

Echos in Festkörpern

Echophänomene in Vielteilchensystemen liefern wichtige Einsichten über phasenerstörende Prozesse.

Torsten Meier und Peter Thomas

Echos in Festkörpern sind der Wiederhall bestimmter äußerer Anregungen, etwa durch magnetische oder optische Pulse. Wie das angeregte Vielteilchensystem auf diese Anregungen reagiert, kann viel über phasenerstörende Prozesse verraten. Ein Prototyp dafür ist das so genannte Spinecho als Reaktion auf magnetische Wechselfelder, das den Kernspinresonanz-Methoden in Materialforschung und Medizin zugrunde liegt. Auch das neue und spannende Forschungsgebiet „Quanteninformation“ profitiert von den Erkenntnissen über Echos in Festkörpern, spielen hier doch Kohärenz als notwendige Bedingung und Dekohärenz als schädlicher Einfluss eine zentrale Rolle. Echos können als Diagnoseinstrument dienen, mit denen sich die phasenerstörenden Vorgänge identifizieren und quantifizieren lassen.

Der Begriff „Echo“ wird in der Physik in unterschiedlichen Zusammenhängen verwendet. Natürlich denkt man zunächst an das „Echo im Walde“. Doch hiervon soll in diesem Beitrag nicht die Rede sein. Vielmehr sollen Echophänomene behandelt werden, deren Prototyp das Spinecho ist, das 1950 von Hahn [1] bei der Kernspinresonanz und 1958 von Blume [2] bei der Elektronenspinresonanz beobachtet wurde.

Hierbei legt man zunächst ein statisches Magnetfeld an einen Festkörper mit spinbehafteten lokalisierten Teilchen an. Wird dieses System zu den Zeiten $t=0$ und $t=\tau$ mit einem dazu senkrechten, gepulsten und geeignet gewählten magnetischen Wechselfeld (im Radio- bzw. Mikrowellenbereich) angeregt, so antwortet das System spontan zur Zeit $t=2\tau$ mit einer makroskopischen Magnetisierung, die als Puls registriert werden kann. Zwei wesentliche Voraussetzungen müssen hierfür vorliegen: Zum einen muss die durch einen Puls induzierte makroskopisch beobachtbare Magnetisierung nach dem Puls schnell genug abklingen. Zum anderen darf dieses Abklingen nicht auf phasenerstörende Wechselwirkungen mit anderen Anregungen zurückgehen. Diese Voraussetzungen werden erfüllt, wenn die unterschiedlichen lokalisierten Teilchen leicht unterschiedlichen lokalen statischen Magnetfeldern ausgesetzt sind. Es muss also eine genügend starke *Unordnung* vorliegen.

Neben dem Spinecho wurden in der Folge weitere

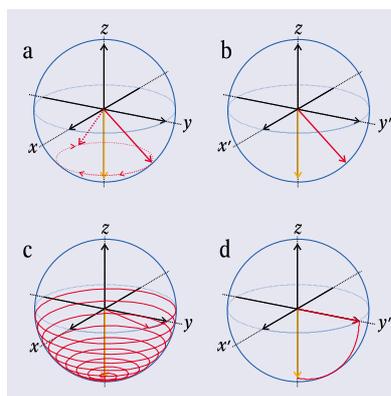


Abb. 1:

Beim Spinecho bewegt sich die Magnetisierung auf der sog. Bloch-Kugel.

- ▶ a) Grundzustand (orange) und angeregter Zustand (rot), der im Laborsystem um die z -Achse präzediert. Der Öffnungswinkel des Konus, der durch den präzedierenden Bloch-Vektor beschrieben wird, ist durch die relativen Anteile von unterem und oberem Eigenzustand zu dem Superpositionszustand gegeben.
- ▶ b) Angeregter Zustand im rotierenden System.
- ▶ c) Die Wirkung eines $\pi/2$ -Pulses im Labor- und
- ▶ d) im rotierenden System.

Echos demonstriert oder theoretisch vorhergesagt: Das Photonenecho [3], das Phononenecho [4], das Temperaturecho [5] und das Stromecho [6]. Doch zunächst wollen wir auf das Spinecho eingehen.

Das Spinecho als Prototyp

In einem Festkörper sollen voneinander unabhängige, räumlich lokalisierte Teilchen mit Spinquantenzahl $s=1/2$ vorliegen. Jedes Teilchen trägt das gleiche magnetische Moment. Legt man ein statisches homogenes Magnetfeld \vec{B}_0 in z -Richtung an, so führt die Zeeman-Aufspaltung zu zwei Energieniveaus für jedes Teilchen i , deren Energieaufspaltung $\hbar\omega_i$ durch das Produkt aus Moment und Feld B_0 gegeben ist. Das obere (untere) Niveau ist durch den Eigenwert der z -Komponente des Spins, $s_z = \pm 1/2$, gegeben. Wir nehmen zunächst an, dass alle Teilchen dasselbe Magnetfeld \vec{B}_0 spüren, ihre Niveaufaltungen sind daher identisch ($\omega_i = \omega_0$).

Die physikalisch relevante Größe ist der Erwartungswert $\vec{M}(t)$ der Magnetisierung des Ensembles, der in unserem Modell einfach die Summe aller Erwartungswerte für die einzelnen Teilchen ist. Er wird auch Bloch-Vektor genannt. Befinden sich alle Spins entweder im unteren oder im oberen Zustand, so ist $\vec{M}(t)$ konstant und zeigt in negative oder positive z -Richtung. Ein Superpositionszustand, also eine Linearkombination aus unterem und oberem Zustand, kann nicht mehr stationär sein, da er kein Eigenzustand zu fester Energie ist. Vielmehr beschreibt der Bloch-Vektor jetzt eine Präzession um die z -Achse mit der Frequenz ω_0 , der Larmor-Frequenz (Abb. 1a). Es erleichtert die Diskussion, wenn man sich in ein Koordinatensystem (x', y', z) begibt, das mit der Frequenz ω_0 um die z -Achse rotiert. In diesem rotierenden System ist auch der

Priv.-Doz. Dr. Torsten Meier und Prof. Dr. Peter Thomas, Fachbereich Physik und Wiss. Zentr. für Materialwissenschaften, Philipps-Universität, 35052 Marburg

Bloch-Vektor eines Superpositionszustandes stationär (Abb. 1b).

Wie erzeugt man einen Superpositionszustand? Dazu betrachten wir die Dynamik dieses Ensembles, wenn ein Radio- oder Mikrowellenfeld $\vec{B}_1(t)$ in x -Richtung angelegt wird, dessen Frequenz ω mit ω_0 übereinstimmen soll. Die quantenmechanische Beschreibung dieser Dynamik geschieht durch die Bloch-Gleichungen [7]. Sie beschreiben das zeitliche Verhalten des magnetischen Polarisationsvektors unter der Wirkung eines externen Magnetfeldes. Das linear polarisierte \vec{B}_1 -Feld lässt sich als Superposition zweier gegenläufig zirkular polarisierter Magnetfelder aufgefassen. Im mit ω_0 rotierenden Koordinatensystem ist dann eine Komponente stationär, die andere rotiert mit doppelter Frequenz und kann vernachlässigt werden (RWA, *rotating wave approximation*). In diesem Koordinatensystem ist also nur der stationäre Anteil des Feldes \vec{B}_1 in x' -Richtung relevant, um den nun der Bloch-Vektor präzediert. War er anfänglich im unteren Eigenzustand (Südpol), so bewegt er sich im rotierenden System auf dem Großkreis, der in der $y'z$ -Ebene liegt, nach oben. Abbildungen 1c und 1d zeigen diese Dynamik im Labor- und im rotierenden System. Der Bloch-Vektor bewegt sich also im Laborsystem auf einer Spiralbahn vom Südpol zum Nordpol

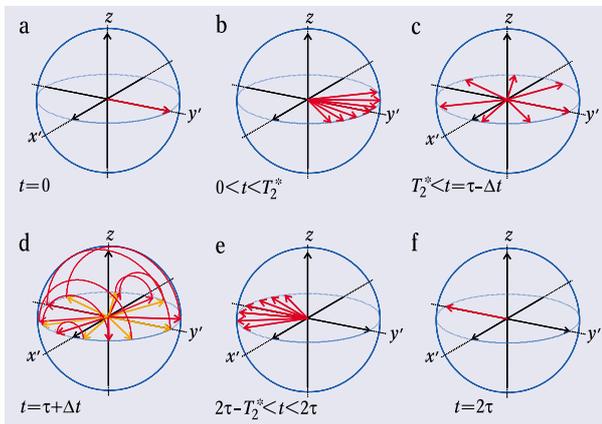


Abb. 2: Das Spinecho im rotierenden System. ► a) Sofort nach dem $\pi/2$ -Puls. ► b) Etwas später. ► c) Hier sind die individuellen Magnetisierungen komplett außer Phase. ► d) Der zweite π -Puls führt zur Präzession um die x' -Achse um den Winkel π , sodass die orangenen Pfeile in die Lage der entsprechenden roten Pfeile gedreht werden. ► e) Die individuellen Magnetisierungen rephasieren wieder, um ► f) bei $t = 2\tau$ alle wieder in Phase zu sein. ► g) Der zeitliche Verlauf des Betrages der transversalen Magnetisierung.

und wieder zurück, solange des Feld \vec{B}_1 eingeschaltet ist. Diese periodische Bewegung nennt man Rabi-Oszillationen, ihre Frequenz ist proportional dem Produkt aus der Amplitude von \vec{B}_1 und dem magnetischen Moment.

Wird nun das Feld \vec{B}_1 irgendwann abgeschaltet, so bleibt von da an der Bloch-Vektor auf dem gerade erreichten Breitenkreis der Bloch-Kugel und setzt im Laborsystem seine Rotation um die z -Achse mit der Frequenz ω_0 fort. Spezielle Pulsformen sind solche, die den Bloch-Vektor vom Südpol gerade in die Äquatorebene heben ($\pi/2$ -Pulse, Abb. 1c), oder solche, die ihn vom Süd- zum Nordpol befördern (π -Pulse).

Beim klassischen Spinecho wird zunächst ein $\pi/2$ -Puls angewendet. Alle Bloch-Vektoren rotieren danach

im Laborsystem in Phase in der Äquatorebene mit gleicher Frequenz ω_0 . Im rotierenden System liegen alle Vektoren aufeinander und zeigen in die y' -Richtung (Abb. 1d). Diese Bewegung erzeugt ein makroskopisches elektromagnetisches Signal, das detektiert werden kann. Natürlich gibt es in realen Systemen eine Vielzahl von Wechselwirkungen, die dazu führen können, dass die Bloch-Vektoren aus dem Tritt kommen, ohne dass sie die Äquatorebene verlassen. Diese Prozesse werden mit verschiedenen Namen bezeichnet: Dephasierung, transversale Relaxation, Dekohärenz. Im einfachsten Fall lassen sie sich phänomenologisch durch einen exponentiellen Abfall der Phasenkohärenz der Bloch-Vektoren beschreiben, der durch die Dephasierungsrate T_2^{-1} charakterisiert ist. In dieser Situation würde die Messung der Absorption eines Radio- oder Mikrowellenfeldes eine Lorentz-Linie mit Zentralfrequenz ω_0 und einer durch T_2^{-1} gegebenen Breite liefern. Eine solche Linienform heißt *homogene Linie*.

Natürlich gibt es auch Prozesse, bei denen das Ensemble im Lauf der Zeit in den Grundzustand zurückrelaxiert. In der Kernspinresonanz sind dies vorwiegend nichtstrahlende Prozesse. Ihre Wirkung kann oft durch eine so genannte longitudinale Relaxationsrate T_1^{-1} beschrieben werden. Natürlich führt jeder T_1 -Prozess zu einem T_2 -Prozess, aber nicht umgekehrt.

Oben wurde erwähnt, dass sich ein Echo nur beobachten lässt, wenn die durch den Puls $\vec{B}_1(t)$ erzeugte makroskopische Polarisation *ohne* T_2 -Prozesse zeitlich relaxiert. Dies wird dadurch realisiert, dass in vielen realen Systemen das statische Magnetfeld nicht über die gesamte Probe konstant ist, sondern räumlichen Fluktuationen unterworfen ist. Die Spins lassen sich dann in Unterensembles mit unterschiedlichen Resonanzfrequenzen ω_i aufteilen. Diese sind gemäß einer gewissen Verteilungsfunktion $g(\omega_i)$ mit Maximum bei ω_0 den einzelnen Subensembles zugeordnet. Die lineare Absorption zeigt dann, selbst bei Abwesenheit dephasierender Prozesse, eine Linienform, die durch $g(\omega)$ gegeben ist. Dies ist eine rein *inhomogene* Linie. Das System ist durch Unordnung gekennzeichnet. In der Realität liegen in der Regel Linien vor, die sowohl homogen als auch inhomogen verbreitert sind.

Wird auf ein derartiges inhomogenes Ensemble ein $\pi/2$ -Puls angewendet, so werden die Bloch-Vektoren der einzelnen Subensembles alle in die Äquatorebene gehoben. Dort rotieren sie nun aber mit unterschiedlichen Frequenzen ω_i . Im mit ω_0 rotierenden System zeigen sie direkt nach Abschalten des $\pi/2$ -Pulses alle in y' -Richtung (Abb. 2a). Zu späteren Zeiten spalten sie symmetrisch um diese Richtung herum auf, da sie wegen der lokal unterschiedlichen Magnetfelder \vec{B}_0 unterschiedliche Präzessionsfrequenzen haben und nicht mehr durch ein äußeres Wechselfeld eine erzwungene Bewegung durchführen müssen (Abb. 2b). In der rotierenden Äquatorebene ist diese Bewegung verglichen mit der Präzessionsfrequenz im Laborsystem relativ langsam. Manche Vektoren sind schneller, manche langsamer, laufen also im rotierenden System ausgehend von der y' -Achse entweder rechts herum oder links herum. Nach einer Zeit T_2^* , die durch die reziproke Breite der Verteilungsfunktion g gegeben ist, ist es zu einer Gleichverteilung in der Äquatorebene, einer Randomisierung der Bloch-Vektoren gekommen (Abb. 2c). Die makroskopische Magnetisierung als Summe aller Bloch-Vektoren ist dann auf Null abgeklungen. Es ist wichtig, sich zu vergegenwärtigen, dass das einmal

durch den Puls $\vec{B}_1(t)$ bei $t=0$ kohärent präparierte Ensemble zur Zeit t mit $T_2 \gg t > T_2^*$ zwar keine makroskopische Antwort mehr zeigt, alle individuellen Bloch-Vektoren aber noch eine Erinnerung an ihre durch den Puls erzwungenen Phasen behalten.

Auf dieses Ensemble soll nun zur Zeit $t=\tau$ mit $T_2 \gg \tau > T_2^*$ ein zweiter gleichartiger Puls (\vec{B}_1 in x' -Richtung) einwirken, der jedoch stärker oder länger ist, sodass er ein π -Puls ist. Dieser Puls hat im rotierenden System wiederum eine stationäre Komponente in x' -Richtung (in RWA). Ein Vektor, der zufällig mit exakt ω_0 präzediert (im rotierenden System also auf der y' -Achse ruht), wird durch den π -Puls über den Nordpol auf die $-y'$ -Achse befördert. Solche, die sich von der y' -Achse entfernt haben, werden auf Kreisen, die parallel zu diesem Großkreis liegen, zu Positionen in der Äquatorebene gedreht, die die gleiche x' -, aber negative y' -Koordinate haben (Abb. 2d).

Nach Beendigung des zweiten Pulses laufen die Vektoren im rotierenden System mit der gleichen individuellen Rotationsgeschwindigkeit in gleicher Richtung wie vor dem zweiten Puls weiter (Abb. 2e). Dies bedeutet, dass sie sich alle zur Zeit $t=2\tau$ entlang der negativen y' -Achse treffen (Abb. 2f). Das Ensemble zeigt wieder eine makroskopische Magnetisierung, die ein Signal aussendet. Es klingt anschließend ab, wie nach dem ersten Puls auch. Abbildung 2g zeigt dieses spontane und verzögerte Echo.

In manchen Darstellungen wird zur Veranschaulichung eine Gruppe von Läufern in einem runden Stadion betrachtet, die zur Zeit $t=0$ an der Startlinie gestartet werden (kohärente Präparation). Einige sind schneller als andere. Nach einer gewissen Zeit T_2^* sind sie gleichmäßig auf der Bahn verteilt. Jetzt, zur Zeit $t=\tau$, befiehlt der Trainer „kehrt marsch!“, und, wenn keiner der Läufer gestolpert (T_2 -Prozess) oder verstorben (T_1 -Prozess) ist, treffen sie sich wieder an der Startlinie in Phase. Dieses Bild ist irreführend, da es auf eine Zeitumkehr hindeutet. Tatsächlich liegt keine Zeitumkehr vor, wie Abb. 2d zeigt. Die Bloch-Vektoren werden vielmehr an der (rotierenden) x' -Achse in der Äquatorebene gespiegelt.

Das Photonenecho

Die erste Demonstration eines Photonenechos gelang an Rubin [3]. Rubin enthält optisch anregbare Zentren – Cr-Ionen –, die sich als voneinander unabhängige Zweiniveausysteme beschreiben lassen. Statt eines Magnetpulses wird ein kurzer Lichtpuls eingestrahlt, dem nach einer Verzögerungszeit τ ein zweiter Lichtpuls folgt. Das System antwortet dann zur Zeit $t=2\tau$ spontan mit einem Lichtpuls, dem Photonenecho.

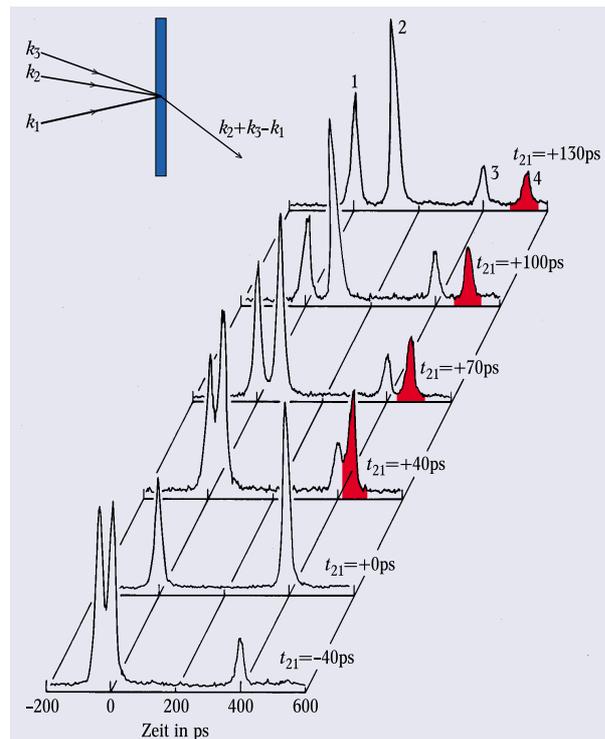
Auch hier haben wir wieder Unordnung in Form leicht unterschiedlicher Resonanzenergien der individuellen Zweiniveausysteme, die zu einer inhomogenen optischen Absorptionslinie führt.

Die Analogie des Zweiniveau-Photonenechos mit dem Spinecho ist sehr eng, die theoretische Beschreibung erfolgt anhand der optischen Bloch-Gleichungen. Allerdings gibt es auch einige Unterschiede. Der Bloch-Vektor ist nun ein Pseudospinvektor.¹⁾ Die optische Polarisation selbst entspricht dem Superpositionszustand des Spinechos. Der Südpol (Nordpol) der Bloch-Kugel entspricht dem unteren (oberen) Zustand des Zweiniveausystems. In beiden Fällen verschwindet die optische Polarisation. Sie ist am größten in der Äquator-

ebene. Hier sind die Wahrscheinlichkeiten, das Elektron im oberen oder im unteren Zustand anzutreffen, genau gleich 1/2. Statt der magnetischen Feldpulse beim Spinecho bewirkt nun das elektrische Feld eines Laserpulses die optische Anregung. Dieses koppelt an das atomare Dipolmoment an. Die Stärke der Anregung, also das Maß, wie schnell sich der Bloch-Vektor aus dem Grundzustand am Südpol emporschraubt, ist durch das Produkt der elektrischen Feldamplitude und dem atomaren Dipolmoment gegeben. Man kann wieder Rabi-Flops erzeugen, $\pi/2$ - und π -Pulse anwenden, usw. [9]. Allerdings werden Photonenechos meist mit Pulsen erzeugt, die einem sehr viel kleineren Winkel als π entsprechen. Eine hohe Population angeregter Zustände in Festkörpern würde zusätzliche schnelle Dephasierungsprozesse induzieren. Tatsächlich beschreibt man das Photonenecho störungstheoretisch meist in der niedrigsten Ordnung im externen Lichtfeld, die gerade noch ein Echo liefert.

Ein weiterer Unterschied zum Spinecho liegt im Verhältnis von Wellenlänge des Anregungsfeldes zu Probenausdehnung. Die Wellenlängen der beim Spinecho verwendeten Radio- oder Mikrowellen sind viel größer als die Probenausdehnung. Beim Photonenecho ist dies umgekehrt. Daher kann man dort die Pulse aus verschiedenen Richtungen einfallen lassen, was zu räumlichen Interferenzen Anlass gibt. Man setzt meist die Zwei- oder Dreistrahl-Vierwellen-Mischgeometrie ein. Der Vorteil dieser Geometrie liegt darin, dass, bis auf Streulicht, das Signal hintergrundfrei detektiert werden kann.

Als Beispiel zeigt Abb. 3 das Photonenecho in einer ungeordneten Halbleiterprobe, dem Mischkristall $\text{CdS}_x\text{Se}_{1-x}$. Die Zeitverzögerung zwischen Echo und



1) Seine z-Komponente ist durch die Differenz der Besetzungen im oberen und unteren Zustand gegeben, dies nennt man die Inversion. Die transversalen x- und y-Komponenten sind durch die Erwartungswerte der optischen Polarisation und deren Zeitableitung, des so genannten Polarisationsstromes, gegeben.

Abb. 3: Stimuliertes Photonenecho in dem Mischkristall $\text{CdS}_x\text{Se}_{1-x}$. Der vierte Puls (rot) ist das stimulierte Echo, das den drei Anregungspulsen folgt. Das Inset zeigt die Kinematik: Ein erster Puls trifft zur Zeit $t=0$ auf die Probe aus Richtung \vec{k}_1 , zur Zeit $t=t_{21}$ fällt ein zweiter Puls aus Richtung \vec{k}_2 und zur Zeit $t=t_3 > t_{21}$ ein dritter aus Richtung \vec{k}_3 ein. Detektiert wird nur das in die Richtung $\vec{k}_2+\vec{k}_3-\vec{k}_1$ abgestrahlte Signal. (aus [8])

drittem stimulierenden Puls ist exakt gleich der Verzögerung der ersten beiden Pulse gegeneinander.

Die Aussendung des verzögerten Photonenechos beschreibt man, indem man die optischen Bloch-Gleichungen iterativ bis zur dritten Ordnung im externen Lichtfeld löst. Man betrachtet nur solche Terme, die zur Abstrahlung in Richtung $\vec{k}_2 + \vec{k}_3 - \vec{k}_1$ führen. Dies zeigt schon, dass es sich hier um einen Prozess dritter Ordnung im Lichtfeld handelt, man spricht von einem $\chi^{(3)}$ -Prozess. Zweiter und dritter Puls können auch identisch sein. Man hat also dann nur zwei Anregungspulse, und das Echo erscheint in Richtung $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$.

Wie schon das Spinecho beruht auch das Photonenecho nicht auf einer Zeitumkehr. Vielmehr wird auch hier der Bloch-Vektor durch den zweiten Puls an der $x'z$ -Ebene gespiegelt. Diese Transformation heißt Phasenkonjugation und entspricht der Präzession der

Abb. 4: Berechnete Polarisationen der einzelnen Zweiniveausysteme mit Frequenzen ω_i als Funktion der Zeit. Der erste Puls trifft bei $t=0$ ein, der zweite bei $t=\tau=4$. Bei $t=2\tau=8$ sind alle Systeme wieder in Phase, jedoch gegenüber der anfänglichen Phase um π verschoben.

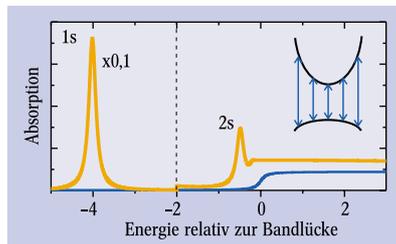
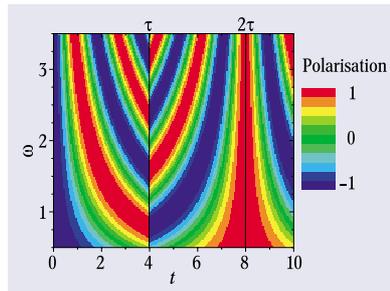


Abb. 5: Lineares Absorptionsspektrum eines Halbleiter-Quantenfilms. Unter Vernachlässigung der Coulomb-Wechselwirkung läge das blaue Spektrum vor, es entspricht den vertikalen Übergängen von Valenz- zum Leitungsband (Inset). Die Coulomb-Wechselwirkung führt zu diskreten Resonanzen und zu einer Verstärkung der Kontinuumsabsorption.

Magnetisierung während des π -Pulses bei Spinechos.

Abbildung 4 zeigt in einer farbkodierten zweidimensionalen Darstellung die zeitliche Entwicklung der optischen Polarisationen der Subensembles. Die durch die nichtlineare Wechselwirkung mit dem zweiten Puls bewirkte Phasenkonjugation bei $t=\tau=4$ ändert das Vorzeichen der individuellen Polarisation.

Um ein Photonenecho beobachten zu können, muss die Probe eine inhomogene optische Absorptionslinie besitzen. Außerdem muss das Experiment auf einer Zeitskala stattfinden, die kleiner ist als die dephasierender Wechselwirkungen. Ist dies nicht erfüllt, dann erwerben die individuellen Polarisationen beliebige Phasen, und eine Rephasierung zur doppelten Verzögerungszeit ist nur noch partiell oder gar nicht mehr möglich. Photonenechos werden daher als diagnostisches Mittel zur quantitativen Untersuchung von phasenerstörenden Prozessen eingesetzt.

Unordnungsinduziertes Dephasieren

In Halbleiterlegierungen oder -Heterostrukturen führt Unordnung ebenso zu einer inhomogenen Linie wie etwa in Rubin mit seinen optisch aktiven Zentren. Anders als dort sind jedoch die Dephasierungszeiten sehr viel kürzer und liegen in der Regel im Pico- bis Subpicosekundenbereich. Um Echos in Halbleitern zu beobachten, ist man daher auf Laser angewiesen, die optische Pulse bis hinunter in den 10 Femtosekunden-

bereich liefern. Die ultraschnelle nichtlineare Optik kam daher erst vor ca. 15 Jahren so richtig in Gang. Damals wurde diskutiert, ob Streuung an statischer Unordnung nicht auch zu einem Phasenverlust führt. Dem steht entgegen, dass die elektronischen Eigenzustände eines ungeordneten Festkörpers ebenso stationäre Zustände sind, wie die Bloch-Funktionen eines geordneten Festkörpers. Dennoch gelang es uns zu zeigen, dass in einem Modell eines ungeordneten Halbleiters, allerdings zunächst unter Vernachlässigung der Coulomb-Vielteilchenwechselwirkung, allein Unordnung zu einer Dephasierung und damit einem Abfall der Echoamplitude mit zunehmender Verzögerungszeit der Anregungspulse führen kann [10].

Unordnungsinduziertes Dephasieren in diesem Sinne tritt dann auf, wenn Auswahlregeln gebrochen werden. Stellen wir uns einen perfekt geordneten Halbleiter vor (und vernachlässigen die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Elektronen). Die elektronischen Eigenzustände sind die sog. Bloch-Funktionen, periodisch modulierte ebene Wellen, die als Quantenzahl den Kristallimpuls $\hbar\vec{k}$ besitzen. Dann gilt die optische Impuls-Auswahlregel, d. h. optische Interbandübergänge vom voll besetzten Valenzband zum leeren Leitungsband eines Halbleiters sind nur zwischen solchen Zuständen möglich, die gleiche Kristallimpulse $\hbar\vec{k}$ (bis auf den verglichen dazu winzigen Impuls des Photons) haben. Man nennt dies vertikale Übergänge (siehe den Inset in Abb. 5). Da die Resonanzenergien von \vec{k} abhängen, hat dieser Halbleiter eine inhomogene Linie. Man erwartet also Echos, und es gibt in unserem einfachen Modell keinen Grund für Dephasierung.

Das andere Extrem ist ein sehr stark ungeordneter Halbleiter, in dem die elektronischen Eigenzustände räumlich in sehr kleinen Bereichen lokalisiert sind (Anderson-Lokalisierung). In jedem dieser Bereiche hat jeweils nur genau eine Leitungsband- und eine Valenzband-Eigenfunktion eine nennenswerte Amplitude. Dieses Modell entspricht also einem Ensemble von ungekoppelten ungeordneten Zweiniveausystemen, das oben besprochen wurde. Statt der \vec{k} -Auswahlregel haben wir nun eine Orts-Auswahlregel: Die Orte der Valenzband- und der Leitungsbandfunktionen müssen übereinstimmen, damit ein optischer Übergang möglich ist. Das System zeigt Echos, und auch hier gibt es keinen Grund zu Dephasierung.

Zwischen diesen extremen Fällen gilt aber weder die Orts- noch die Impuls-Auswahlregel. Daher sind von einem gegebenen Valenzbandzustand optische Anregungen in mehrere Leitungsbandzustände und von mehreren Valenzbandzuständen in einen gegebenen Leitungsbandzustand möglich. Solche Situationen sind wohlbekannt und führen zu sog. Quantenschwebungen. Sie resultieren aus den unterschiedlichen Resonanzfrequenzen der so gekoppelten optischen Übergänge. In dem ungeordneten Halbleiter hat man jedoch wegen der Gleichverteilung der Resonanzenergien auch eine inhomogene Verteilung der Schwebungsfrequenzen. Diese führt zu einer destruktiven Überlagerung der Quantenschwebungen, die den Echosignalen überlagert sind. Während bei kleinen Verzögerungszeiten τ alle Beiträge unterschiedlicher Schwebungsfrequenzen noch erzwungenermaßen in Phase sind, werden sie bei größeren Verzögerungszeiten nach dem ersten Lichtpuls destruktive Interferenz entwickeln. Das Echosignal fällt also mit wachsender Verzögerungszeit ab. Tatsächlich ist die Verwandtschaft des unordnungs-

induzierten Dephasierens mit der unordnungsgetriebenen Anderson-Lokalisierung recht eng [10].

Einfluss der Vielteilchenwechselwirkung

Optische Eigenschaften realistischer Halbleiter, und vor allem von Halbleiter-Nanostrukturen, die immer einen gewissen Grad von Unordnung aufweisen, sind aber stets durch die Vielteilchenwechselwirkung dominiert. Daher müssen die nichtlinearen optischen Eigenschaften ungeordneter, wechselwirkender Systeme studiert werden. Trotz einiger Einsichten in diese Problematik ist man jedoch von einem vollen Verständnis noch weit entfernt.

Zunächst müssen einige Folgerungen aus der Coulomb-Vielteilchenwechselwirkung für optische Anregungen in Halbleitern erwähnt werden. Während die linearen optischen Absorptionsspektren bei Vernachlässigung der Wechselwirkung ein Kontinuum mit einer unteren Grenzenergie, der optischen Absorptionskante, zeigen (Abb. 5), beobachtet man tatsächlich einige starke diskrete Linien unterhalb der Absorptionskante, die exzitonischen Resonanzen. Sie beruhen auf optisch induzierten gebundenen Zuständen zwischen dem angeregten Elektron und dem im Valenzband verbliebenen Loch, das wie ein Teilchen mit positiver Ladung

wirkt. Dieser Komplex erinnert damit an ein Wasserstoffatom, und die diskreten Resonanzen entsprechen den gebundenen Zuständen des Wasserstoffatoms, allerdings auf wesentlich kleinerer Energieskala. Exzitonen werden am elegantesten im Rahmen der um die Wechselwirkung und für den Halbleiter angepassten Bloch-Gleichungen beschrieben [11]. Bei der Analyse der Vierwellen-Mischexperimente spielen jedoch auch höhere Komplexe eine Rolle, wie die Biexzitonen, die wiederum Wasserstoffmolekülen entsprechen.

Beschränkt man sich auf kohärente optische Phänomene, so existiert glücklicherweise ein Approximationsschema, das uns sagt, welche Vielteilchenkorrelationen (Exzitonen, Biezitonen, höhere Komplexe) man richtig berücksichtigen muss, und wo man grobe Näherungen einführen darf [12]. Maßgebend ist dabei die Ordnung des optischen Phänomens in Potenzen des Lichtfeldes. Echos erfordern eine konsistente Beschreibung in dritter Ordnung ($\chi^{(3)}$ -Prozess) mit der Konsequenz, dass Korrelationen bis hin zu Zwei-Exziton-Anregungen richtig berücksichtigt werden müssen.

Das Problem der nichtlinearen Optik in ungeordneten Halbleitern ist durch zwei Längenskalen charakterisiert, dem exzitonischen Bohr-Radius a_B (der Radius des Orbits des gebundenen Elektron-Loch-Paares) und

Das Temperaturecho, ein mechanisches Analogon

Becker und Karplus [5] diskutieren theoretisch ein Echophänomen in großen biologischen Molekülen, das als rein mechanische Dynamik verstanden werden kann. Uns kam daher die Idee, auf dieser Grundlage ein Demonstrationsexperiment vorzuschlagen. Im Rahmen von zwei Staatsexamensarbeiten wurden theoretische Voruntersuchungen durchgeführt und eine Computeranimation erstellt. Inzwischen hat die Laborwerkstatt unseres Fachbereichs in Marburg mit der Konstruktion begonnen.

Das Temperaturecho funktioniert folgendermaßen: Es sei ein Ensemble von Pendeln gegeben, deren unabhängige Resonanzfrequenzen gemäß einer bestimmten Verteilungsfunktion ein inhomogenes Spektrum bilden.

Alle Pendel werden nun auf gleiche Amplitude nach oben ausgelenkt (blau in Abb. i) und zum Zeitpunkt $t = 0$ losgelassen. Sie schwingen nun, alle mit gleicher Amplitude, aber unterschiedlichen Frequenzen, sodass nach einer durch die reziproke Breite des Spektrums gegebenen Zeit alle Pendel wieder durcheinanderschwingen. Die kinetische Energie des Ensembles, die Hälfte der ursprünglich in allen Pendeln deponierten potentiellen Energie, kann als Temperatur

gedeutet werden und ist zeitlich bis auf Fluktuationen konstant (Abb. ii), sofern keinerlei Dämpfungsmechanismen existieren. Obwohl sich die Phasen der Pendel „randomisiert“ haben, bleibt die Information über die kohärente Anfangsbedingung in dem Ensemble gespeichert. Insofern besteht eine enge Analogie zu den genannten Echos.

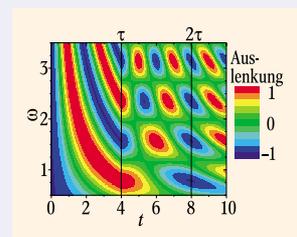


Abb. i: Zeitliches Verhalten verschiedener Pendel.

Zu einer späteren Zeit $t = \tau$ wird das Ensemble durch einen geeigneten Bremsmechanismus instantan angehalten. Dadurch verlieren alle Pendel ihre zu diesem Zeitpunkt vorliegende kinetische Energie.

Nun wird die Bremse wieder entfernt. Wir denken uns der Einfachheit halber den Bremsvorgang so realisiert, dass er keine Zeit beansprucht. Zur Zeit $t = \tau$ setzt

sich dann das Ensemble von Pendeln, jedes von seinem neuen Umkehrpunkt ausgehend, wieder in Bewegung. Die Temperatur (mittlere kinetische Energie) ist nun nur noch halb so groß wie ursprünglich. Sie bleibt allerdings *nicht* konstant. Zur Zeit $t = 2\tau$ wird ein Subensemble nämlich in einem seiner beiden Umkehrpunkte vorliegen. Die mittlere kine-

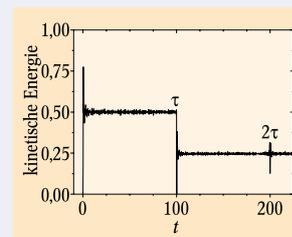


Abb. ii: Mittlere kinetische Energie des Ensembles von Pendeln als Funktion der Zeit. Start bei $t = 0$, Bremsen bei $t = \tau = 100$.

tische Energie, damit die Temperatur des Ensembles, sinkt zu diesem Zeitpunkt spontan (Abb. ii). Danach stellt sich wieder der Zustand mit willkürlichen Phasen ein, die mittlere kinetische Energie bleibt für alle weiteren Zeiten bis auf Fluktuationen konstant. Dies ist das Temperaturecho.

Man sieht leicht ein, dass die Pendel i , deren Perioden $T_i = 2\tau/n_i$ mit ganzem n_i be-

tragen, gerade diejenigen sind, denen der Bremsvorgang nicht geschadet hat. In Abbildung i sind es diejenigen, die zur Zeit $t = \tau$ dunkelrot und -blau gekennzeichnet sind. Diese schwingen nach dem Bremsen mit unverminderter Amplitude weiter. Natürlich sind sie zur Zeit $t = 2\tau$ dann alle wieder exakt in Phase und in ihrem oberen Umkehrpunkt. Alle anderen werden nach Maßgabe ihrer Frequenz mehr oder weniger Energie verlieren, umso weniger, je dichter sie zur Zeit des Bremsvorganges an ihrem Umkehrpunkt liegen. Diese sind dann auch wieder (fast) in Phase zur Echozeit. Solche Pendel, die sich bei $t = \tau$ im Nulldurchgang befanden (grün), haben ihre gesamte Energie verloren und werden nicht weiter-schwingen.

Ein Vergleich mit dem Zweiniveau-Photonenecho ist nur bedingt möglich. Gemeinsam ist die zweimalige zeitlich aufeinanderfolgende kohärente Präparation (hier Selektion durch Bremsen), das inhomogene Spektrum und die notwendige Abwesenheit phasenzerstörender Prozesse. Unterschiede bestehen darin, dass eine Phasenkonjugation hier nicht vorliegt und dass der Bremsvorgang dem System von Pendeln Energie entzieht.

der Längenskala L des Unordnungspotentials. Es kann kurzreichweitige Unordnung vorliegen, z.B. in Mischkristallen, oder langreichweitige, wie sie häufig in Quantenstrukturen mit rauen Grenzflächen zwischen den beteiligten Materialien gefunden wird. Weiterhin hat das Problem zwei Energieskalen, die exzitonische Bindungsenergie E_B (der Abstand der untersten diskreten exzitonischen Resonanz von der Kontinuumsabsorptionskante) und die Amplitude des Unordnungspotentials W (gegeben z. B. durch die Konstituenten des Mischkristalls oder die Stufenhöhe der rauen Grenzfläche). Maßgeblich sind die Parameter $\lambda = L/a_B$ und $\eta = W/E_B$.

Konzentrieren wir uns auf die energetisch tiefste und wegen ihrer großen Oszillatorstärke dominante Resonanz des Exzitons. Ist das Unordnungspotential langreichweitig, $\lambda > 1$, dann wird die Relativbewegung durch das Unordnungspotential kaum beeinflusst. Andererseits kann man bei beliebigem η annehmen, dass die Schwerpunktsbewegung des Exzitons durch viele Eigenzustände in der unordentlichen Potentiallandschaft charakterisiert ist. In einem geordneten Halbleiter lässt sich bei homogener Beleuchtung nur der Zustand der Schwerpunktsbewegung optisch anregen, der

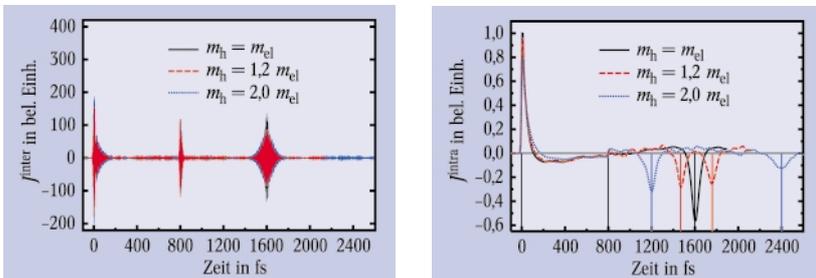


Abb. 7: Interband-Photonenecho (links) sowie vorseilendes und verzögertes Intra-bandecho (rechts) in einem Halbleiter für verschiedene Elektron-Loch-Massenverhältnisse.

zu (fast) verschwindendem Schwerpunktsimpuls gehört (auch dies ist wieder eine Konsequenz der Translationsasymmetrie). Die höherenergetischen Zustände erfüllen nicht die optische Impulsauswahlregel. Daher sieht man nur eine höchstens homogen verbreiterte exzitonische Linie als unterste Resonanz. Andererseits tragen in ungeordneten Halbleitern alle Eigenzustände der Schwerpunktsbewegung zu einer inhomogenen Linie endlicher Breite bei. Man erwartet dann Echos ohne unordnungsinduziertes Dephasieren. Diese Situation liegt bei den Echos in Abb. 3 vor.

Ist die Unordnung jedoch kleinskalig, $\lambda < 1$, so kann man annehmen, dass für genügend große Unordnungsamplitude, $\eta > 1$, die Zustände der Relativbewegung (im geordneten Fall $1s, 2s, 2p, \dots$) gemischt werden. Dies führt wiederum zu einem Szenario, wie man es von Quantenschwebungen kennt, mit destruktiver Interferenz, also unordnungsinduziertem Dephasieren. Die numerische Verifizierung dieser Erwartungen für exzitonische Anregungen scheidete bisher an den zu kleinen Systemen, die im Rahmen des $\chi^{(3)}$ -Limes noch numerisch behandelbar sind. Erforderlich ist es, Systeme mit einer Ortsauflösung, die klein gegen a_B ist und einer Länge groß gegen a_B zu betrachten.

Besitzt ein kurzreichweitiges Unordnungspotential eine kleine Amplitude, $\eta < 1$, so mittelt die Relativbewegung die Unordnungsfuktuationen aus [13], und unordnungsinduziertes Dephasieren ist nicht zu erwarten.

In einem Fall ist es jedoch gelungen, unordnungsinduziertes Dephasieren theoretisch zu demonstrieren und damit Experimente erfolgreich zu interpretieren [14]. Seit langem ist bekannt, dass in manchen Quantenfilmen die Dephasierungszeit davon abhängt, wie die beiden Anregungspulse relativ zueinander polarisiert sind. Mit zunehmender Unordnung, quantifiziert z. B. durch die Lumineszenzlinienbreite, beobachtet man eine sehr viel kürzere Phasenlebensdauer bei linear senkrecht zueinander polarisierten Anregungspulsen, verglichen mit dem Fall paralleler Polarisation. Die Ursache liegt in einem subtilen Zusammenwirken von Nichtlinearitäten auf Grund der Coulomb-Korrelationen und des Phasenraumfüllens in Anwesenheit der Unordnung. Hierdurch werden vor allem die biexzitonischen Anteile der nichtlinearen Antwort durch destruktive Interferenz beeinflusst. Die biexzitonischen Antworten sind vor allem bei senkrecht zueinander polarisierten Anregungspulsen dominant sichtbar, wodurch sich der schnellere zeitliche Abfall des Echos in dieser Situation erklärt.

Das Stromecho und kohärente Intradynamik

Als drittes Beispiel eines Echophänomens in der Festkörperphysik möchten wir das Stromecho besprechen, dessen Existenz wir theoretisch vorhergesagt haben [6]. Die Grundidee lehnt sich an die Situation des Photonenechos an. Es handelt sich aber nicht um ein optisches, sondern um ein Transportphänomen. In einem Metall werden die Elektronen sehr stark an Verunreinigungen (Unordnung) gestreut. Nur durch eine stationär angelegte Spannung zwingt man die Elektronen immer wieder in die richtige Richtung und es kann ein Gleichstrom fließen.

Wird jedoch ein sehr kurzer Spannungspuls zur Zeit $t=0$ angelegt, so bewirkt dieser anfänglich zwar eine ballistische Bewegung der Leitungselektronen in Richtung des äußeren Feldes. Anschließend kommt es auf der Zeitskala τ_{el} aber durch elastische Streuung an der Unordnung zu einem Zerfall des makroskopischen Stromes. Inelastische, dephasierende Streuung sei vernachlässigt, d. h., das Experiment hat auf Zeitskalen stattzufinden, die kürzer als die inelastische Streuzeit τ_{in} sind. Zur Zeit τ mit $\tau_{in} > \tau > \tau_{el}$ wird ein zweiter sehr kurzer Spannungspuls angelegt, der wiederum einen ballistischen, zeitlich abklingenden Strompuls zur Folge hat. Man kann zeigen [6], dass dann, zur Zeit $t=2\tau$, das System spontan mit einem makroskopischen Strompuls antwortet, der in umgekehrter Richtung fließt. Dies ist das Stromecho.

Die experimentelle Verifizierung dieses Stromechos erfordert es, auf Zeitskalen, die kleiner als τ_{in} sind, Ströme zu induzieren. Hierzu bietet sich unter anderem ein von der Gruppe um H. van Driel und J. Sipe in Toronto entwickeltes Verfahren an [15], das sich der sog. *Coherent Control* bedient. In einem Halbleiter lässt sich durch die simultane optische Anregung mit kurzen Pulsen zweier Frequenzen, die sich um den Faktor Zwei unterscheiden, ein messbarer Strom auf der Zeitskala des optischen Pulses induzieren. Diese Stromgeneration und die nachfolgende Dynamik der Anregungen lassen sich theoretisch modellieren [16]. Zusätzlich zu dem bekannten Interband-Photonenecho zur Zeit $t=2\tau$ erhält man jedoch zwei Echos im Intra-bandstrom²⁾, die bei verschiedenen Elektron- und Lochmassen dem Photonenecho voraus- und nacheilen

2) Der Intra-bandstrom (Bewegung eines Ladungsträgers in einem Band) ist mit einer räumlichen Ladungsver-schiebung verknüpft, die sich z. B. durch ein THz-Signal äußert. Der Inter-bandstrom ist mit der optischen Polarisation verbunden (Superpositionszustand) und bewirkt die Aussendung eines Lichtfeldes mit der Frequenz, die durch den Bandabstand gegeben ist.

(Abb. 7).³⁾ Dieses Verhalten lässt sich im Detail verstehen [16], es beruht auf einem Zusammenwirken von Phasenkonjugation der Interbandanregung und zeitlicher Entwicklung der Phasen der Intrabandanregungen. In Marburg versucht die Gruppe „Oberflächenphysik“ um Ulrich Höfer gegenwärtig, dieses Phänomen an Oberflächen zu beobachten.

Ausblick

Neben diesen Beispielen gibt es in Gläsern, also ungeordneten Festkörpern, auch so genannte Phononenechos. Man vermutet seit langem, dass atomare Zweiniveausysteme für deren Tieftemperaturanomalien verantwortlich sind. Mit Schallwellen lassen sich solche Zweiniveausysteme anregen. Es verwundert daher nicht, dass man auch hierbei Echophänomene beobachten kann, deren Physik ist jedoch ganz analog zu den bisher besprochenen Spin- und Photonenechos [4].

Die Anwendungen der Halbleiter-Heterostrukturen in der Optoelektronik und Informationstechnologie sowie grundlegende Fragen im Zusammenhang mit Unordnung und Vielteilchenwechselwirkung sind Themen intensiver internationaler Forschung. Als besonders faszinierendes Gebiet haben sich seit der Entwicklung von Lasersystemen, die ultrakurze Lichtpulse erzeugen können, die kohärenten Phänomene in Festkörpern etabliert. Man ist damit in der Lage, komplexe Wechselwirkungsmechanismen direkt auf derjenigen Zeitskala zu studieren, die durch diese Prozesse selbst definiert wird. Man denkt auch darüber nach, Halbleiter-Quantenpunkte im Rahmen der Quanteninformatik zu nutzen [17]. Hier spielt Kohärenz eine entscheidende Rolle.

Es war eines der Anliegen dieses Überblicks, zu zeigen, dass Unordnung einerseits zu eigenartigen Phänomenen Anlass gibt, wie Echos und unordnungsinduziertem Dephasieren, andererseits bricht sie Symmetrien, sodass Auswahlregeln und Erhaltungsgrößen bei der theoretischen Behandlung nicht mehr so hilfreich eingesetzt werden können, wie das in perfekt periodischen Festkörpern der Fall ist. In einem derartigen System die Coulomb-Wechselwirkung einigermaßen rigoros zu behandeln ist eine der großen Herausforderungen an die moderne Vielteilchentheorie.

Am Beispiel des Stromechos wird dies besonders deutlich. Die Vorhersage dieses neuartigen kohärenten Phänomens basiert derzeit noch auf einem Modell, das die Coulomb-Wechselwirkung nur rudimentär enthält. Natürlich wird der Experimentator möglichst starke Anregung einsetzen, um messbare Signale zu erhalten. Dies wirft die Frage nach der Relaxation der Kohärenz durch Coulomb-Streuung in stark ungeordneten Systemen auf. Damit kommen wir in Berührung mit einem anderen, vieluntersuchten Gebiet der Vielteilchenphysik ungeordneter Systeme, dem sog. Quanten-Coulomb-Glas. Damit bezeichnet man ein durch Unordnung elektronisch lokalisiertes, wechselwirkendes Elektronensystem, dessen thermodynamische und dynamische Eigenschaften theoretisch unverstanden sind.

Auch die Details des unordnungsinduzierten Dephasierens in exzitonischen Systemen ist noch nicht völlig geklärt. Dies ist jedoch erforderlich, wenn man Experimente interpretieren und kohärenzzerstörende Prozesse eindeutig identifizieren möchte.

Danksagung

Dank gebührt den experimentellen Arbeitsgruppen von Ernst Göbel und später Wolfgang Rühle an der

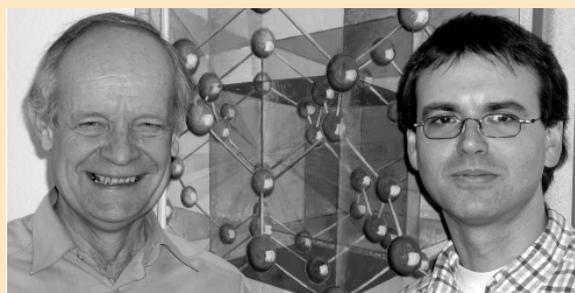
Philipps-Universität in Marburg sowie Jürgen Kuhl und seiner Gruppe am MPI für Festkörperforschung in Stuttgart, die maßgeblich an der Entwicklung der Experimente an Halbleitern beteiligt waren und uns zu theoretischen Arbeiten motiviert haben. Zu danken haben wir auch Stephan Koch und unseren ehemaligen und gegenwärtigen Studenten im Bereich der Theorie.

Literatur

- [1] E. L. Hahn, Phys. Rev. **80**, 580 (1950).
- [2] R. J. Blume, Phys. Rev. **109**, 1867 (1958).
- [3] N. A. Kurnit, I. D. Abella, S. R. Hartmann, Phys. Rev. Lett. **13**, 657 (1964); I. D. Abella, N. A. Kurnit, S. R. Hartmann, Phys. Rev. **144**, 391 (1966).
- [4] J. E. Graebner, B. Golding, Phys. Rev. **B 19**, 964 (1979).
- [5] O. M. Becker, M. Karplus, Phys. Rev. Lett. **70**, 3514 (1993).
- [6] W. Niggemeier et al., Phys. Rev. Lett. **71**, 770 (1993).
- [7] J. D. Macomber, „The Dynamics of Spectroscopic Transitions“, Wiley (1976).
- [8] G. Noll et al., Phys. Rev. Lett. **64**, 792 (1990).
- [9] S.T. Cundiff et al., Phys. Rev. Lett. **73**, 1178 (1994).
- [10] Ch. Lonsky, P. Thomas, A. Weller, Phys. Rev. Lett. **63**, 652 (1989).
- [11] H. Haug und S.W. Koch, Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors, 3. Aufl., World Scientific, Singapore (1994); W. Schäfer und M. Wegener, Semiconductor Optics and Transport Phenomena, Springer, Berlin (2002).
- [12] V.M. Axt, A. Stahl, Z. Phys. B **93**, 195 (1994); M. Lindberg et al., Phys. Rev. **B 50**, 18060 (1994).
- [13] S. D. Baranovskii, A. L. Efros, Fiz. Tekh. Poluprovodh. **12**, 2233 (1978) [Sov. Phys. Semicond. **12**, 1328 (1978)].
- [14] S. Weiser et al., Phys. Rev. **B 61**, 13088 (2000).
- [15] R. Atanasov et al, Phys. Rev. Lett. **76**, 1703 (1996); A. Haché et al., Phys. Rev. Lett. **78**, 306 (1997); A. Haché et al., IEEE J. Quantum Electron., **34**, 1144 (1998).
- [16] C. Schlichenmaier et al., Phys. Rev. **B 65**, 085306 (2002).
- [17] S. Strauf, P. Michler, Physik Journal, Dezember 2002, S. 28.

³⁾ In fast allen Halbleitern sind die Krümmungen von Valenz- und Leitungsband verschieden. Dies ist äquivalent zu verschiedenen effektiven Elektron- und Lochmassen.

Die Autoren



Peter Thomas (links) promovierte 1969 in Marburg und ist dort seit 1973 Professor. Sein Interesse, dem er auch während seiner Forschungsaufenthalte in Ungarn nachging, gilt neben der Physik und Biologie der Insekten den elektronischen Prozessen in ungeordneten Festkörpern. Hier fesseln ihn in letzter Zeit vor allem quantendynamische kohärente Phänomene, die sich durch nichtlineare optische Experimente nachweisen lassen. **Torsten Meier** studierte Physik in Marburg. Nach seiner Promotion 1994 und einem Postdoc-Aufenthalt an der University of Rochester in den USA kehrte er nach Marburg zurück, wo er 2000 habilitierte und zur Zeit als DFG-Heisenberg-Stipendiat forscht und lehrt. In seiner Freizeit läuft er gerne lange Strecken bis hin zum Marathon.