen.

1. Einleitung

Theoretische Beschreibung der Quantenpunktemission

In diesem Kapitel geben wir einen Überblick über das grundlegende theoretische Konzept, das den in den folgenden Kapiteln präsentierten Analysen zugrunde liegt. Hier führen wir sowohl die Modellbildung zur Beschreibung der im Rahmen dieser Arbeit betrachteten optischen Anregung von Halbleiterquantenpunkten in Mikroresonatoren ein, als auch die Werkzeuge zur Berechnung der resultierenden Systemantwort, die wir in ihrer zeitlichen Entwicklung aber auch spektral aufgelöst untersuchen wollen.

2.1. Hamilton-Operatoren

Um Quantenpunkt-Mikroresonator-Systeme durch geeignete Hamilton-Operatoren abzubilden, nutzen wir aus, dass Quantenpunkte als quasinulldimensionale Nanostrukturen weitgehend durch ein diskretes Energietermschema behandelbar sind [9,61], wie wir auch bereits in der Einleitung motiviert hatten. Anders als in höherdimensionalen Halbleiternanostrukturen, wie zum Beispiel in quasizweidimensionalen Quantenfilmen [85, 105], kann die mikroskopische Behandlung der Coulomb-Wechselwirkung sowie der material-spezifischen Bandstruktur umgangen werden, insbesondere wenn wir uns – wie in dieser Arbeit – ausschließlich auf (nah-)resonante Anregungen der *lokalisierten* Quantenpunktzustände beschränken [61]. Damit zusammenhängend hat sich im langjährigen Vergleich mit Experimenten die Abbildung durch das bereits anhand von Abb. 1.2 diskutierte effektive Vierniveauschema bestehend aus exzitonischen und biexzitonischen Konfigurationen als äußerst belastbar erwiesen [62, 63, 67, 68, 78, 106, 107]. Im Folgenden führen wir zunächst dessen quantenmechanische Beschreibung zusammen mit dem zugehörigen Hamilton-Operator ein.

2.1.1. Vierniveaumodell des Quantenpunktes

Wir beschreiben – wie in Abb. 2.1 skizziert – den Quantenpunkt als Vierniveauschema bestehend aus einer Biexzitonkonfiguration B , dem Grundzustand G und zwei linear polarisierten Exzitonen $X_{H(V)}$, die mit horizontal (vertikal) polarisiertem Licht wechselwirken [80]. Wie bereits im einleitenden Kapitel erläutert, betten wir den Quantenpunkt in ein Mikroresonatorsystem ein, in das beide zueinander orthogonale Polarisationsmoden

2. Theoretische Beschreibung der Quantenpunktmission

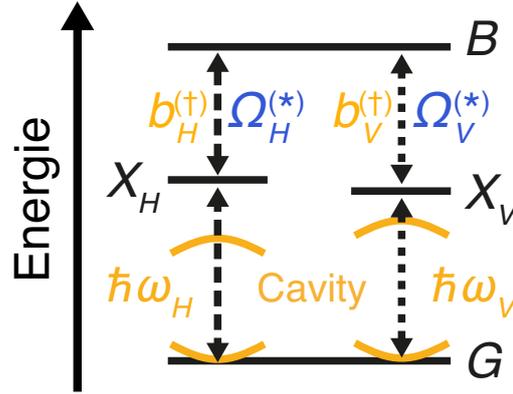


Abbildung 2.1.: Modell des Quantenpunkt-Cavity-System. Ausgehend von Abb. 1.1 ist nochmals zur Veranschaulichung das effektive Vierniveausystem des Halbleiterquantenpunktes – bestehend aus dem Biexziton B , den beiden horizontal (vertikal) polarisierten Exzitonen $X_{H(V)}$ sowie dem Grundzustand G – zusammen mit den optischen Auswahlregeln gezeigt. Dipolerlaubte Übergänge horizontaler Polarisation sind durch die gestrichelten Doppelpfeile dargestellt, vertikal polarisierte durch die gepunkteten. An diese Übergänge koppeln sowohl der horizontal (vertikal) polarisierte Kontrolllaser mit der zeitabhängigen Rabi-Energie $\Omega_{H(V)}$, als auch die horizontal (vertikal) polarisierten Resonatorphotonen, gegeben durch die bosonischen Erzeuger $b_{H(V)}^\dagger$, der Energie $\hbar\omega_{H(V)}$. Weitere Details zur Modellbildung können dem Haupttext entnommen werden.

einkoppeln können. Dies ermöglicht eine gezielte Verstärkung der angestrebten Einzelphotonenemission. Formal kann das Quantenpunkt-Mikroresonator-System durch einen *Jaynes-Cummings-Formalismus* [9, 61, 86] beschrieben werden, welcher die Ankopplung einzelner Lichtmoden an ein Materialsystem mit diskreten Energieniveaus effizient in *rotating wave approximation* (RWA, auf Deutsch *Drehwellennäherung*) behandelt [108]. Der volle Hamilton-Operator hat die Gestalt $H = H_0 + H_{LM}$ mit einem nicht wechselwirkenden Anteil H_0 und einem Anteil H_{LM} , der die Licht-Materie-Wechselwirkung beschreibt. Explizit ist H_0 gegeben durch [80]

$$H_0 = \sum_{\alpha=G, X_H, X_V, B} \hbar\omega_\alpha P_{\alpha,\alpha} + \sum_{i=H,V} \hbar\omega_i b_i^\dagger b_i, \quad (2.1)$$

wobei der erste Beitrag die Energien $\hbar\omega_\alpha$ der elektronischen Zustände $\alpha = G, X_H, X_V, B$ und der zweite die Energien $\hbar\omega_i$ der beiden Resonatormoden mit den Polarisationen $i = H$ und V bilanziert. In dieser Arbeit nutzen wir gelegentlich auch die Notation $E_\alpha \equiv \hbar\omega_\alpha$. Hierbei haben wir die elektronischen Operatoren $P_{\alpha,\beta} \equiv |\alpha\rangle\langle\beta|$ eingeführt, und die elektronischen Dirac-Vektoren $|\alpha\rangle$ seien Elemente des Hilbert-Raumes \mathcal{H}_E . Für $\alpha \neq \beta$ beschreibt $P_{\alpha,\beta}$ die elektronische Polarisation zwischen den Zuständen α und β , und bei gleichen Indizes, $\alpha = \beta$, die elektronische Besetzung des jeweiligen Zustandes, $P_{\alpha,\alpha}$. Hierbei nehmen wir Orthonormalität und Vollständigkeit der Zustände $|\alpha\rangle$ an. Weiterhin haben wir die Vernichter (Erzeuger) $b_i^{(\dagger)}$ eines Photons in der Mode $i = H, V$ mit der Energie $\hbar\omega_i$ eingeführt, welche die bosonischen Kommutatorrelationen

$$[b_i, b_j^\dagger] \equiv b_i b_j^\dagger - b_j^\dagger b_i = \delta_{i,j}, \quad [b_i^{(\dagger)}, b_j^{(\dagger)}] \equiv 0 \quad (2.2)$$

sowie die Auf- und Absteigeigenschaft

$$b_i^\dagger |n_i\rangle = \sqrt{n_i + 1} |n_i + 1\rangle, \quad b_i |n_i\rangle = \sqrt{n_i} |n_i - 1\rangle \quad (2.3)$$

erfüllen. Hierbei seien die Vektoren $|n_i\rangle$ die Basiselemente des jeweiligen Hilbertraumes \mathcal{H}_i ($i = H, V$) und Eigenzustände des Photonenzahloperators $N_i \equiv b_i^\dagger b_i$ mit $N_i|n_i\rangle = n_i|n_i\rangle$. Wir wollen die Eigenzustände $|\alpha, n_H, n_V\rangle$ von H_0 als Basis des Produktraumes $\mathcal{H}_E \otimes \mathcal{H}_H \otimes \mathcal{H}_V$ nutzen. Sie genügen der Orthonormalitäts- und Vollständigkeitsrelation,

$$\langle \alpha, n_H, n_V | \alpha', n'_H, n'_V \rangle = \delta_{\alpha, \alpha'} \delta_{n_H, n'_H} \delta_{n_V, n'_V}, \quad (2.4)$$

$$\sum_{\alpha=G, X_H, X_V, B} \sum_{n_H, n_V=0}^{\infty} |\alpha, n_H, n_V\rangle \langle \alpha, n_H, n_V| = 1. \quad (2.5)$$

Der Licht-Materie-Anteil des Hamilton-Operators [P1, P2] in RWA,

$$H_{\text{LM}} = \sum_{i=H, V} \left[g (P_{X_i, B} b_i^\dagger + P_{G, X_i} b_i) + (P_{X_i, B} \Omega_i^*(t) + P_{G, X_i} \Omega_i^*(t)) \right] + \text{h.c.}, \quad (2.6)$$

bildet die in Abb. 2.1 illustrierten Dipolauswahlregeln für die Resonatorphotonen sowie den externen Kontrolllaser ab. Der erste Teil beschreibt die Wechselwirkung des Quantenpunktes mit den beiden *quantisierten* Photonennmoden, deren Kopplungsstärke durch die Konstante g gegeben sei. Mit denselben Auswahlregeln erlauben wir durch den zweiten Teil die Ankopplung eines zeitabhängigen *klassischen* Lichtfeldes, gegeben durch die Rabi-Energie $\Omega_i(t)$ in der Mode i . Wir stellen das Laserfeld explizit durch seine Hüllkurve, $\Omega_{\text{env}, i}$, sowie durch seinen mit der Anregungsfrequenz $\omega_{L, i}$ oszillierenden Anteil dar, $\Omega_i(t) = \Omega_{\text{env}, i}(t)e^{-i\omega_{L, i}t}$. Die Abkürzung *h.c.* in H_{LM} bezeichne wie üblich den Hermitesch konjugierten Anteil des Hamilton-Operators. Dies ist eine Hybridtheorie in dem Sinne, dass wir zum einen die Resonatormoden quantisiert, aber das später zur Einzelphotonenkontrolle genutzte Lichtfeld klassisch beschrieben haben, was eine besonders effiziente Behandlung des Kontrolllaserfeldes erlaubt. Solche Ansätze vereinfachen die theoretische Modellbildung erheblich, und der direkte Vergleich mit Experimenten zeugt dennoch von einer weitreichenden Aussagekraft: Wir möchten bereits an dieser Stelle betonen, dass ein solches Hybridmodell – trotz der vordergründig rigorosen Annahmen – bereits in der Lage ist, Spektroskopieexperimente an nichtresonant angeregten Halbleiterquantenpunkten zu simulieren sowie darüber hinaus *mikroskopische Einsichten* zu ermöglichen [104]. Unser Modell stößt erst dann an seine Grenzen, sobald eine direkte Einkopplung von Laserphotonen in die Resonatormode relevant wird, also Laser und Resonator spektral deutlich überlappen. Schließlich berücksichtigt der Hamilton-Operator, Gl. (2.6), lediglich eine Ankopplung des Lasers an die Resonatormoden vermittelt des Materials. Eine Erweiterung unseres Ansatzes für jenen kritischen Grenzfall wäre aber jederzeit möglich: Die Ergänzung eines phänomenologischen Kopplungsterms zwischen Laser und Cavity gelingt leicht und ist ferner auch bereits zur erfolgreichen Analyse komplexer Experimente zu Zweiphotonenanregungen in Quantenpunkt-molekülen herangezogen worden [54]. Für die im Folgenden diskutierten Grundlagenstudien gehen wir aber davon aus, dass diese Erweiterung zunächst nicht relevant ist, da wir in unserem Vierniveauschema stets den besagten spektralen Überlapp vermeiden müssen, damit die Kontrolllaserphotonen und das emittierte Einzelphoton nicht an derselben Emissionsfrequenz entarten.

Wie bereits in der Einleitung umrissen, leiten wir nun im folgenden Kapitelabschnitt für ein grundlegendes Verständnis unseres Zweiphotonenprozesses aus dem vollen Vierniveaumodell die Hamilton-Operatoren fundamentaler, für die Einzelphotonenerzeugung

2. Theoretische Beschreibung der Quantenpunktemission

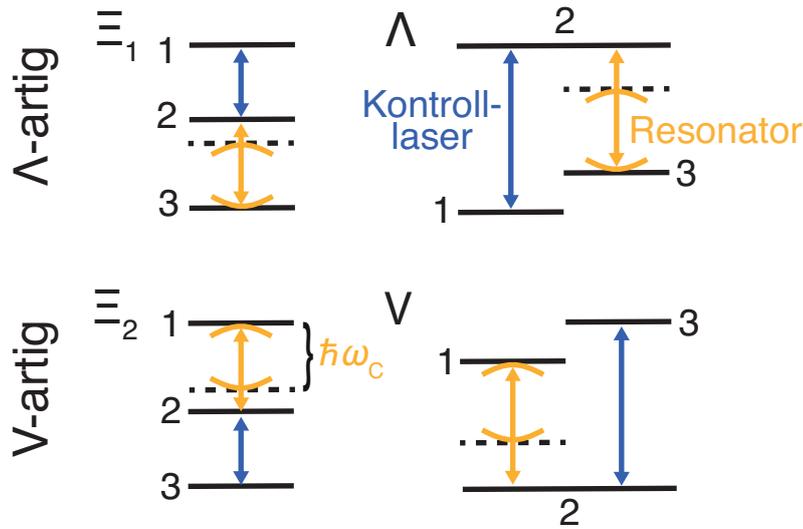


Abbildung 2.2.: Für die Raman-Photonenemission konfigurierte Dreiniveausysteme. Skizziert sind die für die Realisierung der in Abb. 1.6a gezeigten Zweiphotonen-Raman-Prozesse möglichen Konfigurationen von Dreiniveausystemen zusammen mit ihren optischen Auswahlregeln. An einen der beiden dipolerlaubten sowie zueinander orthogonal polarisierten Übergänge koppelt jeweils der Kontrolllaser (blaue Doppelpfeile) und an den anderen die Resonatormode (gelbe Doppelpfeile) der Energie $\hbar\omega_C$ (markiert durch die gelben Klammern). Wir benennen die vier Konfigurationen mit Ξ_1 , Λ , Ξ_2 und V , und sie können je nach Ankopplung des Resonators an den End- oder Anfangszustand als Λ -artig oder V -artig klassifiziert werden. Entsprechend dem gerichteten Zweiphotonenprozess nummerieren wir die elektronischen Zustände mit 1 (Anfangszustand), 2 (Zwischenzustand) und 3 (Zielzustand). Realisierungen in einem Quantenpunktsystem sind für die Ξ -Konfigurationen Biexziton (1), Exziton (2) und Grundzustand (3), für die Λ -Konfiguration ein geladener Quantenpunkt bzw. ein Quantenpunktmolekül in Gegenwart eines Magnetfeldes, und für die V -Konfiguration die feinstruktureaufgespaltenen Exzitonen (1,3) sowie der Grundzustand (2).

aus *Zweiphotonen-Raman-Prozessen* konfigurierter Dreiniveausysteme ab. Diese Systeme treten sowohl als Subsysteme des vollen Schemas auf, können aber auch zum Beispiel durch Anlegen externer Magnetfelder konfiguriert und isoliert werden [21, 53, 54, 76]. Hier sei insbesondere die Λ -Konfiguration [Abb. 1.1c] erwähnt, welche auch in der atomaren Realisierung ein prominentes System zur Untersuchung von Raman-Prozessen darstellt [42–45]. In diesem Zusammenhang wollen wir dann später in Kapitel 5 den halbstimulierten Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand auch *formal* mit der etablierten Klassifizierung der *Raman-Prozesse* in Dreiniveausystemen verbinden.

2.1.2. Fundamentale Dreiniveausysteme

Die möglichen Konfigurationen eines Dreiniveausystems, in denen sich ein gerichteter Zweiphotonenprozess realisieren lässt, bei dem jeweils ein Photon durch einen Kontrolllaser getrieben und ein Photon in eine Resonatormode emittiert wird, sind in Abb. 2.2 skizziert: Explizit finden wir vier Konfigurationen, zwei Leiter- (Ξ -) Konfigurationen, eine Λ - sowie eine V -Konfiguration, welche wir wie in unseren Skizzen vermerkt Ξ_1 , Λ , Ξ_2 und V nennen wollen. Wir bilden die Konfigurationen im selben Hybridformalismus ab wie schon im vorigen Abschnitt für das Vierniveausystem verwendet. Der volle Hamiltonoperator, $H(t) = H_0 + H_I(t)$, ist dann wieder gegeben durch einen nicht wechselwirkenden

Anteil,

$$H_0 = \hbar \left(\sum_{i=1}^3 \omega_i P_{i,i} + \omega_C b^\dagger b \right), \quad (2.7)$$

welcher in seiner formalen Gestalt nicht konfigurationsspezifisch ist. Im Wechselwirkungsanteil H_I hingegen schlagen sich die vier verschiedenen Licht-Materie-Kopplungen $I = \Xi_1, \Lambda, \Xi_2$ und V explizit nieder: Den in Abb. 2.2 skizzierten Auswahlregeln entsprechend sind die vier Licht-Materie-Wechselwirkungsanteile gegeben durch

$$H_{\Xi_1}(t) = \Omega^*(t)P_{2,1} + \Omega(t)P_{1,2} + g(P_{3,2}b^\dagger + P_{2,3}b), \quad (2.8)$$

$$H_{\Lambda}(t) = \Omega(t)P_{2,1} + \Omega^*(t)P_{1,2} + g(P_{3,2}b^\dagger + P_{2,3}b), \quad (2.9)$$

$$H_{\Xi_2}(t) = g(P_{2,1}b^\dagger + P_{1,2}b) + \Omega^*(t)P_{3,2} + \Omega(t)P_{2,3}, \quad (2.10)$$

$$H_V(t) = g(P_{2,1}b^\dagger + P_{1,2}b) + \Omega(t)P_{3,2} + \Omega^*(t)P_{2,3}. \quad (2.11)$$

Wie zuvor seien die elektronischen Operatoren durch $P_{i,j} = |i\rangle\langle j|$ definiert. Ebenso gelte weiterhin für die photonischen Erzeuger und Vernichter b^\dagger und b die bosonische Kommutatorrelation

$$[b, b^\dagger] = 1. \quad (2.12)$$

Ähnliche Beschreibungen von Dreiniveausystemen befinden sich beispielsweise auch in Quelle [44]. Die Produkteigenzustände von H_0 möchten wir analog zum Vierniveausystem durch $|i, n\rangle \in \mathcal{H}_E \otimes \mathcal{H}_C$ darstellen, welche der Auf- und Absteigerrelation

$$b^\dagger|i, n\rangle = \sqrt{n+1}|i, n+1\rangle, \quad b|i, n\rangle = \sqrt{n}|i, n-1\rangle \quad (2.13)$$

und der Orthonormalitäts- und Vollständigkeitsrelation

$$\langle i, n|j, m\rangle = \delta_{i,j}\delta_{n,m}, \quad (2.14)$$

$$\sum_{i=1}^3 \sum_{n=0}^{\infty} |i, n\rangle\langle i, n| = 1 \quad (2.15)$$

genügen mögen. Die Energien der elektronischen Zustände $i = 1, 2$ und 3 seien $\hbar\omega_i$, und die Resonatormode habe die Energie $\hbar\omega_C$. Beim klassischen Laserfeld entspricht $\Omega^{(*)}(t)$ der Absorption eines Photons (Stimulation durch ein Photon). Wir möchten es explizit durch seine Einhüllende Ω_{env} und seinen mit der Anregungsfrequenz ω_L oszillierenden Anteil darstellen, $\Omega(t) = \Omega_{\text{env}}(t)e^{-i\omega_L t}$. Um unserer Hybridtheorie einen größeren Geltungsbereich für unsere Fundamentalstudie des Zweiphotonenprozesses in Dreiniveausystemen zu verschaffen, wollen wir annehmen, dass die Übergänge $1 \leftrightarrow 2$ und $2 \leftrightarrow 3$ zueinander orthogonale Dipolmomente haben. Laser und Resonatormode seien also orthogonal zueinander polarisiert, was eine direkte Einkopplung des Lasers in den Resonator verhindert. Somit können Kontrolllaser und Einzelphoton durchaus an derselben Emissionsfrequenz entarten – es ist nun aber möglich beide Photonen im Experiment

2. Theoretische Beschreibung der Quantenpunktemission

durch Polarisationsfilterung voneinander zu trennen. Die Hamilton-Operatoren Gln. (2.8) und (2.9) können offensichtlich durch Vertauschen von Ω (Absorption) und Ω^* (Stimulation) ineinander überführt werden. Gleiches gilt für die Hamilton-Operatoren Gln. (2.10) und (2.11). Auf Basis dessen liegt es nahe die vier Systeme in zwei Klassen aufzuteilen, die wir Λ -artig und V -artig nennen wollen, wie auch in Abb. 2.2 dargestellt. Um Missverständnissen vorzubeugen, vereinbaren wir für alle folgenden Untersuchungen, dass wir die gesamte Klasse vom Typ T als T -artig oder T -Klasse bezeichnen wollen – meinen wir hingegen einen expliziten Vertreter Ξ_1, Λ, Ξ_2 oder V der jeweiligen Klasse, so sprechen wir von *Konfiguration*, z.B. Ξ_1 -Konfiguration (Λ -artig).

Nachdem nun die elementare Modellbildung durch die Formulierung von entsprechenden Hamilton-Operatoren abgeschlossen ist, führen wir im nächsten Abschnitt die Bewegungsgleichungen zur Beschreibung der Anregungsdynamik ein. Auf dieser Ebene kann die Modellbildung dann zudem auch um die Berücksichtigung von Dephasierungs- und Verlustprozessen erweitert werden.

2.2. Bewegungsgleichungen

Im Rahmen dieser Arbeit werden wir zwei äquivalente Ansätze nutzen, um die Dynamik der Systeme zu beschreiben, die durch die zuvor eingeführten Hamilton-Operatoren, Gln. (2.1) und (2.6) sowie Gln. (2.8)-(2.11), definiert sind. Zum einen nutzen wir die Von-Neumann-Gleichung für die zeitliche Entwicklung des Dichteoperators, die für niedrigdimensionale Hilberträume insbesondere für die numerische Behandlung geeignet ist. Darüber hinaus können Dephasierungs- und Verlustprozesse sehr einfach phänomenologisch durch Lindblad-Funktionale auf Ebene der Bewegungsgleichung eingeführt werden. Zum anderen betrachten wir die korrespondierende Heisenberg-Bewegungsgleichung, die – da sie unmittelbar die Zeitentwicklung der auftretenden Prozesse beschreibt – mikroskopische Einsichten erlaubt. Daher ist sie besonders gut für die Gewinnung analytischer Einsichten geeignet.

2.2.1. Von-Neumann-Gleichung

Die wohl am weitesten verbreitete Beschreibung der Systemdynamik von Mehrniveausystemen stellt die *Von-Neumann-Gleichung* dar [86, 108],

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \varrho = [H, \varrho] + \sum_L \mathcal{L}_L[\varrho], \quad (2.16)$$

welche die Zeitenwicklung des *Dichteoperators* ϱ des Gesamtsystems beschreibt, aus der anschließend die Erwartungswerte $\langle O \rangle$ aller Observablen O unmittelbar durch die Spurbildung

$$\langle O \rangle(t) = \text{tr} \{ \varrho(t) O \} \quad (2.17)$$

berechnet werden können. In der Von-Neumann-Gleichung haben wir bereits die Erweiterung durch sogenannte *Lindblad-Funktionale* $\mathcal{L}_L[\varrho]$ vorgenommen. Diese die Symmetrie von ϱ erhaltenden Funktionale erlauben eine besonders effiziente Modellierung von Verlust- und Dephasierungsprozessen durch phänomenologische Dämpfungskonstanten. Das Lindblad-Funktional hat im Schrödinger-Bild die Gestalt [86]

$$\mathcal{L}_L[\varrho] = \frac{i}{2} (2L\varrho L^\dagger - \varrho L^\dagger L - L^\dagger L\varrho). \quad (2.18)$$

Zu jedem Prozess, den wir phänomenologisch durch eine Dämpfungskonstante ℓ über das Funktional beschreiben wollen, korrespondiert dann ein jeweiliger Operator \mathcal{D} , sodass der Lindblad-Operator durch $L = \sqrt{\hbar\ell} \mathcal{D}$ ausgedrückt werden kann. Die explizite Wahl dieser Operatoren werden wir später im Rahmen unserer Analysen spezifizieren.

Numerisch kann Gl. (2.16) in Matrix-Vektor-Darstellung mithilfe des klassischen vierstufigen Runge-Kutta-Verfahrens gelöst werden. In unserem Fall endlich vieler Energieniveaus und einer durch die Anfangsbedingung beschränkten Anzahl von Photonen gelingt nämlich eine *exakte* Formulierung durch endlichdimensionale $(k \times k)$ -Matrizen $\{\langle \xi_i | \varrho | \xi_j \rangle\}_{i,j=1,\dots,k}$. Hierbei wählen wir den entsprechend reduzierten Satz von Eigenzuständen $|\xi_i\rangle$ des nicht wechselwirkenden Anteils des Hamilton-Operators, $H_0|\xi_i\rangle = E_i|\xi_i\rangle$, in fester Ordnung $i = 1, \dots, k$ als vollständige Orthonormalbasis. Zudem erweist es sich als nützlich, die Gleichung dazu über die gängige unitäre Transformation $U(t) = e^{iH_0 t/\hbar}$ ins Wechselwirkungsbild [105] zu transformieren.

Während diese Beschreibung der Anregungs- und Emissionsdynamik zwar formal exakt und numerisch sehr effizient behandelbar ist, so stößt ihre Aussagekraft insbesondere dann an ihre Grenzen, sobald wir – wie im Falle unserer weiterführenden Untersuchung der Raman-Prozesse – eine *mikroskopische* Sichtweise benötigen, die unmittelbar Auskunft über die teilhabenden Anregungspfade und die jeweils dazu korrespondierenden Emissionsbeiträge gibt. Eine solche intuitive Perspektive bietet ausschließlich das Heisenberg-Bild (bzw. das *Ehrenfest-Theorem* [87]) in Kombination mit der Methode der *Cluster-Entwicklung*. Auf diesen Ansatz möchten wir – da er für die vorliegende Arbeit eine zentrale Rolle spielt – im folgenden Abschnitt genauer eingehen. In diesem Zusammenhang werden wir uns besonders an den Darstellungen in den Quellen [85, 86] orientieren.

2.2.2. Heisenberg-Gleichung und Cluster-Entwicklung

Eine formal äquivalente Darstellung zum Dichtematrixformalismus, Gl. (2.16), bietet die *Heisenberg-Bewegungsgleichung*

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle O \rangle = \langle [O, H] \rangle + \sum_L \langle \mathcal{L}_L^H [O] \rangle, \quad (2.19)$$

welche unmittelbar die Dynamik des jeweiligen Erwartungswertes $\langle O \rangle$ eines Operators O beschreibt [86]. Hierbei bezeichnet \mathcal{L}_L^H das Lindblad-Funktional Gl. (2.18) im Heisenberg-Bild [86],

$$\mathcal{L}_L^H [O] = \frac{i}{2} (L^\dagger [O, L] + [L^\dagger, O] L). \quad (2.20)$$

2. Theoretische Beschreibung der Quantenpunktemission

Enthält H einen Wechselwirkungsanteil, wie etwa Coulomb- oder Licht-Materie-Wechselwirkung, induziert dieser eine gewöhnlich als *Vielteilchen-Hierarchieproblem* bezeichnete unendliche Hierarchie gekoppelter Bewegungsgleichungen. Denn die Dynamik einer N -Teilchengröße koppelt dann an die Dynamik einer $(N + 1)$ -Teilchengröße [85]. In diesem Zusammenhang betrachten wir eine N -Teilchengröße in Normalordnung,

$$\langle N \rangle \equiv \langle B_1^\dagger \cdots B_K^\dagger F_1^\dagger \cdots F_{N_F}^\dagger F_{N_F} \cdots F_{1'} B_{j'} \cdots B_{1'} \rangle \quad (2.21)$$

mit $N = N_B + N_F$, welche im Allgemeinen aus $N_B = J + K$ bosonischen Vernichtern (Erzeugern) $B_j^{(\dagger)}$ und $2N_F$ fermionischen Vernichtern (Erzeugern) $F_i^{(\dagger)}$ bestehen kann. Mit den gestrichelten Indizes wollen wir andeuten, dass die Ordnungszahlen der Operatoren natürlich durchaus verschiedene Multiindizes aus Quantenzahlen, zum Beispiel Bandindex und Impuls (λ, \mathbf{k}) einer elektronischen Bandstruktur, repräsentieren können. Bei den Bosonen wollen wir uns ausschließlich auf Teilchen wie Photonen oder Phononen beschränken, für die keine Teilchenzahlerhaltung gilt (im Gegensatz zu massiven bosonischen Teilchen wie beispielsweise einem Ensemble von Atomen [109]). Die für solch einen Erwartungswert aus der Heisenberg-Gleichung, Gl. (2.19), resultierende Dynamik lässt sich dann strukturell schreiben als

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle N \rangle = T[\langle N \rangle] + \text{HI}[\langle N + 1 \rangle]. \quad (2.22)$$

Hierbei bezeichnet T ein Funktional, welches die Rückkopplung an dieselbe Operatorklasse beschreibt, und HI die hierarchische Ankopplung an eine $(N + 1)$ -Operatorgröße. Es gibt unterschiedliche Ansätze die Hierarchie abzurechnen, um einen geschlossenen und lösbaren Satz von Differentialgleichungen zu erhalten. In dieser Arbeit wenden wir die inzwischen wohletablierte effiziente Methode der *Cluster-Entwicklung* an, und an dieser Stelle geben wir daher einen kompakten Überblick, der sich – wie bereits oben erwähnt – maßgeblich an den Quellen [85, 86] orientiert. Bei diesem Ansatz wird eine N -Teilchenwechselwirkung systematisch in Einteilchen-, Zweiteilchen-, Dreiteilchen und höherrangige Beiträge (*korrelierte Cluster*) entwickelt, welche entsprechend als *Singlets*, *Doublets*, *Triplets* und so weiter bezeichnet werden. Auf Ebene der Erwartungswerte entspricht dies einem rekursiven Faktorisierungsschema, das wir zur Veranschaulichung in Abb. 2.3 skizziert haben. Von nun an kennzeichnen wir N -Teilchenkorrelationen mit spitzen Doppelklammern, $\langle\langle N \rangle\rangle$, um sie vom gewöhnlichen Erwartungswert zu unterscheiden. Die Korrelation $\langle\langle N \rangle\rangle$ ist dann durch das Schema rekursiv und eindeutig definiert. Die niedrigste Korrelation (Singlet) ist identisch mit ihrem vollen Erwartungswert, für Bosonen also explizit $\langle\langle B_i^{(\dagger)} \rangle\rangle = \langle B_i^{(\dagger)} \rangle$ und für Fermionen $\langle\langle F_i^\dagger F_{j'} \rangle\rangle = \langle F_i^\dagger F_{j'} \rangle \equiv \langle P_{i,j'} \rangle$. Die Größe $P_{i,j'}$ ist also in der Regel entweder polarisationsartig (für $i \neq j'$) oder besetzungsartig (für $i = j'$). Wenden wir dieses Schema auf die Heisenberg-Gleichung an, erhalten wir direkt die Dynamik der *Korrelationen*, die nun die Gestalt

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle\langle N \rangle\rangle = T[\langle\langle N \rangle\rangle] + \text{NL}[\langle\langle 1 \rangle\rangle, \langle\langle 2 \rangle\rangle, \dots, \langle\langle N \rangle\rangle] + \text{HI}[\langle\langle N + 1 \rangle\rangle] \quad (2.23)$$

annimmt, wobei das Funktional NL eine aus der Faktorisierung resultierende nichtlineare Kopplung zwischen den Korrelationen bis zur Ordnung N beschreibt. In dieser Darstellung gelingt ein konsistentes Abrechnen der Gleichungshierarchie, falls die Lösung von

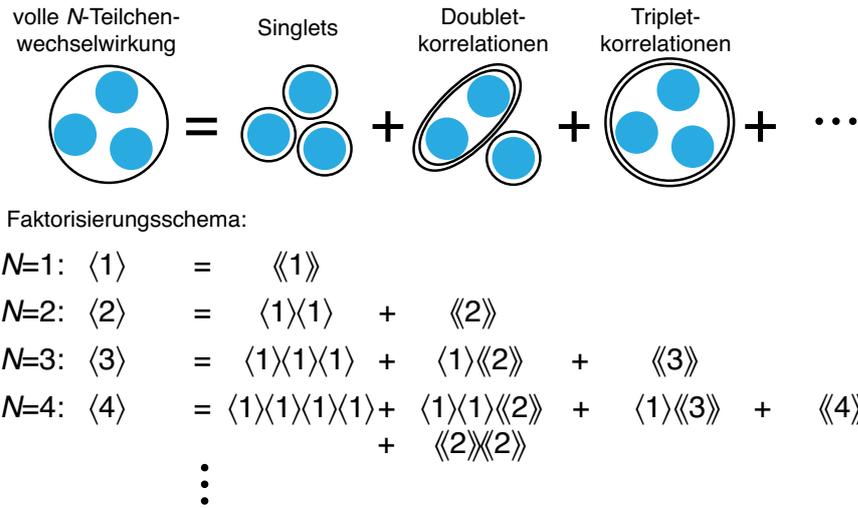


Abbildung 2.3.: Schematische Darstellung der Cluster-Entwicklung. Wir illustrieren die Cluster-Entwicklung einer N -Teilchenwechselwirkung (einfache Kreislinien) exemplarisch an einer Dreiteilchengröße, wobei jede blaue Kreisfläche einen Teilchenoperator symbolisiere. Doppelte Ellipsenlinien sollen hierbei die korrelierten Cluster im Sinne des korrespondierenden rekursiven Faktorisierungsschemas der Erwartungswerte kennzeichnen, in dem alle möglichen Permutationen der Operatoren berücksichtigt werden müssen. So ist beispielsweise im Falle von drei Teilchenoperatoren natürlich die Summation über alle drei verschiedenen Möglichkeiten der Zerlegung $\langle 1 \rangle \langle\langle 2 \rangle\rangle$ in Singlets und Doublets vorzunehmen. Entsprechend der graphischen Darstellung durch einfache und doppelte Ellipsenlinien sei $\langle N \rangle$ der volle Erwartungswert und $\langle\langle N \rangle\rangle$ seine Korrelation.

Gl. (2.23) unter sukzessiver Hinzunahme der Korrelationen $N = 1, 2, 3, \dots$ bei einem endlichen $N = N_\infty$ mit $\text{HI}[\langle\langle N_\infty + 1 \rangle\rangle] \approx 0$ konvergiert. Je nach Art der Wechselwirkung reichen meist wenige Beiträge für die Konvergenz aus, da sich typischerweise Korrelationen wachsender Ordnung auf langsameren Zeitskalen etablieren. Gängige Näherungen sind daher die Singlet-Doublet-Näherung (SD) mit $\text{HI}[\langle\langle 3 \rangle\rangle] \approx 0$ und die Singlet-Doublet-Triplet-Näherung (SDT) mit $\text{HI}[\langle\langle 4 \rangle\rangle] \approx 0$.

Wir verzichten auf eine explizite Angabe der in Gln. (2.22) und (2.23) auftretenden Funktionale, sie können den oben genannten Quellen entnommen werden. Wir haben sie hier lediglich zur prinzipiellen Darstellung des Cluster-Entwicklungsansatzes eingeführt. In relativ einfachen Modellsystemen, wie auch hier, kann der Satz von Korrelationsgleichungen praktikabel durch Kenntnis der Bewegungsgleichungen der vollen Erwartungswerte, Gl. (2.19) explizit sukzessive berechnet werden. Als Beispiel betrachten wir die Dynamik eines Doublets $\langle\langle 2 \rangle\rangle$. Sei also die Dynamik der entsprechenden Singlets $\langle 1 \rangle$ und der Zweiteilchengröße $\langle 2 \rangle$ formal bekannt, dann gilt im durch das in Abb. 2.3 skizzierten Schema

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle\langle 2 \rangle\rangle &= i\hbar \frac{\partial}{\partial t} (\langle 2 \rangle - \langle 1 \rangle \langle 1 \rangle) = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle 2 \rangle - \left(i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle 1 \rangle \right) \langle 1 \rangle - \langle 1 \rangle \left(i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle 1 \rangle \right) \\
 &\equiv \text{T}[\langle\langle 2 \rangle\rangle] + \text{NL}[\langle 1 \rangle, \langle\langle 2 \rangle\rangle] + \text{HI}[\langle\langle 3 \rangle\rangle].
 \end{aligned} \tag{2.24}$$

Der so gewonne Satz geschlossener Korrelationsgleichungen ermöglicht dann die Analyse der mikroskopischen Kopplungsstruktur von *messbaren* Observablen – wie beispielsweise der emittierten Photonenpopulation – an gegebenenfalls *nicht direkt* messbare Größen – wie insbesondere die später im Rahmen von Kapitel 4 definierte *Raman-Korrelation*.

2. Theoretische Beschreibung der Quantenpunktemission

Wir werden daher auch den Zusammenhang mit der Gestalt messbarer Emissionsspektren herstellen, aus deren Betrachtung nicht in jedem Fall mikroskopische Erkenntnisse gewonnen werden können, wie etwa wenn anhand von gemessener Emissionsfrequenz, Linienbreite oder Polarisationsmode allein keine eindeutigen Rückschlüsse auf die zum Spektrum beitragenden Anregungspfade gezogen werden können. Im nächsten Absatz führen wir zunächst das messbare zeitaufgelöste Emissionsspektrum der in den Mikroresonator eingekoppelten Photonen ein.

2.3. Emissionsspektrum

Da wir in unserem Anregungsschema zur Einzelphotonenerzeugung [Abb. 1.1] insbesondere an einer gepulsten, das heißt *nichtstationären*, Anregung interessiert sind, ist es hier im Allgemeinen nicht möglich ein quasistationäres Emissionsspektrum über das *Wiener-Khintchine-Theorem* [61] zu gewinnen. Stattdessen werden wir das deutlich allgemeinere sowie zeitaufgelöste *Eberly-Wodkiewicz-Spektrum* [88] berechnen, welches eine Reihe von physikalischen Eigenschaften einer korrespondierenden Messung des Spektrums berücksichtigt. Daher wird das Eberly-Wodkiewicz-Spektrum aufgrund seiner der Messung nachempfundenen Definition auch als *physikalisches Spektrum* bezeichnet: Sei der Operator $b^{(\dagger)}$ der zur Messung gehörige Photonenvernichter (-erzeuger) und die reelle Funktion $D(t)$ ein Zeitfenster, das die Detektoreigenschaften abbilde (z.B. eine Gauß-Kurve [110]). Dann führen wir zunächst neue Operatoren durch Fourier-Transformation der durch das Detektormodell modifizierten Photonenvernichter und -erzeuger, $B(t) \equiv D(t)b(t)$ und $B^\dagger(t) \equiv D(t)b^\dagger(t)$, ein,

$$B(\omega, t) = \int_0^t dt' e^{i\omega t'} B(t'), \quad B^\dagger(\omega, t) = \int_0^t dt' e^{-i\omega t'} B^\dagger(t'), \quad (2.25)$$

wobei ω die Emissionsfrequenz bezeichne. Das durch den der Messdauer entsprechenden Zeitpunkt t beschränkte Fourier-Integral stellt sicher, dass das Spektrum zur Zeit t nicht von seiner Zukunftsentwicklung abhängt, was ebenso der Heisenbergschen Unschärfere-lation zwischen Energie und Zeit Rechnung trägt. Wir definieren das über das Zeitintervall $[0, t]$ gemessene Emissionsspektrum dann als

$$S(t, \omega) \equiv \frac{1}{2} \langle B^\dagger(\omega, t) B(\omega, t) \rangle \quad (2.26)$$

$$= \frac{1}{2} \int_0^t dt' \int_0^t dt'' e^{-i\omega(t'-t'')} D(t') D(t'') \langle b^\dagger(t') b(t'') \rangle. \quad (2.27)$$

Der hier auftretende zweizeitige Erwartungswert kann durch weitere Umformung des Doppelintegrals ausschließlich auf die Gestalt der photonischen *Autokorrelationsfunktion* [61]

$$G(t, \tau) = \langle b^\dagger(t + \tau) b(t) \rangle \quad (2.28)$$

zurückgeführt werden, und wir erhalten schlussendlich den als *physikalisches Spektrum* [79, 88, 106, 110] bekannten Ausdruck

$$S(t, \omega) = \text{Re} \int_0^t dt' \int_0^{t-t'} d\tau e^{-i\omega\tau} D(t'+\tau) D(t') G(t', \tau). \quad (2.29)$$

Wir werden für unsere grundlegenden Studien ideale Detektoren, $D(t) \equiv 1$, annehmen. Für den Vergleich mit experimentellen Daten kann dann ein geeignetes Detektormodell, wie etwa eine Gauß- oder Lorentz-Kurve, verwendet werden [88, 110].

Im Limes *quasistationärer* Anregung (engl. *continuous wave*, CW), wo die elektronischen Besetzungen sowie die Emission zeitlich konstant oder nur schwach veränderlich sind, gilt $G(t, 0) = \langle b^\dagger b \rangle(t) \approx \text{const.}$ und somit $G(t, \tau) = G(\tau)$. Für lange Messzeiten sowie ideale Detektoren ist das physikalische Spektrum dann proportional zum *Wiener-Khintchine-Spektrum* [106, 110, 111],

$$S_{\text{CW}}(\omega) = \text{Re} \int_0^\infty d\tau e^{-i\omega\tau} G(\tau). \quad (2.30)$$

Hierbei sei angemerkt, dass die aus Gln. (2.29) und (2.30) resultierenden Linienbreiten nur dann vergleichbar sind, wenn wir das physikalische Spektrum auf Zeitskalen betrachten, auf denen die jeweils betrachteten Linienbreiten bereits vollständig etabliert sind.

Numerisch können wir Gl. (2.29) wesentlich leichter handhaben als den ursprünglichen Ausdruck Gl. (2.27), weil die Autokorrelation stets den Vorteil hat, dass sie im Dichteoperatorformalismus über das *Quantenregressionstheorem* zugänglich ist [61]. Denn wir können die Gleichheit der Erwartungswerte im Schrödinger- und Heisenberg-Bild ausnutzen, um erst die t - und dann die τ -Dynamik einer allgemeinen zweizeitigen Korrelationsfunktion $\langle O(t+\tau)Q(t) \rangle$ beliebiger Operatoren O und Q auszurechnen. Es gilt mit den Regeln der zyklischen Spur und der Gleichheit beider Bilder zum Anfangszeitpunkt

$$\begin{aligned} \langle O(t+\tau)Q(t) \rangle &= \text{tr} \left\{ \varrho [O(t+\tau)Q(t)] \right\} = \text{tr} \left\{ \varrho(t) [O(\tau)Q(0)] \right\} \\ &= \text{tr} \left\{ [Q(0)\varrho(t)] O(\tau) \right\}, \end{aligned} \quad (2.31)$$

sodass wir mit der Von-Neumann-Gleichung Gl. (2.16) zunächst die Zeitabhängigkeit $\varrho(t)$ berechnen können. Identifizieren wir dann den modifizierten Dichteoperator $Q(0)\varrho(t) \equiv \tilde{\varrho}(\tau = 0)$ als Anfangsbedingung der τ -Bewegung, so folgt durch erneutes Nutzen von Gl. (2.16), diesmal für $\tilde{\varrho}$, unmittelbar

$$\langle O(t+\tau)Q(t) \rangle = \text{tr} \{ \tilde{\varrho}(\tau) O \}. \quad (2.32)$$

Es sei angemerkt, dass im Falle *explizit* zeitabhängiger Hamilton-Operatoren bei der Berechnung der τ -Dynamik von $\tilde{\varrho}$ die Anfangsbedingung $H(t)$ gesetzt werden muss. Dies erschließt sich auch aus der Bewegungsgleichung der Korrelationsfunktion selbst. Diese kann für einen festen Zeitpunkt t formal gewonnen werden durch die Heisenberg-Bewegungsgleichung, Gl. (2.19), über

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial \tau} \langle O(t+\tau)Q(t) \rangle = \left\langle i\hbar \frac{\partial O(s)}{\partial s} \Big|_{s=t+\tau} Q(t) \right\rangle. \quad (2.33)$$

2. Theoretische Beschreibung der Quantenpunktemission

Wir werden uns im Verlauf dieser Arbeit darüber auch *analytischen* Zugang zum Emissionsspektrum verschaffen.

An diesem Punkt haben wir nun das gesamte theoretische Rahmenkonzept eingeführt, das unseren in den folgenden Ergebniskapiteln präsentierten Studien der Zweiphotonenprozesse zugrunde liegt: Wir haben sowohl unsere in Kapitel 1 eingeführten Modellsysteme quantenmechanisch durch geeignete Hamilton-Operatoren abgebildet, als auch die Werkzeuge zur Beschreibung und Analyse der Anregungs- und Emissionsdynamik in Form der Bewegungsgleichungen und des physikalischen Spektrums bereitgestellt. Im nächsten Kapitel, dem Auftaktkapitel unserer im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Studien, beginnen wir mit der Untersuchung der Einzelphotonenemission aus dem Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand unter wohlkontrollierbaren vereinfachten Anregungsbedingungen. Auf diese Weise werden wir uns einen ersten grundlegenden Zugang verschaffen können, sowohl durch Simulationen der Emissionsdynamik und des Emissionsspektrums als auch durch die begleitende Erschließung fundamentaler analytischer Zusammenhänge.

Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand

In diesem Auftaktkapitel verschaffen wir uns anhand eines realistischen sowie repräsentativen Beispielsystems erste grundlegende Einsichten in die Dynamik und die spektralen Eigenschaften der Einzelphotonenemission aus dem Biexziton. Vor allen Dingen ist das Emissionsspektrum gerade zu Beginn der im Rahmen dieser Arbeit präsentierten Studien ein besonders intuitiver Zugang, um die optischen Eigenschaften zu analysieren, da es sich ja um eine messbare Größe handelt. Wie bereits in Kapitel 1 motiviert, modellieren wir in diesem Zusammenhang in einem ersten Schritt ein vereinfachendes Anregungs- und Systemdesign, um der ungewollten Ansteuerung – möglicherweise noch unbekannter – konkurrierender Anregungspfade durch den Kontrolllaser vorzugbeugen. Darüber hinaus ermöglicht dieser Ansatz begleitend auch die analytische Erschließung fundamentaler physikalischer Zusammenhänge, sowohl für die Dynamik als auch für das Spektrum. Hier möchten wir anhand von Abb. 3.1 nochmals einen kurzen Überblick über den Anregungsmechanismus und das Modellsystem geben: Wie Abb. 3.1a zeigt, nehmen wir nun stets an, dass das Biexziton bereits erzeugt worden sei. Durch Anregung mit einem geeignet auf die Zweiphotonenresonanz [Abb. 3.1c] gestimmten Kontrolllaserpuls (blau gekennzeichnet) wird die Emission eines einzelnen Photons (gelb gekennzeichnet) stimuliert. Wir werden in diesem Kapitel zeigen, dass jenes über den in Abb. 3.1b gekennzeichneten Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand erzeugte Photon Linienbreite und -form des Laserpulses sowie die zu diesem komplementäre Emissionsfrequenz übertragen bekommt. Anhand dieser Merkmale werden wir unseren Zweiphotonenanregungspfad als *Raman-Prozess* klassifizieren können. Dieses erste Kapitel wird der Ausgangspunkt für alle weiteren im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten und präsentierten Analysen sein. Die gezeigten und diskutierten Ergebnisse dieses Kapitels sind weitgehend in den Publikationen [P1] und [P2] veröffentlicht.

Im ersten Abschnitt werden wir zunächst das in Abb. 3.1b skizzierte Modellsystem des Quantenpunktes durch die Wahl geeigneter Materialparameter spezifizieren, um die in Abschnitt 2.1.1 eingeführte Modellbildung zu komplettieren.

3. Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand

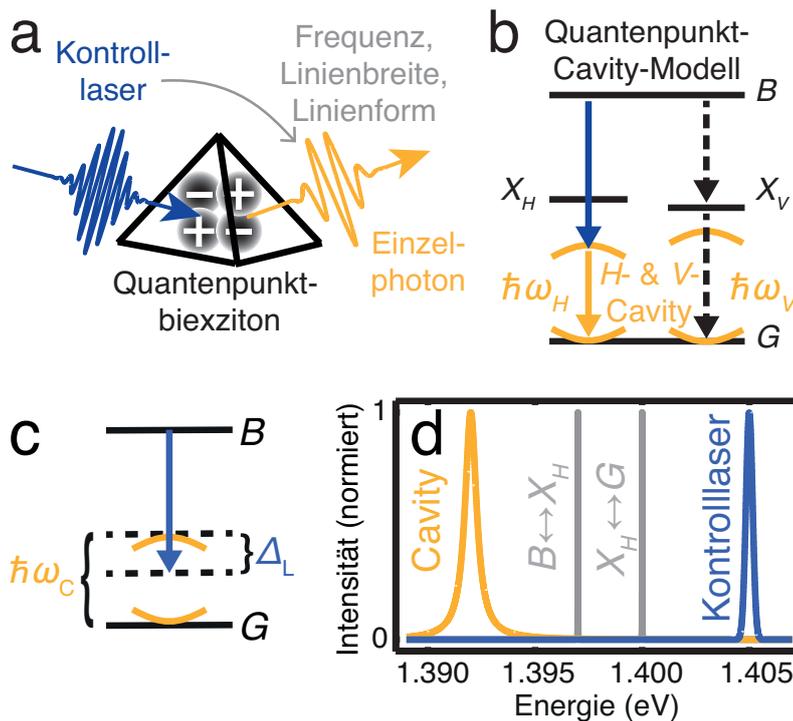


Abbildung 3.1.: Einzelphotonenemission aus dem Quantenpunktbiexziton. Abbildung (a) ist eine schematische Darstellung der Erzeugung einzelner Photonen aus dem Biexziton in Halbleiterquantenpunkten mittels des in (b) skizzierten Anregungsmechanismus. Der halbstimulierte Zweiphotonenprozess ist exemplarisch in der H -Mode eingezeichnet, wobei der Kontrolllaser durch den blauen und das emittierte Einzelphoton durch den gelben Pfeil repräsentiert sind. In der V -Mode ist die spontan in beiden Moden ablaufende Biexziton-Exziton-Kaskade eingezeichnet (schwarze gestrichelte Pfeile). Die gelben Klammern symbolisieren die Mikroresonatoren, die jeweils die H - und V -Mode verstärken. (c,d) Resonanzbedingung und Systemkonfiguration. Skizziert sind (b) die Resonanzbedingung, Gl. (3.1), wobei die Bezugspunkte für Δ_L durch die gestrichelten Linien markiert sind, sowie (d) die Linienbreiten und die spektralen Positionen für die gewählten Parameter (siehe Text). Exemplarisch ist der Kontrolllaser als Gauß-Puls der Breite $\Delta t = 3$ ps für die elementare Resonanzbedingung $\Delta_L = 0$ eingezeichnet.

3.1. Vorüberlegungen zu Systemdesign und Anregungsbedingungen

Um erste Einsichten in die Physik der Einzelphotonenemission aus dem Biexziton zu gewinnen, legen wir in diesem Abschnitt einheitliche Systemparameter und Annahmen fest, welche wir allen in diesem Kapitel präsentierten Analysen zugrunde legen werden. Da im Vierniveaumodell des Quantenpunkt-Mikroresonator-Systems neben dem zu untersuchenden Zweiphotonenprozess auch weitere, konkurrierende Anregungspfade – wie zum Beispiel die schrittweise lasergetriebene Inversion in den Grundzustand über die exzitonischen Zustände – möglich sind, beschränken wir uns auf stark nichtresonante Anregungen, bei denen weder das Resonatorsystem noch der Kontrolllaser spektral mit den elektronischen Resonanzen überlappen. Dieser Limes lässt vor allen Dingen auch in der analytischen Untersuchung einige die Problemstellung stark vereinfachende Annahmen zu. Insbesondere kann auf die Cluster-Entwicklung zur Behandlung des Hierarchieproblems vorerst verzichtet werden. Eine umfassende sowie systematische Untersuchung des

3.1. Vorüberlegungen zu Systemdesign und Anregungsbedingungen

Zweiphotonenprozesses zwischen Biexziton und Grundzustand für *beliebige* Resonator- und Laserverstimmungen werden wir erst später – in Kapitel 5, nach der Entwicklung geeigneter Werkzeuge im folgenden Kapitel – vornehmen können.

Konkret wählen wir für InGaAs-basierte Materialsysteme typische Materialparameter [80]: Die Übergangsenergien seien $E_{X_H(V)} - E_G = 1.4$ eV, was etwa einer Wellenlänge von 880 nm entspricht, sowie $E_B - E_{X_H(V)} = 1.397$ eV, was einer Bindungsenergie des Biexzitons von $\Delta E_B = 3$ meV entspricht. Dabei haben wir bereits eine mögliche Feinstrukturaufspaltung der Ezitonen vernachlässigt, $E_{X_H} - E_{X_V} \approx 0$, was für große, auf einer meV-Skala angesiedelte Verstimmungen von Laser und Cavity von den elektronischen Resonanzen gerechtfertigt ist. Typische Feinstrukturaufspaltungen liegen ja im Bereich von einigen μeV [63]. Im Hinblick auf die Möglichkeit zur Polarisationskontrolle (siehe Publikation [P1]), welche im Rahmen dieser Arbeit nicht weiter diskutiert wird, wählen wir die Energien beider Resonatoren einheitlich, $\hbar\omega_H = \hbar\omega_V \equiv \hbar\omega_C = 1.392$ eV. Die Licht-Materie-Kopplung sei durch $g = \hbar/50 \text{ ps}^{-1} = 13 \mu\text{eV}$ gegeben. Wir möchten uns ferner exemplarisch ausschließlich auf Anregungen in der *H*-Mode beschränken, um eine wohlkontrollierbare Anregungssituation sicherzustellen. In allen in diesem Kapitel folgenden Betrachtungen werden wir daher um der besseren Lesbarkeit willen den Index *H* unterdrücken, z.B. $X_H \equiv X$.

Für unser System können wir also ausgehend von der *elementaren Resonanzbedingung* für den Kontrolllaser, $\hbar\omega_L + \hbar\omega_C \approx E_B - E_G$, wie wir sie anhand von Abb. 3.1b intuitiv wählen, eine Resonanzbedingung definieren, welche eine Durchstimbarkeit des Lasers um jene Resonanz erlaubt. Denn wir streben schließlich eine Steuerung der Emissionsfrequenz des Einzelphotons durch den Laser an. Wir definieren daher die *Anregungsfrequenz des Kontrolllasers* ω_L durch

$$\hbar\omega_L = E_B - E_G - \hbar\omega_C + \Delta_L, \quad (3.1)$$

wobei dementsprechend Δ_L die Laserverstimmung gegenüber der elementaren Resonanz bezeichne, siehe Abb. 3.1c. Wir nehmen nun Kontrollpulse der Form $\Omega(t) = \Omega_{\text{env}}(t)e^{-i\omega_L t}$ an, und betrachten explizit Gaußsche Hüllkurven,

$$\Omega_{\text{env}}(t) = \Omega_0 e^{-\frac{(t-t_0)^2}{2\Delta t^2}}, \quad (3.2)$$

mit Amplitude Ω_0 , Breite Δt und Zentrum bei t_0 .

Abschließend spezifizieren wir noch die Verlustprozesse und -raten, die wir durch die in Abschnitt 2.2 eingeführten Lindblad-Funktionale, Gln. (2.18) und (2.20), modellieren werden. Wir berücksichtigen durch den Lindblad-Operator $L = \sqrt{\hbar\kappa}b_i$ für beide Moden, $i = H$ und V , eine endliche Lebensdauer $1/\kappa$ der Photonen im Resonator. Weiterhin führen wir eine Zerfallsrate $\gamma_{\alpha,\beta}$ für die elektronischen Polarisationen (engl. *pure dephasing*) ein, deren Dephasierungsprozess durch die Lindblad-Operatoren $L = \sqrt{\hbar\gamma_{\alpha,\beta}}(P_{\alpha,\alpha} - P_{\beta,\beta})$ mit $E_\alpha > E_\beta$ und $\alpha, \beta = B, X_H, X_V, G$ eingeführt wird [83]. Vereinfachend nehmen wir eine einheitliche Dephasierungskonstante $\gamma \equiv \gamma_{\alpha,\beta}$ für alle elektronischen Polarisationen an, sodass wir den Lindblad-Term nach Gl. (2.18) auswerten können als [80]

$$\left. \frac{\partial}{\partial t} \rho \right|_{\text{pure}} = -\frac{\Gamma}{2} \sum_{\alpha \neq \beta} P_{\alpha,\alpha} \rho P_{\beta,\beta}. \quad (3.3)$$

3. Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand

Hierbei bezeichnet Γ eine neue *effektive* Dephasierungskonstante der Polarisationen (siehe auch Gl. (A.3)), wie sie auch im Emissionsspektrum beobachtet werden kann. Explizit setzen wir $\hbar\Gamma = 3 \mu\text{eV}$ [112, 113], $\hbar\kappa = g/0.04 = 330 \mu\text{eV}$. Dies entspricht einer relativ geringen Resonatorqualität von $Q = \omega_C/\kappa \approx 4200$. Spontanen Zerfall der Besetzungen (*strahlender Zerfall*) über von den beiden Resonatormoden verschiedene Photonenmoden werden wir zu Beginn dieses Kapitels zunächst vernachlässigen. Diese Annahme ist auch physikalisch gerechtfertigt, da die Lebensdauer der Besetzungen in der Regel auf einer deutlich längeren Zeitskala angesiedelt ist als der Polarisationszerfall [106]. Insbesondere für gepulste Anregung kann die Zeitskala des Emissionszyklus die Größenordnung der Lebensdauer deutlich unterschreiten. Zudem werden wir keine weiteren Einflüsse durch Gitterschwingungen (*Phononen*) in unser Modell einschließen, da wir diese für unsere auf einer meV-Skala angesiedelten Verstimmungen von Laser und Cavity für eher gering halten [114]. Unsere durch die hier eingeführten Materialparameter definierte Systemkonfiguration haben wir in Abb. 3.1d veranschaulicht. Wir zeigen die Lorentz-Resonanzlinien

$$L_{\xi,\eta}(\omega) = \frac{\xi^2}{(\omega - \eta)^2 + \xi^2} \quad (3.4)$$

der Breite δ über der Energie $E = \hbar\omega$, welche bei $E = \hbar\eta$ lokalisiert sind. Für unser System sind die Parameter gegeben durch $\xi = \kappa$, $\eta = \omega_C$ (Cavity, gelbe Linie) sowie $\xi = \Gamma$, $\hbar\eta = E_B - E_X$ bzw. $\hbar\eta = E_X - E_G$ (elektronische Übergänge, graue Linien). Zudem haben wir als Beispieldpuls einen Gauß-Puls der Breite $\Delta t = 3 \text{ ps}$ angenommen, und zeigen explizit das Betragsquadrat seiner Fourier-Transformierten (blaue Linie), welche durch $\mathcal{F}[\Omega(t)](\omega) = \int_0^\infty dt \Omega(t) e^{i\omega t}$ gegeben ist.

Als Erstes werden wir eine typische, durch die Resonanzbedingung des halbstimulierten Zweiphotonenprozesses, Gl. (3.1), definierte Anregung durch den Kontrolllaser zeitaufgelöst studieren. Auf diese Weise werden wir erste Charakteristika der Einzelphotonenemission beobachten und weiter erschließen können.

3.2. Dynamik der Einzelphotonenemission

In Abb. 3.2 zeigen wir ein erstes Beispiel für die Dynamik des laserassistierten Zweiphotonenprozesses in Abhängigkeit von der Laserverstimmung Δ_L . Wie bereits einleitend verabredet, nehmen wir zum Zeitpunkt $t = 0$ das Biexziton als bereits erzeugt und den Resonator als leer an. Wir betrachten hier die Stimulation durch einen Gauß-Puls der Breite $\Delta t = 3 \text{ ps}$ und der Amplitude $\Omega_0 = 1 \text{ meV}$, wie auch in Abb. 3.1d bzw. in Abb. 3.2a skizziert. Abbildung 3.2b zeigt die resultierende Dynamik der Photonpopulation $\langle b^\dagger b \rangle$ in der H -Mode zusammen mit der Besetzung des Biexzitons, $\langle P_{B,B} \rangle$, [Abb. 3.2c] des Exzitons, $\langle P_{X,X} \rangle$, [Abb. 3.2d] und des Grundzustandes, $\langle P_{G,G} \rangle$, [Abb. 3.2e]. Wir schauen uns zunächst die Photonpopulation an: Hier fällt sofort ins Auge, dass sich in Gegenwart des Kontrollpulses sowie in der Nähe von $\Delta_L \approx 0$ eine signifikante Erhöhung der Photonpopulation gegenüber der Hintergrundemission findet, die kurz nach dem Zeitpunkt $t_0 = 10 \text{ ps}$ für etwa $\Delta_L = -0.28 \text{ meV}$ ihr Maximum erreicht und bei $t \approx t_0 + 10 \text{ ps}$ wieder auf die Größe der Hintergrundemission zurückfällt. Jene Hintergrundemission, welche ja bereits bei $t \approx 0$ – wo noch $\Omega(t) \approx 0$ gilt – aufgezeichnet wird, ist offensichtlich kaum abhängig von Δ_L . Sie zeigt deutliche Oszillationen über der Zeit und klingt im gezeigten

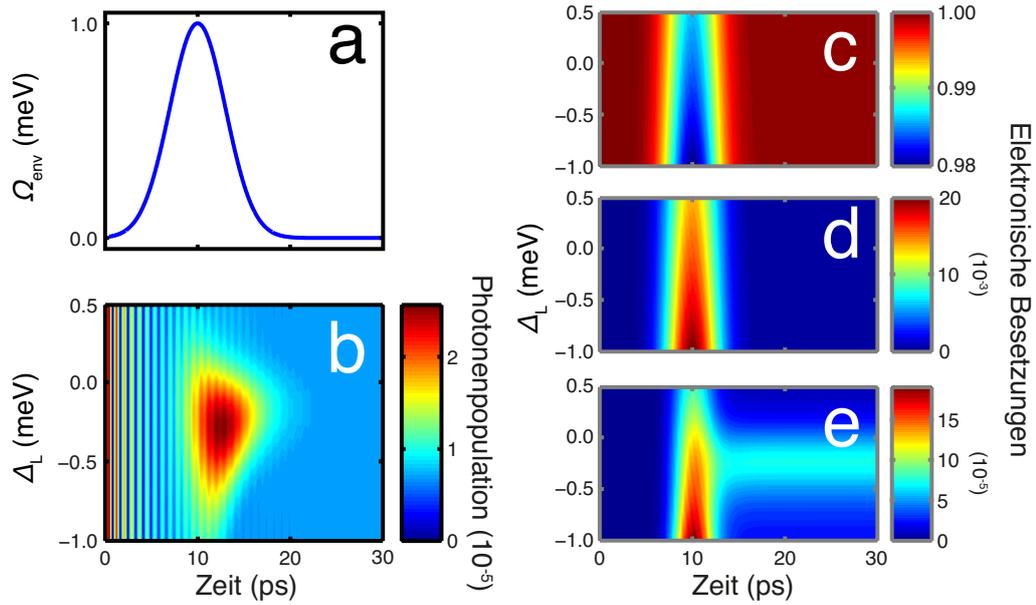


Abbildung 3.2.: Emissionsdynamik für variierende Laserverstimmung. Gezeigt sind (a) die Gaußsche Einhüllende des H -polarisierten Kontrollpulses Ω_{env} , (b) die resultierende Dynamik der Photonpopulation $\langle b_H^\dagger b_H \rangle$ zusammen mit der Dynamik der Besetzungen (c) des Biexzitons, $\langle P_{B,B} \rangle$, (d) des Exzitons, $\langle P_{X_H, X_H} \rangle$ und (e) des Grundzustands, $\langle P_{G,G} \rangle$, für variierende Laserverstimmung Δ_L .

Zeitfenster ab. Betrachten wir dazu vergleichend die Besetzungen, erkennen wir auf den ersten Blick, dass sie weitgehend adiabatisch der Anregung folgen. Nach Abklingen des Pulses bemerken wir eine deutlich sichtbare, wenn auch kleine ($\approx 8 \cdot 10^{-5}$), inkohärente Besetzung des Grundzustandes – ebenfalls in einer Umgebung von $\Delta_L = -0.28$ meV.

Wir können durch die hier gezeigten Indikatoren annehmen, dass die anregungsinduzierte Emission tatsächlich aus dem gewünschten Zweiphotonenprozess stammt, der das Biexziton an den Grundzustand koppelt: Es handelt sich demnach um die Beobachtung des gesuchten *Einzelphotons*, wohingegen die Hintergrundemission mutmaßlich aus der inkohärenten Emission des über die nichtresonante Cavity zerfallenden Biexzitons stammt.

Um unsere ersten Ergebnisse besser zu verstehen, werden wir im Folgenden einige Zusammenhänge analytisch erschließen, indem wir die Heisenberg-Bewegungsgleichung, Gl. (2.19), auswerten und die resultierenden Gleichungen auf die wesentlichen Koppelungsmechanismen reduzieren. Insbesondere sind wir an einer Erklärung für das Auftreten einer von null verschiedenen Optimalverstimmung, hier $\Delta_L^{\text{opt}} = -0.28$ meV, interessiert, die wir im Rahmen weiterer, hier nicht gezeigter Simulationen als anregungsinduzierte, also von Ω_0 abhängige, Energieverschiebung ausmachen. Dieser Sachverhalt legt nahe, dass für den betrachteten Zweiphotonenprozess *optische Stark-Verschiebungen* [89, 90] relevant werden können. Um die Komplexität der Problemstellung für die Gewinnung erster analytischer Einsichten zu reduzieren, werden wir den vertikal polarisierten exzitonischen Zustand X_V vernachlässigen und uns auf ein effektives Dreineiveausystem aus B , X und G beschränken (siehe Anhang A.2). Für die Dynamik der Photonpopulation erhalten wir auf diese Weise dann die Bewegungsgleichung

3. Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand

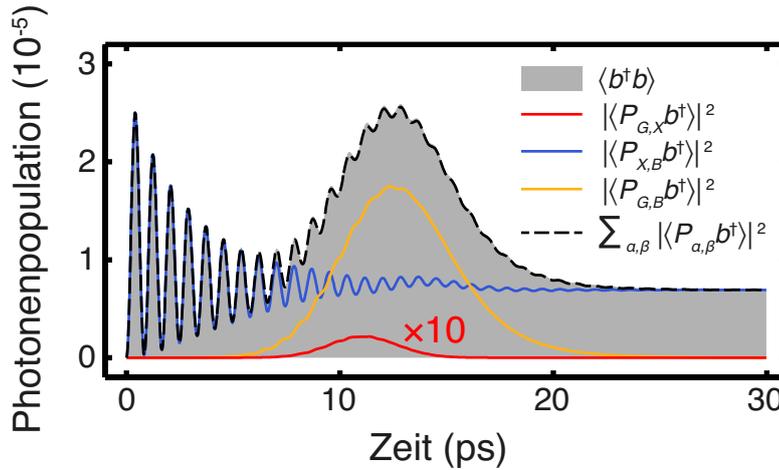


Abbildung 3.3.: Zerlegung der Gesamtemission im kohärenten Limes. Wir zeigen die Zerlegung nach Gl. (3.6) für das Beispiel aus Abb. 3.2 für die Optimalverstimmung $\Delta_L^{\text{opt}} = -0.28$ meV. Die graue Fläche zeigt die Gesamtemission $\langle b^\dagger b \rangle$ zusammen mit $|\langle P_{G,X} b^\dagger \rangle|^2$ (rote Linie, zur besseren Sichtbarkeit mit dem Faktor 10 multipliziert), $|\langle P_{X,B} b^\dagger \rangle|^2$ (blaue Linie) und $|\langle P_{G,B} b^\dagger \rangle|^2$ (gelbe Linie) sowie die Summe der drei Betragsquadrate (schwarze gestrichelte Linie).

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle b^\dagger b \rangle = -\kappa \langle b^\dagger b \rangle + \frac{2g}{\hbar} \text{Im} \left(\langle P_{G,X} b^\dagger \rangle + \langle P_{X,B} b^\dagger \rangle \right). \quad (3.5)$$

Die Gesamtemission setzt sich also aus dem Beitrag der beiden photonen-assistierten Polarisationen, $\langle P_{G,X} b^\dagger \rangle$ und $\langle P_{X,B} b^\dagger \rangle$, zusammen, die die Biexziton-Exziton-Kaskade beschreiben. Erwartungsgemäß fällt die Photonenpopulation maßgeblich auf der durch κ definierten Zeitskala ab. Der stimulierte Zweiphotonenprozess geht dann erst in der nächsten Hierarchieebene der Kopplung ein: Wir identifizieren ihn dort als *photonenassistierte Polarisation zwischen Biexziton und Grundzustand*, $\langle P_{G,B} b^\dagger \rangle$, die in Gegenwart des Kontrolllasers induziert werden kann. Um die optischen Eigenschaften des Zweiphotonenprozesses genauer zu ergründen, werden wir dementsprechend die Bewegungsgleichung von $\langle P_{G,B} b^\dagger \rangle$ analysieren müssen. Die vollständigen Gleichungen dazu befinden sich in Anhang A.2.

Wir möchten daraus den wesentlichen Kopplungsmechanismus extrahieren: Abb. 3.2 legt nahe, dass sich die Besetzungen unter stark nichtresonanten Bedingungen weitgehend stationär verhalten, $\langle P_{B,B} \rangle = 1$ und $\langle P_{X,X} \rangle = \langle P_{G,G} \rangle = 0$, die Gesamtemission zerfällt offensichtlich in den inkohärenten Hintergrund aus dem spontanen Anteil der Biexziton-Exziton-Kaskade sowie in den anregungsinduzierten, also kohärenten Anteil. Weiterhin können wir aus dem adiabatischen Folgen der Besetzungen schließen, dass auch die durch den Kontrolllaser induzierte elektronische Polarisation lediglich dem Puls folgt. Von diesem Anregungsgrenzfall ist bekannt, dass sich die Betragsquadrate polarisationsartiger Größen besetzungsartig verhalten oder im Limes schwacher Anregung gar mit Besetzungen identisch werden können, was gelegentlich als *kohärenter Limes* bezeichnet wird [86]. In unserem Fall finden wir mithilfe unserer numerischen Simulationen zwischen der Photonenpopulation und den photonenassistierten Polarisationen den Zusam-

menhang

$$\langle b^\dagger b \rangle \approx |\langle P_{G,X} b^\dagger \rangle|^2 + |\langle P_{X,B} b^\dagger \rangle|^2 + |\langle P_{G,B} b^\dagger \rangle|^2. \quad (3.6)$$

Diese Zerlegung haben wir in Abb. 3.3 einmal für unser hier diskutiertes Beispiel aus Abb. 3.2 für die Optimalverstimmung $\Delta_L^{\text{opt}} = -0.28$ meV veranschaulicht. Die graue Fläche zeigt die Gesamtemission $\langle b^\dagger b \rangle$ zusammen mit $|\langle P_{G,X} b^\dagger \rangle|^2$ (rote Linie), $|\langle P_{X,B} b^\dagger \rangle|^2$ (blaue Linie) und $|\langle P_{G,B} b^\dagger \rangle|^2$ (gelbe Linie) sowie deren Summe (schwarze gestrichelte Linie). Die Summe der Betragsquadrate ist mit der Gesamtemission nahezu identisch. Dabei beschreibt $|\langle P_{X,B} b^\dagger \rangle|^2$ vorwiegend das Einschwingverhalten aus der inkohärenten Emission des Biexzitons und ist vom Puls kaum beeinflusst. Die Form von $|\langle P_{G,B} b^\dagger \rangle|^2$ stimmt hingegen vollständig mit der Form der kohärenten Emission – also dem Einzelphotonenanteil – überein, während zwar $|\langle P_{G,X} b^\dagger \rangle|^2$ dem Puls folgt, aber größenordnungsmäßig kaum zur Summe beiträgt. Diese Zerlegungseigenschaft ist der Grund dafür, dass im Limes hinreichend schwacher Anregung und nichtresonanter Cavities auf die Cluster-Entwicklung der vollen Erwartungswerte (siehe Abschnitt 2.2.2) verzichtet werden kann, da die vollen Erwartungswerte selbst bereits als ihre Korrelation aufgefasst werden können. Diese Eigenschaft geht in unserem Fall unter der Annahme beliebiger Laserverstimmungen Δ_L und Cavity-Energien $\hbar\omega_C$ sowie beim Übergang zu hohen Anregungsintensitäten verloren, sodass – über unseren vereinfachenden Anregungslimes hinausgehend – eine systematische Zerlegung durch die Cluster-Entwicklung unabdingbar wird.

Hier gelingt schlussendlich wegen Gl. (3.6) das physikalisch konsistente Schließen des Gleichungssystems (siehe Anhang A.2) durch die Beschränkung auf die drei photonenasistierten Polarisationen,

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} \langle P_{G,X} b^\dagger \rangle \\ \langle P_{X,B} b^\dagger \rangle \\ \langle P_{G,B} b^\dagger \rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{X,G} & 0 & \Omega^*(t) \\ 0 & \varepsilon_{B,X} & -\Omega^*(t) \\ \Omega(t) & -\Omega(t) & \varepsilon_{B,G} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \langle P_{G,X} b^\dagger \rangle \\ \langle P_{X,B} b^\dagger \rangle \\ \langle P_{G,B} b^\dagger \rangle \end{pmatrix} - g \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ \langle P_{X,B} \rangle(t) \end{pmatrix}. \quad (3.7)$$

Dieses Gleichungssystem wollen wir als *reduziertes Modell* bezeichnen. Hierbei haben wir die durch den Resonator verstimmtten Übergangsenergien $\varepsilon_{\alpha,\beta} \equiv E_\alpha - E_\beta - \hbar\omega_C - i\hbar(\kappa + \Gamma)/2$, eingeführt. Die Polarisation $\langle P_{X,B} \rangle$ ist dabei explizit gegeben durch

$$\langle P_{X,B} \rangle(t) = \frac{i}{\hbar} \int_0^t dt' e^{-\frac{i}{\hbar} E_P(t-t')} \Omega(t') \quad (3.8)$$

mit $E_P \equiv E_B - E_X - i\hbar\Gamma/2$ und $\Omega(t=0) = 0$. Der in Gl. (3.7) auftretende, mit g skalierende Vektor beschreibt die *Anfangsbedingung* des Systems: Hier tritt die Polarisation formal als Anfangsbedingung des lasergestützten Zweiphotonenprozesses auf – die Polarisation lässt sich folglich als das durch den Laser induzierte *virtuelle Niveau* interpretieren. Solch ein virtuelles Niveau wird oftmals als Hilfskonstrukt zur Erklärung von durch nicht-resonante Anregung induzierten Prozessen eingeführt. Physikalisch verbirgt sich dahinter in unserem Fall das adiabatische Folgen des Exzitons, welches den Zweiphotonenprozess zum Grundzustand hin vermittelt. Gleichung (3.7) lässt sich für eine CW-Anregung, $\Omega(t) = \Omega_0 e^{-i\omega_L t}$, analytisch explizit lösen (siehe Anhang A.2): Für die photonenasistierte Polarisation zwischen Biexziton und Grundzustand erhalten wir dann

3. Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand

$$\langle P_{G,B} b^\dagger \rangle(t) = g\Omega_0 \frac{\frac{1}{E_P - \hbar\omega_L} + \frac{1}{\varepsilon_{B,X}}}{\varepsilon_{B,G} - \Omega_0^2 \left[\frac{1}{\varepsilon_{X,G}} + \frac{1}{\varepsilon_{B,X}} \right] - \hbar\omega_L} e^{-i\omega_L t} \equiv R_0 e^{-i\omega_L t}. \quad (3.9)$$

Werten wir den hier auftretenden Resonanznenner mit der Anregungsbedingung, Gl. (3.1), aus, erhalten wir direkt einen Ausdruck für die gesuchte *optimale Laserverstimmung*,

$$\Delta_L^{\text{opt}} \equiv -\Omega_0^2 \text{Re} \left(\frac{1}{\varepsilon_{X,G}} + \frac{1}{\varepsilon_{B,X}} \right), \quad (3.10)$$

welche die anregungsinduzierte Verschiebung der Übergangsenergien kompensiert. Die Verschiebung skaliert mit der Laserintensität Ω_0^2 , sodass wir sie tatsächlich als *Stark-Verschiebung* klassifizieren können. Darüber hinaus skaliert sie mit der Summe der Kehrwerte der um die Resonatorenenergie verstimmtten Übergangsenergien. Die spektrale Position der Cavity bestimmt also zusätzlich den Betrag sowie insbesondere das Vorzeichen der Verschiebung. Anhand von Gl. (3.9) können wir auch noch weitere Einsichten in den Anregungsprozess gewinnen. Der Zähler weist zwei weitere Resonanzbedingungen auf: Zum einen erwarten wir eine gesteigerte Ankopplung an den Zweiphotonenprozess, wenn sich der *Laser* der Biexziton-Exziton-Resonanz nähert, $E_P - \hbar\omega_L \approx 0$, zum andern, wenn sich die *Cavity* derselben Resonanz nähert, $\varepsilon_{B,X} \approx 0$. Des Weiteren oszilliert der Prozess mit der Laserfrequenz ω_L , ist also unmittelbar durch diese steuerbar. Werten wir Gl. (3.10) mit unseren Systemparametern des in Abb. 3.2 gezeigten Beispiels mit $\Omega_0 = 1$ meV aus, so erhalten wir $\Delta_L^{\text{opt}} = -0.3$ meV, was sowohl das Vorzeichen als auch die Größenordnung der numerisch ermittelten Verschiebung, $\Delta_L^{\text{opt}} = -0.28$ meV, reproduziert, obwohl es sich ja um eine *nichtstationäre* Anregung gehandelt hatte. Die anhand der CW-Analytik gewonnenen Erkenntnisse erhalten offenbar auch für gepulste Anregungen ihre Gültigkeit, nicht zuletzt qualitativ.

Mit der Lösung von Gl. (3.7) kann dann auch Gl. (3.5) gelöst werden, und wir erhalten

$$\langle b^\dagger b \rangle = -\frac{2g}{\hbar\kappa} \text{Im} \left[\Omega_0 \left(\frac{1}{\varepsilon_{B,X}} - \frac{1}{\varepsilon_{X,G}} \right) R_0 + \frac{1}{\varepsilon_{B,X}} \right]. \quad (3.11)$$

Die Gesamtpopulation der Photonen in der Cavity zerfällt also tatsächlich im Rahmen unserer Annahmen in zwei Anteile: Der erste beschreibt die aus dem kohärenten Zweiphotonenprozess generierte Population – das gewünschte *Einzelphoton* –, der zweite die aus dem inkohärenten Zerfall des Biexzitons über den Resonator stammende Population. Letzterer ist für die unerwünschte Hintergrundemission verantwortlich, welche erwartungsgemäß für eine resonante Cavity, $\varepsilon_{B,X} \approx 0$, zunimmt. Da wir in Gl. (3.9) ja gefunden hatten, dass für $\varepsilon_{B,X} \rightarrow 0$ ebenso der Beitrag des Zweiphotonenprozesses gesteigert

werden kann, erwarten wir aus dem Wettstreit zwischen kohärenten und inkohärenten Prozessen das Auftreten einer nichttrivialen *optimalen* spektralen Position der Cavity. Wir werden in den beiden folgenden Kapiteln unter anderem genau diesen Sachverhalt systematisch und wesentlich allgemeiner analysieren als für die hier zur ersten Untersuchung fixierten Anregungsbedingungen. Denn für nahresonante Cavities gelingt eine Zerlegung der Emission in den kohärenten und inkohärenten Anteil nur noch über die Cluster-Entwicklung, da eine spektrale Zerlegung nicht mehr möglich ist, wie wir sie hier unter stark nichtresonanten Bedingungen zur Hilfe nehmen können. Zudem erkennen wir anhand von Gl. (3.11) zusammen mit Gl. (3.9), dass die anregungsinduzierte Population mit $(g\Omega_0)^2$ skaliert, sodass wir für erhöhte Licht-Materie-Kopplung g sowie gesteigerte Laserintensität Ω_0^2 einen entsprechend gesteigerten Populationsbeitrag erwarten. Weiterhin ist die Photonenpopulation proportional zur Photonenlebensdauer $1/\kappa$ im Resonator. Ferner skaliert die kohärente Population mit $1/\varepsilon_{B,X} - 1/\varepsilon_{X,G}$, was bedeutet, dass der halb-stimulierte Zweiphotonenprozess *keine* Population erzeugt, wenn $\varepsilon_{B,X} \approx \varepsilon_{X,G}$ gilt, was bei kleinen Biexzitonbindungsenergien, $\Delta E_B \rightarrow 0$, eintritt.

Durch obige Beobachtungen und Überlegungen haben wir nun bereits gezeigt, dass der untersuchte Zweiphotonenprozess tatsächlich durch Ansteuerung mit dem Kontrolllaser zu einer zeitlich kontrollierbaren Einzelphotonenemission führt. Wir haben uns zudem erschlossen, dass durch den Laser induzierte Stark-Verschiebungen die elementare Resonanzbedingung signifikant modifizieren können und daher ggf. durch Anpassen von Δ_L kompensiert werden müssen. Die in diesem Abschnitt präsentierten und diskutierten analytischen Zusammenhänge haben einen signifikanten Beitrag zu Publikation [P1] geliefert. Bevor wir die im Rahmen unserer ersten analytischen Betrachtungen aufgedeckten fundamentalen Zusammenhänge zwischen den elementaren Systemkenngrößen und der Effizienz des Zweiphotonenprozesses allgemeiner untersuchen, möchten wir zunächst im zweiten Teil dieses Kapitels anhand der spektralen Eigenschaften der Emission zeigen, dass dieser Prozess als *Raman-Prozess* klassifiziert werden kann.

3.3. Spektrale Eigenschaften der Einzelphotonenemission

In diesem Abschnitt widmen wir uns den fundamentalen spektralen Eigenschaften der durch den Resonator verstärkten Einzelphotonen. Wir möchten insbesondere zunächst zeigen, dass die aus den Dreiniveausystemen mit orthogonalen Dipolmomenten, wie beispielsweise Λ -Konfigurationen [Abb. 1.1c], bekannten Eigenschaften der Raman-Emission – Kontrollierbarkeit der Emissionsfrequenz und -linienbreite [21, 53] – auch für den Zweiphotonenprozess zwischen Quantenpunktbiexziton und -grundzustand gelten, in dem ja bei linear polarisierter Anregung sowohl Lichtfeld als auch Resonator an *beide* Übergänge, $B \leftrightarrow X_i$ und $X_i \leftrightarrow G$, ankoppeln. Als Erstes wollen wir die Emissionsfrequenz des Einzelphotons hinsichtlich ihrer Abstimbarkeit untersuchen. Die im Folgenden gezeigten Ergebnisse sind in Publikation [P2] veröffentlicht, und wir orientieren uns daher auch maßgeblich an der dort gewählten Art der Darstellung.

3.3.1. Emissionsfrequenz der Einzelphotonenemission

Um an die im vorigen Abschnitt diskutierte CW-Analytik anzuknüpfen, werden wir wieder in den Grenzfall quasistationärer Anregung gehen, $\Omega(t) = \Omega_0 e^{-i\omega_L t}$. Wir hatten schließlich bereits bei der Analyse der Emissionsdynamik gesehen, dass sich in diesem Limes besonders leicht wertvolle analytische Zusammenhänge erschließen lassen, die zum Verständnis der numerischen Resultate herangezogen werden können und auch beim Übergang zu nichtstationären Anregungen eine weitreichende Aussagekraft behalten. Insbesondere hatten wir bereits in Abschnitt 2.3 erwähnt, dass im CW-Limes die Autokorrelationsfunktion der Resonatorphotonen, $G(t, \tau) = \langle b^\dagger(t + \tau)b(t) \rangle$, nur noch von der Zeitdifferenz τ abhängt, aber nicht mehr vom expliziten Zeitpunkt t selbst, $G(t, \tau) = G(\tau)$. In unserem Modellsystem bleibt dann die Besetzung des Biexzitons auf der Zeitskala, die zum Etablieren der relevanten Linienbreiten – des Resonators, gegeben durch κ , und der elektronischen Übergänge, gegeben durch Γ – näherungsweise konstant.

Abbildung 3.4 zeigt eine erste numerische Simulation des Wiener-Khintchine-Spektrums, Gl. (2.30), (gelbe Linie) auf Basis der Von-Neumann-Gleichung, Gl. (2.16), für variierende Laserverstimmung Δ_L . Wir beschränken uns dabei spektral auf die Region, die die Resonatoremission um $\hbar(\omega - \omega_C) = 0$ meV herum und die Biexziton-Exziton-Emission um $\hbar(\omega - \omega_C) = 5$ meV herum umfasst. Da unter unseren quasistationären Bedingungen die Exziton-Grundzustand-Emission bei $\hbar(\omega - \omega_C) = 8$ meV kaum beiträgt (die Biexzitonbesetzung bleibt näherungsweise über den Zeitraum der Messung erhalten), haben wir auf eine Darstellung des zugehörigen spektralen Bereichs verzichtet. Wir erkennen, dass für die elementare Resonanzbedingung $\hbar\omega_L = E_B - E_G - \hbar\omega_C$, definiert durch $\Delta_L = 0$, die Spektrallinie der Einzelphotonenemission in der Cavity-Resonanzlinie zentriert ist [Abb. 3.4a]. Für eine etwas kleinere Anregungsenergie, definiert durch $\Delta_L = -0.3$ meV, beobachten wir eine Blauverschiebung [Abb. 3.4b] und für eine etwas größere Anregungsenergie, definiert durch $\Delta_L = +0.3$ meV, eine Rotverschiebung der Emissionslinie innerhalb der Spektrallinie des Resonators [Abb. 3.4c]. Offensichtlich ist die durch die Cavity verstärkte Emission – also das Einzelphoton – innerhalb der Resonanzlinie des Verstärkers in ihrer Emissionsfrequenz abstimmbare, und zwar den Regeln der Energieerhaltung des Zweiphotonenprozesses zwischen Biexziton und Grundzustand folgend. Die Biexziton-Exziton-Emission bleibt unter unseren quasistationären Anregungsbedingungen entsprechend unbeeindruckt unter Frequenzabstimmung der Einzelphotonenemission.

Um auch wieder Einsichten jenseits unserer ersten, anhand der numerischen Ergebnisse gemachten Beobachtungen zu gewinnen, analysieren wir die für die resultierende Systemantwort relevanten Bewegungsgleichungen. In Übereinstimmung mit dem reduzierten Modell, Gl. (3.7), beschränken wir uns wieder auf das Dreiniveau-Untersystem bestehend aus Biexziton B , dem Exziton $X_H \equiv X$ und Grundzustand G . Die Dynamik der Autokorrelationsfunktion $G(\tau) \equiv G(t = 0, \tau)$, welche via Fourier-Transformation unmittelbar mit dem Emissionsspektrum korrespondiert, ist dann im Rahmen unserer Modellannahmen ausgehend von der Heisenberg-Bewegungsgleichung, Gl. (2.19) bzw. (2.33), gegeben durch

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial \tau} G(\tau) = -\hbar \left(\omega_C + i \frac{\kappa}{2} \right) G(\tau) - g [\Pi_{X,G}(\tau) + \Pi_{B,X}(\tau)], \quad (3.12)$$

3.3. Spektrale Eigenschaften der Einzelphotonenemission

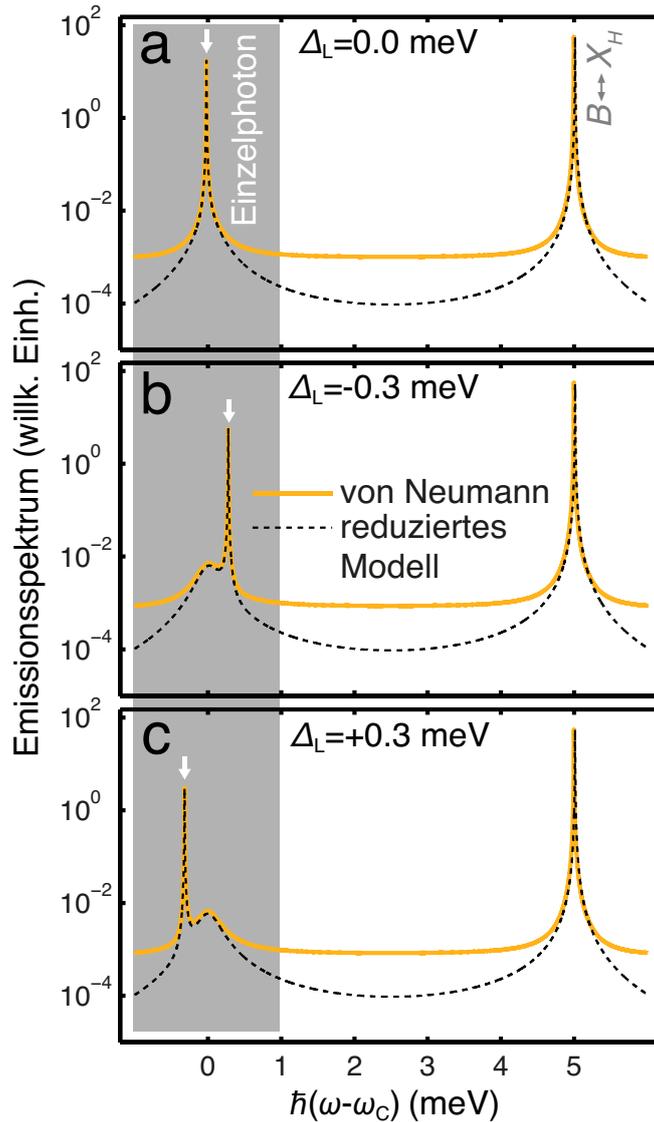


Abbildung 3.4.: Frequenzabstimmung des Einzelphotons. Gezeigt ist das numerisch (gelbe Linie) sowie das über das reduzierte Modell nach Gl. (3.14) analytisch berechnete Emissionsspektrum (schwarze gestrichelte Linie) für eine CW-Anregung mit einer Rabi-Energie $\Omega_0 = 0.25$ meV für drei repräsentative Laserabstimmungen, (a) $\Delta_L = 0.0$ meV, (b) $\Delta_L = -0.3$ meV und (c) $\Delta_L = +0.3$, in halblogarithmischer Darstellung. Die Emissionslinie des Einzelphotons ist durch die weißen Pfeile und die Biexziton-Exziton-Emission mit $B \leftrightarrow X_H$ gekennzeichnet. Die Umgebung der Resonatoremmission ist durch die graue Fläche hervorgehoben.

wobei wir die zweizeitigen Korrelatoren $\Pi_{\alpha,\beta}(\tau) = \langle P_{\alpha,\beta}(\tau)b(0) \rangle$ definiert haben. Diese gehen für $\tau = 0$ in die photonenassistierten Polarisationen der Biexziton-Exziton-Kaskade über, $\Pi_{X,G}(0) = \langle P_{G,X}b^\dagger \rangle^*$ und $\Pi_{B,X}(0) = \langle P_{X,B}b^\dagger \rangle^*$. Die Bewegungsgleichungen für $\Pi_{X,G}$ und $\Pi_{B,X}$ koppeln beide an den Korrelator $\Pi_{B,G}$, welcher entsprechend für $\tau = 0$ in die photonenassistierte Polarisation zwischen Biexziton und Grundzustand übergeht, $\Pi_{B,G}(0) = \langle P_{G,B}b^\dagger \rangle^*$, welche ausschließlich in Gegenwart des Kontrolllaserfeldes existiert. Diese beschreibt ja den zu untersuchenden laserassistierten Zweiphotonenprozess. Wir extrahieren daher aus den Bewegungsgleichungen die Kopplung der drei relevanten Korrelatoren, $\Pi_{X,G}$, $\Pi_{B,X}$ und $\Pi_{B,G}$. Unsere reduzierende Modellbildung für die Autokor-

3. Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand

relationsfunktion ist ebenso genauer in Anhang A.2 ausgeführt. Unter dieser Annahme erhalten wir ein geschlossenes System von drei gekoppelten Bewegungsgleichungen,

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial \tau} \begin{pmatrix} \Pi_{X,G} \\ \Pi_{B,X} \\ \Pi_{B,G} \end{pmatrix} = - \begin{pmatrix} E_{X,G} & 0 & \Omega(\tau) \\ 0 & E_{B,X} & -\Omega(\tau) \\ \Omega^*(\tau) & -\Omega^*(\tau) & E_{B,G} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Pi_{X,G} \\ \Pi_{B,X} \\ \Pi_{B,G} \end{pmatrix} \quad (3.13)$$

mit $E_{\alpha,\beta} = E_\alpha - E_\beta + i\hbar\Gamma/2$, das wir im Folgenden entsprechend wieder als *reduziertes Modell* bezeichnen werden. Für ein CW-Lichtfeld lässt sich dieses Gleichungssystem leicht lösen, und wir erhalten einen expliziten Ausdruck für das CW-Spektrum,

$$S_{\text{CW}}(\omega) = \text{Re} \frac{i\hbar G(0) - g [\mathcal{S}_{X,G}(\omega) + \mathcal{S}_{B,X}(\omega)]}{\hbar(\omega_C - \omega) + i\hbar\kappa/2}, \quad (3.14)$$

wobei wir $\mathcal{S}_{\alpha,\beta}(\omega) = \int_0^\infty d\tau e^{-i\omega\tau} \Pi_{\alpha,\beta}(\tau)$ definiert haben und $G(0) = \langle b^\dagger b \rangle$ durch Gl. (3.11) gegeben ist. Dieser Ausdruck für das CW-Spektrum zeigt in Abb. 3.4 (schwarze gestrichelte Linie) eine hervorragende Übereinstimmung mit dem numerischen Ergebnis: Er gibt sowohl die spektralen Positionen, die Linienbreiten sowie die Intensitäten der einzelnen Beiträge wieder. Das reduzierte Modell weist lediglich einen etwas geringeren Hintergrund abseits der fundamentalen Resonanzlinien auf. Das Spektrum enthält laut Gl. (3.14) zunächst zwei Hauptanteile,

$$\begin{aligned} \mathcal{S}_{X,G}(\omega) &= \frac{i\hbar \Pi_{X,G}(0) - \Omega_0 \mathcal{S}_{B,G}(\omega + \omega_L)}{E_{X,G} - \hbar\omega}, \\ \mathcal{S}_{B,X}(\omega) &= \frac{i\hbar \Pi_{B,X}(0) + \Omega_0 \mathcal{S}_{B,G}(\omega + \omega_L)}{E_{B,X} - \hbar\omega}, \end{aligned} \quad (3.15)$$

welche die beiden Beiträge durch die Emission aus dem Exziton-Grundzustand- und dem Biexziton-Exziton-Übergang widerspiegeln. Die Anfangsbedingungen sind hierbei wieder durch die Lösung des reduzierten Modells, Gl. (3.7), gegeben und lauten explizit $\Pi_{X,G}(0) = -\Omega_0 \frac{R_0^*}{\varepsilon_{X,G}^*}$ sowie $\Pi_{B,X}(0) = \Omega_0 \frac{R_0^*}{\varepsilon_{B,X}^*} + \frac{g}{\varepsilon_{B,X}^*}$. Der Beitrag an der Biexziton-Exziton-Übergangsenergie, $\Pi_{B,X}(0)/(E_{B,X} - \hbar\omega)$, enthält also den inkohärenten Zerfall über die Cavity, modifiziert durch den kohärenten Prozess. Unter den in diesem Kapitel angenommenen Bedingungen, welche zu stationären Besetzungen führen, können wir die Auswirkung des Zweiphotonenprozesses auf die spontane Emission nicht weiter untersuchen, wir hatten ja in Abb. 3.4 keinen Einfluss des Kontrolllasers auf die Biexziton-Exziton-Emission beobachten können. Wir werden diesen Sachverhalt in den nächsten beiden Kapiteln von den mikroskopischen Betrachtungen ausgehend explizit untersuchen, insbesondere in Abschnitt 5.2.3. Der Anteil $\Pi_{X,G}(0)/(E_{X,G} - \hbar\omega)$ enthält hingegen im Rahmen unserer reduzierenden Modellbildung ausschließlich einen kohärenten Beitrag. Beide Komponenten in Gl. (3.15) beinhalten das *Spektrum des Einzelphotons*,

$$S_{B,G}(\omega + \omega_L) = \frac{i\hbar \Pi_{B,G}(0) + \Omega_0 \left[\frac{i\hbar \Pi_{B,X}(0)}{E_{B,X} - \hbar\omega} - \frac{i\hbar \Pi_{X,G}(0)}{E_{X,G} - \hbar\omega} \right]}{E_{\text{SP}}(\omega) - \hbar\omega + i\hbar\Gamma/2}. \quad (3.16)$$

wobei $\Pi_{B,G}(0) = R_0^*$ nach Gl. (3.9) gilt. Dieser trägt nur für $\Omega_0 > 0$ bei. Die Emissionsenergie des Einzelphotons identifizieren wir dabei als

$$E_{\text{SP}}(\omega) = \hbar\omega_C - \Delta_L - \Omega_0^2 \left[\frac{1}{E_{B,X} - \hbar\omega} + \frac{1}{E_{X,G} - \hbar\omega} \right], \quad (3.17)$$

seine spektrale Breite ist im CW-Limes im Wesentlichen durch Γ – die elektronische Dephasierungsrate – bestimmt. Die spektrale Breite ist folglich *nicht* durch die Resonatorbreite κ festgelegt, wenn Γ deutlich kleiner ist als κ . Die Emissionsenergie ist in Gl. (3.17) gegeben durch die Resonatorenenergie $\hbar\omega_C$, und kann reguliert werden durch die frei wählbare, linear eingehende Laserverstimmung Δ_L . Wachsende Anregungsenergie, $\Delta_L > 0$, führt zur Rotverschiebung, verminderte Energie, $\Delta_L < 0$ zur Blauverschiebung der Emissionslinie im Spektrum. Darüber hinaus enthält Gl. (3.17) noch einen mit der Intensität des Lasers, Ω_0^2 , skalierenden Anteil: Hierbei handelt es sich um die im Spektrum beobachtbare, frequenzabhängige Stark-Verschiebung, welche in der Nähe der Resonatorenenergie, $\hbar\omega \approx \hbar\omega_C$, in den Ausdruck Eq. (3.10) übergeht. In diesem Kapitel werden wir auf die Stark-Verschiebungen erst zum Ende hin nochmals genauer eingehen, da wir uns zwischenzeitlich auf Anregungen beschränken, bei denen die Verschiebungen kaum beitragen. Zudem werden wir in den folgenden Kapiteln, in denen wir eine umfassende und mikroskopische Untersuchung der Zweiphotonenprozesse auch für hohe Anregungsintensitäten sowie allgemeinere Anregungsbedingungen anstreben, die Energieverschiebungen explizit systematischer untersuchen. Im Limes schwacher Anregungen reduziert sich Gl. (3.17) auf $E_{\text{SP}} - \hbar\omega_C \approx -\Delta_L$, was wir auch in Übereinstimmung mit dem numerischen Ergebnis bestätigt finden. Zumindest im Falle moderater Stark-Verschiebungen kann Δ_L passend korrigiert werden, um die Verschiebung zu kompensieren.

Für die weiteren Untersuchungen der fundamentalen spektralen Eigenschaften des halbstimulierten Zweiphotonenprozesses zwischen Biexziton und Grundzustand können wir festhalten, dass innerhalb der Spektrallinie des Resonators die Emissionsfrequenz des Einzelphotons durch die Wahl der Laserverstimmung Δ_L beliebig eingestellt werden kann. Gegebenenfalls auftretende, durch den Laser hervorgerufene Stark-Verschiebungen der Spektrallinie können durch weitere Feinabstimmung von Δ_L korrigiert werden. Die spektrale Breite des Einzelphotons ist durch die elektronische Dephasierungskonstante nach unten beschränkt, welche in der Regel viel kleiner ist als die Breite κ des Resonators. Als Nächstes werden wir nun die Linienbreite des Einzelphotons für Laserpulse *endlicher* Breite genauer untersuchen und verlassen den CW-Limes.

3.3.2. Linienbreite und Linienform des Einzelphotons

Um die Linienbreite des durch den halbstimulierten Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand erzeugten Einzelphotons in Abhängigkeit von der Pulsbreite des Kontrolllasers zu untersuchen, betrachten wir im Folgenden wie zu Anfang des Kapitels wieder Pulse mit Gaußscher Einhüllenden, Gl. (3.2).

Abbildung 3.5a zeigt das berechnete Emissionsspektrum in der Umgebung der Cavity-Spektrallinie, innerhalb welcher die Einzelphotonenemission zu beobachten ist, für verschiedene Pulsbreiten Δt . Bei der Berechnung der Spektren haben wir sichergestellt, dass

3. Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand

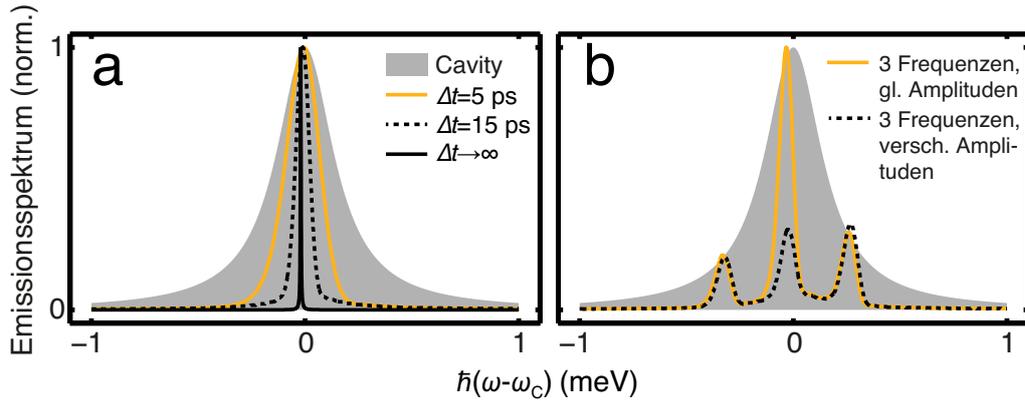


Abbildung 3.5.: Kontrolle über die Linienbreite und Linienform des Einzelphotons. (a) Gezeigt ist das Emissionsspektrum in der Umgebung des Resonators (grau schattierte Lorentz-Kurve) für eine Gaußsche Einhüllende mit $\Omega_0 = 0.75$ meV, $\Delta t = 5$ ps, $\Delta_L = -0.09$ meV (gelbe Linie) und $\Omega_0 = 0.25$ meV, $\Delta t = 15$ ps, $\Delta_L = 0$ (schwarze gestrichelte Linie) zusammen mit dem CW-Szenario aus Abb. 3.4a (schwarze durchgezogene Linie). Die beiden Gauß-Pulse haben gleiche Pulsflächen. Alle Spektren sind auf ihr Maximum normiert. (b) Gezeigt sind Spektren für einen Kontrollpuls nach Gl (3.18) mit Gaußscher Einhüllenden mit $\Delta t = 15$ ps, aber drei unterschiedlichen Frequenzkomponenten, einmal mit gleicher Amplitude (gelbe Linie) und einmal mit unterschiedlichen Amplituden (schwarze gestrichelte Linie). Die Spektren sind auf das Maximum der gelben Kurve normiert, die Cavity-Resonanz (graue Fläche) ist erneut zum Vergleich gezeigt. Weitere Details sind im Text beschrieben.

wir $S(t, \omega)$ nach Gl. (2.29) derart auswerten, dass die Linienbreite des Einzelphotons vollständig etabliert ist. Wir müssen also jeweils einen Zeitpunkt t nach dem Kontrollpuls wählen, zu dem die laserinduzierte Emission bereits abgeklungen ist. Wir vergleichen drei repräsentative Pulsbreiten, $\Delta t = 5$ ps (gelbe Linie), $\Delta t = 15$ ps sowie $\Delta t \rightarrow \infty$, was dem CW-Limes entspricht. Wir sehen sofort, dass die Linienbreite der Emission mit wachsender Pulsdauer Δt abnimmt. Für alle drei Beispiele – und sogar für recht kurze Pulse – erreichen wir spektrale Breiten, die die Breite des Resonators $\hbar\kappa$ unterschreiten. Zudem behält die Einzelphotonenemission annähernd Gaußsche Gestalt. Wir gewinnen also den ersten Eindruck, dass sich nach den Regeln der Fourier-Transformation die Gestalt des anregenden Kontrollpulses auf das Spektrum des Einzelphotons überträgt. Insbesondere können wir die Linienbreite des Photons gezielt durch Einstellen der Kontrollpulsbreite festlegen.

Die oben gewonnenen Resultate – Einstellbarkeit der Emissionsfrequenz und Linienbreite – legen nahe, dass wir auch beide Eigenschaften derart überlagern können, dass durch die Superposition mehrerer Kontrollpulse eine gezielte Formbarkeit der Spektrallinie möglich wird. Dies möchten wir durch die Überlagerung von drei Kontrollpulsen mit gleicher Einhüllenden aber unterschiedlichen Frequenzen demonstrieren,

$$\Omega(t) = e^{-\frac{(t-t_0)^2}{2\Delta t^2}} \left(\Omega_0^{(1)} e^{-i\omega_L^{(1)}t} + \Omega_0^{(2)} e^{-i\omega_L^{(2)}t} + \Omega_0^{(3)} e^{-i\omega_L^{(3)}t} \right), \quad (3.18)$$

wobei $\Omega_0^{(i)}$ die Amplitude und $\omega_L^{(i)} = E_B - E_G - \hbar\omega_C + \Delta_L^{(i)}$ die Frequenz des i -ten Beitrags seien. In Abb. 3.5b haben wir Emissionsspektren für zwei Beispiele eines solchen Kontrollpulses dargestellt. Im ersten Beispiel (gelbe Linie) haben wir die in Abb. 3.4 verwendeten Verstimmungen, $\Delta_L^{(1)} = -0.3$ meV, $\Delta_L^{(2)} = 0.0$ meV und $\Delta_L^{(3)} = +0.3$ meV, genutzt und alle Amplituden identisch, $\Omega_0^{(i)} = 0.25$ meV, gewählt. Die Breite des Pul-

3.4. Analytische Lösung des reduzierten Modells für beliebige Laserhüllkurven

ses beträgt $\Delta t = 15$ ps, sodass die einzelnen Pulsbestandteile spektral kaum überlappen. Wir sehen diese Eigenschaft im Spektrum unmittelbar abgebildet: Wir beobachten ein Triplett innerhalb der Cavity-Resonanz (graue Fläche), die Intensitäten der drei Anteile folgen in etwa dem Umriss der Cavity-Lorentzlinie. Als zweites Beispiel (schwarze gestrichelte Linie) zeigen wir zum Vergleich die gleiche Situation, aber reduzieren die mittlere Amplitude auf die Hälfte, $\Omega_0^{(2)} = 0.125$ meV. Wir sehen, dass sich die mittlere Linie des Triplets auf die Höhe der beiden anderen Anteile reduziert. Offensichtlich ist es also möglich, durch gezielte Superposition geeigneter Kontrollpulse, $\Omega(t) = \sum_i \Omega^{(i)}(t)$, die Form der Spektrallinie explizit zu gestalten (engl. *pulse shaping*). Diese Formbarkeit der Spektrallinie des Einzelphotons ist inzwischen unter anderem anhand zweier überlagerter Gaußscher Kontrollpulse experimentell für den Raman-Prozess in einem Λ -System demonstriert worden [55, 115].

Auf Grundlage der bisherigen Untersuchungen klassifizieren wir unseren Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand an dieser Stelle nun als *Raman-Prozess*. Diese Benennung werden wir im Folgenden ab jetzt vereinheitlichend verwenden. Dementsprechend möchten wir festlegen, dass wir die für die hier untersuchte Einzelphotonenemission verantwortliche photonenassistierte Polarisation, $\langle P_{G,B} b^\dagger \rangle$, von nun an als *Raman-Polarisation* bezeichnen.

Wir möchten an dieser Stelle zudem darauf hinweisen, dass wir in Abb. 3.5b deutliche Asymmetrien und Energieverschiebungen in den Spektrallinien ausmachen, was auf die durch die Überlagerung gesteigerte Pulsfläche des Kontrollpulses zurückzuführen ist. Eine leichte Asymmetrie bemerken wir bei genauerem Hinsehen auch schon in Abb. 3.5a. Wir werden im nächsten Abschnitt daher – über die analytischen Betrachtungen im CW-Limes hinausgehend – das *reduzierte Modell* für Kontrolllaserpulse *endlicher* Breite betrachten und analytisch lösen. Dies wird uns unter anderem noch einige weitere Anhaltspunkte für den Einfluss der expliziten Pulsform geben, die aus der rein simulativen Analyse des Spektrums *nicht* weiter erschlossen werden könnten.

3.4. Analytische Lösung des reduzierten Modells für beliebige Laserhüllkurven

Zum Abschluss dieses Kapitels möchten wir das reduzierte Modell des Raman-Prozesses zwischen Biexziton und Grundzustand, welches wir oben bisher ausschließlich im CW-Limes analysiert haben, für gepulste Anregungen, $\Omega(t) = \Omega_{\text{env}}(t)e^{i\omega_L t}$, lösen. Insbesondere wollen wir die in Abb. 3.5 anhand numerischer Daten beobachtete Linienbreitenabstimmung und die pulsabhängige Linienform des *Raman-Photons* genauer untersuchen. Zusätzlich erweitern wir das reduzierte Modell noch um den Beitrag strahlenden Zerfalls der Besetzungen (siehe Anhang A.1), was nach Gl. (A.6) zu den effektiven elektronischen Dämpfungskonstanten

$$\Gamma_{X,G} = \Gamma + r, \quad \Gamma_{B,X} = \Gamma + 3r, \quad \Gamma_{B,G} = \Gamma + 2r \quad (3.19)$$

der elektronischen Polarisationen $\langle P_{\alpha,\beta(\neq\alpha)} \rangle$ führt. Zunächst entwickeln wir im folgenden Teil dieses Kapitelabschnittes eine Lösung für die Dynamik der Emission, um denselben Formalismus dann im zweiten Teil schließlich auch auf das reduzierte Modell des physikalischen Spektrums anzuwenden.

3.4.1. Lösung der Emissionsdynamik

Wir erweitern zunächst das reduzierte Modell um die Berücksichtigung von strahlendem Zerfall, indem wir die in Gl. (3.7) auftretenden elektronischen Dephasierungskonstanten durch die verallgemeinerten Konstanten $\Gamma_{\alpha,\beta}$ nach Gl. (3.19) ersetzen, was wir durch die entsprechend modifizierte Energien $\varepsilon_{\alpha,\beta} = E_\alpha - E_\beta - \hbar\omega_C - i\hbar(\kappa + \Gamma_{\alpha,\beta})/2$ sowie $E_P = E_B - E_X - i\hbar\Gamma_{B,X}/2$ erreichen. Zudem transformieren wir Gl. (3.7) für die weiteren Betrachtungen in ein rotierendes Bezugssystem, um die auf der Matrixdiagonalen stehenden Grundfrequenzen $\varepsilon_{\alpha,\beta}$ zu eliminieren. Dazu definieren wir $\langle P_{\alpha,\beta} b^\dagger \rangle(t) = e^{-i\varepsilon_{\beta,\alpha}t/\hbar} \phi_{\alpha,\beta}(t)$, und wir erhalten unmittelbar das Gleichungssystem

$$\frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} \phi_{G,X} \\ \phi_{X,B} \\ \phi_{G,B} \end{pmatrix} = -\frac{i}{\hbar} \begin{pmatrix} 0 & 0 & \Omega_1^+(t) \\ 0 & 0 & \Omega_2^+(t) \\ \Omega_1^-(t) & \Omega_2^-(t) & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \phi_{G,X} \\ \phi_{X,B} \\ \phi_{G,B} \end{pmatrix} + \frac{ig}{\hbar} \begin{pmatrix} 0 \\ e^{i\varepsilon_{B,X}t/\hbar} \\ e^{i\varepsilon_{B,G}t/\hbar} \langle P_{X,B} \rangle(t) \end{pmatrix}. \quad (3.20)$$

Hier haben wir die Lichtfeldkomponenten

$$\begin{aligned} \Omega_1^-(t) &= \Omega(t) e^{-i(\varepsilon_{X,G} - \varepsilon_{B,G})t/\hbar}, & \Omega_2^-(t) &= -\Omega(t) e^{-i(\varepsilon_{B,X} - \varepsilon_{B,G})t/\hbar}, \\ \Omega_1^+(t) &= \Omega(t) e^{+i(\varepsilon_{X,G} - \varepsilon_{B,G})t/\hbar}, & \Omega_2^+(t) &= -\Omega(t) e^{+i(\varepsilon_{B,X} - \varepsilon_{B,G})t/\hbar}. \end{aligned} \quad (3.21)$$

identifiziert, die aus dem vollen Lichtfeld $\Omega(t)$ durch die Verstimmung um die verschiedenen auftretenden Differenzfrequenzen hervorgegangen sind. Im Vektor der Anfangsbedingung wird nun auch klar ersichtlich, dass die inkohärente Hintergrundemission aus dem Biexziton mit $e^{i\varepsilon_{B,X}t/\hbar}$ – also mit der Verstimmung zwischen Biexziton-Exziton-Übergang und Resonator – oszilliert (vgl. Abbn. 3.2b und 3.3). Die Polarisation ist hier weiterhin definiert durch

$$\langle P_{X,B} \rangle(t) = \frac{i}{\hbar} \int_0^t dt' e^{-\frac{i}{\hbar} E_P(t-t')} \Omega(t'). \quad (3.22)$$

Für die weiteren Betrachtungen schreiben wir Gl. (3.20) nun kompakt als Matrix-Vektor-Gleichung,

$$\frac{\partial}{\partial t} \phi(t) = -\frac{i}{\hbar} \mathbb{H}(t) \phi(t) + \frac{ig}{\hbar} \phi_0(t). \quad (3.23)$$

Ein einfacher Exponentialansatz mit der Matrix \mathbb{H} löst diese Gleichung nicht, da \mathbb{H} nicht für verschiedene Zeitpunkte t und t' mit sich selbst vertauscht, $[\mathbb{H}(t), \mathbb{H}(t')] \neq 0$ [87]. Aufgrund der einfachen Gestalt der vollen Kopplungsmatrix bietet sich aber eine Aufspaltung $\mathbb{H} = \mathbb{M}^- + \mathbb{M}^+$ an, um zumindest die relevante Kopplung durch einen Exponentialansatz herauszutransformieren. Dies gelingt, indem wir

$$\mathbb{M}^-(t) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ \Omega_1^-(t) & \Omega_2^-(t) & 0 \end{pmatrix} \quad (3.24)$$

wählen: Zum einen ist dieser Matrixanteil für die Rückkopplung von $\phi_{G,B}$ – also der *Raman-Polarisation* – an die Biexziton-Exziton-Kaskade verantwortlich, und zum anderen gilt $\mathbb{M}^-(t)\mathbb{M}^-(t') = 0$ und somit trivialerweise $[\mathbb{M}^-(t), \mathbb{M}^-(t')] = 0$ für alle Zeiten t

3.4. Analytische Lösung des reduzierten Modells für beliebige Laserhüllkurven

und t' . Für dieses abgespaltene Teilproblem ist nun tatsächlich der Matrixexponentialansatz $\phi(t) = e^{-\frac{i}{\hbar} \int_0^t ds \mathbb{M}^-(s)} \psi(t)$ möglich, und wir erhalten durch Einsetzen in Gl. (3.23) die transformierte Bewegungsgleichung

$$\frac{\partial}{\partial t} \psi(t) = -\frac{i}{\hbar} e^{\frac{i}{\hbar} \int_0^t ds \mathbb{M}^-(s)} \mathbb{M}^+(t) e^{-\frac{i}{\hbar} \int_0^t ds \mathbb{M}^-(s)} \psi(t) + \frac{ig}{\hbar} e^{\frac{i}{\hbar} \int_0^t ds \mathbb{M}^-(s)} \phi_0(t). \quad (3.25)$$

Die hier auftretenden Matrixexponentiale von \mathbb{M}^- haben die besonders einfache Gestalt

$$e^{\pm \frac{i}{\hbar} \int_0^t ds \mathbb{M}^-(s)} = 1 \pm \frac{i}{\hbar} \int_0^t ds \mathbb{M}^-(s), \quad (3.26)$$

sodass wir unmittelbar die Transformationsvorschrift zwischen den Vektoren ϕ und ψ ,

$$\begin{aligned} \phi_{G,X}(t) &= \psi_{G,X}(t), \\ \phi_{X,B}(t) &= \psi_{X,B}(t), \\ \phi_{G,B}(t) &= -\frac{i}{\hbar} \left[\int_0^t ds \Omega_1^-(s) \right] \phi_{G,X}(t) - \frac{i}{\hbar} \left[\int_0^t ds \Omega_2^-(s) \right] \phi_{X,B}(t) + \psi_{G,B}(t), \end{aligned} \quad (3.27)$$

ablesen können. Zudem können wir die neue Kopplungsmatrix in Gl. (3.25) explizit berechnen, und wir erhalten

$$\begin{aligned} e^{\frac{i}{\hbar} \int_0^t ds \mathbb{M}^-(s)} \mathbb{M}^+(t) e^{-\frac{i}{\hbar} \int_0^t ds \mathbb{M}^-(s)} &= \mathbb{M}^+(t) + \frac{i}{\hbar} \int_0^t ds [\mathbb{M}^-(s), \mathbb{M}^+(t)] \\ &+ \frac{1}{\hbar^2} \int_0^t ds \int_0^t du \mathbb{M}^-(s) \mathbb{M}^+(t) \mathbb{M}^-(u). \end{aligned} \quad (3.28)$$

Wir erinnern daran, dass \mathbb{M}^\pm von der Ordnung Ω ist: Die rechte Seite der Gleichung stellt also eine Entwicklung der Kopplung in Potenzen des Lichtfeldes dar. Ausgehend von unserer CW-Analyse, in der wir die Rückkopplung nach Gl. (3.9) in der Ordnung Ω^2 gefunden hatten, vernachlässigen wir die zweite Zeile der rechten Seite, welche von der Ordnung Ω^3 ist. Diese Näherung entkoppelt die Raman-Polarisation $\psi_{G,B}$ von den anderen beiden Gleichungen. Denn der dritte Zeilenvektor von \mathbb{M}^+ ist null und der Ω^2 -Beitrag koppelt $\psi_{G,B}$ ausschließlich an sich selbst,

$$[\mathbb{M}^-(s), \mathbb{M}^+(t)] = \begin{pmatrix} -\Omega_{1,1}(t,s) & -\Omega_{1,2}(t,s) & 0 \\ -\Omega_{2,1}(t,s) & -\Omega_{2,2}(t,s) & 0 \\ 0 & 0 & \Omega_{1,1}(t,s) + \Omega_{2,2}(t,s) \end{pmatrix}. \quad (3.29)$$

Hier haben wir die Abkürzungen $\Omega_{i,j}(t,s) = \Omega_i^+(t) \Omega_j^-(s)$ eingeführt. Wenden wir unsere Überlegungen auf Gl. (3.25) an, erhalten wir schlussendlich eine geschlossene Differentialgleichung für die *Raman-Polarisation*,

$$\frac{\partial}{\partial t} \psi_{G,B}(t) = \mathcal{M}(t) \psi_{G,B}(t) + \frac{ig}{\hbar} \left(\phi_{0,3}(t) + \frac{i}{\hbar} \left[\int_0^t ds \Omega_2^-(s) \right] \phi_{0,2}(t) \right). \quad (3.30)$$

Dabei ist die Eigenfrequenz durch $\mathcal{M}(t) = \frac{1}{\hbar^2} \int_0^t ds [\Omega_{1,1}(t,s) + \Omega_{2,2}(t,s)]$ gegeben. Weiterhin bezeichne $\phi_{0,j}(t)$ die j te kartesische Komponente des Vektors $\phi_0(t)$. Mit der Gleichung der Raman-Polarisation, die ja auf Basis unserer oben beschriebenen Näherung

3. Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand

geschlossen werden konnte, sind wir nun in der Lage die durch Gl. (3.27) gegebene Transformationsvorschrift weiter zu spezifizieren: Wir leiten diese Vorschrift ab, setzen den durch Gl. (3.30) definierten Zusammenhang ein und vergleichen die so gewonnene Gleichung für $\phi_{G,B}(t)$ mit der ursprünglichen Gleichung, Gl. (3.23). Dies führt direkt auf

$$\phi_{G,B}(t) = \psi_{G,B}(t). \quad (3.31)$$

Offensichtlich führt die Vernachlässigung der Ordnung Ω^3 dazu, dass nur die Koppelungsmatrix transformiert wird, nicht aber der Zustandsvektor ϕ selbst. Dieser Sachverhalt vereinfacht die Konstruktion einer expliziten Lösung des reduzierten Modells erheblich. Die lineare Differentialgleichung, Gl. (3.30), wird unmittelbar durch den Ansatz $\psi_{G,B}(t) = e^{\int_0^t ds \mathcal{M}(s)} \tilde{\psi}_{G,B}(t)$ gelöst, und die *Raman-Polarisation* im rotierenden Bezugssystem ist demnach explizit gegeben durch

$$\psi_{G,B}(t) = \frac{ig}{\hbar} e^{\int_0^t ds \mathcal{M}(s)} \int_0^t dt' e^{-\int_0^{t'} ds \mathcal{M}(s)} \left(\phi_{0,3}(t') + \frac{i}{\hbar} \left[\int_0^{t'} ds \Omega_2^-(s) \right] \phi_{0,2}(t') \right). \quad (3.32)$$

Hier erkennen wir nun *zwei fundamentale Quellterme*, die zum Aufbau von Raman-Polarisation zwischen Biexziton und Grundzustand beitragen: Zum einen finden wir $\phi_{0,3}$ – die laserinduzierte Polarisation zwischen Biexziton und Exziton – als Quelle, zum anderen $\phi_{0,2}$ – die inkohärente Emission aus dem Biexziton –, projiziert mit dem Integral über die Lichtkomponente Ω_2^- . Das bedeutet aber, dass die kohärente Raman-Polarisation nicht nur durch das dem Laserpuls adiabatisch folgende Exziton vermittelt wird, sondern darüber hinaus sich ebenfalls durch die inkohärente Hintergrundemission speist, welche durch den Kontrolllaser in kohärente Raman-Emission umgewandelt werden kann. Diesen Sachverhalt können wir unter den in diesem Kapitel angenommenen Bedingungen zur Ermöglichung einer ersten reduzierenden Modellbildung nicht weiter untersuchen. Nun sind wir aber dazu in der Lage, die volle Zeitabhängigkeit der Raman-Polarisation zu bestimmen, sie ist gegeben durch

$$\langle P_{G,B} b^\dagger \rangle(t) = e^{-i\varepsilon_{B,G}t/\hbar} \psi_{G,B}(t) = e^{-\frac{i}{\hbar}(\varepsilon_{B,G} + \frac{i\hbar}{t} \int_0^t ds \mathcal{M}(s))t} \tilde{\psi}_{G,B}(t), \quad (3.33)$$

sodass wir nun die durch den Kontrolllaser induzierte Energieverschiebung gegenüber $\varepsilon_{B,G}$ als

$$\Delta(t) = \frac{i\hbar}{t} \int_0^t ds \mathcal{M}(s) \quad (3.34)$$

identifizieren können. Genauer gesagt ist dies eine Selbstkonsistenzgleichung für Δ_L , denn \mathcal{M} ist ja wiederum von Ω und damit von Δ_L abhängig. Um dennoch einen expliziten und kompakten Ausdruck zu erhalten, werten wir die in $\mathcal{M}(s)$ auftretenden Energiedifferenzen mit der Näherung $\hbar\omega_L \approx E_B - E_G - \hbar\omega_C$ aus. Gleichzeitig stellen wir die Konsistenz mit dem CW-Ausdruck, Gl. (3.10), sicher, indem wir die auftretenden Dämpfungskonstanten passend durch $i(\kappa + \Gamma_{X,G})/2$ bzw. $i(\kappa + \Gamma_{X,G})/2$ formal ersetzen. Dies führt auf

3.4. Analytische Lösung des reduzierten Modells für beliebige Laserhüllkurven

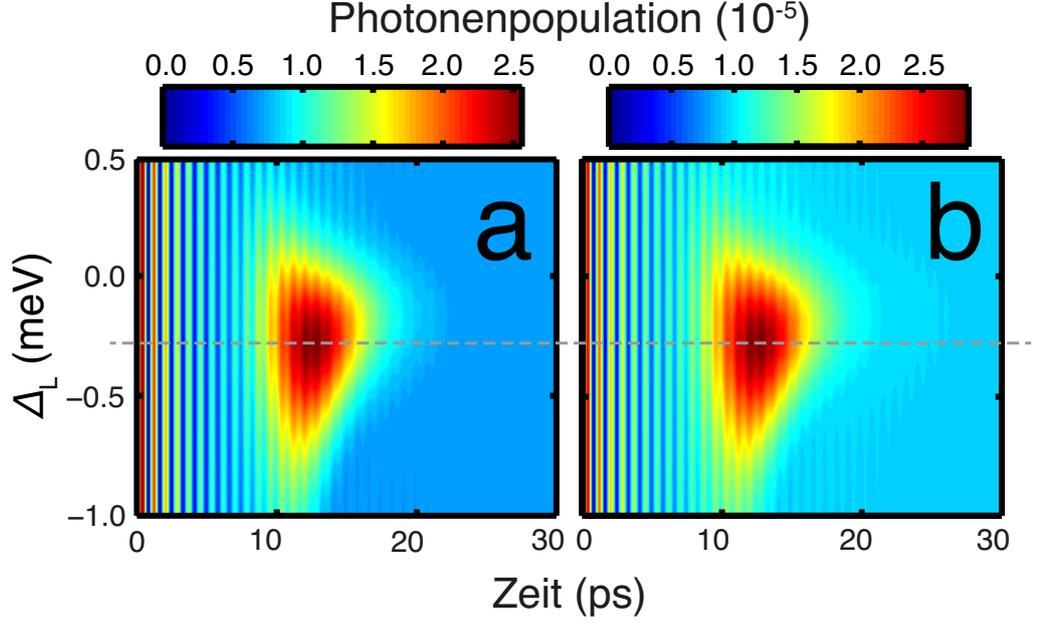


Abbildung 3.6.: Volle Lösung vs. reduziertes Modell. Abgebildet ist (a) die bereits in Abb. 3.2b gezeigte volle Lösung der Von-Neumann-Gleichung im Vergleich mit (b) der Lösung des reduzierten Modells nach Gln. (3.32) und (3.35).

$$\Delta(t) = \frac{i}{\hbar t} \int_0^t ds \int_0^s du \Omega_{\text{env}}(s) \Omega_{\text{env}}(u) \left[e^{\frac{i}{\hbar} \varepsilon_{X,G}(s-u)} + e^{\frac{i}{\hbar} \varepsilon_{B,X}(s-u)} \right]. \quad (3.35)$$

Dieser Ausdruck geht dann tatsächlich für ein CW-Lichtfeld, $\Omega_{\text{env}}(t) = \Omega_0$, unter der Annahme von $\Omega(t=0) = 0$ in den CW-Ausdruck, Gl. (3.10), über, für dessen Herleitung wir ja über die reduzierende Modellbildung hinaus *keine* weitere Näherung gemacht hatten. An diesem Punkt ist das reduzierte Modell, Gl. (3.7), für eine beliebige Einhüllende nun vollständig gelöst, und wir können die Lösung der Raman-Polarisation, Gl. (3.32), unter Verwendung der expliziten Lösung für die Stark-Verschiebung, Gl. (3.35), in die Gleichung für die Photonenpopulation, Gl. (3.5), einbringen. Formale Integration liefert

$$\langle b^\dagger b \rangle(t) = \frac{2g}{\hbar} \text{Im} \int_0^t dt' e^{-\kappa(t-t')/\hbar} (\langle P_{G,X} b^\dagger \rangle(t') + \langle P_{X,B} b^\dagger \rangle(t')) \quad (3.36)$$

mit den photonenassistierten Polarisationen

$$\begin{aligned} \langle P_{G,X} b^\dagger \rangle(t) &= -\frac{i}{\hbar} \int_0^t dt' e^{-i\varepsilon_{X,G}(t-t')/\hbar} \Omega^*(t') \langle P_{G,B} b^\dagger \rangle(t'), \\ \langle P_{X,B} b^\dagger \rangle(t) &= \frac{i}{\hbar} \int_0^t dt' e^{-i\varepsilon_{B,X}(t-t')/\hbar} \Omega^*(t') \langle P_{G,B} b^\dagger \rangle(t') + \frac{ig}{\hbar} \int_0^t dt' e^{-i\varepsilon_{B,X}(t-t')/\hbar}. \end{aligned} \quad (3.37)$$

Abschließend stellen wir in Abb. 3.6 unsere auf den Ausdrücken für die Raman-Polarisation, Gl. (3.32), sowie für die auftretenden Stark-Verschiebungen, Gl. (3.35), basierende analytische Lösung des reduzierten Modells [Abb. 3.6b] der vollen Lösung der Von-Neumann-Gleichung gegenüber [Abb. 3.6a], die wir bereits im Rahmen von Abb. 3.2 für

3. Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand

unsere Beispielparameter gezeigt und diskutiert hatten. Wir finden – trotz unserer oben beschriebenen Näherungen – eine erstaunlich gute Übereinstimmung der Analytik mit der vollen Numerik: Die Analytik gibt – neben der inkohärenten Hintergrundemission aus dem Biexziton – insbesondere die grundlegende Erscheinungsform der laserinduzierten kohärenten Raman-Emission korrekt wieder, bemerkenswerterweise reproduziert sie sogar die numerisch ermittelte Energieverschiebung (grau gestrichelte Linie). Die beiden Lösungen unterscheiden sich lediglich leicht in der absoluten Quantenausbeute, die Analytik überschätzt die reine Numerik auf einer Skala von $1 \cdot 10^{-6}$ (siehe Farbskalen).

Da das reduzierte Modell also offensichtlich auch für beliebige Pulsformen äußerst belastbar ist, übertragen wir das in diesem Abschnitt beschriebene Lösungsvorgehen unmittelbar auf das reduzierte Modell der Dynamik der Autokorrelationsfunktion zur Analyse des Eberly-Wodkiewicz-Spektrums. Die im Folgenden entwickelten und diskutierten Ergebnisse sind teilweise in Publikation [P2] veröffentlicht.

3.4.2. Untersuchung des Eberly-Wodkiewicz-Spektrums

Bevor wir das im vorigen Abschnitt beschriebene Vorgehen auf die Dynamik der Autokorrelationsfunktion anwenden können, erweitern wir zunächst das reduzierte Modell, Gl. (3.13), um die explizite Berücksichtigung der Abhängigkeit von *beiden* Zeiten, t und τ ,

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial \tau} \begin{pmatrix} \Pi_{X,G}(t, \tau) \\ \Pi_{B,X}(t, \tau) \\ \Pi_{B,G}(t, \tau) \end{pmatrix} = - \begin{pmatrix} E_{X,G} & 0 & \Omega(t + \tau) \\ 0 & E_{B,X} & -\Omega(t + \tau) \\ \Omega^*(t + \tau) & -\Omega^*(t + \tau) & E_{B,G} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Pi_{X,G}(t, \tau) \\ \Pi_{B,X}(t, \tau) \\ \Pi_{B,G}(t, \tau) \end{pmatrix}. \quad (3.38)$$

Dabei sind die von t und τ abhängigen Korrelatoren nun durch $\Pi_{\alpha,\beta}(t, \tau) = \langle P_{\alpha,\beta}(t+\tau)b(t) \rangle$ und die Energiedifferenzen wie gehabt durch $E_{\alpha,\beta} = E_\alpha - E_\beta + i\hbar\Gamma_{\alpha,\beta}/2 \equiv \hbar\omega_{\alpha,\beta}$ gegeben. Von der obigen Bewegungsgleichung ausgehend werden wir Gl. (3.16) für Kontrollpulse $\Omega(t) = \Omega_{\text{env}}(t)e^{-i\omega_L t}$ mit einer beliebigen Hüllkurve Ω_{env} verallgemeinern können. Dies wird gewinnbringende Einblicke in die Abhängigkeit der spektralen Gestalt des Raman-Photons vom gewählten Anregungsdesign ermöglichen. Wir notieren wieder im ersten Schritt unsere Bewegungsgleichung, Gl. (3.38), im rotierenden Bezugssystem der systemspezifischen Eigenfrequenzen, $\Pi_{\alpha,\beta}(t, \tau) \equiv e^{i\omega_{\alpha,\beta}\tau} \Psi_{\alpha,\beta}(t, \tau)$, was auf

$$\frac{\partial}{\partial \tau} \begin{pmatrix} \Psi_{X,G} \\ \Psi_{B,X} \\ \Psi_{B,G} \end{pmatrix} = \frac{i}{\hbar} \begin{pmatrix} 0 & 0 & \Omega_{1,3} \\ 0 & 0 & \Omega_{2,3} \\ \Omega_{3,1} & \Omega_{3,2} & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Psi_{X,G} \\ \Psi_{B,X} \\ \Psi_{B,G} \end{pmatrix} \quad (3.39)$$

führt. Hierbei haben wir die Kontrollpulsbestandteile

$$\begin{aligned} \Omega_{3,1}(t, \tau) &= \Omega^*(t + \tau)e^{-i(\omega_{B,G} - \omega_{X,G})\tau}, & \Omega_{3,2}(t, \tau) &= -\Omega^*(t + \tau)e^{-i(\omega_{B,G} - \omega_{B,X})\tau}, \\ \Omega_{1,3}(t, \tau) &= \Omega(t + \tau)e^{i(\omega_{B,G} - \omega_{X,G})\tau}, & \Omega_{2,3}(t, \tau) &= -\Omega(t + \tau)e^{i(\omega_{B,G} - \omega_{B,X})\tau} \end{aligned} \quad (3.40)$$

identifiziert. Für den Korrelatorenvektor $\Psi = (\Psi_{X,G}, \Psi_{B,X}, \Psi_{B,G})$ machen wir dann den aus dem vorigen Abschnitt bereits bekannten Exponentialansatz,

$$\Psi(t, \tau) = e^{\frac{i}{\hbar} \int_0^\tau dt' \mathbb{M}(t, t')} \tilde{\Psi}(t, \tau), \quad (3.41)$$

welcher mit der zu Gl. (3.24) analogen Wahl,

$$\mathbb{M}(t, \tau) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ \Omega_{3,1}(t, \tau) & \Omega_{3,2}(t, \tau) & 0 \end{pmatrix}, \quad (3.42)$$

3.4. Analytische Lösung des reduzierten Modells für beliebige Laserhüllkurven

wieder die Kopplung der Raman-Gleichung an die übrigen Komponenten aufheben soll. Es gilt dementsprechend wieder $\mathbb{M}(t, \tau)\mathbb{M}(t, \tau') = 0$ und somit natürlich für alle Zeiten τ, τ' die Vertauschbarkeit von \mathbb{M} mit sich selbst, $[\mathbb{M}(t, \tau), \mathbb{M}(t, \tau')] = 0$. Die Vernachlässigung der Rückkopplung in zweiter Ordnung des Lichtfeldes führt zur geschlossenen analytischen Lösung von Gl. (3.39), und wir erhalten schlussendlich für den *Raman-Korrelator*

$$\Psi_{B,G}(t, \tau) = \langle P_{G,B} b^\dagger \rangle^*(t) e^{-\frac{i}{\hbar} \Sigma(t, \tau) \tau}, \quad (3.43)$$

der die Information der durch den Kontrolllaser steuerbaren spektralen Eigenschaften birgt. Die hier auftretende *Stark-Verschiebung* haben wir als

$$\Sigma(t, \tau) = \frac{i}{\hbar \tau} \int_0^\tau d\tau' \int_0^{\tau'} d\tau'' \sum_{k=1}^2 \Omega_{3,k}(t, \tau'') \Omega_{k,3}(t, \tau') \quad (3.44)$$

identifiziert, welche eine Verallgemeinerung der in Gl. (3.17) gefundenen Verschiebung darstellt. Ihr Einfluss und ihre explizite Gestalt spielen letztendlich eine entscheidende Rolle für die Frequenzkontrolle sowie für die spektrale Formbarkeit des Raman-Photons. Sie ist ebenfalls zweiter Ordnung im Lichtfeld und explizit von den in Gl. (3.40) definierten Pulsbestandteilen abhängig, welche wiederum die volle Gestalt des Kontrollpulses, Ω_{env} , enthalten. In unserer Näherung faktorisiert nun der zweizeitige Raman-Korrelator nach Gl. (3.43) in die ausschließlich von t abhängige Raman-Polarisation $\langle P_{G,B} b^\dagger \rangle(t)$ selbst und in den mit der laserinduzierten Energieverschiebung $\Sigma(t, \tau)$ oszillierenden Anteil, welcher als Einziger die τ -Abhängigkeit trägt.

Nun steht noch die sukzessive Konstruktion der Lösung für die volle Autokorrelationsfunktion $G(t, \tau) = \langle b^\dagger(t + \tau) b(t) \rangle$ aus. Ausgehend von der Verallgemeinerung von Gl. (3.12) auf zwei Zeiten ist die Autokorrelationsfunktion zunächst formal durch Integration ihrer Bewegungsgleichung,

$$G(t, \tau) = e^{iE_C \tau / \hbar} \langle b^\dagger b \rangle + \frac{ig}{\hbar} \int_0^\tau d\tau' e^{-iE_C(\tau' - \tau) / \hbar} (\Pi_{X,G}(t, \tau') + \Pi_{B,X}(t, \tau')), \quad (3.45)$$

darstellbar, wobei wir $E_C = \hbar\omega_C + i\kappa/2$ definiert haben. Analog gilt nach Gl. (3.38) für die beiden im Integranden auftretenden Korrelatoren

$$\begin{aligned} \Pi_{X,G}(t, \tau) &= e^{iE_{X,G}\tau/\hbar} \langle P_{G,X} b^\dagger \rangle^*(t) + \frac{i}{\hbar} e^{iE_{X,G}\tau/\hbar} \int_0^\tau d\tau' \Omega_{1,3} \Psi_{B,G}(t, \tau'), \\ \Pi_{B,X}(t, \tau) &= e^{iE_{B,X}\tau/\hbar} \langle P_{X,B} b^\dagger \rangle^*(t) + \frac{i}{\hbar} e^{iE_{B,X}\tau/\hbar} \int_0^\tau d\tau' \Omega_{2,3} \Psi_{B,G}(t, \tau'). \end{aligned} \quad (3.46)$$

3. Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand

Ohne zusätzliche Näherungen können wir anschließend im Rahmen des reduzierten Modells die Autokorrelation durch das Einsetzen von Gl. (3.46) in den Ausdruck Gl. (3.45) zunächst ausschließlich auf den Raman-Korrelator $\Psi_{B,G}$ zurückführen. Die dafür notwendigen Schritte sind sehr langwierig, aber relativ unkompliziert, weshalb wir sie hier bloß knapp umreißen: Nach dem Auflösen der Doppelintegrale durch partielle Integration sowie dem expliziten Auswerten der auftretenden Energiedifferenzen und geeignetem Sortieren der einzelnen Terme erhalten wir als Ausdruck für die *Autokorrelationsfunktion* im reduzierten Modell

$$\begin{aligned}
G(t, \tau) = & e^{\frac{i}{\hbar} E_C \tau} \left(\langle b^\dagger b \rangle(t) - g \frac{\langle P_{G,X} b^\dagger \rangle^*(t)}{E_{X,G} - E_C} - g \frac{\langle P_{X,B} b^\dagger \rangle^*(t)}{E_{B,X} - E_C} \right. \\
& + \frac{ig}{\hbar} \left[\frac{1}{E_{B,X} - E_C} - \frac{1}{E_{X,G} - E_C} \right] e^{-i\omega_L t} \int_0^\tau d\tau' e^{-\frac{i}{\hbar} (A_L + i\hbar \frac{\kappa - \Gamma_{B,G}}{2}) \tau'} \Omega_{\text{env}}(t + \tau') \Psi_{B,G}(t, \tau') \\
& + g e^{\frac{i}{\hbar} E_{B,X} \tau} \left(\frac{\langle P_{X,B} b^\dagger \rangle^*(t)}{E_{B,X} - E_C} - \frac{ie^{-i\omega_L t}/\hbar}{E_{B,X} - E_C} \int_0^\tau d\tau' e^{-\frac{i}{\hbar} (E_B - E_X - \hbar\omega_C + A_L + i\hbar \frac{\Gamma_{B,G} - \Gamma_{B,X}}{2}) \tau'} \Omega_{\text{env}}(t + \tau') \Psi_{B,G}(t, \tau') \right) \\
& \left. + g e^{\frac{i}{\hbar} E_{X,G} \tau} \left(\frac{\langle P_{G,X} b^\dagger \rangle^*(t)}{E_{X,G} - E_C} + \frac{ie^{-i\omega_L t}/\hbar}{E_{X,G} - E_C} \int_0^\tau d\tau' e^{-\frac{i}{\hbar} (E_X - E_G - \hbar\omega_C + A_L + i\hbar \frac{\Gamma_{B,G} - \Gamma_{X,G}}{2}) \tau'} \Omega_{\text{env}}(t + \tau') \Psi_{B,G}(t, \tau') \right) \right). \tag{3.47}
\end{aligned}$$

Hier haben wir bereits alle Beiträge zu $G(t, \tau)$ nach Frequenzen in τ geordnet: Wir finden wie zu erwarten *drei Grundfrequenzen*, nämlich E_C/\hbar (Resonatorfrequenz), $E_{B,X}/\hbar$ (Biexziton-Exziton-Frequenz) und $E_{X,G}/\hbar$ (Exziton-Grundzustand-Frequenz). Alle drei Beiträge bestehen zum einen aus einem ausschließlich t -abhängigen Hintergrundbeitrag, und zum anderen aus einem explizit in t und τ von der Einhüllenden Ω_{env} und dem Raman-Korrelator $\Psi_{B,G}$ abhängigen Beitrag. Offensichtlich kann der kohärente Raman-Prozess also auch die Spektrallinien an den Emissionsfrequenzen der Biexziton-Exziton-Kaskade modifizieren. Dass dies tatsächlich auch über den durch den Erhaltungssatz, Gl. (3.6), limitierten Grenzfall hinaus gilt, werden wir erst zum Ende dieser Arbeit diskutieren können (siehe Abschnitt 5.2.3), nachdem wir über die Cluster-Entwicklung ein geeignetes Rahmenkonzept entwickelt haben werden, welches die Untersuchung des Raman-Prozesses auch für starke Anregungsintensitäten zulässt.

Bemerkenswerterweise lässt sich nun die volle Autokorrelationsfunktion, Gl. (3.47), mit unserer Näherungslösung für den Raman-Korrelator, Gl. (3.43), ausschließlich auf die Materialparameter, die gewählte Einhüllende sowie die reine t -Dynamik zurückführen. Die gesamte τ -Dynamik ist somit *explizit* ausformuliert. Da wir ja insbesondere am Spektrum des Raman-Photons interessiert sind, extrahieren wir nun aus Gl. (3.47) den Beitrag der Autokorrelationsfunktion, welcher in τ nahe der Cavity-Frequenz oszilliert. Anschließend zerlegen wir diesen in den mit der *reinen* Cavity-Frequenz oszillierenden Hintergrundbeitrag G_C und in den explizit durch den Kontrollpuls steuerbaren Anteil G_Q . Dies ergibt für die Hintergrundemission

$$G_C(t, \tau) = e^{\frac{i}{\hbar} E_C \tau} \left(\langle b^\dagger b \rangle(t) - g \frac{\langle P_{G,X} b^\dagger \rangle^*(t)}{E_{X,G} - E_C} - g \frac{\langle P_{X,B} b^\dagger \rangle^*(t)}{E_{B,X} - E_C} \right) \tag{3.48}$$

und unter Verwendung von Gl. (3.43) für den rein kohärenten Anteil

3.4. Analytische Lösung des reduzierten Modells für beliebige Laserhüllkurven

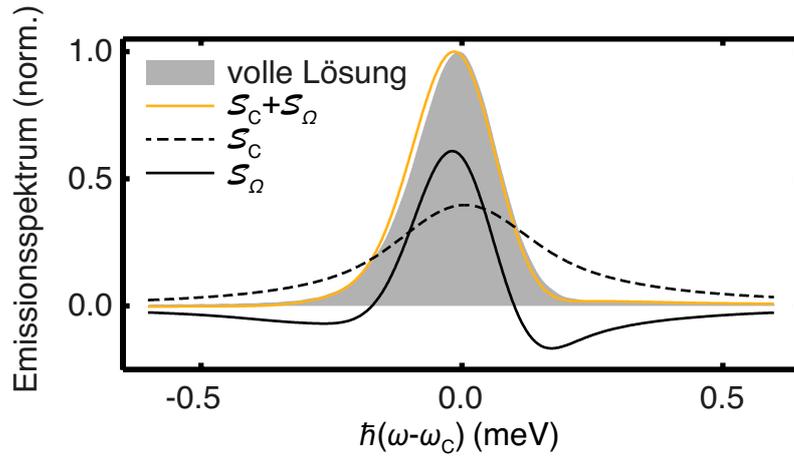


Abbildung 3.7.: Physikalisches Spektrum des Raman-Photons – reduziertes Modell vs. volle Lösung. Abgebildet ist das auf Basis der analytisch ermittelten Komponenten \mathcal{S}_C (schwarze gestrichelte Linie) und \mathcal{S}_Ω (schwarze durchgezogene Linie) berechnete Emissionsspektrum $\mathcal{S}_C + \mathcal{S}_\Omega$ (gelbe Linie) nach Gl. (3.50). Die Parameter stimmen mit dem in Abb. 3.5a gezeigten Szenario zur Gauß-Pulsbreite von $\Delta t = 5$ ps überein, welches hier zum Vergleich erneut gezeigt ist (graue Fläche). Die Laserverstimmung ist in beiden Fällen wieder als $\Delta_L = -0.09$ meV gewählt.

$$G_\Omega(t, \tau) = \frac{ig}{\hbar} e^{\frac{i}{\hbar} E_C \tau} \left[\frac{1}{E_{B,X} - E_C} - \frac{1}{E_{X,G} - E_C} \right] \langle P_{G,B} b^\dagger \rangle^*(t) e^{-i\omega_L t} \int_0^\tau d\tau' e^{-\frac{i}{\hbar} (\Delta_L + \Sigma(t, \tau')) + i\hbar \frac{\kappa^T B, G}{2}} \tau' \Omega_{\text{env}}(t + \tau'). \quad (3.49)$$

Bevor wir diesen Ausdruck näher besprechen, möchten wir unsere analytische Lösung nach Gln. (3.48) und (3.49) für das resultierende Spektrum erst einmal visualisieren und mit der *vollen* numerischen Lösung auf Basis der Von-Neumann-Gleichung abgleichen: Der spektrale Beitrag an der Cavity-Resonanz ist dann analytisch gegeben durch $\mathcal{S}_C + \mathcal{S}_\Omega$, wobei die beiden Anteile jeweils durch das korrespondierende Eberly-Wodkiewicz-Integral, Gl. (2.29), gegeben sind,

$$\mathcal{S}_C(t, \omega) = \text{Re} \int_0^t dt' \int_0^{t-t'} d\tau e^{-i\omega\tau} G_C(t', \tau), \quad \mathcal{S}_\Omega(t, \omega) = \text{Re} \int_0^t dt' \int_0^{t-t'} d\tau e^{-i\omega\tau} G_\Omega(t', \tau). \quad (3.50)$$

Das nach dieser Gleichung definierte Spektrum haben wir für unser in Abb. 3.5a gezeigtes Beispiel des Gauß-Pulses mit der Breite $\Delta t = 5$ ps ausgewertet und in Abb. 3.7 mit der vollen Lösung zusammen dargestellt. Wir zeigen die Summe der Anteile, $\mathcal{S}_C + \mathcal{S}_\Omega$, (gelbe Linie) sowie die beiden Einzelkomponenten, \mathcal{S}_C (schwarze gestrichelte Linie) und \mathcal{S}_Ω , (schwarze durchgezogene Linie). Wir sehen sofort, dass die analytische Lösung des reduzierten Modells die volle, leicht asymmetrische Linienform des Raman-Photons (graue

3. Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand

Fläche) erstaunlich gut erfasst. Diese Form können wir anhand von Gl. (3.49) nun genauer erklären: Zum einen sind bereits die beiden Flanken der Hintergrundemission \mathcal{S}_C um die Cavity-Frequenz herum nicht symmetrisch, bei genauerem Hinsehen bemerken wir eine leichte Bevorzugung der Emissionsfrequenzen $\omega > \omega_C$ gegenüber $\omega < \omega_C$. Das liegt offensichtlich daran, dass der entsprechende Anteil der Autokorrelation, G_C , laut Gl. (3.48) in der t -Koordinate mit der *gesamten* Emission gewichtet wird, die ja ebenfalls den kohärenten Anteil enthält, der von der Pulsform abhängt. Zum anderen ist ebenso der rein kohärente Beitrag \mathcal{S}_Ω nicht spiegelsymmetrisch um die Resonatorfrequenz ω_C . Dieser weist – neben einem dominanten positiven Beitrag bei $\omega \approx \omega_C$ – zwei negative Flanken auf, welche unterschiedlich stark ausgeprägt sind. Der Raman-Prozess, \mathcal{S}_Ω , beschneidet also insbesondere spektral die auf der Resonatorbreite κ angesiedelte Hintergrundemission, \mathcal{S}_C , derart, dass die effektive Linienbreite nach Gl. (3.49) maßgeblich durch den zentralen positiven Beitrag von \mathcal{S}_Ω , welcher im Wesentlichen durch die *Breite der Einhüllenden* des Kontrollpulses, Ω_{env} , gegeben ist. Gleichung (3.49) zeigt aber – über die Analyse von Abb. 3.5a hinausgehend – nun explizit an, wie zusätzlich die *Form* des Pulses die Raman-Resonanzlinie beeinflusst: Die beobachtete Asymmetrie der Raman-Resonanzlinie lässt sich nun durch die *zeitabhängige* Energieverschiebung $\Sigma(t, \tau)$ erklären, welche nach Gl. (3.44) sowohl explizit von der Form als auch der Intensität des Pulses abhängt. Die Linienform ist nämlich weitgehend durch die Fourier-Transformierte von $e^{-i(\Delta_L + \Sigma(t, \tau))\tau/\hbar} \Omega_{\text{env}}$ definiert, was effektiv als Puls mit zeitlich veränderlicher Anregungsfrequenz (überlicherweise engl. als *Chirp* bezeichnet) aufgefasst werden kann. Da Σ von der Ordnung Ω^2 ist, wird es für wachsende Anregungsintensität zu einer zunehmenden Verformung der Raman-Linie gegenüber der ursprünglichen Pulsform kommen wie wir sie für eine gesteigerte Pulsfläche in Abb. 3.5b deutlich erkennen können. Diesen Sachverhalt werden wir im nächsten Kapitel noch genauer im Zusammenhang mit den Raman-Prozessen in Dreiniveausystemen besprechen (siehe Diskussion von Abb. 4.7). Die auftretenden Verschiebungen der Spitzenintensität der Raman-Linie gegenüber $\omega = \omega_C$ können offensichtlich stets durch die *konstante* Laserverstimmung korrigiert werden, wie wir anhand von Abb. 3.7 zusammen mit Gl. (3.49) schließen können, nicht aber die Asymmetrie.

Insgesamt können wir an diesem Punkt aus den Ergebnissen des reduzierten Modells schließen, dass die Abhängigkeit der Raman-Linienform vom Kontrollpuls *nicht trivial* ist. Insbesondere legt Gl. (3.49) nahe, dass zur Kompensation der Energieverschiebung $\Sigma(t, \tau)$ für die optimierte Raman-Emission auch zeitlich veränderliche Laserverstimmungen, also die Verwendung maßgeschneiderter *Chirp-Kontrollpulse*, in Betracht gezogen werden müssen. Ferner merken wir spätestens nach der hier diskutierten Analyse des Emissionsspektrums, dass die spektrale Darstellung zur weiteren kombinierten analytischen und numerischen Ergründung der Raman-Prozesse nicht geeignet ist: Zum einen stoßen wir an Grenzen, sobald mehrere konkurrierende Prozesse an der Resonatorfrequenz entarten. Zum anderen müssten wir zur physikalisch konsistenten Zerlegung des Spektrums in alle beitragenden Emissionsprozesse unter beliebigen Anregungsbedingungen eine systematische Zerlegung sowohl in der τ - als *auch* in der t -Dynamik vornehmen. Dies ist meist nicht möglich, da in der Regel die Vertauschungsrelationen von Operatoren zu verschiedenen Zeiten analytisch nicht bekannt sind.

Stattdessen muss für ein weiterführendes tiefgründiges Verständnis der Zweiphotonen-Raman-Prozesse – welches zur Optimierung von darauf basierenden Einzelphotonenquellen für die Eignung zur Anwendung in der Quantenkommunikation unabdingbar ist

3.4. Analytische Lösung des reduzierten Modells für beliebige Laserhüllkurven

– eine für *alle* Anregungsbedingungen gültige *mikroskopische* Beschreibung der Anregungsdynamik etabliert werden. Eine solche Beschreibung ermöglicht dann die eindeutige Interpretation ergänzender spektraler Analysen, welche ja oftmals einen etwas intuitiveren Zugang zu optischen Anregungsprozessen zulassen und zudem direkt messbar sind. Um ferner den Raman-Prozess zwischen Biexziton und Grundzustand mit Raman-Prozessen in bereits etablierten Systemen – wie z.B. der prominenten Λ -Konfiguration [Abb. 1.1c] – in Verbindung zu bringen und mit diesen physikalisch zu vergleichen, werden wir im folgenden Kapitel die Komplexität des Systems zunächst reduzieren, indem wir eine systematische Untersuchung von resonatorgestützten Raman-Prozessen in Dreiniveausystemen in einer einheitlichen, mikroskopischen Beschreibung auf Basis der Cluster-Entwicklung durchführen. Auf diese Weise werden wir einen Formalismus zur Beschreibung von Zweiphotonen-Raman-Prozessen bereitstellen, der es erlauben wird, grundlegend neue physikalische Einsichten in die Emissionscharakteristik verschiedener elektronischer Konfigurationen zu erlangen.

3. Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand

Zweiphotonen-Raman-Prozesse in fundamentalen Dreiniveausystemen

Ausgehend von den ersten physikalischen Einsichten in die Raman-Photonenemission aus dem Quantenpunktbiexziton, wollen wir in diesem Kapitel die Komplexität des Modellsystems zunächst weiter reduzieren, um den Raman-Prozess im kleinstmöglichen Modellsystem zu isolieren. Der Zweiphotonenpfad ist immer dann möglich, wenn es drei elektronische Niveaus gibt, die über zwei dipolerlaubte optische Übergänge miteinander verknüpft sind. Daher werden wir die für unser volles System relevanten Dreiniveausysteme definieren und grundlegend mit der Methode der *Cluster-Entwicklung* mikroskopisch analysieren. Auf dieser Grundlage kann eine eindeutige sowie auf komplexere Mehrniveausysteme verallgemeinerbare Definition eines *Raman-Photons* entwickelt werden. In diesem Zusammenhang werden wir auch eine Schnittfläche zu bereits existierenden Forschungsarbeiten herstellen können, die Raman-Prozesse insbesondere in halbleiterbasierten oder atomaren Λ -Konfigurationen behandeln [16, 45, 53, 54]. Dies wird nicht nur eine Validierung unseres auf der Cluster-Entwicklung basierenden Rahmenkonzeptes ermöglichen. Vielmehr werden wir feststellen, dass wir in der Lage sind, in der Literatur etablierte experimentelle Ergebnisse neu zu verstehen und zu erklären. Die Entwicklung unseres mikroskopischen Rahmenkonzeptes und die wesentlichen Ergebnisse, die in diesem Kapitel präsentiert werden, sind in Publikation [P3] als umfangreicher Grundlagenartikel veröffentlicht worden. Die Art der Darstellung sowie die Auswahl der gezeigten Ergebnisse in diesem Kapitel orientiert sich daher maßgeblich an Publikation [P3].

4.1. Vereinheitlichende Beschreibung Λ - und V-artiger Systeme

Um den Raman-Prozess in den im Abschnitt 2.1.2 eingeführten Dreiniveausystemen, welche durch die Hamilton-Operatoren Gln. (2.8)-(2.11) definiert sind, systematisch zu beschreiben und zu analysieren, vereinbaren wir zunächst einige Definitionen und Annahmen. Als Erstes müssen wir die Resonanzbedingung des Raman-Prozesses spezifizieren, um die Anregungsfrequenz ω_L des Kontrolllasers geeignet zu wählen. Hierbei möchten wir annehmen, dass die optisch erlaubten Übergänge halbleitertypische Übergangsenergien auf einer eV-Skala aufweisen, $|\hbar(\omega_i - \omega_j)| = 1-2$ eV. Ferner möchten wir in V- und Λ -Konfigurationen annehmen, dass die Energiedifferenz zwischen Anfangs- und Endzu-

4. Zweiphotonen-Raman-Prozesse in fundamentalen Dreiniveausystemen

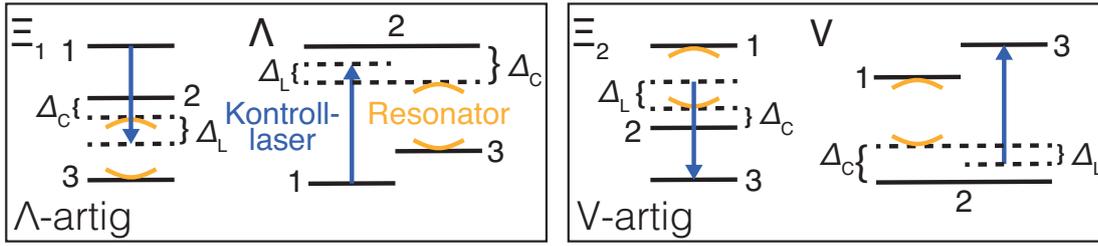


Abbildung 4.1.: Visualisierung von Laser- und Resonatorverstimmungen. Skizziert sind die in Gln. (4.1) und (4.2) definierten Verstimmungen Δ_L und Δ_C . Die blauen Pfeile repräsentieren die Anregungsenergie des Kontrolllasers, die gelben Klammern markieren die Energie der Resonatormode. Die gestrichelten Linien markieren die Bezugspunkte der Verstimmungen: Δ_C wird gegenüber dem Zwischenzustand 2 und Δ_L relativ zur Resonatorverstimmung (also als Abweichung zur elementaren Zweiphotonenresonanzbedingung) gemessen.

stand kleiner sei als die Energie der Resonatormode, $|\omega_1 - \omega_3| < \omega_C$. In typischen Materialsystemen ist sie sogar um Größenordnungen kleiner, beispielsweise ist die Feinstrukturaufspaltung der Exzitonen, welche eine V-Konfiguration mit dem Grundzustand realisieren, auf einer μeV -Skala angesiedelt [68]. Diese Annahmen werden keinerlei Einfluss auf die Physik des Raman-Prozesses haben, sie erlauben uns aber die Vermeidung zusätzlicher Fallunterscheidungen. Somit können wir eine kompakte, für alle Dreiniveausysteme einheitliche Bedingung für die Kontrollfrequenz ansetzen,

$$\hbar\omega_L = |\hbar(\omega_1 - \omega_3 - \omega_C)| + \Delta_L. \quad (4.1)$$

Hierbei ist die um die Cavity-Energie verstimmte Energiedifferenz zwischen Anfangs- und Endzustand die *elementare* Resonanzbedingung, welche sofort aus Energieerhaltungsüberlegungen folgt. Um durch die Intensität des in der Regel nichtresonanten Kontrolllasers induzierten Energieverschiebungen vom Stark-Typus Rechnung zu tragen, erlauben wir eine weitere Feinabstimmung Δ_L . Diese werden wir für jedes gewählte Kontrolllaserfeld $\Omega(t)$ optimieren müssen. Darüber hinaus führen wir die Resonatorverstimmung

$$\Delta_C = \hbar(\omega_i - \omega_j - \omega_C) \quad (4.2)$$

ein, wobei $(i, j) = (1, 2)$ für V-artige und $(i, j) = (2, 3)$ für Λ -artige Systeme sei. Somit gilt in Gl. (4.2) offensichtlich stets $\omega_i - \omega_j > 0$. Resonator- und Laserverstimmung sind in Abb. 4.1 zum besseren Verständnis illustriert. Wir werden also alle folgenden Betrachtungen ausschließlich durch Δ_C und Δ_L formulieren können, was den Vergleich der Modellsysteme unabhängig machen wird von den jeweiligen absoluten Energien der elektronischen Zustände.

An dieser Stelle müssen wir nun auch die relevanten Verlust- und Dephasierungsprozesse zusammen mit ihren Lindblad-Operatoren einführen. In unserem Zusammenhang

berücksichtigen wir eine endliche Lebensdauer der Photonen im Mikroresonator durch den Operator $L = \sqrt{\hbar\kappa}b$, welcher systemklassenunabhängig ist. Des Weiteren modellieren wir den Zerfall elektronischer Polarisierungen durch den Lindblad-Operator $L = \sqrt{\hbar\gamma_{i,j}}\sigma_{i,j}$ mit $E_i > E_j$ [83], wobei $\sigma_{i,j} = P_{i,i} - P_{j,j}$ den elektronischen Inversionsoperator zwischen Zustand i und j bezeichne. Dieser Zerfall wird in der englischsprachigen Fachliteratur oftmals als *pure dephasing* bezeichnet, da mit diesem Dephasierungsprozess keine Relaxation der elektronischen Besetzungen einhergeht. Unter der Annahme, dass für die eingeführten Dephasierungskonstanten die Symmetrie $\gamma_{i,j} = \gamma_{j,i}$ gelte, ist auch das volle Lindblad-Funktional $\mathcal{L}_{\sqrt{\hbar\gamma_{i,j}}\sigma_{i,j}}^H[P_{m,n}]$ nach Gl. (2.20) symmetrisch unter Vertauschung von i und j . Dies aber bedeutet, dass der Polarisationszerfall in seiner formalen Gestalt identisch ist für alle vier Systemkonfigurationen, was uns zum einen eine konsistente Vergleichbarkeit erlauben und zum anderen unsere Analyse auf die Betrachtung der beiden Systemklassen reduzieren wird. In unserem grundlegenden Vergleich der Licht-Materie-Wechselwirkung des Raman-Prozesses in der Λ - und V-Klasse verzichten wir jedoch auf die Berücksichtigung von *strahlendem Zerfall* der elektronischen Besetzungen, welche unter Wechselwirkung mit von der Resonatormode verschiedenen photonischen Moden in den Grundzustand relaxieren können. Dieser Prozess kann aber für eine gewählte Konfiguration durch $L = \sqrt{\hbar r_{i,j}}P_{i,j}$ modelliert werden, wobei die $P_{i,j}$ mit $E_j > E_i$ die optisch erlaubten Übergänge seien [54]. Offensichtlich sind aber die damit verbundenen Beiträge abhängig von der expliziten Konfiguration des betrachteten Dreiniveausystems, was eine konsistente Vergleichbarkeit der vier Konfigurationen verhindern würde. Insbesondere kann der Verzicht auf die Berücksichtigung von radiativem Zerfall auch physikalisch gerechtfertigt werden, sobald wir gepulste Anregungszyklen auf Zeitskalen betrachten, die deutlich kürzer sind als die Lebensdauern der elektronischen Besetzungen. Strahlenden Zerfall schließen wir später explizit in unsere mikroskopische Analyse der Raman-Emission aus dem Biexziton in Kapitel 5 ein (siehe auch Diskussion in Anhang A.1.1). Insgesamt sind die oben eingeführten Lindblad-Beiträge explizit gegeben durch

$$\sum_L \mathcal{L}_L(b^{(\dagger)}) = -\frac{i\hbar\kappa}{2}b^{(\dagger)} \quad (4.3)$$

und für $O = P_{m,n \neq m}$ durch

$$\sum_L \mathcal{L}_L(P_{m,n}) = -\frac{i\hbar}{2} \sum_{i>j} \gamma_{i,j} (2\delta_{i,n}\delta_{j,m} + 2\delta_{i,m}\delta_{j,n} + \delta_{i,m} + \delta_{j,m} + \delta_{i,n} + \delta_{j,n})P_{m,n}. \quad (4.4)$$

Hierzu machen wir in Anhang B.1.4 analytisch plausibel, wie strahlender Zerfall unsere im Folgenden diskutierten Ergebnisse modifizieren wird. Wir werden die im Hauptteil dieser Arbeit diskutierten Gleichungen derart notieren, dass die Berücksichtigung von radiativem Zerfall formal mit eingeschlossen ist. Dazu führen wir *effektive* Zerfallskonstanten $\Gamma_{m,n}$ für die Polarisierungen $P_{m,n}$ ein, die sowohl den Beitrag Gl. (4.4) als auch den Beitrag strahlenden Zerfalls (ebenfalls Anhang B.1.4) enthalten können. Wir definieren also ganz allgemein für $m \neq n$

$$\sum_L \mathcal{L}_L(P_{m,n}) = -\frac{i\hbar\Gamma_{m,n}}{2}P_{m,n}. \quad (4.5)$$

Um die Cluster-Entwicklung explizit anzuwenden, die einen geschlossenen Satz von Bewegungsgleichungen herstellt, benötigen wir noch die relevanten Faktorisierungen.

4. Zweiphotonen-Raman-Prozesse in fundamentalen Dreiniveausystemen

Aus diesem Grund definieren wir als Erstes den Raman-Prozess durch seine entsprechende *Raman-Korrelation*

$$R \equiv \langle\langle P_{3,1} b^\dagger \rangle\rangle, \quad (4.6)$$

die eine korrelierte photonenassistierte Polarisation zwischen Anfangszustand 1 und Endzustand 3 ist. In Kapitel 3 hatten wir ja analog die *Raman-Polarisation* als $\langle P_{G,B} b^\dagger \rangle$ zwischen Biexziton (Anfangszustand) und Grundzustand (Zielzustand) identifiziert. Formal klassifizieren wir die Raman-Korrelation als *Doublet-Größe*, und ihre Bewegungsgleichung wird gemäß Gl. (2.23) von der Triplet-Ordnung sein. Aus diesem Grund wollen wir alle Gleichungen auf der Triplet-Ebene schließen (SDT-Näherung), um die Raman-Dynamik aus formaler Sicht *exakt* zu beschreiben. Die Doublet-Korrelationen definieren sich nach dem rekursiven Faktorisierungsschema der Cluster-Entwicklung (siehe Abb. 2.3) explizit über

$$\begin{aligned} \langle b^\dagger b \rangle &= \langle b^\dagger \rangle \langle b \rangle + \langle\langle b^\dagger b \rangle\rangle = \langle\langle b^\dagger b \rangle\rangle, \\ \langle P_{i,j} b^\dagger \rangle &= \langle P_{i,j} \rangle \langle b^\dagger \rangle + \langle\langle P_{i,j} b^\dagger \rangle\rangle = \langle\langle P_{i,j} b^\dagger \rangle\rangle. \end{aligned} \quad (4.7)$$

Hier haben wir bereits unsere Annahme berücksichtigt, dass der Kontrolllaser aufgrund der zueinander orthogonalen optischen Polarisationen nicht unmittelbar an den resonanzgestützten Übergang koppeln kann. Dies bedeutet aber, dass die kohärenten Photonen-Singlets stets verschwinden, $\langle b^{(\dagger)} \rangle = 0$. Somit finden wir für die Triplets

$$\langle P_{i,j} b^\dagger b \rangle = \langle P_{i,j} \rangle \langle\langle b^\dagger b \rangle\rangle + \langle\langle P_{i,j} b^\dagger b \rangle\rangle \quad (4.8)$$

und für die Quadruplets

$$\begin{aligned} \langle P_{i,j} b^\dagger b b \rangle &= 2 \langle\langle P_{i,j} b \rangle\rangle \langle\langle b^\dagger b \rangle\rangle + \langle\langle P_{i,j} b^\dagger b b \rangle\rangle, \\ \langle P_{i,j} b^\dagger b^\dagger b \rangle &= 2 \langle\langle P_{i,j} b^\dagger \rangle\rangle \langle\langle b^\dagger b \rangle\rangle + \langle\langle P_{i,j} b^\dagger b^\dagger b \rangle\rangle. \end{aligned} \quad (4.9)$$

Hier werden wir in der SDT-Näherung die Quadruplets vernachlässigen. Den resultierenden geschlossenen Satz von je neun gekoppelten Bewegungsgleichungen für beide Systemklassen zeigen wir im Anhang B. In diesem Kapitel wollen wir lediglich die zum Verständnis und zur Entwicklung von geeigneten Kenngrößen nötigen Bewegungsgleichungen, insbesondere natürlich die der Raman-Korrelation, Gl. (4.6), explizit diskutieren.

4.2. Bewegungsgleichungen der Photonenemission

Zuallererst stellen wir die Bewegungsgleichung der Photonenpopulation $N^T \equiv \langle\langle b^\dagger b \rangle\rangle$ für ein System der Klasse $T = \Lambda$ oder V auf, welche wir kompakt notieren als

$$\frac{\partial}{\partial t} N^T = -\kappa N^T + \frac{2g}{\hbar} \text{Im} \Pi^T. \quad (4.10)$$

Die Gesamtemission ist im Rahmen unserer Beschreibung durch die photonenassistierte Polarisation Π^T des Zweiniveau-Untersystems, welches an den Resonator koppelt, gegeben. Sie ist natürlich formal identisch mit der Gleichung für ein Zweiniveausystem im Jaynes-Cummings-Modell [86]. Hier ist explizit $\Pi^\Lambda \equiv \langle\langle P_{3,2} b^\dagger \rangle\rangle$ und $\Pi^V \equiv \langle\langle P_{2,1} b^\dagger \rangle\rangle$. Erst auf Ebene der Bewegungsgleichung von Π wird die Ankopplung an das dritte Niveau durch den Laser auftreten. Für alle weiteren einzuführenden Größen wollen wir vereinbaren, dass wir die Systemklasse $T = \Lambda$ oder V stets im Exponenten einer Größe spezifizieren werden. Um Missverständnissen vorzubeugen, möchten wir ferner unsere Sprache präzisieren, indem wir für die jeweilige gesamte *Systemklasse* stets die Begrifflichkeiten Λ -artig und V -artig bzw. Λ -Klasse und V -Klasse verwenden werden. Behandeln wir jedoch einen gewählten *Repräsentanten* einer Klasse (Ξ_1 , Ξ_2 , Λ oder V), so sprechen wir von *Konfiguration*. So umfasst beispielsweise die Λ -Klasse sowohl die Λ -Konfiguration als auch die Ξ_1 -Konfiguration. Außerdem vereinbaren wir ein rotierendes Bezugssystem über die Frequenz des Kontrollasers: Die Einhüllende Q_{env} einer Größe Q sei fortan definiert durch

$$Q(t) = Q_{\text{env}}(t) e^{\pm i\omega_L t}, \quad (4.11)$$

wobei wir ebenso einheitlich festsetzen, dass in der Notation \pm oder \mp das obere Vorzeichen für die Λ - bzw. V -Konfiguration gelte und das untere für die Leiterkonfigurationen Ξ_1 bzw. Ξ_2 .

Wir beginnen mit der Betrachtung der Bewegungsgleichung der photonenassistierten Polarisation, welche für Λ -artige Systeme gegeben ist durch

$$\frac{\partial}{\partial t} \Pi^\Lambda = -i \left(\frac{\Delta_C}{\hbar} - i \frac{\kappa + \Gamma^\Lambda}{2} \right) \Pi^\Lambda - \frac{i\Omega_{\text{env}}}{\hbar} R_{\text{env}}^\Lambda + \frac{ig}{\hbar} n^\Lambda - \frac{ig}{\hbar} \sigma^\Lambda N^\Lambda - \frac{ig}{\hbar} \Sigma^\Lambda \quad (4.12)$$

und für V -artige Systeme durch

$$\frac{\partial}{\partial t} \Pi^V = -i \left(\frac{\Delta_C}{\hbar} - i \frac{\kappa + \Gamma^V}{2} \right) \Pi^V + \frac{i\Omega_{\text{env}}}{\hbar} R_{\text{env}}^V + \frac{ig}{\hbar} n^V - \frac{ig}{\hbar} \sigma^V N^V - \frac{ig}{\hbar} \Sigma^V \quad (4.13)$$

(siehe auch Gln. (B.2) und (B.12)). Beide Gleichungen weisen – bis auf Vorzeichen – gleichartige Quellterme auf: Der erste Term beschreibt den durch das Lichtfeld assistierten Raman-Prozess, der zweite ist durch die Besetzung des Zustandes gegeben, der spontan über den Resonator zerfallen kann, wobei wir $n^\Lambda \equiv \langle P_{2,2} \rangle$ und $n^V \equiv \langle P_{1,1} \rangle$ definiert haben. Der dritte Quellterm beschreibt die Rückkopplung der in die Resonatormode emittierten Photonenpopulation an das Material, genauer gesagt an die Inversion des jeweiligen Zweiniveau-Cavity-Teilsystems, $\sigma^\Lambda \equiv \langle \sigma_{3,2} \rangle$ bzw. $\sigma^V \equiv \langle \sigma_{2,1} \rangle$. Darüber hinaus finden wir noch eine Triplet-Quelle, $\Sigma^\Lambda \equiv \langle\langle \sigma_{3,2} b^\dagger b \rangle\rangle$ bzw. $\Sigma^V \equiv \langle\langle \sigma_{2,1} b^\dagger b \rangle\rangle$, welche eine Korrelation zwischen Photonenpopulation und elektronischen Besetzungen darstellt. Die Eigenfrequenz der photonenassistierten Polarisation ist durch die Cavity-Verstimmung Δ_C gegeben, gedämpft durch die Photonenverlustkonstante κ sowie durch die elektronische

4. Zweiphotonen-Raman-Prozesse in fundamentalen Dreiniveausystemen

Zerfallskonstante $\Gamma^\Lambda \equiv \Gamma_{3,2}$ bzw. $\Gamma^V \equiv \Gamma_{2,1}$. Letztere kann, wie oben bereits erwähnt, sowohl Polarisationszerfall als auch radiativen Zerfall enthalten. Wir werden auf die explizite Rolle der einzelnen Quellterme in der weiteren Diskussion eingehen.

Als Erstes wollen wir genauer die Dynamik der Raman-Korrelation untersuchen, um ein elementares Verständnis für den Zweiphotonen-Raman-Prozess zu gewinnen und die grundlegenden Unterschiede zwischen den beiden Systemklassen bereits auf Ebene der Bewegungsgleichungen zu erarbeiten.

4.2.1. Raman-Korrelationsgleichung

Wir betrachten nun also im Folgenden vergleichend die Dynamik der Raman-Korrelation, $R^T \equiv \langle\langle P_{3,1} b^\dagger \rangle\rangle$, für beide Systemklassen, $T = \Lambda$ und V , sowohl anhand der Bewegungsgleichungen als auch anhand erster numerischer Simulationen für eine monochromatische Testanregung.

Die Λ -artige Raman-Korrelationsdynamik im rotierenden Bezugssystem wird beschrieben durch die Bewegungsgleichung (siehe auch Gl. (B.3))

$$\frac{\partial}{\partial t} R_{\text{env}}^\Lambda = -i \left(\pm \frac{\Delta_L}{\hbar} - i \frac{\kappa + \Gamma_{3,1}}{2} \right) R_{\text{env}}^\Lambda - \frac{i\Omega_{\text{env}}}{\hbar} \Pi^\Lambda + \frac{ig}{\hbar} P_{\text{env}}^\Lambda (1 + N^\Lambda) + \frac{ig}{\hbar} C_{\text{env}}^\Lambda, \quad (4.14)$$

und die V -artige Raman-Korrelationsdynamik durch die Bewegungsgleichung (siehe auch Gl. (B.13))

$$\frac{\partial}{\partial t} R_{\text{env}}^V = -i \left(\pm \frac{\Delta_L}{\hbar} - i \frac{\kappa + \Gamma_{3,1}}{2} \right) R_{\text{env}}^V + \frac{i\Omega_{\text{env}}}{\hbar} \Pi^V - \frac{ig}{\hbar} P_{\text{env}}^V N^V - \frac{ig}{\hbar} C_{\text{env}}^V. \quad (4.15)$$

An dieser Stelle möchten wir noch einmal betonen, dass beide Raman-Gleichungen in SDT-Näherung formal *exakt* sind, da sie ja selber von der Triplet-Ordnung sind. Hierbei seien $P^\Lambda \equiv \langle P_{2,1} \rangle$ und $P^V \equiv \langle P_{3,2} \rangle$ die jeweiligen laserinduzierten elektronischen Polarisationen, weiterhin seien die Triplets $C^\Lambda \equiv \langle\langle P_{2,1} b^\dagger b \rangle\rangle$ und $C^V \equiv \langle\langle P_{3,2} b^\dagger b \rangle\rangle$. Insgesamt finden wir also drei fundamentale Quellterme für den Aufbau von Raman-Korrelation. Zum einen kann durch das Einschalten eines geeigneten Lichtfeldes offenbar jegliche Art von photonenassistierter Polarisation Π wegen $\Omega_{\text{env}} \Pi$ zum Aufbau von Raman-Korrelation genutzt werden. Diese Eigenschaft ist in beiden Systemklassen formal identisch. Zum anderen finden wir jeweils polarisationsgetriebene Quellterme. Hier bemerken wir allerdings einen physikalischen Unterschied: In V -artigen Systemen kann die Polarisation ausschließlich über die Rückkopplung mit der Emission wechselwirken, $P_{\text{env}}^V N^V$, was ja eine nichtlineare Singlet-Doublet-Kopplung ist. Im Gegensatz dazu finden wir in Λ -artigen Systemen, dass die Polarisation durch $P_{\text{env}}^\Lambda (1 + N^\Lambda)$ nicht nur auf Doublet-Ebene rückkoppelt, sondern selber als eigenständiger Singlet-Quellterm auftritt. Die Triplet-Quelle C wiederum ist in beiden Systemen formal identisch.

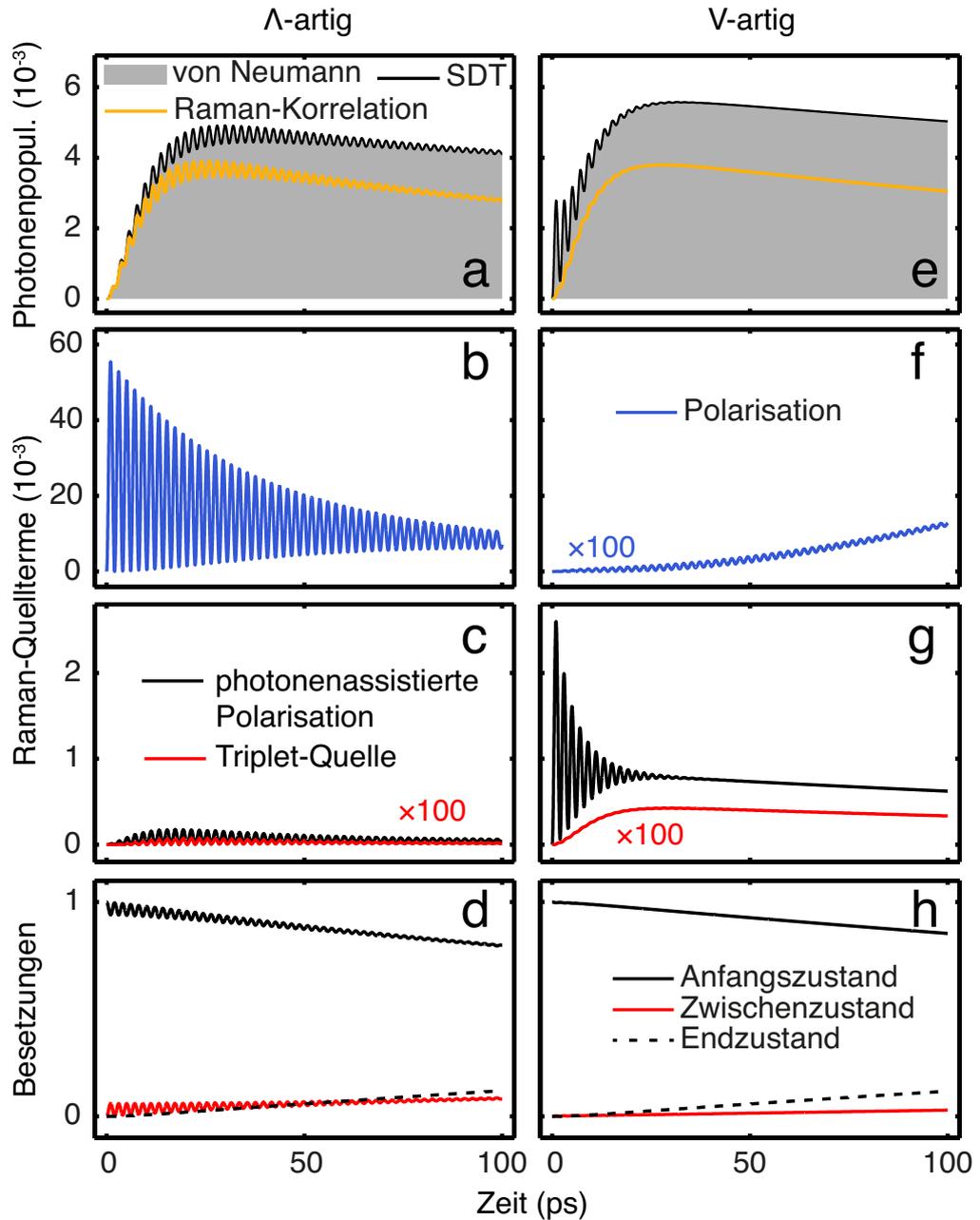


Abbildung 4.2.: Analyse der Raman-Gleichung unter CW-Anregung. Wir zeigen (a-d) für die Λ - und (e-h) für die V-Klasse die Emissionsdynamik unter Anregung eines bei $t = 0$ eingeschalteten CW-Kontrolllasers mit $\Omega_0 = 0.25$ meV. Wir zeigen (a,e) die volle Von-Neumann-Lösung (graue Fläche), die SDT-Lösung (schwarze Linie) und die Raman-Korrelation $|R|^2$ (gelbe Linie). Weiterhin sind die Raman-Quellterme dargestellt (teils mit Faktor 100 skaliert), (b,f) die elektronische Polarisation $|P|^2$ (blaue Linie), (c,g) die photonenassistierte Polarisation $|I|^2$ (schwarze Linie) zusammen mit dem Triplet-Term $|C|^2$ (rote Linie). (d,h) Ferner zeigen wir die Dynamik der elektronischen Besetzungen $\langle P_{1,1} \rangle$ (schwarze Linie), $\langle P_{2,2} \rangle$ (rote Linie) und $\langle P_{3,3} \rangle$ (schwarze gestrichelte Linie). Die gewählten Parameter sind $\hbar\kappa = 186$ μ eV, $\Delta_C = 2$ meV, $g = 57$ μ eV, $\hbar\Gamma_{i,j} = 30$ μ eV und nach Gl. (4.16) $\Delta_L = \Delta_L^{\text{CW}} = \pm 0.031$ meV. Die Wahl der Materialparameter orientiert sich an Ref. [54].

Um erste Einblicke in die systemspezifische Raman-Dynamik zu erhalten und die Rolle der identifizierten Quellterme genauer zu verstehen, wollen wir zunächst eine Testanre-

4. Zweiphotonen-Raman-Prozesse in fundamentalen Dreiniveausystemen

gung durch ein monochromatisches Lichtfeld $\Omega_{\text{env}}(t) = \Omega_0$ (CW-Anregung) betrachten. Im Limes quasistationärer Anregung können wir nämlich Gln. (4.14) und (4.15) analytisch lösen (siehe Anhang B.2.1). Insbesondere finden wir unter Annahme einer mit den elektronischen Zuständen nichtresonanten Cavity und eines nichtresonanten Lasers sowie unter Annahme gängiger Materialparameter einen für beide Systemklassen einheitlichen Ausdruck für die Optimalverstimmung des Kontrolllasers, nämlich

$$\Delta_L^{\text{CW}} = \pm \frac{\Delta_C \Omega_0^2}{\Delta_C^2 + \left(\hbar \frac{\kappa + \Gamma_{3,2[2,1]}}{2} \right)^2}, \quad (4.16)$$

für Λ [V]-artige Dreiniveausysteme. Wie auch schon in früheren Arbeiten zu verwandten Situationen beobachtet [116], entscheidet also das Vorzeichen von Δ_C , ob der Kontrolllaser eine Rot- oder Blauverschiebung der Energien induziert, was man sich auch relativ leicht an unseren Skizzen, Abb. 4.1, veranschaulichen kann.

Abbildung 4.2 zeigt die Anregungsdynamik unseres CW-Testszenarios unter Λ -artiger Ankopplung (a-d) im Vergleich mit V-artiger Ankopplung (e-h). Explizit diskutieren wir die Photonenemissionsdynamik, die Dynamik der Raman-Korrelation und ihrer Quellterme sowie die resultierende Dynamik der drei elektronischen Besetzungen. Zunächst einmal stellen wir fest, dass in (a,e) unsere SDT-Lösung für die Populationsdynamik $N(t)$ (schwarze Linie) eine hervorragende Übereinstimmung mit der vollen Lösung der Von-Neumann-Gleichung, Gl. (2.16), (graue Fläche) aufweist. Zum Vergleich zeigen wir die zeitliche Entwicklung der Raman-Korrelation $|R|^2$, die sich sofort mit Einschalten des Lasers bei $t = 0$ aufzubauen beginnt. Im Λ -artigen Fall finden wir ausgeprägte Oszillationen über den gesamten zeitlichen Verlauf von N und $|R|^2$. Im V-artigen Fall beobachten wir eine signifikante Emission, auch bevor sich die Raman-Korrelation etabliert, was natürlich daraus resultiert, dass der vollständig besetzte Anfangszustand spontan – also inkohärent – über die an ihn koppelnde Cavity zerfallen kann. Dies führt auch zu einer größeren Photonenpopulation. Nichtsdestotrotz wirken beide Systeme auf den ersten Blick in ihrem Emissionsverhalten recht ähnlich. Das Potential für erheblichere Unterschiede unter anderen Anregungsbedingungen als den hier herausgegriffenen erkennen wir erst deutlich in den Quelltermen der Raman-Korrelation. Wie oben anhand von Gln. (4.14) und (4.15) geschildert, sehen wir nun, dass der Laser in der Λ -Klasse instantan *kohärente* elektronische Polarisation zwischen Anfangs- und Zwischenzustand induziert (blaue Linie), im weiteren zeitlichen Verlauf dann zunächst photonenassistierte Polarisation (schwarze Linie) und schließlich auch Triplet-Emission (rote Linie) generiert (b,c). Zwischen Anfangs- und Zwischenzustand beobachten wir deshalb auch schwache Rabi-Oszillationen (d). Im Gegensatz dazu ist der erste in der V-Klasse verfügbare Quellterm der Raman-Korrelation die zunächst *inkohärente* photonenassistierte Polarisation des spontan über die Cavity zerfallenden Anfangszustandes, danach wird erst Triplet-Emission und abschließend elektronische Polarisation induziert (f,g) – elektronische Polarisation kann schließlich erst mit beginnender Besetzung des Zwischenzustandes aufgebaut werden. Die Besetzungsentwicklung der elektronischen Zustände zeigt kein oszillatorisches Verhalten (h). Maßgeblich werden die physikalisch völlig unterschiedliche Ankopplung der Polarisation an den

Raman-Prozess sowie der Unterschied zwischen kohärenten und inkohärenten Anfangsbedingungen entscheidende Unterschiede in der Steuerung der Einzelphotonenemission durch den Kontrolllaser in den beiden Systemklassen verursachen.

Unsere Beobachtungen können wir noch durch weitere analytische Untersuchung der Raman-Korrelation ergänzen. Wir finden nämlich (siehe ebenfalls Anhang B.2.1) für die Λ -artige Raman-Korrelation das Skalierungsverhalten

$$|R_{\text{CW}}^{\Lambda}|^2 \propto \frac{g^2 \Omega_0^2}{(\Delta_C \mp \Delta_L)^2 + \left(\hbar \frac{\Gamma_{2,1}}{2}\right)^2} \quad (4.17)$$

und für die V-artige

$$|R_{\text{CW}}^{\text{V}}|^2 \propto \frac{g^2 \Omega_0^2}{\Delta_C^2 + \left(\hbar \frac{\kappa + \Gamma_{2,1}}{2}\right)^2}. \quad (4.18)$$

Offensichtlich birgt Gl. (4.17) eine weitere Resonanzbedingung für Δ_L , welche aus der systemspezifischen P^{Λ} -Kopplung in Gl. (4.14) resultiert. Wenn $\Delta_C \mp \Delta_L = 0$ erfüllt ist, wird der Kontrolllaser exakt resonant mit den elektronischen Zuständen 1 und 2. Da die Wahl von Δ_L explizit von Ω_0 abhängt, erwarten wir hier ein nichtstetiges Verhalten der Systememission in Abhängigkeit von der Anregungsintensität. Diese Eigenschaft finden wir für $|R_{\text{CW}}^{\text{V}}|^2$ in Gl. (4.18) nicht.

Wir können also unsere im Zusammenhang mit Abb. 4.2 gemachten Beobachtungen auch alternativ formulieren: Die beiden Systemklassen unterscheiden sich physikalisch erheblich in ihrer Abhängigkeit von den anregungsinduzierten Energieverschiebungen. Diese Feststellung unterscheidet unsere Analyse des Zweiphotonen-Raman-Prozesses und geht über die Beschreibung und Erkenntnisse anderer Arbeiten hinaus, in denen das Auftreten von Stark-Verschiebungen oftmals vernachlässigt oder unterschätzt worden ist [46, 52, 60, 117].

An dieser Stelle kehren wir zurück zur Analyse der Quellterme der Photonenpopulation, welche sich aus den Gleichungen der photonenassistierten Polarisation, Gln. (4.12) und (4.13), erschließen lassen. Dies wird uns erlauben eine Zerlegung der Gesamtemission in alle Anregungspfade in unseren Dreiniveausystemen vorzunehmen. Insbesondere können wir auf diese Weise innerhalb unseres Formalismus eine *exakte* und *eindeutige* Definition von *Raman-Population* über den Raman-Pfad selbst etablieren.

4.2.2. Emissionszerlegung und Raman-Population

Um unsere angestrebte Emissionszerlegung kompakt notieren zu können, führen wir eine vereinheitlichende Notation für die in Gln. (4.12) und (4.13) auftretenden Quellterme, ν_q^T , ein, die wir für ein System vom Typus T nach Quellen q ordnen wollen. Wir identifizieren

$$\nu_{\text{R}}^{\text{V}[\Lambda]} \equiv [-] \Omega_{\text{env}} R_{\text{env}}^{\text{V}[\Lambda]}, \quad \nu_{\text{E}}^T \equiv g n^T, \quad \nu_{\text{C}}^T \equiv -\sigma^T N^T, \quad \nu_{\text{D}}^T \equiv -g \Sigma^T. \quad (4.19)$$

Der erste Term korrespondiert mit dem ausschließlich durch die Raman-Korrelation vermittelten Zweiphotonenpfad $1 \xrightarrow{\Omega^{(*)} b^\dagger} 3$ ($q = \text{R}$). Der zweite Term ist eine rein elektronische Quelle, deren Emission aus der Besetzung des durch die Cavity zerfallenden elektronischen Zustandes resultiert ($q = \text{E}$). Im Λ -artigen Fall entspricht dies dem indirekten Pfad

4. Zweiphotonen-Raman-Prozesse in fundamentalen Dreiniveausystemen

$1 \xrightarrow{\Omega^{(*)}} 2 \xrightarrow{b^\dagger} 3$, welcher explizit die Besetzung des Zwischenzustandes durch den Kontrolllaser involviert. Die letzten beiden Quellen bezeichnen wir mit $q = C$ (Rückkopplung mit der Cavity-Population) und mit $q = D$ (dichtartige Triplet-Korrelation).

Durch formale Integration der Gln. (4.12) und (4.13) und durch Einsetzen in die ebenso formal integrierte Populationsgleichung Gl. (4.10) erreichen wir eine Zerlegung der gesamten emittierten Photonenpopulation in ihre physikalischen Ursprünge [104]. Mit unseren oben eingeführten Quelltermen finden wir schlussendlich die Zerlegung

$$N^T(t) = \text{Im} \frac{2ig}{\hbar^2} \int_0^t dt' \int_0^{t'} dt'' e^{-\kappa(t-t')} e^{-i\omega^T(t'-t'')} \sum_{q=R,E,C,D} v_q^T(t'') \equiv \sum_q N_q^T(t), \quad (4.20)$$

wobei wir die Eigenfrequenz der photonenassistierten Polarisation mit

$$\omega^T \equiv \frac{\Delta_C}{\hbar} - i \frac{\kappa + \Gamma^T}{2} \quad (4.21)$$

abgekürzt haben. Insbesondere identifizieren wir die im Rahmen der Cluster-Entwicklung *exakte* Definition der *Raman-Population*

$$N_R^{V[\Lambda]}(t) = \text{Im} \frac{[-]2ig}{\hbar^2} \int_0^t dt' \int_0^{t'} dt'' e^{-\kappa(t-t')} e^{-i\omega^{V[\Lambda]}(t'-t'')} \Omega_{\text{env}}(t'') R_{\text{env}}^{V[\Lambda]}(t'') \quad (4.22)$$

für ein V-artiges [Λ -artiges] System. Diese Definition kann natürlich auch mit der vollen Lösung der Von-Neumann-Gleichung Gl. (2.16) ausgewertet werden (siehe Anhang B.1.3). Wir möchten bereits an dieser Stelle eindrücklich darauf hinweisen, dass einzelne Populationsbeiträge N_q , so auch die Raman-Population N_R , *negativ* werden können, wohingegen die *physikalische* Gesamtpopulation $\sum_q N_q$ natürlich stets positiv definit ist. Diesen Umstand werden wir im Folgenden im Zusammenhang mit der Emissionswahrscheinlichkeit noch detaillierter besprechen. Wir werden feststellen, dass unsere Beschreibung es zulässt Kenngrößen zu entwickeln, anhand derer wir ablesen können, ob ein Raman-Photon emittiert wird oder ob der Zweiphotonenpfad zu destruktiver Interferenz mit anderen Anregungspfaden (*Quanteninterferenz* [92–96]) führt.

Nun wollen wir zunächst anhand eines Beispiels unsere Zerlegung Gl. (4.20) und die vorausgegangenen Überlegungen veranschaulichen. Dazu zeigen wir in Abb. 4.3 zwei exemplarische Anregungsszenarien, und zwar eine Anregung mit einem Gauß-Puls der Amplitude $\Omega_0 = 0.7$ meV [Abbn. 4.3a-4.3c] und im Vergleich dazu eine Rechteckanregung derselben Pulsfläche $\theta = 5\pi$ ($\Omega_0 = 0.281$ meV) [Abbn. 4.3d-4.3f]. In Konsistenz mit unseren RWA-Hamilton-Operatoren ist die physikalische Pulsfläche gegeben durch

$$\theta = \frac{2}{\hbar} \int_0^\infty dt \Omega_{\text{env}}(t). \quad (4.23)$$

Ferner definieren wir den Gauß-Puls als

$$\Omega_{\text{env}}(t) = \Omega_0 e^{-\frac{(t-t_0)^2}{2\Delta t^2}}, \quad (4.24)$$

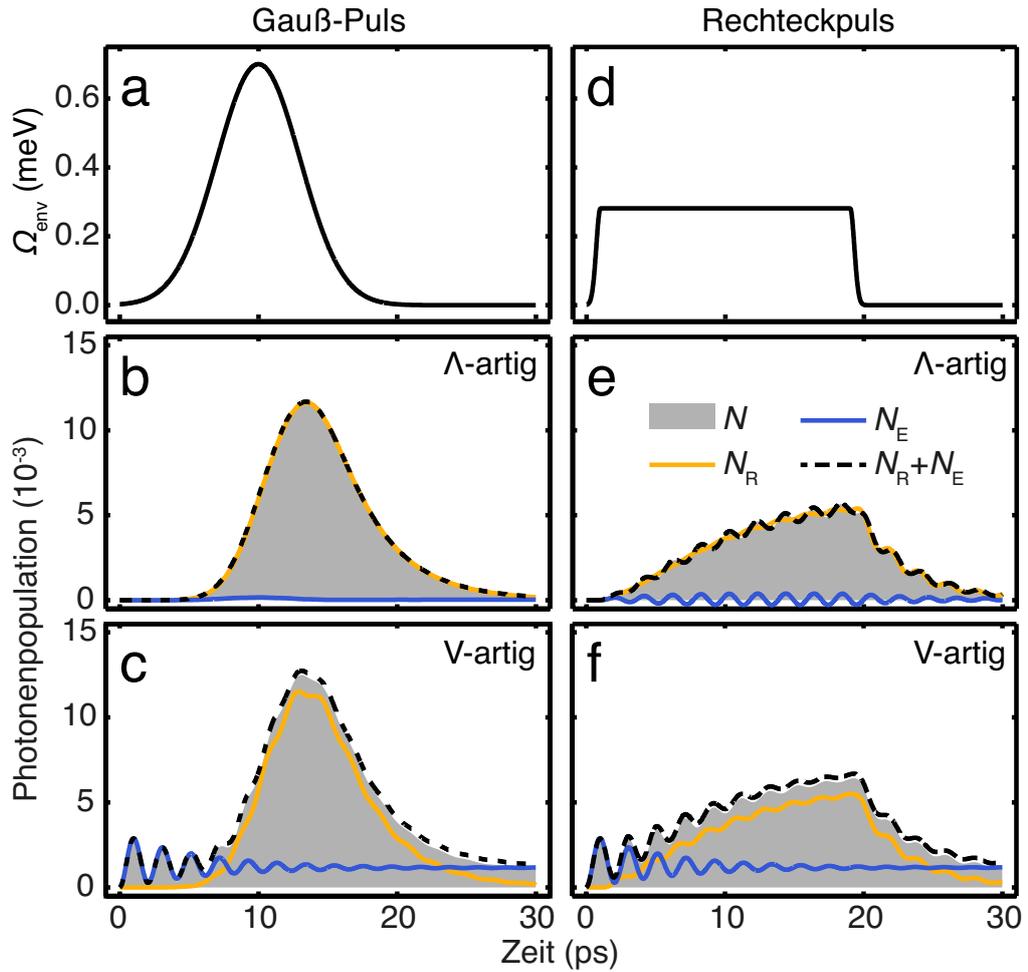


Abbildung 4.3.: Zerlegung der Emission. Gezeigt ist die Einhüllende Ω_{env} (a) des Gauß- und (d) des Rechteckpulses (schwarze durchgezogene Linie) zusammen mit der resultierenden Populationsdynamik in SDT-Näherung für (b,e) ein Λ -artiges und (c,f) ein V -artiges System. Dargestellt ist jeweils die volle Emission N (graue Fläche), die Raman-Population N_R (gelbe Linie), die elektronische Emission N_E (blaue Linie) und deren Summe $N_R + N_E$ (schwarze gestrichelte Linie). Die Systemparameter sind identisch mit denen von Abb. 4.2. Die Optimalverstimnungen sind $\Delta_L^{\text{opt}} = \pm 0.15$ meV (Gauß-Puls) und $\Delta_L^{\text{opt}} = \pm 0.039$ meV (Rechteckpuls). Die Breite des Gauß-Pulses beträgt $\Delta t = 3$ ps.

wobei Ω_0 die Amplitude, t_0 das Zentrum und Δt die Breite des Pulses seien. Den Rechteckpuls modellieren wir mit Gaußschen Ein- und Ausschaltcharakteristiken der Breite $\Delta t = 0.3$ ps.

Die beiden Pulse haben wir sorgfältig aufeinander abgestimmt unter der Maßgabe, dass die resultierende Raman-Emission (gelbe Linien) stets im selben Zeitfenster von 30 ps vollständig emittiert sein möge. Die unterschiedliche spektrale Breite allein – der Rechteckpuls ist natürlich spektral schmäler als der Gauß-Puls – wird keine Relevanz für die induzierte Raman-Charakteristik haben. Vielmehr werden wir feststellen, dass die Raman-Emissionswahrscheinlichkeit in einer nichttrivialen Abhängigkeit von der *Kombination* der Anregungsparameter – Intensität, Bandbreite, Frequenz, Pulsform, Cavity-Verstimmung – steht. Denn diese Kombination ist explizit verantwortlich für die resultierenden Stark-Verschiebungen, die – wie wir bereits zuvor anhand von Gln. (4.17) und (4.18) diskutiert hatten – bei Anregungen nahe der elektronischen Resonanzen, was

4. Zweiphotonen-Raman-Prozesse in fundamentalen Dreiniveausystemen

für die Steigerung der Raman-Wahrscheinlichkeit nötig sein wird, das ausschlaggebende physikalische Charakteristikum für die Raman-Emission sein wird. Wir werden ferner im Laufe dieses Kapitels erkennen, dass dieser Sachverhalt zudem auch eine Konsequenz von Interferenzeffekten ist.

Wie in Abb. 4.2 bleiben wir im Limes nichtresonanter Anregungsbedingungen und behalten die physikalischen Parameter zunächst bei. In Λ -artigen Systemen [Abbn. 4.3b und 4.3e], erkennen wir, dass die volle Emission (graue Fläche) nahezu vollständig aus dem Raman-Prozess resultiert (gelbe Linie). Der rein elektronische Anteil (blaue Linie) liefert kaum einen Beitrag. In V-artigen Systemen beobachten wir hingegen zunächst die inkohärente Emission N_E , bevor der Kontrolllaser Raman-Population aufbauen kann [Abbn. 4.3c und 4.3f]. Anhand der Summe von Raman- und elektronischer Population (schwarze gestrichelte Linie) erkennen wir, dass diese beiden Beiträge die relevanten Hauptquellen der gesamten Photonenemission darstellen. Unsere Zerlegung liefert also einen intuitiven und eindeutigen Einblick in die Zusammensetzung der Gesamtemission – sie wird der Ausgangspunkt sein für systematische Untersuchungen über den gesamten möglichen Parameterbereich der Systemgrößen, wie z.B. θ , Δ_L oder Δ_C . Wir haben hier die Rechteckanregung eingeführt, da sie einen sehr guten Vergleich mit unseren CW-Näherungen erlauben wird, obwohl wir offensichtlich eine nichtstationäre Anregungsdynamik beobachten. Auf diese Weise werden wir mit unseren relativ einfachen analytischen Zusammenhängen ein tiefgreifendes Verständnis der Emissionscharakteristika auch für nichtstationäre Anregungen erreichen. In Abb. 4.3e bemerken wir, dass die elektronische Population um die Nulllinie oszilliert, an diesem Punkt können wir aber noch keine Aussage darüber machen, was dies für das emittierte Photon bedeutet. Ferner wollen wir das Emissionsverhalten der beiden Anregungsszenarien auch quantitativ vergleichen können.

Aus diesem Grund werden wir von nun an die *Emissionswahrscheinlichkeit* als aussagekräftige und vergleichbare Kenngröße der beiden Systemklassen betrachten. Dies wird auch eine eindeutige Klassifizierung von Quanteninterferenz zulassen.

4.3. Analyse der Emissionswahrscheinlichkeit

Im Rahmen unseres Lindblad-Formalismus ist die im Zeitintervall $[0, t]$ emittierte Photonenanzahl für ein System der T -Klasse gegeben durch

$$\mathcal{P}^T(t) = \kappa \int_0^t dt' N^T(t'). \quad (4.25)$$

Aufgrund unserer Anfangs- und Anregungsbedingungen gilt unmittelbar $\mathcal{P} \in [0, 1]$. Denn neben einem leeren Resonator bei $t = 0$ wollen wir ferner annehmen, dass innerhalb der Lebensdauer $1/\kappa$ der Photonen im Resonator kein geschlossener Zyklus $1 \rightarrow 3 \rightarrow 1$ zwischen Anfangs- und Endzustand möglich ist. Zum Beispiel ist in Quantenpunkt- Λ -Konfigurationen die Spindephasierungszeit zwischen den beiden metastabilen Grundzuständen typischerweise auf deutlich längeren Zeitskalen angesiedelt als die Photonenlebensdauer [53, 54]. Kurzum, wir können $\mathcal{P} = 1$ unmittelbar als eine *Emissionswahrscheinlichkeit* von 100% auffassen, sodass $0\% \leq \mathcal{P} \leq 100\%$ gilt. Wir können nun die

Zerlegung der Gesamtpopulation, Gl. (4.20), direkt auf unsere in Gl. (4.25) definierte Emissionswahrscheinlichkeit anwenden. Dies ergibt

$$\mathcal{P}^T(t) = \sum_{q=R,E,C,D} \kappa \int_0^t dt' N_q^T(t') \equiv \sum_q \mathcal{P}_q^T(t), \quad (4.26)$$

wobei wir insbesondere die *Raman-Emissionswahrscheinlichkeit*, welche explizit im Zusammenhang mit Gl. (4.22) gegeben ist durch

$$\mathcal{P}_R^T(t) = \kappa \int_0^t dt' N_R^T(t'), \quad (4.27)$$

hervorheben wollen. Diese Größe kann fortan als universelle und *eindeutige* Kenngröße für die *Optimierung* der Raman-Emission genutzt werden. Wir können also als *numerisch* zugängliche Bedingung für die *optimale Kontrolllaserverstimmung* Δ_L^{opt} für eine gewählte Resonatorverstimmung Δ_C nun fordern, dass die Raman-Wahrscheinlichkeit, Gl. (4.27), in einem gewählten Zeitfenster unter Durchstimmen der Laserverstimmung Δ_L maximal werde,

$$\Delta_L^{\text{opt}} = \Delta_L|_{\max(\mathcal{P}_R)}. \quad (4.28)$$

Dieses Optimierungskriterium ist ein *zentrales Ergebnis* dieser Arbeit: Es berücksichtigt intrinsisch sowohl auftretende Interferenzeffekte als auch die Korrektur von anregungsinduzierten Stark-Verschiebungen und geht damit deutlich über den Gültigkeitsbereich von Ansätzen hinaus, die lediglich die Besetzung des Zielzustandes als Kennzahl der Raman-Emission verwenden [45, 60]. Unser Kriterium wird in Zukunft somit die vollautomatisierte Optimierung des Systemdesigns von auf Raman-Emission basierenden Einzelphotonenquellen zulassen. Zudem kann es auch auf Konfigurationen mit mehr als drei elektronischen Zuständen erweitert sowie über die Hinzunahme zusätzlicher Randbedingungen spezifiziert werden.

In diesem Zusammenhang kommen wir zurück auf unsere bereits getätigte Anmerkung, dass einzelne Populationsbeiträge unserer Entwicklung negativ werden können. Dies überträgt sich natürlich auch direkt auf unsere Zerlegung der Emissionswahrscheinlichkeit in Gl. (4.26), deren einzelne Beiträge \mathcal{P}_q negativ oder größer als 100% werden können. Somit verstehen wir \mathcal{P}_q als eine *verallgemeinerte* Emissionswahrscheinlichkeit: Sie ist eine *physikalische* Wahrscheinlichkeit, wenn für alle Beiträge q gilt $0\% \leq \mathcal{P}_q \leq 100\%$. Im Rahmen unserer Arbeit sind wir maßgeblich an dem Fall interessiert, dass auf der Zeitskala der Raman-Emission $\mathcal{P}^T \approx \mathcal{P}_R^T \rightarrow 100\%$ gelte, was einer möglichst reinen Raman-Photonenquelle im *On-Demand-Limes* entspräche.

4. Zweiphotonen-Raman-Prozesse in fundamentalen Dreiniveausystemen

	Gauß-Puls	Rechteckpuls
\mathcal{P}_R^Λ	2.85%	2.20%
\mathcal{P}_E^Λ	0.04%	0.04%
\mathcal{P}_R^V	2.82%	2.25%
\mathcal{P}_E^V	1.04%	1.04%

Tabelle 4.1.: Emissionswahrscheinlichkeiten zu Abb. 4.3. Mit Gl. (4.26) berechnen wir die Emissionswahrscheinlichkeiten \mathcal{P}_q^T ($t = 30$ ps) der in Abbn. 4.3b und 4.3c (Gauß-Puls, linke Tabellenspalte) sowie in Abbn. 4.3e und 4.3f (Rechteckpuls, rechte Tabellenspalte) gezeigten Populationen N_R und N_E .

Wir wenden als erste Veranschaulichung unsere Definition Gl. (4.26) auf die in Abb. 4.3 gezeigten Populationsbeiträge an und berechnen jeweils die Wahrscheinlichkeiten \mathcal{P}_q^T des Raman- und des elektronischen Beitrages. Die Werte sind in Tabelle 4.1 zusammengestellt und analog zur Abbildungsanordnung von Abb. 4.3 in vier Blöcken arrangiert. Wir finden Raman-Wahrscheinlichkeiten von 2–3%. Insbesondere stellen wir fest, dass die partiell negative elektronische Population in Abb. 4.3e zu einer insgesamt positiven Emissionswahrscheinlichkeit führt – hier spielt destruktive Quanteninterferenz also im zeitlichen Mittel keine Rolle. Wir bemerken aber auch, dass die Emissionswahrscheinlichkeit nicht nur von der Pulsfläche θ abhängt sondern auch von der Pulsform, was wir im Folgenden noch genauer untersuchen werden. Insgesamt zeigt unsere Tabelle deutlich, dass unter den für unser Beispiel gewählten Bedingungen offensichtlich kein Raman-Photon auf Abfrage erzeugt wird, da wir weit entfernt sind von der On-Demand-Schwelle von 67%, welche eine Mindestanforderung für Netzwerke der Quantenkommunikation darstellt [18,20,21].

Aus diesem Grund werden wir uns nun der systematischen und vergleichenden Analyse der beiden Systemklassen zuwenden. Um fundamentale Unterschiede in der Licht-Materie-Wechselwirkung des Raman-Prozesses zu erschließen, werden wir für alle Systemkonfigurationen einheitliche Verlustbedingungen definieren. Dies schließt – wie bereits oben erläutert – vor diesem Hintergrund die Berücksichtigung von strahlendem Zerfall der Besetzungen aus, weil er Individuell von der Konfiguration des betrachteten Systems – Ξ , Λ oder V – abhängt. Da aber die Raman-Gleichungen, Gln. (4.14) und (4.15), nicht explizit an die Besetzungen koppeln, sondern nur über die Anpassung der elektronischen Dephasierungskonstante $\Gamma_{3,1}$ durch strahlende Verluste modifiziert werden, wird sich in unserem Formalismus der physikalische Mechanismus des Raman-Prozesses selbst nicht ändern. Der Zerfall der Besetzungen reduziert lediglich die Quantenausbeute. Dieser Beitrag kann also jederzeit bei der individuellen Analyse experimenteller Daten berücksichtigt werde, ist aber für unseren Fundamentalvergleich nicht relevant. Insbesondere ist dies der Fall, wenn die Zeitskala des Anregungszyklus klein ist gegen die Lebensdauer der Besetzungen. Im Anhang B.1.4 gehen wir genauer auf die expliziten Beiträge des strahlenden Zerfalls ein.

Als Erstes werden wir mithilfe unserer Emissionszerlegung Emissionskarten für die Gesamtemission, den Raman-Anteil und den elektronischen Anteil erstellen, indem wir für eine vorgegebene Anregung die Emissionswahrscheinlichkeiten in Abhängigkeit von Cavity- und Laserverstimmung auftragen. Diese Darstellung wird die Abgrenzung zwischen der Emission eines einzelnen Raman-Photons und der durch den Raman-Prozess induzierbaren destruktiven Quanteninterferenz visualisieren.

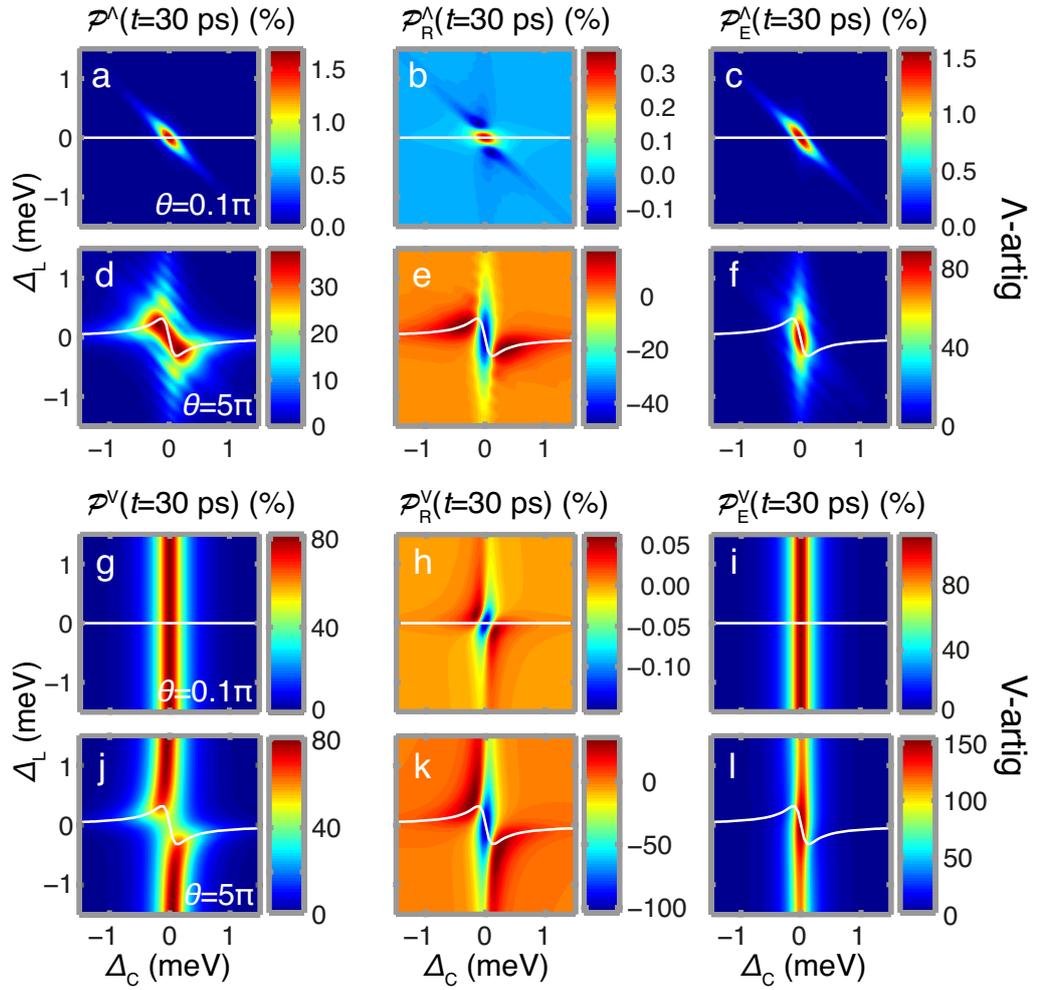


Abbildung 4.4.: Emissionskarten in Abhängigkeit von Cavity- und Laserverstimmung. Wir zeigen die Emissionswahrscheinlichkeiten für ein Λ -artiges System (a-f) sowie für ein V-artiges System (g-l). Die linke Spalte zeigt die Gesamtemission $\mathcal{P}^T(t = 30 \text{ ps})$ zusammen mit dem zugehörigen Raman-Anteil \mathcal{P}_R^T (mittlere Spalte) und dem rein elektronischen Beitrag \mathcal{P}_E^T (rechte Spalte) für die in Abb. 4.3 eingeführte Rechteckanregung. Die erste Reihe der beiden Blöcke zeigt jeweils den Fall schwacher Anregung durch einen 0.1π -Puls, die zweite jeweils den Fall starker Anregung (5π -Puls). Vergleichend dargestellt ist die stationäre Optimalkehlenslinie, Gl. (4.16), durch die weißen Linien. Hier sind die Emissionskarten für die Ξ -Konfigurationen präsentiert. Sie gehen in den Fall der entsprechenden Λ - bzw. V-Konfiguration durch Spiegelung an der $\Delta_L=0$ -Achse über. Die gewählten Parameter stimmen mit denen in Abb. 4.3 überein.

4.3.1. Emissionskarten: Raman-Photon vs. Quanteninterferenz

Von nun an können wir ausnutzen, dass wir mit der Definition der Raman-Emissionswahrscheinlichkeit, Gl. (4.27), ein Kriterium geschaffen haben, welches das Emissionsverhalten des betrachteten Systems unmittelbar auf eine einzige Kennzahl abbildet. Vor diesem Hintergrund werden wir die in Tabelle 4.1 für einen herausgegriffenen Fall (Δ_C, Δ_L) berechneten Daten nun systematisch für einen weiten Parameterbereich in Form von Emissionskarten darstellen.

Ein Beispiel dieser Darstellung präsentieren wir in Abb. 4.4 vor. Um einen repräsentativen Einblick in das Emissionsverhalten der beiden Systemklassen, Λ -artig (oberer Block)

4. Zweiphotonen-Raman-Prozesse in fundamentalen Dreiniveausystemen

und V-artig (unterer Block) zu erhalten, wählen wir nun ein Szenario schwacher Anregung $\theta = 0.1\pi$ [Abbn. 4.4a-4.4c und 4.4g-4.4i] und eines starker Anregung $\theta = 5\pi$ [Abbn. 4.4d-4.4f und 4.4j-4.4l] aus, und berechnen die Karten der Gesamtemission \mathcal{P} (erste Spalte), der Raman-Emission \mathcal{P}_R (zweite Spalte) und der elektronischen Emission \mathcal{P}_E (dritte Spalte). Denn wir finden hier $\mathcal{P} \approx \mathcal{P}_R + \mathcal{P}_E$. Um ein tieferes physikalisches Verständnis mithilfe unserer CW-Analytik zu ermöglichen, haben wir für unser Beispiel den Rechteckpuls gewählt, der ein Hybridszenario zwischen gepulster und stationärer Anregung darstellt. Unsere CW-Optimalkennlinie Gl. (4.16) haben wir jeweils als weiße Linien zum Vergleich eingezeichnet. Qualitativ sehen die Karten der Gauß-Pulsanregung für die gewählten Parameter gleich aus, und wir beschränken uns daher zur Erarbeitung der Raman-Charakteristika auf die Betrachtung der Emissionskarten der Rechteckanregung. Stattdessen werden wir wieder beide Pulse im Zusammenhang mit Input-Output-Kennlinien im nächstfolgenden Kapitelabschnitt diskutieren.

Wir widmen uns zunächst dem Limes schwacher Anregung, hier sind Stark-Verschiebungen der Optimalverstimmung des Kontrolllasers anhand der weißen Linie kaum sichtbar. Augenfällig ist sofort, dass die zugehörigen Emissionskarten für alle Beiträge vollkommen unterschiedliche Erscheinungsbilder aufweisen. Fokussieren wir uns als Erstes auf die Raman-Karten [Abbn. 4.4b und 4.4h], bemerken wir insbesondere, dass im Bereich $\Delta_L = \Delta_C \approx 0$ – wo sowohl Cavity als auch Laser resonant mit den jeweiligen elektronischen Übergängen werden –, in der Λ -Klasse eine kleine Wahrscheinlichkeit ($< 0.4\%$) besteht, ein Raman-Photon zu emittieren. Hingegen finden wir im V-artigen Fall, dass dieser Bereich der Raman-Karte strikt negativ ist, also ausschließlich *destruktive Interferenz* vorliegt – es wird *kein* Raman-Photon emittiert. Hier vermindert der Aufbau von Raman-Korrelation lediglich die Hintergrundemission des inkohärent über den Resonator zerfallenden Anfangszustandes. Dies wird in Abb. 4.4i als senkrechter Streifen entlang $\Delta_C = 0$ sichtbar, der auch die Gesamtemission dominiert [Abb. 4.4g]. Unter Λ -artiger Raman-Kopplung machen wir hingegen die ganz zu Anfang des Kapitels in Gl. (4.17) aufgedeckte Λ -klassenspezifische Resonanzlinie $\Delta_C \mp \Delta_L = 0$ als Orientierung der Emissionsmuster aus. Entlang dieser Linie wird offenbar die elektronische Emission aus dem Zwischenzustand begünstigt [Abb. 4.4c] – hier wird der Laser ja resonant mit dem Übergang $1 \leftrightarrow 2$ – und dominiert ebenfalls die Gesamtemission [Abb. 4.4a]. In der Raman-Karte finden wir entlang derselben Orientierung – außerhalb des resonanten Raman-Prozesses im Zentrum der Karte – verstärkte destruktive Interferenz, ebenso entlang $\Delta_C = 0$. Die V-Klasse zeigt *keinerlei* Abhängigkeit von der Resonanz des Lasers mit $2 \leftrightarrow 3$, was aus der bereits diskutierten unterschiedlichen Ankopplung der laserinduzierten Polarisation an den Raman-Prozess herrührt (vgl. auch Gl. (4.18)). Die V-artige Raman-Karte verzeichnet vermehrte Raman-Photonenemission entlang $\Delta_L \approx 0$ (weiße Linie) im Limes einer nichtresonanten Cavity, und im nahresonanten Fall schmiegt sich das Emissionsmaximum asymptotisch an die $\Delta_C = 0$ -Linie in zwei diagonal gegenüberliegenden Quadranten der Karte an. Diese Schultern der Optimalmission stammen aus der Umwandlung der durch die fast resonante Cavity begünstigten inkohärenten Emission des Anfangszustandes in Raman-Photonenemission. Offenbar gilt also die in Kapitel 3 im Rahmen der Annahme stark nichtresonanter Cavities und Kontrollpulse, anhand von Gl. (3.32) analytisch erschlossene Vermutung, dass eine solche gewinnbringende Umwandlung der Quellterme durch den Kontrolllaser möglich ist, ebenso im Limes nahresonanter Anregungsbedingungen. Diese Quelle ist im Λ -artigen Fall nicht verfügbar. Entsprechend berücksichtigt die CW-Linie diesen Effekt in jener Kartenregion nicht, da wir schließlich für ihre Herleitung die Be-

setzungen der elektronischen Zustände in ihrer Anfangsbedingung fixiert hatten.

Nachdem wir im Grenzfall schwach gepulster Anregung bereits erste fundamentale Unterschiede der beiden Systemklassen erarbeiten konnten, untersuchen wir nun, wie sich die Emissionskarten für gesteigerte Anregungsintensität, also wachsende Pulsfläche, verändern. Wir sehen auf den ersten Blick, dass sich die Merkmale der V-artigen Raman-Karte für $\theta = 5\pi$ [Abb. 4.4k] im Wesentlichen einfach stärker ausprägen, insbesondere auch die Schulter entlang $\Delta_C = 0$, zudem erweitert sich in der Δ_L -Dimension das spektrale Fenster, in welchem verstärkt Interferenz auftritt. Im Bereich der nichtresonanten Cavity wird die Kennlinie der Maximalemission sehr gut durch die CW-Linie beschrieben. Das absolute Maximum der Raman-Karte liegt bei einer Emissionswahrscheinlichkeit von $\mathcal{P}_R^V \approx 40\%$, ist also gegenüber dem Fall schwacher Anregung um etwa zwei Größenordnungen gesteigert worden. Damit einhergehend beobachten wir eine deutliche Verschmälerung des zentralen Streifens im Muster der inkohärenten Emission [Abb. 4.4l] verglichen mit dem Szenario schwacher Anregung [Abb. 4.4i] bei gleichzeitiger Verstärkung der Emissionsschulter in der Raman-Karte [Abb. 4.4k]. Hier wird die Umwandlung von inkohärenter in kohärente Emission durch den Kontrolllaser ganz deutlich sichtbar. Interessanterweise wird durch diesen Effekt die V-artige Raman-Emission nahezu unabhängig von der Wahl von Δ_L über einen Spektralbereich von fast 1 meV. Das korrespondierende Λ -artige Raman-Muster [Abb. 4.4e] hingegen hat seine Gestalt dahingehend gewandelt, dass es sich nun dem Erscheinungsbild der V-artigen Emission angenähert hat. Die ausschließlich V-artige Schulter an der Cavity-Resonanz ist natürlich weiterhin nicht Bestandteil der Λ -Raman-Karte. Der maximale Raman-Output beträgt aber auch in diesem Fall etwa $\mathcal{P}_R^\Lambda \approx 40\%$. Vor allen Dingen gibt hier die CW-Linie die Symmetrie der Karte und die Maximallinie der Raman-Emission im gesamten Karten-ausschnitt sehr gut wieder. Auch das Muster der Λ -artigen elektronischen Emission hat die V-artige Orientierung entlang $\Delta_C = 0$ angenommen [Abb. 4.4f], allerdings ist diese inkohärente Quelle der Gesamtemission nur im nahresonanten Fall beider Verstimmungen verfügbar.

Auch wenn unsere CW-Kennlinie nicht alle Eigenschaften der Raman-Karten widerzuspiegeln vermag, so können wir offenbar dennoch ein Interferenzkriterium daran aufzeigen. Wir beobachten nämlich, dass die beiden Extrempunkte der Linie auf der Achse der Resonatorverstimmung das Interferenzfenster in der Λ -Klasse [V-Klasse] begrenzen,

$$|\Delta_C| \leq \hbar \frac{\kappa + \Gamma_{3,2[2,1]}}{2}. \quad (4.29)$$

Die kritische Verstimmung ist demnach durch die spektrale Breite $\hbar\kappa$ der Cavity und des elektronischen Übergangs, $\hbar\Gamma_{3,2[2,1]}$, charakterisiert. Die zugehörige Ausdehnung auf der Skala der Laserverstimmung,

$$|\Delta_L| = \frac{\Omega_0^2}{\hbar(\kappa + \Gamma_{3,2[2,1]})}, \quad (4.30)$$

ist natürlich explizit Abhängig von der Anregungsintensität, welche hier im Verhältnis zur kritischen Cavity-Verstimmung, Gl. (4.29), auftritt.

Abschließend zu unserer Analyse der Emissionskarten möchten wir noch den Blick dafür schärfen, dass sich die Lagen der absoluten Maxima der Raman-Emission in der Λ - und der V-Klasse qualitativ signifikant unterscheiden, was bei genauerem Vergleich bezüglich der weißen CW-Orientierungslinie ermittelt werden kann. Das liegt an den

4. Zweiphotonen-Raman-Prozesse in fundamentalen Dreiniveausystemen

völlig unterschiedlich beitragenden Quelltermen der Raman-Korrelation – wir erinnern uns nochmals daran, dass Λ -Artige Raman-Emission einer *kohärenten* Anfangsbedingung (laserinduzierte Polarisation) und V-artige Raman-Emission aus einer *inkohärenten* Anfangsbedingung (spontaner Zerfall des Anfangszustandes über die Cavity) entspringt. Ebenso möchten wir an dieser Stelle betonen, dass die in der Gesamtemission auszumachenden absoluten Maxima *nicht* zwangsläufig mit den Maxima der Raman-Emission zusammenfallen, was die in dieser Arbeit etablierte Definition des Raman-Photons, Gl. (4.22), für viele Betrachtungen unumgänglich macht. Lediglich im Limes stark nichtresonanter Cavities können wir von einer Übereinstimmung ausgehen. Auf den resonanten Raman-Prozess, der im Zentrum unserer Raman-Karten lokalisiert ist, werden wir im letzten Abschnitt dieses Kapitels noch genauer eingehen.

Als Nächstes wollen wir für ein gewähltes Systemdesign, d.h. für eine feste Resonatorverstimmung Δ_C , die Raman-Kennlinien in Abhängigkeit der Anregungsintensität analysieren.

4.3.2. Input-Output-Kennlinien der Raman-Emission

Wenn auch die Raman-Karten ihre absoluten Maxima im Bereich deutlichen spektralen Überlapps zwischen elektronischem Übergang und dem an diesen koppelnden Resonator aufweisen können, so stellen wir doch fest, dass im Limes nichtresonanter Cavities (d.h. moderater bis verschwindender Überlapp) die Reinheit der Raman-Photonenquelle deutlich höher ist – wir sind ja an einer möglichst großen Effizienz des Raman-Prozesses interessiert, weshalb wir wie bereits erwähnt $\mathcal{P} \approx \mathcal{P}_R \rightarrow 100\%$ anstreben. Hier rechnen wir aber damit, dass wir sehr große Anregungsintensitäten benötigen, wie Tabelle 4.1 für die Situation stark nichtresonanter Cavities bereits nahelegt.

Aus diesem Grunde studieren wir nun den Fall, wo die Resonatorspektrallinie möglichst nah an die elektronische Resonanz herangefahren wird, aber sich kaum mit dieser überschneidet. Dieser Limes hat den weiteren Vorteil, dass ggf. beeinträchtigende, maßgeblich aus der elektronischen Inversion stammende Hintergrundemission – also ungewollte Detektion von N_E – spektral herausgefiltert werden kann. Für den Fall unserer bisher verwendeten Parameter $\hbar\kappa = 186 \mu\text{eV}$ und $\hbar\Gamma_{i,j} = 30 \mu\text{eV}$ entspricht dies einer Cavity-Verstimmung von etwa $|\Delta_C| = 800 \mu\text{eV}$. Dazu berechnen wir die Input-Output-Kennlinien der optimierten Raman-Emission in Relation zur Pulsfläche θ , die wir durch Variieren der Intensität durchstimmen. Die Ergebnisse haben wir vergleichend für beide Systeme und beide Pulsformen (Gauß- und Rechteckpuls) in Abb. 4.5 dargestellt. Wir möchten anmerken, dass wir hier zur besonderen Herausarbeitung der physikalischen Unterschiede zwischen unseren Systemklassen Pulsflächen bis etwa $\theta = 15\pi$ berücksichtigen. Wir gehen aber davon aus, dass *experimentell* unsere Ergebnisse vermutlich nur bis etwa $\theta = 10\pi$ zugänglich sind [81]. Zunächst fällt auf, dass die numerisch ermittelten Optimalkennlinien der Laserverstimmung des Rechteckpulses [Abb. 4.5c] in der Λ - (gelbe gestrichelte Linien) sowie in der V-Klasse (gelbe durchgezogene Linien) hervorragende Übereinstimmung mit unserem CW-Resultat, Gl. (4.16), (blaue durchgezogene Linie) aufweisen. Im Falle des Gauß-Pulses [Abb. 4.5a] stimmt die CW-Lösung in der V-Klasse nur für Pulsflächen bis etwa $\theta = 2-3\pi$ überein und gibt darüber hinaus lediglich einen Anhaltspunkt für die Größenordnung der Laserverstimmung und den qualitativen Verlauf in Abhängigkeit von der Anregungsintensität. Im Λ -artigen Fall finden wir eine gute Übereinstimmung bis etwa $\theta = 6-7\pi$, bevor die Kennlinie schließlich in eine Unstetigkeit bei $\theta = 9-10\pi$ mündet.

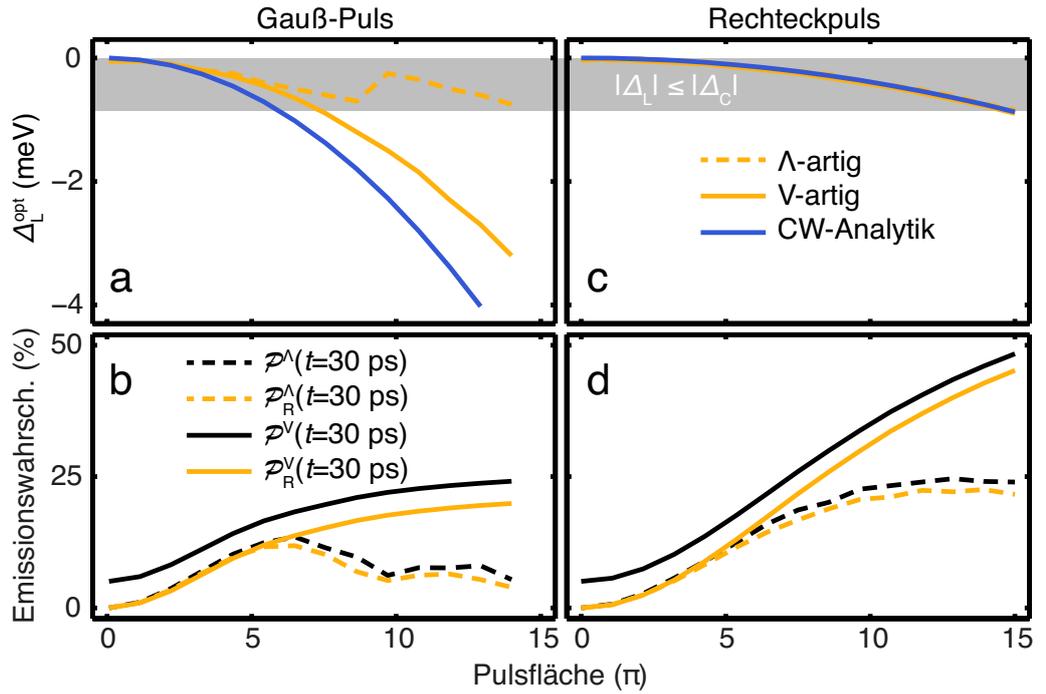


Abbildung 4.5.: Optimalkennlinien der Raman-Emission für veränderliche Anregungsintensität und eine nichtresonante Cavity. Wir berechnen die Optimalverstimmung Δ_L^{opt} auf Basis von Definition Gl. (4.28) (a,c) und die resultierende Gesamt- sowie Raman-Emissionswahrscheinlichkeit beider Systemklassen in Abhängigkeit von der Pulsfläche θ des Gauß- (a,b) und des Rechteckpulses (c,d). Gestrichelte schwarze und gelbe Linien beschreiben den Λ -artigen Fall, durchgezogene schwarze und gelbe den V-artigen Fall. Vergleichend zeigen wir die mit Gl. (4.16) berechnete CW-Verstimmung (blaue Linie). (b,d) Schwarze Linien zeigen die Gesamtemission $\mathcal{P}(t = 30 \text{ ps})$, gelbe die Raman-Emission $\mathcal{P}_R(t = 30 \text{ ps})$. Die Cavity-Verstimmung beträgt $\Delta_C = 800 \text{ } \mu\text{eV}$, und das durch die Resonanzbedingung $\Delta_C \mp \Delta_L = 0$ begrenzte Fenster ist durch die graue Fläche in (a,c) markiert. Wie zuvor nehmen wir $\hbar\kappa = 186 \text{ } \mu\text{eV}$, $g = 57 \text{ } \mu\text{eV}$, $\hbar\Gamma_{i,j} = 30 \text{ } \mu\text{eV}$ sowie explizit Ξ -Konfigurationen an. Für Λ - und V-Konfigurationen bleiben (b) und (d) unverändert, in (a) und (c) erhalten wir das entgegengesetzte Vorzeichen.

Dort weist sie einen Versatz auf, an dem die Optimalverstimmung zu betragsmäßig niedrigeren Energien zurückspringt. Daher haben wir zum Vergleich das der Λ -artigen Resonanzbedingung $\Delta_C \mp \Delta_L = 0$ entsprechende Fenster in Abbn. 4.5a und 4.5c durch die graue Fläche markiert. Wir sehen direkt, dass der Versatz der Kennlinie auftritt, sobald diese sich der Resonanz annähert, wo ja der Kontrolllaser bei Λ -artiger Ankopplung mit dem Übergang $1 \leftrightarrow 2$ resonant wird. Dieses Verhalten werden wir noch genauer in Abschnitt 4.3.3 untersuchen. Unsere Darstellung zeigt sehr eindrucksvoll, dass – in Übereinstimmung mit Gl. (4.18) – die V-artige Ankopplung kein kritisches Verhalten bei $\Delta_C \mp \Delta_L = 0$ aufweist, wo der Laser mit $2 \leftrightarrow 3$ resonant wird – selbst bei großen Pulsflächen. Die Rechteckanregung zeigt dieses Verhalten natürlich in unserem Beispiel nicht, da die optimale Laserverstimmung gerade erst bei $\theta = 15\pi$ die Resonanz zu durchkreuzen beginnt.

Dies schlägt sich auch in den zugehörigen Emissionskennlinien nieder. So beobachten wir für die Gauß-Pulsanregung [Abb. 4.5b] in der V-Klasse ein robustes Verhalten der Optimalkennlinie der Raman-Emission (gelbe durchgezogene Linie), welche zunächst monoton wächst mit zunehmender Pulsfläche, bevor sie langsam um $\theta = 10\pi$ zu sättigen beginnt. Die Wahrscheinlichkeit ein Raman-Photon zu emittieren liegt für $\theta = 15\pi$

4. Zweiphotonen-Raman-Prozesse in fundamentalen Dreiniveausystemen

bei etwa $\mathcal{P}_R^V \approx 20\%$. Die zugehörige Gesamtemission (schwarze durchgezogene Linie) verläuft parallel, etwa fünf Prozentpunkte oberhalb der Raman-Kennlinie. Diese Differenz rührt aus der inkohärenten Emission her, welche auch ohne eingeschalteten Kontrolllaser – also bei $\theta = 0$ – stattfindet. Die Λ -artige Raman-Kennlinie (gelbe gestrichelte Linie) hingegen folgt zunächst bis etwa $\theta = 6-7\pi$ der V-artigen Kennlinie auf ein Maximum von etwa $\mathcal{P}_R^\Lambda \approx 12\%$, bevor sie einbricht. Dies geschieht offensichtlich bei Annäherung des Kontrolllasers an die oben diskutierte Resonanz, – auch jenseits des Versatzes in der Laserverstimmung kann die Emissionswahrscheinlichkeit nicht mehr nennenswert auf über 6% gesteigert werden. Die Kennlinie der zugehörigen Gesamtemission der Λ -Klasse (schwarze gestrichelte Linie) ist beinahe deckungsgleich mit der Raman-Kennlinie, $\mathcal{P}^\Lambda \approx \mathcal{P}_R^\Lambda$, sodass hier eine besonders reine Raman-Photonenquelle vorliegt. Schauen wir im Vergleich auf die Emissionskennlinien der Rechteckanregung [Abb. 4.5d], bemerken wir als Erstes, dass in beiden Systemklassen die maximale Emissionswahrscheinlichkeit des Raman-Prozesses in etwa doppelt so groß ist wie im Falle der Gauß-Pulsanregung, sie liegt nämlich für $\theta = 15\pi$ in der Λ -Klasse bei $\mathcal{P}_R^\Lambda = 20-25\%$ und in der V-Klasse bei $\mathcal{P}_R^V = 45-50\%$. Beide Kennlinien verhalten sich stetig, die V-artige Kennlinie wächst monoton über den gesamten gezeigten Bereich, während die Λ -artige Kennlinie bei $\theta \approx 10\pi$ anfängt zu sättigen, was wieder daran liegt, dass die zugehörige Optimalverstimmung sich der kritischen Resonanz zu nähern beginnt. Die Λ -Klasse stellt auch in diesem Szenario wieder eine besonders reine Raman-Photonenquelle dar, wie wir im Vergleich mit der Gesamtemission feststellen. Ein besonderes Augenmerk möchten wir in diesem Zusammenhang auf den Vergleich zwischen Raman- und Gesamtemission der V-Klasse lenken, indem wir den Abstand der beiden Linien zueinander bei $\theta = 0$ mit dem bei $\theta = 15\pi$ abgleichen: Dieser verringert sich von fünf Prozentpunkten auf etwa die Hälfte. Dies ist in der Kennliniendarstellung der Fingerabdruck der Umwandlung der inkohärenten Emission aus dem Anfangszustand in kohärente Raman-Emission durch den Kontrolllaser – mit steigender Anregungsintensität kann also die Reinheit der V-artigen Raman-Photonenquelle gesteigert werden. Bemerkenswert ist, dass der Aussagegehalt unseres reduzierten Modells – im Speziellen die bereits anhand von Gl. (3.32) erschlossene Vermutung der Möglichkeit zur Umwandlung von inkohärenter Emission in kohärente Raman-Emission – offenbar deutlich über die in Kapitel 3 vereinfachten Anregungsbedingungen hinausgeht. Ferner möchten wir an dieser Stelle noch darauf hinweisen, dass die in diesem Abschnitt gezeigten Raman-Kennlinien *kein* oszillatorisches Verhalten über der Pulsfläche (*Rabi-Oszillationen*) zeigen, was später in der Diskussion des *resonanten* Raman-Prozesses noch eine Rolle spielen wird.

Abschließend zu den Kennlinien der Raman-Emission im Limes nichtresonanter Cavities möchten wir noch den Fall erhöhter Licht-Materie-Kopplung g betrachten, von der wir uns nach Gln. (4.17) und (4.18) eine weitere Steigerung der Emissionswahrscheinlichkeit versprechen. Dazu wiederholen wir die Rechnungen aus Abb. 4.5 mit $g = \hbar\kappa = 186 \mu\text{eV}$. Die Ergebnisse sind (vollkommen analog zu Abb. 4.5) in Abb. 4.6 dargestellt. Die Situation der Optimalverstimmungen bleibt nahezu unverändert, wir machen lediglich im Gauß-Pulsszenario der Λ -Klasse [Abb. 4.6a] einen weiteren Versatz bei $\theta = 12 - 13\pi$ aus. Die Erscheinungsbilder der Emissionskennlinien für Gauß- und Rechteckpuls [Abbn. 4.6b und 4.6d] jedoch haben sich qualitativ angeglichen. In beiden Anregungsszenarien erreicht die Λ -Klasse ein absolutes Maximum der Raman-Emissionswahrscheinlichkeit bei $\theta = 6\pi$ von etwa $\mathcal{P}_R^\Lambda \approx 70\%$, was also bereits im On-Demand-Bereich liegt. Bis $\theta = 7\pi$ emittiert die Λ -Klasse sogar mit einer höheren Wahrscheinlichkeit als die V-Klasse mit

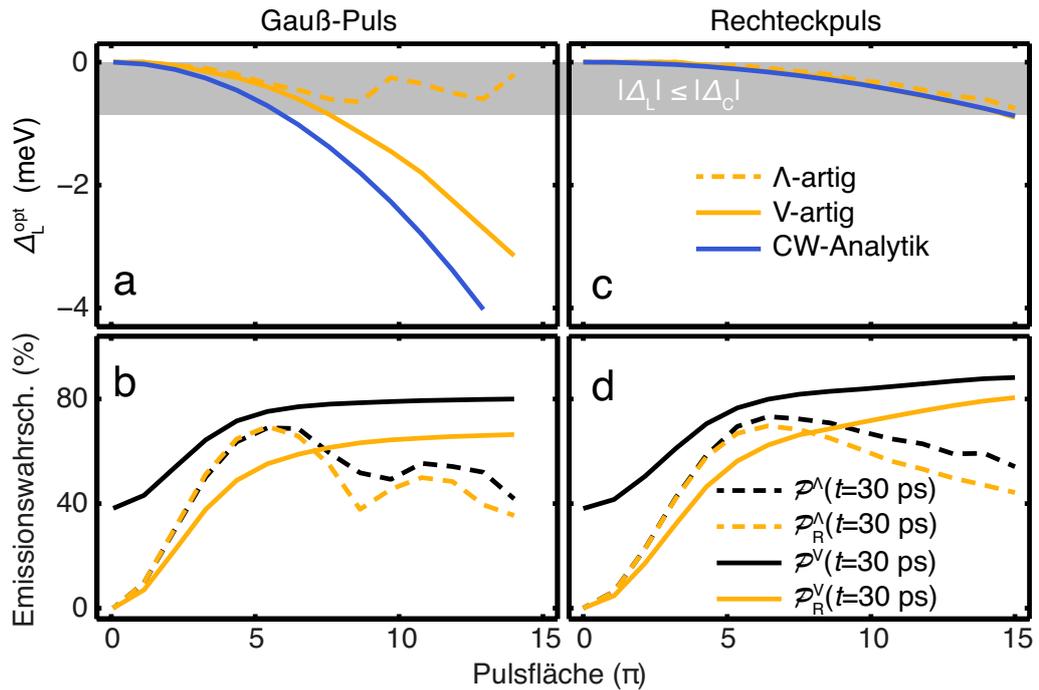


Abbildung 4.6.: Optimalkennlinien für stärkere Licht-Materie-Wechselwirkung. Wir wiederholen die Rechnungen aus Abb. 4.5 ($\hbar\kappa = 186 \mu\text{eV}$, $g = 57 \mu\text{eV}$) mit verstärkter Kopplung der Resonatorphotonen an den Quantenpunkt, $g = \hbar\kappa = 186 \mu\text{eV}$.

maximal $\mathcal{P}_R^V = 60\%$. Jenseits von $\theta = 7\pi$ sinkt die Emissionswahrscheinlichkeit deutlich, damit einhergehend nimmt auch die Raman-Effizienz ab, da die Raman-Kennlinie nunmehr bis zu zehn Prozentpunkte unterhalb der Gesamtemission verläuft. Bei sehr großen Pulsflächen gewinnt hier wieder die Kennlinie der V-artigen Raman-Emission, welche es mit der Gauß-Anregung bei $\theta = 15\pi$ auf $\mathcal{P}_R^V = 70\%$ und mit der Rechteckanregung auf $\mathcal{P}_R^V = 80\%$ bringt. Im letzteren Fall liegt das wieder maßgeblich an der Umwandlung inkohärenter Emission, welche hier nun eindrucksvoll sichtbar wird: In Abb. 4.6d lesen wir bei $\theta = 0$ eine Gesamtemission von $\mathcal{P}^V = 40\%$ ab, die ja dem inkohärenten Beitrag entspricht, welcher sich bei $\theta = 15\pi$ auf $\mathcal{P}^V - \mathcal{P}_R^V = 5\%$ reduziert. Für $\theta < 5-7\pi$ ist das V-System im Falle effizienter Licht-Materie-Kopplung g offensichtlich also sehr ineffizient durch den großen Hintergrundbeitrag der inkohärenten Emission des Anfangszustandes.

Insgesamt können wir nun also aussagen, dass wir mit beiden Systemklassen Raman-Photonenemission im On-Demand-Limes erreichen können. Im Falle mittlerer Resonatorqualität stellt die V-artige Ankopplung des Kontrolllasers offensichtlich eine robuste Emissionscharakteristik sicher, welche im Limes hoher Anregungsintensitäten eine Annäherung an die On-Demand-Emission ermöglicht. Im Falle verstärkter Kopplung zwischen Cavity und Quantenpunkt, $\hbar\kappa/g = 1$, stellt für mäßige Anregungsintensitäten die Λ -Klasse eine sehr reine und effiziente On-Demand-Quelle von Raman-Photonen dar, die V-Klasse erreicht diese Eigenschaften erst bei sehr großen Pulsflächen.

Als Nächstes wollen wir ein vertieftes Verständnis dafür gewinnen, wie der durch den Gauß-Puls induzierte Versatz in der Kennlinie der Optimalverstimmung zustande kommt. Damit einhergehend wollen wir auch der Frage nachgehen, wie die *Pulsform* explizit in die Optimalverstimmung eingeht – schließlich haben wir im Vergleich von Rechteck- und Gauß-Puls bemerkt, dass die Charakteristiken der induzierten Stark-Verschiebungen of-

4. Zweiphotonen-Raman-Prozesse in fundamentalen Dreiniveausystemen

fensichtlich maßgeblich auch von der Gestalt des Pulses abhängen. Diese Einsichten hatten ja bereits unsere Auftaktuntersuchungen in Kapitel 3 zur Raman-Emission aus dem Biexziton unter vereinfachten Anregungsbedingungen suggeriert. Der folgende Abschnitt knüpft daher maßgeblich auch an die Diskussion der aus dem *reduzierten Modell* gewonnenen analytischen Ergebnisse, Gln. (3.35) und (3.44), für die Zeitabhängigkeit der Energieverschiebungen an.

4.3.3. Zeitabhängigkeit der Frequenzverschiebung

Wie in Abb. 4.5 im Falle der Gaußschen Einhüllenden zu erkennen ist, weichen die Kennlinien der Optimalverstimmung sowie der zugehörigen Raman-Emission stark von denen der Rechteckanregung ab. Hier beobachten wir eine geringere Emissionswahrscheinlichkeit, insbesondere fällt der sprunghafte Verlauf der Optimalverstimmung für die Λ -Klasse auf, der im ersten Moment wie ein Artefakt anmutet. Jedoch müssen wir uns stets vergegenwärtigen, dass die Stark-Verschiebung in Echtzeit vom eingestrahlten Laserpuls induziert wird, mit anderen Worten liegt natürlich auch eigentlich eine *zeitliche* Abhängigkeit der Optimalverstimmung des Lasers vor, wie wir bereits anhand von Gl. (3.35) gezeigt hatten. Aus diesem Grunde werden wir in diesem Abschnitt ebendiese Abhängigkeit analytisch nun für die Dreiniveausysteme erschließen und den Zusammenhang mit der in unseren Simulationen optimierten *konstanten* Laserverstimmung herstellen.

Aufgrund des Selbstkonsistenzcharakters der Problemstellung ist natürlich – wie auch schon in Kapitel 3 – keine exakte analytische Lösung möglich, jedoch sind wir ja im Speziellen wieder an einer Lösung im Limes nichtresonanter Cavities interessiert, in welchem die Dreiniveauekonfigurationen eine besonders reine Raman-Quelle darstellen. Hierzu gehen wir von unseren SD-Gleichungen aus, in denen wir wieder die Rückkopplung der Emission an das Materialsystem vernachlässigen und quasistationäre Bedingungen annehmen (siehe Anhang B.2.1). In der Sprache der Cluster-Entwicklung ist dieses Vorgehen offenbar eine Verallgemeinerung der reduzierenden Modellbildung aus Kapitel 3, die wir dort anhand des Erhaltungssatzes, Gl. (3.6), begründet hatten. Desweiteren wissen wir bereits vor dem Hintergrund der CW-Analyse, dass die Stark-Verschiebung relativ unabhängig ist von der expliziten Besetzung der drei elektronischen Zustände, weshalb wir erneut die Besetzungen konstant halten. Nach einigen langwierigen Rechenschritten, die wir im Anhang B.2.2 näher erläutern, erhalten wir schlussendlich für $\Lambda[V]$ -artige Systeme

$$\Delta_L(t) = \mp \text{Re} \frac{i}{\hbar t} \int_0^t dt' \int_0^{t'} dt'' \Omega_{\text{env}}(t') \Omega_{\text{env}}(t'') e^{i \left(\frac{\Delta_C}{\hbar} - i \frac{\kappa + \Gamma_{3,2[2,1]}}{2} \right) (t' - t'')}, \quad (4.31)$$

wobei wie gewohnt das obere Vorzeichen für Λ - und V-Konfigurationen, das untere für Ξ -Konfigurationen gelte. Im CW-Limes, $\Omega_{\text{env}} = 1$ mit $\Omega_{\text{env}}(t = 0) = 0$, geht dieser Ausdruck wieder in den bekannten CW-Ausdruck Gl. (4.16) über.

Bezüglich unserer Grundfrequenz $|\omega_1 - \omega_3 - \omega_C|$ des Lichtfeldes ist der Puls mit der zeitlich sich ändernden Anregungsfrequenz (in der engl. Fachliteratur kurz als *chirp* bezeichnet) dann also gegeben durch

$$\Omega_{\text{Chirp}}(t) = \Omega_{\text{env}}(t) e^{-i \Delta_L(t) t / \hbar}. \quad (4.32)$$

Um das zugehörige Pulsspektrum zu berechnen, führen wir zunächst die normierte Fourier-Transformierte des Chirps,

$$\mathcal{C}(E) = \left(\int_{-\infty}^{\infty} dE' |\mathcal{F}[\Omega_{\text{Chirp}}(t)](E')|^2 \right)^{-\frac{1}{2}} \mathcal{F}[\Omega_{\text{Chirp}}(t)](E), \quad (4.33)$$

ein, wobei $\mathcal{F}[f(t)](E)$ die Fourier-Transformierte der Funktion $f(t)$ bezüglich der Zeit t zur Energie $E = \hbar\omega$ sei. Das Spektrum dieses Pulses sei dann

$$\mathcal{S}_{\text{Chirp}}(E) = |\mathcal{C}(E)|^2. \quad (4.34)$$

Grundsätzlich haben wir zwei naheliegende Möglichkeiten, eine *effektive konstante* Optimalverschiebung zu berechnen, zum einen aus dem Maximum des Spektrums,

$$\Delta_L^{\text{opt,Max}} = E|_{\max(\mathcal{S}_{\text{Chirp}})}, \quad (4.35)$$

zum anderen aus dem Schwerpunkt der Verteilung $\mathcal{C}(E)$,

$$\Delta_L^{\text{opt,Schwer}} = \int_{-\infty}^{\infty} dE' E' |\mathcal{C}(E')|^2. \quad (4.36)$$

In das Maximum respektive den Schwerpunkt können wir dann wieder unsere ursprüngliche Einhüllende als *effektiven Optimalpuls konstanter Verstimmung*,

$$\mathcal{C}_{\text{eff}}(E) = \mathcal{F}[\Omega_{\text{env}}(t)](E - \Delta_L^{\text{opt,Max[Schwer]}}, \quad (4.37)$$

legen. Mit anderen Worten ist $\mathcal{C}_{\text{eff}}(E)$ dann genau der Puls, den wir durch Wahl einer Einhüllenden Ω_{env} und anschließender Optimierung einer *konstanten* Verstimmung Δ_L bisher gewonnen haben. Davon wollen wir uns in einem anschaulichen Beispiel überzeugen.

In Abb. 4.7 haben wir zur Veranschaulichung für unseren Gauß-Puls und drei repräsentative Pulsflächen (erste Reihe der Abbildung) die zugehörige optimale Laserverstimmung $\Delta_L(t)$ über der Zeit aufgetragen (zweite Reihe). Wir beobachten, dass $|\Delta_L(t)|$ zunächst annähernd linear wächst, um kurz nach dem Pulsmaximum auf der Zeitskala der Photonenlebensdauer $1/\kappa$ wieder abzuklingen. Um physikalisch zu verstehen, welchen Einfluss die Zeitabhängigkeit der Verstimmung des Kontrolllasers auf das Anregungsdesign nimmt, schauen wir uns jeweils das Spektrum des Chirps (dritte Reihe, graue Fläche) als intuitiv zugängliche Größe an. Zusätzlich zeigen wir zum Vergleich die Lorentz-Resonanzlinie,

$$L^{\Lambda[\text{V}]}(E) = \frac{(\hbar\Gamma_{2,1[3,2]})^2}{(E - \Delta_C)^2 + (\hbar\Gamma_{2,1[3,2]})^2}, \quad (4.38)$$

(schwarze Linie) des Übergangs $1 \leftrightarrow 2$ [$2 \leftrightarrow 3$], an den der Laser in der Λ -Klasse [V-Klasse] ankoppelt. Mit zunehmender Pulsfläche beobachten wir eine zunehmende spektrale Verformung der ursprünglich Gaußschen Gestalt, insbesondere bildet das Spektrum eine wachsende Anzahl von Nebenmaxima aus. Das Hauptmaximum beginnt für $\theta > 2\pi$

4. Zweiphotonen-Raman-Prozesse in fundamentalen Dreiniveausystemen

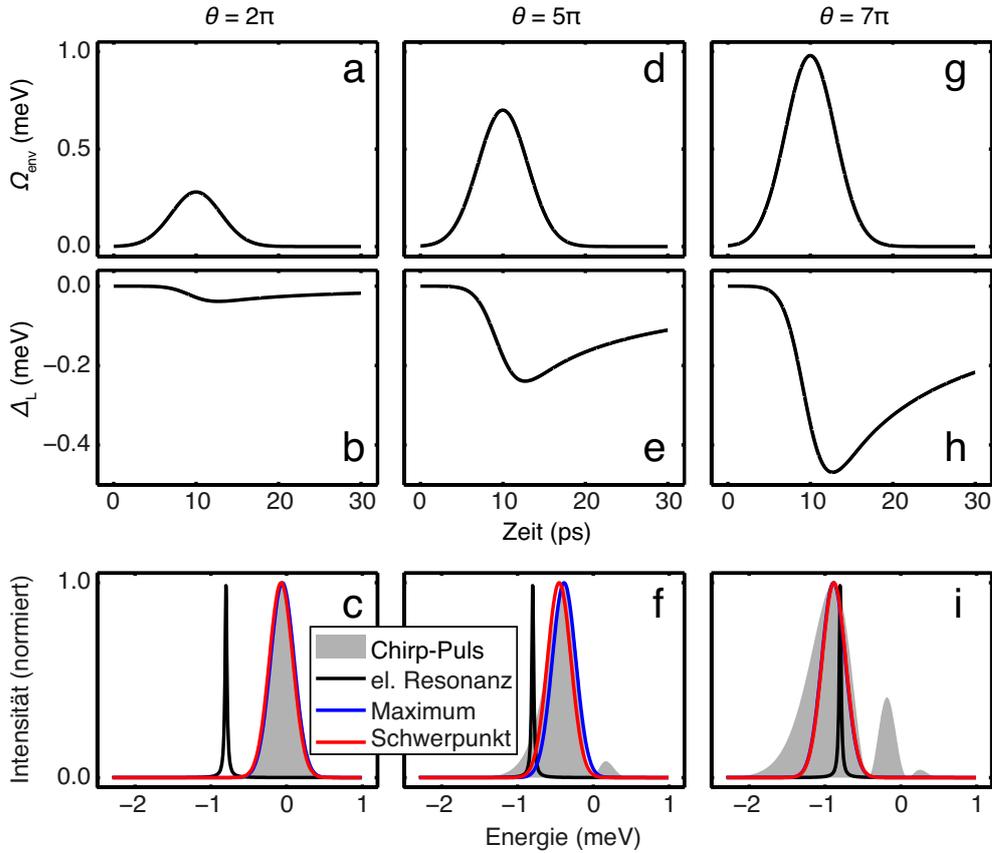


Abbildung 4.7.: Zeitabhängige Laserverstimmung. Für drei repräsentative Pulsflächen, (a-c) $\theta = 2\pi$, (d-f) $\theta = 5\pi$ und (g-i) $\theta = 7\pi$, zeigen wir die Gaußsche Pulseinveloppe $\Omega_{\text{env}}(t)$ (erste Reihe) sowie die resultierende Verstimmung $\Delta_L(t)$ nach Gl. (4.31) über der Zeit. In der dritten Reihe sind das zugehörige Spektrum des Chirps (graue Fläche), Gl. (4.34), die elektronische Resonanzlinie (schwarze Linie), Gl. (4.38), sowie die beiden Möglichkeiten den Effektivpuls konstanter Verschiebung, Gl. (4.37), entweder im Schwerpunkt (rote Linie) oder im Maximum (blaue Linie) des Chirp-Spektrums zu lokalisieren. Wir haben dabei in Übereinstimmung mit Abb. 4.5 eine Ξ -Konfiguration mit einer Resonatorverstimmung $\Delta_C = 0.8$ meV sowie $\hbar\kappa = 186$ μeV und $\hbar\Gamma_{i,j} = 30$ μeV angenommen.

die elektronische Resonanz (schwarze Linie) zu durchkreuzen, für weiter zunehmende Pulsflächen ebenso die nachfolgenden Nebenmaxima. Mit der blauen [roten] Linie zeigen wir noch den durch das Maximum [den Schwerpunkt] des Chirp-Spektrums ermittelten effektiven Optimalpuls mit konstanter Verstimmung, Gl. (4.37). Um aus unseren Beobachtungen aus Abb. 4.7 ein systematisches Verständnis unserer numerisch ermittelten Daten in Abbn. 4.5a und 4.5b zu erlangen, tragen wir in Abb. 4.8 sowohl die numerischen Daten als auch die analytisch, aus Gln. (4.35) und (4.36) ermittelten Daten auf. Die elektronische Resonanz $\Delta_L^{\text{opt}} = -\Delta_C$ haben wir als waagerechte graue gestrichelte Linie markiert, die errechnete Optimalverstimmung $\Delta_L^{\text{opt,Max[Schwer]}}$ ist wieder in blau [rot] eingezeichnet. Zum Vergleich zeigen wir auch wieder das CW-Ergebnis, Gl. (4.16). Offensichtlich ist sowohl die Schwerpunkt- wie die Maximumbestimmung im durch die elektronische Resonanzlinie begrenzten spektralen Fenster ($\theta < 5\pi$), innerhalb dessen kaum Überlapp des Hauptmaximums des Chirp-Spektrums vorliegt, eine sinnvolle Anschauung. Jenseits dieser Linie finden wir die beste Übereinstimmung der Schwerpunkts-

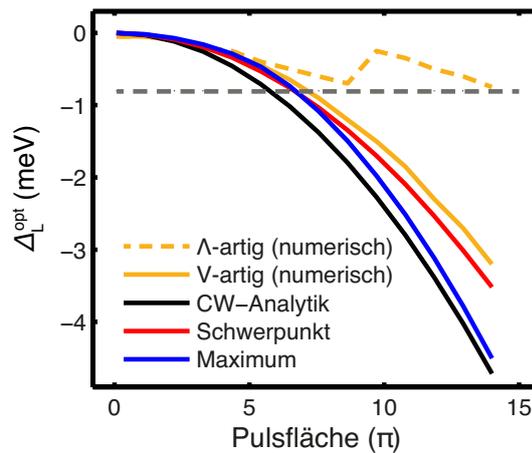


Abbildung 4.8.: Konstante Optimalverstimmung – Analytik-Numerik-Vergleich. Wir zeigen die numerischen Daten aus Abb. 4.5a (gelbe durchgezogene und gestrichelte Linien) im Vergleich mit den aus Gl. (4.31) gewonnenen Verstimmungen nach Gl. (4.36) durch die Berechnung des Schwerpunkts (rote Linie) sowie nach Gl. (4.35) durch Berechnung des Maximums (blaue Linie) des zugehörigen Pulsspektrums. Erneut ist zum weiteren Vergleich das CW-Ergebnis (schwarze Linie) gezeigt. Die graue gestrichelte Linie markiert die Resonanz des Lasers mit den elektronischen Zuständen 1 und 2 (Λ -artig) bzw. 2 und 3 (V-artig).

linie mit dem numerischen Resultat in der V-Klasse, während sich die Kennlinie des Maximums für wachsende Pulsfläche an die CW-Linie annähert. Ganz anders verhält sich die Λ -artige Kennlinie, welche ja bei der kritischen Resonanzbedingung abknickt und einer etwa versetzt parallelen Linie zu folgen beginnt. Hier greift nun unmittelbar die Anschauung aus Abb. 4.7i: Bei $\theta \approx 7\pi$ durchkreuzt das Hauptmaximum, welches ungefähr mit Schwerpunkt und Maximum zusammenfällt, die elektronische Resonanz, sodass das Hauptmaximum aufgrund der auftretenden Quanteninterferenz nicht mehr mit der konstanten Optimalverstimmung in Beziehung gesetzt werden kann. Stattdessen erscheinen fortwährend die Nebenmaxima des Chirp-Spektrums, welche nicht mit der elektronischen Resonanz überlappen, als Optimalkriterium. Diese Nebenmaxima werden dann durch unsere Optimierungsbedingung Gl. (4.28) aufgefunden, was zu dem beobachteten Versatz bei $\theta \approx 10\pi$ führt.

Wir möchten an dieser Stelle anmerken, dass unser Ergebnis für die intrinsische Zeitabhängigkeit der Stark-Verschiebung, Gl. (4.31), offenbar eine erstaunlich weite Gültigkeit – selbst im Limes starker Anregung – besitzt, solange wir eine nichtresonante Cavity betrachten, obwohl wir in der Herleitung stationäre Besetzungen sowie schwache Anregung angenommen hatten. Dies ist einmal mehr ein Hinweis darauf, dass die fundamentalen physikalischen Eigenschaften der Licht-Materie-Kopplung des Zweiphotonen-Raman-Prozesses kaum von der Inversion der elektronischen Besetzungen abhängen, was erneut die Vernachlässigung strahlenden Zerfalls in unseren vergleichenden numerischen Studien rechtfertigt.

Nach diesem Einschub zur Vertiefung unseres Verständnisses für die systemspezifischen Stark-Verschiebungen der Raman-Resonanzbedingung, Gl. (4.1), möchten wir uns abschließend dem *resonanten* Raman-Prozess zuwenden.

4. Zweiphotonen-Raman-Prozesse in fundamentalen Dreiniveausystemen

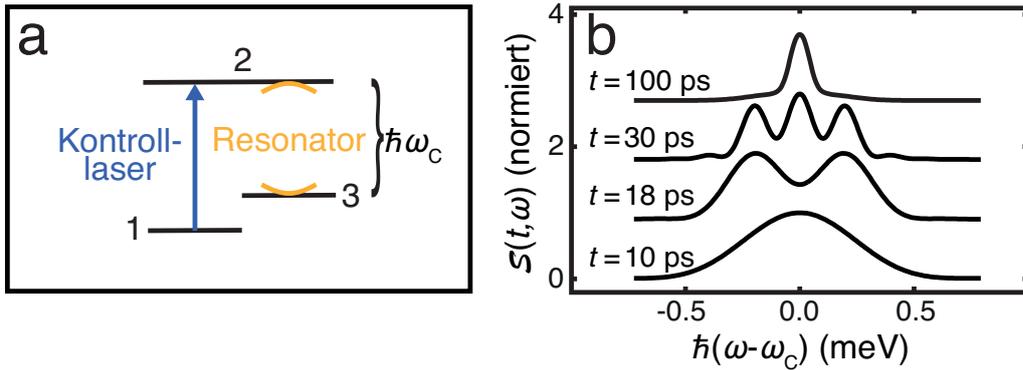


Abbildung 4.9.: Resonanter Raman-Prozess. (a) Gezeigt ist der resonante Raman-Prozess in einer Λ -Konfiguration, bei dem Kontrolllaser (blauer Pfeil) und Resonatormode (repräsentiert durch die gelben Klammern) exakt auf den jeweiligen elektronischen Übergang abgestimmt sind, $\Delta_C = \Delta_L = 0$. (b) Zeitliche Entwicklung des zu (a) korrespondierenden Emissionsspektrums $S(t, \omega)$ nach Gl. (2.29) für vier Zeitpunkte, drei Schnappschüsse auf der Zeitskala des anregenden Kontrollpulses ($t = 10, 18$ und 30 ps), ein weiterer auf der Zeitskala der inkohärenten Prozesse ($t = 100$ ps). Das Szenario ist in Übereinstimmung mit der Situation aus Abbn. 4.4d-4.4f gewählt. Alle Spektren sind auf ihr jeweiliges Maximum normiert ($S(100 \text{ ps}, \omega) \approx 30S(10 \text{ ps}, \omega)$) und der Übersichtlichkeit halber jeweils mit einem Offset versehen worden.

4.3.4. Resonanter Raman-Prozess und Quanteninterferenz

Nachdem wir nun eingehend die Emissionscharakteristiken beider Systemklassen für den Fall nichtresonanter Cavities – also dem Limes möglichst reiner Raman-Photonenquellen – untersucht und physikalisch erfolgreich ergründet haben, wenden wir uns nun dem resonanten Raman-Prozess zu. In der Darstellung unserer Emissionskarten aus Abschnitt 4.3.1 bewegen wir uns also im Kartenzentrum, $\Delta_C = \Delta_L = 0$. Hier konzentrieren wir uns auf die Λ -Konfiguration, welche das wohl prominenteste und vor allem auch experimentell meist untersuchte System der hier diskutierten Dreiniveausysteme ist. In Quantenpunkt- Λ -Konfigurationen, die in der Regel mithilfe externer Magnetfeldern realisiert werden, werden resonante Raman-Prozesse aufgrund der quantenmechanischen Eigenschaften der beiden metastabilen Grundzustände oftmals auch als *Spin-Flip-Raman-Prozesse* diskutiert [21, 53, 54], welche die deterministische Inversion von einem in den anderen Grundzustand ermöglichen. In diesem Zusammenhang streben wir eine Validierung unserer neuen Erkenntnisse – gerade auch im Hinblick auf das Auftreten quantenmechanischer Interferenz – durch den Vergleich mit experimentellen Befunden aus der Literatur an. Zudem haben wir unseren Raman-Karten entnommen, dass wir, im Gegensatz zur Λ -Klasse, in der V-Klasse aus dem resonanten Raman-Prozess keine Emission von Raman-Photonen erwarten können.

Wie in Abb. 4.9a nochmals illustrativ dargestellt, seien also nun sowohl Kontrolllaser als auch Cavity resonant mit dem jeweiligen elektronischen Übergang. In der Einleitung dieser Arbeit hatten wir die Frage aufgeworfen, ob wir im Emissionsspektrum des resonanten Raman-Prozesses tatsächlich Raman-Photonen detektieren. Zum besseren Verständnis haben wir die bereits in der Einleitung dieser Arbeit gezeigten Schnappschüsse des Emissionsspektrums der 5π -Rechteckanregung [Abb. 1.6] hier noch um zwei weitere Zeitpunkte ergänzt [Abb. 4.9b]. Wir beobachten, dass sich auf der Zeitskala des anregenden Pulses ein Einschnitt im Zentrum des Emissionsmaximums ausprägt ($t = 10$

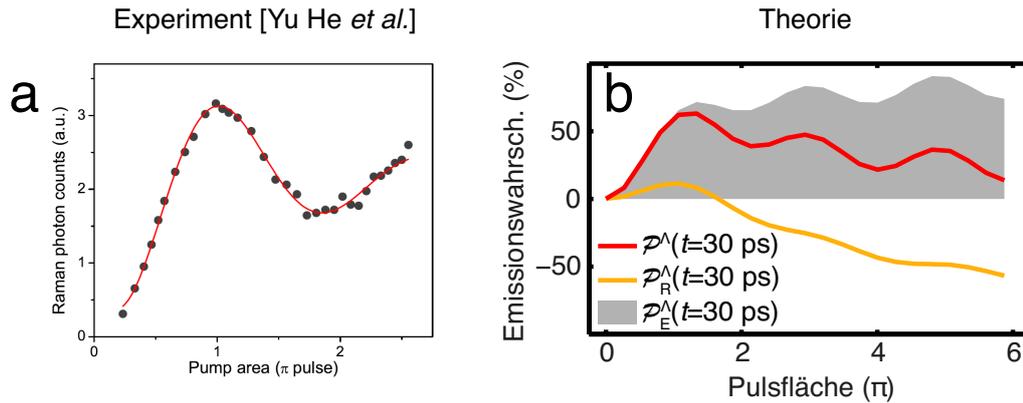


Abbildung 4.10.: Input-Output-Charakteristik – Experiment vs. SDT-Lösung. (a) Wir präsentieren die dem Zusatzmaterial der Publikation [Yu He *et al.*, Phys. Rev. Lett. **111**, 237403 (2013)] (siehe Referenz [21]) entnommene Originalabbildung. Sie zeigt die Zählrate der Quantenpunkt-emission für den resonanten Raman-Prozess (siehe Abb. 4.9a) in einer Λ -Konfiguration in Abhängigkeit von der Pulsfläche (Messdaten durch Punkte, Ausgleichskurve durch rote Linie gegeben). (b) Zum Vergleich zeigen wir für unsere Material- und Anregungsparameter aus Abb. 4.4 die SDT-Lösung der Gesamtemissionswahrscheinlichkeit \mathcal{P}^Λ (rote Linie) zusammen mit der Raman-Wahrscheinlichkeit \mathcal{P}_R^Λ (gelbe Linie) und der elektronischen Wahrscheinlichkeit \mathcal{P}_E^Λ im resonanten Fall, $\Delta_C = \Delta_L = 0$.

und 20 ps), in dessen Mitte sich im weiteren Verlauf – am Ende der Raman-Zeitskala bei $t = 30$ ps – ein weiteres lokales Maximum etabliert, sodass sich eine Art spektrales Triplet (nicht zu verwechseln mit der *Triplet*-Korrelation aus der Cluster-Entwicklung) ergibt. Solcherlei Verformungen optischer Spektren sind in Quantenpunkt-Cavity-Systemen bereits in Experimenten gemessen und im Zusammenhang mit Interferenzphänomenen durch Zweiphotonenanregungen diskutiert worden [118]. Zu einem viel späteren Zeitpunkt nach dem Puls ($t = 100$ ps) ist dieses nicht mehr auszumachen, wir beobachten lediglich eine einzige gewöhnliche Resonanzlinie, die etwa die Breite der mittleren Tripletlinie aufweist. Auf Basis unserer Emissionskarten können wir bereits aussagen, dass hierfür destruktive Interferenz durch den Raman-Prozess verantwortlich ist: Dieser wirkt der elektronischen Emission aus dem Zwischenzustand entgegen, und wir beobachten zeitweilig einen Einschnitt in der Resonanzlinie der Cavity-Emission. Jenes sich mittig in der Vertiefung etablierende Maximum resultiert aus der inkohärenten elektronischen Emission, welche nach dem Abklingen der kohärenten Prozesse die Gesamtemission aus der Cavity darstellt und das Interferenzphänom auf längeren Zeitskalen *maskiert*. Zum Zeitpunkt $t = 100$ ps beobachten wir folglich *keine* durch die Raman-Emission geformte Spektrallinie. Wir wollen nun diese Sichtweise durch die Analyse der Emissionskennlinien in Abhängigkeit von der Pulsfläche erweitern und den Interferenzeffekt genauer beschreiben.

Wir berechnen für die in Abb. 4.4 gezeigte Situation wieder die Kennlinien der Gesamt- und der Raman-Emission. Diesmal berechnen wir auch explizit zusätzlich die Kennlinie der elektronischen Quelle, d.h. die Emission aus der Besetzung des Zwischenzustandes, welcher über den schrittweise vollzogenen Pfad $1 \xrightarrow{\Omega} 2 \xrightarrow{b^\dagger} 3$ explizit durch den Kontrolllaser besetzt wird. Unser Ergebnis ist in Abb. 4.10b dargestellt, im qualitativen Vergleich mit einem experimentellen Ergebnis für den resonanten Raman-Prozess in einer Λ -Konfiguration [Abb. 4.10a] aus dem Zusatzmaterial von Quelle [21]. Wir müssen

4. Zweiphotonen-Raman-Prozesse in fundamentalen Dreiniveausystemen

an dieser Stelle anmerken, dass wir leider nur einen qualitativen Vergleich realisieren können, da in Quelle [21] nicht alle für unser Modell relevanten Material- und Anregungsparameter angegeben sind, weshalb wir wieder unsere an Quelle [54] orientierten Parameter verwenden. Wir gehen aber davon aus, dass die im Folgenden erschlossenen und diskutierten Eigenschaften des resonanten Raman-Prozesses recht allgemeingültig sind. Die experimentellen Daten zeigen Rabi-Oszillationen über der Pulsfläche, und die Autoren He *et al.* dieser Studie beobachten über den gezeigten Datensatz hinaus anregungsinduzierte Dämpfung der Oszillationen mit wachsender Pulsfläche. Sie vermuten, dass Gitterschwingungen und andere nicht Markovsche Dephasierungsreservoirs für diesen Effekt verantwortlich sein könnten [Absatz *Observation of Rabi oscillation*, Seite 1 des Zusatzmaterials]. Unser auf Basis der SDT-Gleichungen berechnetes theoretisches Ergebnis [Abb. 4.10b] zeigt ebenfalls Rabi-Oszillationen der Gesamtemission (rote Linie), welche mit wachsender Pulsfläche abgedämpft werden. Um der Ursache für die anregungsinduzierte Dämpfung auf den Grund zu gehen, können wir nun unsere mikroskopische Zerlegung nutzen. Wir sehen sofort, dass das oszillatorische Verhalten maßgeblich aus der elektronischen Quelle (graue Fläche) stammt, welche insbesondere das erste Maximum der Gesamtemission ausformt. Dahingegen weist die Raman-Kennlinie (gelbe Linie) lediglich ein kleines positives Maximum bei $\theta \approx \pi$ auf, jenseits von $\theta = 2\pi$ wird sie strikt negativ und sinkt parallel zur Einhüllenden der Gesamtemission weiter ab. Da auch hier wieder ungefähr $\mathcal{P}^\Lambda \approx \mathcal{P}_R^\Lambda + \mathcal{P}_E^\Lambda$ gilt, können wir direkt schlussfolgern, dass die in der gemessenen Gesamtemission beobachtete Dämpfung möglicherweise *kein* (reiner) Dephasierungseffekt ist sondern in erster Linie ein *Interferenzphänomen*: Hier induziert der Aufbau von Raman-Korrelation über den direkten Zweiphotonenpfad $1 \xrightarrow{\Omega b^\dagger} 3$ destruktive Interferenz mit dem Pfad $1 \xrightarrow{\Omega} 2 \xrightarrow{b^\dagger} 3$.

Ausgehend von unseren Bewegungsgleichungen schätzen wir dieses Phänomen als *fundamentale* Eigenschaft des resonanten Raman-Prozesses ein: Nach Gln. (4.14) bzw. (B.3) und (B.6) wetteifern beide Anregungspfade um ihre jeweils *einzige* in Λ -Konfigurationen verfügbare Initialquelle – die durch den Kontrolllaser induzierte elektronische Polarisation P^Λ zwischen Anfangs- und Zwischenzustand. Offenbar gewinnt die durch den resonanten Laser effizient getriebene Umwandlung von Polarisation in Besetzungsinversion für wachsende Anregungsintensitäten die Oberhand, während der simultane Aufbau von Raman-Korrelation der Inversion entgegenzuwirken beginnt. Bemerkenswert ist, dass der resonante π -Puls trotz der lediglich *indirekt* über die Besetzung des Zwischenzustands vermittelte Kopplung an den Zielzustand eine nahezu *deterministische* Besetzungsinversion vom Anfangs- in den Zielzustand induzieren kann (*Spin-Flip-Raman-Prozess* [21]) – in unserem Beispiel wird der Zielzustand tatsächlich zu etwa 70% besetzt. Trotz der Ansteuerung des Zielzustandes unter Photonenemission können wir vor diesem Hintergrund im Sinne unserer Definition eines Raman-Photons allerdings nicht von *Raman-Rabi-Oszillationen* sprechen, wie es die Deutung von He *et al.* nahelegt. Denn wir sehen vorwiegend Rabi-Oszillationen des *angeregten* Zustandes (Zustand 2 in unserer Nomenklatur), welche durch den damit einhergehenden Aufbau von Raman-Korrelation abgeschwächt werden. Ein Dämpfungsverhalten der Rabi-Oszillationen, wie es in Quelle [21] beobachtet wird, sollte dementsprechend sogar bereits in Abwesenheit phononischer Effekte sichtbar sein. Ferner resümieren wir, dass der Spin-Flip-Raman-Prozess – welcher *nicht* durch die Raman-Korrelation vermittelt wird – physikalisch völlig verschieden ist vom nichtresonanten Raman-Prozess, welcher über die Raman-Korrelation die rein opti-

sche Steuerung der spektralen Eigenschaften des aus diesem emittierten Raman-Photons durch den Kontrolllaser zulässt.

Unsere neu erschlossene Sichtweise kann dann auch weitere Konsequenzen für die Interpretation experimenteller Ergebnisse nach sich ziehen, insbesondere bei der Analyse von Emissionsspektren. Schließlich demonstriert unser Beispiel aus Abb. 4.9b und aus Abb. 4.10, dass die Gestalt der Spektrallinie stark von den experimentellen Bedingungen abhängt, wie z.B. von der Messdauer des Spektrums oder der Anregungsintensität des Kontrolllasers. Denn offensichtlich messen wir auf der Zeitskala $t = 100$ ps nicht mehr die Linienbreite des Raman-Prozesses sondern der dominanten elektronischen Emission. Insbesondere stellt sich die Frage, welche Linienbreite den auf der kohärenten Zeitskala beobachteten Spektren zugeordnet werden muss – der Einfluss von Interferenz kann zu einer uneindeutigen Verformung der Spektrallinie führen.

He *et al.* berichten zusätzlich im CW-Limes von einer Verbreiterung der Raman-Photonenlinienbreite je kleiner die Verstimmung des Kontrolllasers von der elektronischen Resonanz wird. Hier wäre anhand der konkreten experimentellen Situation zu klären, ob wirklich auch bei $\Delta_L \rightarrow 0$ die gemessene Spektrallinie noch durch die Raman-Photonenemission gegeben ist oder möglicherweise nahezu vollständig aus dem indirekten Anregungspfad herrührt, dessen beobachtete Linienbreite durch die Quantenpunktlinienbreite gegeben wäre. Schauen wir genauer in das Zusatzmaterial von Quelle [54], so finden wir in diesem Zusammenhang in der Tat Kommentare über widersprüchliches Verhalten der Entwicklung der Intensität der Raman-Linie im Vergleich zu ihrer Breite in Abhängigkeit von der eingestrahlten Leistung. Diese Problematik können die Autoren Vora *et al.* dieser Studie auf Basis ihres experimentellen und theoretischen Zugangs – letzterer beruht ausschließlich auf der Auswertung der Von-Neumann-Gleichung – nicht auflösen, weshalb sie dem Leser als offene Frage (siehe Abschnitt *Supplementary Note 4: Raman power dependence* in Quelle [54]) hinterlassen wird.

An diesem Punkt schließen wir die Betrachtung der Dreiniveausysteme ab. Wir haben gesehen, dass die Ankopplung der Cavity entweder an den Anfangszustand (V-artig) oder an den Endzustand (Λ -artig) zwei verschiedene Klassen von Raman-Prozessen definiert, welche sich zum einen durch die unterschiedliche Abhängigkeit von der laserinduzierten elektronischen Polarisierung sowie durch ihre unterschiedlichen kohärenten (Λ -artig) bzw. inkohärenten Anfangsbedingungen (V-artig) physikalisch grundlegend voneinander abgrenzen lassen. Unsere Ergebnisse zeigen deutlich, dass die Kontrollpulsform, die Kontrolllaserverstimmung, die Anregungsintensität und die Resonatorverstimmung zusammen mit der daraus resultierenden Stark-Verschiebung derart aufeinander abzustimmen sind, dass die induzierten Energieverschiebungen kompensiert und die Emissionswahrscheinlichkeit limitierende Interferenzeffekte unterdrückt werden. Dieser im Rahmen dieser Arbeit neu erschlossene Sachverhalt ist offensichtlich mit ein Grund dafür, warum On-Demand-Verhalten der Raman-Emission bisher nicht experimentell realisiert werden konnte. Insbesondere hat die Untersuchung in diesem Kapitel gezeigt, dass unsere hier eingeführte Definition eines Raman-Photons durch die zugehörige Raman-Korrelation ein vielversprechender Ansatz ist, um physikalisch neue Einsichten zu gewinnen sowie darauf aufbauend das Design von Raman-Photonenquellen zu optimieren. Im nächsten und letzten Ergebniskapitel übertragen wir daher nun diesen Ansatz abschließend auf die zu Beginn dieser Arbeit betrachtete Raman-Emission aus dem Biexziton.

4. *Zweiphotonen-Raman-Prozesse in fundamentalen Dreiniveausystemen*

Mikroskopische Analyse der Raman-Emission aus dem Biexziton

In diesem Kapitel möchten wir abschließend den Bogen zurückschlagen zu unserer anfänglich in Kapitel 3 untersuchten Einzelphotonenemission aus dem Quantenpunktbiexziton. Dort hatten wir uns ja bereits davon überzeugt, dass der untersuchte halbstimulierte Zweiphotonenprozess die spektralen Eigenschaften aus der Klasse der Raman-Prozesse – Abstimmbarkeit der Emissionsfrequenz und der Linienbreite durch den Kontrolllaser – erfüllt. Nun möchten wir das in Kapitel 4 für die fundamentalen Dreiniveausysteme eingeführte Rahmenkonzept zur Untersuchung der Raman-Emission auf das volle Vierniveaumodell des Quantenpunktes erweitern, um die Erkenntnisse aus der unter vereinfachten Anregungsbedingungen durchgeführten Erstuntersuchung in Kapitel 3 für ein beliebiges Anregungs- und Materialdesign systematisch zu verallgemeinern. Mit dem Wissen aus Kapitel 4, dass die gesamte Information über die Physik des Raman-Prozesses in seiner *Raman-Korrelation* codiert ist, können wir also den Raman-Emissionszyklus – wie in Abb. 5.1 dargestellt – ganz grundlegend zeitlich auf einer Picosekundenzeitskala gliedern: Nach der Erzeugung des Biexzitons durch den Initialisierungszyklus (z.B. über die entartete Zweiphotonenresonanz [81]) koppelt der auf die Raman-Resonanz abgestimmte Kontrolllaserpuls derart an das System, dass über die Cavity strahlende Raman-Korrelation zwischen Biexziton und Grundzustand aufgebaut wird. Dies soll in der Weise geschehen, dass die Raman-Photonenemission mit einer Wiederherstellung des Grundzustandes einhergeht, um das Schema aus Initialisierung und Einzelphotonenemission periodisch fortsetzen zu können. Da sowohl Laser als auch Resonator in einer gewählten Mode an beide Übergänge der Biexziton-Exziton-Kaskade – die ja einer Ξ -Konfiguration entspricht – koppeln, erwarten wir im Wesentlichen eine *Superposition* aus Λ - und V -artiger Raman-Korrelation. Dazu werden wir zunächst wieder die mikroskopischen Bewegungsgleichungen der Emission herleiten und analysieren, um die entsprechenden Definitionen der *Raman-Population* sowie der zugehörigen *Raman-Emissionswahrscheinlichkeit* daraus zu extrahieren. Auf diese Weise wird es gelingen, Raman-Karten und Input-Output-Kennlinien für die Raman-Photonenemission aus dem Biexziton zu berechnen.

Die Betrachtungen und Ergebnisse in diesem Kapitel werden in der Zukunft der Ausgangspunkt sein für die Gestaltung und Optimierung des System- und Anregungsdesigns einer Einzelphotonenquelle aus der biexzitonischen Raman-Emission [119]. Wir möchten bereits hier anmerken, dass die volle Beschreibung des Vierniveausystems aufgrund der großen Zahl von Anregungspfaden bereits nicht mehr in SDT-Näherung sinnvoll ist. Statt-

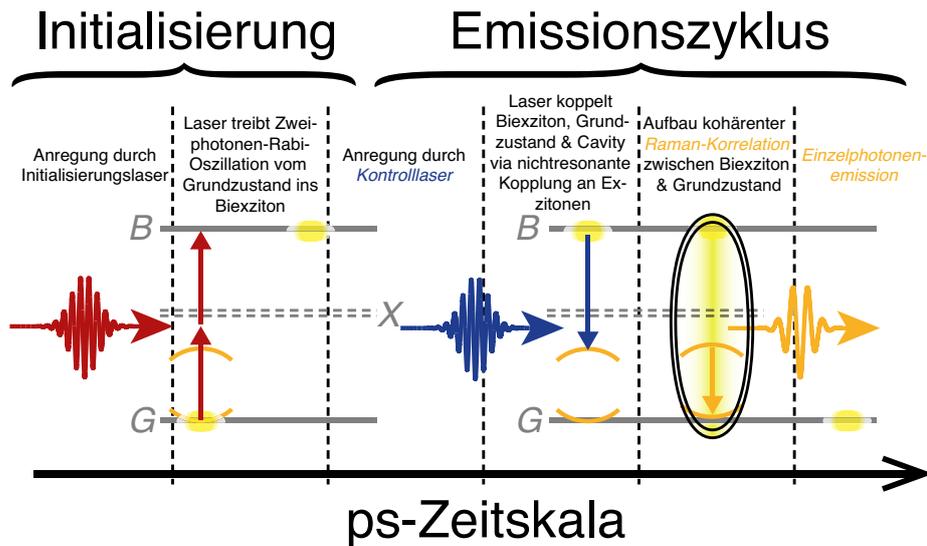


Abbildung 5.1.: Einzelphotonenerzeugung aus dem Quantenpunktbiexziton. In einem ersten Zyklus wird zunächst das Biexziton durch einen auf die entartete Zweiphotonenresonanz der Frequenz $(E_B - E_G)/(2\hbar)$ gestimmten Initialisierungslaser (rot markiert) erzeugt. Auf Basis der Erkenntnisse aus Kapitel 4 können wir den daran anschließenden Raman-Emissionszyklus grob in vier Schritten darstellen: (i) Ein geeigneter ps-Kontrollaserpuls (blau markiert) wird auf das Materialsystem geschossen, in welchem bereits das biexzitonische Niveau bevölkert ist (gelbe Ellipse), (ii) der Laser koppelt nichtresonant an die elektronischen Zustände sowie an den Resonator (gelbe Klammern), (iii) es kommt zum Aufbau von *Raman-Korrelation* zwischen Biexziton und Grundzustand (schwarze Ellipse), welche (iii) mit der Emission eines einzelnen *Raman-Photons* (gelb markiert) sowie der Relaxation des Systems in den Grundzustand einhergeht. Alle Phasen überlappen natürlich zeitlich und sind nur zur schematischen Darstellung sequentiell skizziert worden.

dessen ist der kombinierte Einsatz der formal exakten, aus der Cluster-Entwicklung gewonnenen Definitionen zusammen mit der formal exakt behandelbaren Numerik der Von-Neumann-Gleichung ein effizienterer Ansatz. In den folgenden Abschnitten werden wir uns zunächst weiterhin auf den Raman-Emissionszyklus beschränken, um dann nach dem Erarbeiten und dem grundlegenden Optimieren der Raman-Emissionseigenschaften zum Abschluss unserer Studien einen vollen, aus Initialisierungs- und Emissionszyklus bestehenden Anregungszyklus nach Abb. 5.1 zu diskutieren.

5.1. Bewegungsgleichungen der Emission

Um uns einen Überblick über die auftretenden Anregungs- und Emissionspfade zu verschaffen und daraus die benötigten Definitionen zur Beschreibung der Raman-Emission zu extrahieren, werden wir sukzessive ausgehend von der korrelierten Photonpopulati- on $\langle\langle b_i^\dagger b_i \rangle\rangle$ in den beiden Moden $i = H$ und V die Bewegungsgleichungen im Formalismus der Cluster-Entwicklung aufstellen. Hierzu wenden wir das in Abb. 2.3 skizzierte Faktori- sierungsschema auf die aus dem Hamilton-Operator, Gln. (2.1) und (2.6), in Kombination mit der Heisenberg-Gleichung, Gl. (2.19), resultierenden Bewegungsgleichungen an. Die in Gln. (4.7)-(4.9) für die Dreiniveausysteme notierten Faktorisierungen lassen sich leicht auf das volle Vierniveauschema übertragen, und wir entwickeln daraus die Korrelations- gleichungen wieder nach dem Prinzip von Gl. (2.24).

Die Gesamtemission des Quantenpunkt-Cavity-Systems in der i -Mode wird durch die Bewegungsgleichung der korrelierten Photonpopulation,

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle\langle b_i^\dagger b_i \rangle\rangle = -\kappa \langle\langle b_i^\dagger b_i \rangle\rangle + \frac{2g}{\hbar} \text{Im} \left(\langle\langle P_{G,X_i} b_i^\dagger \rangle\rangle + \langle\langle P_{X_i,B} b_i^\dagger \rangle\rangle \right), \quad (5.1)$$

beschrieben, welche nunmehr aus der Superposition der beiden fundamentalen photonen-assistierten Polarisierungen der Biexziton-Exziton-Kaskade gegeben ist. Bemerkenswert ist, dass diese Gleichung formal mit unserer Einmodennäherung, Gl. (3.5), übereinstimmt: Die Ankopplung an die zweite Mode findet erst in der nächsten Ordnung der Gleichungshierarchie statt. Dies ist der Grund dafür, dass unsere reduzierte Modellbildung aus Kapitel 3 zumindest qualitativ eine erstaunlich weite Aussagekraft bietet. In der Sprache unserer Betrachtungen der fundamentalen Dreiniveausysteme können wir formulieren, dass jene Superposition in Gl. (5.1) formal aus einer Λ -artigen, $\langle\langle P_{G,X_i} b_i^\dagger \rangle\rangle$, und einer V-artigen Ankopplung, $\langle\langle P_{X_i,B} b_i^\dagger \rangle\rangle$, des jeweiligen Resonators an die einer Ξ -Konfiguration entsprechenden Kaskade besteht. Hierbei nehmen wir gedanklich die Nummerierung der elektronischen Zustände $B \equiv 1$, $X_i \equiv 2$ und $G \equiv 3$ vor. Wir wollen für die Lichtmoden $i = H, V$ vereinbaren, dass $\bar{H} \equiv V$ und $\bar{V} \equiv H$ bedeute, um im Folgenden eine kompakte Notation zu ermöglichen. Somit kann die Korrelationsgleichung der Λ -artigen photonen-assistierten Polarisation zwischen Exziton und Grundzustand in der i -Mode geschrieben werden als

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \langle\langle P_{G,X_i} b_i^\dagger \rangle\rangle = & -i \left(\omega_{X_i} - \omega_G - \omega_i - i \frac{\kappa + \Gamma_{G,X_i}}{2} \right) \langle\langle P_{G,X_i} b_i^\dagger \rangle\rangle - \frac{i\mathcal{E}_i^*}{\hbar} \langle\langle P_{G,B} b_i^\dagger \rangle\rangle \\ & + \frac{ig}{\hbar} \langle P_{X_i,X_i} \rangle - \frac{ig}{\hbar} \langle \sigma_{G,X_i} \rangle \langle\langle b_i^\dagger b_i \rangle\rangle - \frac{ig}{\hbar} \langle\langle \sigma_{G,X_i} b_i^\dagger b_i \rangle\rangle - \frac{ig}{\hbar} \langle\langle P_{G,B} b_i^\dagger b_i^\dagger \rangle\rangle \\ & + \frac{i\mathcal{E}_{\bar{i}}}{\hbar} \langle\langle P_{X_i,X_i} b_i^\dagger \rangle\rangle + \frac{ig}{\hbar} \langle\langle P_{X_i,X_i} b_i^\dagger b_{\bar{i}} \rangle\rangle - \frac{ig}{\hbar} \langle P_{G,X_i} \rangle \langle P_{X_i,B} \rangle^* - \frac{ig}{\hbar} |\langle P_{G,X_i} \rangle|^2 \\ & - \frac{ig}{\hbar} \langle P_{G,B} \rangle \langle\langle b_i^\dagger b_i^\dagger \rangle\rangle + \frac{ig}{\hbar} \langle P_{X_i,X_i} \rangle \langle\langle b_i^\dagger b_{\bar{i}} \rangle\rangle - \frac{i\mathcal{E}_i}{\hbar} \langle\langle \sigma_{G,X_i} b_i^\dagger \rangle\rangle. \end{aligned} \quad (5.2)$$

Hierbei haben wir die *effektive Rabi-Energie* des Kontrolllasers, $\mathcal{E}_i(t) \equiv \Omega_i(t) + g\langle b_i \rangle(t)$, in der i -Mode identifiziert – der Laser kann im vollen Quantenpunktmodell [Abb. 2.1] nun auch direkt über das Material Photonen in den Resonator in derselben Mode einkoppeln. Dies hatten wir ja im Falle der fundamentalen Dreiniveausysteme durch zueinander orthogonale Dipolmomente von laserassistiertem und resonatorverstärktem Übergang ausgeschlossen. An dieser Stelle finden wir in den ersten beiden Zeilen unsere Λ -artige Bewegungsgleichung, Gl. (4.12) bzw. (B.2), wieder, die hier durch die ersten vier Quellterme auf der rechten Seite gebildet wird. Insbesondere identifizieren wir im ersten Quellterm die Raman-Korrelation zwischen Biexziton und Grundzustand,

$$R_i \equiv \langle\langle P_{G,B} b_i^\dagger \rangle\rangle = \langle P_{G,B} b_i^\dagger \rangle - \langle P_{G,B} \rangle \langle b_i^\dagger \rangle. \quad (5.3)$$

5. Mikroskopische Analyse der Raman-Emission aus dem Biexziton

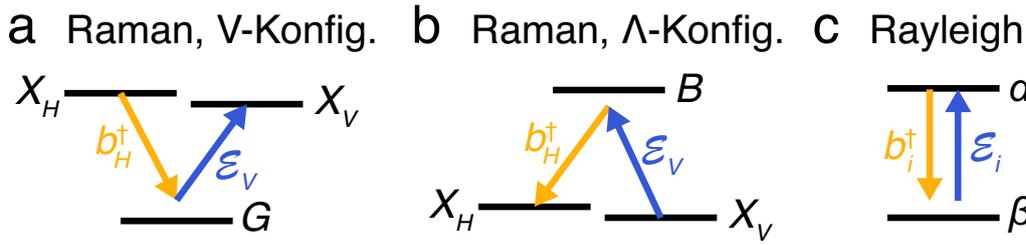


Abbildung 5.2.: Laserassistierte Prozesse. Wir veranschaulichen die in den Bewegungsgleichungen, Gln. (5.2) und (5.4), neben dem Raman-Prozess zwischen Biexziton und Grundzustand [Abb. 5.1] auftretenden laserassistierten Anregungspfade. Gezeigt sind (a) $\mathcal{E}_i \langle \langle P_{X_i, X_i} b_i^\dagger \rangle \rangle$, (b) $\mathcal{E}_i \langle \langle P_{X_i, X_i} b_i^\dagger \rangle \rangle$ für $i = H$ sowie (c) $\mathcal{E}_i \langle \langle P_{\alpha, \alpha} b_i^\dagger \rangle \rangle$. Natürlich sind je nach Anfangsbedingung auch die umgekehrten Prozesse möglich.

Die Eigenfrequenz der photonenassistierten Polarisation, $\omega_{X_i, G} \equiv \omega_{X_i} - \omega_G - \omega_i - i \frac{\kappa + \Gamma_{G, X_i}}{2}$, ist wie zu erwarten durch die um die jeweilige Resonatorfrequenz verstimimte Übergangsfrequenz zwischen Exziton und Grundzustand gegeben. Hier haben wir wieder eine effektive elektronische Dephasierungskonstante, Γ_{G, X_i} , eingeführt, welche Polarisations- und strahlenden Zerfall beinhalten kann (siehe Anhang A.1). Über unsere bereits aus den Dreiniveausystemen bekannten Quellterme hinausgehend machen wir in Gl. (5.2) aber noch weitere Anregungspfade aus, welche auch die jeweils komplementäre Mode \bar{i} einbeziehen können. Der fünfte Quellterm, $\langle \langle P_{G, B} b_i^\dagger b_i^\dagger \rangle \rangle$, beschreibt den vollständig *spontanen Zweiphotonenprozess* [78–80] zwischen Biexziton und Grundzustand in der i -Mode. Wir möchten noch den sechsten Quellterm, $\mathcal{E}_i \langle \langle P_{X_i, X_i} b_i^\dagger \rangle \rangle$, besonders hervorheben: Hierbei handelt es sich um den Raman-Prozess in V-Konfiguration, der ausgehend vom Exziton X_i durch Absorption des Kontrolllaserpulses \mathcal{E}_i in der zu i komplementären Mode ein Raman-Photon in der i -Mode erzeugen kann [Abb. 5.2a]. Der Endzustand dieses Prozesses ist dann das Exziton $X_{\bar{i}}$ und der Zwischenzustand der Grundzustand. Offensichtlich kann dieser Prozess aber nur stattfinden, wenn wir in der \bar{i} -Mode pumpen. Der siebte Quellterm, $\langle \langle P_{X_i, X_i} b_i^\dagger b_{\bar{i}} \rangle \rangle$, beschreibt entsprechend das spontane Analogon. Beim letzten Quellterm auf der rechten Seite, $\mathcal{E}_i \langle \langle \sigma_{G, X_i} b_i^\dagger \rangle \rangle$, handelt es sich um eine Korrelation zwischen Photonen und Inversion, welche sich in Gegenwart des Kontrolllasers aufbauen kann. Dieser Anregungspfad mutet verständlicher an, sobald wir die Inversion wieder explizit notieren, $\sigma_{\alpha, \beta} = P_{\alpha, \alpha} - P_{\beta, \beta}$, und uns die elementarere Anregung $\mathcal{E}_i \langle \langle P_{\alpha, \alpha} b_i^\dagger \rangle \rangle$ anschauen. Hierbei handelt es sich offenbar um einen Pfad, welcher unter Emission eines Resonatorphotons und Absorption eines Laserphotons nur die Besetzung eines einzigen Zustandes involviert: Dies entspricht also einem Reabsorptionsprozess (*Rayleigh-Prozess* [55]), und wir haben den entsprechenden Pfad in Abb. 5.2c skizziert. In Quelle [104] wird dieser Beitrag als Gedächtniseffekt (*quantum memory*) bezeichnet, da er misst, wie die Anregung durch den Laser von der Emission – also einer früheren Anregung – abhängt. Dies trifft aber auch auf den Raman-Prozess zu, sodass jene Bezeichnung in unserem Zusammenhang nicht sinnvoll ist, um die Beiträge voneinander abgrenzend zu klassifizieren. Wir werden auf diesen Beitrag noch bei der Diskussion der Input-Output-Kennlinien zurück kommen. Weiterhin machen wir noch nichtlineare Kopplungen der verschiedenen elektronischen Polarisierungen und andere Terme aus, die wir im Folgenden aber nicht mehr genauer diskutieren und analysieren werden.

Analog finden wir für die photonenassistierte Polarisation zwischen Biexziton und Ex-

ziton

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial}{\partial t} \langle\langle P_{X_i, B} b_i^\dagger \rangle\rangle &= -i \left(\omega_B - \omega_{X_i} - \omega_i - i \frac{\kappa + \Gamma_{X_i, B}}{2} \right) \langle\langle P_{X_i, B} b_i^\dagger \rangle\rangle + \frac{i \mathcal{E}_i^*}{\hbar} \langle\langle P_{G, B} b_i^\dagger \rangle\rangle \\
 &+ \frac{ig}{\hbar} \langle P_{B, B} \rangle - \frac{ig}{\hbar} \langle \sigma_{X_i, B} \rangle \langle\langle b_i^\dagger b_i \rangle\rangle - \frac{ig}{\hbar} \langle\langle \sigma_{X_i, B} b_i^\dagger b_i \rangle\rangle + \frac{ig}{\hbar} \langle\langle P_{G, B} b_i^\dagger b_i^\dagger \rangle\rangle \\
 &- \frac{i \mathcal{E}_i}{\hbar} \langle\langle P_{X_i, X_i} b_i^\dagger \rangle\rangle - \frac{ig}{\hbar} \langle\langle P_{X_i, X_i} b_i^\dagger b_i \rangle\rangle - \frac{ig}{\hbar} \langle P_{G, X_i} \rangle^* \langle P_{X_i, B} \rangle - \frac{ig}{\hbar} |\langle P_{X_i, B} \rangle|^2 \\
 &+ \frac{ig}{\hbar} \langle P_{G, B} \rangle \langle\langle b_i^\dagger b_i^\dagger \rangle\rangle - \frac{ig}{\hbar} \langle P_{X_i, X_i} \rangle \langle\langle b_i^\dagger b_i \rangle\rangle - \frac{i \mathcal{E}_i}{\hbar} \langle\langle \sigma_{X_i, B} b_i^\dagger \rangle\rangle. \tag{5.4}
 \end{aligned}$$

Hier definieren wir die Übergangsfrequenz zwischen Biexziton und Exziton als $\omega_{B, X_i} \equiv \omega_B - \omega_{X_i} - \omega_i - i \frac{\kappa + \Gamma_{X_i, B}}{2}$, und haben die elektronische Dephasierungskonstante $\Gamma_{X_i, B}$ eingeführt. Wie schon in Gl. (5.2), finden wir auch hier bereits aus den Dreiniveausystemen bekannte Quellterme wieder, nämlich die V-artige Gleichung der photonenassistierten Polarisation, Gl. (4.13) bzw. (B.12), welche in Gl. (5.4) durch die ersten vier Quellterme gegeben ist. Unter den weiteren Quelltermen identifizieren wir den Raman-Prozess in Λ -Konfiguration, $\mathcal{E}_i \langle\langle P_{X_i, X_i} b_i^\dagger \rangle\rangle$, zwischen den beiden Exzitonen, $X_i \xrightarrow{\mathcal{E}_i b_i^\dagger} X_i$, welcher das Biexziton B als Zwischenzustand involviert [Abb. 5.2b].

An dieser Stelle möchten wir nun noch einen genaueren Blick auf die Gleichung der in Gln. (5.2) und (5.4) auftretenden *Raman-Korrelation* R_i zwischen Biexziton und Grundzustand werfen, welche schließlich den in unserer Skizze, Abb. 5.1, gezeigten Mechanismus zur Einzelphotonenemission aus dem Biexziton vermittelt. Diese gehorcht der Bewegungsgleichung

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial}{\partial t} \langle\langle P_{G, B} b_i^\dagger \rangle\rangle &= -i \left(\omega_B - \omega_G - \omega_i - i \frac{\kappa + \Gamma_{G, B}}{2} \right) \langle\langle P_{G, B} b_i^\dagger \rangle\rangle \\
 &+ \frac{i}{\hbar} \sum_{j=H, V} \left[-\mathcal{E}_j \langle\langle P_{G, X_j} b_i^\dagger \rangle\rangle + g \langle P_{X_j, B} \rangle (\delta_{i, j} + \langle\langle b_i^\dagger b_j \rangle\rangle) + g \langle\langle P_{X_j, B} b_i^\dagger b_j \rangle\rangle \right] \\
 &+ \frac{i}{\hbar} \sum_{j=H, V} \left[\mathcal{E}_j \langle\langle P_{X_j, B} b_i^\dagger \rangle\rangle - g \langle P_{G, X_j} \rangle \langle\langle b_i^\dagger b_j \rangle\rangle - g \langle\langle P_{G, X_j} b_i^\dagger b_j \rangle\rangle \right] \\
 &- \frac{ig}{\hbar} (\langle P_{X_i, B} \rangle^* + \langle P_{G, X_i} \rangle^*) \langle P_{G, B} \rangle, \tag{5.5}
 \end{aligned}$$

wobei wir analog zu den obigen Gleichungen die Eigenfrequenz durch $\omega_{B, G} \equiv \omega_B - \omega_G - \omega_i - i \frac{\kappa + \Gamma_{G, B}}{2}$ abkürzen möchten. Im Vergleich zu den Raman-Korrelationsgleichungen der fundamentalen Dreiniveausysteme erkennen wir für $i = j$ sofort in der zweiten Zeile die Λ -artige, Gl. (4.14) bzw. (B.3), und in der dritten Zeile die V-artige Raman-Gleichung, Gl. (4.15) bzw. (B.13) wieder. Die bekannten Quellterme werden durch die Ankopplung an die komplementäre Mode, $j = \bar{i}$, verallgemeinert. Wie stark die Kopplung der beiden Moden ist, können wir erst durch unsere Simulationen in den kommenden Abschnitten klären. Zudem finden wir in der letzten Zeile der Raman-Gleichung noch weitere elektronische Quellterme, welche aus nichtlinearen Kopplungen der elektronischen Polarisationen zwischen allen Zuständen in der i -Mode bestehen.

5. Mikroskopische Analyse der Raman-Emission aus dem Biexziton

Für eine quasistationäre CW-Anregung in der i -Mode, $\Omega_i(t) = \Omega_{0,i}e^{-i\omega_L t}$, schlagen wir unter Vernachlässigung der Rückkopplung an die Cavity sowie der direkten i - \bar{i} -Kopplung in Gln. (5.2)-(5.5), eine Verallgemeinerung der Optimalverstimmung, Gl. (3.10), vor,

$$\Delta_L^{\text{opt},i} = -\Omega_{0,i}^2 \text{Re} \left(\frac{1}{\hbar\omega_{X_i,G}} + \frac{1}{\hbar\omega_{B,X_i}} \right), \quad (5.6)$$

deren Gültigkeit wir ebenfalls erst im Rahmen der noch ausstehenden systematischen Simulationen überprüfen können werden.

Wie schon zuvor im Falle der Dreiniveausysteme sind wir nun in der Lage durch formales Aufintegrieren der Populationsgleichung, Gl. (5.1), und der darin beitragenden photonenassistierten Polarisierungen, Gln. (5.2) und (5.4), die durch den Kontrolllaser generierte *Raman-Population* in der i -Mode zu definieren,

$$N_{i,R} \equiv \frac{2g}{\hbar^2} \text{Re} \int_0^t dt' \int_0^{t'} dt'' e^{-\kappa(t-t')} \left(e^{-i\omega_{B,X_i}(t'-t'')} - e^{-i\omega_{X_i,G}(t'-t'')} \right) \mathcal{E}_i^*(t'') R_i(t''). \quad (5.7)$$

Hier erkennen wir sofort, dass im Falle $\omega_{B,X_i} = \omega_{X_i,G}$ – also für verschwindende Biexzitonbindungsenergie, $\Delta E_B \rightarrow 0$ – keine Raman-Photonen erzeugt werden können. Diese Eigenschaft hatten wir bereits anhand von Gl. (3.11) ablesen können, was einmal mehr zeigt, dass unsere reduzierende Modellbildung im CW-Limes eine erstaunlich fundamentale Aussagekraft besitzt. Jene Abhängigkeit der Raman-Population von der Bindungsenergie des Biexzitons muss folglich bei der Gestaltung eines optimalen Materialsystems berücksichtigt werden. Analog zu Gln. (4.25) und (4.27) führen wir die Gesamtemissionswahrscheinlichkeit,

$$\mathcal{P}_i(t) = \kappa \int_0^t dt' \langle b_i^\dagger b_i \rangle(t'), \quad (5.8)$$

und die *Raman-Emissionswahrscheinlichkeit*,

$$\mathcal{P}_{i,R}(t) = \kappa \int_0^t dt' N_{i,R}(t'), \quad (5.9)$$

in der i -Mode ein. Unter unseren Anregungsbedingungen und der Anfangsbedingung eines besetzten Biexzitons gilt $0 \leq \mathcal{P}_i \leq 2$, wobei wir weiterhin – wie im vorigen Kapitel – $\mathcal{P}_{i,R} = 1$ mit einer hundertprozentigen Emissionswahrscheinlichkeit identifizieren wollen.

Für alle im Folgenden diskutierten Emissionseigenschaften des Raman-Prozesses zwischen Biexziton und Grundzustand möchten wir ein einheitliches und realistisches Materialsystem annehmen, mit welchem wir an unsere Betrachtungen der generischen Dreiniveausysteme in Kapitel 4 anknüpfen können. Dazu setzen wir wieder $\hbar\kappa = 186 \mu\text{eV}$ und

$g = 57 \mu\text{eV}$. Die effektiven Dephasierungskonstanten der Polarisierungen seien weiterhin $\hbar\Gamma_{\alpha,\beta} = 30 \mu\text{eV}$, was in Gl. (2.18) den Lindblad-Operatoren $L = \sqrt{\hbar\gamma_{\alpha,\beta}}P_{\alpha,\beta}$ mit $\hbar\gamma_{\alpha,\beta} \approx 4 \mu\text{eV}$ (siehe Gl. (A.3)) entspricht. Hier wollen wir zudem eine typische Rate für strahlenden Zerfall der Besetzungen annehmen, welche wir nach Gln. (A.4) und (A.6) über die Lindblad-Operatoren $L = \sqrt{\hbar r_{G,X_i}}P_{G,X_i}$, $\sqrt{\hbar r_{X_i,B}}P_{X_i,B}$ einführen. Wir wählen $\hbar r_{\alpha,\beta} = 2 \mu\text{eV}$. Zudem seien die Übergangsenergien $E_B - E_{X_H} = 1.363 \text{ eV}$ und $E_{X_H} - E_G = 1.366 \text{ eV}$, die Feinstrukturaufspaltung sei $E_{X_H} - E_{X_V} = 25 \mu\text{eV}$. All unsere Parameter stimmen explizit mit experimentell ermittelten Werten InGaAs-basierter Quantenpunkt-Mikroresonator-Systeme überein [106]. Die Energien der Resonatormoden werden wir wie schon in Kapitel 3 im Hinblick auf die (in dieser Arbeit nicht untersuchte) angestrebte Polarisationskontrolle als identisch annehmen, $\hbar\omega_H = \hbar\omega_V \equiv \hbar\omega_C$. Zudem beschränken wir uns exemplarisch auf Rechteck-Anregungen durch den Kontrolllaser in der H -Mode: Zum einen lässt dies wieder die Interpretation der numerischen Simulationen durch unsere CW-Analytik zu, zum anderen hatten wir in Abschnitt 4.3.3 gesehen, dass beispielsweise Gauß-Pulse aufgrund ihrer pulsförmigen Stark-Verschiebungen deutlich komplizierter zu behandeln sind (siehe auch Anhang A.2.3). Kurzum, Rechteckpulse stellen zur Ergründung der fundamentalen Eigenschaften der Raman-Emission aus dem Biexziton ein geeignetes, da wohlkontrollierbares, Testwerkzeug dar.

Unsere für das Vierniveausystem verallgemeinerte Raman-Komponente der Populationszerlegung, Gl. (5.7), haben wir in Abb. 5.3 in einem ersten Beispiel für vier verschiedene Resonatorenenergien, $\hbar\omega_C = E_B - E_{X_H} \pm 0.8 \text{ meV}$ und $E_{X_H} - E_G \pm 0.8 \text{ meV}$, veranschaulicht. Die Wahl von $\hbar\omega_C$ garantiert geringen spektralen Überlapp zwischen Cavity- und elektronischer Resonanz sowie zwischen Cavity und Laser. Wir erinnern daran, dass der Laser-Cavity-Überlapp relevant werden kann, sobald durch diesen die *unmittelbare* Einkopplung von Laserphotonen in den Resonator begünstigt wird. Erst *experimentelle* Tests werden diesen Einfluss quantifizieren können und eine adäquate phänomenologische Erweiterung unseres Modells, Gl. (2.6), ermöglichen [54]. Wir gehen aber davon aus, dass unsere hier verwendete Modellierung dennoch dazu geeignet ist, grundsätzliche Trends zur Optimierung des Quantenpunkt-Cavity-Designs im Hinblick auf die Steigerung der Raman-Effizienz aufzuzeigen.

Zum qualitativen Vergleich wollen wir nun die Λ - und V -artigen Anregungsszenarien, Abb. 4.3e und 4.3f, heranziehen. Wir erkennen dabei, dass die beiden Szenarien in Abbn. 5.3a und 5.3b sowie Abbn. 5.3c und 5.3d, bei denen die Cavity-Resonanz nahe am Biexziton-Exziton-Übergang platziert ist, die charakteristische V -artige spontane Emission nahe $t = 0$ (siehe graue Fläche) aufweist, bevor sich Raman-Population aufbaut (gelbe Linie). Insbesondere, wenn die Cavity energetisch unterhalb der Biexziton-Exziton-Resonanz platziert wird, $\hbar\omega_C < E_B - E_{X_H}$, bemerken wir eine ausgeprägte Hintergrundemission aus dem Biexziton, denn wir berechnen als Gesamtemissionswahrscheinlichkeit $\mathcal{P}(t = 40 \text{ ps}) = 14\%$ und eine Raman-Wahrscheinlichkeit von $\mathcal{P}_{H,R}(t = 40 \text{ ps}) = 7\%$. Die beiden anderen Szenarien, Abbn. 5.3e und 5.3f sowie Abbn. 5.3g und 5.3h, zeigen spontane Emission zu Beginn kaum – hier befindet sich die Cavity nahe der Exziton-Grundzustand-Resonanz, was einer Λ -artigen Ankopplung nahekommt. Insgesamt bemerken wir, dass – zumindest in unserem Beispiel – die Emissionswahrscheinlichkeit gesteigert wird, wenn die Cavity-Resonanz energetisch zwischen den beiden elektronischen Resonanzen liegt, $E_B - E_{X_H} < \hbar\omega_C < E_{X_H} - E_G$. Hier messen wir $\mathcal{P}(t = 40 \text{ ps}) \approx \mathcal{P}_{H,R}(t = 40 \text{ ps}) \approx 20\%$. Insbesondere ist das V -artige Szenario $\hbar\omega_C = E_B - E_{X_H} + 0.8 \text{ meV}$ [Abbn. 5.3c und 5.3d] mit einsetzendem Aufbau der Raman-Population deutlich

5. Mikroskopische Analyse der Raman-Emission aus dem Biexziton

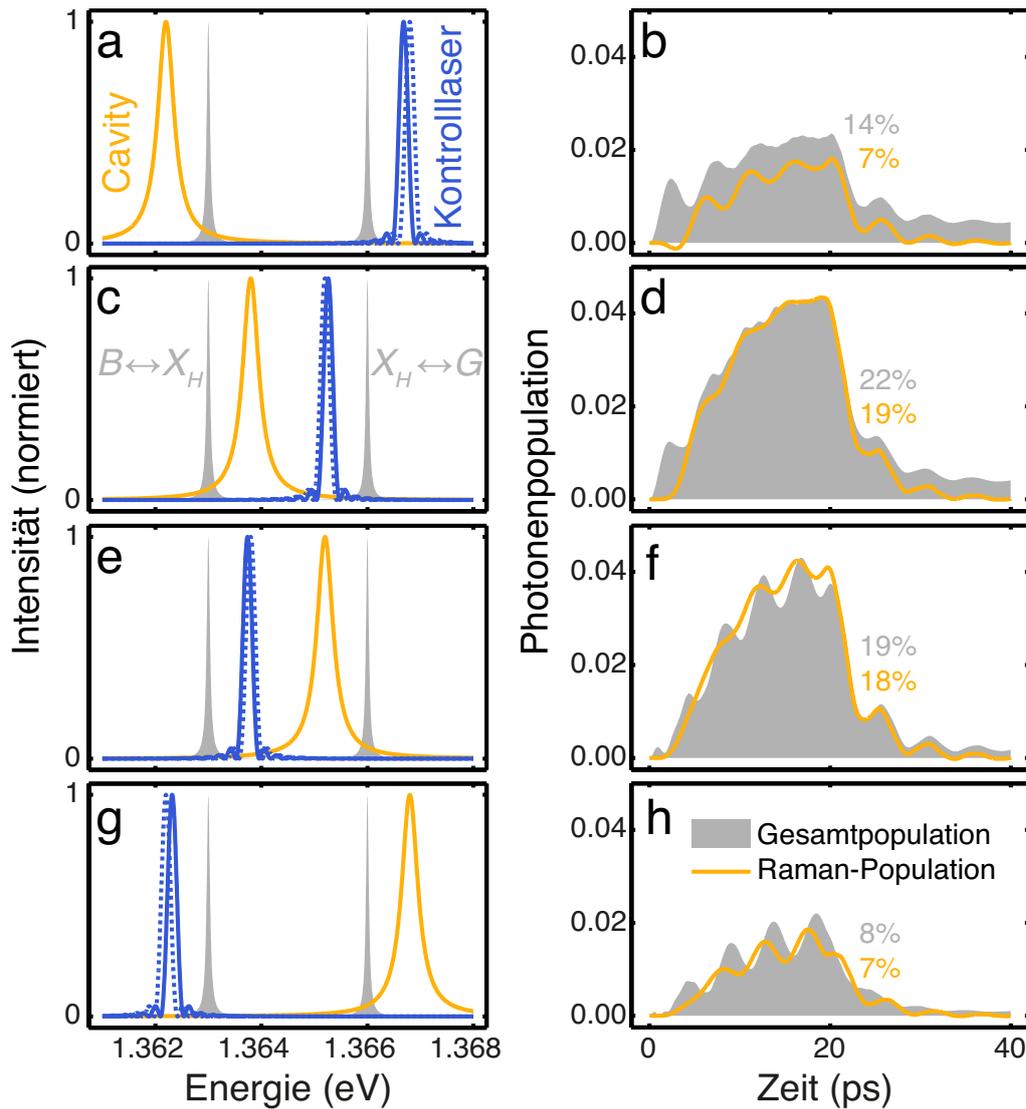


Abbildung 5.3.: Raman-Populationsdynamik in der H -Mode. Für die rechteckige Einhüllende aus Kapitel 4 [Abb. 4.3d] zeigen wir für vier verschiedene Resonatorenenergien, $\hbar\omega_C = E_B - E_{X_H} \pm 0.8$ meV und $E_{X_H} - E_G \pm 0.8$ meV, die relevanten Linienbreiten der jeweiligen Systemkonfiguration (linke Spalte) und die zugehörige Emissionsdynamik (rechte Spalte) in der H -Mode. Die Anregung findet ausschließlich in der H -Mode statt, und die Systemparameter sind $\hbar\kappa = 186$ μ eV, $g = 57$ μ eV. In der linken Spalte zeigen wir explizit die Intensitäten der Biexziton-Exziton- und Exziton-Grundzustand-Resonanz (graue Flächen), der Cavity (gelbe Linie) und des 18-ps-Rechteckpulses mit (blaue durchgezogene Linie) und ohne Korrektur der Stark-Verschiebung (blaue gestrichelte Linie). In der rechten Spalte ist die Gesamtemission $\langle b_H^\dagger b_H \rangle$ (graue Fläche) zusammen mit der Raman-Population nach Gl. (5.7) für eine 5π -Anregung über der Zeit dargestellt, die Emissionswahrscheinlichkeiten wurden nach Gln. (5.8) und (5.9) ermittelt.

hintergrundfreier als das V-artige Szenario mit $\hbar\omega_C = E_B - E_{X_H} - 0.8$ meV [Abbn. 5.3a und 5.3b]. Das Erscheinungsbild der Emission legt nahe, dass wir in einen *Hybridbereich* zwischen Λ - und V-artiger Ankopplung eintreten, innerhalb dessen möglicherweise *beide* Initialquellen der Raman-Emission – elektronische Polarisation und Umwandlung der inkohärenten Emission – gewinnbringend zur Verfügung stehen.

Um unsere ersten Beobachtungen bekräftigen und verallgemeinern zu können, müssen

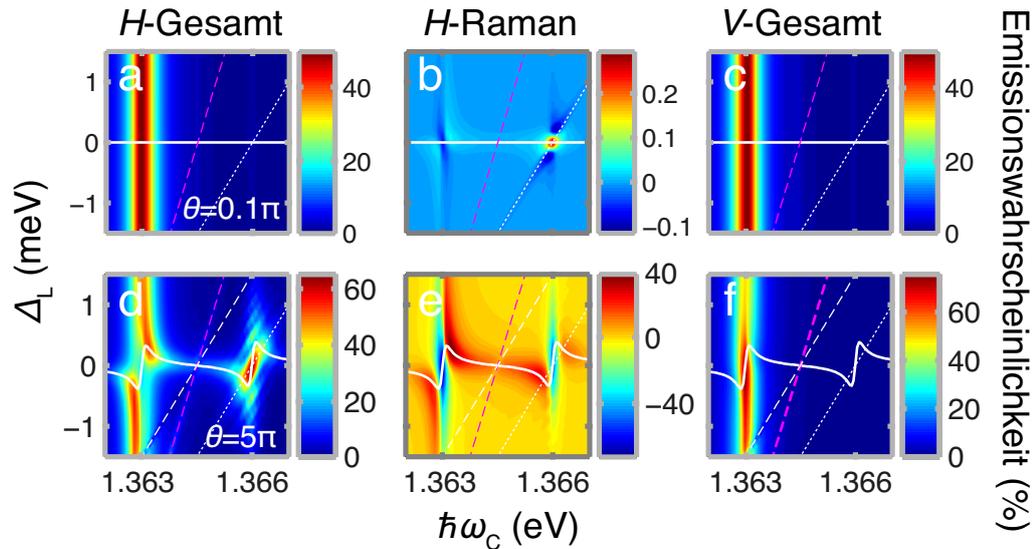


Abbildung 5.4.: Emissionskarten. Wir zeigen die Emissionskarten der Gesamt- und Raman-Emission in der H -Mode (linke und mittlere Spalte) sowie der Gesamt-Emission in der V -Mode (rechte Spalte) für eine H -polarisierte 0.1π - (a-c) und 5π -Rechteckanregung (d-f). Zur Orientierung sind die CW-Optimalkennlinie (weiße durchgezogene Linie), Gl. (5.6), die Laser-Cavity-Resonanz (magentafarbene gestrichelte Linie), $\hbar\omega_L = \hbar\omega_C$, die entartete Zweiphotonenresonanz (weiße gestrichelte Linie), $\hbar\omega_L = (E_B - E_G)/2$, sowie die Resonanz zwischen Laser und Biexziton-Exziton-Übergang (weiße gepunktete Linie), $\hbar\omega_L = E_B - E_{X_H}$, eingezeichnet.

wir wieder eine systematische Untersuchung aller denkbaren repräsentativen Systemkonfigurationen anstreben. Dies gelingt erneut durch die Berechnung von Emissionskarten, die die Emissionswahrscheinlichkeit in Abhängigkeit von der Kontrolllaserstimmung Δ_L und der Resonatorenergie $\hbar\omega_C$ abbilden. Für daraus ablesbare Optimalkriterien können dann wieder exemplarische Kennlinien aufgezeichnet werden, die die Emissionswahrscheinlichkeit gegenüber der Pulsfläche des Kontrolllaserpulses darstellen.

5.2. Raman-Emissionscharakteristik des Biexzitons

In diesem Abschnitt werden wir analog zu Kapitel 4 Emissionskarten und Input-Output-Kennlinien für die Raman-Emission aus dem Biexziton ausrechnen, die wir mithilfe von unseren aus der grundlegenden Analyse der Dreiniveausysteme gewonnenen Erkenntnissen interpretieren wollen. Dabei streben wir die Ermittlung grundlegender Trends – insbesondere für die Wahl der Resonatorfrequenz ω_C , der Pulsfläche θ sowie der Kontrolllaserstimmung Δ_L – im Bezug auf die Überführung der Raman-Emission in den On-Demand-Limes an.

5.2.1. Raman-Emissionskarten

Anknüpfend an die Emissionskarten der Λ - und V -artigen Dreiniveausysteme, Abb. 4.4, berechnen wir wieder für unseren Rechteckpuls Emissionskarten für eine schwache, $\theta = 0.1\pi$, [Abbn. 5.4a-5.4c] und eine starke Anregung in der H -Mode, $\theta = 5\pi$, [Abbn. 5.4d-5.4f]. Die Pulsfläche in der V -Mode ist stets null, $\theta = 0$, da wir ja wie oben vereinbart das

5. Mikroskopische Analyse der Raman-Emission aus dem Biexziton

Quantenpunkt-Mikroresonator-System exemplarisch ausschließlich in der H -Mode anregen. Wir zeigen hier die Gesamtemission sowie die Raman-Emission in der H -Mode in den ersten beiden Spalten von Abb. 5.4, und wir zeigen darüber hinaus zum Vergleich die Gesamtemission in der V -Mode in der dritten Spalte. Bevor wir die Abbildungen diskutieren, möchten wir nochmals daran erinnern, dass in unserem zugrundeliegenden Modell-Hamilton-Operator, Gl. (2.6), keine *unmittelbare* Einkopplung von Laserphotonen in den Resonator eingeschlossen ist, sondern lediglich vermittelt des Quantenpunktmaterials. Daher haben wir die Resonanz zwischen Laser und Cavity, $\hbar\omega_L = \hbar\omega_C$, in allen Abbildungen von Abb. 5.4 durch die magentafarben gestrichelten Linien gekennzeichnet, in deren unmittelbarer Umgebung in der Größenordnung der Cavity-Breite $\hbar\kappa$ unser Modell nur eingeschränkte Gültigkeit besitzt. Dieser Bereich ist aber ohnehin nicht von Interesse für die Erzeugung eines Einzelphotons, denn es würde ja in diesem Falle mit den Laserphotonen energetisch in derselben Polarisationsmode entarten, was ein Herausfiltern des Lasers unmöglich machte.

Wir beginnen nun zunächst mit der Analyse der Gesamtemission in der H -Mode: Bei schwacher Anregung [Abbn. 5.4a] erkennen wir deutlich den V -artigen ausgeprägten Streifen entlang der Resonanz $\hbar\omega_C = E_B - E_{X_H} = 1.363$ eV, welcher aus der Verstärkung des Biexziton-Exziton-Übergangs durch die resonante Cavity resultiert. Entlang der Exziton-Grundzustand-Resonanzlinie, $\hbar\omega_C = E_{X_H} - E_G = 1.366$ eV, machen wir hingegen keine in unserer Darstellung sichtbare Emission aus. Unsere analytische CW-Optimalkennlinie, Gl. (5.6), (weiße durchgezogene Linie) zeigt hier keine relevanten Stark-Verschiebungen an. Dies ändert sich beim Übergang zu großen Pulsflächen: In Abb. 5.4d erkennen wir nun deutlich die Überlagerung von V - und Λ -typischer Ausprägung der Musterbildung in der Gesamtemission – V -artig entlang der Biexziton-Exziton-Resonanz, Λ -artig entlang der Exziton-Grundzustand-Resonanz. Die Optimalkennlinie gibt sehr gut die Symmetrieeigenschaften der Musterbildung wieder, zum einen die Aufspaltung des V -artigen Streifens, zum andern die Orientierung des Λ -artigen Musters entlang der Resonanz $\hbar\omega_L = E_B - E_{X_H}$ (weiße gepunktete Linie) von Laser und Biexziton-Exziton-Übergang. Somit behalten die Interferenzkriterien aus Kapitel 4, Gln. (4.29) und (4.30), jeweils lokal um die elektronischen Resonanzen herum ihre Gültigkeit. In der bezüglich der ω_C -Achse gesehenen niederenergetischen Flanke der V -artigen Emission erkennen wir – abweichend zum Dreiniveausystem mit orthogonalen Dipolmomenten – aber noch einen deutlichen Einschnitt, welcher daraus resultiert, dass der Kontrolllaser mit dem entarteten Zweiphotonenprozess (weiße gestrichelte Linie) resonant wird, $\hbar\omega_L = (E_B - E_G)/2$, vermittelt welchem das System ohne Unterstützung durch die Cavity vom Biexziton in den Grundzustand invertiert werden kann. Hierdurch wird also die Emission von Photonen in die Resonatormode unterbunden. Zudem beobachten wir, dass sowohl das Λ - wie auch das V -artige Muster ihre vollständige Punktsymmetrien verlieren – insbesondere ist die höherenergetische Λ -artige Emission deutlich weniger ausgeprägt.

Die Merkmale der Karten der Gesamtemission übertragen sich auch auf die Raman-Karten [Abbn. 5.4b und 5.4c]: Auch hier finden wir, dass das Raman-Muster in einen V -artigen und einen Λ -artigen Anteil zerfällt und das Muster energetisch unterhalb der Biexziton-Exziton-Resonanz sowie oberhalb der Exziton-Grundzustand-Resonanz im Vergleich zum dazwischenliegenden Bereich ausbleicht. An dieser Stelle können wir also bereits unsere erste auf Basis der Raman-Korrelationsgleichung, Gl. (5.5), sowie anhand von Abb. 5.3 getroffene Annahme bekräftigen, dass die Raman-Emission für eine zwischen den beiden elektronischen Resonanzen platzierte Cavity deutlich gesteigert

werden kann. Wie im Falle der Dreiniveausysteme machen wir im V-artigen *resonanten* Raman-Prozess ausschließlich durch den Zweiphotonenpfad induzierte destruktive Interferenz aus, während wir im Limes schwacher Anregungen unter Λ -artiger Ankopplung erneut eine kleine positive Raman-Emissionswahrscheinlichkeit erhalten [Abb. 5.4b]. Im Raman-Muster der 5π -Anregung [Abb. 5.4e] erkennen wir – wie schon in der zugehörigen Gesamtemission bemerkt – einen deutlichen Einschnitt entlang der lasergetriebenen entarteten Zweiphotonenresonanz (weiße gestrichelte Linie). Abschließend schauen wir uns noch die Gesamtemission in der V-Mode an – in dieser Mode wird ja wegen $\Omega_V = 0$ keine Raman-Population erzeugt. Wie in der H-Mode wird im Falle schwacher Anregung [Abb. 5.4c] das Muster vom spontanen Zerfall des Biexzitons über die Cavity dominiert: Wird die Cavity resonant mit beiden Übergängen, $\hbar\omega_C = E_B - E_{X_H} \approx E_B - E_{X_V}$, zerfällt das System ja zu etwa gleichen Teilen über die Cavity in beiden Moden, gegebenenfalls leicht asymmetrisch durch eine Feinstrukturaufspaltung der Exzitonen und durch in den beiden Kanälen unterschiedliche strahlende Verluste. Das 5π -Anregungsszenario führt in der V-Mode allerdings zu einer deutlichen Verschmälerung des Streifenmusters [Abb. 5.4f], was aus dem in diesem Bereich effizient getriebenen Raman-Prozesses in der H-Mode resultiert, der die Biexziton-Besetzung, welche ja auch Quelle der nahresonanten Gesamtemission in der V-Mode ist, in H-Raman-Emission umwandelt. Diese Besetzung steht dann entsprechend in der V-Mode nicht mehr für die spontane Emission nahe $\hbar\omega_C = E_B - E_{X_V}$ zur Verfügung. Auch in der V-Mode macht sich zusätzlich noch die entartete Zweiphotonenresonanz bemerkbar (weiße gestrichelte Linie).

Diese gegenseitige Beeinflussung zwischen H- und V-Mode muss zukünftig im Hinblick auf die Erzeugung *beliebig* elliptisch polarisierter Raman-Photonen (wie in Publikation [P1] diskutiert) genauer untersucht werden. Insbesondere zur Analyse der Polarisationskontrolle sollte unser Modell jedoch um die im Laufe unserer vorigen Betrachtungen erwähnten Einflüsse – Phononen sowie Laser-Cavity-Kopplung – erweitert werden. Unter *rein zirkular* polarisierter Anregung – σ_+ oder σ_- – erwarten wir allerdings aufgrund der zugehörigen optischen Auswahlregeln (die beiden Übergänge der Biexziton-Exziton-Kaskade sind dann jeweils zueinander komplementär zirkular polarisiert [120]), dass sich die Raman-Emissionscharakteristik ebenfalls an das Verhalten der Dreiniveausysteme annähert, wie wir sie in Kapitel 4 betrachtet haben. Denn Laser und Cavity können dann stets als zueinander orthogonal polarisiert gewählt werden.

Vergleichen wir nochmals die Emissionskarten des Vierniveausystems mit denen der Dreiniveausysteme, fällt weiterhin auf, dass die V-artige Raman-Emission des Vierniveausystems für große Pulsflächen deutlich hintergrundärmer ($\mathcal{P}_H \approx 60\%$, $\mathcal{P}_{H,R} \approx 40\%$) ist als die der V-artigen Dreiniveausysteme ($\mathcal{P}^V \approx 80\%$, $\mathcal{P}_R^V \approx 40\%$). Diesen Effekt schreiben wir der Superposition aus V- und Λ -artiger Licht-Materie-Kopplung zu, da – wie wir auch in Gl. (5.5) beobachten – stets die Λ -artige laserinduzierte Polarisation $\langle P_{X_i,B} \rangle$ als Quellterm der Raman-Emission zur Verfügung steht.

Bevor wir uns im nächsten Schritt genauer mit den Optimalbereichen der in Abb. 5.4 gezeigten Raman-Karten beschäftigen, für die wir im folgenden Abschnitt Input-Output-Kennlinien berechnen werden, wollen wir nochmals kurz unsere aus obiger Diskussion gewonnen Erkenntnisse zusammenfassen. Wir haben bereits gesehen, dass die Wahl der Resonatorenenergie $\hbar\omega_C$ darüber bestimmt, ob sich die Raman-Emission aus dem Biexziton entweder Λ -artig (in der Nähe der Exziton-Grundzustand-Resonanz) oder V-artig (in der Nähe der Biexziton-Exziton-Resonanz) verhält. Weiterhin haben wir beobachtet, dass die energetische Positionierung der Cavity zwischen den beiden elektronischen Resonanzen

die Emission von Raman-Photonen deutlich begünstigt im Vergleich zur Positionierung außerhalb derer. Zudem haben wir in der V-artigen Region der Raman-Karten des Vierniveausystems eine gegenüber den V-artigen Dreiniveausystemen deutliche Reduktion der – maßgeblich inkohärenten – Hintergrundemission festgestellt. Auf Basis dieser Ergebnisse werden wir nun Input-Output-Kennlinien berechnen, um explizit das On-Demand-Verhalten der Raman-Emission aus dem Biexziton näher zu untersuchen.

5.2.2. Input-Output-Kennlinien der Raman-Emission

Da unter linear polarisierter Anregung des Quantenpunktbiexzitons Laser- und Raman-Photonen in derselben Mode detektiert werden, sind wir – im Hinblick auf eine experimentelle Realisierung – an Konfigurationen des Quantenpunkt-Mikroresonator-Systems interessiert, die ein *spektrales* Herausfiltern des Raman-Photons gewährleisten [121]. Aus diesem Grund werden wir exemplarisch in diesem Abschnitt in Übereinstimmung mit den Beobachtungen aus den Emissionskarten [Abb. 5.4] für die beiden bevorzugten Situationen aus Abb. 5.3, in denen die Cavity energtisch zwischen den beiden elektronischen Resonanzen positioniert ist, Input-Output-Kennlinien berechnen und analysieren. Dazu stimmen wir – wie schon in Abschnitt 4.3.2 durchgeführt – die Pulsfläche des Kontrolllasers unter Konstanthalten der Pulslänge durch, indem wir die maximale Rabi-Energie des Kontrolllasers, $\Omega_{0,H}$, variieren. In diesem Kapitel beschränken wir uns nun auf die experimentell relevante Skala $\theta = 0, \dots, 10\pi$. Hierzu detektieren wir wieder vermittels Definition Gl. (4.28) die Optimalverstimmung des Kontrolllasers, $\Delta_L^{\text{opt}} \equiv \Delta_L^{\text{opt},H}$, um die Optimal Kennlinie der Raman-Emission aufzuzeichnen.

Die Ergebnisse haben wir in Abb. 5.5 für unseren zu Beginn dieses Kapitels festgelegten Satz von Systemparametern zusammengestellt. Die linke Spalte [Abbn. 5.5a-5.5c] korrespondiert zur V-artigen Anordnung in Abb. 5.3c mit $\hbar\omega_C = E_B - E_{X_H} + 0.8$ meV, die rechte Spalte [Abbn. 5.5d-5.5f] zur Λ -artigen Anordnung in Abb. 5.3e mit $\hbar\omega_C = E_{X_H} - E_G - 0.8$ meV. Im Vergleich mit den in Abb. 4.5d gezeigten Kennlinien der Dreiniveausysteme finden wir für die Kennlinien der biexzitonischen Emission in Abbn. 5.5b und 5.5e sowohl für die Gesamtemission $\mathcal{P}_H(t = 40 \text{ ps})$ (schwarze Linien) als auch für die Raman-Emission $\mathcal{P}_{H,R}(t = 40 \text{ ps})$ (gelbe Linien) die erwartete Annäherung zwischen V- und Λ -artigem Verhalten in jenem Hybridbereich, der beide Arten von Raman-Quellen bereitstellt. Qualitativ erhalten bleiben die Merkmale der V-typischen Hintergrundemission bei $\theta = 0$ (schwarze durchgezogene Linie in Abb. 5.5b) sowie das Λ -typische Sättigungsverhalten der Gesamtemission (schwarze durchgezogene Linie in Abb. 5.5e) Allerdings finden wir in beiden Szenarien ein Phänomen, welches wir bei den Dreiniveausystemen nicht beobachten konnten: Die Raman-Kennlinie der V-artigen biexzitonischen Emission kreuzt bei etwa $\theta = 7\pi$ die Kennlinie der Gesamtemission und übersteigt diese im weiteren Verlauf, ebenso für die Λ -artige Situation, wo wir den Kreuzungspunkt bereits bei $\theta = 5\pi$ ausmachen. In beiden Fällen beginnt nach dem Kreuzungspunkt die Gesamtemission zu sättigen. Hier liegt dementsprechend wieder die quantenmechanische Interferenz unterschiedlicher Anregungspfade zugrunde, die die dominierende Raman-Emission für wachsende Laserintensität letztendlich zu kompensieren beginnt. Durch systematische An- und Ausschalttests der Populationsbeiträge, welche über die in den Gleichungen der photonenassistierten Polarisierungen, Gln. (5.2) und (5.4), auftretenden Quelltermen definiert sind, identifizieren wir die Rayleigh-Prozesse $\mathcal{E}_H\langle\langle\sigma_{G,X_H} b_H^\dagger\rangle\rangle$ und $\mathcal{E}_H\langle\langle\sigma_{X_H,B} b_H^\dagger\rangle\rangle$ als Ursache. Diese Pfade sind ja in Dreiniveausysteme-

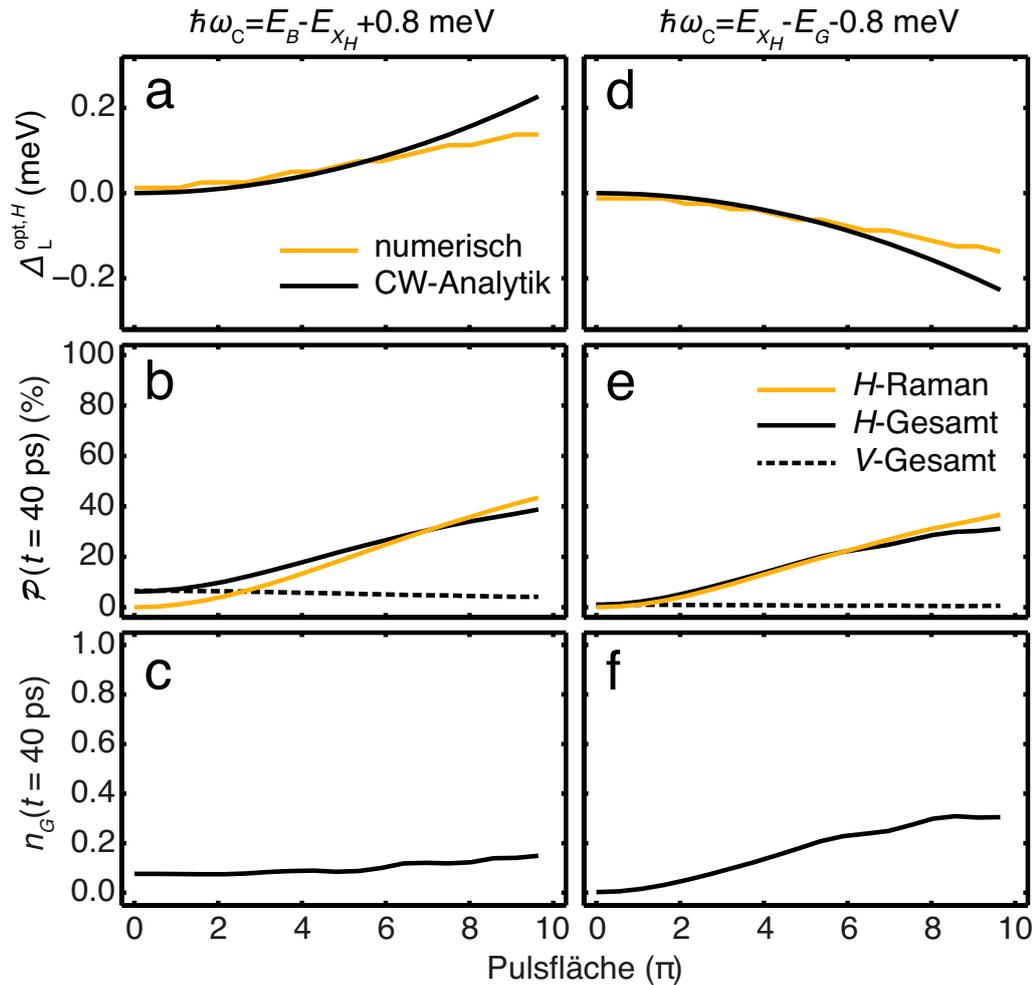


Abbildung 5.5.: Input-Output-Kennlinien der Raman-Photonenemission aus dem Biexziton. Wir zeigen für die beiden in Abbn. 5.3c (linke Spalte) und 5.3e (rechte Spalte) skizzierten Anordnungen die Systemkennlinien für variierende Pulsfläche θ in der H -Mode durch Variieren der Pulsamplitude. Die erste Reihe (a,d) zeigt die optimale Laserverstimmung, numerisch nach Gl. (4.28) (gelbe Linie) und analytisch nach Gl. (5.6) (schwarze Linie) bestimmt. Die zweite Reihe (b,e) zeigt die Emissionswahrscheinlichkeit der H - (schwarze durchgezogene Linie) und der V -Mode $\mathcal{P}_i(t=40 \text{ ps})$ (schwarze gestrichelte Linie) nach Gl. (5.7) sowie eines H -Raman-Photons $\mathcal{P}_{H,R}(t=40 \text{ ps})$ (gelbe durchgezogene Linie) nach Gl. (5.9). Die letzte Reihe (c,f) zeigt die Besetzung des Grundzustandes $n_G(t=40 \text{ ps})$.

men mit Übergängen mit zueinander orthogonalen Dipolmomenten nicht vorhanden. Bis zum Kreuzungspunkt finden wir eine sehr gute Übereinstimmung der numerisch ermittelten Optimalverstimmung des Kontrolllasers mit der analytisch berechneten CW-Lösung, Gl. (5.6). Da wir an einem Emissionszyklus interessiert sind, der das System vollständig in den Grundzustand invertiert, damit eine verlässliche Wiederherstellung des Biexzitons durch den Initialisierungslaser über die entartete Zweiphotonenabsorption für die periodische Emission von Raman-Photonen gelingt, haben wir in Abbn. 5.5c und 5.5f ergänzend noch die nach $t=40 \text{ ps}$ erreichte Besetzung des Grundzustandes $n_G = \langle P_{G,G} \rangle$ aufgezeichnet. In beiden Anregungsszenarien sind wir weit von einem annähernd voll besetzten Grundzustand entfernt, wobei wir hier den Eindruck gewinnen, dass die Λ -artig platzierte Cavity eine effizientere Inversion begünstigt: Wir erreichen eine etwa doppelt so hohe

5. Mikroskopische Analyse der Raman-Emission aus dem Biexziton

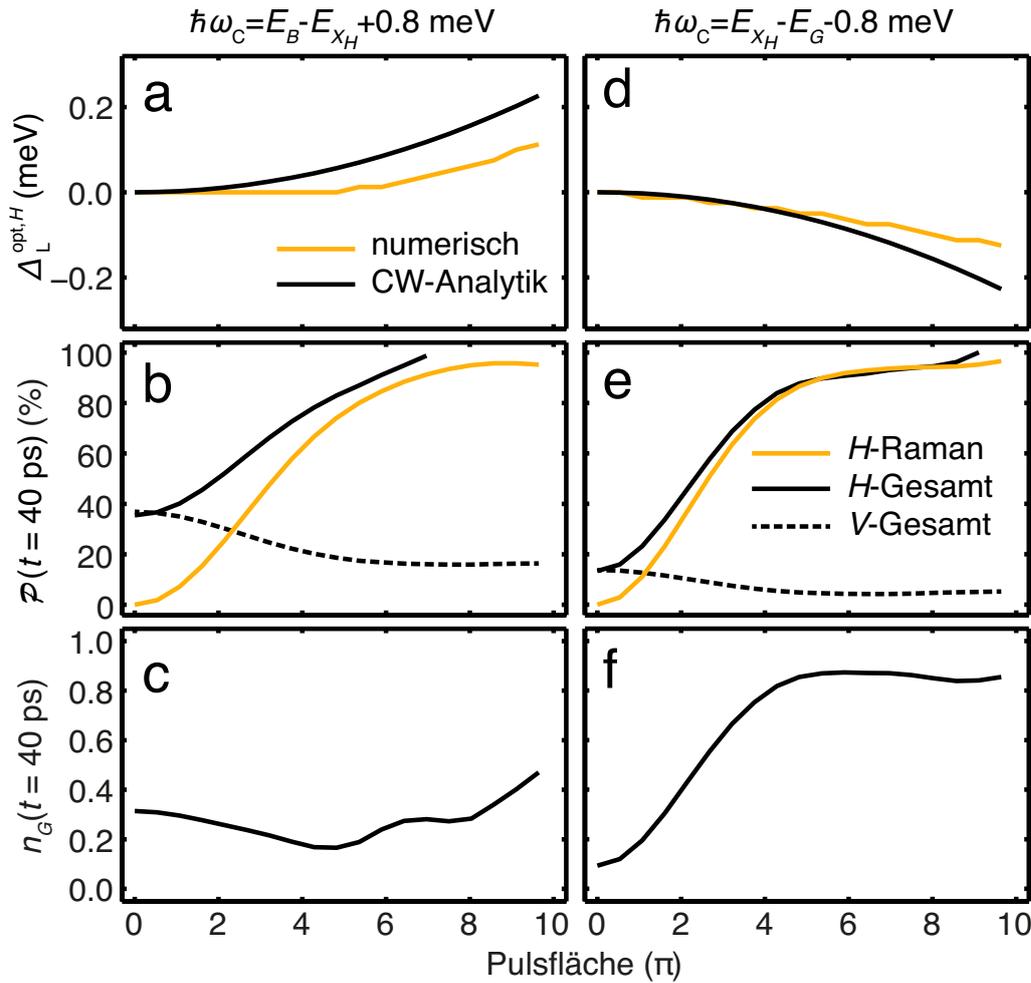


Abbildung 5.6.: Input-Output-Kennlinien für erhöhte Licht-Materie-Kopplung. Gezeigt ist der Satz von Systemkennlinien für eine Kopplungsstärke von $g = \hbar\kappa = 186 \mu\text{eV}$. Die übrigen Systemparameter sind identisch mit dem in Abb. 5.5 gezeigten Szenario.

Besetzung wie bei V-artiger Platzierung, jedoch auf einer Skala bis $\theta = 10\pi$ maximal 30%. Wir möchten an dieser Stelle nochmals besonders darauf hinweisen, dass die Besetzung des Zielzustandes unter Photonenemission ganz offensichtlich *kein* ausreichendes Kriterium für die Emissionswahrscheinlichkeit eines Raman-Photons ist, wie beispielsweise in den Arbeiten [45, 60] angenommen wird. Der Zielzustand kann schließlich über verschiedene Anregungspfade erreicht werden, es kann keinerlei Information daraus gewonnen werden, welcher Pfad explizit zur Besetzung geführt hat oder ob quantenmechanische Interferenzeffekte aufgetreten sind. Darüber kann ausschließlich eine mikroskopische Anschauung – wie wir sie in dieser Arbeit für die Raman-Prozesse entwickelt haben – Auskunft geben. Darüber hinaus merken wir noch an, dass wir Abbn 5.5a und 5.5d in den numerisch ermittelten Kennlinien eine gestufte Versatzstruktur entlang des sonst parabolischen Gesamtverlaufes erkennen können. Eine mögliche Erklärung liefert erst die Analyse der korrespondierenden Emissionsspektren in Abschnitt 5.2.3.

Wir wollen im nächsten Schritt wieder unter Beibehaltung aller restlichen Parameter ausschließlich die Kopplungsstärke der Resonatorphotonen an das Material von $g = 57 \mu\text{eV} < \hbar\kappa = 186 \mu\text{eV}$ auf $g = \hbar\kappa = 186 \mu\text{eV}$ erhöhen. In Abb. 5.6 haben wir dazu erneut die analytisch und numerisch gewonnenen Kennlinien der Optimalverstimmung, die

resultierenden Emissionswahrscheinlichkeiten sowie die erreichte Besetzung des Grundzustandes aufgezeichnet. Im V-artigen Fall [Abb. 5.6b] führt die verstärkte Licht-Materie-Kopplung zunächst bei kleineren Pulsflächen, $\theta < 3\pi$, zu einer ausgeprägten Hintergrundemission, $20\% < \mathcal{P}_H - \mathcal{P}_{H,R} < 40\%$, welche aber für darüber hinaus wachsende Pulsflächen effizient in Raman-Population (gelbe Linie) durch den Kontrolllaser umgewandelt werden kann. Diesen Effekt hatten wir bereits bei den V-artigen Dreiniveausystemen beobachtet und analysiert [vgl. Abb. 4.6]. Ab etwa $\theta > 6\pi$ sinkt die Hintergrundemission auf unter zehn Prozentpunkte ab. Hier erreichen wir On-Demand-Verhalten mit einer Raman-Emissionswahrscheinlichkeit von über 80%. Ergänzend zu dem hier gezeigten Ausschnitt möchten wir noch anmerken, dass der Hintergrund jenseits von $\theta = 8\pi$ wieder deutlich zunimmt, was mit einer über 100% anwachsenden Gesamtemission einhergeht. In unserer hier vereinbarten Sprache bedeutet dies, dass mehr als ein H -Photon innerhalb des Emissionszyklus in den Resonator eingekoppelt wird. Mit steigender Effizienz des Raman-Prozesses sinkt zusätzlich auch die Emission aus der V -Mode (schwarze gestrichelte Linie), indem vermehrt biexzitonische Besetzung in H -polarisierte Raman-Population umgewandelt wird. Anders als bei den Dreiniveausystemen weicht allerdings unsere analytisch gewonnene Kennlinie der Optimalverstimmung (schwarze Linie in Abb. 5.6a) deutlich vom numerischen Resultat (gelbe Linie) ab. Wir machen dafür die in der Raman-Gleichung des Vierniveausystems, Gl. (5.5), gegenüber den Dreiniveausystemen, Gl. (4.15) bzw. (B.13), neu hinzugekommenen Beiträge verantwortlich – insbesondere die nichtlinearen Polarisationssterme in der letzten Zeile, welche für wachsendes g verstärkt beitragen. Abschließend zum V-artigen Szenario werfen wir noch in Abb. 5.6c einen Blick auf die erreichte Besetzung des Grundzustandes: Im für die effiziente Raman-Emission interessanten Bereich um $\theta \approx 5\pi$ geht die Besetzung deutlich zurück auf etwa $n_G \approx 0.2$. In diesem Bereich vermittelt der Raman-Prozess über die Cavity verstärkt eine Inversion des Systems in das Exziton X_H , nicht aber in den Grundzustand. Aus diesem Grund bleibt das V-artige Szenario – trotz einer Raman-Emissionswahrscheinlichkeit von über 80% – für eine vollständige Wiederherstellung des Grundzustandes ungeeignet.

Wir wenden uns nun dem Λ -artigen Kopplungsfall [Abbn. 5.6d-5.6f] zu. Auch hier erreichen wir bei $\theta \approx 5\pi$ eine Raman-Emissionswahrscheinlichkeit von knapp 90% (gelbe Linie in Abb. 5.6e), sodass *On-Demand-Verhalten* vorliegt. Bemerkenswert ist hier, dass die Raman-Emission nahezu hintergrundfrei und somit besonders effizient ist. Im Vergleich mit dem korrespondierenden Szenario der Dreiniveausysteme [Abb. 4.6d] gleicht nun die V-artige Umwandlung der inkohärenten Quellen durch den Kontrolllaser das Λ -typische Sättigungsverhalten für wachsende Pulsflächen vollständig aus. Bei $\theta = 5\pi$ ist die Raman-Emission identisch mit der Gesamtemission (schwarze durchgezogene Linie), $\mathcal{P}_H = \mathcal{P}_{H,R} \approx 90\%$. Gleichzeitig ist auch der Grundzustand nach der Raman-Photonenemission nahezu vollständig besetzt, nämlich zu knapp 90%. Dies beschreibt aber den angestrebten Emissionszyklus, wie wir ihn in Abb. 5.1 illustriert haben. Wir möchten noch anmerken, dass jenseits von $\theta = 5-6\pi$ wiederum Interferenzphänomene – insbesondere durch die Reabsorptionsprozesse – auftreten können, wie wir sie auch im Falle schwächerer Kopplung in Abb. 5.5 beobachten konnten. Aus diesem Grunde weicht auch erneut unsere analytisch berechnete Kennlinie (schwarze Linie) in Abb. 5.6d ab $\theta = 5\pi$ von unserem numerisch ermittelten Ergebnis (gelbe Linie) ab. Dieser Bereich ist aber für eine Optimierung des Emissionsverhaltens nicht mehr relevant. Am Ende unserer Diskussion der Kennlinien möchten wir nochmals auf die ergänzende Betrachtung von Gauß-Pulsen in Anhang A.2.3 hinweisen, die uns aufgrund ihrer sehr komplex ausge-

5. Mikroskopische Analyse der Raman-Emission aus dem Biexziton

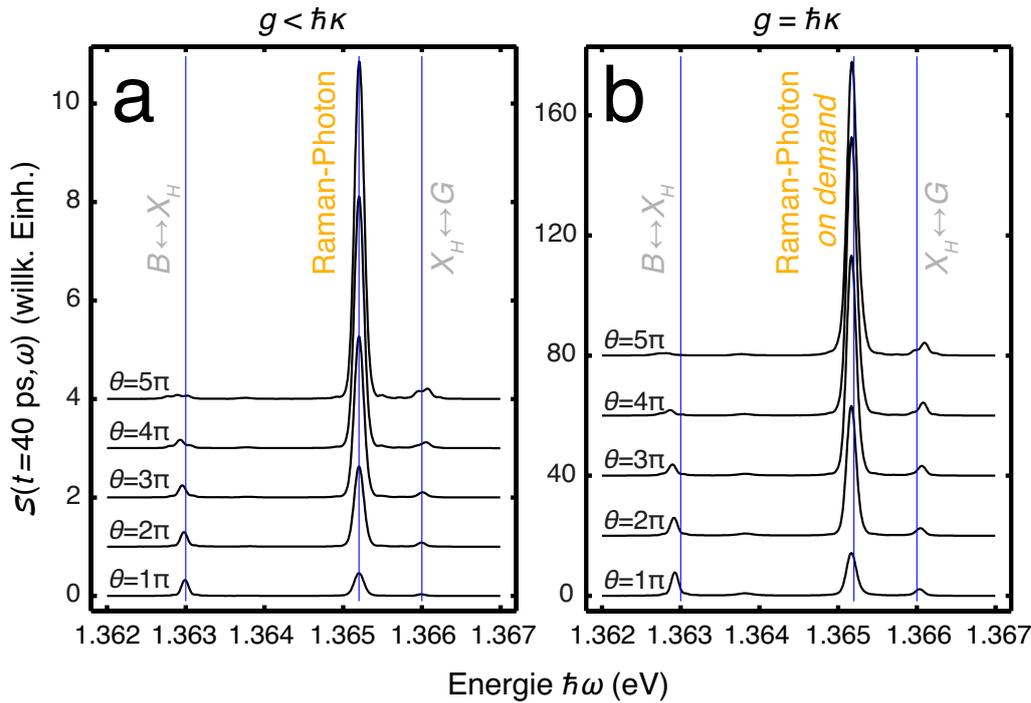


Abbildung 5.7.: Emissionsspektrum für variierende Pulsfläche. Gezeigt sind die (a) zu den in Abbn. 5.5d-5.5f bzw. (b) zu den Abbn. 5.6d-5.6f gezeigten Systemkennlinien korrespondierenden Emissionsspektren (schwarze Linien), berechnet nach Gl. (2.29), für die Pulsflächen $\theta = 1, 2, 3, 4$ und 5π . Die senkrechten blauen Linien markieren jeweils die Übergangsenergien $E_B - E_{X_H} = 1.363$ eV, $E_{X_H} - E_B = 1.366$ eV sowie die Position der Cavity bei $\hbar\omega_C = 1.3652$ eV. Die Spektren sind zur besseren Sichtbarkeit jeweils mit einem Offset versehen worden.

prägten Raman-Charakteristiken (stark abhängig von der individuellen Kombination von Bandbreite, Intensität und Cavity-Verstimmung sowie der resultierenden *zeitabhängigen* Optimalverstimmung des Lasers) für unsere grundlegenden Studien ungeeignet erschienen.

Zusammenfassend können wir aussagen, dass zwar beide bevorzugte Platzierungen der Cavity, oberhalb der Biexziton-Exziton-Resonanz (V-artig) sowie unterhalb der Exziton-Grundzustand-Resonanz (Λ -artig) zu einer etwa gleichwertigen Raman-Emissionswahrscheinlichkeit führen, sich aber deutlich in der einhergehenden Hintergrundemission sowie in der Möglichkeit zur vollständigen Rückgewinnung des Grundzustandes unterscheiden. Hier haben wir die Λ -artige Ankopplung als besonders hintergrundfrei sowie effizient in Bezug auf die angestrebte Inversion des Systems vom Biexziton in den Grundzustand identifiziert. Im nächsten Abschnitt möchten wir an unsere spektrale Untersuchung aus Kapitel 3 anknüpfen.

5.2.3. Spektrale Analyse der optimierten Raman-Emission

Anschließend an unsere in der Sprache der verallgemeinerten Emissionswahrscheinlichkeit formulierte und auf der mikroskopischen Populationszerlegung fußende Analyse wollen wir die daraus gewonnenen Erkenntnisse in die spektrale Darstellung der Emission übertragen. Hier stellen wir somit explizit den Zusammenhang zu unseren in Abschnitt 3.3 gewonnenen ersten Einsichten aus der Betrachtung des Emissionsspektrums her.

Dazu haben wir in Abb. 5.7 vergleichend zu der Kennliniendarstellung aus dem vorigen Abschnitt [Abbn. 5.5 und 5.6] die korrespondierenden Emissionsspektren für ausgewählte Pulsflächen dargestellt. Hier beschränken wir uns auf die Optimalsituation der Λ -artigen Resonatorkopplung mit $\hbar\omega_C = E_{X_H} - E_G - 0.8$ meV, welche ja als einzige die gewünschte Inversion des anfänglich im Biexziton befindlichen Systems in den Grundzustand ermöglicht. Damit die Vergleichbarkeit mit den Kennlinien gewährleistet ist, berechnen wir die Spektren $\mathcal{S}(t, \omega)$ nach Gl. (2.29) natürlich ebenfalls für die gleiche Messdauer von $t = 40$ ps. Abbildung 5.7a zeigt die Situation $g < \hbar\kappa$ und Abb. 5.7b die Situation für erhöhte Licht-Materie-Kopplung zwischen Resonatorphotonen und Quantenpunkt, $g = \hbar\kappa$, jeweils für die Pulsflächen $\theta = 1, 2, 3, 4$ und 5π . Beide Serien sehen auf den ersten Blick recht ähnlich aus: Zum einen erkennen wir an der Cavity-Energie, $\hbar\omega_C = 1.3652$ eV, eine ausgeprägte, annähernd symmetrische Emissionslinie, die mit zunehmender Pulsfläche wächst und die Gesamtemission dominiert. Dies ist offensichtlich die Emissionslinie des *Raman-Photons*. Zum anderen erkennen wir jeweils einen Beitrag um die Biexziton-Exziton-Energie, $E_B - E_{X_H} = 1.363$ eV, und die Exziton-Grundzustand-Energie, $E_{X_H} - E_B = 1.366$ eV, herum. Die Biexziton-Exziton-Emission bleicht mit zunehmender Pulsfläche stark aus und schiebt zu niedrigeren Energien. Die Exziton-Grundzustand-Emission hingegen ist am Anfang von sehr geringer Intensität, die mit stärkerer Anregung etwas zunimmt. Zudem erfährt sie eine geringfügige Blauverschiebung, die jedoch weniger ausgeprägt ist als die korrespondierende Rotverschiebung der Biexziton-Exziton-Emission. Diese Beobachtung stimmt damit überein, dass wir die elementare Anregungsbedingung, $\hbar\omega_L = E_B - E_{X_H} - \hbar\omega_C$, zu niedrigeren Energien hin, $\Delta_L^{\text{opt}} < 0$, verstimmen müssen [Abbn. 5.5d und 5.6d], um Optimalemission zu erreichen, was spektral dem Zentrieren der Raman-Emissionslinie in der Resonatorlinie entspricht. Der Anteil der Raman-Emission und der Anteil der Restemission sind für $\theta = 1\pi$ in beiden Fällen jeweils von gleicher Größe, wie wir auch anhand der Kennlinien [Abbn. 5.5e und 5.6e] ablesen können. Für $\theta = 5\pi$ ist die Raman-Emission nahezu hintergrundfrei, ebenso in Übereinstimmung mit den Kennlinien. Die leichte Zunahme der Exziton-Grundzustand-Emission lässt sich dadurch begründen, dass mit wachsender Pulsfläche auch eine gesteigerte Inversion des Systems in den Grundzustand stattfindet, was stets mit einer kurzfristigen Besetzung des Exzitons einhergeht (siehe auch Abb. 3.2d), welche dann strahlend über die Cavity zerfallen kann.

Das anregungsinduzierte Ausbleichen der Biexziton-Exziton-Emission wird durch die Umwandlung von inkohärenter Emission aus dem Anfangszustand in kohärente Raman-Emission verursacht, was wir als V-artige Initialquelle des Raman-Prozesses klassifiziert hatten. Wir hatten ja bereits in unserer ersten analytischen Betrachtung des CW-Spektrums, explizit im Rahmen der Diskussion von Gl. (3.15), gefunden, dass der Raman-Prozess auch direkt die Spektrallinien der Hintergrundemission beeinflusst. Insbesondere hatten wir bei der Untersuchung der Autokorrelationsfunktion $G(t, \tau)$ für eine beliebige Hüllkurve $\Omega_{\text{env}}(t)$, Gl. (3.47), entdeckt, dass die inkohärenten Emissionslinien des Biexziton-Exziton-Übergangs und des Exziton-Grundzustand-Übergangs tatsächlich eine *pulsformabhängige* Manipulation erfahren können. Wir konnten an jener Stelle aber noch keine weiterführende Aussage darüber treffen, wie sich dieser Sachverhalt in der Gestalt des Spektrums konkret niederschlagen würde, da dieser Effekt natürlich erst bei intensiverer Anregung durch den Kontrolllaser relevant wird. Abbildung 5.7 zeigt nun eine deutlich erkennbare Verformung der Spektrallinien der Biexziton-Exziton-Kaskade, welche eine Substruktur mit der Ausbildung von intensitätsabhängigen Nebenmaxima ent-

5. Mikroskopische Analyse der Raman-Emission aus dem Biexziton

wickeln. Diese Beobachtung ziehen wir als naheliegende Erklärung für die stufenförmige Substruktur der optimalen Laserverstimmungen in Abbn. 5.5 und 5.6 heran: Die optimale Verstimmung berechnet sich ja aus der resultierenden Gesamtverschiebung der elektronischen Übergänge im betrachteten Messzeitraum, wobei die Nebenmaxima relevant werden können – ähnlich zur physikalischen Anschauung des Kennlinienversatzes der Λ -Klasse in Abbn. 4.5a und 4.6a, den wir in Abschnitt 4.3.3 diskutiert haben. Im Emissionsspektrum wird hier darüber hinaus recht anschaulich ersichtlich, dass – im Unterschied zu den Dreiniveausystemen – zusätzlich zur Λ -artigen kohärenten (Induzieren von $P_{X,B}$ durch den Laser) auch die V-artige inkohärente Anfangsbedingung (Beitrag der strahlend zerfallenden Besetzung $n_B(0) = 1$) als Quelle der Raman-Emission zur Verfügung steht. Mit anderen Worten kann die vermeintlich beeinträchtigende Hintergrundemission aus dem Biexziton mittels des Kontrolllasers gewinnbringend zur Einzelphotonenerzeugung durch den Raman-Prozess genutzt und im Spektrum effektiv *unterdrückt* werden. Diese einzigartige Eigenschaft könnte bei entsprechender Optimierung der Raman-Emission einer zusätzlichen Frequenzfilterung zur Unterdrückung des Hintergrundes [121] vorbeugen. In der spektralen Darstellung wird zudem sichtbar, dass mit diesem Umwandlungsprozess auch eine *Frequenzumsetzung* (engl. *frequency conversion*) einhergeht, von $(E_B - E_{X_H})/\hbar$ nach ω_C : Die spektrale Position des Resonators bestimmt folglich, ob die Frequenz erhöht (*upconversion*) oder erniedrigt (*downconversion*) wird.

Wir möchten hier besonders darauf hinweisen, dass auch bei intensiverer Anregung durch den Kontrolllaser *keine* anregungsinduzierte Verbreiterung sichtbar wird, was sich ebenso mit den analytischen Ergebnissen für die Λ - und V-artigen Dreiniveausysteme deckt: Gleichungen (B.30) und (B.31) lässt sich ja entnehmen, dass eine solche Verbreiterung nur für verschwindende Resonatorverstimmungen – hier also $\Delta_C = E_B - E_{X_H} - \hbar\omega_C \approx 0$ oder $\Delta_C = E_B - E_{X_H} - \hbar\omega_C \approx 0$ – relevant werden kann. Denn wir schließen aus den beiden Gleichungen für die Dreiniveausysteme, dass die laserinduzierte Dämpfung der Raman-Korrelation für das volle Quantenpunktsystem lokal um die elektronischen Resonanzen herum im CW-Limes durch $\hbar \frac{\kappa+\Gamma}{2} \Omega_{0,H}^2 / [\Delta_C^2 + (\hbar \frac{\kappa+\Gamma}{2})^2]$ gegeben ist, wobei $\Gamma = \Gamma_{X,B}$ oder $\Gamma_{G,X}$ die jeweilige elektronische Linienbreite sei. Für unsere Parameter $\theta = 1-5\pi$ liegt die Verbreiterung dann bei 1–10 μeV , weshalb sie im Vergleich zur natürlichen Dämpfung der Raman-Korrelation von $\hbar \frac{\kappa+\Gamma_{G,B}}{2} \approx 220 \mu\text{eV}$ vernachlässigbar ist. Auf Basis unserer Kennlinien können wir die aus dem Spektrum ersichtlichen Informationen dahingehend ergänzen, dass das für $\theta = 5\pi$ in Abb. 5.7a gezeigte Spektrum mit einer Raman-Emissionswahrscheinlichkeit von etwa 20%, und das in Abb. 5.7b gezeigte mit einer Raman-Emissionswahrscheinlichkeit von etwa 90% (*On-Demand-Emission*) korrespondiert.

Wir haben nun gesehen, dass die mikroskopische Darstellung sehr gut geeignet ist, um die Spektren zu interpretieren und zu verstehen. Insbesondere hat der Vergleich zwischen den Input-Output-Kennlinien und den Emissionsspektren illustriert, dass die beiden Darstellungen zueinander physikalisch äquivalent sind. Allerdings erlaubt ausschließlich die Kennliniendarstellung eine konkrete Aussage über die teilhabenden Anregungspfade – unmittelbar abgebildet auf die korrespondierenden Wahrscheinlichkeiten – und somit auch als einzige Darstellung eine *automatisierbare* Optimierung der Raman-Emission. Im Folgenden betrachten wir nun den *vollen* in Abb. 5.1 gezeigten Anregungszyklus, welcher sowohl die Initialisierung des Biexzitons als auch den Raman-Emissionszyklus umfasst, anhand unseres optimierten Beispiels. Dies wird dann unsere im Rahmen dieser

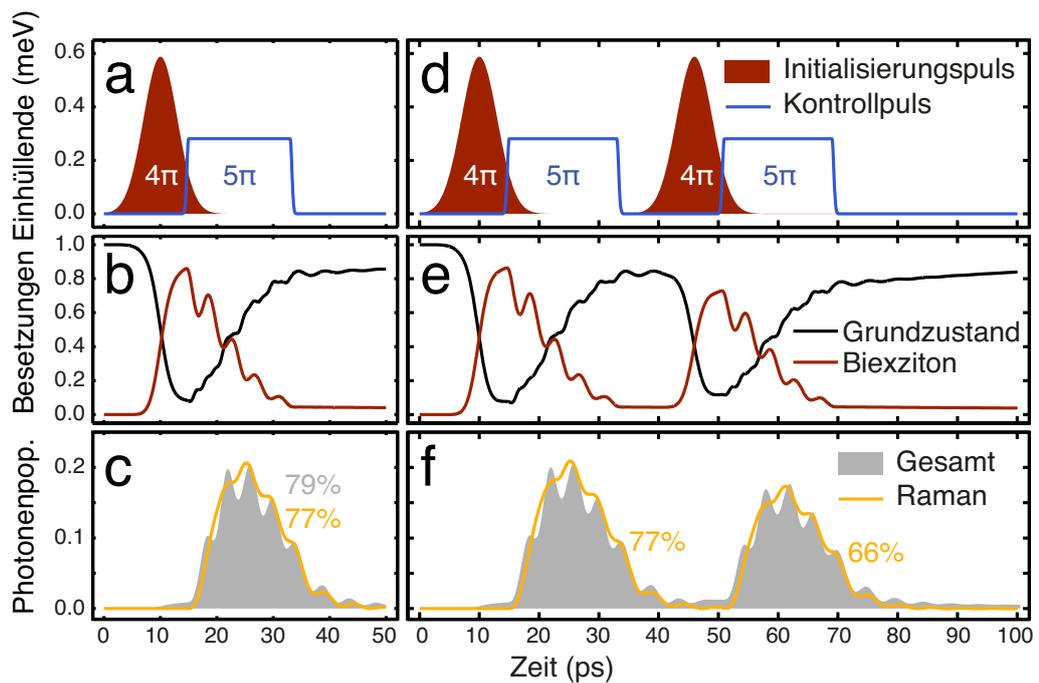


Abbildung 5.8.: Voller Anregungszyklus. Abgebildet ist die Dynamik (a-c) eines vollen Anregungszyklus bzw. (d-f) zweier Zyklen hintereinander in Übereinstimmung mit den in Abbn. 5.6d-5.6f gezeigten Optimalbedingungen für einen 5π -Kontrollpuls. Abbildungen (a,d) zeigen den zur Initialisierung des Biexzitons (über die entartete Zweiphotonenresonanz, siehe Anhang A.3) gewählten vertikal polarisierten 4π -Gauß-Puls mit $\Delta t = 3$ ps (rote Fläche) zusammen mit dem zur Stimulation der Raman-Emission gewählten horizontal polarisierten 5π -Rechteckpuls (blaue Linie). Abbildungen (b,e) zeigen die Dynamik der Besetzungen des Grundzustandes (schwarze Linie) und des Biexzitons (rote Linie). Abbildungen (c,f) zeigen die Dynamik der gesamten horizontal polarisierten Photonpopulation (graue Fläche) sowie der Raman-Population (gelbe Linie) zusammen mit den Angaben der jeweiligen Emissionswahrscheinlichkeiten.

Arbeit entwickelten und präsentierten Studien abschließen.

5.2.4. Simulation des vollen Anregungszyklus

Nachdem wir nun die durch den Kontrolllaser stimulierte Raman-Photonenemission eingehend sowohl in ihrer Dynamik als auch spektral untersucht haben, diskutieren wir nun zum Abschluss der im Rahmen dieser Arbeit präsentierten Studien den gesamten Anregungszyklus, wie wir ihn bereits zu Beginn dieses Kapitels schematisch eingeführt hatten [Abb. 5.1]. Dieser Zyklus umfasst ja sowohl den Initialisierungszyklus, in dem das Biexziton über die entartete Zweiphotonenresonanz der Frequenz $(E_B - E_G)/(2\hbar)$ durch einen Initialisierungslaserpuls erzeugt wird, als auch den Raman-Emissionszyklus. Wir nehmen die Initialisierung in der V -Mode vor und stimulieren das Raman-Photon in der H -Mode. Experimentell hätte dies auch den Vorteil, dass etwaiges Streulicht des Initialisierungslasers durch Polarisationsfilterung unterdrückt werden könnte. Die Dynamik eines Beispielzyklus haben wir in Abb. 5.8 dargestellt: Zu diesem Zweck wählen wir unser in den vorhergehenden Abbildungen [Abbn. 5.6d-5.6f und 5.7b] diskutiertes Optimalszenario, welches die Inversion des Systems vom Biexziton in den Grundzustand durch den Raman-Prozess zulässt. Der Kontrollpuls sei weiterhin der horizontal pola-

5. Mikroskopische Analyse der Raman-Emission aus dem Biexziton

risierte 5π -Rechteckpuls (eingezeichnet als blaue Linie in Abb. 5.8a), und als Initialisierungspuls wählen wir einen vertikal polarisierten Gauß-Puls der Breite $\Delta t = 3$ ps (rote Fläche). Das Aufzeichnen von Zweiphotonen-Rabi-Oszillationen der biexzitonischen Besetzung (siehe Anhang A.3) liefert als optimale Pulsfläche zur deterministischen Erzeugung des Biexzitons $\theta = 4\pi$. Wir haben den zeitlichen Versatz zwischen Initialisierungs- und Kontrollpuls derart gewählt, dass die maximal erreichbare Besetzung gerade eben vor dem Einschalten des Kontrolllasers erreicht wird. Die in Abb. 5.8b gezeigte Dynamik der Besetzungen lässt erkennen, dass durch den Initialisierungspuls das sich anfänglich im Grundzustand (schwarze Linie) befindende System tatsächlich zu gut 90% ins Biexziton (rote Linie) invertiert wird. Der bei $t = 15$ ps eingeschaltete und wie gewohnt auf die optimale Raman-Resonanz gestimmte 18 ps lange Rechteckpuls induziert anschließend den umgekehrten Prozess: Nach Abklingen des Kontrollpulses bei $t = 35$ ps ist das Biexziton nahezu unbesetzt, während der Grundzustand zu gut 85% besetzt ist. Betrachten wir vergleichend dazu die Dynamik der horizontal polarisierten Photonenpopulation [Abb. 5.8c], erkennen wir, dass der Initialisierungspuls kaum Population in der H -Mode erzeugt (graue Fläche), insbesondere wird keine Raman-Population generiert (gelbe Linie). Dies rechtfertigt auch vor allen Dingen unsere in der gesamten Arbeit verwendete Anfangsbedingung der leeren Cavity zu Beginn der Kontrolllaseranregung. Erst der Kontrollpuls liefert die Erzeugung von Population, die auf der gesamten gezeigten Zeitskala von 50 ps einer Emissionswahrscheinlichkeit von $\mathcal{P}_H = 79\%$ entspricht. Die Population hat das gewohnte Erscheinungsbild wie wir es aus Abb. 5.3f kennen. Insbesondere liefert die Berechnung der korrespondierenden Raman-Wahrscheinlichkeit $\mathcal{P}_{H,R} = 77\%$, sodass nahezu die gesamte beobachtete Emission dem einzelnen Raman-Photon zuzuordnen ist und zudem *On-Demand*-Emission vorliegt. Vergleichen wir die Werte mit dem Ergebnis der für das vollständig besetzte Biexziton berechneten Kennlinie aus Abb. 5.6e, finden wir, dass eine Differenz von zehn bis fünfzehn Prozentpunkten vorliegt: Das unvollständig besetzte Biexziton schmälert natürlich die Quantenausbeute, offenbar verhält sich der *On-Demand*-Charakter jedoch relativ robust in Abhängigkeit von der Güte der Anfangsbedingung.

Daher haben wir zum Vergleich in Abbn. 5.8d-5.8f zwei der 50-ps-Zyklen unmittelbar hintereinander geschaltet. Der erste ist demnach in seiner Dynamik noch identisch mit dem einzelnen in Abbn. 5.8a-5.8c gezeigten und liefert daher ebenfalls im Zeitfenster von 50 ps eine Raman-Wahrscheinlichkeit von $\mathcal{P}_{H,R} = 77\%$. Der daran anschließende Zyklus startet nun mit einem nur zu 85% besetzten Grundzustand, was eine knapp 80%ige Besetzung des Biexzitons zur Folge hat. Die resultierende Photonenpopulationsdynamik sieht zwar qualitativ gleich aus, reduziert sich aber auf $\mathcal{P}_{H,R} = 66\%$ im Zeitfenster zwischen $t = 50$ ps und $t = 100$ ps. Dieser Wert entspricht etwa der Untergrenze für *On-Demand*-Emission im Falle idealer Detektoren [18, 20, 21]. Die Effizienz des zweiten Zyklus hängt natürlich maßgeblich von der expliziten Wahl der Zeitdifferenz zwischen erstem und zweitem Zyklus ab. Denn die vollständige Wiederherstellung des Grundzustandes wird ja zusätzlich von der inkohärenten Relaxation des Systems in den Grundzustand befördert, wie auch die noch nach Abklingen des zweiten Kontrollpulses ansteigende Besetzung des Grundzustandes zeigt, die bei Berücksichtigung der entsprechenden Zeitskala unterstützend ausgenutzt werden kann. Wir gehen davon aus, dass daher in der Wahl der Pulslängen sowie der gesamten Periodendauer eines Zyklus ein Optimierungspotential steckt, um die robuste Wiederholbarkeit auf der gewünschten Zeitskala sicherzustellen. Insbesondere müsste natürlich auch der Initialisierungspuls hinsichtlich seiner

Bandbreite, Pulsform und Intensität separat gezielt optimiert werden.

Zusammenfassend lässt sich also sagen, dass unsere Kennlinienaufzeichnung auf Basis der mikroskopischen Größen eine besonders kompakte sowie zielführende Darstellung der zur Optimierung der Raman-Emission relevanten Randbedingungen ermöglicht, welche über den Informationsgehalt des Spektrums deutlich hinausgeht. Denn wir können die Raman-Emission mit einer *einzig*en Größe – nämlich der Raman-Emissionswahrscheinlichkeit \mathcal{P}_R – charakterisieren und im Zusammenhang mit der Gesamtemissionswahrscheinlichkeit \mathcal{P} bewerten. Das Spektrum hingegen verbirgt ja die mikroskopische Zusammensetzung der einzelnen Emissionslinien und lässt folglich insbesondere keine Aussage darüber zu, ob die um die Resonatorenenergie herum sichtbare Emission tatsächlich aus dem Raman-Anregungspfad zwischen Biexziton und Grundzustand stammt. Schließlich ist in unserem System eine Vielzahl verschiedener spontaner wie lasergestützter Pfade möglich, wie wir anhand von Gln. (5.2) und (5.4) gesehen hatten, welche zudem zu quantenmechanischer Interferenz führen können. Im Rahmen unserer Modellbildung und unter Verwendung unseres in diesem Kapitel erarbeiteten Rahmenkonzeptes haben wir insbesondere gezeigt, dass der volle in Abb. 5.1 skizzierte Initialisierungs- und Emissionszyklus – der ja das Funktionsprinzip einer auf der Raman-Emission aus dem Biexziton operierenden Einzelphotonenquelle darstellt [119] – grundsätzlich physikalisch und sogar im On-Demand-Limes möglich ist.

An diesem Punkt möchten wir unsere Analyse der Zweiphotonen-Raman-Prozesse abschließen und die im Rahmen dieser Arbeit erarbeiteten Konzepte und Ergebnisse im folgenden sowie letzten Kapitel resümieren.

5. Mikroskopische Analyse der Raman-Emission aus dem Biexziton

Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit haben wir uns mit der durch Mikroresonatoren verstärkten Einzelphotonenemission aus Zweiphotonen-Raman-Prozessen in Halbleiterquantenpunkten befasst. Hierbei wird ein Photon des Zweiphotonenprozesses durch einen externen Kontrolllaser getrieben – je nach Konfiguration unter Absorption oder Stimulation –, was die Emission des zweiten Photons erzwingt. Wir möchten nochmals besonders betonen, dass Raman-Prozesse schon seit mehreren Jahrzehnten – vorwiegend in atomaren oder halbleiterbasierten Dreiniveausystemen in Λ -Konfiguration – untersucht und für eine Vielzahl von Anwendungen – vor allen Dingen für die kontrollierte Einzelphotonenemission – vorgeschlagen worden sind. Denn sie bieten die einzigartige Möglichkeit, sowohl die Linienbreite als auch die Frequenz des emittierten einzelnen Raman-Photons durch den Kontrolllaser bereits zum Erzeugungszeitpunkt zu steuern, was auch die gezielte Feinabstimmung auf einen Empfänger in Netzwerken der Quantenkommunikation ermöglichen könnte. Für eine stabile Performanz solcher Netzwerke bedarf es allerdings einer ausreichend hohen, bei idealen Detektoren mindestens 67%-igen Emissionswahrscheinlichkeit, welche bisher experimentell *nicht* realisiert werden konnte, obwohl dazu auch begleitend eine Vielzahl theoretischer Arbeiten zur Untersuchung des Funktionsprinzips und der *On-Demand*-Emissionswahrscheinlichkeit in der Literatur zu finden sind. Die theoretischen Beschreibungen basieren überwiegend auf der Anschauung des Schrödinger-Bildes sowie der Simulation von Emissionsspektren. Es war bereits bekannt, dass Raman-Prozesse durch laserinduzierte Stark-Verschiebungen beeinflusst werden können. Dieser Sachverhalt ist allerdings bisher oftmals vernachlässigt oder wenig systematisch untersucht worden. Teilweise sind experimentelle, auf der Messung von Emissionsspektren basierende Befunde sogar unverstanden geblieben.

Die vorliegende Arbeit verfolgte in diesem Zusammenhang zwei grundlegende Ziele: Zum einen haben wir einen speziellen, nämlich zwischen dem Biexziton und dem Grundzustand stattfindenden Zweiphotonenprozess in Halbleiterquantenpunkten betrachtet. Dieser lässt, über die bereits bekannten Eigenschaften (Linienbreiten- und Frequenzkontrolle) hinaus, durch die für dieses System spezifischen optischen Auswahlregeln auch die zusätzliche Kontrolle des Polarisationszustandes des emittierten Photons zu. Neuartig ist ferner, dass dieser Zweiphotonenprozess im Gegensatz zum Λ -System aus einem *angeregten* Zustand heraus getrieben wird. Hier haben wir explizit die Ansteuerbarkeit dieses Prozesses theoretisch nachgewiesen sowie die Einordnung in die Klasse der Raman-Prozesse vorgenommen. Zum anderen haben wir begleitend dazu, und an-

6. Zusammenfassung und Ausblick

knüpfend an die oben beschriebene Problematik der Emissionswahrscheinlichkeit aus Raman-Prozessen, eine grundlegend neue und vereinheitlichende theoretische sowie *mikroskopische* Beschreibung der Raman-Prozesse auf Basis der Cluster-Entwicklung im Heisenberg-Bild etabliert. Eine *zentrale Vorhersage* unserer Arbeit ist, dass die Emissionswahrscheinlichkeit der Raman-Prozesse in allen Systemkonfigurationen – so auch des Biexziton-Grundzustand-Übergangs – durch ein geeignetes Systemdesign sowie geeignete, durch den Kontrolllaser definierte Anregungsbedingungen in den *On-Demand-Limes* überführt werden kann. Unsere Analyse und die daraus resultierenden Ergebnisse möchten wir im Folgenden nochmals detailliert zusammenfassen und einige vielversprechende Zukunftsperspektiven zur weiteren Optimierung der Einzelphotonenemission aus Raman-Prozessen aufzeigen.

In Kapitel 3 hatten wir uns zunächst auf einen wohlkontrollierbaren Anregungslimes beschränkt, in dem sowohl der Kontrolllaser als auch der Resonator weit von den elektronischen Übergängen verstimmt sind. Auf diese Weise ist für eine Erstuntersuchung sichergestellt, dass der Laser die Einzelphotonenemission aus dem Zweiphotonenprozess gezielt ansteuert ohne – möglicherweise noch unbekannte – konkurrierende Anregungspfade zu induzieren. In diesem Limes, der auch gelegentlich als kohärenter Limes bezeichnet wird, konnten wir bereits erste fundamentale physikalische Einsichten durch auf der Von-Neumann-Gleichung basierende numerische Simulationen gewinnen: Sowohl die Linienbreite des emittierten Einzelphotons als auch dessen Emissionsfrequenz sind innerhalb der Cavity-Resonanzlinie steuerbar. Dies zeichnet den Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand als Raman-Prozess aus. Darüber hinaus haben wir gezeigt, dass ebenso die Linienform im Wesentlichen durch Fourier-Transformation mit der Kontrollpulsform verknüpft ist: Somit ist eine flexible *Formbarkeit* des Einzelphotonenspektrums rein optisch durch den Kontrolllaser möglich. Da im kohärenten Limes hier die gesamte Systemantwort in die Dynamik der drei elementaren photonenassistierten Polarisierungen zerfällt, von denen sich zwei der Emission aus der Biexziton-Exziton-Kaskade und eine dem *Raman-Prozess* selbst zuordnen lassen, ist uns in einem ersten Schritt eine *reduzierende Modellbildung* ohne Zuhilfenahme der Cluster-Entwicklung gelungen. Unterstützend zu unseren Beobachtungen aus der numerischen Simulation haben wir durch analytische Lösung des reduzierten Modells gezeigt, dass der Raman-Prozess von anregungsintensitätsabhängigen Energieverschiebungen (*Stark-Verschiebungen*) betroffen ist, die die elementare Resonanzbedingung des Raman-Prozesses signifikant modifizieren können. Wir haben für die Stark-Verschiebungen sowohl im CW-Limes als auch für den gepulsten Fall explizite Ausdrücke hergeleitet. Die Verschiebungen hängen demnach explizit von der Resonatorverstimmung gegenüber den elektronischen Resonanzen, von der Anregungsintensität des Kontrolllasers und dessen Pulsform ab. Insbesondere ist die im gepulsten Falle vorliegende Zeitabhängigkeit der Verschiebungen dafür verantwortlich, dass wir für wachsende Anregungsintensitäten eine durch die Gestalt des Pulses beeinflusste Verformung der Raman-Spektrallinie beobachten. Unsere analytischen Betrachtungen haben ferner erste Hinweise darauf geliefert, dass die Raman-Emission nicht nur unmittelbar aus der durch den Kontrolllaser induzierten elektronischen Polarisation heraus generiert wird: Bemerkenswerterweise übernimmt auch die inkohärente Hintergrundemission des über die Cavity spontan zerfallenden Biexzitons die Rolle einer Initialquelle, die durch den Kontrolllaser abgegriffen und in Raman-Polarisation umgewandelt werden kann. Die in Kapitel 3 gewonnenen Einsichten zeigen deutlich, dass die Physik der Raman-Prozesse – sogar unter unseren vereinfachten Anregungsbedingungen

– deutlich komplizierter ist als bisher angenommen, insbesondere im Hinblick auf die Zielsetzung der Überführung in den On-Demand-Limes.

Dies hatten wir zum Anlass genommen, dass eine neu aufgerollte systematische Analyse der Raman-Prozesse auch aus theoretischer Sicht äußerst vielversprechend ist, welche auch den Biexziton-Raman-Prozess genauer in den Zusammenhang mit den bereits etablierten Raman-Prozessen in Dreiniveausystemen stellt. Die in Kapitel 4 dargestellten Ergebnisse sind daher von zentraler Bedeutung für die Weiterentwicklung sämtlicher auf Raman-Prozessen operierender Einzelphotonenquellen, und wir geben im Folgenden eine kompakte Zusammenfassung unserer auf Basis der mikroskopischen, vermittels der Cluster-Entwicklung etablierten Populationszerlegung gewonnenen Erkenntnisse. Für die resonatorgestützte Einzelphotonenemission aus Zweiphotonen-Raman-Prozessen in Dreiniveausystemen sind genau vier Realisierungen möglich – zwei Ξ -Konfigurationen sowie eine Λ - und eine V -Konfiguration –, wenn wir uns auf die Annahme beschränken, dass die drei elektronischen Zustände jeweils mit zwei zueinander orthogonal polarisierten optisch erlaubten Übergängen verknüpft sind. In diesem Zusammenhang haben wir erstmalig gezeigt, dass es zwei verschiedene Klassen von Raman-Prozessen gibt, welche sich darin unterscheiden, ob der Kontrolllaser entweder an den Anfangszustand koppelt (Λ -artig) oder an den Zielzustand (V -artig). Das heißt, dass der das Raman-Photon verstärkende Resonator im Λ -artigen Fall an den Zielzustand und im V -artigen an den Anfangszustand koppelt. Diese beiden Raman-Prozesse werden zwar beide jeweils durch eine in der Cluster-Entwicklung identifizierbare *Raman-Korrelation* vermittelt, grenzen sich aber in ihrer Raman-Korrelationsdynamik durch physikalisch substantiell unterschiedliche Wechselwirkungen zwischen dem Kontrolllaser und dem Materialsystem voneinander ab: Der Λ -artige Raman-Prozess wird unmittelbar durch die laserinduzierte elektronische Polarisation zwischen dem Anfangs- und Zwischenzustand getrieben, also aus einer rein kohärenten Anfangsbedingung heraus. Der V -artige Raman-Prozess hingegen hängt explizit ausschließlich über die Rückkopplung an die emittierte Photonenpopulation und damit nur schwach von der laserinduzierten Polarisation ab: Sie ist daher keine direkte Initialquelle. Stattdessen liegt eine unmittelbare Wechselwirkung des Kontrolllasers mit der inkohärenten Hintergrundemission vor, die aus dem über die Resonatormode spontan zerfallenden Anfangszustand stammt. Mit anderen Worten speist sich der V -artige Raman-Prozess aus einer inkohärenten Quelle, die durch den Kontrolllaser in kohärente Raman-Emission gewinnbringend umgewandelt werden kann. Daraus resultieren dementsprechend sehr unterschiedliche Raman-Emissionscharakteristiken und Raman-Emissionswahrscheinlichkeiten. Unser im Rahmen dieser Arbeit entwickeltes mikroskopisches Rahmenkonzept zeigt deutlich, dass zwar die Überführung beider Raman-Prozessklassen in den On-Demand-Limes möglich ist, aber sowohl das Anregungs- wie auch das Systemdesign in einem *nichttrivialen* Zusammenhang mit der resultierenden Emissionswahrscheinlichkeit stehen. Wir finden nämlich, dass *On-Demand-Wahrscheinlichkeit* durch bezüglich der elektronischen Übergänge nahresonant verstimmte Cavities begünstigt wird: In diesem Grenzfall, in dem es zu einem moderaten spektralen Überlapp zwischen Cavity und elektronischer Resonanz kommt, kann die Raman-Korrelation statt der Vermittlung der Emission eines Raman-Photons jedoch auch destruktive quantenmechanische *Interferenz* induzieren. Dieses die Raman-Emission limitierende Phänomen, welches bisher noch nicht im Zusammenhang mit der Erzeugung von Raman-Photonen untersucht worden ist, wird insbesondere auch bei gesteigerter Anregungsintensität relevant, und wir machen diesen Sachverhalt unter anderem dafür verantwortlich, dass expe-

6. Zusammenfassung und Ausblick

rimentelle Realisierungen der On-Demand-Emission bisher ohne Erfolg geblieben sind. Unsere Analyse jedoch zeigt, dass die Interferenzeffekte durch eine geeignete kombinierte Wahl der Anregungsintensität, der Pulsform, der Laserverstimmung sowie der Resonatorverstimmung unterdrückt werden können bei gleichzeitiger Steigerung der Raman-Emissionswahrscheinlichkeit. In diesem Zusammenhang haben wir ferner gezeigt, dass der *resonante Raman-Prozess*, bei dem sowohl Cavity als auch Kontrolllaser mit dem jeweiligen elektronischen Übergang resonant werden, *nicht* über die Raman-Korrelation vermittelt wird, welche hier ausschließlich für die beobachtbare anregungsinduzierte Dämpfung der Rabi-Oszillationen verantwortlich ist. Im Sinne unserer Definition ist demnach der resonant getriebene sogenannte Spin-Flip-Prozess in Λ -Konfigurationen, der die deterministische Inversion des Systems vom Anfangs- in den Endzustand ermöglicht, kein Raman-Prozess. Der Spin-Flip-Prozess wird nämlich durch die schrittweise Besetzungsinversion über den elektronischen Zwischenzustand vermittelt, die für wachsende Intensität dem konstruktiven Aufbau der Raman-Korrelation entgegenwirkt. Unsere in Kapitel 4 gewonnenen physikalischen Einsichten in die optischen Eigenschaften der Zweiphotonen-Raman-Prozesse haben wir zum Anlass genommen, abschließend den Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand in unserem neu etablierten mikroskopischen Formalismus zu analysieren, um erste Optimierungsperspektiven aufzuzeigen.

Die in Kapitel 5 für das volle Vierniveausystem des Quantenpunktes verallgemeinerte mikroskopische Beschreibung zeigt deutlich, dass durch die beiden Zerfallskanäle des Biexzitons sowie durch die Ankopplung von Cavity und Laser sowohl an den Anfangs- als auch an den Zielzustand eine Vielzahl von zum Raman-Prozess zwischen Biexziton und Grundzustand konkurrierenden Anregungspfaden vorliegt. Hier wird deutlich, dass eine eindeutige Beschreibung des gewünschten Raman-Photons durch seine Raman-Korrelation unumgänglich wird, um eine systematische Optimierung möglich zu machen. Wir haben dementsprechend ausgehend von unserem in Kapitel 4 entwickelten Formalismus eine *mikroskopische Definition* eines aus dem Biexziton emittierten Raman-Photons hergeleitet. Unsere Analyse zeigt deutlich, dass die Raman-Emission aus dem Biexziton im Wesentlichen das Resultat einer Überlagerung der rein Λ - und V-artigen Raman-Charakteristik ist. Dementsprechend stehen für die Raman-Emission aus dem Biexziton beide Arten von Quellen zur Verfügung, sowohl die laserinduzierte Polarisierung (Λ -artig) als auch die laserinduzierte Umwandlung der inkohärenten Emission aus dem Biexziton in Raman-Emission (V-artig). Dies bestätigt und verallgemeinert unsere aus den in Kapitel 3 durchgeführten analytischen Vorbetrachtungen gewonnene Erkenntnis. Beide Charakteristiken können je nach Wahl der Resonatorverstimmung jeweils gezielt bevorzugt werden: Wird die Cavity spektral in der Nähe der Biexziton-Exziton-Resonanz platziert, beobachten wir eine im Wesentlichen V-artige Emission, wird sie hingegen in der Nähe der Exziton-Grundzustand-Resonanz platziert, beobachten wir eine Λ -artige Emission, welche insbesondere recht hintergrundfrei ist. Durch eine systematische Untersuchung des gesamten Parameterbereichs für die Resonator- und Laserverstimmungen haben wir ferner gezeigt, dass die Emissionswahrscheinlichkeit für eine spektral zwischen den beiden Resonanzen der Biexziton-Exziton-Kaskade platzierte Cavity deutlich gesteigert werden kann im Vergleich zu einer außerhalb derer platzierten. Dies lässt sich dadurch begründen, dass in diesem Spektralbereich sowohl die Λ - als auch die V-artige Raman-Korrelationsquelle durch den Kontrolllaser effizient aktiviert werden können. Eine begleitende Betrachtung des durch den Raman-Prozess gesteuerten Inversionverhaltens vom Biexziton in den Grundzustand hat dabei ergeben, dass eine spektral unterhalb

der Exziton-Grundzustand-Resonanz verstimmt Cavity im Unterschied zu einer spektral oberhalb der Biexziton-Exziton-Resonanz verstimmt Cavity die *On-Demand-Emission* eines Raman-Photons unter gleichzeitiger *deterministischer Inversion* des Systems in den Grundzustand begünstigt. Somit wird ein voller Anregungszyklus möglich, der mit der Biexzitoninitialisierung aus dem Grundzustand heraus über die entartete Zweiphotonenresonanz beginnt und mit der durch den Kontrolllaser induzierten Raman-Photonenemission unter gleichzeitiger Wiederherstellung des Grundzustandes abschließt. Unsere Simulationen eines vollen Zyklus sowie zweier solcher vollen Zyklen hintereinander legen nahe, dass sich die On-Demand-Emission relativ robust verhält, selbst wenn das Biexziton nur unvollständig wiederhergestellt werden kann.

Als diese Arbeit beschließendes Resümee lässt sich sagen, dass wir im Rahmen der hier präsentierten Studien ein neues Rahmenkonzept zur Untersuchung von Zweiphotonen-Raman-Prozessen ausgehend von der Cluster-Entwicklung entwickelt haben, was eine *vereinheitlichende und systematische Beschreibung* dieser Prozesse etabliert. Unsere neue und eindeutige mikroskopische Definition eines Raman-Photons durch seine Raman-Korrelation hat die Bereitstellung nützlicher Kenngrößen, wie zum Beispiel der Raman-Emissionswahrscheinlichkeit und der daraus abgeleiteten Optimalverstimmung des Kontrolllasers, ermöglicht. Somit erlaubt unser Formalismus die Aufzeichnung von Emissionskarten in Abhängigkeit von zwei variierenden Systemparametern sowie die Aufzeichnung von systemspezifischen Kennlinien. Insbesondere wird unsere Definition der Raman-Emissionswahrscheinlichkeit künftig die *vollautomatisierte Optimierung* des System- und Anregungsdesigns von auf Raman-Prozessen operierenden Einzelphotonenquellen zulassen. In diesem Zusammenhang deuten unsere Ergebnisse an, dass insbesondere in der Verwendung maßgeschneiderter *Chirp-Kontrollpulse* ein großes Optimierungspotential noch verborgen ist, sowohl im Hinblick auf die Unterdrückung von Interferenzeffekten zur Steigerung der Emissionswahrscheinlichkeit als auch auf die gezielte Formbarkeit der Raman-Spektrallinie im Limes wachsender Anregungsintensität. Für eine Verbesserung der *quantitativen* Aussagekraft unseres hier etablierten theoretischen Rahmenkonzeptes sollten in der Modellbildung zukünftig weitere für die Effizienz relevante Effekte, wie Phononen [106, 122] oder die direkte Einkopplung von Laserphotonen in den Resonator [54], berücksichtigt werden. Vor allen Dingen wird unser Rahmenkonzept die anstehende *experimentelle Realisierung* der Raman-Photonenemission aus dem Biexziton [119] unterstützen, da sowohl das Proben- als auch Anregungsdesign mithilfe unserer hier bereitgestellten Werkzeuge gezielt gestaltet und aufeinander abgestimmt werden können. Somit setzt diese Arbeit einen neuen Grundstein zur Weiterentwicklung von auf Raman-Prozessen basierenden Einzelphotonenquellen für die Anwendung in Quantennetzwerken.

6. Zusammenfassung und Ausblick

Ergänzende Betrachtungen zur Emission aus dem Biexziton

In diesem Anhang stellen wir einige für die Kapitel 3 und 5 relevante Zusatzbetrachtungen zum Zweiphotonenprozess zwischen Biexziton und Grundzustand im Vierniveaumodell des Quantenpunktes zusammen. Hier möchten wir zum einen unsere in den Publikationen [P1,P2] genutzte Darstellung und die dort präsentierten Ergebnisse mit der in dieser Arbeit bzw. in Publikation [P3] vereinheitlichten Beschreibung der Raman-Prozesse verknüpfen. Zum anderen zeigen wir darüber hinaus einige Herleitungen zum reduzierten Modell aus Kapitel 3 sowie ergänzende Untersuchungen zur in Kapitel 5 gezeigten mikroskopischen Analyse, die wir ausgehend von Kapitel 4 bzw. Anhang B verallgemeinern.

A.1. Behandlung von Polarisations- und strahlendem Zerfall

In diesem Abschnitt spezifizieren wir die Lindblad-Terme für die volle Beschreibung durch die Von-Neumann-Gleichung. Zudem diskutieren wir den Einfluss von strahlendem Zerfall auf die Raman-Emission in der mikroskopischen Formulierung von Kapitel 5.

Wir berücksichtigen Polarisationszerfall durch Lindblad-Terme nach Gl. (2.18) explizit durch die Lindblad-Operatoren $L = \sqrt{\hbar\gamma_{\alpha,\beta}}P_{\alpha,\beta}$ mit $E_\alpha > E_\beta$ und $\alpha, \beta = G, X_H, X_V, B$. Dies führt zunächst auf den Gesamtbeitrag in der Von-Neumann-Gleichung, Gl. (2.16), nach Quelle [83],

$$\left. \frac{\partial}{\partial t} \rho \right|_{\text{pure}} = \frac{1}{2} \sum_{\alpha \neq \beta, E_\alpha > E_\beta} \gamma_{\alpha,\beta} (2\sigma_{\alpha,\beta} \rho \sigma_{\alpha,\beta} - \sigma_{\alpha,\beta} \sigma_{\alpha,\beta} \rho - \rho \sigma_{\alpha,\beta} \sigma_{\alpha,\beta}), \quad (\text{A.1})$$

den wir unter der Annahme $\gamma_{\alpha,\beta} = \gamma_{\beta,\alpha}$ umschreiben können als

$$\left. \frac{\partial}{\partial t} \rho \right|_{\text{pure}} = \frac{1}{4} \sum_{\alpha \neq \beta} \gamma_{\alpha,\beta} (2\sigma_{\alpha,\beta} \rho \sigma_{\alpha,\beta} - \sigma_{\alpha,\beta} \sigma_{\alpha,\beta} \rho - \rho \sigma_{\alpha,\beta} \sigma_{\alpha,\beta}). \quad (\text{A.2})$$

Denn für die Inversionen gilt $\sigma_{\alpha,\beta} = -\sigma_{\beta,\alpha}$, dieser Vorzeichenwechsel hebt sich aber hier jeweils bei der Vertauschung von α und β in Gl. (A.2) auf. Der Einfachheit halber wollen wir $\gamma_{\alpha,\beta} \equiv \gamma$ für alle Beiträge annehmen. Unter Ausnutzen von $\sum_\alpha P_{\alpha,\alpha} = 1$ reduziert sich

A. Ergänzende Betrachtungen zur Emission aus dem Biexziton

der Lindblad-Term auf den Ausdruck nach Quellen [80, 123],

$$\left. \frac{\partial}{\partial t} \rho \right|_{\text{pure}} = -\frac{\Gamma}{2} \sum_{\alpha \neq \beta} P_{\alpha, \alpha} \rho P_{\beta, \beta}, \quad (\text{A.3})$$

wobei wir die *effektive* Dephasierungsrate $\Gamma = 8\gamma$ wieder mit dem Faktor $1/2$ versehen haben, wie es auch in den Publikationen [P1, P2] definiert ist. Für ein n -Niveausystem ergibt sich allgemein $\Gamma = 2n\gamma$. Dies ist beim Vergleich der Dephasierungsraten des allgemeinen Lindblad-Terms, Gl. (2.18), und des bereits vereinfachten, Gl. (A.3), zu beachten. Die effektive Breite Γ ist dann die im Emissionsspektrum sichtbare Breite der elektronischen Übergänge – ggf. modifiziert durch strahlenden Zerfall –, wie wir auch in den folgenden Abschnitten sehen werden.

Hier wollen wir zudem eine typische Rate für strahlenden Zerfall der Besetzungen annehmen, welche wir über die Lindblad-Operatoren $L = \sqrt{\hbar r_{G, X_i}} P_{G, X_i}, \sqrt{\hbar r_{X_i, B}} P_{X_i, B}$ einführen, wobei wir analog zum Polarisationszerfall $r_{\alpha, \beta} \equiv r$ annehmen. Dies ergibt den Beitrag

$$\left. \frac{\partial}{\partial t} \rho \right|_{\text{rad}} = \frac{r}{2} \sum_i \sum_{\vartheta_i} (2P_{\vartheta_i} \rho P_{\vartheta_i}^\dagger - P_{\vartheta_i}^\dagger P_{\vartheta_i} \rho - \rho P_{\vartheta_i}^\dagger P_{\vartheta_i}) \quad (\text{A.4})$$

zur Bewegungsgleichung mit $\vartheta_i = (G, X_i), (X_i, B)$ und $i = H, V$. Das führt auf *effektive* elektronische Verlustraten $\Gamma_{\alpha, \beta}$. Insbesondere finden wir im Heisenberg-Bild nach Gl. (2.19) für die elektronischen Polarisierungen $P_{\alpha, \beta(+\alpha)}$ den Beitrag [P2]

$$\left. \frac{\partial}{\partial t} P_{\alpha, \beta} \right|_{\text{pure+rad}} = -\frac{\Gamma_{\alpha, \beta}}{2} P_{\alpha, \beta} \quad (\text{A.5})$$

mit

$$\Gamma_{X_i, G} = \Gamma + r, \quad \Gamma_{B, X_i} = \Gamma + 3r, \quad \Gamma_{B, G} = \Gamma + 2r. \quad (\text{A.6})$$

Wir vernachlässigen zunächst in unseren grundlegenden Vorstudien in Kapitel 3 strahlenden Zerfall, welcher in der Regel klein ist (typischerweise $\hbar r < 1 \mu\text{eV}$ [79, 106]) im Vergleich zum Polarisationszerfall ($\hbar\gamma$ beträgt typischerweise einige μeV [80, 106]). In unseren systematischen Untersuchungen in Kapitel 5 auf Basis der mikroskopischen Betrachtungen berücksichtigen wir strahlenden Zerfall der Vollständigkeit halber explizit. Erst der dort etablierte Formalismus erlaubt es uns, den Einfluss des strahlenden Zerfalls unmittelbar auf die Raman-Emission aus dem Biexziton zu diskutieren. Dazu diskutieren wir ergänzend zu Kapitel 5 im nächsten Abschnitt ein repräsentatives Beispiel.

A.1.1. Einfluss von strahlendem Zerfall auf die Raman-Emission

In unserem anhand der Abbn. 5.4d-5.4f diskutierten Beispiel der Emissionskarten für eine 5π -Rechteckanregung haben wir den strahlenden Zerfall ja in Anlehnung an die experimentellen Befunde aus Quellen [54, 106] als $\hbar r = 2 \mu\text{eV}$ angenommen. Dies entspricht nach Gl. (A.6) einer effektiven spektralen Verbreiterung der Raman-Emission von $4 \mu\text{eV}$ gegenüber dem reinen Polarisationszerfall von $30 \mu\text{eV}$. In Abb. A.1 zeigen wir neben $\hbar r = 2 \mu\text{eV}$ [Abb. A.1b] für identische Anregungsbedingungen zum Vergleich den Fall ohne strahlende Verluste, $\hbar r = 0$ [Abb. A.1a] sowie den Fall erhöhter Zerfallsrate, $\hbar r = 10$

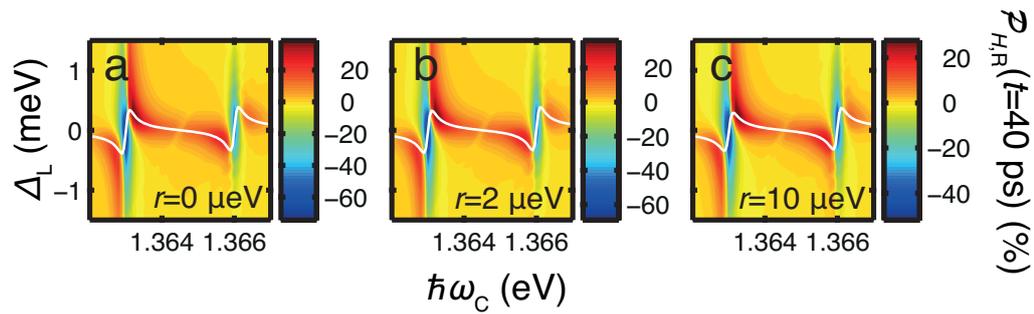


Abbildung A.1.: Einfluss von strahlendem Zerfall. Wir zeigen die Raman-Karten der H -Mode für das in Abb. 5.4d-5.4f gezeigte Szenario (a) ohne strahlenden Zerfall, $r = 0$, sowie mit strahlendem Zerfall, (b) $r = 2 \mu\text{eV}$ und (c) $r = 10 \mu\text{eV}$. Gezeigt ist auch wieder die CW-Kennlinie, Gl. (5.6), zur Orientierung (weiße Linie).

μeV , [Abb. A.1c]. Wir stellen fest, dass das Erscheinungsbild des Raman-Musters relativ unverändert bleibt. Insbesondere beim Abgleich zwischen Abb. A.1a und Abb. A.1b findet die Vernachlässigung strahlender Verluste unter Annahme typischer Materialbedingungen und den gewählten Zeitskalen, wie in Kapitel 4, ihre Rechtfertigung. Beim Übergang zu größeren Zerfallsraten machen wir lediglich eine Verringerung der Quantenausbeute bei gleichzeitiger Reduzierung der Interferenz aus, wie wir den drei Farbskalen entnehmen können. Zudem erfährt natürlich das spektrale Fenster, in dem jeweils um die beiden elektronischen Übergänge herum Interferenz stattfindet, auf der ω_C -Achse eine leichte Verbreiterung, wie auch die CW-Kennlinie (weiße Linie) anzeigt. Dies wird ja auch durch die Abschätzung für die Dreiniveausysteme, Gl. (4.29), aus Kapitel 4 analytisch ersichtlich, die lokal um die beiden elektronischen Resonanzen herum auch im vollen Quantenpunktmodell ihre Gültigkeit behält. Die zentrale Ausdehnung auf der Δ_L -Achse hingegen wird jeweils leicht verringert, wie auch Gl. (4.30) zeigt. Wir verweisen an dieser Stelle auch auf die analytische Diskussion des strahlenden Zerfalls in Abschnitt B.1.4 für die Raman-Emission aus Dreiniveausystemen.

Im nächsten Abschnitt behandeln wir detailliert die reduzierende Modellbildung, die wir in Kapitel 3 zur Gewinnung analytischer Zusammenhänge und physikalischer Einsichten in den Zweiphotonenprozess zurate ziehen.

A.2. Reduzierende Modellbildung

In diesem Abschnitt geben wir eine detaillierte Zusammenfassung zur reduzierenden Modellbildung ausgehend von den Heisenberg-Bewegungsgleichungen, welche in Kapitel 3 zur Analyse der ersten Studien herangezogen wird. Wir beschränken uns zur Vereinfachung des Systems im vollen Hamilton-Operator, Gln. (2.1) und (2.6), auf eine einzige Photonenmode der Frequenz ω_C , sodass wir als Hamilton-Operator

$$\begin{aligned}
H = & \sum_{\alpha=G,X,B} E_{\alpha} P_{\alpha,\alpha} + \hbar\omega_C b^{\dagger} b \\
& + \left[g(P_{G,X} b^{\dagger} + P_{X,B} b^{\dagger}) + (P_{G,X} \Omega^*(t) + P_{X,B} \Omega^*(t)) + \text{h.c.} \right]
\end{aligned} \tag{A.7}$$

erhalten, welchen wir allen folgenden Betrachtungen zugrunde legen werden. Hier haben wir die Energien $E_{\alpha} = \hbar\omega_{\alpha}$ der elektronischen Zustände definiert. Im folgenden Abschnitt betrachten wir die Emissionsdynamik anhand der Heisenberg-Bewegungsgleichung.

A.2.1. Emissionsdynamik

Unter unseren in Kapitel 3 eingeführten Annahmen können wir die Heisenberg-Gleichung, Gl. (2.19), mit den Lindblad-Termen für Photonenverluste und Polarisationszerfall nach Gl. (2.20) schreiben als

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle O \rangle = \langle [O, H(t)] \rangle + \frac{i\hbar\kappa}{2} \langle b^\dagger [O, b] + [b^\dagger, O] b \rangle - \frac{i\hbar\Gamma}{2} \sum_{\alpha \neq \beta} \langle P_{\alpha,\alpha} O P_{\beta,\beta} \rangle, \quad (\text{A.8})$$

wobei wir hier den Polarisationszerfall nach Gl. (A.3) bereits im Heisenberg-Bild ausgedrückt haben. Die Dynamik der Photonenpopulation $N = \langle b^\dagger b \rangle$ wird dann beschrieben durch

$$\frac{\partial}{\partial t} N = -\kappa N + \frac{2g}{\hbar} \text{Im} (\langle P_{G,X} b^\dagger \rangle + \langle P_{X,B} b^\dagger \rangle). \quad (\text{A.9})$$

Die hier auftretenden photonenassistierten Polarisierungen zwischen Exziton und Grundzustand sowie zwischen Biexziton und Exziton koppeln dann an die photonenassistierte Polarisation zwischen Biexziton und Grundzustand (später in Kapitel 3 als *Raman-Polarisation* identifiziert), welche die lasergestützte Einzelphotonenemission aus dem Biexziton vermittelt. Diese drei Polarisierungen folgen den Gleichungen

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle P_{G,X} b^\dagger \rangle &= \varepsilon_{X,G} \langle P_{G,X} b^\dagger \rangle + g (\langle P_{G,B} b^\dagger b^\dagger \rangle - \langle \sigma_{X,G} b^\dagger b \rangle - \langle P_{X,X} \rangle) \\ &\quad + \Omega^*(t) \langle P_{G,B} b^\dagger \rangle - \Omega(t) \langle \sigma_{X,G} b^\dagger \rangle \\ i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle P_{X,B} b^\dagger \rangle &= \varepsilon_{B,X} \langle P_{G,X} b^\dagger \rangle + g (-\langle P_{G,B} b^\dagger b^\dagger \rangle - \langle \sigma_{B,X} b^\dagger b \rangle - \langle P_{B,B} \rangle) \\ &\quad - \Omega^*(t) \langle P_{G,B} b^\dagger \rangle - \Omega(t) \langle \sigma_{B,X} b^\dagger \rangle \\ i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle P_{G,B} b^\dagger \rangle &= \varepsilon_{B,G} \langle P_{G,B} b^\dagger \rangle + g (\langle P_{G,X} b^\dagger b \rangle - \langle P_{X,B} b^\dagger b \rangle - \langle P_{X,B} \rangle) \\ &\quad + \Omega(t) (\langle P_{G,X} b^\dagger \rangle - \langle P_{X,B} b^\dagger \rangle), \end{aligned} \quad (\text{A.10})$$

wobei wir die um die Cavity-Energie verstimmtten Übergangsenergien $\varepsilon_{\alpha,\beta} \equiv E_\alpha - E_\beta - \hbar\omega_C - i\hbar \frac{\kappa+\Gamma}{2}$ eingeführt haben. Um die grundlegende Ankopplung von $\langle P_{G,B} b^\dagger \rangle$ an die fundamentalen Größen der Biexziton-Exziton-Kaskade zu untersuchen, reduzieren wir die Bewegungsgleichungen auf die laserassistierte Kopplung zwischen den photonenassistierten Polarisierungen. Zudem müssen wir die auftretenden elektronischen Besetzungen sowie die laserinduzierte Polarisation in unsere Betrachtungen einschließen, um die Anfangsbedingungen angemessen zu berücksichtigen. Dies führt auf

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} \langle P_{G,X} b^\dagger \rangle \\ \langle P_{X,B} b^\dagger \rangle \\ \langle P_{G,B} b^\dagger \rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{X,G} & 0 & \Omega^*(t) \\ 0 & \varepsilon_{B,X} & -\Omega^*(t) \\ \Omega(t) & -\Omega(t) & \varepsilon_{B,G} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \langle P_{G,X} b^\dagger \rangle \\ \langle P_{X,B} b^\dagger \rangle \\ \langle P_{G,B} b^\dagger \rangle \end{pmatrix} - g \begin{pmatrix} \langle P_{X,X} \rangle \\ \langle P_{B,B} \rangle \\ \langle P_{X,B} \rangle \end{pmatrix}. \quad (\text{A.11})$$

Um das Gleichungssystem tatsächlich zu schließen, nehmen wir quasistationäre Besetzungen an, welche sich auf den relevanten Zeitskalen im Mittel kaum verändern mögen, $\langle P_{B,B} \rangle = 1$ und $\langle P_{X,X} \rangle = 0$. Aus der Bewegungsgleichung der Polarisation,

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle P_{X,B} \rangle &= \left(E_B - E_X - i\hbar \frac{\Gamma}{2} \right) \langle P_{X,B} \rangle - g (\langle \sigma_{B,X} b \rangle + \langle P_{G,B} b^\dagger \rangle) \\ &\quad - \Omega(t) \langle \sigma_{B,X} \rangle - \Omega^*(t) \langle P_{G,B} \rangle, \end{aligned} \quad (\text{A.12})$$

extrahieren wir den Anteil, der das für nichtresonante Anregungen typische adiabatische Folgen der Besetzungen beschreibt,

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle P_{X,B} \rangle = \left(E_B - E_X - i\hbar \frac{\Gamma}{2} \right) \langle P_{X,B} \rangle - \Omega(t) \langle \sigma_{B,X} \rangle = E_{B,X} \langle P_{X,B} \rangle - \Omega(t), \quad (\text{A.13})$$

wobei wir im letzten Schritt die Abkürzung $E_{B,X} = E_B - E_X - i\hbar \frac{\Gamma}{2}$ eingeführt haben und wieder die Annahme der stationären Besetzungen haben eingehen lassen. Nun ist das Gleichungssystem, Gl. (A.11), geschlossen und kann gelöst werden..

Unter CW-Anregung, $\Omega(t) = \Omega_0 e^{-i\omega_L t}$, kann eine analytische Lösung gefunden werden. Dazu vereinbaren wir temporär einige Abkürzungen, um die Notation zu straffen: Wir vereinbaren die Kurznotation $(G, X) \equiv 1$, $(X, B) \equiv 2$, $(G, B) \equiv 3$ und nennen die Vektoreinträge in der Bewegungsgleichung P_i . Zur Lösung der Gln. (A.11) und (A.13) nutzen wir die Fourier-Transformation

$$\mathcal{P}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} dt P(t) e^{i\omega t}, \quad P(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \mathcal{P}(\omega) e^{-i\omega t}, \quad (\text{A.14})$$

wobei für die Diracsche Deltadistribution der Zusammenhang $\int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\omega t} = 2\pi \delta(\omega)$ gilt. Dies führt auf

$$\begin{aligned} \mathcal{P}_1(\omega) &= \frac{\Omega_0}{\hbar\omega - \varepsilon_1} \mathcal{P}_3(\omega + \omega_L) \\ \mathcal{P}_2(\omega) &= \frac{-2\pi g \delta(\omega) - \Omega_0 \mathcal{P}_3(\omega + \omega_L)}{\hbar\omega - \varepsilon_2} \\ (\hbar\omega - \varepsilon_3) \mathcal{P}_3(\omega) &= \Omega_0 [\mathcal{P}_1(\omega - \omega_L) - \mathcal{P}_2(\omega - \omega_L)] + \frac{2\pi g \Omega_0}{\hbar\omega - E_2} \delta(\omega - \omega_L). \end{aligned} \quad (\text{A.15})$$

Setzen wir schlussendlich die beiden ersten Gleichungen in die dritte ein, erhalten wir einen geschlossenen Ausdruck für \mathcal{P}_3 ,

$$\mathcal{P}_3(\omega) = 2\pi g \Omega_0 \delta(\omega - \omega_L) \frac{\frac{1}{\hbar(\omega - \omega_L) - \varepsilon_2} + \frac{1}{\hbar\omega - E_2}}{\Omega_0^2 \left[\frac{1}{\hbar(\omega - \omega_L) - \varepsilon_1} + \frac{1}{\hbar(\omega - \omega_L) - \varepsilon_2} \right] - (\hbar\omega - \varepsilon_3)}, \quad (\text{A.16})$$

welcher unter Fourier-Rücktransformation lautet:

$$P_3(t) = -g \Omega_0 \frac{\frac{1}{\hbar\omega_L - E_2} - \frac{1}{\varepsilon_2}}{\varepsilon_3 - \Omega_0^2 \left[\frac{1}{\varepsilon_1} + \frac{1}{\varepsilon_2} \right] - \hbar\omega_L} e^{-i\omega_L t} \equiv R_0 e^{-i\omega_L t}. \quad (\text{A.17})$$

Hier können wir im Nenner die Stark-Verschiebung bezüglich der elementaren Resonanz, $\varepsilon_3 - \hbar\omega_L = 0$, erkennen, sodass wir

$$\Delta_L^{\text{opt}} \equiv -\Omega_0^2 \left(\frac{1}{\varepsilon_1} + \frac{1}{\varepsilon_2} \right) \quad (\text{A.18})$$

als *optimale Kontrolllaserverstimmung* identifizieren, um den gewünschten Zweiphotonenprozess auch für wachsende Intensitäten Ω_0^2 effizient zu stimulieren. Ausgehend von Gl. (A.17) können wir die verbleibenden Gleichungen lösen und erhalten insgesamt

$$\langle P_{G,X} b^\dagger \rangle = -\Omega_0 \frac{R_0}{\varepsilon_1}, \quad \langle P_{X,B} b^\dagger \rangle = \Omega_0 \frac{R_0}{\varepsilon_2} + \frac{g}{\varepsilon_2}, \quad \langle P_{G,B} b^\dagger \rangle = R_0 e^{-i\omega_L t}. \quad (\text{A.19})$$

A. Ergänzende Betrachtungen zur Emission aus dem Biexziton

Einsetzen in Gl. (A.9) liefert für die Photonpopulation

$$N = -\frac{2g}{\hbar\kappa} \text{Im} \left[\Omega_0 \left(\frac{1}{\varepsilon_2} - \frac{1}{\varepsilon_1} \right) R_0 + \frac{1}{\varepsilon_2} \right]. \quad (\text{A.20})$$

Eine detaillierte Analyse der hier auftretenden Beiträge geben wir im Hauptteil der Arbeit im Rahmen der Diskussion von Gl. (3.11). Im folgenden Abschnitt entwickeln wir in Übereinstimmung mit der obigen Vorgehensweise ein reduziertes Modell für das korrespondierende Emissionsspektrum.

A.2.2. Wiener-Khintchine-Spektrum

Um das Wiener-Khintchine-Spektrum,

$$S_{\text{CW}}(\omega) = \text{Re} \int_0^\infty d\tau e^{-i\omega\tau} G(\tau), \quad (\text{A.21})$$

(siehe auch Gl. (2.30)) zu berechnen, benötigen wir zuerst die Bewegungsgleichung der photonischen Autokorrelation $G(t, \tau) = \langle b^\dagger(t + \tau)b(t) \rangle$, welche für stationäre Bedingungen, $\Omega(t) = \Omega_0 e^{-i\omega_L t}$, nicht von t abhängt, sodass wir der Einfachheit halber $t = 0$ wählen und $G(0, \tau) = \langle b^\dagger(\tau)b(0) \rangle \equiv G(\tau)$ identifizieren. Für $\tau = 0$ gilt dann $G(0) = N$, wobei die Photonpopulation N im reduzierten Modell explizit durch Gl. (A.20) gegeben ist. Um die Bewegungsgleichungen der zweizeitigen Korrelatoren zu erhalten, gehen wir nach Gl. (2.33) vor. Die τ -Dynamik des Photonenerzeugers erhalten wir aus Gl. (A.8), sie ist gegeben durch

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial \tau} b^\dagger(\tau) = -\hbar \left(\omega_C + i\frac{\kappa}{2} \right) b^\dagger(\tau) - g [P_{X,G}(\tau) + P_{B,X}(\tau)] \quad (\text{A.22})$$

Multiplizieren wir diese Gleichung von rechts mit $b(0)$ und nehmen den Erwartungswert, so erhalten wir die Bewegungsgleichung der Autokorrelationsfunktion,

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial \tau} G(\tau) = -\hbar \left(\omega_C + i\frac{\kappa}{2} \right) G(\tau) - g [\langle P_{X,G}(\tau)b(0) \rangle + \langle P_{B,X}(\tau)b(0) \rangle]. \quad (\text{A.23})$$

Hier wollen wir für die weiteren Betrachtungen die Abkürzung $\Pi_{\alpha,\beta}(\tau) = \langle P_{\alpha,\beta}(\tau)b(0) \rangle$ vereinbaren. Analog finden wir dann ausgehend von der τ -Dynamik von $P_{X,G}$ und $P_{B,X}$

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial \tau} \Pi_{X,G}(\tau) &= -E_{X,G} \Pi_{X,G}(\tau) + g (\langle \sigma_{X,G}(\tau)b^\dagger(\tau)b(0) \rangle - \langle P_{B,G}(\tau)b(\tau)b(0) \rangle) \\ &\quad + \Omega^*(\tau) \langle \sigma_{X,G}(\tau)b(0) \rangle - \Omega(\tau) \langle P_{B,G}(\tau)b(0) \rangle \end{aligned} \quad (\text{A.24})$$

und

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial \tau} \Pi_{B,X}(\tau) &= -E_{B,X} \Pi_{B,X}(\tau) + g (\langle \sigma_{B,X}(\tau)b^\dagger(\tau)b(0) \rangle + \langle P_{B,G}(\tau)b(\tau)b(0) \rangle) \\ &\quad + \Omega^*(\tau) \langle \sigma_{B,X}(\tau)b(0) \rangle + \Omega(\tau) \langle P_{B,G}(\tau)b(0) \rangle, \end{aligned} \quad (\text{A.25})$$

wobei wir die Übergangsenergien $E_{\alpha,\beta} = E_\alpha - E_\beta + i\hbar\frac{\Gamma}{2}$ eingeführt haben. Die beiden Korrelatoren gehen für $\tau = 0$ in die photonenassistierten Polarisationen der Biexziton-Exziton-Kaskade über, $\Pi_{\alpha,\beta}^*(0) = \langle P_{\beta,\alpha} b^\dagger \rangle$. In beiden Bewegungsgleichungen identifizieren wir den

Korrelator $\langle P_{B,G}(\tau)b(0) \rangle \equiv \Pi_{B,G}(\tau)$ als Vermittler unseres Zweiphotonenprozesses, denn er ist für $\tau = 0$ direkt mit der photonenassistierten Polarisation zwischen Biexziton und Grundzustand verbunden, $\Pi_{B,G}^*(0) = \langle P_{G,B}b^\dagger \rangle$ (in Kapitel 3 später als *Raman-Polarisation* identifiziert). Er gehorcht der Bewegungsgleichung

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial \tau} \Pi_{B,G}(\tau) = -E_{B,G} \Pi_{B,G}(\tau) - g \left(\langle P_{X,G}(\tau)b^\dagger(\tau)b(0) \rangle - \langle P_{B,X}(\tau)b^\dagger(\tau)b(0) \rangle \right) + \Omega^*(\tau) [\Pi_{B,X}(\tau) - \Pi_{X,G}(\tau)], \quad (\text{A.26})$$

welche wieder zurück an die Korrelatoren der Biexziton-Exziton-Kaskade koppeln. Anknüpfend an die Diskussion zur Reduzierung der Bewegungsgleichungen der Emissionsdynamik, Gl. (A.10), extrahieren wir aus den Gln. (A.24)-(A.26) einen geschlossenen Satz von Bewegungsgleichungen,

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial \tau} \begin{pmatrix} \Pi_{X,G} \\ \Pi_{B,X} \\ \Pi_{B,G} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -E_{X,G} & 0 & -\Omega(\tau) \\ 0 & -E_{B,X} & \Omega(\tau) \\ -\Omega^*(\tau) & \Omega^*(\tau) & -E_{B,G} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Pi_{X,G} \\ \Pi_{B,X} \\ \Pi_{B,G} \end{pmatrix}. \quad (\text{A.27})$$

Um nun daraus das Emissionsspektrum zu berechnen, wenden wir als Erstes die durch Gl. (A.21) definierte Integration auf Gl. (A.23) an und erhalten,

$$\mathcal{S}_{\text{CW}}(\omega) = \text{Re} \frac{i\hbar G(0) - g [\mathcal{S}_{X,G}(\omega) + \mathcal{S}_{B,X}(\omega)]}{\hbar(\omega_C - \omega) + i\hbar\kappa/2}, \quad (\text{A.28})$$

wobei wir $\mathcal{S}_{\alpha,\beta}(\omega) = \int_0^\infty d\tau e^{-i\omega\tau} \Pi_{\alpha,\beta}(\tau)$ definiert haben. Wenden wir wiederum die $\mathcal{S}_{\alpha,\beta}$ -Integration auf Gl. (A.27) an, erhalten wir für die in \mathcal{S}_{CW} auftretenden Komponenten

$$\begin{aligned} \mathcal{S}_{X,G}(\omega) &= \frac{i\hbar \Pi_{X,G}(0) - \Omega_0 \mathcal{S}_{B,G}(\omega + \omega_L)}{E_{X,G} - \hbar\omega}, \\ \mathcal{S}_{B,X}(\omega) &= \frac{i\hbar \Pi_{B,X}(0) + \Omega_0 \mathcal{S}_{B,G}(\omega + \omega_L)}{E_{B,X} - \hbar\omega}. \end{aligned} \quad (\text{A.29})$$

Der darin enthaltene Beitrag des durch den Kontrolllaser assistierten Zweiphotonenprozesses lautet

$$\Omega_0 \mathcal{S}_{B,G}(\omega + \omega_L) = \frac{i\hbar \Omega_0 \Pi_{B,G}(0) + \Omega_0^2 \left[\frac{i\hbar \Pi_{B,X}(0)}{E_{B,X} - \hbar\omega} - \frac{i\hbar \Pi_{X,G}(0)}{E_{X,G} - \hbar\omega} \right]}{\hbar\omega_C - \Delta_L - \Omega_0^2 \left[\frac{1}{E_{B,X} - \hbar\omega} + \frac{1}{E_{X,G} - \hbar\omega} \right] - \hbar\omega + i\hbar \frac{\Gamma}{2}}, \quad (\text{A.30})$$

wobei wir bereits $\hbar\omega_L = E_B - E_G - \hbar\omega_C + \Delta_L$ eingesetzt haben. Die hier auftretenden Beiträge $\Pi_{\alpha,\beta}(0)$ sind durch die im vorigen Abschnitt hergeleiteten Ausdrücke nach Gl. (A.19) explizit durch

$$\Pi_{B,G}(0) = R_0^*, \quad \Pi_{G,X}(0) = -\Omega_0 \frac{R_0^*}{\varepsilon_1^*}, \quad \Pi_{B,X}(0) = \Omega_0 \frac{R_0^*}{\varepsilon_2^*} + \frac{g}{\varepsilon_2^*} \quad (\text{A.31})$$

gegeben. Eine ausführliche Diskussion der hier hergeleiteten Ausdrücke liefert der Abschnitt 3.3.

Der folgende Abschnitt verknüpft nun aus der reduzierenden Modellbildung gewonnene Zusammenhänge mit der systematischen und mikroskopischen Analyse des vollen Vierniveaumodells auf Basis der Cluster-Entwicklung aus Kapitel 5. Dort haben wir uns auf die Betrachtung des Rechteckpulses beschränkt, und wir diskutieren im folgenden Abschnitt explizit zum Vergleich eine Gauß-Pulsanregung und dessen induzierte zeitabhängige Energieverschiebung.

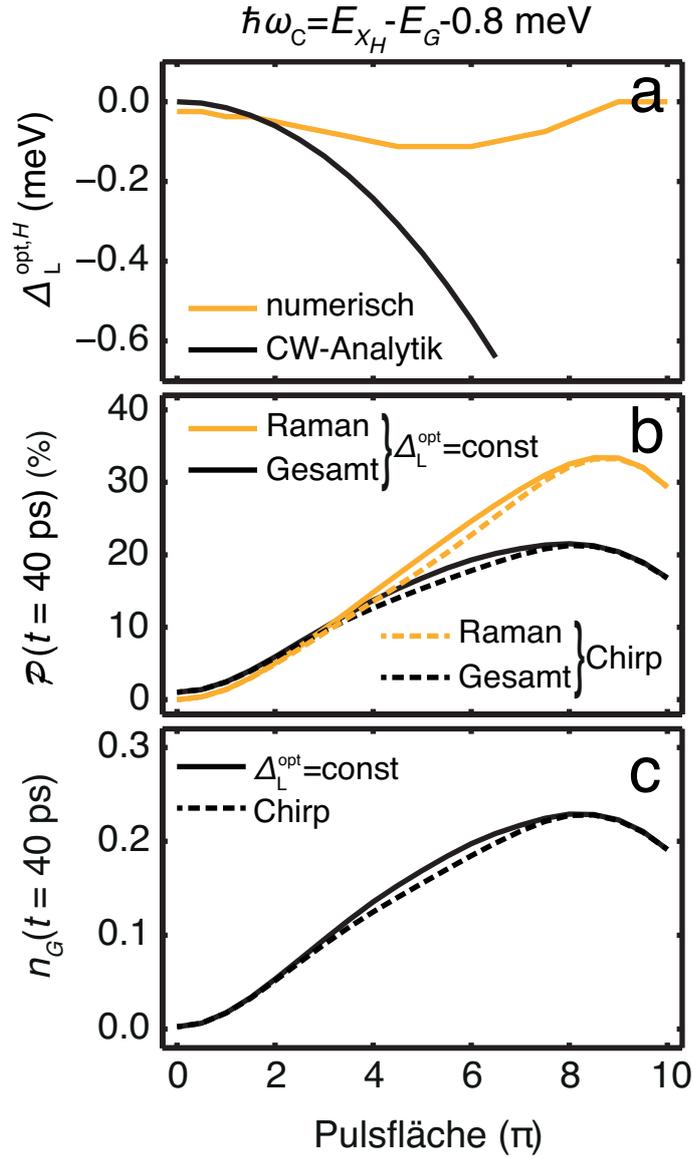


Abbildung A.2.: Konstante vs. zeitabhängige Laserverstimmung. Für die Systemkonstellation aus Abbn. 5.5d-5.5f sind die Input-Output-Kennlinien für den in Abb. 4.3a präsentierten Gauß-Puls mit variierender Amplitude zusammengestellt. (a) Numerisch (gelbe Linie) und über die CW-Analytik (schwarze Linie) ermittelte konstante Optimalverstimmung des Kontrolllasers. (b) Resultierende Raman- (gelbe durchgezogene Linie) und Gesamtemissionswahrscheinlichkeit (schwarze durchgezogene Linie) in der H -Mode für die in (a) gezeigte numerisch ermittelte konstante Verstimmung im Vergleich mit der entsprechenden Chirp-Anregung mit der durch Gl. (A.32) definierten zeitabhängigen Verstimmung (gestrichelte Linien). (c) Endbesetzung des Grundzustandes für konstante (durchgezogene Linie) und zeitabhängige Verstimmung (gestrichelte Linie).

A.2.3. Zeitabhängigkeit der Stark-Verschiebung

In Abschnitt 3.4 hatten wir aus der Lösung des reduzierten Modells für beliebige Einhüllende \mathcal{Q}_{env} des Kontrollpulses die explizite Zeitabhängigkeit der durch den Puls induzierten Stark-Verschiebung (siehe auch Gl. (3.35)) hergeleitet,

$$\Delta_L(t) = \frac{i}{\hbar t} \int_0^t ds \int_0^s du \mathcal{Q}_{\text{env}}(s) \mathcal{Q}_{\text{env}}(u) \left[e^{\frac{i}{\hbar} \varepsilon_{X,G}(s-u)} + e^{\frac{i}{\hbar} \varepsilon_{B,X}(s-u)} \right]. \quad (\text{A.32})$$

Analog zur Verallgemeinerung der CW-Kennlinie für die *konstante* Optimalverschiebung, Gl. (5.6), können wir diesen Ausdruck durch die expliziten Identifizierungen $X \equiv X_H$ und $\Omega \equiv \Omega_H$ auf die in Kapitel 5 diskutierte Raman-Emission in der *H*-Mode abstimmen.

Nun wollen wir die Raman-Kennlinien ergänzend für eine Gauß-Pulsanregung der Breite $\Delta t = 3$ ps – wie auch zuvor in Kapitel 4 – diskutieren. Zum einen zeichnen wir die Kennlinien für eine optimierte *konstante* Verstimmung des Kontrolllasers und zum anderen für die durch Gl. (A.32) definierte *Chirp-Anregung* auf. In Übereinstimmung mit den physikalischen Parametern aus Abb. 5.5d-5.5f zeigen wir das Resultat für den Gauß-Puls in Abb. A.2. Hier entnehmen wir Abb. A.2a, dass die CW-Kennlinie der konstanten Optimalverstimmung (schwarze Linie) die numerisch ermittelte konstante Optimalverstimmung (gelbe Linie) sowohl betragsmäßig deutlich überschätzt als auch den qualitativen Verlauf ab etwa $\theta = 5\pi$ nicht mehr korrekt widerspiegelt: Hier weist die numerische Kennlinie einen Umkehrpunkt auf. Betrachten wir hierzu vergleichend die Gesamt- und die Raman-Wahrscheinlichkeit [Abb. A.2b], stellen wir fest, dass in der Umgebung von $\theta = 5\pi$ bereits Interferenzeinflüsse relevant werden: Die Raman-Kennlinien (gelbe Linien) übertreffen hier die Kennlinien der Gesamtemission (schwarze Linien). Bemerkenswerterweise zeigt die Chirp-Anregung (gestrichelte Linien) eine überraschend gute Übereinstimmung, sogar im Limes großer Pulsflächen. Ebenso die Zielbesetzung des Grundzustandes [Abb. A.2c] zeigt eine sehr gute Übereinstimmung zwischen Chirp-Anregung und Anregung mit konstanter Frequenz. Im Gegensatz zu den aus der Rechteckanregung resultierenden Kennlinien, Abb. 5.5d-5.5f, induziert der Gauß-Puls allerdings eine deutliche anregungsinduzierte Dämpfung, die wir auf die auftretenden Interferenzphänomene zurückführen.

Folglich hat die aus dem *reduzierten Modell* gewonnene Zeitabhängigkeit der Starkverschiebung, Gl. (A.32), innerhalb unserer Modellbildung offenbar einen weitaus größeren Geltungsbereich als in Kapitel 3 zunächst angenommen, solange der spektrale Überlapp zwischen Resonator und elektronischen Resonanzen ausreichend klein ist. An dieser Stelle möchten wir darüber hinaus darauf hinweisen, dass für die durch $\Delta t = 3$ ps eventuell die Grenzen unserer Modellbildung erreicht werden – wir hatten in Abschnitt 2.1.1 ja einen verschwindenden spektralen Überlapp zwischen Resonator und Kontrolllaser angenommen. Dennoch motiviert dieses Beispiel, dass die durch den Kontrolllaser induzierte Raman-Emissionsdynamik eine nichttriviale Abhängigkeit von der Wahl der Kombination *aller* Anregungsparameter – Intensität, Anregungsfrequenz, Pulsform – aufweist. Daher studieren wir in Kapitel 5 die Raman-Emission anhand der Rechteckanregung, welche offenbar für eine erste grundlegende systematische Studie geeignete, wohlkontrollierbare Eigenschaften besitzt.

Im nächsten Abschnitt diskutieren wir kurz die Initialisierung des Biexzitons über die entartete Zweiphotonenresonanz [Abb. 5.1], welche die Grundvoraussetzung für den in Kapitel 5 diskutierten gesamten Zyklus [Abb. 5.8] der Einzelphotonenemission aus dem Biexziton darstellt.

A.3. Initialisierung des Biexzitons

Im Rahmen dieser Arbeit berücksichtigen wir den Initialisierungszyklus zur Erzeugung des Biexzitons, wie er in Abb. 5.1 dargestellt ist, weitgehend nicht. Stattdessen nehmen wir ja im Hauptteil der Arbeit an, dass das Biexziton bereits besetzt sei, $n_B(t = 0) =$

A. Ergänzende Betrachtungen zur Emission aus dem Biexziton

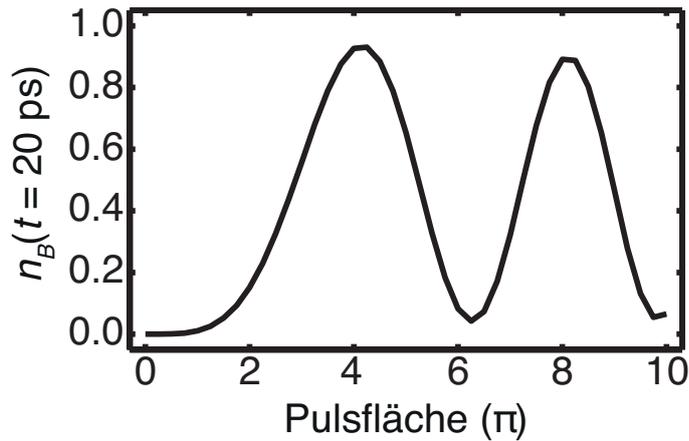


Abbildung A.3.: Zweiphotonen-Rabi-Oszillationen. Gezeigt ist die Besetzungen des Biexzitons, $n_B = \langle P_{B,B} \rangle$, unmittelbar nach der Anregung durch einen V -polarisierten Gauß-Puls der Breite $\Delta t = 3 \text{ ps}$ für variierende Pulsfläche. Die Anregungsfrequenz ist auf die Frequenz $(E_B - E_G)/(2\hbar)$ der entarteten Zweiphotonenresonanz eingestellt. Die Systemparameter stimmen mit Abb. 5.3e überein.

$\langle P_{B,B} \rangle(t=0) = 1$. Zur Diskussion des *vollen* Zyklus der Raman-Photonenerzeugung aus dem Biexziton, den wir zum Abschluss des Kapitels 5 diskutieren, benötigen wir jedoch für den dort in Abb. 5.8 gezeigten V -polarisierten Gauß-Puls die optimale Pulsfläche zur deterministischen Besetzung des Biexzitons. Dazu zeigt Abb. A.3 die über die Zweiphotonenresonanz getriebenen Rabi-Oszillationen der Biexzitonbesetzung für variierende Pulsfläche (experimentelle Realisierung siehe Quelle [81]). Im Falle polarisationsgefilterter Messung hat die Initialisierung in der V -Mode den Vorteil, dass zum Beispiel Streulicht des Initialisierungslasers die Detektion des im Rahmen dieser Arbeit als H -polarisiert gewählten Raman-Photons nicht beeinträchtigen kann. Wir entnehmen Abb. A.3, dass eine robuste Inversion des Systems vom Grundzustand ins Biexziton für eine Pulsfläche von etwa $\theta = 4\pi$ erreicht wird.

Ergänzende Betrachtungen zum Raman-Prozess in Dreiniveausystemen

In diesem Zusatzkapitel zeigen wir neben den zwei expliziten Sätzen von Bewegungsgleichungen in Singlet-Doublet-Triplet-Näherung (SDT) für Λ - und V-artige Systeme auch einige vertiefende Analysen, die zum Verständnis des Hauptteils – insbesondere Kapitel 4 – dieser Arbeit relevant sind. Zum einen wollen wir unser SDT-Resultat der vollen Von-Neumann-Lösung gegenüberstellen, um uns von der Gültigkeit unserer Näherung zu überzeugen. Zum anderen wollen wir den Vorteil der SDT-Gleichungen ausnutzen, dass wir relativ leicht und wohlkontrolliert analytische Zusammenhänge zwischen unseren Systemgrößen erschließen können. Hier werden wir vor allen Dingen geschlossene Ausdrücke für die anregungsinduzierte Energieverschiebung der Raman-Resonanzbedingung sowohl für den Fall stationärer als auch für den Fall beliebiger Pulsformen herleiten. Weiterhin werden wir ein vertieftes Verständnis für den Raman-Prozess selbst gewinnen, da wir die Raman-Gleichungen im stationären Fall vollständig analytisch lösen können.

Als Erstes führen wir die unseren in Kapitel 4 präsentierten Studien zugrunde liegenden Bewegungsgleichungen ein.

B.1. Singlet-Doublet-Triplet-Gleichungen

Unter Verwendung der Hamilton-Operatoren, Gln. (2.8)-(2.11), in der Heisenberg-Gleichung, Gl. (2.19), und anschließendem Ausnutzen der Faktorisierungen, Gln. (4.7)-(4.9), sowie des anhand von Gl. (2.24) motivierten Vorgehens, erhalten wir schlussendlich die beiden vollständigen Sätze von SDT-Gleichungen. Das Lichtfeld sei wie gehabt durch $\Omega(t) = \Omega_{\text{env}}(t)e^{-i\omega_L t}$ gegeben. Wie im Hauptteil bereits erwähnt, gehen wir in das rotierende System des Lichtfeldes, und wir definieren für eine Größe Q entsprechend die Einhüllende über $Q = Q_{\text{env}}(t)e^{\pm i\omega_L t}$. Dabei ist wieder das untere Vorzeichen für Ξ -Konfigurationen und das obere für die jeweilige Λ - oder V-Konfiguration gültig. Unsere SDT-Gleichungen berücksichtigen zunächst keinen strahlenden Zerfall der Besetzungen. Allerdings behalten insbesondere Gln. (B.1)-(B.4) bzw. Gln. (B.11)-(B.14) ihre formale Gestalt auch unter Berücksichtigung von strahlendem Zerfall – darunter fallen also auch die Raman-Gleichungen. Lediglich eine Modifikation der effektiven elektronischen Zerfallskonstanten $\Gamma_{i,j}$ muss hier vorgenommen werden. Diesen Sachverhalt diskutieren wir explizit im Abschnitt B.1.4.

B.1.1. SDT-Gleichungen für Λ -artige Systeme

Die Bewegungsgleichungen der Anregungsdynamik eines Λ -artigen Systems ohne Berücksichtigung von strahlendem Zerfall der Besetzungen lauten

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle\langle b^\dagger b \rangle\rangle = -\kappa \langle\langle b^\dagger b \rangle\rangle + \frac{2g}{\hbar} \text{Im} \langle\langle P_{3,2} b^\dagger \rangle\rangle, \quad (\text{B.1})$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \langle\langle P_{3,2} b^\dagger \rangle\rangle &= -i \left(\frac{\Delta_C}{\hbar} - i \frac{\kappa + \Gamma_{3,2}}{2} \right) \langle\langle P_{3,2} b^\dagger \rangle\rangle - \frac{i\Omega_{\text{env}}}{\hbar} \langle\langle P_{3,1} b^\dagger \rangle\rangle_{\text{env}} + \frac{ig}{\hbar} \langle P_{2,2} \rangle \\ &\quad - \frac{ig}{\hbar} \langle \sigma_{3,2} \rangle \langle\langle b^\dagger b \rangle\rangle - \frac{ig}{\hbar} \langle\langle \sigma_{3,2} b^\dagger b \rangle\rangle, \end{aligned} \quad (\text{B.2})$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \langle\langle P_{3,1} b^\dagger \rangle\rangle_{\text{env}} &= -i \left(\pm \frac{\Delta_L}{\hbar} - i \frac{\kappa + \Gamma_{3,1}}{2} \right) \langle\langle P_{3,1} b^\dagger \rangle\rangle_{\text{env}} - \frac{i\Omega_{\text{env}}}{\hbar} \langle\langle P_{3,2} b^\dagger \rangle\rangle \\ &\quad + \frac{ig}{\hbar} \langle P_{2,1} \rangle_{\text{env}} (1 + \langle\langle b^\dagger b \rangle\rangle) + \frac{ig}{\hbar} \langle\langle P_{2,1} b^\dagger b \rangle\rangle_{\text{env}}, \end{aligned} \quad (\text{B.3})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle P_{2,1} \rangle_{\text{env}} = -i \left(\frac{-\Delta_C \pm \Delta_L}{\hbar} - i \frac{\Gamma_{2,1}}{2} \right) \langle P_{2,1} \rangle_{\text{env}} - \frac{i\Omega_{\text{env}}}{\hbar} \langle \sigma_{2,1} \rangle + \frac{ig}{\hbar} \langle\langle P_{3,1} b^\dagger \rangle\rangle_{\text{env}}, \quad (\text{B.4})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle P_{1,1} \rangle = -\frac{2}{\hbar} \text{Im} (\Omega_{\text{env}} \langle P_{2,1} \rangle_{\text{env}}), \quad (\text{B.5})$$

$$\langle P_{2,2} \rangle = 1 - \langle P_{1,1} \rangle - \langle P_{3,3} \rangle, \quad (\text{B.6})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle P_{3,3} \rangle = \frac{2g}{\hbar} \text{Im} \langle\langle P_{3,2} b^\dagger \rangle\rangle, \quad (\text{B.7})$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \langle\langle \sigma_{2,1} b^\dagger b \rangle\rangle &= -\kappa \langle\langle \sigma_{2,1} b^\dagger b \rangle\rangle + \frac{4}{\hbar} \text{Im} (\Omega_{\text{env}} \langle\langle P_{2,1} b^\dagger b \rangle\rangle_{\text{env}}) \\ &\quad - \frac{2g}{\hbar} (\langle\langle b^\dagger b \rangle\rangle + \langle \sigma_{2,1} \rangle) \text{Im} \langle\langle P_{3,2} b^\dagger \rangle\rangle, \end{aligned} \quad (\text{B.8})$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \langle\langle \sigma_{3,2} b^\dagger b \rangle\rangle &= -\kappa \langle\langle \sigma_{3,2} b^\dagger b \rangle\rangle - \frac{2}{\hbar} \text{Im} (\Omega_{\text{env}} \langle\langle P_{2,1} b^\dagger b \rangle\rangle_{\text{env}}) \\ &\quad + \frac{2g}{\hbar} (2\langle\langle b^\dagger b \rangle\rangle - \langle \sigma_{3,2} \rangle + 1) \text{Im} \langle\langle P_{3,2} b^\dagger \rangle\rangle, \end{aligned} \quad (\text{B.9})$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \langle\langle P_{2,1} b^\dagger b \rangle\rangle_{\text{env}} &= -i \left(\frac{-\Delta_C \pm \Delta_L}{\hbar} - i \frac{2\kappa + \Gamma_{2,1}}{2} \right) \langle\langle P_{2,1} b^\dagger b \rangle\rangle_{\text{env}} - \frac{i\Omega_{\text{env}}}{\hbar} \langle\langle \sigma_{2,1} b^\dagger b \rangle\rangle \\ &\quad + \frac{ig}{\hbar} \langle\langle P_{3,1} b^\dagger \rangle\rangle_{\text{env}} \langle\langle b^\dagger b \rangle\rangle - \frac{2g}{\hbar} \langle P_{2,1} \rangle_{\text{env}} \text{Im} \langle\langle P_{3,2} b^\dagger \rangle\rangle. \end{aligned} \quad (\text{B.10})$$

Hierbei beschreibt Gl. (B.3) die Dynamik der Raman-Korrelation.

B.1.2. SDT-Gleichungen für V-artige Systeme

Die Bewegungsgleichungen der Anregungsdynamik eines V-artigen Systems ohne Berücksichtigung von strahlendem Zerfall der Besetzungen lauten

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle\langle b^\dagger b \rangle\rangle = -\kappa \langle\langle b^\dagger b \rangle\rangle + \frac{2g}{\hbar} \text{Im} \langle\langle P_{2,1} b^\dagger \rangle\rangle, \quad (\text{B.11})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle\langle P_{2,1} b^\dagger \rangle\rangle = -i \left(\frac{\Delta_C}{\hbar} - i \frac{\kappa + \Gamma_{2,1}}{2} \right) \langle\langle P_{2,1} b^\dagger \rangle\rangle + \frac{i\Omega_{\text{env}}}{\hbar} \langle\langle P_{3,1} b^\dagger \rangle\rangle_{\text{env}} + \frac{ig}{\hbar} \langle P_{1,1} \rangle$$

$$-\frac{ig}{\hbar}\langle\sigma_{2,1}\rangle\langle\langle b^\dagger b\rangle\rangle - \frac{ig}{\hbar}\langle\langle\sigma_{2,1}b^\dagger b\rangle\rangle, \quad (\text{B.12})$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}\langle\langle P_{3,1}b^\dagger\rangle\rangle_{\text{env}} &= -i\left(\pm\frac{\Delta_L}{\hbar} - i\frac{\kappa + \Gamma_{3,1}}{2}\right)\langle\langle P_{3,1}b^\dagger\rangle\rangle_{\text{env}} + \frac{i\Omega_{\text{env}}}{\hbar}\langle\langle P_{2,1}b^\dagger\rangle\rangle \\ &\quad - \frac{ig}{\hbar}\langle P_{3,2}\rangle_{\text{env}}\langle\langle b^\dagger b\rangle\rangle - \frac{ig}{\hbar}\langle\langle P_{3,2}b^\dagger b\rangle\rangle_{\text{env}}, \end{aligned} \quad (\text{B.13})$$

$$\frac{\partial}{\partial t}\langle P_{3,2}\rangle_{\text{env}} = -i\left(\frac{-\Delta_C \pm \Delta_L}{\hbar} - i\frac{\Gamma_{3,2}}{2}\right)\langle P_{3,2}\rangle_{\text{env}} - \frac{i\Omega_{\text{env}}}{\hbar}\langle\sigma_{3,2}\rangle - \frac{ig}{\hbar}\langle\langle P_{3,1}b^\dagger\rangle\rangle_{\text{env}}, \quad (\text{B.14})$$

$$\frac{\partial}{\partial t}\langle P_{1,1}\rangle = -\frac{2g}{\hbar}\text{Im}\langle\langle P_{2,1}b^\dagger\rangle\rangle, \quad (\text{B.15})$$

$$\langle P_{2,2}\rangle = 1 - \langle P_{1,1}\rangle - \langle P_{3,3}\rangle, \quad (\text{B.16})$$

$$\frac{\partial}{\partial t}\langle P_{3,3}\rangle = \frac{2}{\hbar}\text{Im}(\Omega_{\text{env}}\langle P_{3,2}\rangle_{\text{env}}), \quad (\text{B.17})$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}\langle\langle\sigma_{2,1}b^\dagger b\rangle\rangle &= -\kappa\langle\langle\sigma_{2,1}b^\dagger b\rangle\rangle - \frac{2}{\hbar}\text{Im}(\Omega_{\text{env}}\langle\langle P_{3,2}b^\dagger b\rangle\rangle_{\text{env}}) \\ &\quad + \frac{2g}{\hbar}(2\langle\langle b^\dagger b\rangle\rangle - \langle\sigma_{2,1}\rangle + 1)\text{Im}\langle\langle P_{2,1}b^\dagger\rangle\rangle, \end{aligned} \quad (\text{B.18})$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}\langle\langle\sigma_{3,2}b^\dagger b\rangle\rangle &= -\kappa\langle\langle\sigma_{3,2}b^\dagger b\rangle\rangle + \frac{4}{\hbar}\text{Im}(\Omega_{\text{env}}\langle\langle P_{3,2}b^\dagger b\rangle\rangle_{\text{env}}) \\ &\quad - \frac{2g}{\hbar}(\langle\langle b^\dagger b\rangle\rangle + \langle\sigma_{3,2}\rangle)\text{Im}\langle\langle P_{2,1}b^\dagger\rangle\rangle, \end{aligned} \quad (\text{B.19})$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}\langle\langle P_{3,2}b^\dagger b\rangle\rangle_{\text{env}} &= -i\left(\frac{-\Delta_C \pm \Delta_L}{\hbar} - i\frac{2\kappa + \Gamma_{3,2}}{2}\right)\langle\langle P_{3,2}b^\dagger b\rangle\rangle_{\text{env}} - \frac{i\Omega_{\text{env}}}{\hbar}\langle\langle\sigma_{3,2}b^\dagger b\rangle\rangle \\ &\quad - \frac{ig}{\hbar}\langle\langle P_{3,1}b^\dagger\rangle\rangle_{\text{env}}(1 + \langle\langle b^\dagger b\rangle\rangle) - \frac{2g}{\hbar}\langle P_{3,2}\rangle_{\text{env}}\text{Im}\langle\langle P_{2,1}b^\dagger\rangle\rangle. \end{aligned} \quad (\text{B.20})$$

Hierbei beschreibt Gl. (B.13) die Dynamik der Raman-Korrelation.

Im nächstfolgenden Abschnitt möchten wir nun die SDT-Ergebnisse mit der vollen Lösung der Von-Neumann-Gleichung, Gl. (2.16), vergleichen, insbesondere speziell im Hinblick auf den Raman-Prozess.

B.1.3. Von-Neumann-Lösung vs. Cluster-Entwicklungslösung

Da der Cluster-Entwicklungsansatz formal stets exakt ist – erst durch das Vernachlässigen von Korrelationsbeiträgen findet ja eine Näherung statt –, können wir unsere formal exakte Definition der Raman-Emissionswahrscheinlichkeit \mathcal{P}_R , Gl. (4.27), natürlich auch auswerten, indem wir die volle Lösung der Dynamik der Raman-Korrelation mithilfe der Von-Neumann-Gleichung ausrechnen. Beispielhaft vergleichen wir die so gewonnene volle Raman-Karte für ein Λ -artiges System in Abb. B.1a und für ein V-artiges System in Abb. B.1d für unser 5π -Puls-Szenario aus Abb. 4.4. mit der SDT-Raman-Karte [Abbn. B.1b und B.1e]. Um noch ein besseres Gefühl für den jeweiligen Einfluss der verschiedenen Korrelationsbeiträge zu bekommen, zeigen wir ebenso die Lösung in Singlet-Doublet-Näherung (SD) [Abbn. B.1c und B.1f]. Dafür vernachlässigen wir in unseren SDT-Gleichungen die Triplet-Ordnung, zusätzlich schalten wir auch die Rückkopplung an die Photonenpopulation $\langle\langle b^\dagger b\rangle\rangle$ aus. Explizit lauten die Raman-Gleichungen in SD-

B. Ergänzende Betrachtungen zum Raman-Prozess in Dreiniveausystemen

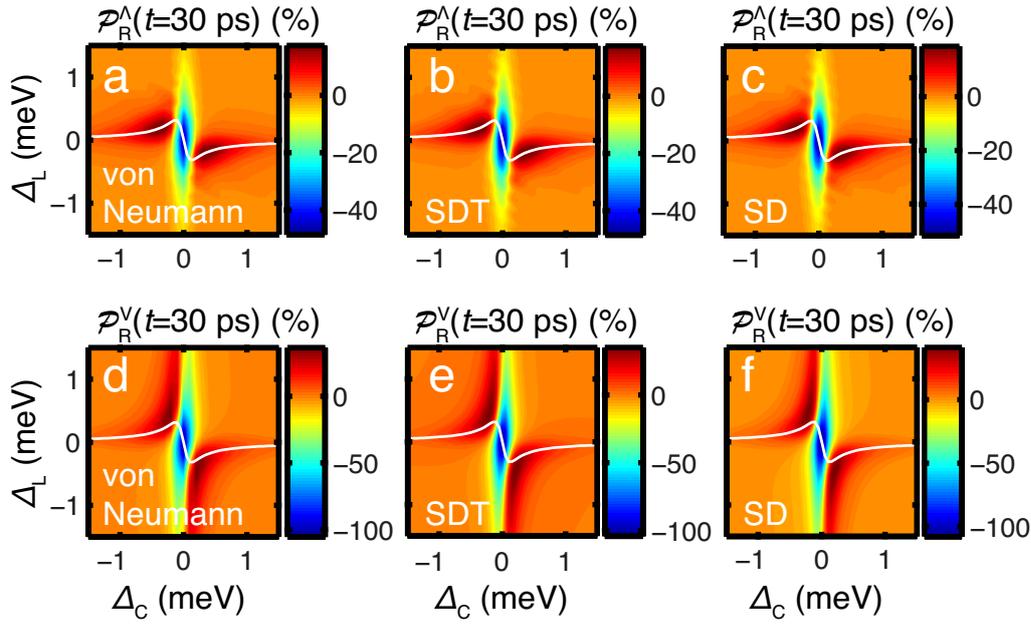


Abbildung B.1.: Von-Neumann-Lösung vs. Cluster-Entwicklungslösung. Wir zeigen die Raman-Karten für das Λ -artige (a-c) und für das V-artige System (d-f). In Übereinstimmung mit dem Szenario aus Abb. 4.4 vergleichen wir für den 5π -Rechteckpuls die volle Lösung der Von-Neumann-Gleichung, Gl. (2.16), (erste Spalte) mit der SDT-Lösung (zweite Spalte) und der Singlet-Doublet-Lösung (SD, hier unter zusätzlicher Vernachlässigung der Resonatorrückkopplung). Wir zeigen auch wieder unsere CW-Kennlinie, Gl. (4.16), als Orientierungslinie (weiße Linie).

Näherung ohne Rückkopplung

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle\langle P_{3,1} b^\dagger \rangle\rangle_{\text{env}} = -i \left(\pm \frac{\Delta_L}{\hbar} - i \frac{\kappa + \Gamma_{3,1}}{2} \right) \langle\langle P_{3,1} b^\dagger \rangle\rangle_{\text{env}} - \frac{i\Omega_{\text{env}}}{\hbar} \langle\langle P_{3,2} b^\dagger \rangle\rangle + \frac{ig}{\hbar} \langle P_{2,1} \rangle_{\text{env}} \quad (\text{B.21})$$

für Λ -artige Systeme und

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle\langle P_{3,1} b^\dagger \rangle\rangle_{\text{env}} = -i \left(\pm \frac{\Delta_L}{\hbar} - i \frac{\kappa + \Gamma_{3,1}}{2} \right) \langle\langle P_{3,1} b^\dagger \rangle\rangle_{\text{env}} + \frac{i\Omega_{\text{env}}}{\hbar} \langle\langle P_{2,1} b^\dagger \rangle\rangle \quad (\text{B.22})$$

für V-artige Systeme.

Auf den ersten Blick stellen wir fest, dass die Raman-Karten in Abb. B.1 nahezu unverändert bleiben unter den verschiedenen Näherungen. Erst bei genauerem Hinsehen machen wir unbedeutende Unterschiede in den absoluten Zahlen aus. Wir können also davon ausgehen, dass der Raman-Prozess physikalisch maßgeblich auf Basis der in Gln. (B.21) und (B.22) enthaltenen Mechanismen abläuft. Im V-artigen Fall ist das ausschließlich das Wechselspiel zwischen der photonenassistierten Polarisation und dem Kontrolllaser. Ausschließlich im Λ -artigen Fall kommt noch die laserinduzierte elektronische Polarisation als gesonderter Quellterm hinzu. Wir schließen also einmal mehr daraus, dass die beobachteten Unterschiede zwischen den Raman-Karten beider Klassen maßgeblich aus den unterschiedlichen Anfangsbedingungen für die photonenassistierte Polarisation sowie aus der qualitativ völlig unterschiedlichen Abhängigkeit von der laserinduzierten elektronischen Polarisation herrühren.

Auch wenn wir in der SD-Näherung kaum eine Veränderung der Raman-Karten ausmachen, so möchten wir an dieser Stelle betonen, dass, wenn wir auch die Dynamik der

elektronischen Besetzungen der Systeme angemessen beschreiben wollen, wir entweder die SDT-Gleichungen oder die Von-Neumann-Gleichung nutzen müssen.

Im folgenden Abschnitt geben wir einen kurzen Überblick darüber, wie wir die SDT-Gleichungen modifizieren müssen, sobald strahlender Zerfall relevant wird.

B.1.4. Einfluss von strahlendem Zerfall auf den Raman-Prozess

Konfig.	Lindblad-Operator L	Beitrag zu $\Gamma_{3,1}$	Beitrag zu $\Gamma_{2,1}$	Beitrag zu $\Gamma_{3,2}$
$\Xi_{1(2)}$	$\sqrt{\hbar r_{2,1}}P_{2,1}, \sqrt{\hbar r_{3,2}}P_{3,2}$	$r_{2,1}$	$r_{3,2} + r_{2,1}$	$r_{3,2}$
Λ	$\sqrt{\hbar r_{1,2}}P_{1,2}, \sqrt{\hbar r_{3,2}}P_{3,2}$	0	$r_{1,2} + r_{3,2}$	$r_{1,2} + r_{3,2}$
V	$\sqrt{\hbar r_{2,1}}P_{2,1}, \sqrt{\hbar r_{2,3}}P_{2,3}$	$r_{2,1} + r_{2,3}$	$r_{2,1}$	$r_{2,3}$

Tabelle B.1.: Einfluss von strahlendem Zerfall. Wir geben eine Übersicht über die Lindblad-Operatoren für die vier Konfigurationen – Ξ_1 , Ξ_2 , Λ und V – der Dreiniveausysteme und die daraus resultierenden Korrekturen der elektronischen Zerfallskonstanten $\Gamma_{i,j}$ durch strahlenden Zerfall. Die Beiträge müssen zu dem in unserer Arbeit bereits berücksichtigten Beitrag des Polarisationszerfalls addiert werden, dies betrifft insbesondere unsere Definition der Raman-Population, Gl (4.22).

In Kapitel 4 unserer Arbeit haben wir – wie bereits diskutiert – aus zwei Gründen den Einfluss von strahlendem Zerfall der elektronischen Bestzungen vernachlässigt, zum einen, weil wir vorwiegend an gepulsten Szenarien interessiert sind, deren Anregungszyklus auf einer viel schnelleren Zeitskala stattfindet als der Besetzungszzerfall, zum anderen, weil strahlender Zerfall das Einrichten identischer Verlust- und Dephasierungsbedingungen unmöglich macht. Denn dieser Zerfallskanal ist formal für alle drei Grundkonfigurationen, Ξ , Λ und V, verschieden, wie auch Tabelle B.1 zeigt. Darüber hinaus möchten wir anmerken, dass nur die Bewegungsgleichungen der elektronischen Besetzungen sowie die besetzungsartigen Triplet-Gleichungen auch ihre *formale* Gestalt ändern, während alle übrigen Gleichungen lediglich die in Tabelle B.1 aufgelisteten Modifikationen der elektronischen Dephasierungskonstanten $\Gamma_{i,j}$ erfahren. Somit behalten *alle* in Kapitel 4 präsentierten Gleichungen und Definitionen ihre Gültigkeit auch unter dem Einfluss von strahlendem Zerfall, welcher ausschließlich in $\Gamma_{i,j}$ eingeht. Da der Raman-Prozess nicht explizit an die Besetzungen koppelt, erwarten wir lediglich eine geringfügige Verschlechterung der Quantenausbeute. Natürlich ist im V-artigen Fall auf der Zeitskala der Anregung eine stabile Besetzung des Anfangszustandes von Nöten, um den Raman-Prozess effizient anzusteuern. Wir berücksichtigen strahlenden Zerfall explizit in Kapitel 5, wenn wir das volle Quantenpunktmodell mithilfe der Von-Neumann-Gleichung betrachten. Hier könnten auch weitere Einflüsse von Gitterschwingen (*Phononen*) modelliert werden [122,124], was allerdings den Rahmen unserer Studie überschreiten würde.

Im folgenden Abschnitt analysieren wir die SDT-Gleichungen genauer für verschiedene Grenzfälle.

B.2. Analytische Diskussion der SDT-Gleichungen

Um fundamentale Einsichten in die Physik der Raman-Prozesse zu gewinnen, reduzieren wir die Komplexität der in den Abschnitten B.1.1 und B.1.2 gezeigten SDT-Gleichungen,

indem wir uns in einem ersten Schritt auf schwache stationäre Anregungen beschränken, um daran anschließend analytisch die explizite Abhängigkeit der Raman-Dynamik von der *Pulsform* zu erschließen. Dieses Vorgehen hatte sich ja bereits in Abschnitt 3.4 im Rahmen der Erstuntersuchung der Raman-Emission aus dem Biexziton bewährt.

B.2.1. Quasistationäre Lösung

In diesem Abschnitt beschränken wir uns auf die SD-Ebene und den Grenzfall schwacher stationärer Anregungen ($\Omega_{\text{env}}(t) = \Omega_0 = \text{const}$) sowie stark nichtresonanter Cavities. Hier können wir dementsprechend die Rückkopplung an die Cavity-Emission vernachlässigen sowie quasistationäres Verhalten der elektronischen Besetzungen annehmen, wie auch Abbn. 4.2d und 4.2h nahelegen. Wir setzen daher $\langle P_{1,1} \rangle = 1$, $\langle P_{2,2} \rangle = \langle P_{3,3} \rangle = 0$. Seien in diesem Abschnitt $N \equiv \langle \langle b^\dagger b \rangle \rangle$ (Photonenpopulation), $R \equiv \langle \langle P_{3,1} b^\dagger \rangle \rangle_{\text{env}}$ (Raman-Korrelation), $\Pi \equiv \langle \langle P_{3,2} b^\dagger \rangle \rangle$ bzw. $\langle \langle P_{2,1} b^\dagger \rangle \rangle$ (photonenassistierte Polarisation im Λ bzw. V-System) und $P \equiv \langle P_{2,1} \rangle_{\text{env}}$ bzw. $\langle P_{3,2} \rangle_{\text{env}}$ (Λ - bzw. V-artige laserinduzierte elektronische Polarisation). Wir erhalten für Λ -artige Systeme

$$\frac{\partial}{\partial t} N = -\kappa N + \frac{2g}{\hbar} \text{Im} \Pi, \quad (\text{B.23})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \Pi = -i \left(\frac{\Delta_C}{\hbar} - i \frac{\kappa + \Gamma_{3,2}}{2} \right) \Pi - \frac{i\Omega_{\text{env}}}{\hbar} R, \quad (\text{B.24})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} R = -i \left(\pm \frac{\Delta_L}{\hbar} - i \frac{\kappa + \Gamma_{3,1}}{2} \right) R - \frac{i\Omega_{\text{env}}}{\hbar} \Pi + \frac{ig}{\hbar} P, \quad (\text{B.25})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} P = -i \left(\frac{-\Delta_C \pm \Delta_L}{\hbar} - i \frac{\Gamma_{2,1}}{2} \right) P + \frac{i\Omega_{\text{env}}}{\hbar} + \frac{ig}{\hbar} R, \quad (\text{B.26})$$

und für V-artige Systeme

$$\frac{\partial}{\partial t} N = -\kappa N + \frac{2g}{\hbar} \text{Im} \Pi, \quad (\text{B.27})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \Pi = -i \left(\frac{\Delta_C}{\hbar} - i \frac{\kappa + \Gamma_{2,1}}{2} \right) \Pi + \frac{i\Omega_{\text{env}}}{\hbar} R + \frac{ig}{\hbar}, \quad (\text{B.28})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} R = -i \left(\pm \frac{\Delta_L}{\hbar} - i \frac{\kappa + \Gamma_{3,1}}{2} \right) R + \frac{i\Omega_{\text{env}}}{\hbar} \Pi. \quad (\text{B.29})$$

Hier wird jetzt besonders deutlich, dass Π im V-System eine inkohärente Quelle, ig/\hbar , aufweist, die der erste verfügbare Quellterm ist. Im Λ -artigen Fall kann hingegen Π unter unseren Annahmen nur durch den Raman-Prozess R initialisiert werden, der wiederum ausschließlich durch die Polarisation P angesteuert werden kann.

Im Rahmen unserer hier getätigten Annahmen können wir beide Gleichungssätze ganz analog zu Abschnitt A.2.1 leicht analytisch lösen. Für die Raman-Korrelation in Λ -artigen Systemen erhalten wir

$$|R|^2 = \frac{g^2 \Omega_0^2}{(\Delta_C \mp \Delta_L)^2 + (\hbar \frac{\Gamma_{2,1}}{2})^2} \left[\left(\mp \Delta_L + \frac{\Delta_C \Omega_0^2}{\Delta_C^2 + (\hbar \frac{\kappa + \Gamma_{3,2}}{2})^2} - \frac{(\Delta_C \mp \Delta_L) g^2}{(\Delta_C \mp \Delta_L)^2 + (\hbar \frac{\Gamma_{2,1}}{2})^2} \right)^2 + \left(\frac{\hbar \frac{\kappa + \Gamma_{3,2}}{2} \Omega_0^2}{\Delta_C^2 + (\hbar \frac{\kappa + \Gamma_{3,2}}{2})^2} + \frac{\hbar \frac{\Gamma_{2,1}}{2} g^2}{(\Delta_C \mp \Delta_L)^2 + (\hbar \frac{\Gamma_{2,1}}{2})^2} + \hbar \frac{\kappa + \Gamma_{3,1}}{2} \right)^2 \right]^{-1}, \quad (\text{B.30})$$

und für die Raman-Korrelation in V-artigen Systemen

$$|R|^2 = \frac{g^2 \Omega_0^2}{\Delta_C^2 + \left(\hbar \frac{\kappa + \Gamma_{2,1}}{2}\right)^2} \left[\left(\mp \Delta_L + \frac{\Delta_C \Omega_0^2}{\Delta_C^2 + \left(\hbar \frac{\kappa + \Gamma_{2,1}}{2}\right)^2} \right)^2 + \left(\frac{\hbar \frac{\kappa + \Gamma_{2,1}}{2} \Omega_0^2}{\Delta_C^2 + \left(\hbar \frac{\kappa + \Gamma_{2,1}}{2}\right)^2} + \hbar \frac{\kappa + \Gamma_{3,1}}{2} \right)^2 \right]^{-1}. \quad (\text{B.31})$$

Im Falle, dass die g^2 -Beiträge in Gl. (B.30) vernachlässigbar klein sind, können wir für beide Systemklassen einen geschlossenen Ausdruck finden,

$$\Delta_L^{\text{cw}} = \pm \frac{\Delta_C \Omega_0^2}{\Delta_C^2 + \left(\hbar \frac{\kappa + \Gamma_{i,j}}{2}\right)^2}, \quad (\text{B.32})$$

mit $(i, j) = (2, 1)$ für V- bzw. $(i, j) = (3, 2)$ für Λ -artige Systeme, sowie $(-)$ für Ξ -Konfigurationen und $(+)$ für Λ - bzw. V-Konfigurationen. In beiden Klassen bemerken wir, dass die Raman-Korrelation eine anregungsinduzierte Dämpfung durch den Kontrolllaser erfahren kann [54], die mit Ω_0^2 skaliert. Die systemeigene Dämpfung ist jeweils durch die Photonenlebensdauer sowie die elektronische Dephasierungs- bzw. Zerfallskonstante gegeben, $(\kappa + \Gamma_{3,1})/2$. Für eine gewählte Amplitude Ω_0 erwarten wir verstärkte Dämpfung mit verschwindender Cavity-Verstimmung Δ_C [21, 54].

Als Nächstes erweitern wir unser hier geschildertes Vorgehen, indem wir allgemeine Einhüllende des Lichtfeldes zulassen, um den expliziten Einfluss der Pulsform auf den Raman-Prozess zu untersuchen.

B.2.2. Zeitabhängigkeit der Stark-Verschiebung

In diesem Abschnitt wollen wir nun eine allgemeine Einhüllende $\Omega_{\text{env}}(t)$ annehmen und deren Einfluss auf den Raman-Prozess analytisch erschließen. Dazu übernehmen wir aus dem vorigen Abschnitt die Annahme schwacher nichtresonanter Anregung und nichtresonanter Cavities, weshalb auch hier die beiden Gleichungssätze, Gln. (B.23)-(B.26) und Gln. (B.27)-(B.29), ihre Gültigkeit behalten. Wir wollen in diesem Abschnitt wieder explizit unsere Systemklassen $T = \Lambda, V$ an den einzelnen Größen notieren, da wir hier auf eine kompakte Schreibweise angewiesen sein werden. Alle im Folgenden umrissenen Lösungsschritte sind dann völlig äquivalent zur Herleitung von Gl. (3.35). Somit ist es geschickt, die Λ -artige Polarisationsgleichung weiter zu vereinfachen. Denn die Polarisation folgt bei nichtresonanter Anregung schließlich weitgehend dem Puls, sodass wir Gl. (B.26) umschreiben und vereinfachen können zu

$$\frac{\partial}{\partial t} P^\Lambda = -i\omega_p^\Lambda P^\Lambda + \frac{i}{\hbar} \Omega_{\text{env}}, \quad (\text{B.33})$$

wobei wir hier die Eigenfrequenz aus Gl. (B.26) mit ω_p^Λ abgekürzt haben. Diese Gleichung können wir sofort auflösen und wir erhalten

$$\bar{P}^\Lambda(t) = \frac{i}{\hbar} \int_0^t dt' \Omega_{\text{env}}(t') e^{i\omega_p^\Lambda t'}, \quad (\text{B.34})$$

wobei wir ein rotierendes Bezugssystem definiert haben über $P^\Lambda \equiv \bar{P}^\Lambda e^{-i\omega_p^\Lambda t}$. Analog dazu wollen wir für alle Größen Q^T deren Eigenfrequenzen identifizieren und deren rotierendes System definieren, indem wir schreiben

$$Q^T \equiv \bar{Q}^T e^{-i\omega_Q^T t}. \quad (\text{B.35})$$

B. Ergänzende Betrachtungen zum Raman-Prozess in Dreiniveausystemen

Auf diese Weise können wir beide Sätze von Bewegungsgleichungen im rotierenden Bezugssystem als kompakte Bewegungsgleichung für den Zustandsvektor

$$\psi^T = \begin{pmatrix} \bar{\Pi}^T \\ \bar{R}^T \end{pmatrix} \quad (\text{B.36})$$

notieren, und wir formulieren

$$\frac{\partial}{\partial t} \psi^T = \frac{i}{\hbar} \mathbb{H}^T \psi^T + \frac{i}{\hbar} \psi_0^T. \quad (\text{B.37})$$

Hierbei haben wir die zeitabhängigen Kopplungsmatrizen

$$\mathbb{H}^\Lambda = \begin{pmatrix} 0 & -\Omega_{\text{env}} e^{+i(\omega_\Pi^\Lambda - \omega_R^\Lambda)t} \\ -\Omega_{\text{env}} e^{-i(\omega_\Pi^\Lambda - \omega_R^\Lambda)t} & 0 \end{pmatrix} \equiv \begin{pmatrix} 0 & \Omega_+^\Lambda \\ \Omega_-^\Lambda & 0 \end{pmatrix} \quad (\text{B.38})$$

$$\mathbb{H}^V = \begin{pmatrix} 0 & \Omega_{\text{env}} e^{+i(\omega_\Pi^V - \omega_R^V)t} \\ \Omega_{\text{env}} e^{-i(\omega_\Pi^V - \omega_R^V)t} & 0 \end{pmatrix} \equiv \begin{pmatrix} 0 & \Omega_+^V \\ \Omega_-^V & 0 \end{pmatrix} \quad (\text{B.39})$$

definiert. Weiterhin haben wir die Quellvektoren

$$\psi_0^\Lambda = g \begin{pmatrix} 0 \\ e^{-i(\omega_\Pi^\Lambda - \omega_R^\Lambda)t} \bar{P}^\Lambda \end{pmatrix}, \quad \psi_0^V = g \begin{pmatrix} e^{i\omega_\Pi^V t} \\ 0 \end{pmatrix} \quad (\text{B.40})$$

eingeführt. In dieser Darstellung wird recht anschaulich klar, dass der V-artige Quellvektor des Raman-Prozesses *inkohärenter* Natur ist: Der besetzte Anfangszustand zerfällt über die Cavity mit der Eigenfrequenz der photonenassistierten Polarisation ω_Π^V . Im Λ -artigen Fall übernimmt die laserinduzierte elektronische Polarisation formal die Rolle des Anfangszustandes, wir können sie also als das auffassen, was gerne salopp als *virtuelles Niveau* bezeichnet wird.

Wir wollen nun Gl. (B.37) analytisch lösen. Allerdings gelingt hier wie in Abschnitt 3.4 zunächst *kein* formaler Lösungsansatz durch einen Exponentialansatz der Form $\psi(t) = e^{\frac{i}{\hbar} \int_0^t ds \mathbb{H}(s)} \bar{\psi}(t)$, da $\mathbb{H}^T(t)$ zu verschiedenen Zeitpunkten nicht mit sich selbst vertauscht, $[\mathbb{H}^T(t), \mathbb{H}^T(t')] \neq 0$. Daher manipulieren wir Gl. (B.37) wie gewohnt erst in geeigneter Weise, indem wir \mathbb{H}^T in zwei Matrizen zerlegen, $\mathbb{H}^T = \mathbb{H}_+^T + \mathbb{H}_-^T$ mit

$$\mathbb{H}_+^T = \begin{pmatrix} 0 & \Omega_+^T \\ 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad \mathbb{H}_-^T = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ \Omega_-^T & 0 \end{pmatrix}. \quad (\text{B.41})$$

Hierbei koppelt ja gerade \mathbb{H}_-^T die zweite Komponente des Zustandsvektors, ψ_2^T (Raman-Prozess), zurück an die erste Komponente, ψ_1^T (photonenassistierte Polarisation). Um diese Rückkopplung formal zu eliminieren, können wir an dieser Stelle nun den gewünschten Ansatz machen,

$$\psi^T(t) = e^{\frac{i}{\hbar} \int_0^t ds \mathbb{H}_-^T(s)} \bar{\psi}^T(t). \quad (\text{B.42})$$

Denn es gilt $\mathbb{H}_-^T(t) \mathbb{H}_-^T(t') = 0$ für alle Zeiten t, t' und somit trivialerweise $[\mathbb{H}_-^T(t), \mathbb{H}_-^T(t')] = 0$, und damit einhergehend vereinfacht sich das Exponential zu

$$e^{\pm \frac{i}{\hbar} \int_0^t ds \mathbb{H}_-^T(s)} = 1 \pm \frac{i}{\hbar} \int_0^t ds \mathbb{H}_-^T(s). \quad (\text{B.43})$$

Gleichung (B.37) lautet unter Verwendung unseres Ansatzes, Gl. (B.42), zunächst

$$\frac{\partial}{\partial t} \bar{\psi}^T(t) = \frac{i}{\hbar} \left(e^{-\frac{i}{\hbar} \int_0^t ds \mathbb{H}_-^T(s)} \mathbb{H}_+^T(t) e^{\frac{i}{\hbar} \int_0^t ds \mathbb{H}_-^T(s)} \right) \bar{\psi}^T + \frac{i}{\hbar} e^{-\frac{i}{\hbar} \int_0^t ds \mathbb{H}_-^T(s)} \psi_0^T. \quad (\text{B.44})$$

Hierbei ist explizit

$$\begin{aligned} e^{-\frac{i}{\hbar} \int_0^t ds \mathbb{H}_-^T(s)} \mathbb{H}_+^T(t) e^{\frac{i}{\hbar} \int_0^t ds \mathbb{H}_-^T(s)} &= \mathbb{H}_+^T(t) + \frac{i}{\hbar} \int_0^t ds [\mathbb{H}_+^T(t), \mathbb{H}_-^T(s)] \\ &+ \frac{1}{\hbar^2} \int_0^t ds \int_0^t du \mathbb{H}_-^T(s) \mathbb{H}_+^T(t) \mathbb{H}_-^T(u). \end{aligned} \quad (\text{B.45})$$

Dies ist wie gehabt formal eine Entwicklung der Kopplung in Ordnungen des Lichtfeldes, denn jede Matrix ist ja erster Ordnung im Lichtfeld. Werten wir die beiden Terme in der ersten Zeile explizit aus, stellen wir fest, dass diese *nicht* an die erste Komponente des Zustandsvektors zurückkoppeln. Lediglich der Beitrag in der zweiten Zeile führt wieder auf eine Rückkopplung – diese ist aber von dritter Ordnung im Lichtfeld. In Übereinstimmung mit unserem CW-Resultat, Gln. (B.30) und (B.31), werden wir die dritte Ordnung allerdings nicht berücksichtigen. Unter diesen Annahmen ist Gl. (B.44) entkoppelt und lässt sich explizit lösen. Insbesondere nimmt die *Raman-Gleichung* die Gestalt

$$\frac{\partial}{\partial t} \bar{\psi}_2^T(t) = \left(\frac{1}{\hbar^2} \int_0^t ds \Omega_+^T(t) \Omega_-^T(s) \right) \bar{\psi}_2^T(t) + \frac{1}{\hbar^2} \int_0^t ds \Omega_-^T(s) \psi_{0,1}^T(t) + \frac{i}{\hbar} \psi_{0,2}^T(t) \quad (\text{B.46})$$

an. Hier finden wir zwei Quellterme, definiert durch $\psi_{0,1(2)}^T$, von denen in einer gewählten Systemklasse jeweils nur ein einziger von null verschieden ist: Nach Gl. (B.40) gilt im Falle $T = \Lambda$ für die erste Komponente der Anfangsbedingung $\psi_{0,1}^\Lambda = 0$, und $\psi_{0,2}^\Lambda$ ist durch die laserinduzierte elektronische Polarsiation zwischen Zustand 1 und 2 gegeben. Im Falle $T = V$ gilt $\psi_{0,2}^V = 0$, und $\psi_{0,1}^V$ ist durch die inkohärente Hintergrundemission aus dem Anfangszustand 1 gegeben, die durch die Lichtfeldkomponente Ω_-^V in Raman-Emission umgewandelt werden kann. Aus der Raman-Gleichung können wir ferner direkt die Proportionalität

$$\bar{\psi}_2^T(t) \propto e^{\frac{1}{\hbar^2} \int_0^t ds \int_0^s du \Omega_+^T(s) \Omega_-^T(u)} \quad (\text{B.47})$$

ablesen: Hier steht im Exponenten nun die gesuchte lichtinduzierte Eigenfrequenz (*Stark-Verschiebung*). In den Raman-Gleichungen, Gln. (B.25) und (B.29), muss dann also Δ_L so eingestellt werden, dass gilt

$$\pm \Delta_L(t) = \text{Re} \frac{i}{\hbar t} \int_0^t ds \int_0^s du \Omega_+^T(s) \Omega_-^T(u). \quad (\text{B.48})$$

Analog zur Behandlung von Gl. (3.35) vernachlässigen wir beim Ausformulieren der Exponenten im Integranden die Rückkopplung an Δ_L und nehmen wieder die formale Ersetzung der Dämpfungskonstanten in Konsistenz mit dem korrespondierenden CW-Ausdruck, Gl. (B.32), vor. Dies führt schlussendlich auf den expliziten Ausdruck

$$\Delta_L(t) = \mp \text{Re} \frac{i}{\hbar t} \int_0^t dt' \int_0^{t'} dt'' \Omega_{\text{env}}(t') \Omega_{\text{env}}(t'') e^{i \left(\frac{\Delta_C}{\hbar} - i \frac{\kappa + \Gamma_{3,2[2,1]}}{2} \right) (t' - t'')} \quad (\text{B.49})$$

für die zeitabhängige Optimalverstimmung des Kontrolllasers in $\Lambda[V]$ -artigen Systemen. Diese zeitabhängige Verstimmung definiert dementsprechend einen Puls mit zeitlich veränderlicher Anregungsfrequenz (*Chirp-Puls*).

Literaturverzeichnis

- [1] E. Knill, R. Laflamme, and G.J. Milburn. A scheme for efficient quantum computation with linear optics. *Nature (London)*, 409:46, 2001.
- [2] H.J. Kimble. The quantum internet. *Nature (London)*, 453:1023, 2008.
- [3] J.-W. Pan, Z.-B. Chen, C.-Y. Lu, H. Weinfurter, A. Zeilinger, and M. Żukowski. Multiphoton entanglement and interferometry. *Rev. Mod. Phys.*, 84:777, 2012.
- [4] S. Buckley, K. Rivoire, and J. Vučković. Engineered quantum dot single-photon sources. *Rep. Prog. Phys.*, 75:126503, 2012.
- [5] I. Söllner, S. Mahmoodian, S. Lindskov Hansen, L. Midolo, A. Javadi, G. Kirsanske, T. Pregolato, H. El-Ella, E. H. Lee, J. D. Song, S. Stobbe, and P. Lodahl. Deterministic photon-emitter coupling in chiral photonic circuits. *Nature Nanotechnol.*, 10:775, 2015.
- [6] A.P. Alivisatos. Semiconductor clusters, nanocrystals, and quantum dots. *Science*, 271:933, 1996.
- [7] U. Woggon. *Optical properties of semiconductor quantum dots*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1997.
- [8] D. Bimberg, M. Grundmann, and N.N. Ledentsov. *Quantum dot heterostructures*. John Wiley & Sons, Chichester, 1999.
- [9] P. Michler. *Single semiconductor quantum dots*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2009.
- [10] M.D. Eisaman, J. Fan, A. Migdall, and S.V. Polyakov. Invited review article: Single-photon sources and detectors. *Rev. Sci. Instrum.*, 82:071101, 2011.
- [11] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W.V. Schoenfeld, P.M. Petroff, L. Zhang, E. Hu, and A. Imamoglu. A quantum dot single-photon turnstile device. *Science*, 290:2282, 2000.

- [12] S. Strauf, N.G. Stoltz, M.T. Rakher, L.A. Coldren, P.M. Petroff, and D. Bouwmeester. High-frequency single-photon source with polarization control. *Nat. Photon.*, 1:704, 2007.
- [13] M. Mehta, D. Reuter, A.D. Wieck, S. Michaelis de Vasconcellos, A. Zrenner, and C. Meier. An intentionally positioned (In,Ga)As quantum dot in a micron sized light emitting diode. *Appl. Phys. Lett.*, 97:143101, 2010.
- [14] J.H. Prechtel, A.V. Kuhlmann, J. Houel, L. Greuter, A. Ludwig, D. Reuter, A.D. Wieck, and R.J. Warburton. Frequency-stabilized source of single photons from a solid-state qubit. *Phys. Rev. X*, 3:041006, 2013.
- [15] C. Matthiesen, M. Geller, C.H.H. Schulte, C. Le Gall, J. Hansom, Z. Li, M. Hugues, E. Clarke, and M. Atatüre. Phase-locked indistinguishable photons with synthesized waveforms from a solid-state source. *Nat. Commun.*, 4:1600, 2013.
- [16] Y.-M. He, Y. He, Y.-J. Wei, D. Wu, M. Atatüre, C. Schneider, S. Höfling, M. Kamp, C.-Y. Lu, and J.-W. Pan. On-demand semiconductor single-photon source with near-unity indistinguishability. *Nat. Nanotechnol.*, 8:213, 2013.
- [17] Y.-J. Wei, Y.-M. He, M.-C. Chen, Y.-N. Hu, Y. He, D. Wu, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, C.-Y. Lu, et al. Deterministic and robust generation of single photons from a single quantum dot with 99.5% indistinguishability using adiabatic rapid passage. *Nano Lett.*, 14:6515, 2014.
- [18] X. Ding, Y. He, Z.-C. Duan, N. Gregersen, M.-C. Chen, S. Unsleber, S. Maier, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, et al. On-demand single photons with high extraction efficiency and near-unity indistinguishability from a resonantly driven quantum dot in a micropillar. *Phys. Rev. Lett.*, 116:020401, 2016.
- [19] N. Somaschi, V. Giesz, L. De Santis, J.C. Loredó, M.P. Almeida, G. Hornecker, S.L. Portalupi, T. Grange, C. Anton, J. Demory, C. Gómez, I. Sagnes, N.D. Lanzillotti-Kimura, A. Lemaitre, A. Auffeves, A.G. White, L. Lanco, and P. Senellart. Near-optimal single-photon sources in the solid state. *Nat. Photon.*, 10:340, 2016.
- [20] M. Varnava, D.E. Browne, and T. Rudolph. How good must single photon sources and detectors be for efficient linear optical quantum computation? *Phys. Rev. Lett.*, 100:060502, 2008.
- [21] Y. He, Y.-M. He, Y.-J. Wei, X. Jiang, M.-C. Chen, F.-L. Xiong, Y. Zhao, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, et al. Indistinguishable tunable single photons emitted by spin-flip Raman transitions in InGaAs quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 111:237403, 2013.
- [22] E. Stock, F. Albert, C. Hopfmann, M. Lerner, C. Schneider, S. Höfling, A. Forchel, M. Kamp, and S. Reitzenstein. On-chip quantum optics with quantum dot microcavities. *Adv. Mater.*, 25:707, 2013.

- [23] G. Reithmaier, S. Lichtmanecker, T. Reichert, P. Hasch, K. Müller, M. Bichler, R. Gross, and J.J. Finley. On-chip time resolved detection of quantum dot emission using integrated superconducting single photon detectors. *Sci. Rep.*, 3:1901, 2013.
- [24] J. Wiersig, C. Gies, F. Jahnke, M. Aßmann, T. Berstermann, M. Bayer, C. Kistner, S. Reitzenstein, C. Schneider, S. Höfling, et al. Direct observation of correlations between individual photon emission events of a microcavity laser. *Nature*, 460:245, 2009.
- [25] S. Strauf and F. Jahnke. Single quantum dot nanolaser. *Laser Photonics Rev.*, 5:607, 2011.
- [26] J.M. Elzerman, K.M. Weiss, J. Miguel-Sanchez, and A. Imamoglu. Optical amplification using Raman transitions between spin-singlet and spin-triplet states of a pair of coupled In-GaAs quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 107:017401, 2011.
- [27] O. Benson, C. Santori, M. Pelton, and Y. Yamamoto. Regulated and entangled photons from a single quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, 84:2513, 2000.
- [28] T.M. Stace, G.J. Milburn, and C.H.W. Barnes. Entangled two-photon source using biexciton emission of an asymmetric quantum dot in a cavity. *Phys. Rev. B*, 67:085317, 2003.
- [29] R.M. Stevenson, R.J. Young, P. Atkinson, K. Cooper, D.A. Ritchie, and A.J. Shields. A semiconductor source of triggered entangled photon pairs. *Nature*, 439:179, 2006.
- [30] N. Akopian, N.H. Lindner, E. Poem, Y. Berlatzky, J. Avron, D. Gershoni, B.D. Gerardot, and P.M. Petroff. Entangled photon pairs from semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 96:130501, 2006.
- [31] R. Hafenbrak, S.M. Ulrich, P. Michler, L. Wang, A. Rastelli, and O.G. Schmidt. Triggered polarization-entangled photon pairs from a single quantum dot up to 30 K. *New J. Phys.*, 9:315, 2007.
- [32] A. Dousse, J. Suffczyński, A. Beveratos, O. Krebs, A. Lemaitre, I. Sagnes, J. Bloch, P. Voisin, and P. Senellart. Ultrabright source of entangled photon pairs. *Nature*, 466:217, 2010.
- [33] M. Müller, S. Bounouar, K.D. Jöns, M. Glässl, and P. Michler. On-demand generation of indistinguishable polarization-entangled photon pairs. *Nat. Photon.*, 8:224, 2014.
- [34] C. Santori, M. Pelton, G. Solomon, Y. Dale, and Y. Yamamoto. Triggered single photons from a quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, 86:1502, 2001.
- [35] C. Santori, D. Fattal, J. Vučković, G.S. Solomon, and Y. Yamamoto. Indistinguishable photons from a single-photon device. *Nature*, 419:594, 2002.
- [36] C. Matthiesen, A.N. Vamivakas, and M. Atatüre. Subnatural linewidth single photons from a quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, 108:093602, 2012.

- [37] P. Kolchin, C. Belthangady, S. Du, G.Y. Yin, and S.E. Harris. Electro-optic modulation of single photons. *Phys. Rev. Lett.*, 101:103601, 2008.
- [38] H.P. Specht, J. Bochmann, M. Mücke, B. Weber, E. Figueroa, D.L. Moehring, and G. Rempe. Phase shaping of single-photon wave packets. *Nat. Photon.*, 3:469, 2009.
- [39] J. Lavoie, J.M. Donohue, L.G. Wright, A. Fedrizzi, and K.J. Resch. Spectral compression of single photons. *Nat. Photon.*, 7:363, 2013.
- [40] M. Allgaier, V. Ansari, L. Sansoni, C. Eigner, V. Quiring, R. Ricken, G. Harder, B. Brecht, and C. Silberhorn. Highly efficient frequency conversion with bandwidth compression of quantum light. *Nat. Commun.*, 8:14288, 2017.
- [41] A. Lamas-Linares, J.C. Howell, and D. Bouwmeester. Stimulated emission of polarization-entangled photons. *Nature*, 412:887, 2001.
- [42] S. Yatsiv, M. Rokni, and S. Barak. Enhanced two-photon emission. *Phys. Rev. Lett.*, 20:1282, 1968.
- [43] P. Bräunlich and P. Lambropoulos. Detection of singly stimulated two-photon emission from metastable deuterium atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 25:135, 1970.
- [44] H.-I. Yoo and J.H. Eberly. Dynamical theory of an atom with two or three levels interacting with quantized cavity fields. *Phys. Rep.*, 118:239, 1985.
- [45] M. Hennrich, T. Legero, A. Kuhn, and G. Rempe. Vacuum-stimulated Raman scattering based on adiabatic passage in a high-finesse optical cavity. *Phys. Rev. Lett.*, 85:4872, 2000.
- [46] M. Keller, B. Lange, K. Hayasaka, W. Lange, and H. Walther. Continuous generation of single photons with controlled waveform in an ion-trap cavity system. *Nature (London)*, 431:1075, 2004.
- [47] J.I. Cirac, P. Zoller, H.J. Kimble, and H. Mabuchi. Quantum state transfer and entanglement distribution among distant nodes in a quantum network. *Phys. Rev. Lett.*, 78:3221, 1997.
- [48] K.-J. Boller, A. Imamoglu, and S.E. Harris. Observation of electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. Lett.*, 66:2593, 1991.
- [49] M. Fleischhauer and M.D. Lukin. Dark-state polaritons in electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. Lett.*, 84:5094, 2000.
- [50] M.D. Eisaman, A. André, F. Massou, M. Fleischhauer, A.S. Zibrov, and M.D. Lukin. Electromagnetically induced transparency with tunable single-photon pulses. *Nature*, 438:837, 2005.
- [51] M. Atatüre, J. Dreiser, A. Badolato, A. Högele, K. Karrai, and A. Imamoglu. Quantum-dot spin-state preparation with near-unity fidelity. *Science*, 312:551, 2006.

- [52] C. Santori, D. Fattal, K.-M.C. Fu, P.E. Barclay, and R.G. Beausoleil. On the indistinguishability of Raman photons. *New J. Phys.*, 11:123009, 2009.
- [53] T.M. Sweeney, S.G. Carter, A.S. Bracker, M. Kim, C.S. Kim, L. Yang, Patrick M. Vora, P.G. Brereton, E.R. Cleveland, and D. Gammon. Cavity-stimulated Raman emission from a single quantum dot spin. *Nat. Photon.*, 8:442, 2014.
- [54] P.M. Vora, A.S. Bracker, S.G. Carter, T.M. Sweeney, M. Kim, C.S. Kim, L. Yang, P.G. Brereton, S.E. Economou, and D. Gammon. Spin–cavity interactions between a quantum dot molecule and a photonic crystal cavity. *Nat. Commun.*, 6:7665, 2015.
- [55] B.C. Pursley, S.G. Carter, M.K. Yakes, A.S. Bracker, and D. Gammon. Picosecond pulse shaping of single photons using quantum dots. *Nat. Commun.*, 9:115, 2018.
- [56] A.V. Gorshkov, A. André, M.D. Lukin, and A.S. Sørensen. Photon storage in Λ -type optically dense atomic media. I. Cavity model. *Phys. Rev. A*, 76:033804, 2007.
- [57] A. Sipahigil, R.E. Evans, D.D. Sukachev, M.J. Burek, J. Borregaard, M.K. Bhaskar, C.T. Nguyen, J.L. Pacheco, H.A. Atikian, C. Meuwly, et al. An integrated diamond nanophotonics platform for quantum-optical networks. *Science*, 354:847, 2016.
- [58] O. Kyriienko and A.S. Sørensen. Continuous-wave single-photon transistor based on a superconducting circuit. *Phys. Rev. Lett.*, 117:140503, 2016.
- [59] K. Inomata, Z. Lin, K. Koshino, W.D. Oliver, J.-S. Tsai, T. Yamamoto, and Y. Nakamura. Single microwave-photon detector using an artificial Λ -type three-level system. *Nat. Commun.*, 7:12303, 2016.
- [60] A. Kuhn, M. Hennrich, T. Bundo, and G. Rempe. Controlled generation of single photons from a strongly coupled atom-cavity system. *Appl. Phys. B*, 69:373, 1999.
- [61] F. Jahnke. *Quantum optics with semiconductor nanostructures*. Elsevier, Cambridge, 2012.
- [62] G. Chen, N.H. Bonadeo, D.G. Steel, D. Gammon, D.S. Katzer, D. Park, and L.J. Sham. Optically induced entanglement of excitons in a single quantum dot. *Science*, 289:1906, 2000.
- [63] R.M. Stevenson, R.J. Young, P. See, D.G. Gevaux, K. Cooper, P. Atkinson, I. Farrer, D.A. Ritchie, and A.J. Shields. Magnetic-field-induced reduction of the exciton polarization splitting in InAs quantum dots. *Phys. Rev. B*, 73:033306, 2006.
- [64] T. Takagahara. Biexciton states in semiconductor quantum dots and their nonlinear optical properties. *Phys. Rev. B*, 39:10206, 1989.
- [65] Y.Z. Hu, S.W. Koch, M. Lindberg, N. Peyghambarian, E.L. Pollock, and F.F. Abraham. Biexcitons in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 64:1805, 1990.
- [66] G. Bacher, R. Weigand, J. Seufert, V.D. Kulakovskii, N.A. Gippius, A. Forchel, K. Leonardi, and D. Hommel. Biexciton versus exciton lifetime in a single semiconductor quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, 83:4417, 1999.

- [67] V.D. Kulakovskii, G. Bacher, R. Weigand, T. KÜmmell, A. Forchel, E. Borovitskaya, K. Leonardi, and D. Hommel. Fine structure of biexciton emission in symmetric and asymmetric CdSe/ZnSe single quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 82:1780, 1999.
- [68] W. Langbein, P. Borri, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter, and A.D. Wieck. Control of fine-structure splitting and biexciton binding in $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ quantum dots by annealing. *Phys. Rev. B*, 69:161301, 2004.
- [69] E. Moreau, I. Robert, L. Manin, V. Thierry-Mieg, J.M. Gérard, and I. Abram. Quantum cascade of photons in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 87:183601, 2001.
- [70] A. Predojević and M.W. Mitchell. *Engineering the Atom-Photon Interaction: Controlling Fundamental Processes with Photons, Atoms and Solids*. Springer-Verlag Cham, 2015.
- [71] M. Förtsch, J.U. Fürst, C. Wittmann, D. Strelakov, A. Aiello, M.V. Chekhova, C. Silberhorn, G. Leuchs, and C. Marquardt. A versatile source of single photons for quantum information processing. *Nat. Commun.*, 4:1818, 2013.
- [72] J. Zhang, J.S. Wildmann, F. Ding, R. Trotta, Y. Huo, E. Zallo, D. Huber, A. Rastelli, and O.G. Schmidt. High yield and ultrafast sources of electrically triggered entangled-photon pairs based on strain-tunable quantum dots. *Nat. Commun.*, 6:10067, 2015.
- [73] M.F. Doty, M. Scheibner, A.S. Bracker, I.V. Ponomarev, T.L. Reinecke, and D. Gammon. Optical spectra of doubly charged quantum dot molecules in electric and magnetic fields. *Phys. Rev. B*, 78:115316, 2008.
- [74] M. Scheibner, A.S. Bracker, D. Kim, and D. Gammon. Essential concepts in the optical properties of quantum dot molecules. *Solid State Commun.*, 149:1427, 2009.
- [75] M. Heldmaier, C. Hermannstädter, M. Witzany, L. Wang, J. Peng, A. Rastelli, G. Bester, O.G. Schmidt, and P. Michler. Growth and spectroscopy of single lateral InGaAs/GaAs quantum dot molecules. *Phys. Stat. Sol. (b)*, 249:710, 2012.
- [76] G. Fernandez, T. Volz, R. Desbuquois, A. Badolato, and A. Imamoglu. Opticaly tunable spontaneous Raman fluorescence from a single self-assembled InGaAs quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, 103:087406, 2009.
- [77] K. Brunner, G. Abstreiter, G. Böhm, G. Tränkle, and G. Weimann. Sharp-line photoluminescence and two-photon absorption of zero-dimensional biexcitons in a GaAs/AlGaAs structure. *Phys. Rev. Lett.*, 73:1138, 1994.
- [78] Y. Ota, S. Iwamoto, N. Kumagai, and Y. Arakawa. Spontaneous two-photon emission from a single quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, 107:233602, 2011.
- [79] E. Del Valle, A. Gonzalez-Tudela, E. Cancellieri, F.P. Laussy, and C. Tejedor. Generation of a two-photon state from a quantum dot in a microcavity. *New J. Phys.*, 13:113014, 2011.

- [80] S. Schumacher, J. Förstner, A. Zrenner, M. Florian, C. Gies, P. Gartner, and F. Jahnke. Cavity-assisted emission of polarization-entangled photons from biexcitons in quantum dots with fine-structure splitting. *Opt. Express*, 20:5335, 2012.
- [81] S. Stufler, P. Machnikowski, P. Ester, M. Bichler, V.M. Axt, T. Kuhn, and A. Zrenner. Two-photon rabi oscillations in a single $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ quantum dot. *Phys. Rev. B*, 73:125304, 2006.
- [82] S.J. Boyle, A.J. Ramsay, A.M. Fox, and M.S. Skolnick. Two-color two-photon rabi oscillation of biexciton in single InAs/GaAs quantum dot. *Physica E*, 42:2485, 2010.
- [83] L. Schneebeli, T. Feldtmann, M. Kira, S. W. Koch, and N. Peyghambarian. Zeno-logic applications of semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. A*, 81:053852, 2010.
- [84] M. Glässl, A.M. Barth, K. Gawarecki, P. Machnikowski, M.D. Croitoru, S. Lüker, D.E. Reiter, T. Kuhn, and V.M. Axt. Biexciton state preparation in a quantum dot via adiabatic rapid passage: comparison between two control protocols and impact of phonon-induced dephasing. *Phys. Rev. B*, 87:085303, 2013.
- [85] M. Kira and S.W. Koch. Many-body correlations and excitonic effects in semiconductor spectroscopy. *Prog. Quantum Electron.*, 30:155, 2006.
- [86] M. Kira and S.W. Koch. *Semiconductor quantum optics*. Cambridge University Press, New York, 2011.
- [87] J.J. Sakurai. *Modern quantum mechanics*. The Benjamin/Cummings Publishing Company, Inc., Menlo Park, California, 1985.
- [88] J.H. Eberly and K. Wodkiewicz. The time-dependent physical spectrum of light. *J. Opt. Soc. Am.*, 67:1252, 1977.
- [89] T. Unold, K. Mueller, C. Lienau, T. Elsaesser, and A.D. Wieck. Optical Stark effect in a quantum dot: Ultrafast control of single exciton polarizations. *Phys. Rev. Lett.*, 92:157401, 2004.
- [90] A. Muller, W. Fang, J. Lawall, and G.S. Solomon. Creating polarization-entangled photon pairs from a semiconductor quantum dot using the optical Stark effect. *Phys. Rev. Lett.*, 103:217402, 2009.
- [91] S.-Y. Zhu, Lorenzo M. Narducci, and M.O. Scully. Quantum-mechanical interference effects in the spontaneous-emission spectrum of a driven atom. *Phys. Rev. A*, 52:4791, 1995.
- [92] T. Müller, W. Parz, G. Strasser, and K. Unterrainer. Pulse-induced quantum interference of intersubband transitions in coupled quantum wells. *Appl. Phys. Lett.*, 84:64, 2004.
- [93] J.F. Dynes, M.D. Frogley, M. Beck, J. Faist, and C.C. Phillips. ac stark splitting and quantum interference with intersubband transitions in quantum wells. *Phys. Rev. Lett.*, 94:157403, 2005.

- [94] D. Brunner, B.D. Gerardot, P.A. Dalgarno, G. Wüst, K. Karrai, N.G. Stoltz, P.M. Petroff, and R.J. Warburton. A coherent single-hole spin in a semiconductor. *Science*, 325:70, 2009.
- [95] H.S. Borges, L. Sanz, J.M. Villas-Boas, and A.M. Alcalde. Quantum interference and control of the optical response in quantum dot molecules. *Appl. Phys. Lett.*, 103:222101, 2013.
- [96] O. Schubert, M. Hohenleutner, F. Langer, B. Urbanek, C. Lange, U. Huttner, D. Golde, T. Meier, M. Kira, S.W. Koch, et al. Sub-cycle control of terahertz high-harmonic generation by dynamical Bloch oscillations. *Nat. Photon.*, 8:119, 2014.
- [97] S.E. Harris. Electromagnetically induced transparency. *Phys. Today*, 50:36, 1997.
- [98] M.O. Scully and M.S. Zubairy. *Quantum Optics*. Cambridge University Press, Cambridge, 1997.
- [99] M.C. Phillips, H. Wang, I. Rumyantsev, N.H. Kwong, R. Takayama, and R. Binder. Electromagnetically induced transparency in semiconductors via biexciton coherence. *Phys. Rev. Lett.*, 91:183602, 2003.
- [100] S. Marcinkevičius, A. Gushterov, and J.P. Reithmaier. Transient electromagnetically induced transparency in self-assembled quantum dots. *Appl. Phys. Lett.*, 92:041113, 2008.
- [101] D. Baretin, J. Houmark, B. Lassen, M. Willatzen, T.R. Nielsen, J. Mørk, and A.-P. Jauho. Optical properties and optimization of electromagnetically induced transparency in strained InAs/GaAs quantum dot structures. *Phys. Rev. B*, 80:235304, 2009.
- [102] E. Del Valle, S. Zippilli, F.P. Laussy, A. Gonzalez-Tudela, G. Morigi, and C. Tejedor. Two-photon lasing by a single quantum dot in a high-Q microcavity. *Phys. Rev. B*, 81:035302, 2010.
- [103] J.R. Schrieffer and P.A. Wolff. Relation between the Anderson and Kondo hamiltonians. *Phys. Rev.*, 149:491, 1966.
- [104] C. Berger, U. Huttner, M. Mootz, M. Kira, S.W. Koch, J.-S. Tempel, M. Aßmann, M. Bayer, A.M. Mintairov, and J.L. Merz. Quantum-memory effects in the emission of quantum-dot microcavities. *Phys. Rev. Lett.*, 113:093902, 2014.
- [105] H. Haug and S.W. Koch. *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors*. World Scientific, Singapore, 2009.
- [106] F. Hargart, M. Müller, K. Roy-Choudhury, S. L. Portalupi, C. Schneider, S. Höfling, M. Kamp, S. Hughes, and P. Michler. Cavity-enhanced simultaneous dressing of quantum dot exciton and biexciton states. *Phys. Rev. B*, 93:115308, 2016.
- [107] P.-L. Ardelt, M. Koller, T. Simmet, L. Hanschke, A. Bechtold, A. Regler, J. Wierzbowski, H. Riedl, J.J. Finley, and K. Müller. Optical control of nonlinearly dressed states in an individual quantum dot. *Phys. Rev. B*, 93:165305, 2016.

- [108] C. Gerry and P. Knight. *Introductory quantum optics*. Cambridge University Press, Cambridge, 2005.
- [109] M. Kira. Excitation picture of an interacting Bose gas. *Ann. Phys. (N.Y.)*, 351:200–249, 2014.
- [110] M. Kira, F. Jahnke, W. Hoyer, and S.W. Koch. Quantum theory of spontaneous emission and coherent effects in semiconductor microstructures. *Prog. Quantum Electron.*, 23:189, 1999.
- [111] J. Kabuss, S. Werner, A. Hoffmann, P. Hildebrandt, A. Knorr, and M. Richter. Theory of time-resolved Raman scattering and fluorescence emission from semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. B*, 81:075314, 2010.
- [112] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A.A. Gorbunov, A. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T.L. Reinecke, et al. Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots. *Phys. Rev. B*, 65:195315, 2002.
- [113] A. Laucht, N. Hauke, J.M. Villas-Bôas, F. Hofbauer, G. Böhm, M. Kaniber, and J.J. Finley. Dephasing of exciton polaritons in photoexcited InGaAs quantum dots in GaAs nanocavities. *Phys. Rev. Lett.*, 103:087405, 2009.
- [114] C. Roy and S. Hughes. Influence of electron–acoustic-phonon scattering on intensity power broadening in a coherently driven quantum-dot–cavity system. *Phys. Rev. X*, 1:021009, 2011.
- [115] L. Béguin, J.-P. Jahn, J. Wolters, M. Reindl, R. Trotta, A. Rastelli, F. Ding, Y. Huo, O.G. Schmidt, P. Treutlein, et al. On-demand semiconductor source of 780 nm single photons with controlled temporal wave packets. *arXiv-Preprint arXiv:1710.02490*, 2017.
- [116] R.G. Brewer and E.L. Hahn. Coherent two-photon processes: Transient and steady-state cases. *Phys. Rev. A*, 11:1641, 1975.
- [117] A. Kuhn, M. Hennrich, and G. Rempe. Deterministic single-photon source for distributed quantum networking. *Phys. Rev. Lett.*, 89:067901, 2002.
- [118] X. Xu, B. Sun, P.R. Berman, D.G. Steel, A.S. Bracker, D. Gammon, and L.J. Sham. Coherent optical spectroscopy of a strongly driven quantum dot. *Science*, 317:929, 2007.
- [119] A. Zrenner, S. Schumacher, D. Mantei, S. Gordon, and A. Leier. Verfahren und Vorrichtung zur Erzeugung einer kontrollierbaren Einzelphoton-Emission. Patentschrift DE102012007793A1, 2013.
- [120] R.J. Young, R.M. Stevenson, P. Atkinson, K. Cooper, D.A. Ritchie, and A.J. Shields. Improved fidelity of triggered entangled photons from single quantum dots. *New J. Phys.*, 8:29, 2006.
- [121] A. González-Tudela, E. Del Valle, and F.P. Laussy. Optimization of photon correlations by frequency filtering. *Phys. Rev. A*, 91:043807, 2015.

- [122] D. Heinze, A. Zrenner, and S. Schumacher. Polarization-entangled twin photons from two-photon quantum-dot emission. *Phys. Rev. B*, 95:245306, 2017.
- [123] S. Schumacher and A. Zrenner. Two-photon physics with quantum-dot biexcitons. *Proc. SPIE*, 8623:86230E, 2013.
- [124] K. Gawarecki, S. Lüker, D.E. Reiter, T. Kuhn, M. Glässl, V.M. Axt, A. Grodecka-Grad, and P. Machnikowski. Dephasing in the adiabatic rapid passage in quantum dots: Role of phonon-assisted biexciton generation. *Phys. Rev. B*, 86:235301, 2012.

Danksagung

Am Ende dieser Arbeit möchte ich mich abschließend bei allen Personen, die meine Promotion maßgeblich unterstützt oder begleitet haben, herzlich bedanken.

An erster Stelle steht hier natürlich mein Doktorvater und Erstgutachter, Stefan Schumacher, bei dem ich mich zunächst ganz herzlich für die freundliche und – trotz seines damaligen Auslandsaufenthaltes – unkomplizierte Aufnahme in seine Arbeitsgruppe im Oktober 2014 bedanken möchte. Die sehr gute fachliche Betreuung – gekennzeichnet durch eine offene und konstruktive Atmosphäre –, welche mir sowohl Gestaltungsspielräume für eigene Projektideen als auch für deren eigenverantwortliche Umsetzung eröffnet hat, habe ich stets sehr zu schätzen gewusst. Zudem möchte ich mich für die Möglichkeit bedanken, dass ich regelmäßig – auch weiter entfernte (San Francisco) – relevante und spannende Konferenzen besuchen durfte. Weiterhin möchte ich mich für die Einbindung meiner Arbeit in die DFG-Projekte GRK 1464 und SFB TRR 142 bedanken, die nicht nur für die finanzielle Unterstützung sondern auch für eine interaktive und vernetzte Integration in die Projektlandschaft der Universitäten Paderborn und Dortmund gesorgt sowie auch den Blick *über den Tellerrand* ermöglicht hat.

Rolf Binder von der *University of Arizona* danke ich für die angenehme und produktive Zusammenarbeit in den letzten zwei Jahren. Torsten Meier danke ich für die Übernahme des Zweitgutachtens für meine Arbeit. Simone Lange danke ich für alle organisatorischen Hilfestellungen, die allen Mitgliedern der Theoretischen Physik *den Rücken freihalten*.

Matthias Reichelt danke ich ganz herzlich für die engagierte Zusammenarbeit bei den gemeinsam betreuten Lehrveranstaltungen, die mir immer sehr viel Spaß gemacht hat. Unsere spannenden Diskussionen – nicht nur über Physik – haben zu einer freundschaftlichen Verbundenheit auch außerhalb der Universität geführt.

Für die gute Atmosphäre im Büro und die gemeinsame Zusammenarbeit bedanke ich mich bei Dirk Heinze und Tom Praschan. Natürlich gilt mein Dank allen derzeitigen und ehemaligen Mitgliedern unserer Arbeitsgruppe *Theorie funktionaler photonischer Strukturen*, Christian Wiebeler, Przemyslaw Lewandowski, Xuekai Ma, Matthias Pukrop und Chuanding Dong. Dieser Personenkreis überschneidet sich ebenfalls mit den Mitgliedern des berühmten *Burger-Dienstags* – der auch gerne (oder auch sehr häufig) bei Pizza oder Steak am Donnerstag stattfinden konnte – sowie mit dem harten Kern der Kaffee-Runde nach dem Mittagessen: Hier möchte ich mich noch besonders bei Rebecca Hölscher, Polina Sharapova, Elisabeth Wagner, Daniel Berghoff, Wolf-Rüdiger Hannes und Matthias Reichelt bedanken.

Am Schluss gilt mein ganz besonderer Dank meiner Familie, vor allen Dingen meinen Eltern Ingeborg und Bernhard sowie meinem Bruder Benjamin, die jederzeit für mich

Danksagung

da sind und mich bei all meinen Vorhaben unermüdlich wie tatkräftig unterstützen. An dieser Stelle erinnere ich mich ganz besonders gerne auch an meine naturwissenschaftlich begeisterte Großmutter Roswitha Schönfelder (1924-2015), die an meinem Lebensweg nicht nur von ganzem Herzen so großen Anteil genommen sondern diesen ebenfalls stets mit so großer Freude unterstützt hat.