

**Ein Material für ultraschnelle
Optoelektronik:
Relaxationsdynamik optisch generierter
Ladungsträger in
nichtstöchiometrischem Galliumarsenid**

Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften

vorgelegt beim Fachbereich Physik
der Johann Wolfgang Goethe–Universität
in Frankfurt am Main

von
Gregor Segsneider
aus Rheydt

Frankfurt, 2002
(DF1)

vom Fachbereich der
Johann Wolfgang Goethe–Universität als Dissertation angenommen.

Dekan:

Gutachter:

Datum der Disputation:

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. Grundlagen	5
2.1. Elektrische und optische Eigenschaften von GaAs	6
2.1.1. Bandstruktur und lineare Absorption	6
2.1.2. Optische Nichtlinearitäten	10
2.1.3. Relaxation optisch angeregter Ladungsträger in GaAs	12
2.2. Low Temperature Grown GaAs	14
2.2.1. Wachstum bei niedrigen Temperaturen	14
2.2.2. Nicht ausgeheiltes LTG GaAs	15
2.2.3. Elektrische Eigenschaften von nicht ausgeheiltem LTG GaAs	16
2.2.4. Temperung von LTG GaAs	18
2.2.5. Ausgeheiltes LTG GaAs	19
2.2.6. Elektrische Eigenschaften von ausgeheiltem LTG GaAs	21
2.2.7. Elektrooptische Eigenschaften von LTG GaAs	23
2.3. Anwendungen von LTG GaAs	26
2.3.1. Design einer Patchantenne	28
2.4. Alternative Materialien	31
3. Experimentelle Techniken	33
3.1. Die Lasersysteme	33
3.2. Anrege/Abfrage-Spektroskopie	38
3.3. Feldsensitive zeitaufgelöste Spektroskopie	41
3.4. THz-Spektroskopie beweglicher Ladungsträger	44
4. Materialcharakterisierung	47
4.1. Einstellung der Herstellungsparameter	48
4.2. Optimierung der Wafer	53
4.3. TEM-Charakterisierung	55
4.4. Optischer Nachweis der kristallinen Eigenschaft	58

4.5. Dauerstrich–Charakterisierung	60
5. Ladungsträgerdynamik in LTG GaAs	65
5.1. Relaxationsdynamik freier Ladungsträger	66
5.1.1. Ergebnisse	67
5.2. Dynamik unterhalb der Bandlücke	75
5.2.1. Ergebnisse und Diskussion	77
5.3. Ladungsträgerrelaxationsdynamik in tiefen Störstellen	86
5.3.1. Ergebnisse und Diskussion	91
6. Sättigungseffekte in LTG GaAs	107
6.1. THz–Spektroskopie an LTG GaAs	107
6.2. Ergebnisse	111
6.2.1. Der Fall niedriger Anregungsdichte	116
6.2.2. Der Fall hoher Anregungsdichte	119
6.3. Diskussion	129
7. Resumée und Ausblick	131
A. Probenpräparation und -design	135
B. Die Transfer–Matrix–Methode	137
Literaturverzeichnis	143

1. Einleitung

Bei der Herstellung von Halbleitermaterialien, die für den Einsatz in photonischen und optoelektronischen Bauelementen geeignet sind, konnten in den letzten 10 bis 20 Jahren Fortschritte erzielt werden, die so bedeutende Entwicklungen wie beispielsweise den Quantenkaskadenlaser ermöglichten. Für dieses Bauelement ist das Wachstum von Halbleiterheterostrukturen mit einer Genauigkeit von einer Monolage notwendig, durch die hochreine Kristallschichten erzeugt werden können. Um den Stromtransport über den aktiven Bereich des Quantenkaskadenlasers zu gewährleisten, ist ferner eine gezielte Dotierung mit Fremdatomen erforderlich. Die Konstruktion dieses Bauelements für den Wellenlängenbereich von 10 bis 100 μm ist durch ein detailliertes Verständnis quantenmechanischer Relaxations- und Transportprozesse gelungen. In der Herstellung kann die zu erbringende Präzision nur durch die Molekularstrahl-Epitaxie (engl.: *Molecular Beam Epitaxy*, MBE¹) erreicht werden. Sie verhindert effektiv den Einbau von intrinsischen Gitterstörungen.

Doch gerade mit dieser neuen MBE-Technologie ist in den letzten ca. 13 Jahren eine Materialklasse entdeckt worden, deren Relevanz für elektronische oder optoelektronische Bauelemente gerade aus einer hohen Dichte intrinsischer Störstellen herrührt. Prominentestes und wichtigstes Beispiel ist das bei niedrigen Temperaturen gewachsene Galliumarsenid (GaAs), das im weiteren mit dem gebräuchlichen Ausdruck LTG GaAs (Low Temperature Grown GaAs) bezeichnet wird. Im Gegensatz zur Herstellung des III-V-Verbindungshalbleiters GaAs in seiner hochreinen Form, die bei Aufdampftemperaturen von 600 °C stattfindet, wird LTG GaAs bei deutlich reduzierten Temperaturen von 180 °C bis 400 °C auf das Substrat aufgedampft. Dies hat einen massiven Einbau von intrinsischen Störstellen und eine daraus resultierende nichtstöchiometrische Zusammensetzung zur Folge. Die im Jahre 1988 von Smith et al. [1] gemachte Entdeckung, daß sich sogenannte Back-gating-Effekte in Feldeffekttransistoren (FET) mit der Verwendung von LTG GaAs als Basismaterial vollständig eliminieren lassen, hat dieses Material in den Mittelpunkt des Interesses von vielen Forschergruppen gerückt.

¹ Sofern möglich, werden in dieser Arbeit deutsche Fachbegriffe verwendet. Die üblicherweise gebrauchten englischen Begriffe werden erwähnt sowie gebräuchliche Abkürzungen eingeführt.

Es ist auf den ersten Blick erstaunlich, daß die gleiche Technologie zur Herstellung hochreiner Halbleiterschichten auch zum Wachstum des defektreichen LTG GaAs benötigt wird. Dies läßt sich mit der notwendigen Kontrolle, die zur Herstellung hochwertiger GaAs-Schichten unabdingbar ist, erklären: Trotz Störstellendichten, die über ein Prozent aller Gitterplätze ausmachen können, sind die MBE-gewachsenen LTG GaAs-Schichten monokristallin. Es liegt also die Zinkblendestruktur des direkten Halbleiters GaAs vor. Dies ist zum einen für die optoelektronischen Eigenschaften des Materials und zum anderen aus technologischer Sicht wesentlich, da somit die Möglichkeit der Verwendung des Materials in komplexen Bauelemente aus einkristallinen Halbleitern gewährleistet ist.

Im Gegensatz zum anfangs erwähnten Beispiel des auf hochreinen Halbleiterstrukturen aufbauenden Quantenkaskadenlasers – dessen physikalische Grundprinzipien gut verstanden sind – beruhen Anwendungen, die auf bei niedrigen Temperaturen gewachsenen Halbleitern basieren, eher auf experimentellen Erfahrungen als auf einem genauen Verständnis der zugrundeliegenden Physik. Dies hat sich seit 1988 nur teilweise geändert.

Schon kurz nach der ersten Anwendung von LTG GaAs in FETs wurde neben der für die Eliminierung der Back-gating-Effekte wichtigen elektrischen Eigenschaft der hohen Durchbruchfeldstärke eine damit eng verknüpfte Eigenschaft entdeckt: Optisch induzierte freie Ladungsträger relaxieren (bei geeigneten Herstellungsparametern) auf Pikosekunden-Zeitskala. Die Kombination von hohem spezifischen Widerstand – der jedoch erst in einem dem Wachstum folgenden Tempersschritt erreicht wird – und schneller Ladungsträgerrelaxation prädestiniert das Material für den Einsatz in ultraschnellen optoelektronischen Bauelementen mit hohen Wiederholraten. In einem einfachen Modell kann ein optoelektronisches Bauelement folgendermaßen realisiert werden: Zwischen zwei auf das Halbleitermaterial aufgebrachte Metallkontakte wird eine Spannung angelegt. Der hohe Widerstand verhindert einen nennenswerten Stromfluß. Das Bauelement läßt sich mit einem kurzen Laserpuls schalten. Dieser induziert einen Strom im Halbleitermaterial, dessen Dauer in erster Näherung entweder durch den Kontaktabstand über die Driftzeit der Ladungsträger oder aber durch die Lebensdauer der freien Ladungsträger gegeben ist. Wollte man mit hochreinem MBE-gewachsenen GaAs Schaltzeiten unterhalb einer Pikosekunde erzielen, so wären Elektrodenabstände von wenigen zehn Nanometern erforderlich, da die Lebensdauer freier Ladungsträger mit Nanosekunden für die Schaltzeitbegrenzung nicht in Frage kommt. Dies wird bei LTG GaAs durch den Ladungsträgereinfang erreicht. Es ist unbestritten, daß die kurze Lebensdauer freier Ladungsträger durch die große Anzahl intrinsischer Störstellen zustande kommt. Allerdings ist bis heute nicht geklärt, ob Punktdefekte oder aber Arsenausscheidungen, die sich bei dem Tempersschritt bilden, für die optoelektronischen Eigenschaften verantwortlich zu machen sind. Um so erstaunlicher ist die Tatsache, daß sich von den seit 1988 zu diesem Material gemachten Veröffentlichungen nur schätzungsweise 5 % mit der Relaxationsdy-

namik optisch generierter Ladungsträger beschäftigt.

Schon das einfache Modell des optoelektronischen Schalters wirft eine Reihe von Fragen auf, die die eingehendere Untersuchung der ultraschnellen Ladungsträgerrelaxation motivieren. So läßt sich die Auswahl eines bestimmten LTG GaAs-Materials in folgender Frage formulieren:

- Welche Herstellungsparameter eignen sich im besonderen Maße für ultraschnelle Relaxation freier Ladungsträger und damit für schnelle optoelektronische Bauelemente ?

Diese Frage beinhaltet ein wesentliches Problem, das die gesamte Literatur zu LTG GaAs durchzieht. Aufgrund des großen Parameterraumes, der zur Herstellung des Materials zur Verfügung steht, sind allgemeingültige Aussagen nur schwer zu machen. Zudem besteht eine wesentliche Aufgabe darin, das Wachstum in der MBE-Anlage zu optimieren. Die gestellte Frage wird in Kapitel 4 behandelt. Es werden die Herstellungsparameter diskutiert und festgelegt. Ferner wird eine strukturelle sowie grundlegende optische Charakterisierung des für schnelle optoelektronische Bauelemente optimierten Materials durchgeführt. Dabei läßt sich die vorhandene Störstellendichte in dem verwendeten LTG GaAs abschätzen.

Die Untersuchung der Ladungsträgerdynamik nach optischer Anregung ist in bisherigen Veröffentlichungen fast ausschließlich auf die Bestimmung der Einfangzeit freier Ladungsträger begrenzt. Hierbei ist zu beobachten, daß zum größten Teil unkritisch mit den verwendeten experimentellen Methoden umgegangen wird. Bei detaillierten zeitaufgelösten Untersuchungen, die in Kapitel 5 diskutiert werden, zeigt sich ein komplexeres Bild der Relaxationsdynamik als es bisherige Veröffentlichungen vermuten lassen. Gezielt wird sowohl die Relaxationsdynamik freier Elektronen als auch die Dynamik von Ladungsträger reduzierter Mobilität in bandlückennahen Zuständen bestimmt. Durch die Kombination verschiedener Lasersysteme läßt sich zudem die Dynamik der in tiefen Störstellen eingefangenen Ladungsträger weiterverfolgen. Hierdurch kann eine weitere wesentliche Frage diskutiert werden:

- Auf welcher Zeitskala rekombinieren in tiefen Störstellen eingefangene Ladungsträger in LTG GaAs ?

Dies ist eine Kernfrage, die über die Tauglichkeit des Materials für die ultraschnelle Optoelektronik entscheidet. Wieder kann man sich anhand des einfachen Modellschalters verdeutlichen, daß eine erheblich längere Rekombinationszeit eingefangener Ladungsträger den Vorteil des schnellen Einfangs freier Ladungsträger stark reduziert: Eingefangene Ladungsträger schirmen das extern angelegte Feld effektiv ab. Somit sind zumindest höchste Schaltraten eines solchen optoelektronischen Bauelements durch eine eventuell langsame endgültige Ladungsträgerrekombination beschränkt.

Weiteren Einblick in die Ladungsträgerdynamik bietet Kapitel 6, in dem noch einmal auf die freie Ladungsträgerrelaxation eingegangen wird. Dies geschieht nun unter dem Aspekt hoher freier Ladungsträgerdichten, wobei u.a. folgende Frage beleuchtet wird:

- Inwieweit reduzieren Sättigungseffekte in LTG GaAs die Tauglichkeit des Materials für die ultraschnelle Optoelektronik?

Über das in der Literatur kaum untersuchte Sättigungsverhalten von LTG GaAs können sowohl Aussagen über den Ladungsträgerereinfang als auch über die endgültige Rekombination gemacht werden. Experimentell bietet dabei die Verwendung von THz-Pulsen als Testpulse die Möglichkeit, selektiv freie Ladungsträger zu beobachten. Beim Vergleich von LTG GaAs-Materialien mit verschiedenen Herstellungsparametern zeigen sich deutliche Unterschiede in der transienten Mobilität der Ladungsträger. Die Verlangsamung der Dynamik bei extrem hohen Ladungsträgerdichten ist nur teilweise konform mit den im vorherigen Kapitel entwickelten Vorstellungen. Es wird eine sehr komplexe Dynamik erkennbar, die nicht in bisher üblichen einfachen Relaxationsmodellen beschrieben werden kann.

Mit einer Zusammenfassung der Ergebnisse und einem Ausblick beschließt Kapitel 7 die vorliegende Arbeit.

Für das Verständnis der in dieser Arbeit durchgeführten Experimente und ihrer Interpretation ist ein Überblick über die elektrischen und optischen sowie den strukturellen Eigenschaften von GaAs im Allgemeinen und von LTG GaAs im Besonderen erforderlich. Dieser erfolgt in Kapitel 2. Hierbei wird die Komplexität von defektreichen III-V-Materialien deutlich. Den Abschluß dieses Kapitels bilden ein Überblick über bereits verwirklichte Anwendungen mit LTG GaAs und eine kurze Beschreibung einer im Rahmen dieser Arbeit entwickelten schmalbandigen THz-Patchantenne auf Basis von LTG GaAs.

Die Untersuchung ultraschneller elektronischer Prozesse, die sich auf der Femtosekundskaala (10^{-15} s) abspielen, kann nicht über elektronische Meßverfahren erfolgen. Die verwendeten optischen Methoden und die Möglichkeiten der zur Verfügung stehenden Laser werden in Kapitel 3 näher erläutert. Der synchrone Einsatz von Laseroszillatoren mit unterschiedlicher Lichtfrequenz erweist sich für die hier gestellten Fragen als besonders zweckmäßig.

2. Grundlagen

Optische und elektrische Eigenschaften hochreinen Galliumarsenids sind sehr genau untersucht. Allein die genaue Kenntnis der Bandstruktur erlaubt schon das Verständnis linearer Licht-Materie-Wechselwirkungen. Auch Mobilitäten freier Ladungsträger und damit Leitfähigkeiten werden durch die Bandstruktur bestimmt. Die komplexe Dynamik bei sich im hohen Grade nicht im Gleichgewicht befindender Ladungsträger, wie sie nach einer Anregung mit einem kurzen optischen Laserpuls auftritt, wird durch Streuprozesse verschiedener Arten bestimmt. Teilweise sind Zeitskalentrennungen schwierig, jedoch lassen sich z.B. Phononstreuungsprozesse von Ladungsträger-Ladungsträger-Streuungen eindeutig separieren und auch theoretisch beschreiben. Dies gelingt bei GaAs, das bei reduzierten Temperaturen hergestellt wird, nicht. Es treten grundlegend andere Effekte in der Kurzzeitdynamik auf, die nicht oder nur geringfügig von der (gestörten) Bandstruktur des Materials bestimmt werden. Auf den relevanten Pikosekunden-Zeitskalen dominieren Prozesse, bei denen Materialdefekte involviert sind. Dies macht den Unterschied zu hochreinem GaAs aus.

Im ersten Abschnitt 2.1 dieses Kapitels werden zuerst wesentliche optische und elektrische Eigenschaften von hochreinem GaAs erläutert. Dazu wird im besonderen auf die Bandstruktur von GaAs eingegangen. Elektronische und optisch nichtlineare Effekte, die sich nur in Kurzzeit-Experimenten beobachten lassen, werden beschrieben und Grundbegriffe der Halbleiterspektroskopie eingeführt. Der nächste Abschnitt 2.2 gibt einen kurzen Überblick über bei niedrigen Temperaturen gewachsenes GaAs. Auf die Tatsache, daß es sich hier um eine ganze Materialklasse handelt, wird dabei besonderen Wert gelegt. Die einzelnen Herstellungsparameter, die jeder für sich die Eigenschaft dieses speziellen Materials beeinflussen können, werden in einzelnen Unterabschnitten beschrieben. Auf die Bedeutung der einzelnen Parameter für die besonderen Eigenschaften von LTG GaAs wird dabei parallel eingegangen. Dies umfaßt die Beleuchtung der prinzipiellen Schwierigkeiten beim Herstellungsprozeß. Im Abschnitt 2.3, das den Einsatz des Materials für optoelektronische Anwendungen beschreibt, wird u.a. eine im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Patchantenne vorgestellt. Ein Überblick über alternative Materialien beschließt dieses Kapitel.

2.1. Elektrische und optische Eigenschaften von GaAs

Das Interesse am Einsatz von III-V Verbindungshalbleitern und dabei speziell von GaAs als Bausteine für schnelle elektrische und optoelektronische Schalter beruht auf den gegenüber Silizium überlegenen Eigenschaften wie hohe Mobilität und hohe Absorption von Licht oberhalb der Bandlücke. Für die Großproduktion ungeeignet – da zu kostenintensiv – haben sich für hochreines GaAs, das mittels der Molekularstrahl-Epitaxie (MBE) (engl: *Molecular Beam Epitaxy*) hergestellt wird, Spezialanwendungen aufgrund der genannten Eigenschaften ergeben. Auf der anderen Seite ermöglicht es der Fortschritt beim MBE-Wachstum mit der Herstellung hochreiner Materialien Fragestellungen der Grundlagenphysik zu untersuchen.

2.1.1. Bandstruktur und lineare Absorption

Mobilität und Absorption werden grundlegend von der Bandstruktur $E(\mathbf{k})$ im reziproken Kristallgitter bestimmt. Die Energiedispersion $E(\mathbf{k})$ als Resultat der Periodizität des Kristalls spiegelt dessen Symmetrieeigenschaften wider. Die elektronischen Eigenfunktionen zu den Eigenwerten E sind nach dem Bloch'schen Theorem Produkte aus Bloch-Funktionen, die die Translationssymmetrie des Gitters besitzen, und aus einhüllenden ebenen Wellen [2]. Abbildung 2.1 zeigt schematisch die Bandstruktur von GaAs entlang der Achsen hoher Symmetrie. Bei $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ sind zwei Valenzbänder entartet. Aufgrund der unterschiedlichen Bandkrümmungen ist diese Entartung für $\mathbf{k} \neq \mathbf{0}$ aufgehoben. Für die Beweglichkeit μ von Ladungsträgern hat die Bandkrümmung eine entscheidende Bedeutung. In der Drude-Theorie freier Ladungsträger ist μ proportional zur Ladungsträgermasse [3]. Bei freien Ladungsträgern in einem Band des Festkörpers ist für diese Masse die *effektive Masse* m^* anzusetzen. Sie ist definiert als

$$m^* = \hbar^2 \left(\frac{\partial^2 E}{\partial k^2} \right)^{-1} \quad (2.1)$$

und somit umgekehrt proportional zur Krümmung des betrachteten Bandes. Die Berechtigung der Bezeichnung „freie Ladungsträger“ ergibt sich aus der parabolischen Näherung der Bandstruktur nahe der Extrema der Bänder am Γ -Punkt:

$$E(\mathbf{k}) = E_0 + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m^*}. \quad (2.2)$$

Die Ladungsträger verhalten sich demnach wie freie Teilchen mit der Masse m^* . Die beiden oberen Valenzbänder werden auch als Schwerloch- (hh) bzw. Leichtlochband (lh) (engl.: *heavy hole*, *light hole*) bezeichnet, da sie gemäß ihrer unterschiedlichen negativen Bandkrümmungen entsprechende (positive) Massen m^* besitzen, die positiv geladenen Löchern zugeordnet werden können. Es existiert ferner ein abgespaltenes Band (SO)

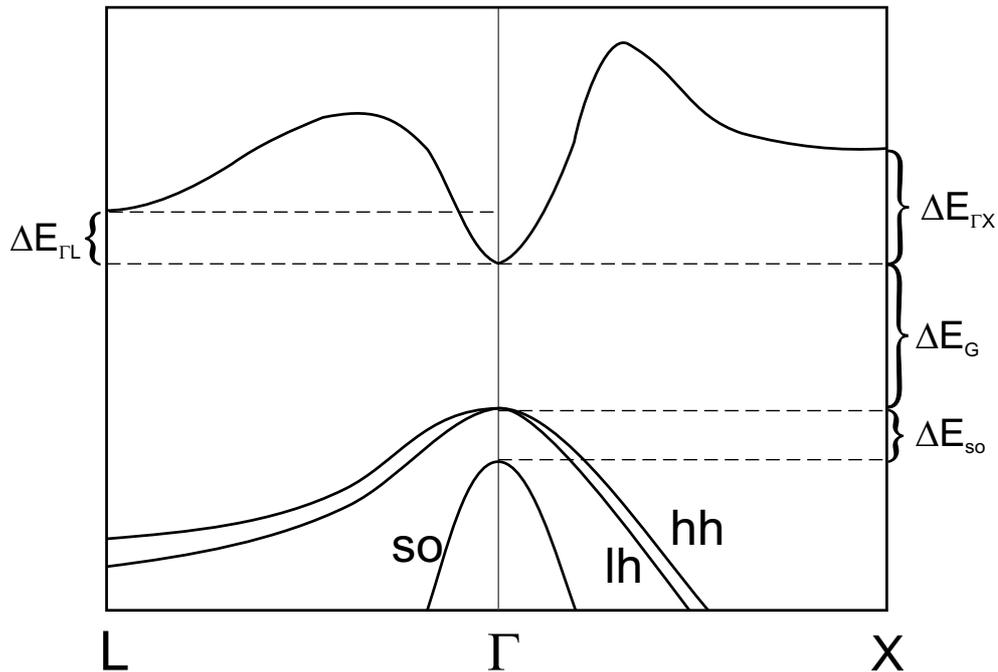


Abbildung 2.1.: Schematische Bandstruktur von GaAs entlang Richtungen hoher Symmetrie (nach [4]). Die eingezeichneten Energieabstände sind in Tabelle 2.1.1 aufgelistet.

(engl.: *split-off*), dessen Maximum 0.34 eV unterhalb von Schwer- und Leichtlochband liegt. Am Vergleich der in Tabelle 2.1.1 aufgelisteten Massen erkennt man, daß die Beweglichkeit wesentlich durch Elektronen im Leitungsband um $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ bestimmt wird.

Jeder Halbleiter zeichnen sich im intrinsischen Fall durch ein mit Elektronen besetztes Valenzband und ein unbesetztes Leitungsband aus. Hieraus resultiert u.a. ihr hohe spezifische Widerstand. Bei typischen Bandlücken auf der Energieskala von Elektronenvolt (eV) können thermische Besetzungen bei Raumtemperatur vernachlässigt werden, da für $T = 300$ Kelvin die thermische Energie ca. $k_B T = 25$ meV beträgt und so zwei Größenordnungen kleiner als die jeweilige Bandlücke ist. Hierbei bezeichnet k_B die Boltzmann-Konstante. Für GaAs beträgt die Bandlücke bei Raumtemperatur $E_G = 1.423$ eV. Die lineare Absorption $\alpha(\hbar\omega)$ einer elektromagnetischen Welle der Photonenenergie $\hbar\omega \equiv E$ ist demnach allein durch Interbandübergänge, d.h. optische Übergänge von den Valenzbändern zum Leitungsband, bestimmt. Die sich aus dem Einteilchenbild ergebene Zustandsdichten $D_i(E)$ der Bänder i eines dreidimensionalen Kristalls liefern einen wurzelförmigen Beitrag zur Absorption. Die Energiedispersion geht in die Zustandsdichten

Fundamentale Bandlücke E_G (300 K)	1.423 eV
Fundamentale Bandlücke E_G (10 K)	1.521 eV
Energetischer Abstand Γ -L-Tal $\Delta E_{\Gamma L}$	0.29 eV
Energetischer Abstand Γ -X-Tal $\Delta E_{\Gamma X}$	0.52 eV
Energetischer Abstand SO-HH ΔE_{SO}	0.34 eV
effektive Masse m_{Γ}^*	0.063
effektive Masse m_L^*	0.52
effektive Masse m_X^*	0.82
Schwerloch-Masse	0.45
Leichtloch-Masse	0.076
Split-Off-Masse	0.145
Exzitonradius	15 nm
Spezifische Leitfähigkeit	$10^{-7} \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$
Beweglichkeit μ	$8000 \text{ cm}^2 (\text{Vs})^{-1}$

Tabelle 2.1.: Wichtige physikalische Größen von GaAs nach [5, 6]. Die effektiven Massen sind in Einheiten von Elektronenmassen angegeben.

wieder über die effektiven Massen ein:

$$D_i(E) = \frac{m_i^{*\frac{3}{2}}}{2\pi^2 \hbar^3} \sqrt{E - E_G} \quad (2.3)$$

Für die Absorption folgt aus der Abhängigkeit der jeweiligen Zustandsdichte von der effektiven Masse, daß dem Leichtlochband eine wesentlich geringere Bedeutung zukommt als dem Schwerlochband. Für das abgespaltene SO-Band gilt die gleiche Argumentation mit der zusätzlichen Einschränkung, daß SO-Leitungsbandübergänge erst für Photonenenergien oberhalb 1.76 eV auftreten können. Die lineare Absorption ist proportional zur kombinierten Zustandsdichte der Bänder und für Energien oberhalb E_G ergibt sich aus dem Einteilchenbild die in Abbildung 2.2 gestrichelt dargestellte Abhängigkeit:

$$\alpha(E) \propto \alpha_0 \sqrt{E - E_G}. \quad (2.4)$$

Es ist charakteristisch, daß bei einem optischen Übergang neben der Erzeugung eines Elektrons im Leitungsband ein Loch im Valenzband erzeugt wird. Dies folgt direkt aus der Ladungserhaltung. So ergibt sich eine starke Modifikation von $\alpha(E)$ durch Mehrteilchenbeiträge aufgrund der Coulomb-Wechselwirkung: Unterhalb des Absorptionskontinuums treten gebundene Elektron-Loch-Zustände – sogenannten Exzitonen – auf, deren Wellenfunktionen Lösungen des quantenmechanischen Wasserstoffproblems sind. In GaAs beträgt die Bindungsenergie des Exzitons im Grundzustand 4 meV. Auch

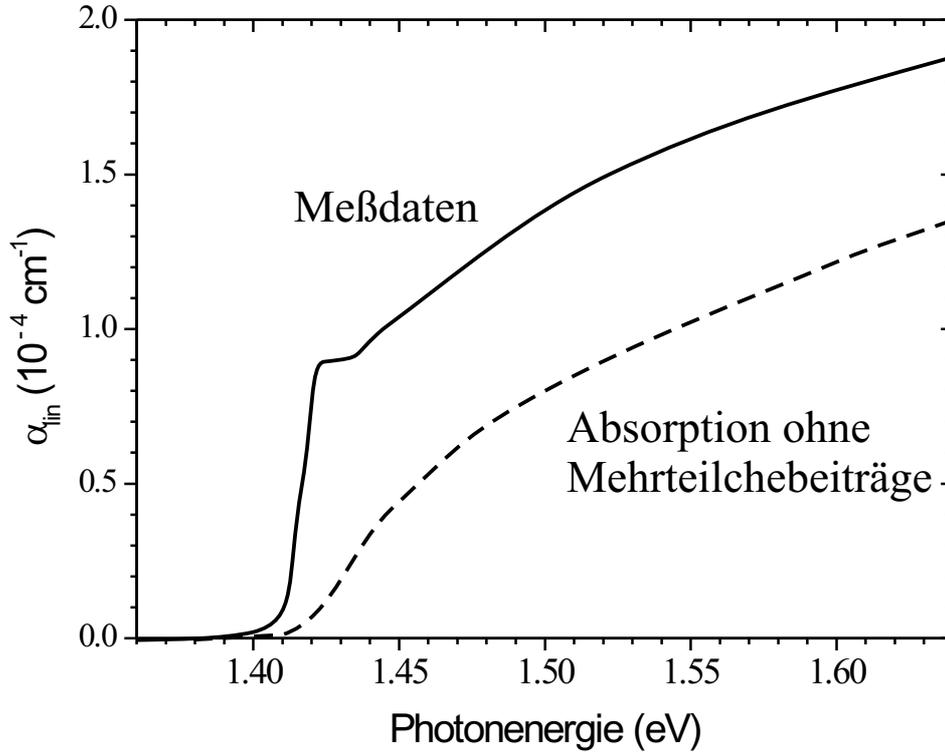


Abbildung 2.2.: Vergleich der linearen Absorption in GaAs gerechnet im Einteilchenbild mit einer Messung, die den starken Einfluß von Vielteilcheneffekten auf die lineare Absorption zeigt.

die Kontinuumslösungen der Exzitonen tragen stark zur linearen Absorption bei. Unter Berücksichtigung der Linienbreite der gebundenen Exzitonen und deren Kontinuumszustände kann die lineare Absorption in GaAs gut beschrieben werden und entspricht dem Verlauf der Messung in Abbildung 2.2. Gleichung (2.4) muß dabei dahingehend modifiziert werden, daß ein energieabhängiger Faktor der erwähnten Streuzustände aufgrund der Coulomb–Wechselwirkung hinzugefügt wird:

$$\alpha(E) = \alpha_0 \text{CEF}(E) \sqrt{E - E_G} [1 - f_h(E) - f_e(E)]. \quad (2.5)$$

Der Faktor $\text{CEF}(E)$ wird als Coulomb–Enhancement–Factor bezeichnet. Der in eckigen Klammern stehende Ausdruck ist ein Besetzungsfaktor, der Phasenraumfülleffekte aufgrund des Pauliprinzips beschreibt. Er kann für niedrige Intensitäten vernachlässigt werden. Die Größen f_h und f_e sind die Loch– bzw. Elektron–Besetzungsfunktionen.

2.1.2. Optische Nichtlinearitäten

Änderungen der optischen Eigenschaften eines direkten Halbleiters resultieren vor allem aus der Generation freier Ladungsträger. Schon Gleichung (2.5) enthält über den Besetzungsfaktor eine solche optische Nichtlinearität. Refraktive und absorptive Nichtlinearitäten, d.h. Änderungen im Brechungsindex (Δn) und im Absorptionskoeffizienten ($\Delta\alpha$) sind nicht unabhängig voneinander, sondern durch eine Kramers–Kronig–Relation miteinander verknüpft [7]. Somit lassen sich optische Nichtlinearitäten auf Absorptionsänderungen zurückführen.

Im Folgenden sollen drei ausgewählte Prozesse betrachtet werden, die solche Absorptionsänderungen verursachen können. Die einzelnen Prozesse sind in Abbildung 2.3 verdeutlicht und werden bezeichnet als:

1. Interbandabsorption,
2. Freie–Ladungsträger–Absorption,
3. Zwei–Photonen–Absorption.

Interbandabsorption Bei einer optischen Anregung oberhalb der Bandlücke werden freie Elektronen und freie Löcher erzeugt. Bei genügend hoher Dichte der generierten Ladungsträger ändert sich die Absorptionswahrscheinlichkeit aufgrund des Besetzungsfaktors in Gleichung (2.5). Dieser im Fermi-Charakter der Ladungsträger begründete Effekt wird auch als Bandfüllen (engl.: *band filling*) bezeichnet. Er führt zu einer Verringerung der Absorption, bei optisch dünnen Filmen also zu einer Erhöhung der Transmission. Dieser Vorgang wird auch als Ausbleichen eines optischen Überganges bezeichnet. So können im Prinzip durch die Energieabhängigkeit der Ladungsträger-induzierten Absorptionsänderungen in zeitaufgelösten Absorptionsmessungen Informationen über die Ladungsträgerdynamik nach optischer Anregung erhalten werden.

Hohe Ladungsträgerdichten führen über die Coulomb–Wechselwirkung zu weiteren sehr komplexen Einflüssen auf die optischen Eigenschaften eines Halbleiters. So werden beispielsweise ab einer kritischen Dichte (Mott–Dichte) keine gebundenen Exzitonen mehr auftreten können, da diese aufgrund ihrer Polarisierbarkeit dissoziieren [8]. Bei der geringen Bindungsenergie von Exzitonen in GaAs und somit einem entsprechend großen Radius ist die Mott–Dichte mit ca. $3 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$ klein. Dieser Effekt führt wie beim Bandfüllen zu einem Ausbleichen. Ein entgegengesetzter Effekt resultiert aus der Verringerung der Bandlücke (Bandlückenrenormierung: BLR), deren Ursache vor allem die Austauschwechselwirkung der freien Ladungsträger ist. In erster Näherung wird dabei die lineare Absorption zu niedrigeren Energien verschoben, was für eine definierte Energie oberhalb der Bandlücke eine höhere Absorption mit sich bringt. Für GaAs beträgt die Verschiebung der Bandlücke bei einer Anregungsdichte von $1 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ nach

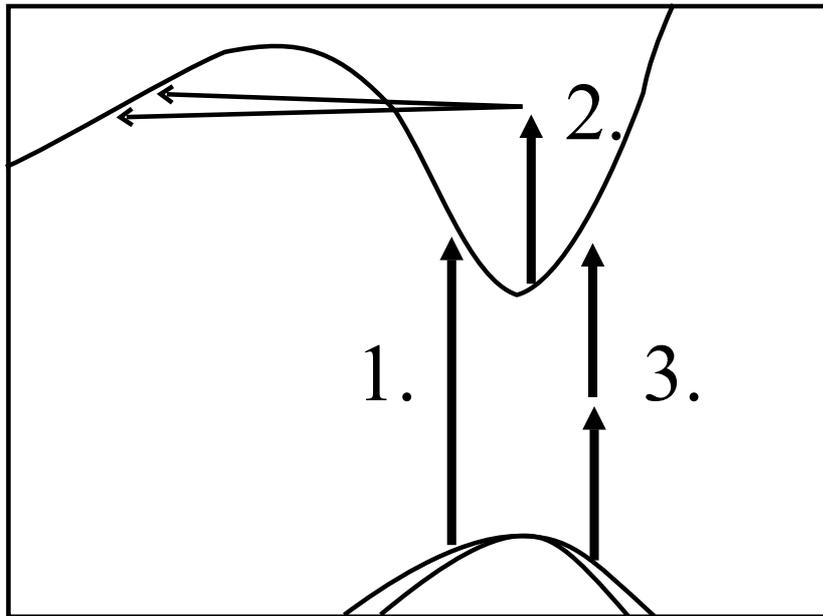


Abbildung 2.3.: Schematische Darstellung von 1. Interbandabsorption, 2. Freier-Ladungsträger-Absorption und 3. Zwei-Photonen-Absorption.

[7] ungefähr 20 meV. Bemerkbar macht sie sich im Experiment für Dichten, die deutlich oberhalb der Mott-Dichte liegen.

Freie-Ladungsträger-Absorption Sind freie Ladungsträger oder bandlückennahe Dotierungen im Halbleiter vorhanden, so treten Absorptionen auch für Photonenergien unterhalb von E_G auf. Der notwendige Impulsübertrag freier Ladungsträger wird hierbei durch Emission oder Absorption von Phononen erreicht, wie es in Abbildung 2.3 dargestellt ist. Da die Absorption innerhalb eines Bandes statt findet, ist auch der Name Intraband-Absorption üblich. Die Beiträge dieses Prozesses zur Absorptionsänderung sind für undotiertes GaAs immer positiv. Die Absorptionskonstanten für freie Löcher bzw. freie Elektronen sind proportional zu deren Dichte und abhängig von der Wellenlänge des eingestrahlt Lichtes. In einfachster Näherung ist der Wirkungsquerschnitt proportional zum Quadrat der Wellenlänge [9]. Dies gilt für den Fall, daß die Lichtfrequenz ω viel größer als die Plasmafrequenz ω_p ist.

Zwei-Photonen-Absorption Sofern keine freien Ladungsträger im Halbleiter vorhanden sind, ist im wesentlichen für Energien kleiner als die Bandlücke nur eine gleichzeitige Absorption zweier (und mit sinkender Wahrscheinlichkeit mehrerer) Photonen möglich. Der Absorptionskoeffizient der Zwei-Photonen-Absorption (ZPA) ist proportional zur

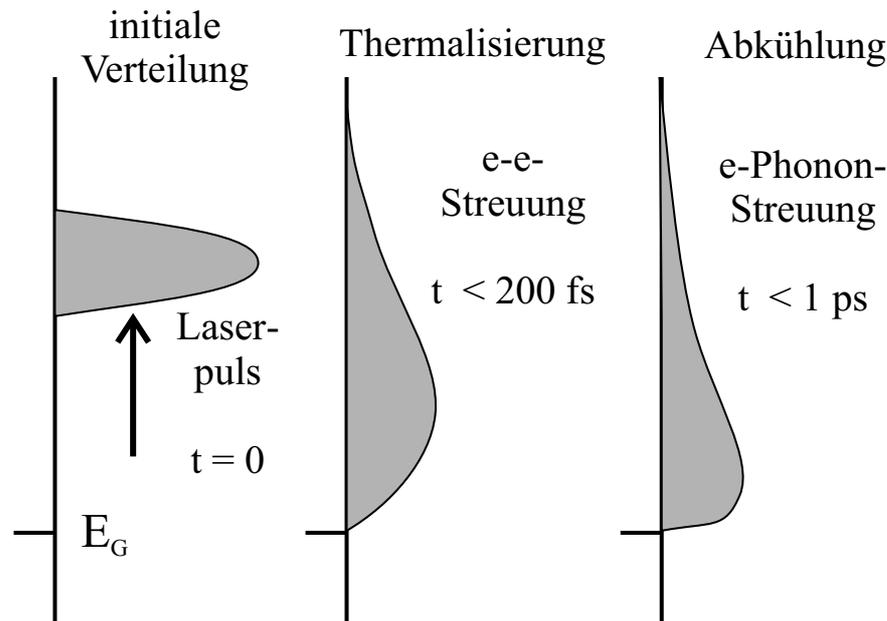


Abbildung 2.4.: Dynamik der Verteilung optisch generierter freier Ladungsträger auf Pikosekunden-Zeitskala.

Intensität des eingestrahltten Lichtes:

$$\alpha_{ZPA} = \mathcal{G} \cdot I, \quad (2.6)$$

wobei \mathcal{G} die Proportionalitätskonstante \mathcal{G} auch von der Wellenlänge abhängig ist. Für GaAs finden sich Werte um $20 \text{ cm}^2/\text{GW}$ (GW: Gigawatt)[6].

2.1.3. Relaxation optisch angeregter Ladungsträger in GaAs

Ein Laserpuls einer Pulsdauer von einigen 10 Femtosekunden (fs) mit einer Zentralenergie oberhalb der Bandlücke generiert Verteilungen freier Ladungsträger mit bestimmten Überschussenergien. Die induzierten Ladungsträgerverteilungen entsprechen in guter Näherung dem Laserspektrum. Dies ist ein im hohen Maße nichtthermischer Zustand. Die zeitliche Entwicklung zurück in den Grundzustand des Halbleiters erfolgt über verschiedene Zeitbereiche. Den zur Relaxation notwendigen einzelnen Prozessen können grob verschiedene Zeitkonstanten zugeordnet werden, da ihnen unterschiedliche Wechselwirkungen zugrunde liegen. In Abbildung 2.4 ist die Dynamik für den ps-Bereich schematisch dargestellt.

In einem ersten Schritt nach der Anregung findet eine interne Thermalisierung der Ladungsträger in Quasigleichgewichtszustände, die in guter Näherung Maxwell-Boltzmann-

Verteilungen sind, statt. Der Übergang geschieht über elastische Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung, wobei zwischen Elektron-Elektron-, Loch-Loch- und Elektron-Loch-Streuung unterschieden werden kann. Den so entstandenen Verteilungen können Quasi-Ferminiveaus, chemisches Potential sowie Temperaturen zugeordnet werden. Während der Thermalisierung gibt die Ladungsträgerverteilung allerdings keine Energie ab, da die Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung elastisch ist. Offensichtlich ist die Dauer dieses Vorganges abhängig von der Dichte der erzeugten Ladungsträger. Experimentell sind für GaAs Thermalisierungszeiten über einen großen Dichtebereich zwischen 10^{16} und 10^{18}cm^{-3} zwischen 200 und 100 fs beobachtet worden [10].

Die Angleichung der Temperaturen der Gleichgewichtsverteilungen von Elektronen und Löchern an die Gittertemperatur setzt eine Ankopplung ans Gitter voraus. In dem Halbleiter GaAs spielen polare optische Phononen die entscheidende Rolle in diesem Prozeß: Niederenergetische Elektronen wechselwirken aufgrund ihrer s-artigen Wellenfunktion mit optischen Phononen nur über polare Kopplung (Fröhlich-Wechselwirkung) [11]. Wie in Abbildung 2.4 angedeutet, findet der beschriebene Prozeß auf ps-Zeitskala statt.

In einem letzten Schritt rekombinieren Elektronen und Löcher unter Emission von Photonen der entsprechenden Energie. Zeitaufgelöste Lumineszenzmessungen ergeben hierfür Zeitkonstanten von ca. 2 Nanosekunden. Der Übergang des Halbleiters in seinen Grundzustand erfolgt also auf einer erheblich längeren Zeitskala und ist somit deutlich von den anderen Dynamiken getrennt.

Die mikroskopische Beschreibung der Dynamiken ist besonders für frühe Zeiten sehr aufwendig und Gegenstand der aktuellen Forschung. Für einen Überblick der experimentellen und theoretischen Situation siehe [12].

2.2. Low Temperature Grown GaAs

Die bisher beschriebenen optischen und elektrischen Eigenschaften von GaAs sind u.a. Folge der Periodizität des Gitters. Jede Störung der Gitterperiodizität – seien es Grenzflächen oder z.B. Gitterfehlstellen oder andere Störstellen – beeinflusst die Eigenfunktionen und somit die Bandstruktur des Halbleiters. Prominentes Beispiel für eine solche massive Störung der Bandstruktur stellt bei niedrigen Temperaturen $T_{growth} \equiv T_g$ epitaktisch hergestelltes GaAs, also LTG GaAs¹ dar. Hierbei ist die Bezeichnung „niedrig“ so zu verstehen, daß die Wachstumstemperatur soweit verringert wird, daß sich ein stöchiometrisches Verhältnis von Arsen und Gallium nicht mehr aus rein thermodynamischen Gründen einstellt. Dies ist in etwa für Temperaturen unterhalb von $T_g = 500\text{ °C}$ der Fall². Das sogenannte Schicht-für-Schicht-Wachstum (engl: *Layer-by-Layer-growth*), das bei $T_g = 600\text{ °C}$ vorherrscht, findet bei einem Überangebot an As_2 - oder As_4 -Molekülen in der Gasphase statt, da sich zum einen die Arsen-Moleküle nur an Gallium anlagern können und zum anderen die Rückevaporation des Arsenüberschusses genügend groß ist (für Details siehe [13]). Die Erniedrigung von T_g reduziert im wesentlichen die Rückevaporation und verursacht so ein dreidimensionales Wachstum.

2.2.1. Wachstum bei niedrigen Temperaturen

LTG GaAs wird mittels MBE-Wachstum bei Temperaturen, die unterhalb 500 °C liegen, vorzugsweise auf GaAs-Substrat³ hergestellt. Aufgrund der zu Standard GaAs erniedrigten Wachstumstemperatur findet in der Regel ein erhöhter Einbau von Arsen-Atomen in die GaAs-Matrix statt. Der Arsen-Überschuß $\Delta\text{As} \equiv [\text{As}] - [\text{Ga}]/([\text{As}] + [\text{Ga}])$ ist stark abhängig von der gewählten Temperatur T_g . $[\text{As}]$ und $[\text{Ga}]$ bezeichnen die Arsen- bzw. Galliumkonzentrationen. In der Praxis werden LTG GaAs-Materialien untersucht, deren Wachstumstemperatur zwischen $T_g = 180\text{ °C}$ und $T_g = 400\text{ °C}$ liegen. Die obere Grenze von T_g ist dadurch begründet, daß erst unterhalb von 400 °C die physikalischen Eigenschaften von Standard GaAs deutlich modifiziert werden. Mit sinkender Temperatur wächst ΔAs stetig aber nicht linear an, bis bei Temperaturen von ca. $T_g = 180\text{ °C}$ Überschüsse von bis zu 2 % erreicht werden können. Dagegen beträgt beispielsweise der Überschuß bei 300 °C nur 0.1 % [16, 17].

Trotz der nichtstöchiometrischen Zusammensetzung kann LTG GaAs im angegebene-

¹In der Literatur wird häufig die Abkürzung LT GaAs verwendet. Die Abkürzung LTG verdeutlicht besser, daß der Wachstumsprozeß bezeichnet wird. Sie vermeidet so eventuelle Fehlinterpretationen und wird deshalb vorgezogen.

²Im weiteren Verlauf wird das bei der üblichen Temperatur von 600 °C gewachsene GaAs als *Standard GaAs* bezeichnet.

³Die eventuell technologisch relevante Herstellung auf Silizium-Substrat ist in [14, 15] demonstriert worden.

nen Temperaturbereich monokristallin hergestellt werden und eignet sich so ideal zum Überwachsen. Dies ist für technologische Anwendungen ein wichtiger Aspekt. Jedoch nehmen mit sinkender T_g auch die erreichbaren Schichtdicken drastisch ab. So sind für Temperaturen von ca. 200 °C bisher maximale Filmdicken von 2 μm möglich. Unterhalb von $T_g = 180$ °C geht der Herstellungsprozeß in ein für optoelektronische Anwendungen meist unerwünschtes polykristallines oder amorphes Wachstum über. Aus den oben erläuterten Gründen für ein Schicht-für-Schicht- gegenüber dem dreidimensionalen Wachstum bei LTG GaAs ist unmittelbar einsichtig, daß auch das As:Ga-Verhältnis in der Gasphase, das durch die Kenngröße BEP (engl.: *Beam Equivalent Pressure*) angegeben wird, bei der Herstellung von LTG GaAs den Überschuß ΔAs mitbestimmt [18, 19]: Ein größeres BEP (entsprechend mehr Arsen-Moleküle in der Gasphase) erhöht in der Regel den Überschuß ΔAs aufgrund der Nichtgleichgewichtssituation beim Wachstum.

An dieser Stelle soll auf ein prinzipielles Problem der Vergleichbarkeit der Ergebnisse verschiedener Gruppen hingewiesen werden. MBE-Anlagen sind in der Regel für ein Wachstum zwischen 400 °C und 800 °C ausgelegt. Die Temperaturbestimmung erfolgt pyroelektrisch. Da die Eigenschaften von LTG GaAs entscheidend von ΔAs abhängen (s.u.), ist eine präzise Einhaltung der Wachstumstemperatur notwendig und deren genaue Kenntnis wünschenswert. Die Oberflächentemperatur des Wafers kann jedoch bei 200 °C nicht mehr pyroelektrisch bestimmt werden. Ferner können Arsen- und Ga-Quellen in der MBE-Anlage die Oberflächentemperatur beeinflussen. In den meisten MBE-Anlagen erfolgt die Temperaturbestimmung durch eine lineare Extrapolation der Pyrometerkalibration hin zu tiefen Temperaturen. Diese Methode ist sehr ungenau und abhängig von der jeweiligen Anlage. Hier ist eine Erklärung verschiedener Diskrepanzen in Veröffentlichungen zu sehen (s.u.). Es sind alternative Methoden entwickelt worden, eine genaue Temperaturbestimmung durchzuführen sowie die Temperatur während des Wachstums zu stabilisieren [20]. So kann optisch die Lage der (temperaturabhängigen) Bandlücke des Substrates gemessen werden und nachgeregelt werden. Für die Zukunft wäre eine Standardisierung in diesem Punkte wünschenswert.

2.2.2. Nicht ausgeheiltes LTG GaAs

Bei LTG GaAs, das keine weitere Behandlung durch eine Temperung erfährt (engl.: *as grown LTG GaAs*), findet sich aufgrund der nichtstöchiometrischen Zusammensetzung eine Vergrößerung der Gitterkonstante a in Wachstumsrichtung. Speziell für Temperaturen unterhalb von 280 °C ist a meßbar vergrößert. Eine Sättigung der Änderung Δa der Gitterkonstanten tritt für Wachstumstemperaturen unterhalb von 200 °C auf. Die vertikale Gitterexpansion $\Delta a/a$ kann dort 0.15 % übersteigen. Der Verlauf zwischen 200 °C und 280 °C ist bei gegebenem BEP in guter Näherung linear [18]. Es liegt auf der Hand, daß das überschüssige Arsen für die Vergrößerung verantwortlich zu machen ist. Jedoch

verursacht nicht jede Art von Störstelleneinbau eine Änderung in a . Ein nichtstöchiometrisches Wachstum impliziert den Einbau von intrinsischen strukturellen Punktdefekten in die GaAs-Matrix. Den dominierenden Beitrag liefern dabei As_{Ga} -Defekte, d.h. Arsen-Atome, die einen Galliumplatz einnehmen (engl.: *As-antisites*) [21, 22]. Zusätzlich gibt es Evidenzen für interstitielle As-Defekte As_i (engl.: *As-interstitials*). Dies sind Arsen-Atome auf Zwischengitterplätzen [23]. Gallium-Vakanzen V_{Ga} , also unbesetzte Galliumgitterplätze (engl.: *Ga-vacancies*), sind ebenfalls nachgewiesen worden [24, 25]. Bei Werten von ΔAs im Prozentbereich werden offensichtlich allein aufgrund der hohen Dichte auch Komplexe dieser drei Punktdefekte vorhanden sein⁴. Unstrittig für die besonderen Eigenschaften von LTG GaAs ist die Bedeutung von As_{Ga} - sowie V_{Ga} -Defekten, wie es im den folgenden Unterabschnitt 2.2.3 diskutiert wird. Andererseits zeigen theoretische Betrachtungen entgegen früherer Behauptungen [26], daß durch As_{Ga} keine vertikale Gitterexpansion hervorgerufen werden kann [27]. Wie weitere neuere theoretische Ansätze zeigen [23], könnten As_i -Störstellen, bei denen sich zwei Arsen-Atome einen Arsen-Gitterplatz teilen, für die beobachteten Gitterexpansionen verantwortlich sein. Trotz dieser wesentlichen strukturellen Eigenschaft von nicht ausgeheiltem LTG GaAs herrscht hier offensichtlich noch Klärungsbedarf.

Auf den ersten Blick nicht in Einklang mit diesem Ergebnis steht die von Liu et al. [22] empirisch gefundene Formel zwischen Gitterausdehnung Δa und der As_{Ga} -Konzentration

$$\frac{\Delta a}{a} = 1.24 \times 10^{-23} [\text{As}_{\text{Ga}}], \quad (2.7)$$

die einen linearen Zusammenhang der Gitterausdehnung zur As_{Ga} -Konzentration angibt. Die As_{Ga} -Konzentration ist bezogen auf die Volumeneinheit cm^3 . Da allerdings die benötigte Formationsenergie zur Bildung der verschiedenen Störstellen jeweils in der Größenordnung von einem eV liegt, sollte es auch einen beträchtlichen Anteil von As_i -Störstellen geben. Damit wären die vorhandenen Konzentrationen der einzelnen Störstellenarten näherungsweise proportional zueinander.

2.2.3. Elektrische Eigenschaften von nicht ausgeheiltem LTG GaAs

Zur Erklärung der elektrischen Leitfähigkeit in nicht ausgeheiltem LTG GaAs hat sich ein Modell von Look et al. [28, 29] etabliert. Grundlage dieses Modells sind Erkenntnisse über den hohen spezifischen Widerstand von sogenanntem LEC-GaAs (Liquid Encapsulated Czochralski). In LEC-GaAs ist der für die elektrischen Eigenschaften wichtigste

⁴Zur Illustration dieses Sachverhaltes sei hier die Wahrscheinlichkeit angegeben, daß eine As_{Ga} -Störstelle räumlich über 2.25 Gitterkonstanten von der nächsten As_{Ga} -Störstelle separiert sei: Innerhalb dieses Radiuses befinden sich 42 Ga-Gitterplätze. Unter der Annahme des nicht korrelierten Einbaus beträgt die Wahrscheinlichkeit einer räumlichen Trennung von mehr als 2.25 Gitterkonstanten bei $\Delta\text{As} = 1.5\%$ noch 50 %.

Defekt unter dem Namen EL2–Defekt bekannt. Obwohl die Eigenschaften dieses Defektes schon seit den 60´ger Jahren intensiv erforscht worden sind, ist es erst Ende der 80´ger Jahre gelungen, die Eigenschaften theoretisch konsistent der As_{Ga} –Störstelle zuzuschreiben [30]. Eine Auflistung aller physikalischen Eigenschaften des EL2–Defektes findet sich in [31]. Nominell nicht dotiertes LEC–GaAs sollte über V_{Ga} –Störstellen p-dotiert sein. V_{Ga} –Störstellen sind nach Theorie Tripel–Akzeptoren [32]. Die semiisolierende Eigenschaft von LEC–GaAs kommt über die Kompensation der p–Dotierung durch As_{Ga} zustande, das ein einfacher Donator ist. Aufgrund der mehrere Größenordnung höheren Konzentration von As_{Ga} in LTG GaAs verliert dieses Material die semiisolierenden Eigenschaften. Dies kann durch das sogenannte Punktdefektmodell nach Look erklärt werden.

Punktdefektmodell nach Look Die elektrische Leitfähigkeit σ in nicht ausgeheiltem LTG GaAs ist verglichen mit LEC–GaAs ($\sigma \approx 10^{-7}\Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$) hoch. Bei Wachstumstemperaturen von 200 °C bis 300 °C nimmt sie – bei Raumtemperatur gemessen – von 10^{-1} auf $10^{-4}\Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$ ab [16, 33]. Die Bandleitfähigkeit ist jedoch gering, da die Anzahl freier Ladungsträger gering ist. Vielmehr ist das Fermi-niveau in nicht ausgeheiltem LTG GaAs in der Mitte der Bandlücke durch die hohe Konzentration der As_{Ga} –Störstellen festgelegt. Es findet eine teilweise Kompensation neutraler As_{Ga}^0 durch V_{Ga} statt, so wie es in Abbildung 2.5 dargestellt ist. Damit liegt das Fermi-niveau nahe beim tiefen Donator-niveau As_{Ga}^0 . Die Dichten von As_{Ga}^0 sowie die Dichten des ionisierten Zustandes As_{Ga}^+ sind mittels Nah–Infrarot–Absorption (NIRA) bzw. mittels des magnetischen zirkularen Dichroismus der Absorption (MCDA, engl.: *Magnetic circular dichroism of absorption*) bestimmt worden [21, 34, 35]. Der überwiegene Anteil der As_{Ga} –Störstellen liegt im neutralen Zustand vor. Bei $T_g = 200$ °C ist in [36] eine Konzentration von $[\text{As}_{\text{Ga}}^0] \approx 1 \times 10^{20}\text{cm}^{-3}$ gemessen worden. Dagegen ist die Konzentration von As_{Ga}^+ um eine Größenordnung kleiner und liegt danach etwa bei $[\text{As}_{\text{Ga}}^+] \approx 0.7 \times 10^{19}\text{cm}^{-3}$. Ungefähr um einen Faktor drei kleiner ist nach [18, 37] die Konzentration von V_{Ga} . Dies unterstützt die Annahme, daß V_{Ga} ein Tripel–Akzeptor ist und die notwendige Kompensation von As_{Ga}^0 zu As_{Ga}^+ bewirkt. Die Rolle der eventuell vorhandenen As_i –Störstellen ist bisher nicht geklärt. Sie sollten auch Akzeptoren sein. Nach Look et al. [28] liegt das Fermi-niveau im Bereich des Störstellenbandes. Dies erlaubt den Transport der Ladungsträger über Hopping–Prozesse. Je nach Temperatur dominieren zwei unterschiedliche Arten des Transportes: Sofern die thermischen Energien ausreichen, die energetischen Unterschiede benachbarter Störstellenniveaus zu „überwinden“, findet der Transport über ein Hüpfen zum nächsten Nachbarn statt (engl.: *next neighbour hopping*), während bei geringeren Temperaturen – also bei einem teilweisen Einfrieren der Ladungsträger – die Wahrscheinlichkeit eines Sprungs zu einem weiter entfernt gelegenen Niveau gleicher Energie größer ist (engl.: *variable range hopping*).

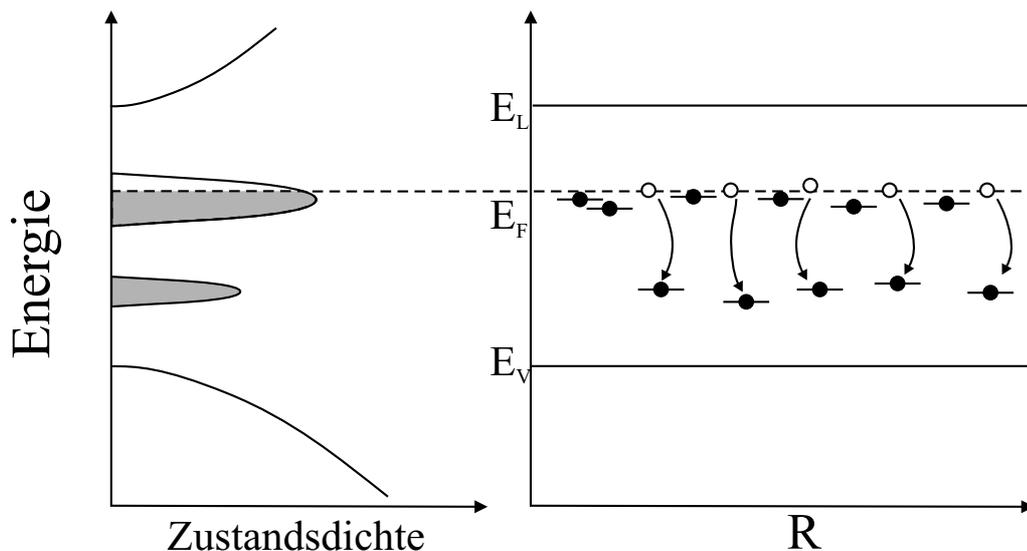


Abbildung 2.5.: Punktdefektmodell der elektrischen Leitfähigkeit von LTG GaAs. Aufgrund der hohen As_{Ga} -Konzentration bildet sich ein Störstellenband in der Mitte der Bandlücke aus. Die teilweise Kompensation führt zu einer Festlegung der Fermienergie in der Bandlückenmitte und der Möglichkeit der Hopping-Leitung.

Über die Temperaturabhängigkeit der Leitfähigkeit konnte die Ausdehnung r der Wellenfunktion eines Ladungsträgers im Störstellenband in [28] zu 8.7 \AA bestimmen werden. Weiterhin ist sowohl in der genannten Veröffentlichung als auch von anderen Gruppen die energetische Position des As_{Ga} -Defektes experimentell ermittelt worden. Werte von 0.6 eV bis 0.75 eV unterhalb des Leitungsbandes werden berichtet [38, 39, 40]. Aufgrund ähnlicher Eigenschaften des Defektes mit der EL2-Störstelle in LEC-GaAs wird er häufig als EL2-artiger Defekt bezeichnet. Trotz der Ähnlichkeiten gibt es starke Hinweise, daß As_{Ga} -Störstellen in LTG GaAs in vielen Konfigurationen vorliegen (siehe dazu auch die einfache Überlegung in Fußnote auf Seite 16) [40].

2.2.4. Temperung von LTG GaAs

Die im letzten Unterabschnitt besprochene hohe Leitfähigkeit von nicht ausgeheiltem LTG GaAs ist mit Blick auf beispielsweise Anwendungen in schnellen optoelektronischen Bauelementen nicht erwünscht. Eine signifikante Änderung der Leitfähigkeit wird bei LTG GaAs durch eine Temperung nach dem Wachstum erreicht. Die Ausheiltemperatur T_a variiert dabei bei verschiedenen Gruppen von ca. $T_a = 350 \text{ °C}$ bis hinauf zu über $T_a = 900 \text{ °C}$. Erstrebenswert ist die Temperung von LTG GaAs direkt in der MBE-Anlage (in situ) unter einem zum Wachstum identischen Arsen-Partialdruck. Um eine

nachträgliche Temperung einer LTG GaAs Probe durchführen zu können, hat es sich als effektiv herausgestellt, die Probe mit einem GaAs-Wafer zu bedecken. So stellt sich nahezu ein chemisches Gleichgewicht bezüglich des Arsendruckes zwischen Probe und Wafer ein, das bei einer in situ-Ausheilung von vorneherein gegeben ist. Dies verhindert zuverlässig die Ausdiffusion des Überschuß-Arsens aus dem LTG GaAs-Wafer.

Der Ausheilvorgang von LTG GaAs ist komplex. Die verschiedenen bei reduzierten Wachstumtemperaturen eingebauten Störstellen besitzen jeweils andere Aktivierungsenergien für ihre Diffusion. Hall-Effekt- und Leitfähigkeitsdaten in Abhängigkeit von T_a zeigen eine Reduktion eines Akzeptorniveaus im Temperaturbereich um 400 °C [41]. Sie können interpretiert werden als die Reduktion der Konzentration des V_{Ga} -Defektes. Oberhalb von 400 °C steigt die Akzeptorkonzentration jedoch wieder. Die Bildung von Störstellen-Komplexen scheint wahrscheinlich. Ein nicht monotoner Zusammenhang mit T_a wird in [41] entsprechend für $[As_{Ga}^+]$ gefunden (siehe auch Abbildung 2.6). Die Beobachtungen weisen auf ein kompliziertes Schieben der Fermienergie mit T_a hin. Andererseits findet oberhalb von ca. $T_a = 450$ °C eine signifikante kontinuierliche Abnahme der Gesamtkonzentration $[As_{Ga}]$ mit steigender Ausheiltemperatur statt: Auf Kosten der Punktdefekte bilden sich Arsen-Ausscheidungen in Nanometer Größe. Die großen mikrostrukturellen Änderungen gehen einher mit einer drastischen Reduktion der elektrischen Leitfähigkeit: Das Material wird semiisolierend.

Mit dem weiteren Parameter T_a , der die Eigenschaften von LTG GaAs entscheidend verändert, wird der Parameterraum erheblich vergrößert. Der Begriff „LTG GaAs“ steht demnach für eine sehr große Materialklasse, was vor allem die Kommunikation zwischen verschiedenen Forschergruppen erschwert.

2.2.5. Ausgeheiltes LTG GaAs

Die nach dem Ausheilprozeß vorhandenen As-Ausscheidungen können in Transmission-Elektronen-Mikroskopie-Aufnahmen (TEM-Aufnahmen) sowie zerstörungsfrei in Ramanpektroskopie [42, 43] nachgewiesen werden. In der Literatur wird von As-Ausscheidungen mit mittleren Durchmessern zwischen +0 nm und 40 nm berichtet [18, 44]. Die Ausscheidungsgrößen sowie ihre Dichten hängen von der anfänglichen Konzentration $[As_{Ga}]$ (und damit von T_g), der Ausheiltemperatur und – weniger ausgeprägt – der Ausheilzeit ab. Eine Erhöhung von T_a bei konstantem T_g sowie konstanter Ausheilzeit hat einen größeren mittleren Durchmesser d zur Folge. Dagegen sinkt die Dichte der Ausscheidungen für steigende Ausheiltemperaturen: Große Ausscheidungen wachsen auf Kosten kleinerer Ausscheidungen. Das Zweiphasensystem von As-Ausscheidungen und GaAs-Matrix minimiert auf diese Weise die Freie Energie durch die Reduktion der Gesamtoberfläche zwischen den beiden Phasen. Dieser Prozeß ist unter dem Namen *Ostwald ripening* bekannt [45]. Die rechte Seite von Abbildung 2.6 zeigt die Änderung von d mit

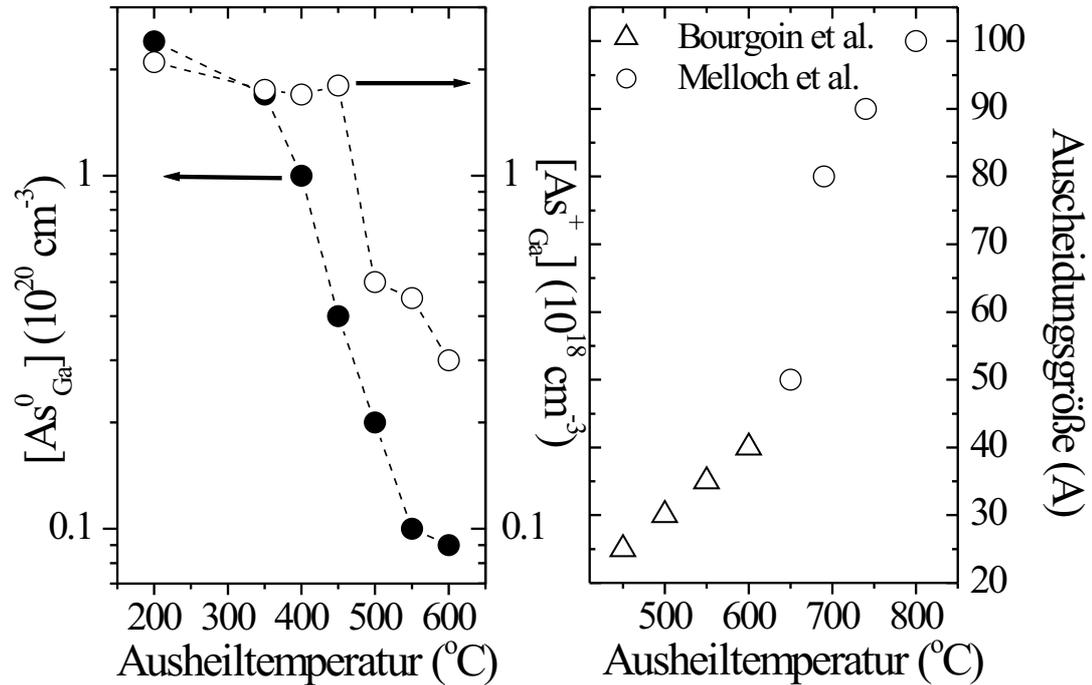


Abbildung 2.6.: Linke Seite: As_{Ga}^0 -Konzentration sowie As_{Ga}^+ -Konzentration in Abhängigkeit von T_a bei $T_g = 200 \text{ }^\circ\text{C}$ übernommen aus [34]. Rechte Seite: Mittlere Durchmesser d von Arsen-Ausscheidungen für verschieden T_a -Werte bei $T_g = 200 \text{ }^\circ\text{C}$ übernommen aus [46, 47].

der Ausheiltemperatur. Für $T_a = 600 \text{ }^\circ\text{C}$ sind bei $T_g = 200 \text{ }^\circ\text{C}$ Ausscheidungen von ca. $d = 4 - 5 \text{ nm}$ zu erwarten. Für diesen Fall beträgt der mittlere Abstand der Ausscheidungen ca. 20 nm . Der bei weitem größte Anteil des überschüssigen Arsens bildet für $T_a > 450 \text{ }^\circ\text{C}$ Ausscheidungen; nur ein verglichen mit der Anfangskonzentration $[As_{Ga}]$ residueller Anteil verbleibt in der GaAs-Matrix, wie es die linke Seite von Abbildung 2.6 verdeutlicht. Nach der Temperung ist aufgrund der großen Änderung der Störstellenkonzentration die vertikale Gitterexpansion Δa vollständig relaxiert. Dies schafft die Möglichkeit, auch für niedrige Wachstumstemperaturen monokristalline Schichten größer $2 \text{ } \mu\text{m}$ durch wiederholtes Aufdampfen und Ausheilen herzustellen [17].

Nach [48] sind die Ausscheidungen für Temperaturen $T_a < 700 \text{ }^\circ\text{C}$ kristallin. Die Kristallstruktur ist rhomboedrisch, wie es für metallisches Arsen im festen Zustand ebenso der Fall ist. U.a. diese Beobachtung legen semimetallische Eigenschaften der Ausscheidungen in der GaAs-Matrix nahe. Bei Dichten bis zu einigen $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ist ein nicht unwesentlicher Einfluß auf die physikalischen Eigenschaften von LTG GaAs zu vermuten. Trotz über 10-jähriger Forschung auf diesem Gebiet ist die Bedeutung der

Ausscheidungen noch immer unklar. Dies bezieht sich insbesondere auf den Einfluß der Ausscheidungen auf die Leitfähigkeit des Materials.

2.2.6. Elektrische Eigenschaften von ausgeheiltem LTG GaAs

Eine entscheidende Änderung der physikalischen Eigenschaften von LTG GaAs während der Temperung erfährt die elektrische Leitfähigkeit σ . Sie nimmt bei einer Ausheilung bei $T_a = 600$ °C auf Werte bis zu $\sigma = 10^{-6} \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$ ab, reicht also an die semiisolierende Eigenschaft von Standard GaAs heran. Zwei konkurrierende Modelle erklären das Verhalten auf sehr unterschiedliche Weise. Dabei ist das sogenannte *residuelle Punktdefektmodell* eine Erweiterung des Modells auf Seite 17. Bedenkt man die Ursache der Leitfähigkeit im nicht ausgeheilten Zustand – nämlich Hopping–Leitung in einem Störstellenband –, so führt die Reduktion der Störstellenkonzentration zu einer Unterdrückung dieses Prozesses [28]. Dabei ist wesentlich, daß die Fermienergie weiterhin durch Punktdefekte festgelegt ist. Ausscheidungen spielen in diesem Modell keine direkte Rolle, sondern dienen nur als Senke des As–Überschusses.

In den frühen 90-er Jahren ist ein zweites Modell zur Erklärung der elektrischen Eigenschaften von ausgeheiltem LTG GaAs von A.C. Warren et. al. [49] vorgeschlagen worden. Darin werden die Arsen–Ausscheidungen als Schlüssel für den Übergang von hoher Leitfähigkeit zu sehr niedrigen Leitfähigkeiten beim Ausheilprozeß verantwortlich gemacht.

Schottkybarrierenmodell nach Warren Geht man von metallischen Eigenschaften der Ausscheidungen aus, so bilden sich in LTG GaAs Metall-Halbleiter–Kontakte aus. Aufgrund dieser vergrabenen Schottkykontakte umgibt jede Ausscheidung eine (sphärische) Verarmungszone. Bei genügend kleiner Hintergrunddotierung oder genügend hoher Ausscheidungsichte können die einzelnen Verarmungszonen, wie in Abbildung 2.7 auf der linken Seite gezeigt, überlappen. Ab einem bestimmten Wert der Ausscheidungsichten sollte dann das gesamte Material abgeschirmt sein, falls die Potentialhöhe der Grenzschicht Arsen/GaAs günstig liegt und so Dotierungen vollständig kompensiert werden können. Damit legen in diesem Modell die Ausscheidungen das Fermienergielevel von LTG GaAs fest. Reicht die Größe der Verarmungszonen nicht aus, um die Dotierung zu kompensieren, so ist das Material folglich leitend.

Um die Relevanz des Modells abschätzen zu können, ist die Kenntnis der Potentialhöhe Φ_B notwendig. Nach [50, 51, 52] liegt die Festlegung des Fermienergielevels durch die Ausscheidungen zwischen 0.6 bis 0.8 eV oberhalb des Valenzbandes. Die Barrierenhöhe liegt bei ca. 0.8 eV für n-dotiertes GaAs und 0.6 eV für p-dotiertes GaAs. Aus der Lösung der Poisson–Gleichung ergibt sich der Zusammenhang zwischen Potential Φ_B ,

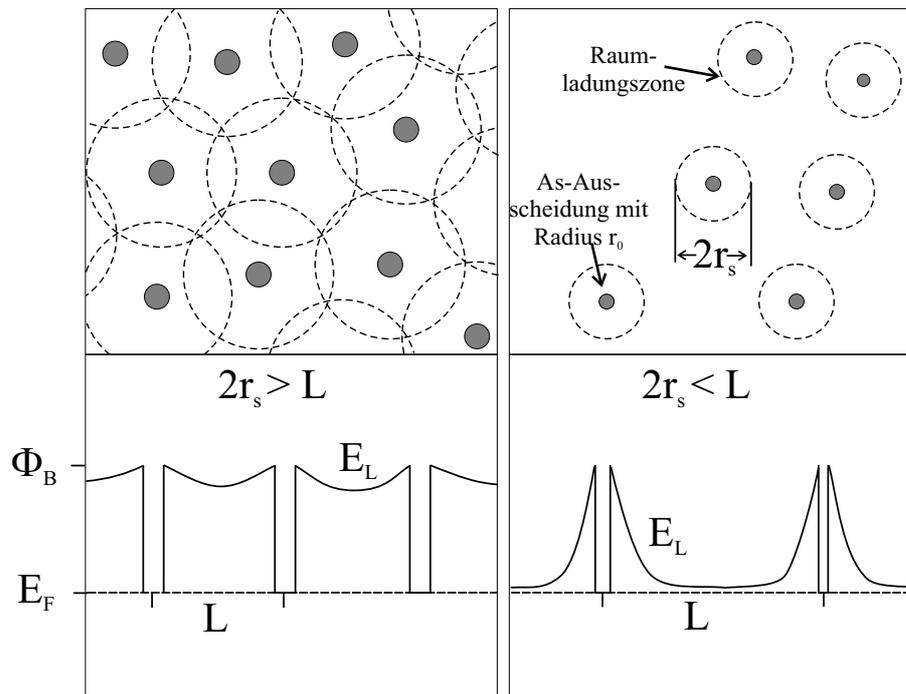


Abbildung 2.7.: Modell der vergrabenen Schottkybarrieren in LTG GaAs. Linke Seite: Ist die Fermienergie durch metallische Ausscheidungen festgelegt und sind diese genügend dicht, so überlappen die Verarmungszonen und das Material wird semiisierend. Rechte Seite: Bei zu geringer Dichte ist das Material weiterhin leitend.

des Ausscheidungsradius r_0 , des Abschirmradius r_s sowie der Dotierdichte N_D :

$$\Phi_B = \frac{eN_D}{6\epsilon_r\epsilon_0} \left(\frac{2r_s^3}{r_0} + r_0^2 - 3r_s^3 \right). \quad (2.8)$$

Bei einem Radius r_0 von 2.5 nm und einer Dotierdichte N_D von $1 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ liegt der Abschirmradius bei 18 nm. Das Material wäre vollständig abgeschirmt bei einer Ausscheidungsichte von $2 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$.

Evidenzen für eine Richtigkeit dieser Theorie liegen vor: So wurde bei einer Ausheilung oberhalb 700 °C vom einem erneuten Sinken des Widerstandes berichtet [51]. Dies läßt sich mit einem Sinken der Anzahl der Ausscheidungen erklären, das durch die Vergrößerung der Radien nicht ausgeglichen werden kann.

Es bestehen andererseits berechnete Zweifel an dieser Theorie. Hier ist zum einen der fehlende Übergang vom für nicht ausgeheiltes LTG GaAs zutreffenden Punktdefektmodell zu nennen. Zum anderen scheinen eine Vielzahl von Experimenten darauf hinzudeuten, daß die Fermienergie für Ausheiltemperaturen bis $T_a = 700 \text{ °C}$ durch Punktdefekte

und nicht durch Ausscheidungen festgelegt wird [53, 54, 38]. Dabei zeigen Photoreflektionsmessungen [53] ein kompliziertes Verhalten der Fermienergie mit T_a . Ferner ist es auch möglich, semiisolierendes LTG GaAs ohne Temperung bei $T_a = 400$ °C herzustellen [55]. Dieses Material enthält somit keine Ausscheidungen. Dies zeigt, daß die Kompensation von Störstellen sicher eine wesentliche Rolle bei der Erklärung der semiisolierenden Eigenschaften spielt. Für einen Vergleich der beiden phänomenologischen Theorien sei auf [29] verwiesen.

2.2.7. Elektrooptische Eigenschaften von LTG GaAs

In den bisherigen Abschnitten sind die mikrostrukturellen und elektrischen Eigenschaften sowohl von ausgeheiltem wie von nicht ausgeheiltem LTG GaAs besprochen worden. Nach dem Ausheilprozeß können demnach spezifische Widerstände erreicht werden, die sich in Größenordnung der Werte von Standard GaAs befinden. Wo liegen nun die Vorteile des defektreichen Materials für die Anwendung gegenüber Standard GaAs? Diese sind eindeutig in der extrem kurzen Lebensdauer optisch induzierter freier Ladungsträger begründet. Bei richtiger Wahl der Herstellungsparameter können Ladungsträgerlebensdauern deutlich unter einer Pikosekunde erzielt werden. Der Grund dieser Besonderheit ist wieder im As-Überschuß zu suchen.

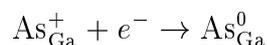
Die ersten Untersuchungen zur Lebensdauer freier Ladungsträger in LTG GaAs wurden von Gupta et al. [56] durchgeführt. Sie basierten auf zeitaufgelöste Anrege/Abfrage-Experimente (siehe dazu Seite 38) in Reflexionsgeometrie. Die differentiellen Reflexionssignale von ausgeheiltem LTG GaAs zeigten ein monoexponentielles Abklingen mit Zeitkonstanten unterhalb einer Pikosekunde, wenn die Wachstumstemperatur unterhalb 250 °C lag. Diese Zeitkonstante wurde als Lebensdauer freier – also sich in Bändern befindlicher Ladungsträger – interpretiert. Innerhalb der so bestimmten Zeit reduziert sich danach die Dichte der freien Ladungsträger auf 37 % der initialen Dichte. Der überwiegende Anteil der freien Ladungsträger rekombiniert nicht strahlend sondern wird eingefangen⁵. Dies erklärt die Tatsache, daß die übliche Art der Bestimmung von Rekombinationszeiten über zeitaufgelöste Lumineszenzmessungen kaum möglich ist.

In der Folgezeit sind Untersuchungen zur Abhängigkeit der Einfangzeit von der Wachstumstemperatur sowie der Ausheiltemperatur durchgeführt worden. Für ausgeheiltes Material fanden McIntosh et al. [57] ein Minimum der Ladungsträgereinfangzeit bei einer Wachstumstemperatur von $T_g \approx 220$ °C. In Abhängigkeit von T_a variiert sie in [57] zwischen $\tau_e = 0.1$ ps für $T_a = 480$ °C und $\tau_e = 0.25$ ps für $T_a = 620$ °C. Diese Ergebnisse basieren wieder auf Messungen in Reflexionsgeometrie. Untersuchungen, die im Rahmen dieser Arbeit und auch in neueren Publikationen [58, 59] gemacht wurden,

⁵Im weiteren Verlauf der Arbeit wird deshalb diese Zeit oft als Ladungsträgereinfangzeit oder kurz als Einfangzeit τ_e bezeichnet.

zeigen jedoch, daß die einfache Interpretation des exponentiellen Zerfalls eines Reflexionssignals als Einfangzeit von freien Ladungsträgern nur näherungsweise gelten kann. In differentiellen Transmissionsmessungen haben Harmon et al. [60] τ_e bei Ausheiltemperaturen über 700 °C bestimmt. Sie sehen einen linearen Anstieg von τ_e mit T_a bis zu mehr als 10 ps für $T_a = 900$ °C.

Über die Art des Einfanges freier Ladungsträger besteht weiterhin keine Klarheit. Auch hier werden wie bei den Modellen zur elektrischen Leitfähigkeit von LTG GaAs zwei konträre Vorstellungen vertreten, die beide an die Modelle zur Leitfähigkeit anknüpfen. Die erste Vorstellung geht davon aus, daß die residuellen Punktdefektdichten, die auch nach der Temperung in der GaAs-Matrix vorhanden sind, der Grund des schnellen Ladungsträgereinfangs sind. Hierbei dienen in erster Linie die bei $T_a = 600$ °C mit einer Dichte von 5×10^{17} bis $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ vorliegenden As_{Ga}^+ als Einfangzentren, da der Prozeß



sehr effektiv sein soll. Ein weiteres Argument für diese Interpretation wird in [56, 61] angeführt: Für nicht ausgeheiltes LTG GaAs ergeben sich noch schnellere Zeitkonstanten in Anrege/Abfrage-Experimenten. Dies kann nach Gupta et al. auf die erhöhte Konzentration von As_{Ga}^+ mit 10^{19} cm^{-3} zurückgeführt werden. Den As-Ausscheidungen kommt für den Ladungsträgereinfang demnach keine besondere Bedeutung zu. Zu dem gleichen Ergebnis gelangen Marcinkevicius et al. [62]. Dagegen werden von anderen Gruppen die As-Ausscheidungen als wesentlich für den Relaxationsprozeß angesehen. Von Harmon et al. [60] sind detaillierte Untersuchungen vorgenommen worden, die einen Zusammenhang zwischen dem mittlerem Abstand der Ausscheidungen und den Einfangzeiten beweisen sollen. Ferner deuten die Ergebnisse in [63] darauf hin, daß der Einfangwirkungsquerschnitt für Elektronen von As_{Ga} nicht ausreicht, um die schnelle Dynamik erklären zu können.

Ein theoretischer Ansatz zum Verständnis der Eigenschaften von LTG GaAs ist in neuester Zeit von Ruda et al. [64] vorgestellt worden: In einem Zweiphasen-Modell, bestehend aus der GaAs-Matrix und semimetallischen As-Ausscheidungen, werden Hall-Mobilitäten, statische Leitfähigkeit, Strom-Spannungscharakteristiken sowie Lebensdauern photogenerierter Ladungsträger erklärt. Wesentlich ist hier die Annahmen der Festlegung der Fermienergie durch die Ausscheidungen, wogegen – wie bereits erwähnt – experimentelle Befunde sprechen.

Die Beobachtung der Relaxationsdynamik freier Ladungsträger über Anrege/Abfrage-Experimente gibt offensichtlich Auskunft über die Einsetzbarkeit von LTG GaAs in optoelektronischen Bauelementen, kann aber letztlich keine weitere Einsicht über die Bedeutung von Ausscheidungen bzw. As_{Ga} -Störstellen geben. Andererseits ist die Kenntnis der Relaxationsdynamik von eingefangenen Ladungsträgern zum ersten fast völlig un-

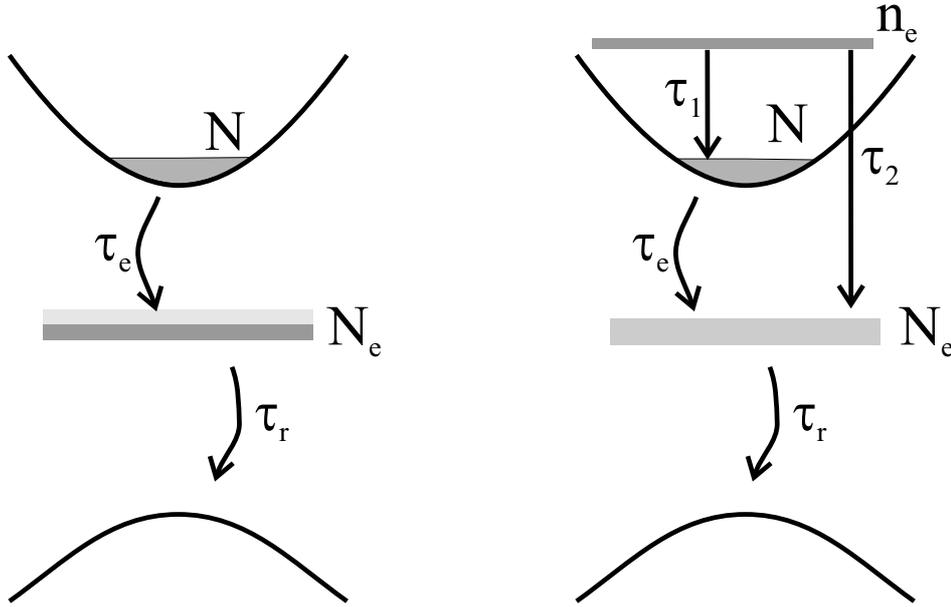
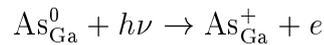


Abbildung 2.8.: Einfache Ratengleichungsmodelle, die von [65] (links) und [66, 67, 68] (rechts) zur Erklärung der Ladungsträgerdynamik in LTG GaAs herangezogen werden.

bekannt und zum zweiten wesentlich für eventuelle Abschirmprozesse, die die Eignung des Materials in der Anwendung stark beeinflussen könnten. Interessante Rückschlüsse können dabei aus Sättigungsexperimenten gezogen werden. Für nicht ausgeheiltes Material haben Siegner et al. [69] bei Anregungen von bis zu $5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ Ladungsträgerdichten eine zusätzliche Zeitkonstante von mehreren 100 ps beobachtet. Sie wird von dieser Gruppe als Lebensdauer der von den As_{Ga}^+ -Defekten eingefangenen Elektronen interpretiert⁶. Für ausgeheiltes LTG GaAs wurden von der Gruppe um Whitaker Sättigungsexperimente durchgeführt [65, 70]. Ansätze finden sich auch in [66]. Die in diesen Veröffentlichungen verwendeten Modelle sind in Abbildung 2.8 skizziert. Beide Modelle lassen sich durch einfache Ratengleichungen beschreiben. Hierbei ist auf der linken Seite die Dichte der Einfangzentren N_e berücksichtigt, die durch freie Ladungsträger gesättigt werden kann. Aus einer numerischen Anpassung des Signals an die Meßdaten konnte in [65] Werte für τ_e und τ_r ermittelt werden. Die Rekombinationszeiten τ_r waren mit Blick auf das Punktdefektmodell überraschender Weise um Größenordnungen kleiner als beim nicht ausgeheilten Material in Referenz [69]. Eine genauere Diskussion erfolgt in Kapitel 6. Das Modell auf der rechten Seite von Abbildung 2.8 demonstriert, daß der

⁶Die Rekombinationszeit der Ladungsträger aus den Einfangzentren wird im weiteren Verlauf der Arbeit mit τ_r bezeichnet.

Wissensstand zur Relaxationsdynamik in LTG GaAs sehr gering ist. Mit sieben freien Parametern (vier Zeitkonstanten sowie drei Wirkungsquerschnitten) ist die Aussagekraft sehr begrenzt bzw. nicht vorhanden. Ein solcher Weg soll in dieser Arbeit deshalb nicht eingeschlagen werden. Erwähnenswert ist jedoch, daß der speziell für nicht ausgeheiltes LTG GaAs wichtige Prozeß der Ionisation von As_{Ga}^0



berücksichtigt wird. Für ausgeheiltes LTG GaAs kann er bei hohen Pulsleistungen von Bedeutung sein. Aufgrund der Ähnlichkeit der Defekte in LTG GaAs mit der EL2-Störstelle werden für die optischen Wirkungsquerschnitte häufig Werte der EL2-Störstelle übernommen. Diese sind z.B. in den Referenzen [71, 72] bestimmt worden.

Es bleibt festzuhalten, daß die Relaxationsdynamik freier Ladungsträger in LTG GaAs trotz der Bedeutung für die Anwendung nur sehr unzureichend verstanden ist. Neben den experimentellen Schwierigkeiten, einzelne Relaxationsprozesse zeitlich und spektral aufzulösen, liegt dies sicher auch zu einem Großteil an bisher fehlenden systematischen Untersuchungen z.B. des Sättigungsverhaltens in LTG GaAs, wie es in Kapitel 6 durchgeführt wird. Momentan gilt oft das von Sosnowski et al. eingeführte Modell [65] auf der linken Seite von Abbildung 2.8 als Diskussionsgrundlage vieler Forschergruppen.

2.3. Anwendungen von LTG GaAs

Die vorgestellten Eigenschaften der Materialgruppe LTG GaAs haben in den letzten zehn Jahren zu den unterschiedlichsten Anwendungen geführt. Hier soll ein kurzer Überblick über bisherige und aktuelle Entwicklungen gegeben werden.

Schon mit Beginn der ersten Forschungen an LTG GaAs von Smith et al. [1] wurde die Eignung des Materials als Buffer-Schicht in Feld-Effekt-Transistoren (FET) demonstriert. Ein Wachstum bei 200 °C mit anschließendem Ausheilen und einem daraus resultierenden hohen Widerstand der LTG GaAs Buffer-Schicht konnte das sogenannte back-gating bei MESFETs vollständig unterdrücken. In der Folge fand LTG GaAs auf unterschiedliche Art in FETs Verwendung: In [73] wurde der Einsatz als isolierende Schicht unterhalb des leitenden Kanals gezeigt. Eine deutliche Verbesserung eines MESFETs bei seiner Durchbruchspannung kann bei einer zusätzlichen LTG GaAs-Schicht auf dem leitenden Kanal erreicht werden, sofern die Diffusion von Störstellen in den Kanal beim Ausheilen verhindert wird [74]. Transistoren auf Basis von LTG GaAs zeigen sich im allgemeinen sehr robust gegenüber äußeren Störungen wie starker elektromagnetischer Felder oder hochenergetischer Strahlung. Hieraus resultiert das offensichtliche Interesse des amerikanischen Militärs aber auch von Weltraumbehörden wie der NASA oder der ESA.

In den letzten Jahren ist das Interesse an einer anderen Klasse von Schaltern stark gestiegen. So findet LTG GaAs mittlerweile standardmäßig Verwendung in der zeitaufgelösten THz-Spektroskopie. Die kurze Ladungsträgerlebensdauer und die hohe Mobilität optisch generierter Ladungsträger prädestinieren LTG GaAs für den Einsatz in sogenannten optoelektronischen Wandlern. Zur Detektion kohärenter THz-Strahlung wird eine mikrostrukturierte photokonduktive Dipolantenne durch einen kurzen optischen Puls leitend geschaltet. Dies gelingt für die Lebensdauer der freien Ladungsträger im sich in der Lücke befindenden LTG GaAs-Film. Während dieser Zeit können transiente elektromagnetische Felder Ströme über den Dipol treiben. Die erreichbare Bandbreite ist wesentlich durch die Lebensdauer freier Ladungsträger begrenzt. Diese scheint bei Verwendung von LTG GaAs höher (bis zu 4 THz) zu sein als bei alternativen photoleitenden Materialien wie SOS (*engl: Silicon On Sapphire*). Mit dem gleichen Schalterdesign läßt sich auch elektromagnetische THz-Strahlung erzeugen, indem die Antenne vorgespannt wird und wieder mit einem Laserimpuls kurzgeschlossen wird. Der so induzierte Strom emittiert THz-Strahlung. Für möglichst hohe THz-Leistungen sind hier hohe Durchbruchfeldstärken notwendig.

Die Erzeugung ultrakurzer elektrischer Pulse gewinnt technologisch mehr und mehr an Bedeutung. Hier ist der Einsatz von LTG GaAs als ultraschnelles photoleitendes Material in [75] und [76, 77] demonstriert worden. In [78] wird die Generation eines frei propagierenden elektrischen Pulses einer zeitlichen Breite von 420 fs gezeigt. Um ähnliche Ergebnisse mit Standard GaAs zu erzielen, müßten Kontaktabstände unterhalb ca. 50 nm gewählt werden, um über die Begrenzung der Transitzeit der Ladungsträger zwischen den vorgespannten Kontakten die Pulslänge festzulegen [79].

Sowohl im kurzwelligen Bereich (< 870 nm) [80, 81] als auch bei $1.55 \mu\text{m}$ [82] ist die Tauglichkeit von LTG GaAs als ultraschneller Photodetektor nachgewiesen worden. Aufgrund der hohen Durchbruchfeldstärke und dem damit verbundenen niedrigen Dunkelstrom werden mittlerweile kommerziell ultraschnelle auf LTG GaAs basierende Photodetektoren von der Firma MELLWOOD vertrieben.

Auch der Erzeugung von THz-Strahlung im Dauerstrichbetrieb hat der Einsatz von LTG GaAs als photoleitendes Material neue Impulse gegeben. Bei geeignetem Antennendesign konnten über die Differenzfrequenz zweier Dauerstrichlaser mittels Photomischens Frequenzen bis zu 3.8 THz generiert werden [83, 84]. Schwierigkeiten ergeben sich hauptsächlich bei der thermischen Stabilität der optoelektronischen Schalter und der damit begrenzten optischen Leistung, die von den Antennenstrukturen aufgenommen werden können [85]. Auch im Laufe dieser Arbeit wurde eine Antennenstruktur entwickelt, die bei geringer Leistungsaufnahme eine relativ hohe THz-Leistung abstrahlt (siehe nächster Unterabschnitt 2.3.1).

Von Keller et al [86] wird LTG GaAs als sättigbarer Absorber in Ultrakurzpulslasern für Pulsdauern kleiner < 7 fs eingesetzt. Hier hat es sich gezeigt, daß für diese Anwen-

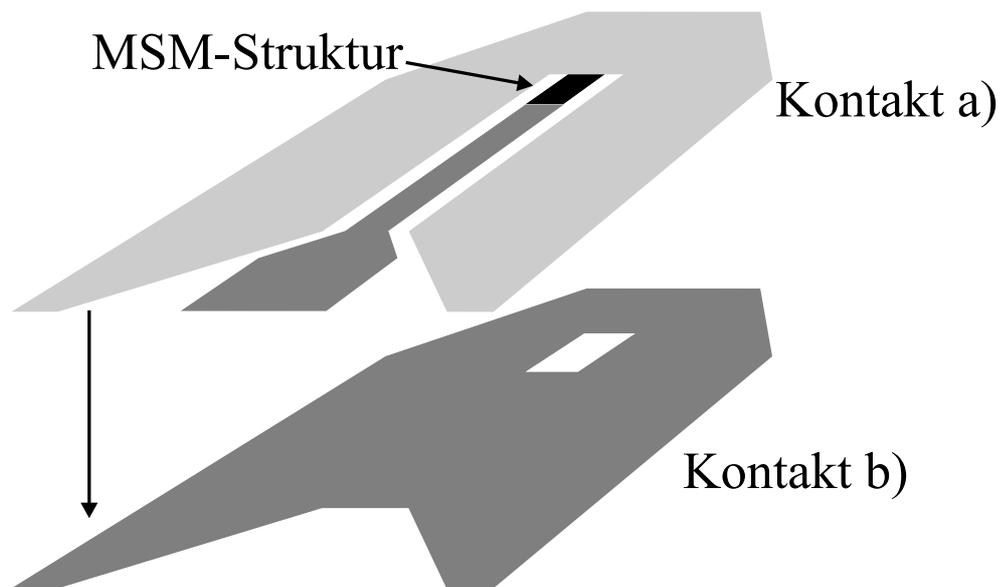


Abbildung 2.9.: Struktur der Antenne: Die MSM-Struktur ist schwarz eingezeichnet. Die Kontakte liegen aufeinander. Kontakt a) ist durch eine 1 μm dicke Polymidschicht von Kontakt b) isoliert. Der Mittelsteg im oberen Bildteil gehört zu Kontakt b).

dung nicht ausgeheiltes Material aufgrund höherer nicht sättigbarer Absorptionen nicht geeignet ist.

Für eine Übersicht zukünftiger Einsatzmöglichkeiten von LTG GaAs sei auf [17] und Referenzen darin verwiesen.

2.3.1. Design einer Patchantenne

Im Rahmen dieser Arbeit ist in Zusammenarbeit mit dem Institut für technische Physik I der Friedrich Alexander-Universität Erlangen eine Patchantenne für den THz-Bereich entwickelt worden. Die Ergebnisse werden an dieser Stelle kurz zusammengefasst. Die Antenne ist ein Beispiel für die Anwendung von ausgeheiltem LTG GaAs als zentrales Material in einem optoelektronischen Bauelement. Für detailliertere Analysen sei auf [87, 88] verwiesen.

Elektromagnetische Strahlung im THz-Bereich kann durch Differenzfrequenzmischen zweier optischer Laserstrahlen erzeugt werden. Dazu werden die beiden Strahlen der im Dauerstrich betriebenen Laser auf eine Metall-Halbleiter-Metall-Fingerstruktur (MSM) fokussiert, deren Halbleitermaterial LTG GaAs ist. Sind die Laserfrequenzen um $\nu_1 - \nu_2 = \Delta\nu$ gegeneinander verstimmt, so wird die auf den optoelektronischen Schalter einfallende Gesamtintensität mit der Schwebungsfrequenz moduliert. Die momentane Intensität auf

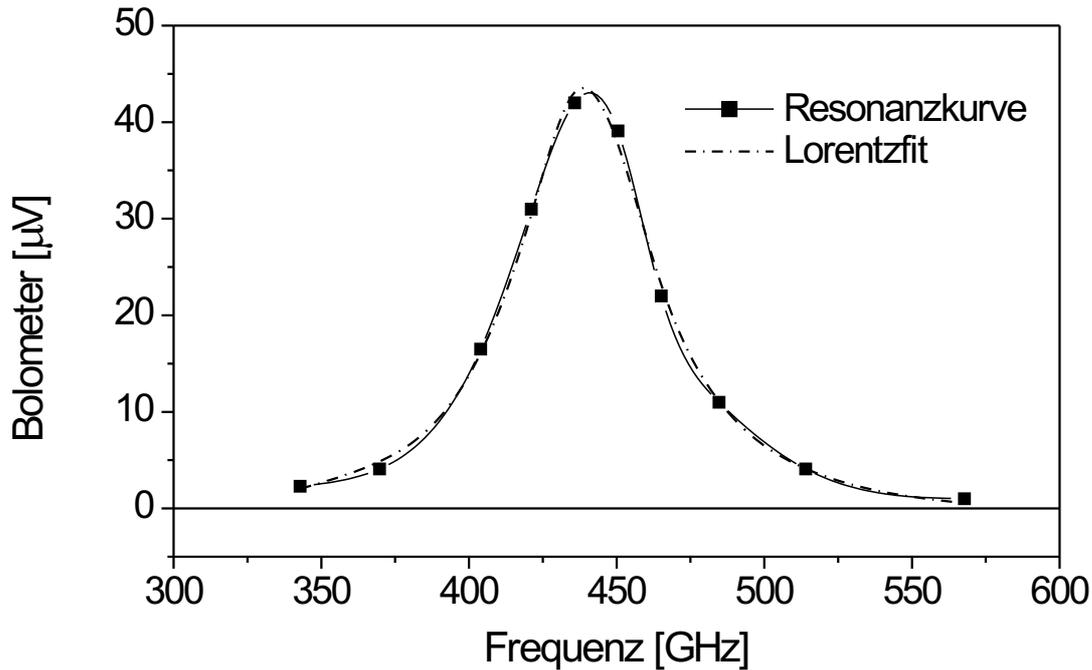


Abbildung 2.10.: Resonanzkurve der Patchantenne mit einem Fingerabstand von $4 \mu\text{m}$ bei konstanter Vorspannung und Anregeleistung sowie eine numerisch angepasste Lorentzkurve mit einem Resonanzmaximum bei 442 GHz und einer Breite von 54 GHz .

dem Schalter ist durch

$$P_i(t) = P_0 + 2\sqrt{P_1 P_2} [\cos(2\pi\Delta\nu t) + \cos(2\pi(\nu_1 + \nu_2)t)] \quad (2.9)$$

gegeben [89]. Die größte Modulationstiefe wird bei gleichen Intensitäten der beiden Pulse erreicht. Entscheidende Bedeutung für die Eigenschaften einer Antenne kommt der Antennengeometrie zu [90]. Der Aufbau der untersuchten Antenne ist in Abbildung 2.9 dargestellt: Die beiden für die Abstrahlung notwendigen Metallarme sind übereinander gelegt und durch eine $1 \mu\text{m}$ dicke Polymidschicht gegeneinander isoliert. Der in der Abbildung erkennbare Mittelsteg, der als elektrische Zuführung zur MSM-Struktur dient, gehört zum unteren Kontakt. Die MSM-Struktur selber hat eine Abmessung von $20 \times 20 \mu\text{m}$. Der gesamte Schalter besitzt eine Ausdehnung von $380 \times 420 \mu\text{m}$. Nach einem epitaktischen Lift-off (siehe Anhang A) wird die Antennenstruktur auf ein Glasplättchen aufgebracht.

Zur Erzeugung der THz-Strahlung werden die beiden gegeneinander verstimmt Laserstrahlen, wie sie der in Kapitel 3.1 beschriebene Zweifarben-Dauerstrichlaser liefert, auf die vorgespannte MSM-Struktur fokussiert. Die THz-Intensität wird mittels

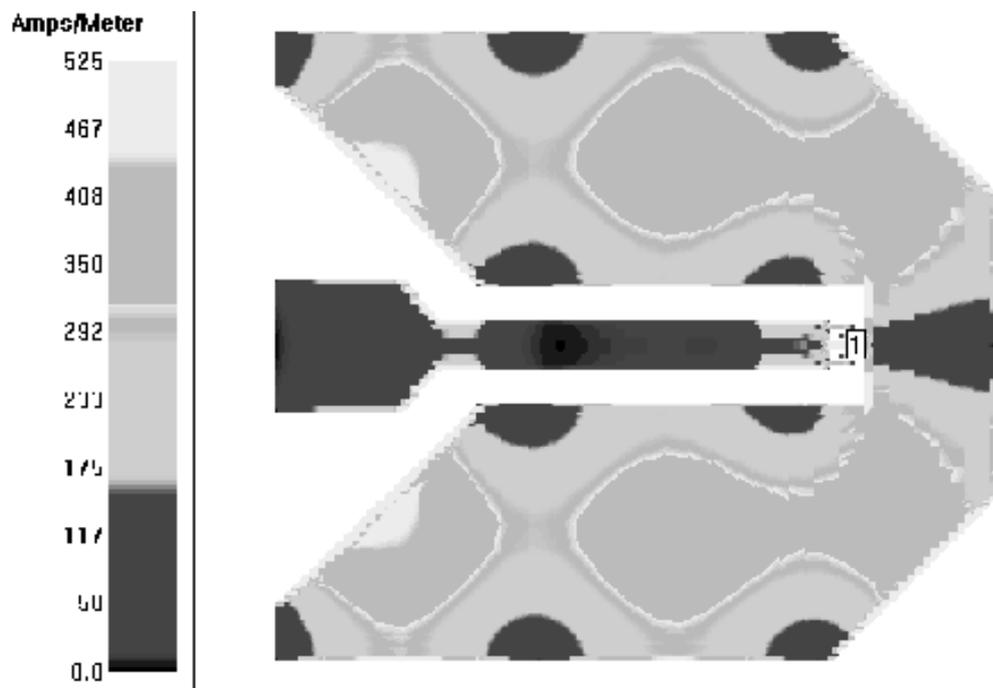


Abbildung 2.11.: Räumliche Verteilung der Stromamplitude bei resonanter Anregung von 460 GHz. Der Mittelsteg ist stromlos.

eines Helium gekühlten Bolometers detektiert. Abbildung 2.10 zeigt die jeweilige THz-Abstrahlung in willkürlichen Einheiten für verschiedene Differenzfrequenzen. Es zeigt sich eine Resonanzkurve, die sich sehr gut durch eine Lorentzkurve anpassen läßt. Bei einer Zentralfrequenz von 442 GHz und einer Breite von 54 GHz ist die Antenne für diesen Frequenzbereich sehr schmalbandig [91]. Experimentell läßt sich zeigen, daß die THz-Strahlung im Fernfeld entlang des Mittelsteges polarisiert ist, wie es auch die Simulationsrechnungen ergeben. Diese wurden von Prof. V. Krozer von der Technischen Universität Chemnitz durchgeführt. Sie basieren auf einer Vollwellenanalyse. Abbildung 2.3.1 zeigt das Ergebnis einer solchen Analyse. Aufgetragen ist die räumliche Verteilung der Stromamplitude bei einer resonanten Anregung, die sich nach der Simulation bei 460 GHz befindet. Die maximal abgestrahlte Leistung der Antenne reicht mit nachgewiesene 150 nW nahe an heutige Grenzen von $1 \mu\text{W}$ für Photomischer heran [85]. Hier kann für die Zukunft mit erheblichen Verbesserungen gerechnet werden. So kann die Leistungsaufnahme des Schalters sicher um einen Faktor zwei erhöht werden. Es sind ferner optimierte Antennenstrukturen geplant, bei denen eine Impedanzanpassung der Zuleitungen zur MSM-Struktur berücksichtigt ist.

2.4. Alternative Materialien

Neben dem bisher vorgestellten bei niedrigen Temperaturen gewachsenen GaAs werden in der Literatur eine ganze Reihe Alternativen untersucht und vorgeschlagen. Dabei stehen kurze Ladungsträgerlebensdauern im Vordergrund. Ausgehend vom Ansatz, daß hohe Störstellendichten für diese Eigenschaft verantwortlich sind, sind Ionenimplantationen verschiedenster Arten in Diskussion. So erreicht man mit Ga-Ionen-Beschuß von Standard GaAs Subpikosekundenrelaxationszeiten [92]. Des weiteren gibt es Untersuchungen mit Ar-Ionen [93] mit publizierten Zeiten unter 0.8 ps. Keine der Implantationsmethoden kann jedoch an die Qualität von LTG GaAs heranreichen. Weder eine homogene Implantation noch eine hohe Qualität des Kristallgitters, was mit Blick auf schnelle optoelektronische Bauelemente wichtig ist, werden erreicht. Bekannt ist hier beispielsweise die geringe Durchbruchfeldstärke von den bereits erwähnten SOS-Antennen.

Die bis heute einzig wirkliche Alternative scheint ein Wachstum bei reduzierten Temperaturen von GaAs mit gleichzeitiger extrem hoher Dotierung um $1 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$ mit Berillium (Be) zu sein. Die Idee des Einbaus der hohen Be-Dichte in die GaAs-Matrix ist es, durch den Akzeptor Be die in etwa der gleichen Dichte vorhandenen neutralen As_{Ga}^0 zu kompensieren und so die Dichte der für die kurzen Relaxationszeiten mit verantwortlich gemachten ionisierten As_{Ga}^+ -Defekte zu erhöhen. Damit ist zur Reduktion der As_{Ga}^0 -Defekte kein Tempersschritt mehr nötig. Gleichzeitig kann das Material semiisolierend hergestellt werden. Von auf diese Art hergestelltem GaAs werden extrem kurze Ladungsträgerlebensdauern von 0.1 ps berichtet [94, 95]. Auch hier muß angemerkt werden, daß ein kristallines Wachstum nur bis ca. 400 nm möglich erscheint. Ferner ergeben sich noch erheblich größere Probleme in der Reproduzierbarkeit des Materials als bei LTG GaAs ohne Be-Dotierung. Es bleibt festzuhalten, daß für Be-dotiertes LTG GaAs der Weg zu einem sinnvollen industriellen Einsatz erheblich weiter erscheint als für ausgeheiltes LTG GaAs.

3. Experimentelle Techniken

Die Untersuchung ultraschneller elektronischer Dynamiken in Materie, die sich auf Pikosekunden- und Femtosekundenzeitskalen abspielen, ist nicht auf rein elektronische Weise möglich. Sowohl die initiale Präparation eines Zustandes als auch die Aufnahme seiner zeitlichen Änderung macht den Einsatz optischer Korrelationsmeßtechniken erforderlich. Dazu stehen heutzutage Festkörperlaser mit Pulslängen bis hinunter zu einigen Femtosekunden zur Verfügung. Die in dieser Arbeit verwendeten Anrege/Abfrage (engl.: pump probe) Techniken sind vor allem wegen der hohen Spitzenintensitäten und der hohen Stabilität der Laser nicht nur auf das Emissionsspektrum des Lasermediums beschränkt, sondern lassen sich durch nichtlineare Konversionsprozesse in geeigneten Kristallen auf andere Spektralbereiche erweitern. Die Erzeugung eines zum Anregepuls spektral geänderten Abfragepulses ergibt prinzipiell neue Einsichten bezüglich der elektronischen Dynamik des betrachteten Systems, da so andere Übergänge abgetastet werden, die die optische Korrelationen auf andere Art und Weise beeinflussen.

In diesem Kapitel werden die Grundlagen der in der vorliegenden Arbeit verwendeten experimentellen Techniken erläutert. Zuerst werden die benutzten Lasersysteme mit ihren Kenndaten vorgestellt, um die unterschiedlichen Einsatzmöglichkeiten zu verdeutlichen. Thema des Abschnittes 3.2 ist die Grundlagen der Anrege/Abfrage-Spektroskopie, die die wesentliche zeitaufgelöste Untersuchungsmethode dieser Arbeit ist. In den beiden letzten Abschnitten werden Modifikationen der Anrege/Abfrage-Spektroskopie erläutert, die es ermöglichen, unter bestimmten Voraussetzungen elektrische Feldänderungen auf einer mesoskopischen Längenskala in den Materialien abzutasten bzw. transiente elektromagnetische THz-Felder zu erzeugen und zu detektieren. Besonderheiten einzelner Experimente werden jeweils am konkreten Beispiel bei Bedarf in den Ergebniskapiteln beschrieben.

3.1. Die Lasersysteme

Laser hoher Wiederholrate Aufgrund ihrer vergleichsweise leichten Handhabbarkeit und der hohen Stabilität haben sich Festkörperlaser als Standardlaser in der Kurzzeit-

spektroskopie etabliert, was insbesondere für den Titan dotierten Saphir-(Ti:Saphir)-Laser mit seiner erstmaligen Realisierung als gepulster Laser im Jahr 1990 gilt [96]. Bei einem Emissionsspektrum des Ti:Saphir-Kristalls von 710 nm bis 980 nm können Pulse von weniger als 5 fs Länge erzeugt werden [97]. Dies ermöglicht es, ultraschnelle elektronische Prozesse, wie sie sich beispielsweise in Halbleitern abspielen, zu untersuchen.

Die durch die Resonatorlänge L vorgegebenen möglichen Eigenmoden eines PulsLasers werden über einen nichtlinearen Prozeß gekoppelt. Als quasi instantaner Prozeß wird beim Ti:Saphir-Kristall der Kerr-Effekt ausgenutzt. Aufgrund der transversalen Intensitätsverteilung der Leistung in den Moden bewirkt der Kerr-Effekt bei einer genügend hohen Intensität im Resonator ein transversales Brechungsindexprofil im Kristall. Der so entstehende Linseneffekt verursacht für jede Lasermode eine unterschiedliche Divergenz. Die damit im Resonator hervorgerufene räumliche Trennung der Moden kann z.B. mittels einer Blende zur Selektion der gekoppelten Moden genutzt werden. Diese sind jedoch nur dann propagationsfähig, wenn Dispersionsunterschiede über das Laserspektrum während eines Resonatorumlaufes ausgeglichen werden. Dies bedeutet, daß der optische Weg aller gekoppelter Moden im Resonator gleich ist. Eine Standardmethode der Dispersionskontrolle ist der Einbau einer Prismensequenz in den Resonator. Für Pulsdauern unterhalb von ca. 25 fs hat sich der Einsatz von dielektrischen Spiegeln mit definiert eingestellten Dispersionsverhalten (dispersive Spiegel, engl.: *chirped mirrors*¹) als beste Methode erwiesen. Zusätzlich ermöglichen diese Spiegel auch eine Erhöhung der Wiederholrate $\nu_{\text{rep}} = 2c/L$ des Lasers: Bei Verwendung einer Prismensequenz ist eine Verkürzung der Resonatorlänge – was einer Erhöhung der Wiederholrate entspricht – unterhalb des Prismenabstandes, der größer als 30 cm sein muß, nicht möglich.

Für die meisten in dieser Arbeit gezeigten zeitaufgelösten Messungen bei einer hohen Wiederholrate wurden kommerzielle Ti:Saphir-Laser der Firma SPECTRA PHYSICS des Modells TSUNAMI verwendet. Bei einer zusätzlichen externen Prismenkompression liefern die Laser nahezu Bandbreite begrenzte Pulse² von 30 bis 50 fs. Mit der externen Prismensequenz kann die Dispersion von optischen Komponenten des Experiments effektiv ausgeglichen werden. Die spektrale Halbwertsbreite variiert von 15 bis 30 nm je nach gewählter Zentralwellenlänge. Die Pulse sind mittels zweier Spiegelsätze durchstimmbare im Wellenlängenbereich von 740 nm bis 950 nm. Bei einer Wiederholrate von 82 MHz und einer mittleren Ausgangsleistung von einem Watt werden somit Pulsenergien in der Größenordnung von 10 nJ erreicht. Eine wesentliche Rolle für das nachher im Experiment erreichbare Verhältnis vom Signal- zum Rauschpegel S/N (engl.: *Signal-to-Noise*)

¹Chirp bedeutet, daß die spektralen Komponenten eines Pulses sich zeitlich innerhalb diese Pulses ändern.

²Wesentlich für Bandbreite begrenzte Pulse ist, daß sie keine zeitliche Änderung der spektralen Komponenten innerhalb des Pulses aufweisen. Dies garantiert für spektral integrierende Experimente die bestmögliche Zeitauflösung.

kommt dem Pump-Laser des Ti-Saphir-Kristalls zu. Eine Anzahl von Experimenten ist mit einem (All-Line) Ar^+ -Ionen-Laser durchgeführt worden, dessen Emissionslinien im Bereich der maximalen Absorption des Ti:Saphir-Kristalls liegen. Der Übergang bei Pump-Lasern zu modernen Dioden-gepumpten Festkörperlasern wie dem Modell MILLANIA der Firma SPECTRA PHYSICS verbessert das Verhältnis S/N um ein bis zwei Größenordnungen. Das Rauschen wird dann fast ausschließlich von der Meßelektronik bestimmt.

Bei einigen Referenzmessungen kam ein spezieller Laser, der am Institut für Halbleitertechnik II an der RWTH Aachen entwickelt wurde, zum Einsatz [98]. Besonderes Merkmal ist seine hohe Wiederholrate von 1.6 GHz, was einer Resonatorlänge von nur 25 cm entspricht. Der zeitliche Abstand zweier Pulse beträgt dabei also nur noch 625 ps. Im Gegensatz zur linearen Resonatorgeometrie des TSUNAMIS wurde für diesen Laser ein Ringresonatordesign gewählt. Sowohl die interne als auch die externe Dispersionskontrolle erfolgt über dispersive Spiegel und liefert bandbreitebegrenzte 25 fs-Pulse bei einer Zentralwellenlänge um 800 nm. Die Pulsenergie ist mit einigen pJ um den Faktor der erhöhten Wiederholrate vermindert. Nachteilig ist die schlechte Wellenlängendurchstimmbarkeit des Lasers. Mittlerweile wird der Laser auch von der Firma GIGAOPTICS vertrieben.

Die Beschränkung eines Ti:Saphir-Lasers auf den nahen Infrarotbereich kann durch den Einsatz nichtlinearer Kristalle überwunden werden. Für Experimente, die ultrakurze Pulse im Wellenlängenbereich um $1.5\mu\text{m}$ benötigen, steht ein kommerzieller optisch-parametrischer Oszillator (OPO) der Firma SPECTRA PHYSICS mit der Typbezeichnung OPAL zu Verfügung. Als Pumpquelle dient der Ti:Saphir-Laser, dessen Pulse mit der Fundamentalenergie $\hbar\omega_f$ in einem LiB_3O_5 (LBO)-Kristall in Pulse der Energien $\hbar\omega_s$ (Signal) und $\hbar\omega_i$ (Idler) aufgeteilt werden. Um die notwendige Pumpleistung von ca. 2 Watt aufbringen zu können, ist ein spezieller TSUNAMI-Auskoppelspiegel mit angepaßter Transmissivität zu verwenden. Da nur der kurzwelligere Anteil, der im allgemeinen als *Signal* bezeichnet wird, in einem Resonator geführt wird, handelt es sich um einen einfach resonanten OPO. Für die Prozesse im LBO-Kristall müssen Energie- und Impulsbilanz gelten:

$$\begin{aligned}\hbar\omega_f &= \hbar\omega_s + \hbar\omega_i, \\ \mathbf{k}_f &= \mathbf{k}_s + \mathbf{k}_i.\end{aligned}$$

Für den Dauerbetrieb ist die Resonatorlänge bis auf wenige Mikrometer genau auf die Resonatorlänge des Ti:Saphir-Lasers zu synchronisieren. Zu diesem Zweck ist der OPO-Resonator frequenzstabilisiert: Eine geänderte Resonatorlänge bedingt eine Verschiebung der Signalfrequenz aufgrund einer geänderten Phasenanpassung im Kristall. Elektronisch wird so über einen Spiegel, der auf einem Piezokristall montiert ist, die Resonatorlänge nachgeregelt. Über die Temperaturabhängigkeit des Brechungsindex des

biaxialen LBO-Kristalls und einer Nachregelung der Resonatorlänge kann die gewünschte Wellenlänge eingestellt werden. Als besonders ungünstig bei kritischen Messungen erweist sich eine Frequenzdrift bzw. ein Frequenzjitter des TSUNAMI-Pumplasers, da die Frequenzstabilisierung des OPALS auf dessen Zentralwellenlänge kalibriert ist. Bei der beim TSUNAMI üblichen Selektion der Zentralwellenlänge über einen Spalt zwischen einem Prismenpaar sind diese Fluktuationen in der Zentralfrequenz besonders ausgeprägt. Dies macht sich durch ein größeres Rauschen des OPALS bemerkbar. Da sich Intensitätsschwankungen des Ar⁺Ionen-Lasers auf den Kerr-Linsen-Effekt auswirken, ist auch die Divergenz der Moden und damit die Frequenzauswahl mittels eines Spaltes davon betroffen. Aus diesem Grund hat sich der Umbau des TSUNAMI-Lasers von einem Spalt auf einen Lyot-Filter zur Wellenlängenselektion als sehr hilfreich erwiesen, da hier räumliche Modenänderungen keinen Einfluß haben und die Zentralwellenlänge auch über längere Zeit stabil ist.

Mit zwei Spiegelsätzen – einmal für Signalwellenlängen von 1.1 μm bis 1.3 μm und einmal für den Bereich zwischen 1.3 μm bis 1.6 μm – sind Pulslängen zwischen 70 fs und 250 fs je nach Zentralwellenlänge des OPAL erreichbar. Bei einer Pumpleistung des TSUNAMIS von 2 W beträgt die Pulsenergie des Signalpulses – wieder abhängig von der OPAL-Zentralwellenlänge – 1.2 bis 3 nJ. Der Variation der Zentralwellenlänge des TSUNAMI sind dabei mit 0.8 bis 0.81 μm sehr enge Grenzen gesetzt.

Laser niedriger Wiederholrate Mittlerweile sind Kurzpulslaser im fs-Bereich mit Pulsenergien von einigen Millijoule pro Puls kommerziell erhältlich. Solch eine hohe Pulsenergie erhält man jedoch nur auf Kosten der Wiederholrate des Lasers, denn nur eine längere Pumpzeit des Kristalls ermöglicht das Erreichen von Spitzenleistungen im Laserpuls von bis zu 10 GW. Für die im Abschnitt 6 vorgestellten Messungen steht ein Verstärker des Modells CPA 2001 der Firma CLARK zur Verfügung. Hier handelt es sich um einen mehrstufigen regenerativen Verstärker. Als Seed-Puls (siehe [99]) des ebenfalls auf Basis eines Ti:Saphir-Kristalles funktionierenden Verstärkerresonators dient ein fs-Puls eines Faser-Lasers, dessen Pulsenergie wenige nJ beträgt. Um eine Zerstörung des Kristalls aufgrund der hohen Spitzenleistung, die sich im Verstärkerresonator aufbaut, zu vermeiden, wird der Seed-Puls vor dem Einkoppeln in den Resonator mittels eines Gitterpaares auf mehrere Pikosekunden dispergiert, was die maximale Pulsenergie stark senkt. Die Inversion im Ti:Saphir-Kristall wird über einen gepulsten Nd:YAG-Laser erzeugt. Die Auskopplung des nach mehreren Resonatorumläufen auf eine Pulsenergie von ungefähr einem mJ verstärkten nicht bandbreitebegrenzten Pulses erfolgt über eine elektronisch angesteuerte Pockelszelle. Über eine nachgeschaltete Gitterpulscompression erhält man optimal 150 fs-Pulse. Das Spektrum des CPA 2001 ist im wesentlichen durch den Seed-Puls vorgegeben und ist um 775 nm zentriert. Die geringe Wiederholrate von einem Kilohertz vermindert das Signal- zu Rausch-Verhältnis beim Experiment deut-

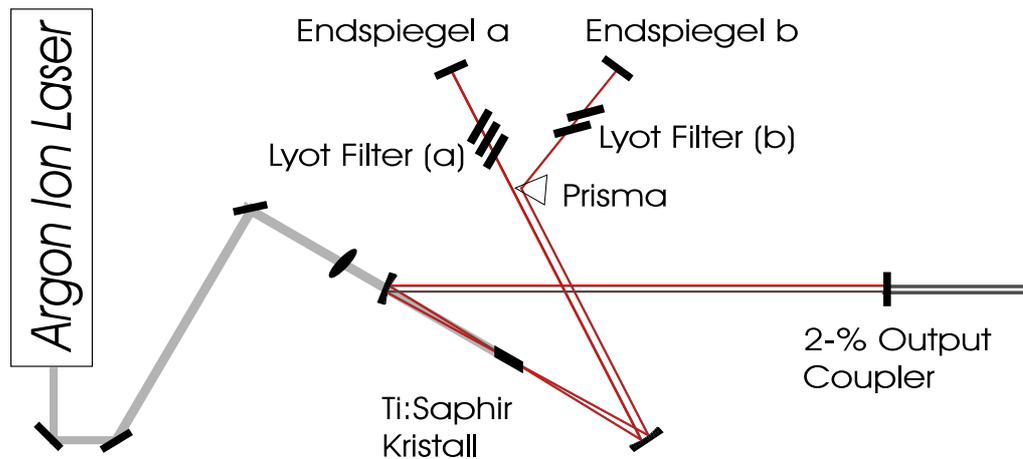


Abbildung 3.1.: Resonatorgeometrie des auf zwei Frequenzen laufenden Dauerstrichlasers. Mit den Lyotfiltern (a) und (b) können die Frequenzen unabhängig voneinander gewählt werden.

lich gegenüber z.B. Experimenten mit dem TSUNAMI. Dieser Nachteil wird wegen der Möglichkeiten, die ein solches Verstärkersystem bietet, in Kauf genommen. In Abschnitt 6 wird ein Teil der CPA 2001–Leistung beispielsweise zur Erzeugung eines intensiven THz-Pulses und ein zweiter Teil zur intensiven flächigen optischen Anregung von LTG GaAs–Proben verwendet. Vergleichbare Experimente sind mit den um einen Faktor 10^5 kleineren Pulsenergien des TSUNAMI nicht möglich.

Zweifarbendauerstrich–Laser Bereits in Abschnitt 2.3.1 wurde der Einsatz eines optoelektronischen Schalters in Form einer Patchantenne zur Erzeugung von Strahlung im THz-Bereich demonstriert. Zum Frequenzmischen kommt ein Dauerstrichlaser auf Basis eines Ti:Saphir-Kristalles zum Einsatz, der am Physikalischen Institut der J.W.-Goethe-Universität von K. Siebert entwickelt wurde [100]. Durch die spezielle Geometrie des Resonators ist es möglich, zwei unabhängig durchstimmbare Laserlinien im Bereich von 750 - 855 nm auszukoppeln. Der Resonatoraufbau ist in Abbildung 3.1 skizziert. Herzstück des Lasers ist eine räumliche Aufteilung des Resonatorstrahls mit Hilfe eines Prismas in zwei Anteile. In jedem Teilarm befindet sich ein Lyot-Filter zur unabhängigen Frequenzselektion. Je Farbe lassen sich Ausgangsleistungen von bis zu 125 mW erreichen. Mit Linienbreiten von weniger als 0.035 nm lassen sich Differenzfrequenzen von 20 GHz bis 13 THz einstellen. Mit Kohärenzlängen von mehr als 2 Metern bei den genannten Ausgangsleistungen ist dieser Dauerstrich–Laser heutigen Diodenlasern im gleichen Spektralbereich deutlich überlegen. Zusätzlich besteht zwischen den beiden Lasermoden über den Ti:Saphir–Kristall eine Kopplung bezüglich ihrer Intensitätsfluktuationen. Die-

se Kopplung ist bei einzelnen Laserdioden nicht gegeben und hat einen stabilisierenden Einfluß auf den Frequenzmischprozeß.

3.2. Anrege/Abfrage–Spektroskopie

Zeitaufgelöste Anrege/Abfrage–Experimente geben Auskunft über zeitliche Änderungen des linearen Absorptionskoeffizienten α und des Brechungsindex n eines Materials: Durch das induzierte Nichtgleichgewicht mittels eines intensiven Anregepulses ändern sich die optischen Eigenschaften des Materials. Der um die Zeitdifferenz Δt verzögerte Abfragepuls ist sensitiv auf die momentanen refraktiven und absorptiven Eigenschaften. Brechungsindex- und Absorptionsänderung Δn und $\Delta\alpha$ nach einer optischen Anregung sind über eine Kramers–Kronig–Relation miteinander verknüpft. Werden Photodetektoren zur Messung eingesetzt, so sind Lichtintensitäten die Meßgrößen im Experiment. Bei der Transmission des Abfragepulses durch eine Probe der Dicke d werden somit die transmittierten Intensitäten I_{TA} und I_{T0} mit bzw. ohne vorherige Anregung aufgenommen:

$$I_{TA} = I_{T0} e^{-\Delta\alpha d}. \quad (3.1)$$

Der Index TP ($T0$) soll andeuten, daß es sich um die transmittierte Intensität mit (ohne) Anregung handelt. Dieser Zusammenhang kann nur dann gültig sein, wenn auch die als Lambert–Beer Gesetz bekannte Beziehung

$$I_{T0} = I_0 e^{-\alpha d} \quad (3.2)$$

zwischen eingestrahelter Intensität an der Probenoberfläche I_0 und I_{T0} gültig ist. Aus dem Vergleich von I_{TA} und I_{T0} läßt sich die photoinduzierte Absorptionsänderung $-\Delta\alpha d$ berechnen. Hierbei muß die Intensität des Abfragepulses so klein gewählt werden, daß selbstinduzierte Absorptionsänderungen vernachlässigt werden können.

Üblicherweise werden statt Absorptionsänderungen in der Regel differentielle Transmissionsänderungen (DT) angegeben. Im allgemeinen ist die differentielle Transmission über

$$DT \equiv \frac{\Delta T}{T_0}(\Delta t) = \frac{T_{TA}(\Delta t) - T_0}{T_0} \quad (3.3)$$

definiert. T_0 gibt die Transmission ohne Anregepuls und entsprechen T_{TA} die Transmission mit Anregepuls an, womit die Identität $T_{TA}/T_0 \equiv I_{TA}/I_{T0} = \exp(-\Delta\alpha d)$ gilt. Bei optisch genügend dünnen Proben, die die Bedingung $\Delta\alpha d \ll 1$ erfüllen, kann die Exponentialfunktion entwickelt werden und die differentielle Transmission ist somit ein direktes Maß für die induzierte Absorption:

$$\frac{\Delta T}{T_0} = e^{-\Delta\alpha d} - 1 \approx -\Delta\alpha d. \quad (3.4)$$

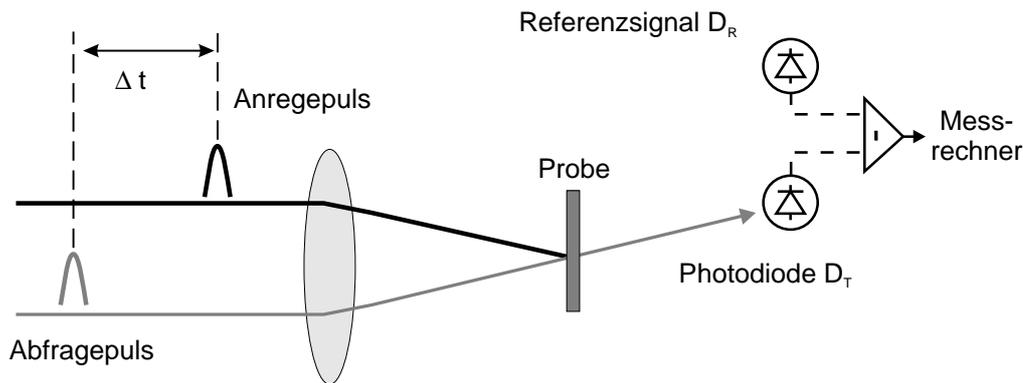


Abbildung 3.2.: Typischer Anrege– Abfrage-Aufbau. Es ist ein Transmissionsaufbau skizziert.

Wie bereits erwähnt, können Bedingungen auftreten, bei denen die hier gemachten Betrachtungen keine Gültigkeit mehr haben. Ist die Dicke der Probe deutlich geringer als die Absorptionslänge, die definiert ist als die Länge, bei der die Lichtintensität auf $1/e$ gesunken ist, so kann Gleichung (3.2) nicht mehr angewandt werden. Es treten Vielfachreflexionen an den Grenzschichten der Probe auf. Diese Fabry–Perot (FP) Interferenzen können einen starken Einfluß auf die transmittierte Intensität und damit auf das gemessene Signal haben. Die Wahl der Probendicke ist somit wesentlich bezüglich der Interpretation der Messungen. Für fast transparente Proben oder Wellenlängenbereiche, in denen die Probe transparent ist, muß eine alternative Datenanalyse erfolgen. Dies wird in Kapitel 5.3 genauer erläutert und durchgeführt.

Der prinzipielle Aufbau eines über das Spektrum des Abfragepulses integrierenden Anrege/Abfrage-Experimentes in Transmission ist in Abbildung 3.2 skizziert. Ein intensiver Anregepuls wird auf die Probe fokussiert. Mit einer variablen Zeitverzögerung trifft ein schwacher Abfragepuls auf die optisch angeregte Probenstelle. Der transmittierte Puls wird mit einer Photodiode detektiert. Die Bandbreite der benutzten Photodioden liegt mit ungefähr 5 MHz bei Experimenten mit dem TSUNAMI deutlich unter der Wiederholrate dieses Lasers. Für eine gegebene Zeitverzögerung Δt wird deshalb auch zeitlich über ungefähr 100 Pulse integriert. So werden Puls-zu-Puls-Schwankungen eliminiert. Der Abgleich der Referenzdiode zur Signaldiode wird ohne Anregepuls durchgeführt. Im Experiment kann so das Differenzsignal wesentlich höher verstärkt werden. Je nach verwendeter Meßtechnik wird die Zeitverzögerung des Abfragestrahles über einen Schrittmotor oder über einen auf einem Schwinger montierten Retroreflektor geändert. Bei der langsamen Änderung der Wegstrecke im ersten Fall wird der Anregestrahl mit einem Lichtzerhacker im kHz-Bereich moduliert. Das Differenzsignal kann dann über einen Lock-In-Verstärker extrahiert werden. Minimale Weglängenänderungen von zwei

Mikrometern, was einer Laufzeit des Lichtes von 6.6 fs entspricht, garantieren, daß die Zeitaufösung im Experiment allein durch die Pulslänge bestimmt wird. Bei der Nutzung des Schwingers ist man auf eine maximale Zeitverzögerung von 10 ps beschränkt, da nur der annähernd linearem Bereich der Auslenkung des Schwingers zur Messung genutzt werden sollte. Bei einer Frequenz des Schwingers von etwa 60 Hz wird über Langzeitschwankungen des Lasers gemittelt. Das Signal wird elektronisch gesampelt. Diese als Fast-Scan-Meßtechnik [101] bekannte Methode ermöglicht so ein besseres S/N bei gleicher Meßzeit gegenüber der Lock-In-Meßtechnik.

Die Kontrolle der Laserpulse erfolgt über die Bestimmung der Pulsdauer und des Spektrums. Aus der Energie-Zeit-Unschärfe folgt, daß ein zeitlich kurzer Puls nur über ein breites Spektrum realisiert werden kann. Dies ist eine notwendige, jedoch keinesfalls hinreichende Bedingung. Für zeitaufgelöste Experimente speziell im Subpikosekunden-Bereich kommt demnach der Überwachung des Bandbreiteproduktes $BP = \Delta\tau\Delta\omega$ eine wichtige Bedeutung zu. Im Idealfall eines sech^2 -Spektrums gilt $BP = 0.32$ [97]. Die Auto- bzw. Kreuzkorrelationen der Pulse sind am Ort der Probe zu messen, da die Dispersion der einzelnen optischen Komponenten zu einer deutlichen zeitlichen Verlängerung der Pulse aufgrund einer Phasenverschiebung einzelner Frequenzen untereinander führt. Als den zur Messung der Kreuzkorrelationen notwendigen nichtlinearen Prozeß kann man hier für das Nahinfrarote z.B. die Zweiphotonenabsorption in Galliumphosphid nutzen. Die bereits erwähnte externe Prismenkompression läßt sich jeweils so einstellen, daß das optimale BP erreicht wird. Um die Anregungsdichten, die im Experiment erreicht werden, abzuschätzen, wird der Laserfokus mittels kalibrierter Lochblenden von 10 bis 200 μm Durchmesser an der Probenstelle bestimmt. Ferner werden die Fokusgrößen für die Anregepulse größer als für die Abfragepulse gewählt, um ein lateral möglichst homogenes Anregungsprofil zu erhalten.

Ein wesentlicher Schwerpunkt des Kapitels 5 ist die Untersuchung von Dynamiken in LTG GaAs, die nur bei unterschiedlicher Wahl von Anrege- und Abfragefrequenz möglich ist. In neuester Zeit sind einige Beispiele in der Literatur zu finden, die die besonderen Möglichkeiten der zeitaufgelösten Zweifarben-Spektroskopie nutzen [102]. Liegen die gewünschten Frequenzen hierbei innerhalb des Spektrums der TSUNAMI-Pulse, kann dies über optische Interferenzfilter geschehen [103], wie es genauer in Abschnitt 5.2 beschrieben wird. Mit dem System OPAL/TSUNAMI sind Energieunterschiede von mehreren 100 meV möglich. Die Situation stellt sich jedoch insofern als nicht unproblematisch heraus, als das zum Betrieb des OPALS die nahezu volle TSUNAMI-Leistung in den LBO-Kristall eingekoppelt werden muß. Ist die benötigte Leistung im Anregepuls (TSUNAMI) mit 10 mW gering, so wird sie günstiger Weise vor dem OPAL mittels eines geeigneten Strahlteilers ausgekoppelt (Möglichkeit c in Abbildung 3.3). Auf diese Art können in Kombination mit der Fast-Scan-Meßtechnik Signale bis hinunter zu einer Größe von 10^{-7} aufgelöst werden. Diese Methode wurde im Rahmen dieser Arbeit zur Be-

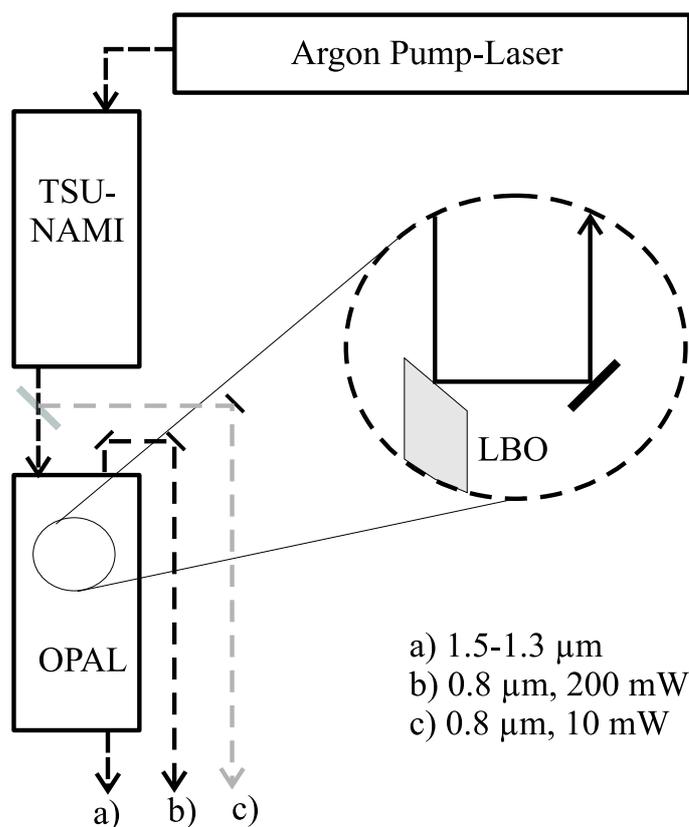


Abbildung 3.3.: Auskopplung der benötigten Anregepulse für Zweifarbenexperimente: Bei Möglichkeit b werden 200 mW Leistung als Reflex vom LBO ausgekoppelt. Möglichkeit c liefert 10 mW bei saubererem Modenprofil.

stimmung räumlicher Oszillationsamplituden in Halbleiterübergittern verwendet [104], soll hier jedoch nicht näher behandelt werden. Sind höhere Anregungsdichten erwünscht oder erforderlich, so wird der am LBO-Kristall reflektierte TSUNAMI-Puls genutzt, wie Möglichkeit b in 3.3 zeigt. Die mittlere Leistung des reflektierten Strahls beträgt 200 mW. Aufgrund der Kristallreflexion besitzt der Strahl jedoch geringere Modenqualität. Dies vermindert erfahrungsgemäß auch das Signal-zu-Rausch-Verhältnis.

3.3. Feldsensitive zeitaufgelöste Spektroskopie

Die Dynamik photoinduzierter Ladungsträger wird durch die Anwesenheit statischer elektrischer Felder beeinflusst. Andererseits kann durch die Beobachtung der zeitlichen Änderung des elektrischen Feldes Rückschlüsse sowohl auf die Dynamik der Ladungsträger als auch die Gitterstruktur des Materials gewonnen werden. Da sowohl die ange-

regten Ladungsträger als auch die Änderung des elektrischen Feldes die Absorption einer Probe gleichzeitig beeinflussen, ist eine Trennung dieser Effekte in den bisher beschriebenen Anrege/Abfrage-Experimenten nur schwer und unter zu Hilfenahme aufwendiger theoretischer Modelle möglich. Hier bietet der lineare elektrooptische (Pockels-) Effekt die Möglichkeit, beide Beiträge sauber voneinander zu trennen.

Der Pockels-Effekt basiert auf der Suszeptibilität 2. Ordnung $\chi^{(2)}$ [105]. Demnach ist sein Beitrag in zentrosymmetrischen Kristallen gleich Null. In nicht zentrosymmetrischen Kristallen kann die auftretende Doppelbrechung aufgrund des Pockels-Effekts, die eng mit der Symmetrie des Kristalls verknüpft ist, genutzt werden, isotrope von anisotropen Änderungen zu trennen. Die elektrooptischen Brechungsindexänderungen werden durch den elektrooptischen Tensor r_{ij} beschrieben [105]. Im Hauptachsensystem des Kristalls ist die Änderung des Brechungsindexellipsoiden gegeben durch:

$$\Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_i = \sum_{j=1}^3 r_{ij} E_j \quad \text{mit } i = 1, \dots, 6. \quad (3.5)$$

Hier gibt E_j die Komponenten des elektrischen Feldes an. Für Kristalle der Zinkblendestruktur ($4\bar{3}m$ -Symmetriegruppe), zu der GaAs gehört, besteht der Tensor r_{ij} nur aus den drei nicht verschwinden identischen Elementen $r_{41} = r_{52} = r_{63}$. Bei auf (100) orientiertem GaAs-Substrat mittels MBE hergestellten GaAs-Kristallen, wie sie ausschließlich in dieser Arbeit genutzt werden, liegen die Hauptachsen des Brechungsindexellipsoiden entlang der $[0\bar{1}1]$ und $[011]$ Richtungen. Die Betrachtungen werden sich deshalb im weiteren auf ein elektrisches Feld parallel zur $[100]$ -Richtung beschränken. Mit dem elektrischem Feld ergibt sich eine Abhängigkeit des Brechungsindex in der (100)-Ebene zu:

$$n(\Theta, E_{[100]}) = n_0 - \frac{1}{2} r_{41} n_0^3 E_{[100]} \sin(2\Theta) \quad (3.6)$$

wobei n_0 der isotrope Brechungsindex ist. Die Situation ist in Abbildung 3.4 dargestellt. Θ ist der Winkel zur $[010]$ -Richtung. Der Wert von r_{41} ist in der Literatur für Experimente oberhalb der Bandkante mit $(1.6 \pm 0.2) \times 10^{-10} \text{ cm/V}$ angegeben [6]. Quadratische Beiträge können vernachlässigt werden, da der relevante Koeffizient 7 Größenordnungen kleiner ist.

Die notwendigen Modifikationen eines Anrege/Abfrage-Aufbaus zur Detektion einer Änderung des elektrischen Feldes in $[100]$ -Richtung sind in Abbildung 3.5 verdeutlicht. Die optischen Anisotropien lassen sich sowohl in Reflexions- als auch in Transmissionsgeometrie messen. Für die Reflexion wird ein linear polarisierter Abfragestrahl in einem 45 Grad Winkel zu den Hauptachsen des Brechungsindexellipsoiden genutzt, wie er in 3.4 eingezeichnet ist. Der reflektierte Strahl wird mittels eines polarisierenden Strahlteilers auf zwei Photodioden aufgeteilt, deren Differenzsignal das Meßsignal ist. Der Intensitätsabgleich der Dioden wird über eine $\lambda/2$ -Platte eingestellt. Dies entspricht einer

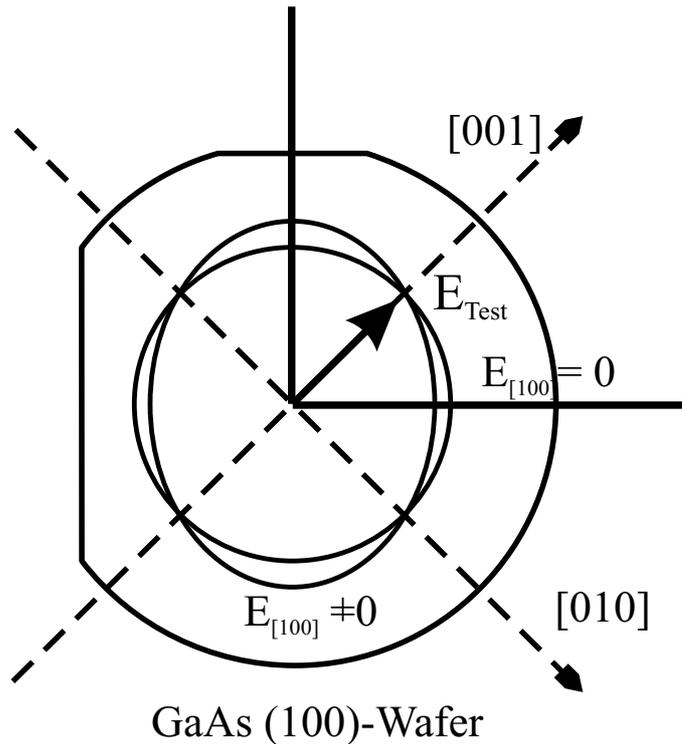


Abbildung 3.4.: Schnitt durch den Brechungsindexellipsoiden mit elektrischem Feld in (100)-Richtung bzw. ohne elektrisches Feld. Eingezeichnet ist ein (100)-GaAs-Wafer mit seinen Symmetrieachsen

Projektion des elektrischen Abtastfeldes auf die beiden Hauptachsen. Bei Transmissionsmessungen bietet sich die Verwendung eines zirkular polarisierten Abfragestrahls an. Mit der gleichen Analysatorkonfiguration kann so eine feldinduzierte Elliptizität detektiert werden. Diese Methode ist vor allem dann von Vorteil, wenn eine genaue Orientierung der Probe z.B. durch Präparationsschritte, die das Erkennen von Bruchkanten entlang der Symmetrieachsen verhindern, nur schwer möglich ist.

Das S/N-Verhältnis dieser Meßtechniken ist gegenüber Transmissions- und Reflexionsexperimenten deutlich besser, da im sehr kompakten Analysatorteil Fluktuationen des gleichen Pulses voneinander subtrahiert werden. In Verbindung mit der Fast-Scan-Meßtechnik sind Auflösungen von unter 10^{-7} erreichbar.

Zeitaufgelöste Experimente dieser Art in Reflexionsgeometrie werden als *Reflective Electro Optic Samplings* (REOS) bezeichnet. In GaAs können so Oberflächenfelder- und kohärente Phonodynamiken untersucht werden [106]: Ein kurzer Anregepuls induziert Elektronen und Löcher im Material. Liegt ein Oberflächenfeld vor, so findet eine Ladungsträgertrennung im Feldbereich statt. Dies führt zu einer Feldabschirmung, die mit

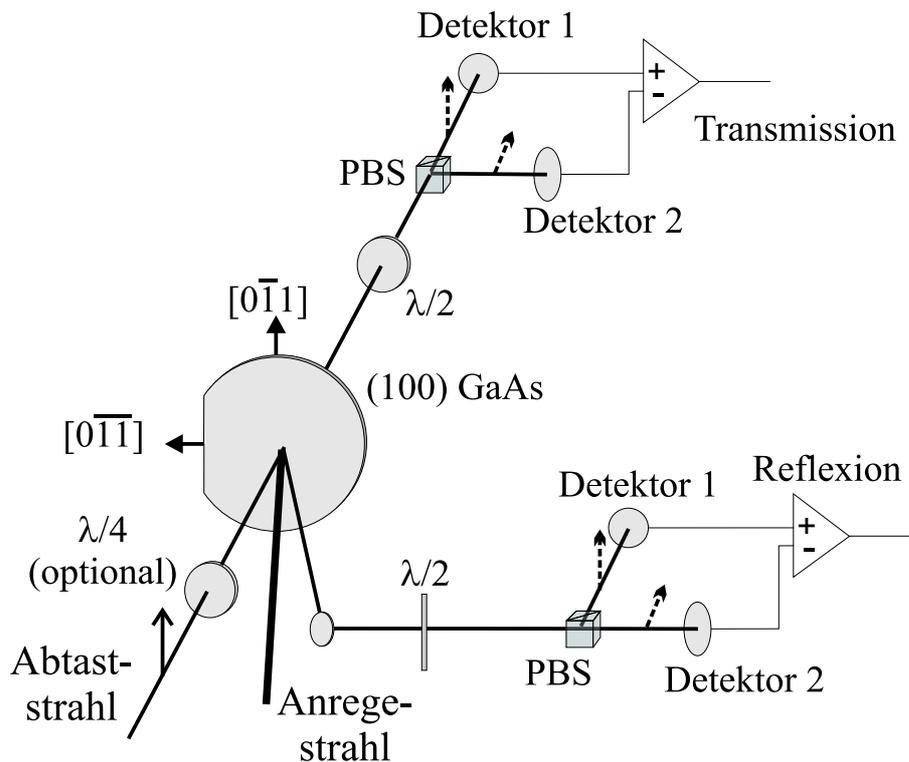


Abbildung 3.5.: Experimentelle Aufbauten zur Messung transientser Feldänderungen in Transmission sowie in Reflexion.

der beschriebenen Technik gemessen werden kann. Bei einer initialen Abschirmung, die unterhalb der LO-Phononperiode von 114 fs für GaAs liegt, werden kohärente Phononen generiert.

3.4. THz-Spektroskopie beweglicher Ladungsträger

Informationen über freie Ladungsträger sind wesentlich zum Verständnis von elektrischen Bauelementen. Bei optischen Anrege/Abfrage-Experimenten ist es im allgemeinen schwierig, wenn nicht gar unmöglich, reine Ladungsträgerdynamik im Sinne von relevanten Kenngrößen für Bauelemente wie Beweglichkeit oder Leitfähigkeit sauber von diversen konkurrierenden Effekten zu trennen. Für den Abtast-Strahl wäre genau dann eine für die Interpretation des Experimentes ideale Situation erreicht, wenn nur eine Größe das Signal bestimmt. Eine extreme Form der eben beschriebenen Zweifarben-Experimente liegt bei Wahl des Abtaststrahls im THz-Frequenzbereich vor. Die Energie von Ein-THz-Photonen ist mit 4 meV um einen Faktor von ca. 400 kleiner als die

zur Interband-Anregung von GaAs benötigten Photonenenergien oberhalb 1.42 eV. Damit sind diese Photonen zum einen nicht sensitiv auf Interbandeffekte jeglicher Art wie beispielsweise Bandkantenrenormierungen und mit Blick auf LTG GaAs reicht die Energie auch nicht zur Anregung eingefangener Ladungsträger aus Störstellen. Nur Intra-bandübergänge tragen zu Signalen bei.

Zur Realisierung eines geeigneten Anrege/Abfrage-Aufbaus gehört die Erzeugung des kurzen THz-Pulses selbst, da bis zum jetzigen Zeitpunkt entsprechende laborgerechte THz-Kurzpuls-Laserquellen nicht existieren. Eine Methode zur Erzeugung eines kohärenten THz-Pulses besteht in der kurzzeitigen Beschleunigung von Ladungsträgern in einem elektrischen Feld. Dazu wird eine Antenne mit großer Apertur genutzt (siehe unten), um die vorhandenen Pulsenergien des Verstärkers voll ausnutzen zu können. Die Apertur wird dabei vom Abstand zweier Elektroden, zwischen denen das notwendige Potential abfällt, bestimmt. Das Fernfeldprofil des THz-Pulses ist proportional zur Zeitableitung des optisch induzierten Stromes zwischen den Elektroden

$$E_{\text{THz}} \propto \int \frac{\partial j}{\partial t} dx dy dz, \quad (3.7)$$

wobei über den gesamten Emitter zu integrieren ist.

Im experimentellen Aufbau, der in Abbildung 3.6 skizziert ist, wird der Laserpuls des CPA-Verstärkers im Verhältnis (500:300:1) aufgeteilt. Der Anteil mit der höchsten Leistung dient dabei zur Erzeugung des THz-Pulses: Über ein Teleskop wird eine mit 3 Kilovolt vorgespannte GaAs-Wafer-Antenne homogen ausgeleuchtet. Die laterale Beschleunigung der photogenerierten Ladungsträger verursacht das Abstrahlen eines THz-Pulses. Die optische Leistung ist dabei so hoch, daß der Erzeugungsprozeß in Sättigung betrieben wird. Dies bewirkt, daß die THz-Amplitude unempfindlich gegenüber Intensitätsschwankungen der Verstärkerpulse wird. Aufgrund der großen Apertur der Antenne ist der THz-Puls nahezu kollinear. Die Elektrodengeometrie – zwei Kupferelektroden, die parallel zueinander verlaufen – hat zur Folge, daß der erzeugte Puls linear polarisiert ist. Eine genaue Charakterisierung der THz-Erzeugung und der Fokussiereigenschaften ist in [107] durchgeführt worden.

Der propagierende THz-Puls wird anschließend über eine Paraboloiden auf die Probe fokussiert. Parallel dazu wird der zweite optische Puls auf die Probe eingekoppelt. Die Detektion der transmittierten THz-Strahlung erfolgt mittels des dritten optischen Pulses (Abfragepuls). Hierzu wird der elektrooptische Effekt in einem Zinktellurid(ZnTe)-Kristall ausgenutzt [108]: Bei geeigneter Orientierung der Kristallachsen des ZnTe-Kristalls induziert das transiente THz-Feld eine zeitabhängige Doppelbrechung, die genau wie bei den im vorherigen Abschnitt erläuterten REOS/TEOS-Meßtechniken mit dem optischen Puls detektiert werden kann. Die Analysatoreinheit ist im Einsatz der Abbildung 3.6 vergrößert dargestellt. Das erhaltene Meßsignal ist nicht wie im optischen

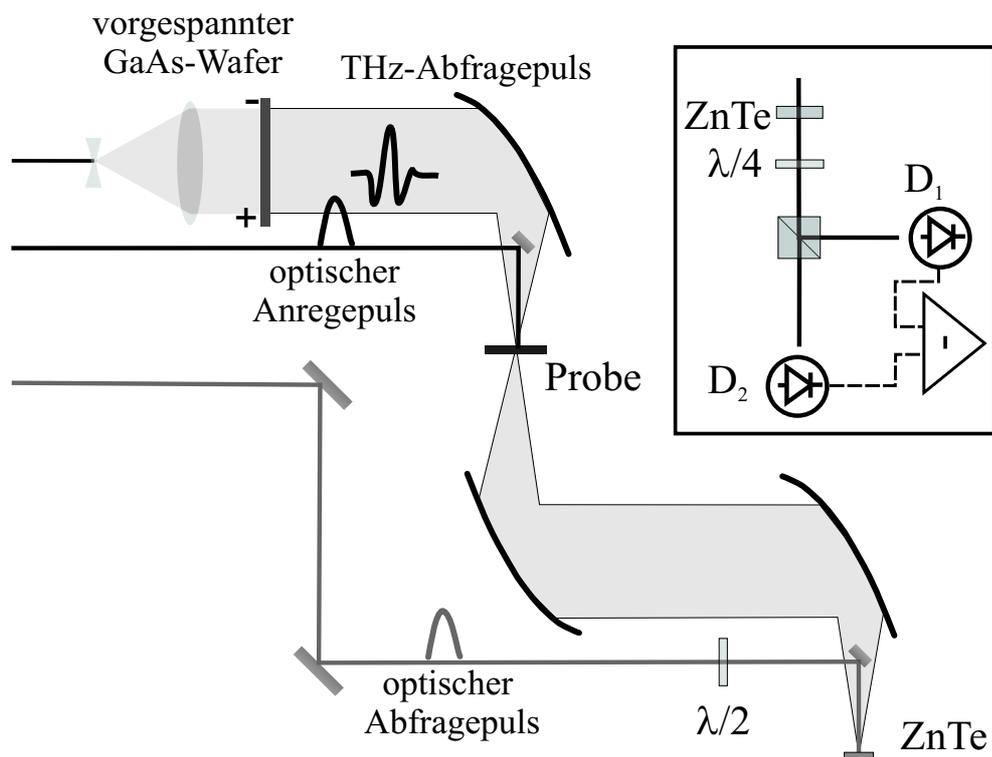


Abbildung 3.6.: Optischer Anrege- THz-Abfrage-Aufbau

Anrege/Abfrage-Aufbau die Intensität sondern das Signal ist direkt proportional zur elektromagnetischen Feldamplitude. Die Zeitauflösung ist wesentlich durch die Dicke des ZnTe-Kristalls bestimmt: Aufgrund der Dispersionsunterschiede zwischen optischem und ferninfrarotem Strahl machen sich für dickere Kristalle Laufzeitunterschiede bemerkbar. Mit einem dünneren Kristall kann somit eine höhere Zeitauflösung erzielt werden. Andererseits sinkt so auch die Empfindlichkeit der Analysatoreinheit, da die Wechselwirkungslänge kleiner wird. Im Experiment kommt ein 1 mm dicker Kristall zum Einsatz, der einen Kompromiß zwischen Sensitivität und Zeitauflösung (< 0.3 ps) darstellt.

Die Zeitverzögerungen zwischen den einzelnen Pulsen werden unabhängig voneinander über zwei verfahrbare Schrittmotoren eingestellt. Der Lichtzerhacker, der wahlweise den THz-Strahl oder den optischen Anregestrahl moduliert, ist mit 500 Hz phasengekoppelt auf exakt die Hälfte der Laserwiederholrate eingestellt.

4. Materialcharakterisierung

Die Herstellung von hochwertigem nichtstöchiometrischen GaAs stellt besondere Anforderungen an die verwendete MBE Anlage bezüglich der Genauigkeit der verwendeten Parameter. Hauptsächlich werden die Eigenschaften von LTG GaAs durch die vier Parameter BEP, Wachstumstemperatur T_g , Ausheiltemperatur T_a sowie Ausheilzeit bestimmt. Neben der Schwierigkeit, eine präzise Wachstumstemperatur einzustellen und zu ermitteln, ist besonders die Notwendigkeit zu nennen, einen verschwindenden Temperaturgradienten über den Wafer während der Aufdampfphase zu gewährleisten. Modifikationen einer Anlage gegenüber dem Wachstum von Standard GaAs dürfen sich dabei jedoch nicht nachteilig auf Wachstumsprozesse bei den sonst üblichen Temperaturen auswirken. Sind Vorgaben an die Eigenschaften des bei reduzierten Wachstumstemperaturen herzustellenden Materials gemacht, so können effiziente Meßmethoden zur individuellen Optimierung der Materialeigenschaften ausgewählt werden. Bei dem hier vorliegenden Interesse an schnellen optischen und optoelektronischen Schaltern sind neben Strukturanalysen vor allem Analysen der optischen Eigenschaften relevant.

In Zusammenarbeit mit dem Paul-Drude-Institut für Festkörperphysik in Berlin (Prof. Ploog) ist die Herstellung von LTG GaAs optimiert worden. Die Ergebnisse dieser Arbeit werden in den Abschnitten 4.1 und 4.2 vorgestellt. Herstellungsparameter für LTG GaAs, das neben einem hohen spezifischen Widerstand möglichst kurze Einfangzeiten freier Ladungsträger aufweist, werden in diesen Abschnitten angegeben. Dabei werden grundsätzliche Probleme des Herstellungsprozesses verdeutlicht. Die mikrostrukturelle TEM-Analyse des nächsten Abschnittes 4.3 bestätigt die hohe kristalline Qualität sowohl der GaAs-Matrix als auch der Arsenausscheidungen. Anschließend wird in Abschnitt 4.4 eine zeitaufgelöste optische – im Gegensatz zur TEM-Analyse nicht destruktive – Methode zum Nachweis der monokristallinen Struktur vorgestellt. Sie erlaubt zudem auch eine grobe Abschätzung der Störstellendichten. Im letzten Abschnitt 4.5 zeigen Dauerstrichanalysen zur Bestimmung der linearen Absorption die Besonderheiten von LTG GaAs. Insbesondere die Absorption unterhalb der Bandlücke erfährt bei einer Variation der Ausheiltemperatur von 200 °C bis zu 500 °C deutliche Änderungen. Diese werden diskutiert.

4.1. Einstellung der Herstellungsparameter

Bereits in Kapitel 1 ist als erstes Ziel für die Herstellung von LTG GaAs formuliert worden, in erster Linie eine kurze Einfangzeit optisch generierter Ladungsträger des LTG GaAs-Materials zu erreichen. Da der Herstellungsprozeß selbst nicht wie bei hohen Temperaturen gewachsenem Standard GaAs in einem selbstregulierenden Regime stattfindet, wirken sich Parameteränderungen in der Regel drastisch auf die Eigenschaften von LTG GaAs aus. Dies wurde bereits bei der Diskussion der einzelnen Parameter in Kapitel 2 eingehend erläutert.

Die Problematik der richtigen Wahl der Herstellungsparameter stellt sich wie folgt dar¹: Die einzelnen Parameter sind mit Blick auf die Materialeigenschaften nicht unabhängig voneinander. Ohne sinnvolle Anhaltspunkte ist somit deren Festlegung aufgrund der Größe des Parameterraumes kaum möglich.

Da für den Einsatz in schnellen optoelektronischen Bauelementen primär kurze Einfangzeiten freier Ladungsträger erwünscht sind, ist das Erreichen eines möglichst hohen As-Überschusses angestrebt. Zudem sollten kristalline Schichten von einem μm hergestellt werden können. Dies gewährleistet eine genügend hohe Lichtabsorption für Anregungen nahe der Bandlücke, wie sie hier betrachtet werden. Bis hinab zu einer Wachstumstemperatur von $T_g = 200\text{ °C}$ konnten monokristalline LTG GaAs-Schichten der gewünschten Dicke gewachsen werden. Bei weiterer Reduktion von T_g war dies nicht mehr gewährleistet.

Zeitaufgelöste Messungen an nicht ausgeheiltem LTG GaAs liegen nicht vor, da gleichzeitig der Wunsch nach hochresistivem Material besteht. Dies legt die Ausheiltemperatur T_a auf Werte um 600 °C fest. Die Wahl zu hoher Ausheiltemperaturen über 700 °C bringt nach [60] Lebensdauern freier Ladungsträger oberhalb von ca. 2 ps mit sich. Ein zu geringes T_a unterhalb 550 °C reduziert deutlich die Durchbruchfeldstärke und den spezifischen Widerstand [46]. Um die erreichte Materialqualität zu überprüfen, sind während des Optimierungsprozesses der MBE-Anlage die produzierten Wafer in zeitaufgelösten Anrege/Abfrage-Experimenten in Reflexionsgeometrie vermessen worden. Nach Gleichung (3.4) – transiente Transmissionsänderungen sind proportional zur Absorptionsänderung – wäre die Bestimmung der Zeitkonstanten über transiente Transmissionsänderungen die adäquatere Vorgehensweise. Die Wahl der Reflexionsgeometrie gewährleistet jedoch eine schnelle Rückmeldung über die erzielten Ergebnisse und vermeidet längere Prozessierungszeiten, wie sie zur Herstellung dünner Filme (siehe Anhang A), die für Transmissionsexperimente geeignet sind, benötigt werden. Da für die so

¹An dieser Stelle soll sich auf die vier Parameter T_g , T_a , BEP und Ausheilzeit beschränkt werden. Die Fülle an Literaturbeiträgen zum LTG GaAs-Wachstum verdeutlicht die Komplexität des Herstellungsprozesses, bei dem weitere Faktoren eine Rolle spielen. Die Komplexität kann hier jedoch nur angedeutet werden.

gemessenen Reflexionsänderungen keine Gleichung (3.4) entsprechende Beziehung gilt, sind die erhaltenen Zeitkonstanten nur eingeschränkt als Einfangzeiten freier Ladungsträger zu deuten. Die Erfahrung zeigt aber, daß die ermittelten Zeitkonstanten qualitativ gute Übereinstimmungen mit den Ergebnissen aus Transmissionsmessungen liefern. Der Grund hierfür liegt in der Verknüpfung der Brechungsindexänderung und der Absorptionsänderung über eine Kramers–Kronig–Relation [7]. Die genaue Bestimmung der Einfangzeit freier Ladungsträger erfolgt im nächsten Kapitel.

Bei einer Betrachtung der Zeitkonstanten in Referenz [57] kann vermutet werden, daß die Abhängigkeit der Zeitkonstanten von der Wachstumstemperatur nicht monoton ist. Wafer mit einer Ausheiltemperatur um 230 °C weisen dort einen minimalen Wert um 100 fs auf. Dies kann in eigenen Untersuchungen nicht bestätigt werden: Bei der Variation der Herstellungsparameter sind die Werte für T_a und für die Ausheilzeit im wesentlichen konstant gehalten worden. Dagegen bringt eine Erhöhung der Wachstumstemperatur auf 245 °C mit Zeitkonstanten von bis zu 0.5 ps in Reflexionsmessungen deutlich schlechtere Ergebnisse. Dagegen sind Zeitkonstanten von 150 fs in Reflexionsexperimenten für $T_g = 200$ °C bei Überschußenergien oberhalb der Bandlücke von 90 bis 100 meV und geeigneter Wahl der Parameter zu verzeichnen. Die optimierten Herstellungsparameter sind in Tabelle 4.1 aufgelistet². Die Wachstumsgeschwindigkeit beträgt dabei ungefähr 0.5 $\mu\text{m}/\text{h}$. Die Transienten dieser Reflexionsexperimente sollen hier nicht weiter analysiert werden, da sie wie bereits erläutert nur bedingt Aussagekraft haben. Stattdessen werden weiter unten entsprechende Transmissionsmessungen gezeigt.

T_g	T_a	BEP	Ausheilzeit
200 °C	600 °C	6.4	10 Min

Tabelle 4.1.: Herstellungsparameter für auf kurze Lebensdauern freier Ladungsträger optimiertes LTG GaAs ermittelt am Paul-Drude-Institut für Festkörperphysik in Berlin. Reflexionsmessungen ergeben Zeitkonstanten bis hinunter zu 150 fs.

Zu den beiden Herstellungsparameter Ausheilzeit und BEP sollen im folgenden kurze Anmerkungen gemacht werden. Für Ausheilzeiten ≥ 1 Minute sind nur geringe Änderungen in den Kurzzeiteigenschaften festzustellen. Dies erklärt sich aus der Diffusionsbegrenzung des in Kapitel 2 erwähnten Ostwald–ripening–Prozesses und der Störstellen: Prinzipiell wachsen große Ausscheidungen mit längerer Ausheilzeit auf Kosten kleinerer; für größer werdenden mittleren Abstand bei gegebener Ausheiltemperatur verlangsamt sich der Prozeß deutlich bis zur Stagnation. Das Selbe gilt für die Diffusion der Störstellen, so daß sowohl die Störstellenkonzentration als auch die Ausscheidungsgröße für Temperzeiten über einer Minute in etwa konstant bleiben.

²Das so hergestellte LTG GaAs wird im folgenden kurz als „optimiertes“ LTG GaAs bezeichnet.

Ein Parameter mit größerer Bedeutung ist der Arsenüberdruck in der Aufdampfkammer, der über das BEP angegeben wird. Hier erweist sich die Orientierung an publizierten Werten, wie sie für Ausheil- und Wachstumstemperatur vorgenommen wurden, als nicht hilfreich: Ein monokristallines Wachstum bei einem BEP-Wert von 6.4, der letztendlich für unsere Proben verwendet wird, dürfte nach [18] nicht möglich sein. Die in dieser Referenz für BEP-Werte unter 7 erhaltenen LTG GaAs-Schichten sind polykristallin bzw. amorph. Als Grund hierfür wird ein zu geringes Arsenangebot angeführt. Ein Wert von 6.4 erscheint somit überraschend niedrig und ein geringer As-Überschuß in den nach Tabelle 4.1 hergestellten Proben kann vermutet werden. Das dem nicht so ist, kann bereits in der MBE-Anlage selbst überprüft werden.

Mittels Doppel-Röntgenstrahl-Beugung kann vor dem in situ-Ausheilen die vertikale Gitterexpansion $\Delta a/a$ bestimmt werden. Aufgrund des Unterschiedes der Gitterkonstante vom GaAs-Substrat und des LTG GaAs-Films liegen zwei räumlich getrennte Beugungsmaxima vor. Für eine typische LTG GaAs-Probe konnte über den Winkelabstand der Maxima die Gitterexpansion zu

$$\frac{\Delta a}{a} \approx 0.00124$$

bestimmt werden. Nach Gleichung (2.7) läßt sich so eine Konzentration von As_{Ga} -Störstellen von

$$[\text{As}_{\text{Ga}}] \approx 1 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$$

abschätzen. Es liegt demnach das gewünschte defektreiche Material vor; hierzu folgt eine weitere Diskussion in Abschnitt 4.3. Nach dem Ausheilen findet sich im Beugungsspektrum nur noch ein Maximum. Dies zeigt die im Rahmen der Meßgenauigkeit vollständige Relaxation des Gitters. Die Störstellendichte in der GaAs-Matrix hat sich also deutlich auf Kosten von As-Ausscheidungen verringert.

Es läßt sich auch aufgrund der durchgeführten zeitaufgelösten Transmissionsexperimente vermuten, daß eine hohe Störstellendichte in dem Material vorliegt. Die zur Präparation notwendige Probenprozessierung ist in Anhang A beschrieben. In Abbildung 4.1 sind typische Anrege/Abfrage-Transienten von Proben dreier verschiedener Wafer gezeigt. Das qualitative Verhalten der Kurven ist identisch: Zum Zeitnullpunkt regt der Anregepuls freie Ladungsträger an. Die Anstiegsflanke der Kurven entspricht in etwa der Pulsdauer. Die hervorgerufenen Transmissionsänderungen, deren Amplituden zum besseren Vergleich jeweils auf eins normiert und gegeneinander verschoben sind, relaxieren auf Pikosekundenzeitskala. Eine Erhöhung der Transmission bedeutet nach Gleichung (3.4) eine Erniedrigung der Absorption. Diese kommt in erster Linie aufgrund der Besetzung von Leitungsbandzuständen und somit durch das Pauliprinzip zustande. Die Transienten sind jeweils bei Anregungsdichten von $2 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$ und einer Überschußenergie von 100 meV oberhalb der Bandlücke aufgenommen. Offensichtlich weist

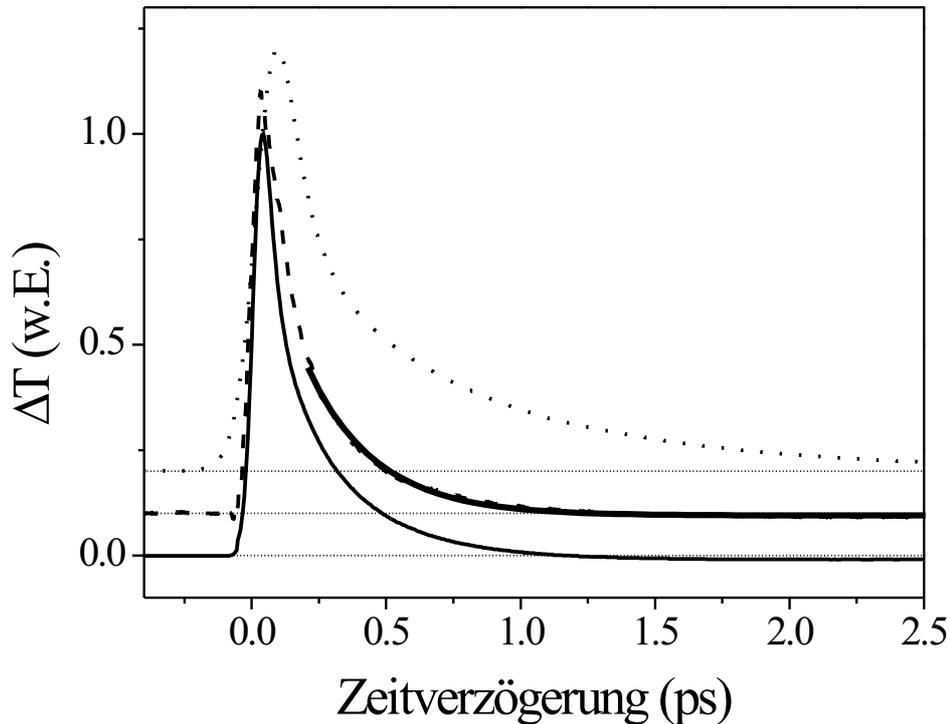


Abbildung 4.1.: Vergleich der differentiellen Transmission dreier Wafer. Die Transienten sind zur besseren Übersicht gegeneinander verschoben. Obere Kurve: $T_g = 245 \text{ }^\circ\text{C}$, mit einer Zeitkonstanten von 0.71 ps . Untere und mittlere Kurve: $T_g = 200 \text{ }^\circ\text{C}$ mit gemeinsamer Zeitkonstanten von 0.24 ps . Für die mittlere Kurve ist zusätzlich der exponentielle Fit gezeigt.

die obere Kurve eine langsamerer Dynamik auf als die beiden unteren Kurven. Die zugehörige Probe ist bei einer Wachstumstemperatur von $T_g = 245 \text{ }^\circ\text{C}$ ($T_a = 600 \text{ }^\circ\text{C}$) hergestellt. Die Transmissionsänderung fällt mit einer Zeitkonstanten von $\tau = 0.71 \text{ ps}$ ab. Dies ergibt sich durch numerisches Anpassen einer monoexponentiell abklingenden Kurve $y = A \exp(-t/\tau)$ an die Daten. Dagegen sind die beiden anderen Proben mit den Parametern aus Tabelle 4.1 hergestellt. Mit $\tau = 0.24 \text{ ps}$ ist die ermittelte Zeitkonstante für $T_g = 200 \text{ }^\circ\text{C}$ fast um einen Faktor 3 kleiner. Für die mittlere Kurve ist zusätzlich die angepaßte Exponentialfunktion gezeigt. Die Anpassung erfolgt für Zeitverzögerungen oberhalb von $\Delta\tau = 0.25 \text{ ps}$, da um den Zeitnullpunkt keine monoexponentielle Relaxation vorliegt (siehe hierzu auch Kapitel 5.1). Die langsamere Relaxationszeit der $245 \text{ }^\circ\text{C}$ -Probe ist auf einen geringeren Störstelleneinbau beim Wachstum zurückzuführen und deckt sich mit den Beobachtungen in [57]. Allerdings kann das Auftreten eines Minimums der Zeitkonstanten um $T_g = 220 \text{ }^\circ\text{C}$ aus dem einfachen Grund, daß keine Probe

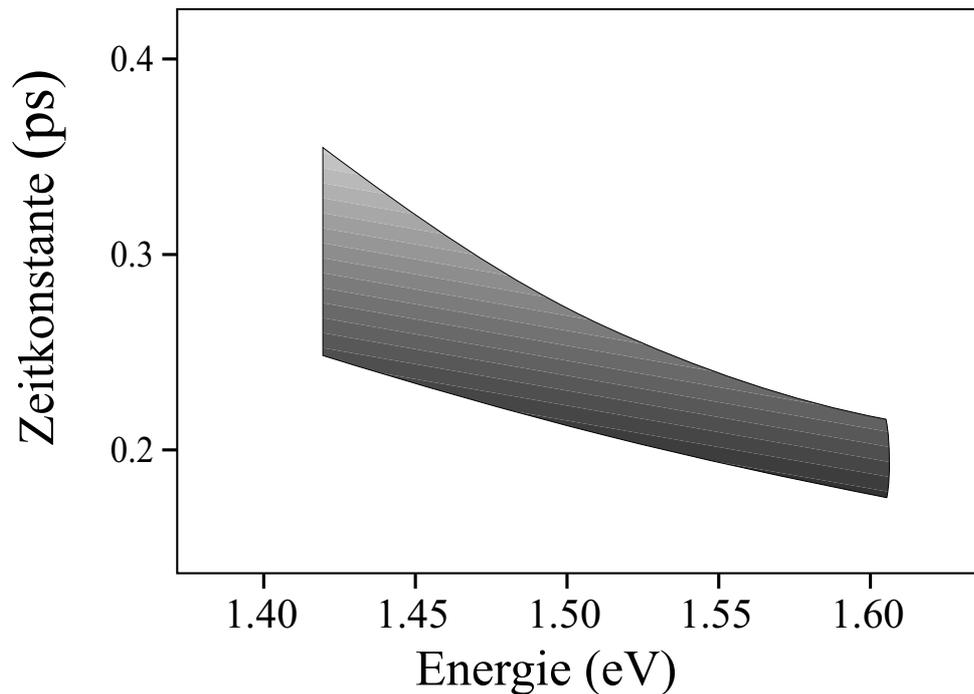


Abbildung 4.2.: Schematische Darstellung ermittelter Zeitkonstanten aus über 150 transienten Transmissionsmessungen in Abhängigkeit der Zentralenergie für LTG GaAs mit Herstellungsparametern nach Tabelle 4.1.

mit dieser Wachstumstemperatur vorliegt, nicht bestätigt werden.

Für den Vergleich der Zeitkonstanten zwischen verschiedenen Proben ist zu beachten, daß jeweils die gleiche Überschußenergie zu verwenden ist. In Abbildung 4.2 ist schematisch der Verlauf der Zeitkonstanten gegen die verwendete Zentralenergie der Laserpulse für Transmissionsmessungen an optimiertem LTG GaAs-Material aufgetragen. Die Abbildung faßt die Zeitkonstanten in einer Übersicht von 150 einzelnen Messungen, die mit bandbreitebegrenzten 80 fs-Pulsen durchgeführt sind, zusammen. Die Anregungsdichten liegen zwischen $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ und $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. Es ist eine Abhängigkeit der ermittelten Zeitkonstanten von der Zentralenergie der Pulse zu erkennen. An der Bandlücke werden Zeitkonstanten von 0.33 ± 0.06 ps. Diese fallen auf Werte von ca. 0.22 ± 0.04 ps für Überschußenergien von fast 200 meV ab. Dies deutet auf die Überlagerung von Einfangprozessen freier Ladungsträger mit Relaxationsprozessen der Ladungsträger innerhalb eines Bandes hin. Hierzu erfolgt eine nähere Untersuchung in Kapitel 5.1. Für die Materialcharakterisierung, bei der qualitativ die kürzeste Lebensdauer freier Ladungsträger ermittelt werden soll, spielt dieser Effekt, sofern beim Vergleich verschiedener Proben mit identischen Anregungsbedingungen gearbeitet wird, nur eine untergeordnete Rolle.

Der Vollständigkeit halber sei in diesem Abschnitt noch auf die Bedeutung der soge-

nannten Crackerzelle, die in der MBE-Anlage aus As_4 As_2 erzeugt, hingewiesen. Die Wahl von As_4 oder As_2 beim Aufdampfprozeß hat nach [109] ebenfalls Einfluß auf die Materialcharakteristik. Dies wurde in der angegebenen Referenz in Dauerstrich-Absorptionsmessungen nachgewiesen. In der hier verwendeten MBE-Anlage ist keine Crackerzelle vorhanden.

4.2. Optimierung der Wafer

Neben der sehr hohen Empfindlichkeit von LTG GaAs auf die im letzten Abschnitt beschriebenen Herstellungsparameter ergab die Untersuchung der transienten Reflexionseigenschaften der ersten in Berlin produzierten Wafer auch eine starke Abhängigkeit der Signale von der Waferposition. Diese laterale Änderung der optischen Eigenschaften des Materials sind auf räumliche Gradienten der Wachstumsparameter in der MBE-Anlage zurückzuführen. Im Besonderen spielt hier wieder die Wachstumstemperatur T_g eine entscheidende Rolle, da die Kontrolle dieses Parameters – wie bereits auf Seite 18 beschrieben – technologisch schwierig ist und schon kleine Temperaturdifferenzen zu unterschiedlichen nichtstöchiometrischen Verhältnissen führt. Gerade im Bereich der interessierenden Wachstumstemperatur von 200 °C verursacht eine Abweichung von 10 Grad eine Änderung der Störstellendichte von schätzungsweise $3 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ für nicht ausgeheiltes LTG GaAs. Weniger kritisch ist hingegen die Ausheiltemperatur T_a . Die Mobilitäten bei der Temperung der für den Ausheilprozeß relevanten Störstellen sind im Bereich von 600 °C auch für kleinere Temperaturschwankungen nahezu identisch, so daß hier nicht die Gefahr eines inhomogenen Ausheilprozesses besteht [110].

In Abbildung 4.3 a) sind die wesentlichen Ergebnisse von zeitaufgelösten Reflexionsmessungen an einem bei $T_g = 245$ °C hergestellten Wafer dargestellt. Der Wafer ist für die Messung so montiert, daß ausgewählte Positionen ohne eine Nachjustage angefahren werden können. Dies gewährleistet identische Bedingungen für eine Meßreihe. Über den Wafer ändern sich die Maxima der Signale deutlich: Nach einem leichten Anstieg fällt die Amplitude am Waferrand auf weniger als die Hälfte des absoluten Maximums ab. Diese Änderung von über 100 % geht einher mit einer Vergrößerung der Zeitkonstanten τ von 0.55 ps in der Wafermitte auf 0.9 ps am Waferrand. Ein solcher Anstieg der Zeitkonstante ließe sich nach Ref. [57] mit einem Temperaturunterschied zwischen Mitte und Rand des Wafers von ca. 20 Grad erklären. Um eine möglichst konstante Temperatur über den Wafer zu gewährleisten, ist die MBE-Anlage mit einer Boritplatte ausgestattet worden, die als Wärmediffusor dient. Die mit dieser Modifikation hergestellten Wafer zeigen eine deutliche Verbesserung bezüglich ihrer Homogenität. In Abbildung 4.3 b) ist die Variation der Amplitude des Signals über einen nach Tabelle 4.1 hergestellten Wafer mit 35 % vergleichsweise niedrig. Mit einer 20 prozentigen Abweichung in den Zeitkonstanten von

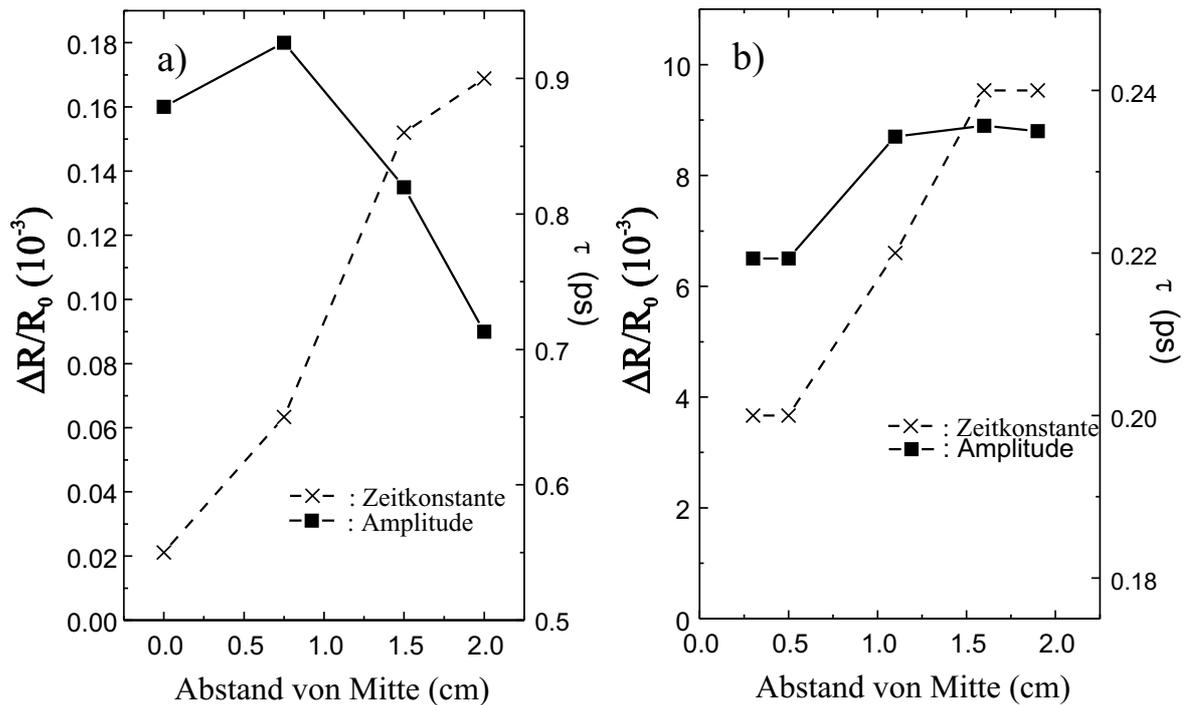


Abbildung 4.3.: Vergleich der lateralen Änderungen der Reflexionsamplituden und Zeitkonstanten eines nicht optimierten und eines optimierten Wafers.

$\tau = 0.2$ ps bis $\tau = 0.24$ ps liegt dieser Wert in der Nähe des Meßfehlers, der ca. 0.03 ps beträgt und fast ausschließlich auf die Annahme eines monoexponentiellen Signalabfalls zurückgeht. Die Signalamplituden der beiden Wafer lassen sich aufgrund verschiedener Anregungsdichten in den Experimenten nicht direkt miteinander vergleichen. Da der Wafer, der in der modifizierten Anlage hergestellt wurde, mit $T_g = 200$ °C eine niedrigere Wachstumstemperatur aufweist als der inhomogene Wafer, sind konstante Herstellungsparameter in diesem Fall noch wichtiger. Ähnliche Temperaturgradienten wie beim inhomogenen Wafer würden zu noch stärkeren Signalunterschieden führen. Dies bedeutet, daß mit der Boritplatte die Temperaturunterschiede so gut wie vollständig ausgeglichen werden können.

Ein weiterer technologisch relevanter Punkt ist die Reproduzierbarkeit von Wafern mit nominell gleichen Wachstumsbedingungen. Bereits Abbildung 4.1 zeigt mit den unteren beiden transienten Transmissionsmessungen an zwei optimierten Wafern, daß bei diesen Wafern kein Unterschied in den Zeitkonstanten bei identischen Anregungsbedingungen festgestellt werden kann. Eine gute Reproduzierbarkeit ist also nach diesem Kriterium gegeben.

4.3. TEM-Charakterisierung

Eine rein auf kurze Zeitkonstanten ausgelegte Charakterisierung der Wafer kann kein alleiniges Kriterium für qualitativ gutes LTG GaAs sein. Kurze Lebensdauern freier Ladungsträger können beispielsweise auch in polykristallinem oder amorphem Material erreicht werden. Polykristallines oder amorphes Material ist mit Blick auf die dann stark reduzierte Beweglichkeit der Ladungsträger für die Anwendung jedoch nicht wünschenswert. Eine über die in situ mögliche strukturelle Charakterisierung hinausgehende Analyse mittels RHEED (engl.: *Reflection High Energy Electron Diffraction*) erfolgt mit der Transmissionselektronenmikroskopie (TEM). Sie erlaubt zusätzlich die indirekte Bestimmung von Störstellendichten vor und nach der Ausheilung. Dies kann durch Bestimmung der Dichte und der Größe der As-Ausscheidungen erreicht werden. Informationen über Ausscheidungsgrößen und -dichten sind bei gegebenen Herstellungsparametern in der Literatur tabelliert [18, 19]. Dies erlaubt Rückschlüsse bezüglich des gesamten Herstellungsprozesses insbesondere der Wachstumstemperatur und der gewählten Ausheiltemperatur. Wie erläutert, scheint andererseits die Angabe des BEP in verschiedenen Veröffentlichungen mit Vorsicht zu genießen zu sein. Nach [18] ist ein monokristallines Wachstum bei dem hier benutzten BEP von 6.4 und einer Wachstumstemperatur von 200 °C nicht möglich. Schon die Wachstumskontrolle in der Anlage mittels RHEED liefert ein gegenteiliges Ergebnis.

Bei TEM-Untersuchungen, die von Dr. M. Luysberg am IFF Forschungszentrum Jülich durchgeführt wurden, ist der Nachweis erbracht worden, daß mit den gegebenen Parametern aus Tabelle 4.1 entgegen Behauptungen in Referenz [18] LTG GaAs-Material hoher kristalliner Qualität herzustellen ist. Ein sogenanntes *Bright Field Image* zeigt Abbildung 4.4. Bei dieser Aufnahmemethode werden nur die nicht Bragg-gestreuten Elektronen erfaßt. Bei mehrkristallinen Materialien können so Beugungskontraste beobachtet werden, die aufgrund verschiedener Streuwahrscheinlichkeiten und Streubedingungen der verschiedenen Unterkristalle erzeugt werden. Reines Arsen zeigt gegenüber GaAs in TEM-Bildern einen sehr guten Kontrast. So sind eine Vielzahl As-Ausscheidungen in Abbildung 4.4 zu erkennen. Bei der überwiegenden Zahl sind Streifen zu sehen. Dies sind Moiré-Streifen aufgrund der angesprochenen Beugungskontraste des GaAs-Kristallgitters gegenüber des Arsen-Kristallgitters. Im Falle amorpher Ausscheidungen sind Moiré-Streifen verständlicher Weise nicht zu beobachten. Somit ist dies ein Nachweis für die hohe kristalline Qualität sowohl der GaAs-Matrix als auch der As-Ausscheidungen. Über das genaue Vermessen der Moiré-Streifen bezüglich ihres Abstandes und ihrer Orientierung zum GaAs-Gitter können Rückschlüsse auf die Symmetrieeigenschaften der As-Ausscheidungen gemacht werden. Ein eventuell unterschiedlicher Einbau verschiedener Ausscheidungen kann in unterschiedlichen Orientierungen der Moiré-Streifen resultieren. Der Einbau einer Ausscheidung mit der höchst möglicher Symmetrie ($\bar{3}m$)

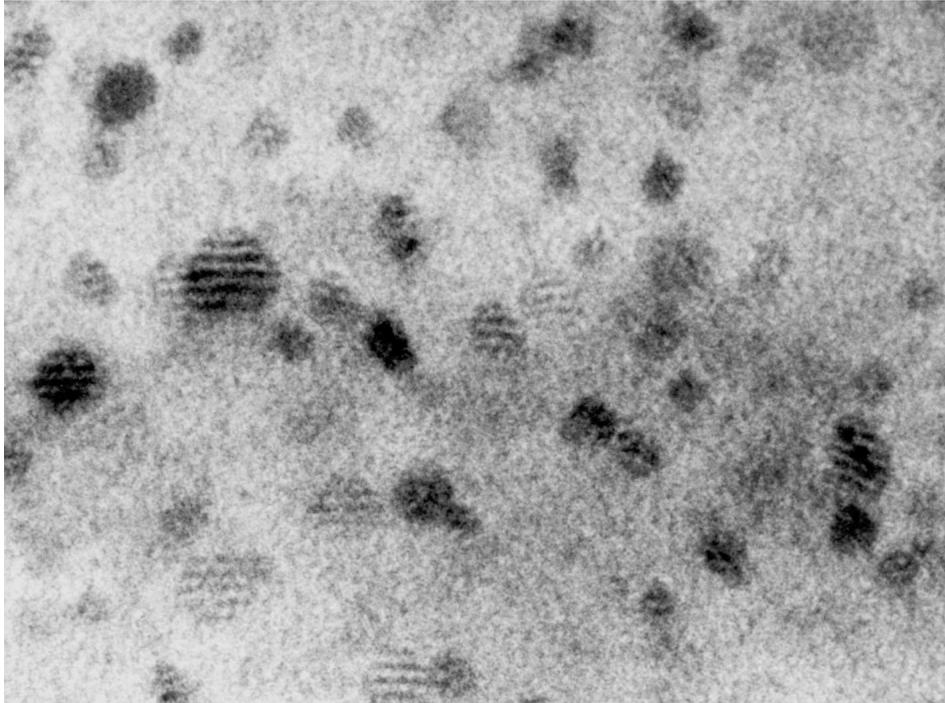


Abbildung 4.4.: TEM–Aufnahme einer optimierten Probe: Deutlich sichtbar sind Arsen–Ausscheidungen und Moiré–Streifen aufgrund der verschiedenen Gitterkonstanten der GaAs–Matrix und der Ausscheidungen.

ist in [111] vorgeschlagen worden. Die Kristallstruktur der Ausscheidungen ist rhomboedrisch. Die durchgeführten Untersuchungen an den Proben sind nicht so umfassend, daß die Ergebnisse aus [111, 48] bestätigt werden können, deuten in allen Aufnahmen jedoch auf die selben Resultate hin.

In Abbildung 4.5 ist eine hoch auflösende TEM–Aufnahme der gleichen Probe gezeigt. Deutlich ist die monokristalline GaAs–Matrix zu erkennen, in die eine As–Ausscheidung eingebettet ist. Aus der 10 nm–Skala geht der ungefähre Durchmesser der Ausscheidung zu 5 nm hervor. Statistische Untersuchungen der TEM–Aufnahmen eines Wafers mit einer 1– μm dicken LTG GaAs–Schicht, bei denen 200 einzelne Ausscheidungen ausgemessen wurden, ergeben einen mittleren Durchmesser von 4.5 nm bei einer mittleren Variation von ± 0.5 nm. Das Ergebnis der Untersuchung eines nominell identischen Wafers mit einer 0.5 μm dicken Schicht LTG GaAs liefert einen mittleren Durchmesser von 4.25 nm bei gleicher Variation. Ferner zeigen die Untersuchungen eine vollkommen homogene Verteilung der As–Ausscheidungen über die Schichtdicken von 1 μm bzw. 0.5 μm der Wafer. Dies läßt auf eine konstante Wachstumstemperatur während der 30 bis 60 minütigen Aufdampfphase schließen, da die homogene Verteilung der As–Ausscheidungen eine

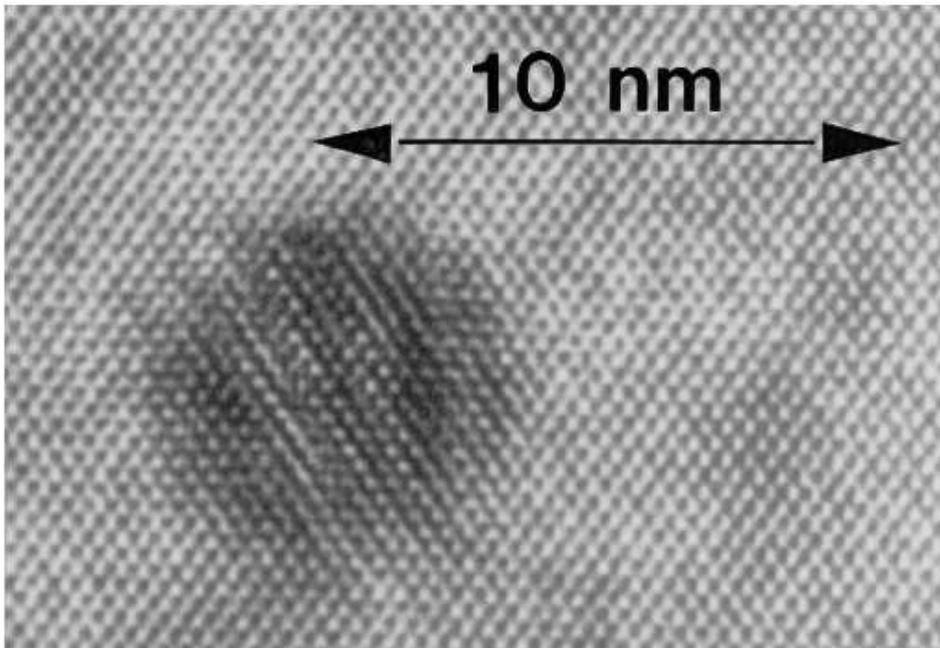


Abbildung 4.5.: TEM-Aufnahme mit deutlich erkennbarem GaAs-Gitter um eine As-Ausscheidung

anfänglich homogene Dichte des überschüssigen Arsens voraussetzt. Neben der Homogenität in Wachstumsrichtung können beim Vergleich von TEM-Aufnahmen an lateral verschiedenen Positionen (Wafermitte und Wafertrand) auch hier auf mesoskopischer Skala keine strukturellen Inhomogenitäten festgestellt werden. Dies kann aus den gleichen mittleren Durchmessern der Ausscheidungen an den verschiedenen Positionen geschlossen werden. Der Befund impliziert eine homogene Verteilung der As-Störstellen vor dem Ausheilprozeß.

Auch die Dichte der Ausscheidungen kann über TEM-Aufnahmen abgeschätzt werden. Dazu wird die Anzahl der Ausscheidungen in einem definierten Probenvolumen ermittelt. Die Abschätzung des Probenvolumens stellt dabei die größte Fehlerquelle dar [18, 48]. Mit einer Konzentration zwischen $0.2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ und $0.5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ liegt nur ein relativ ungenauer Wert vor. Er zeigt jedoch, daß die residuelle Konzentration der Arsen-Antisites $[\text{As}_{\text{Ga}}]$ nach der Ausheilung deutlich unter 10^{19} cm^{-3} gefallen sein muß.

Der Ausheilprozeß selbst birgt die Gefahr des Entstehens einer amorphen oder polykristallinen Deckschicht in einem 10 nm-Bereich in sich [48]. Ursache hierfür ist das Ausdiffundieren des Arsens aus dem Oberflächenbereich beim Ausheilprozeß, wenn der Arsenpartialdruck zu gering ist. Dies ist jedoch ebenfalls nicht bei den untersuchten Proben zu beobachten.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß die Qualität des erhaltenen Materials auch in struktureller Hinsicht sehr gut ist. Es zeichnet sich auf mesoskopischer Skala durch einen hohen Grad an Homogenität der kristallinen Ausscheidungen aus, die in eine monokristalline GaAs-Matrix eingebettet sind. Bei der gegebenen Dichte der Ausscheidungen und bei Beachtung der Ausheiltemperatur sowie der Ausscheidungsdurchmesser kann aus [18] auch auf die Störstellendichte von As_{Ga} vor der Temperung geschlossen werden. Dieser Wert liegt bei etwa:

$$[\text{As}_{\text{Ga}}] \approx 1.5 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}.$$

Er korrespondiert mit der Abschätzung $[\text{As}_{\text{Ga}}] \approx 1 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ aus der Gitterexpansion von Seite 50. Beide Werte zeigen, daß die Störstellenkonzentration in dem untersuchten Material an der oberen Grenze des Erreichbaren zu liegen scheint. Die Tatsache, daß in [18] ein anderer BEP-Wert ($\text{BEP} \approx 20$) zu einem ähnlichen Ergebnis führt, zeigt die Schwierigkeit der Angabe der Wachstumsparameter in der Literatur. Die letztendlich gemessene Gitterexpansion scheint eine bessere Vergleichsgröße zwischen Materialien aus unterschiedlichen Anlagen zu liefern. Dagegen muß auch die Bestimmung der As-Ausscheidungsichte als ungenau und zudem als sehr aufwendig gelten.

4.4. Optischer Nachweis der kristallinen Eigenschaft

Liegen Charakterisierungen wie TEM-Untersuchungen oder RHEED-Daten nicht vor, so bietet die zeitaufgelöste Messung optisch induzierter Anisotropien die einfache Möglichkeit eines Nachweises der monokristallinen Eigenschaft von LTG GaAs-Wafern. Die in Kapitel 3.3 vorgestellte REOS-Meßtechnik wird dazu genutzt, die Generation kohärenter longitudinaler optischer Phononen (LO-Phononen) zu zeigen. In GaAs erzeugt ein ultrakurzer Laserpuls beim Vorhandensein eines elektrischen Feldes in (100)-Richtung kohärente LO-Phononen: Durch die optisch erzeugten Ladungsträger findet eine schnelle Feldabschirmung aufgrund der entgegengesetzten Drift von Elektronen und Löchern statt. Dies verursacht eine Relaxation des Gitters und damit die Erzeugung kohärenter LO-Phononen [106]. Oberflächenzustände sind in Standard GaAs für ein Oberflächenfeld verantwortlich. Sie legen das Fermi-niveau in der Bandlückenmitte fest. Daraus folgt in der Regel eine Bandverbiegung und somit ein elektrisches Feld in Wachstumsrichtung. Über Dotierungen kann die Größe dieses Feldes eingestellt werden [112]. In amorphen oder polykristallinen GaAs erzeugt eine ultraschnelle Feldabschirmung keine kohärenten LO-Phononen. Gelingt dagegen ihre Detektion, so ist dies auch der Nachweis einer monokristallinen GaAs-Schicht.

In Abbildung 4.6 sind die optischen Anisotropien in zeitaufgelösten REOS-Messungen für unterschiedliche Anregungsdichten gezeigt. Die Zentralenergie der Laserpulse beträgt 1.55 eV. Nach Gleichung (3.6) sind die Transienten proportional zur induzierten

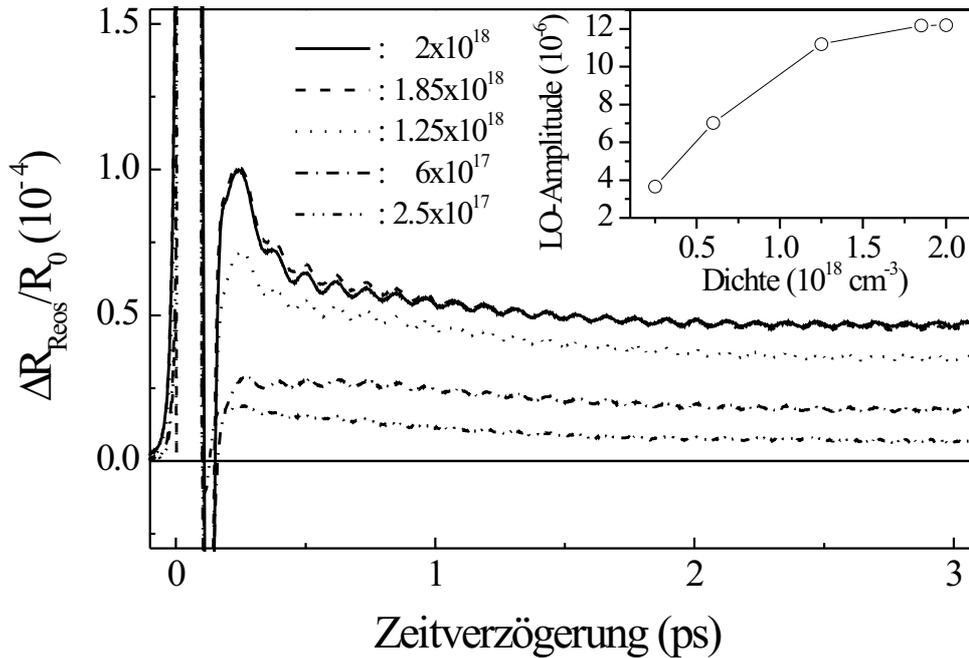


Abbildung 4.6.: Zeitaufgelöste REOS-Signale von optimiertem LTG GaAs bei verschiedenen Dichten. Deutlich ist eine Sättigung des Signals ab einer Ladungsträgerdichte von $1.25 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ zu erkennen. Der Einsatz zeigt für die Oszillationsamplitude der Phononen einen identischen Verlauf.

Änderung des elektrischen Feldes entlang der Wachstumsrichtung. Sie bestehen im wesentlichen aus einer Stufe, die beim Zeitnullpunkt beginnt. Ihr ist eine oszillatorische Signatur überlagert. Um den Zeitnullpunkt sind extreme Signalschwankungen innerhalb der Pulsbreite des Anregepulses zu beobachten. Diese sind auf kohärente Artefakte zurückzuführen. Der Anstieg der Feldabschirmung kann kaum zeitlich aufgelöst werden. Er erfolgt ebenfalls innerhalb der Laserpulsbreite. Ab einer Anregungsdichte von $1.25 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ist eine deutliche Überhöhung der Feldabschirmung in den ersten 500 fs zu beobachten. Bis zu einer Zeitverzögerung von 3 ps erreichen die Transienten unter geringen Signaländerungen einen konstanten Wert. Dieser kann über mehrere hundert Pikosekunden aufgenommen werden [113]. Mit steigender Anregungsdichte sättigt die Feldabschirmung soweit, daß zwischen den Transienten der höchsten Dichten $1.85 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ und $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ kaum ein Unterschied auszumachen ist.

Mit dem Ansteigen der Feldabschirmung steigen im gleichen Maße auch die Amplituden der überlagerten Oszillationen an. Eine genaue Analyse über eine Fast Fourier Transformation (FFT) bestätigt eine Zentralfrequenz von 8.75 THz, wie sie für LO-Phononen erwartet wird. Hier liegt somit neben den TEM-Aufnahmen ein weiterer – jedoch nicht

destruktiver – Nachweis einer monokristallinen LTG GaAs–Schicht vor. Der Einsatz in Abbildung 4.6 die Sättigung der LO-Phononenamplitude mit der Anregungsdichte. Die Oszillationen dephasieren über das Zeitfenster von ca. 3 ps merklich. Mit einem exponentiellen Abfall der Oszillation von ungefähr 4 ps liegt die Dephasierungszeit nahe bei dem Wert von Standard GaAs von 4.5 ps für Raumtemperatur [114].

Entsprechende REOS–Messungen an Standard GaAs, wie sie in [112, 115] durchgeführt wurden, zeigen vor allem in den ersten 1.5 ps Unterschiede in der Dynamik. Der Anstieg auf einen maximalen Wert erfolgt deutlich langsamer. Die Dynamik des sich aufbauenden Gegenfeldes kann zeitaufgelöst werden, weil das Oberflächenfeld einige 10 nm Eindringtiefe besitzt. Damit nimmt der Aufbau eines Gegenfeldes über die Drift der Ladungsträger ca. 500 fs in Anspruch. Für LTG GaAs kann die Dynamik nicht aufgelöst werden. Eine mit [116] konforme Schlußfolgerung ist, daß das Oberflächenfeld in LTG GaAs eine erheblich geringere Eindringtiefe hat. Nach [116] kann sie unterhalb von 10 nm liegen. Die Langlebigkeit der induzierten Feldänderung ist sowohl in Standard GaAs als auch in LTG GaAs zu beobachten. Für LTG GaAs ist eine mögliche Erklärung in der Erzeugung langlebiger Oberflächenzustände zu sehen. Diese sind von der ultraschnellen Dynamik freier Ladungsträger in LTG GaAs unabhängig. Unwahrscheinlicher sind dagegen eingefangene Ladungsträger in tiefen Störstellen. Dies würde Rekombinationszeiten im mehrere 100 ps–Bereich voraussetzen, was wesentliche Ergebnisse aus den folgenden Kapiteln 5 und 6 nicht bestätigen können.

Einen interessanten Anhaltspunkt zur Störstellendichte im untersuchten LTG GaAs bietet der Vergleich des beobachteten Sättigungsverhaltens mit der Sättigung optischer Anisotropien in dotiertem GaAs [115]. Dort werden genau dann Sättigungswerte erreicht, wenn die Anregungsdichte der Dotierdichte entspricht. In Analogie kann danach von einer Störstellendichte im untersuchten LTG GaAs von $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ bis $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ausgegangen werden.

4.5. Dauerstrich–Charakterisierung

Der Ermittlung der linearen optischen Absorption des LTG GaAs–Materials in einer Dauerstrich–Analyse (engl.: *Continuous Wave CW*), d.h. der Absorption bei schwacher Lichtintensität, kommt eine wichtige Bedeutung zu. Die Messungen dienen u.a. als vorbereitende Untersuchungen zu den zeitaufgelösten Experimenten mit Photonenergien unterhalb der Bandlücke in Kapitel 5.3. Ferner zeigen sich bei Variation der Ausheiltemperatur und konstanter Wachstumstemperatur deutliche Änderungen der Absorptionsspektren von LTG GaAs. Ein Vergleich mit einem Absorptionsspektrum von Standard GaAs läßt Schlüsse auf die Ursache der Unterschiede der Absorptionsspektren zu.

In Abbildung 4.7 ist eine Transmissionsmessung (gestrichelte Linie) an einer opti-

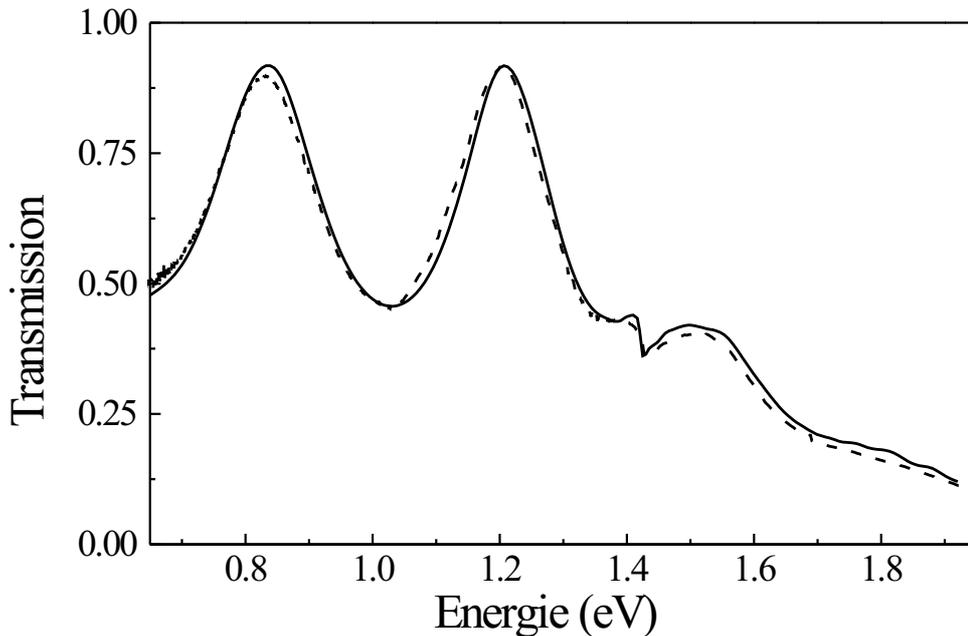


Abbildung 4.7.: Simulation (durchgezogene Linie) und Messung (gestrichelte Linie) der linearen Transmission an einem optimierten LTG GaAs-Film der Dicke 445 nm. Die FP-Oszillationen sowie der gesamte Verlauf der Transmission werden gut mit Literaturwerten des Brechungsindex und des Extinktionskoeffizienten von Standard GaAs nach [5] reproduziert.

mierten LTG GaAs-Probe gezeigt. Der Film ist mittels des sogenannten van der Waals-Bondings auf eine Saphirscheibe aufgebracht worden (siehe Anhang A). Grob lassen sich zwei Bereiche unterscheiden: Oberhalb der Bandlücke von 1.42 eV ist die stetige Abnahme der Transmission aufgrund der Zunahme der Absorption zu erkennen. Im transparenten Bereich unterhalb der Bandlücke wird die Transmission durch FP-Oszillationen dominiert. Da quantitative Reflexionsmessungen, die auf die absolut eingestrahlte Lichtleistung kalibriert sind, an den Filmen nur unzureichend durchführbar sind, kann aus den so erhaltenen Daten nicht Absorptionskoeffizient und Brechungsindex berechnet werden. Bei genauer Kenntnis der Filmdicke läßt sich jedoch die Transmission mit Literaturdaten von Standard GaAs gut vergleichen bzw. simulieren.

Mit Hilfe eines Weißlichtinterferenzmikroskops läßt sich die Stufenhöhe Saphir/LTG GaAs und somit die Dicke des Films auf ± 2.5 nm bestimmen. Hierzu ist es notwendig, die Probe mit einem 50 nm-Titanfilm zu bedampfen. Somit ist keine Kenntnis der Brechungsindexe und der Absorption von Saphir und LTG GaAs erforderlich. Die Vermeidung eines optischen Klebers zum Aufbringen des Filmes auf das Saphir erweist

sich als vorteilhaft, da ansonsten eine eindeutige Stufe Saphir/LTG GaAs unter dem Mikroskop nicht mehr erkennbar ist. Nach der Messung wird der Titanfilm mit einer HF-Ätze rückstandsfrei entfernt. Für die LTG GaAs-Probe aus Abbildung 4.7 ergibt sich eine Dicke von 445 nm. Bei der Simulation wird die Dispersion des Saphirs nach Werten in [117] berücksichtigt. Die gute Übereinstimmung mit der für Standard GaAs simulierten Transmission läßt den Schluß zu, daß sowohl Brechungsindex als auch Absorption nur geringfügig von Standard GaAs verschieden sind. Es ist einschränkend zu erwähnen, daß insbesondere im transparenten Bereich eine Kalibration des verwendeten Meßsystems sehr ungenau ist. Dies kann vor allem in der Absorption zu größeren Fehlern führen. Davon kaum betroffen ist jedoch die Lage der Maxima und Minima der FP-Oszillationen. Die leichte Verschiebung der gemessenen zu den simulierten FP-Oszillationen kann nicht durch Meßungenauigkeiten erklärt werden. Vielmehr spricht dies für einen minimal erhöhten Brechungsindex von LTG GaAs von $n_{\text{LTG GaAs}} = n_{\text{GaAs}} + 0.03$. Dies ist in Einklang mit Bestimmungen des Brechungsindex verschiedener LTG GaAs-Materialien in [109]. Dort ist für Material mit ähnlichen Herstellungsparametern wie in Tabelle 4.1 eine Erhöhung um $\Delta n = 0.05$ festgestellt worden. Eine offensichtliche Störstellenabsorption kann im Rahmen der Meßgenauigkeit nicht beobachtet werden.

Genaueren Einblick auch in die Absorption von LTG GaAs unterhalb der Bandlücke liefern die nun folgenden Messungen. Die Extraktion des Absorptionskoeffizienten aus den im Experiment gewonnenen Transmissions- und Reflexionsdaten erfolgt über geeignete numerische Näherungsverfahren der Gleichungen (B.14) und (B.15). Auf diese Art sind Präzisionsmessungen an der Friedrich Alexander-Universität Erlangen von S. Tautz an Proben mit der Wachstumstemperatur $T_g = 225^\circ\text{C}$ durchgeführt worden. Neben einer Messung an der nicht ausgeheilten Probe zeigt Abbildung 4.8 zwei Kurven für Ausheiltemperaturen von $T_a = 400^\circ\text{C}$ bzw. $T_a = 500^\circ\text{C}$ sowie die Messung des Absorptionskoeffizienten von Standard GaAs. Charakteristisch für das nicht ausgeheilte Material ist die stark erhöhte Absorption über den gesamten gezeigten Energiebereich. Erst ca. 120 meV unterhalb der Bandlücke von Standard GaAs bei 1.3 eV ist der Absorptionskoeffizient mit $0.8 \mu\text{m}^{-1}$ identisch mit der Absorption von Standard GaAs an der Bandlücke. Eine Absorptionskante ist nicht definiert auszumachen und wird bei 1.42 eV nur leicht angedeutet. In erster Näherung erscheint die Absorption oberhalb von 1.5 eV um einen konstanten Betrag erhöht. Der minimale Unterschied in den Absorptionskoeffizienten zwischen nicht ausgeheilten und Standard-Probe liegt bei E_G . Da hier noch keine As-Ausscheidungen in der GaAs-Matrix vorhanden sind, ist die zusätzliche Absorption im wesentlichen auf die hohe Störstellendichte zurückzuführen. Der enorme Überschuß an As_{Ga}^0 mit etwa $1 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$ gegenüber allen anderen Defekten legt die Annahme nahe, daß dieser Defekt für die Erhöhung verantwortlich ist. Ferner sind auch Modifikationen der Bandstruktur aufgrund einer geänderten Gitterkonstanten zu erwarten.

Nach einer Ausheilung bei 400°C läßt sich eine starke Reduktion der Absorption in

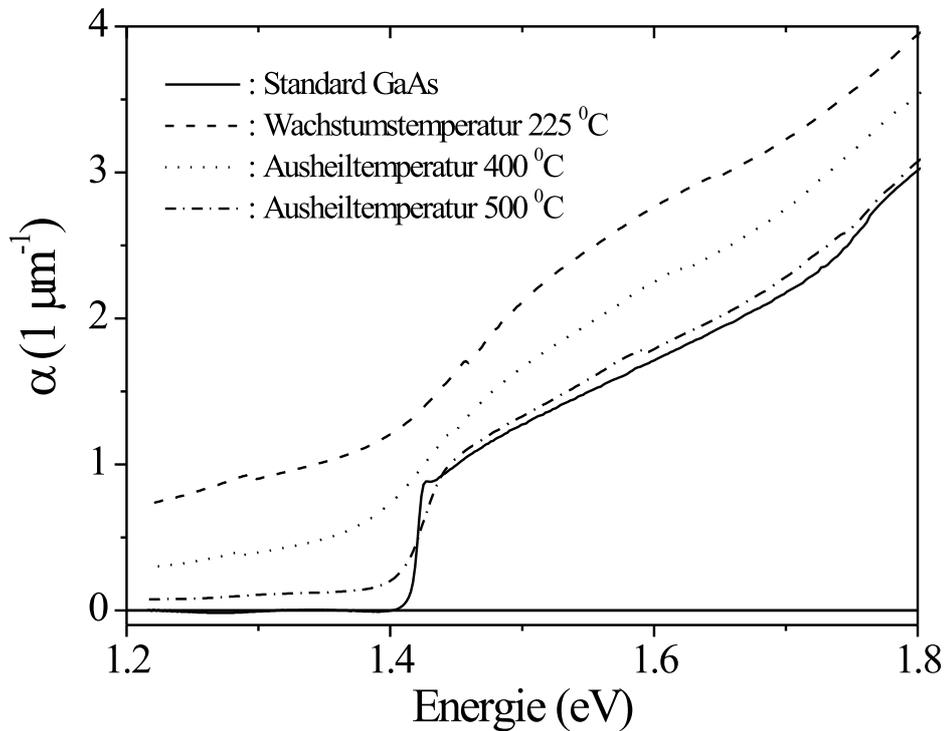


Abbildung 4.8.: Lineare Absorption von LTG GaAs bei einer gemeinsamen Wachstumstemperatur von 225 °C. Neben einer nicht ausgeheilten Probe sind zwei Ausheiltemperaturen von 400 °C und 500 °C gezeigt. Ebenso ist die an Standard GaAs gemessene Absorption zu sehen.

LTG GaAs erkennen. Bei E_G ist fast wieder ein Wert wie bei Standard GaAs erreicht. Durchgehend ist in etwa eine Halbierung der anfänglichen Überhöhung der Absorption zu beobachten. Untersuchungen bezüglich der Ausheildynamik verschiedener Störstellen zeigen, daß die für die Gittervergrößerung verantwortlichen As_i -Defekte bei ca. 300 °C mobil werden [118]. Das GaAs-Gitter ist also bei $T_a = 400$ °C bereits nahezu verspannungsfrei. Zusätzlich ist auch die As_{Ga}^0 -Dichte erniedrigt. Die Bandkante ist jedoch nicht zuletzt aufgrund einer noch immer hohen Absorption unterhalb E_G nur andeutungsweise zu erkennen.

Dies ändert sich bei einer Ausheiltemperatur von $T_a = 500$ °C. Hier ist ein deutlicher Abfall der Absorption um E_G zu erkennen. Am Exziton fällt sie unter den Wert von Standard GaAs. Sowohl die verbliebenen Störstellen als auch die nun vorhandenen As-Ausscheidungen sind als Grund für die inhomogene Verbreiterung einer exzitonischen Resonanz in LTG GaAs anzuführen: Bei einem Exziton-Radius von 15 nm in GaAs

und einem mittleren Abstand der Ausscheidungen von ca. 20 nm können ungestörte Exziton-Zustände nicht realisiert werden. Auch unterhalb der Bandkante kann noch eine deutliche Absorption beobachtet werden. Die auf Kosten der Störstellen gebildeten As-Ausscheidungen verursachen keine offensichtliche Signatur in der linearen Absorption wie es beispielsweise von Silber-Ausscheidungen in einer dielektrischen Matrix zu beobachten ist [119]. Theoretische Vorhersagen, daß As-Ausscheidungen eine deutliche Resonanz in der Nähe der Bandlücke zeigen sollten [120], können nicht bestätigt werden. Dies stimmt mit den Ergebnissen anderer Gruppen überein [121, 109]. Demnach haben die As-Ausscheidungen keine wesentliche Bedeutung für die lineare Absorption.

Eine Erhöhung der Ausheiltemperatur auf $T_a = 600$ °C reduziert vor allem die Absorption unterhalb der Bandkante. In [121] ist in Einklang mit Abbildung 4.7 unterhalb von 1 eV kaum eine erhöhte Absorption zu erkennen. Außerdem bleibt festzuhalten, daß für die Berechnung von Ladungsträgerdichten bei optischer Anregung oberhalb der Bandlücke für das optimierte LTG GaAs ohne großen Fehler auf Werte von Standard GaAs zurückgegriffen werden kann.

5. Ladungsträgerdynamik in LTG GaAs

Die Dynamik photogenerierter Ladungsträger in LTG GaAs unterscheidet sich grundlegend von der Dynamik in Standard GaAs. Dies bezieht sich im Besonderen auf die unterschiedlichen Zeitdauern, in der die induzierten Ladungsträger mobil sind. Wird in Standard GaAs die Mobilität der Ladungsträger durch deren Rekombination und damit der Rückkehr des Halbleiters in seinen Grundzustand beschränkt, so reduziert Ladungsträgereinfang in LTG GaAs die Mobilität auf deutlich kürzere Zeitskalen. Der Grundzustand wird dagegen erst mit der endgültigen Rekombination eingefangener Ladungsträger erreicht. Vergleiche der Leitungsbanddynamik mit Standard GaAs auf Subpikosekunden Zeiten sind nur bedingt möglich: Thermalisierung und Einfang von Ladungsträgern sind in LTG GaAs kaum zu trennen. Die Relaxationsdynamik eingefangener Ladungsträger ist dagegen wesentlich für die Tauglichkeit des Materials für schnelle optoelektronischen Bauelemente. Zur Bestimmung der relevanten Zeitkonstanten müssen neuartige experimentelle Techniken angewandt werden. Bis heute können nur sehr phänomenologische Modelle die in LTG GaAs ablaufenden Prozesse beschreiben.

In diesem Kapitel wird die Relaxationsdynamik optisch generierter freier Ladungsträger genauer untersucht werden. Die Leitungsbanddynamik von nicht thermischen Elektronverteilungen steht dabei in Abschnitt 5.1 im Vordergrund. Ein einfaches Modell erlaubt dabei bis zu einem gewissen Grade die Trennung von Thermalisierung und Elektroneneinfang. Die Untersuchungen zu einer kleinen in der Regel über mehrere hundert Pikosekunden beobachtbaren induzierte Absorption werden präsentiert. Mit einer Studie der Ladungsträgereinfangzeit in Abhängigkeit von der Wachstumstemperatur, die eine Diskussion bisher publizierter Literaturwerte ermöglicht, wird dieser Abschnitt abgeschlossen. Eine detaillierte Untersuchung der Ladungsträgerdynamik an und unterhalb der Bandlücke zeigt in Abschnitt 5.2 den Einfluß bandlückennaher Zustände auf die Relaxation. Die zu Standard GaAs ebenfalls deutlich unterschiedliche Dynamik für Abtastenergien weit unterhalb der Bandlücke gibt im folgenden Abschnitt 5.3 Aufschluß über die Dynamik eingefangener Ladungsträger. Hierbei steht die Trennung und Zuordnung einzelner Signalbeiträge im Vordergrund. Nur die Gesamtheit der erzielten Ergebnisse, die im letzten Abschnitt diskutiert werden, liefert ein konsistentes Bild.

5.1. Relaxationsdynamik freier Ladungsträger

Aufgrund der Tatsache, daß LTG GaAs wie in Kapitel 4 gezeigt von hoher kristalliner Qualität ist und nach erfolgter Ausheilung eine ähnliche Absorption aufweist wie Standard GaAs, kann geschlossen werden, daß das Material in vielen optischen und elektronischen Eigenschaften sich wie Standard GaAs verhält. Speziell ist hier die Elektron–LO-Phonon–Wechselwirkung zu nennen: Phononemissions- und Phononabsorptionszeiten freier Elektronen werden nahezu identisch mit gemessenen Werten in Standard GaAs sein [122]. Das Gleiche gilt für die Elektron–Elektron–Wechselwirkung, die einen wesentlichen Beitrag zur Thermalisierung heißer Elektronen nach optischer Anregung in Standard GaAs liefert. Die Dynamik innerhalb der ersten Pikosekunde in Standard GaAs mit ihrer ganzen Komplexität ist Gegenstand der aktuellen Forschung [12]. Nach dem Gesagten ist es naheliegend, daß die Dynamik in LTG GaAs ähnlich komplex wobei als zusätzliche Erschwernis der Ladungsträgereinfang hinzukommt, der die Dynamik wesentlich mitbestimmt.

In erster Linie ist es die Ladungsträgereinfangzeit τ_e , die bei der Untersuchung der Leitungsbanddynamik von LTG GaAs ermittelt werden soll. Dabei muß jedoch darauf geachtet werden, daß andere Effekte das Meßergebnis nicht verfälschen. Bei der üblichen – auch in dieser Arbeit verwendeten – Methode der entarteten Anrege/Abfrage–Experimente¹ wird in fast allen veröffentlichten Untersuchungen unsauber gearbeitet bzw. argumentiert. Zum einen wird vornehmlich in Reflexionsgeometrie gemessen, was eine Interpretation des Signals als transiente Absorptionsänderung nach Gleichung (3.4) nicht zuläßt. Zum anderen werden in der Regel hohe Überschußenergien von 150 bis 200 meV oberhalb der Bandlücke genutzt. Für Transmissionsexperimente ist es leicht einsichtig, daß dies zu einer initialen schnellen Signaländerung nach Induzierung der Ladungsträger führt, die nicht aus dem Einfang von Elektronen herrührt: Die Änderung der Transmission in einem Anrege/Abfrage–Experiment ist nach Gleichung (3.4) proportional zur Absorptionsänderung. Diese resultiert u.a. auf einer Änderung der besetzbaren Zustände durch die induzierten Ladungsträger, ist also Folge des Pauli–Prinzips. Testet man eine heiße Elektronverteilung² einige 100 meV oberhalb der Bandlücke ab, so wird primär die Thermalisierung sowie die anschließende Abkühlung der Elektronen beobachtet, wie es Abbildung 2.4 auf Seite 12 schematisch zeigt: Innerhalb des Beobachtungsfenster des Abtastpulses reduziert sich Ladungsträgerbesetzung schon alleine aufgrund der Thermalisierung und der Abkühlung.

¹Als *entartet* wird ein Anrege/Abfrage–Experiment im Falle gleicher Anrege- und Abfrageenergie bezeichnet.

²Aufgrund der im Vergleich zur Valenzbandzustandsdichte geringen Leitungsbandzustandsdichte ist die angewandte experimentelle Technik primär sensitiv auf die Elektrodynamik [123].

5.1.1. Ergebnisse

Die Ausführungen zeigen, daß die bei zu hoher Anregeenergie erhaltenen Relaxationszeiten schneller sind, als die tatsächlichen Einfangzeiten. Das erklärt auch die in Abbildung 4.2 qualitativ erkennbare Tendenz langsamerer Relaxationszeiten bei geringer werdender Überschußenergie. Eine genauere Untersuchung der Energieabhängigkeit der Relaxationszeit eines LTG GaAs-Filmes mit optimierten Herstellungsparametern liefert doppelt exponentielle Signalrelaxationen. Um einen präziseren Eindruck von der Energieabhängigkeit der Relaxationsdynamik zu gewinnen, werden im folgenden zwei Transienten unterschiedlicher Anregeenergie diskutiert.

Typische Transienten, wie man sie bei zwei verschiedenen Zentralwellenlängen erhält, sind in Abbildung 5.1 gezeigt. Zum besseren Vergleich sind die Kurven auf eins normiert. Bei beiden Kurven erfolgt der Signalanstieg mit dem zeitlichen Integral über den Anregepuls. Bei einer jeweiligen Anregungsdichte von ca. $6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ist erkennbar, daß bei einer Anrege- und Abtastenergie nahe der Bandlücke (1.45 eV-Kurve) das Signal deutlich langsamer abfällt als für eine hohe Überschußenergie von 130 meV. Unter der Annahme einer monoexponentiellen Relaxation ergeben sich aus Fits an die Kurven Zeitkonstanten von $\tau_{1.45 \text{ eV}} = 0.31 \text{ ps}$ bzw. $\tau_{1.55 \text{ eV}} = 0.22 \text{ ps}$, sofern nur Zeitverzögerungen $\Delta\tau$ zwischen Anrege- und Abfragepuls oberhalb von 0.25 ps berücksichtigt werden (die Fits sind nicht in Abbildung 5.1 gezeigt). Bei geringerer Zeitverzögerung können beide Signale nicht mehr gut mit monoexponentiellen Kurven angepaßt werden: Hier verursachen Thermalisierungsprozesse eine zusätzliche ultraschnelle Signaländerung. Das Anpassen von doppelt exponentiellen Kurven an die Daten erweist sich als schwierig, da der initiale Signalabfall im Bereich von ca. 100 Femtosekunden liegt und so zum einen die Abtastpulsbreite und zum anderen die endliche Anregezeit einen merklichen Einfluß auf das gemessene Signal haben. Somit ist eine Signalmodellierung notwendig, die die Anrege- und Abfragepulsdauern berücksichtigt. Im Folgenden soll ein einfaches Modell zur numerischen Anpassung der Daten vorgestellt werden.

In der hier verwendeten zeitintegrierenden Anrege-Abfrage-Technik ist das Signal für eine Zeitverzögerung $\Delta\tau$ unter Berücksichtigung der Pulsdauern gegeben durch

$$\Delta S(\Delta\tau) \propto \int_{-\infty}^{\infty} dt I_a(t - \Delta\tau) P(t) \quad , \quad (5.1)$$

wobei $I_a(t)$ die Einhüllende des Abtastpulses ist und $P(t)$ die Materialantwortfunktion enthält. Hierbei wird vorausgesetzt, daß kohärente Effekte in LTG GaAs keine Bedeutung haben. Dies ist aufgrund der hohen Störstellendichte eine gerechtfertigte Annahme. Eng hiermit verknüpft ist die Annahme, daß die Materialantwort proportional zur Ladungsträgerbesetzung $N(t)$ im spektral beobachteten Bereich sein soll. Mit der beobachteten exponentiellen Relaxation der Ladungsträger für Zeitverzögerungen größer 0.25 ps kann

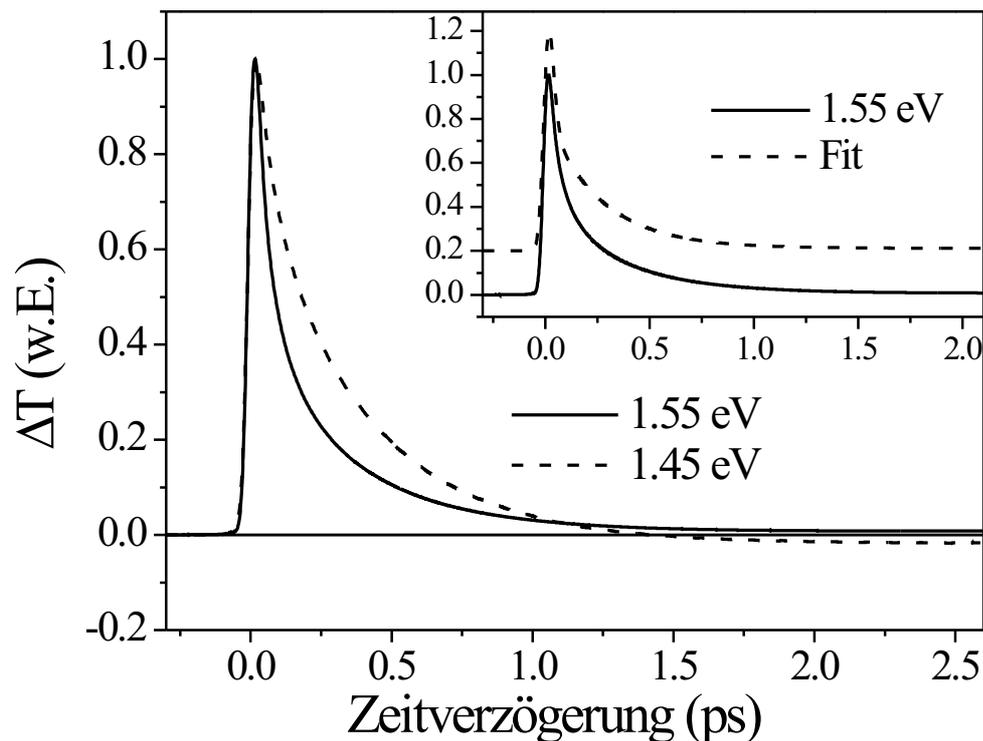


Abbildung 5.1.: Abhängigkeit der transienten Transmissionsänderungen von der Pulsennergie im entarteten Anrege/Abfrage-Experiment. Gezeigt sind zwei Kurven mit den Zentralenergien 1.45 eV und 1.55 eV. Die Kurven sind auf eins normiert. Der Einsatz zeigt zusätzlich das Ergebnis des im Text beschriebenen Modells.

$N(t)$ in sinnvoller Näherung berechnet werden über die Differentialgleichung

$$\frac{\partial N}{\partial t} = -\frac{N}{\tau} + G(t) \quad . \quad (5.2)$$

Die Ladungsträgerinjektion $G(t)$ erfolgt über den Anregepuls, für dessen Einhüllende sich ein Gaußpuls

$$G(t) = \frac{a}{w\sqrt{\pi/2}} \exp\left\{-2\frac{t^2}{w^2}\right\} \quad (5.3)$$

als gute Näherung erweist. Die Konstante a ist eine Normierungskonstante, die zu eins gesetzt wird. w gibt die volle Breite der Hälfte des Maximums (FWHM) an. Die Lösung der Differentialgleichung (5.2) läßt sich mit

$$N(t) = \frac{1}{2} \left(\operatorname{erf} \left\{ \frac{\sqrt{2}}{w} t - \frac{\sqrt{2}w}{4\tau} \right\} + 1 \right) \exp \left\{ -\frac{t}{\tau} + \frac{1}{8} \frac{w^2}{\tau^2} \right\} \quad (5.4)$$

analytisch angeben. Um den Übergang der initialen heißen Verteilung zu einer thermischen Verteilung auf möglichst einfache Weise zu berücksichtigen, wird angenommen, daß ein Anteil \mathcal{A} der Ladungsträger mit einer schnellen Zeitkonstanten τ_s aus den Beobachtungsfenster des Abtastpulses hinausstreut. In diesem Bild stellt τ_s also die Zeit dar, die zur Thermalisierung benötigt wird. Des Weiteren muß ein residueller Signalanteil eingeführt werden, wie er besonders für die 1.45 eV-Kurve in Abbildung 5.1 zu erkennen ist. Auf der betrachteten Zeitskala ist dieser Signalanteil konstant. Seine genauere Betrachtung erfolgt weiter unten. Auf diese Art können über Gleichung (5.1) und unter Berücksichtigung des Gewichtungsfaktors \mathcal{A} numerisch Kurven angepaßt werden. Beispielhaft ist im Einsatz von Abbildung 5.1 das Ergebnis der Simulation der 1.55 eV-Kurve aufgetragen. Daten und Simulation sind gegeneinander verschoben, da sich Simulation und Kurve kaum voneinander unterscheiden lassen. Die angewendete Methode hat den Vorteil, vergleichbare Werte für verschiedene Meßkurven zu liefern. Ferner liefern einfache monoexponentielle Fits für Zeitkonstanten, die in der Größenordnung der Pulslängen liegen, zu kleine Zeitkonstanten: Die Abtastpulsdauer kann in diesen Fällen nicht mehr als $\delta(t)$ -förmig angenommen werden. Numerisch werden Pulsbreite w , Relaxationszeit τ , Streuzzeit τ_s und die Konstante \mathcal{A} ermittelt. Dabei kann die berechnete Pulsbreite direkt mit der im Experiment über eine Autokorrelationsmessung bestimmbar Pulsbreite verglichen werden.

Für die beiden in Abbildung 5.1 gezeigten Kurven ergeben sich aus der Simulation folgende Parameter:

	τ	τ_s	w	\mathcal{A}
1.45 eV	0.34 ps	25 fs	48 fs	0.33
1.55 eV	0.26 ps	16 fs	46 fs	0.51

Die berechneten Pulsbreiten w stimmen mit denen im Experiment bestimmten Werten von jeweils 50 ± 5 fs innerhalb der Meßgenauigkeit sehr gut überein. Die hier mit τ_s bezeichneten schnellen Zeitkonstanten sind für Thermalisierungszeiten recht kurz und liegen unterhalb der Zeitauflösung im Experiment. Auf einer Zeitskala von ca. 20 fs streuen nach diesem Modell bei einer Anregungsenergie von 1.45 eV ein Anteil von $\mathcal{A} = 0.33$ der Elektronen aus dem Observationsfenster. Dieser Wert steigt für die höhere Anregungsenergie auf gut die Hälfte ($\mathcal{A} = 0.51$) der Elektronen. Diese Tendenz entspricht der Erwartung: Die Differenz von Elektronendichten einer heißen Verteilung entsprechend des Laserspektrums und einer thermalisierten Verteilung wird für größere Überschussenergien zunehmen, so wie es auch die Werte von \mathcal{A} zeigen. Es bleibt die Frage zu klären, aus welchem Grund sich die ermittelten Zeitkonstanten τ für die verschiedenen Anregungsenergien deutlich unterscheiden. Dies kann sicherlich auf die Einfachheit des verwendeten Modells zurückgeführt werden. Durch die im Modell eingeführte Zeitkonstante τ werden insbesondere für höhere Überschussenergien nicht alleine Einfangprozesse beschrieben.

Für eine thermalisierte Ladungsträgerverteilung mit einer Temperatur, die größer als die Gittertemperatur ist, wird die Reduktion der Ladungsträgerdichte im allgemeinen zu einer weiteren Umverteilung der Ladungsträger führen. Einfang und momentane Temperatur freier Elektronen können somit nicht unabhängig betrachtet werden. Vielmehr wird sich die Elektronentemperatur nicht nur aufgrund der Elektron-Phonon-Wechselwirkung verändern, sondern auch aufgrund des Elektroneneinfangs. Für höhere Überschußenergien ist ein größerer Einfluß durch die permanente Ladungsträgerumverteilung zu erwarten, da gerade Elektronen mit hoher Überschußenergie umverteilt werden müssen, um eine thermische Verteilung aufrecht zu erhalten. Abtastenergien nahe der Bandlücke dagegen reflektieren eher die Dynamik des Ladungsträgereinfangs. Somit gibt die Zeit von $\tau = 0.34$ ps einen besseren Wert für die Einfangzeit wieder. Mit Blick auf die Ergebnisse aus Abschnitt 5.2 und Kapitel 6 soll die so gemessene Zeitkonstante τ mit

$$\tau_{\mu} = 0.34 \text{ ps} \quad (5.5)$$

bezeichnet werden. Der Index μ bezeichnet die Beweglichkeit, deutet also an, daß optisch induzierte Elektronen für die angegebene Zeit beweglich sind. Dies ist nicht unbedingt gleichzusetzen mit einem in dieser Zeit stattfindenden Einfang der Elektronen in tiefe Störstellen. Ebenso ist eine Relaxation in Zustände, die sich energetisch nahe der Bandlücke befinden, denkbar. In wieweit die Dynamik an und unterhalb der Bandlücke für den gesamten Relaxationsprozeß relevant ist, wird in Abschnitt 5.2 analysiert.

Eine genauere Untersuchung der Relaxationsdynamik auf der Basis eines mikroskopischen Modells, das Elektron-Phonon- und Elektron-Elektron-Streuung sowie den Einfang von Elektronen berücksichtigt, würde eine Simulation der Dynamik mit einer Monte-Carlo- oder einer ähnlichen Methode erforderlich machen. Die theoretischen Schwierigkeiten sind aus Simulationen für Experimente an Standard GaAs bekannt. Für LTG GaAs kommt die erhebliche zusätzliche Komplikation des Einfanges hinzu. Es bleibt festzuhalten, daß das verwendete Modell einen zuverlässigen Vergleich zwischen verschiedenen Messungen liefert.

Schon in Abbildung 5.1 ist neben der ultraschnellen Relaxationsdynamik eine auf der gezeigten Zeitskala bleibende induzierte Absorption zu erkennen. An dieser Stelle erfolgt eine experimentelle Abschätzung der Dauer dieses Signalbeitrages.

Die Beobachtung einer induzierten Absorption ist Gegenstand der Diskussion in der aktuellen Literatur [69, 124]. Als Ursache dieses Langzeiteffektes werden in der Regel eingefangene Ladungsträger in tiefen Störstellen angesehen: Sofern in Störstellen eingefangene Elektronen optische Übergänge ins Leitungsband erfahren können, wird der Abtastpuls aufgrund der erhöhten Absorption abgeschwächt werden. Eine Untersuchung dieses sich auf einer Zeitskala von ca. 10 ps als Offset bemerkbar machenden Signalbeitrages ist schwierig, was der Grund dafür sein mag, daß keine systematischen Un-

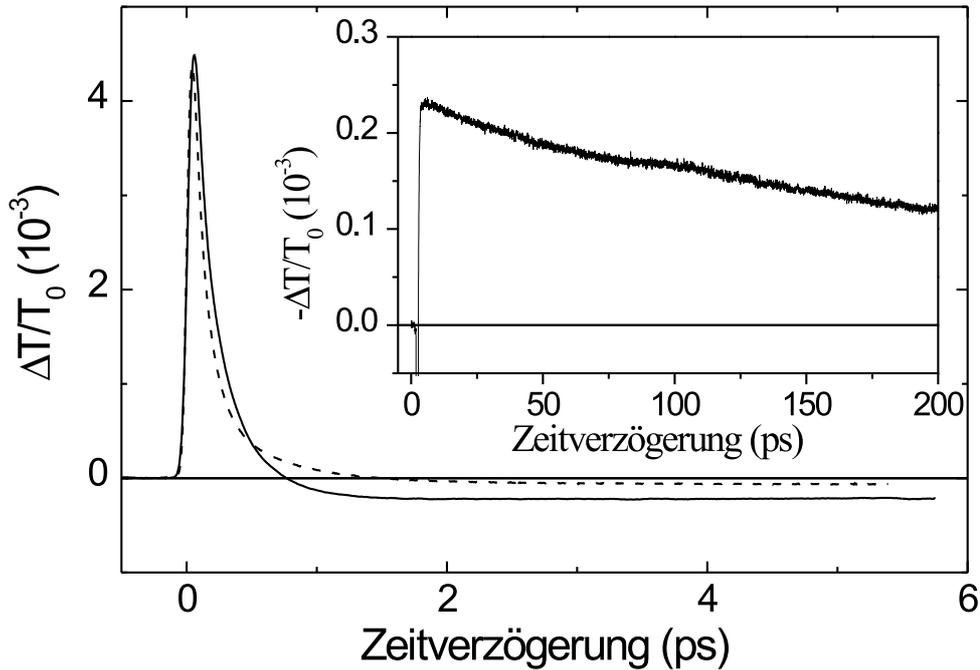


Abbildung 5.2.: Vergleich zweier differentiellen Transmissionsmessungen mit einem 82 MHz- und einem 1.6 GHz-Laser. Es wurden identische Anregungsdichten von $2.3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ gewählt. Die Probenstelle ist identisch. Der Einsatz zeigt einen 200 ps-Scan mit dem 82 MHz-Lasers (Das Signal ist invertiert).

tersuchungen speziell zu diesem Thema veröffentlicht sind. Für unterschiedliche Proben ergibt sich aus eigenen Messungen eine geringe Reproduzierbarkeit der Amplituden des Signalbeitrages. Eine Relaxationszeit der induzierten Absorption läßt sich aus den Daten in [69] zu über 300 Pikosekunden abschätzen. Bei dem dort verwendeten Material handelt es sich jedoch um nicht ausgeheiltes LTG GaAs.

Im Folgenden wird die Relaxationszeit des langsamen Signalbeitrages auf zwei sich ergänzende Arten bestimmt. Im ersten Fall wird ein Zeitscan über mehrere hundert Pikosekunden mit einem Laser mit 82-MHz-Wiederholrate durchgeführt. Hierbei ist auf eine sehr genaue Justage der optischen Verzögerungsstrecke zu achten, um eine laterale Drift des Anregepulses auf der Probe zu verhindern. Zusätzlich lassen sich eventuelle Ungenauigkeiten in der Strahlführung durch eine Vergrößerung des Anregepots vermindern. Diese Maßnahmen sind vor allem aufgrund des kleinen Signals notwendig. Der Einsatz in Abbildung 5.2 zeigt vergrößert den negativen Transmissionsbeitrag über 200 ps an einer optimierten Probe. Bei einer Zentralwellenlänge von 810 nm und einer Anregungsdichte von $2.3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ist über diese Zeit eine Reduktion der induzierten Absorption

um fast die Hälfte zu beobachten. Das Auflösungsvermögen beträgt in dieser Messung 1×10^{-5} , gewährleistet also bei einer initialen Signalamplitude von $2.3 \times 10^{-4} \Delta T/T$ das notwendige S/N-Verhältnis. Bei Annahme eines monoexponentiellen Verhaltens ergibt die Signalabnahme eine Relaxationszeit von 310 ps. Dies bedeutet insbesondere, daß die Probe sich zwischen zwei Laserpulsen von ca. 10 ns Abstand vollständig erholt. Dies ist eine nicht unwichtige Feststellung, da auch Werte von etlichen Nanosekunden bis zu Mikrosekunden für induzierte Änderungen von optoelektronischen Eigenschaften von LTG GaAs publiziert sind [39].

Um den Relaxationswert zu überprüfen, eignet sich ein Laser der hohen Wiederholrate von 1.6 GHz wie er in Abschnitt 3.1 beschrieben ist. Der zeitliche Abstand der einzelnen Pulse beträgt bei diesem Laser nur 625 ps. Diese Zeit reicht nach dem Ergebnis der ersten Meßmethode nicht zu vollständigen Erholung des Materials aus. Transienten unter identischen Anregebedingungen mit beiden Lasersystemen sind in Abbildung 5.2 dargestellt. In beiden Fällen beträgt die Ladungsträgerdichte $2.3 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$. Im Rahmen der Meßgenauigkeit sind die Amplituden beider Transienten zum Zeitnullpunkt identisch. Dabei ist darauf geachtet, daß die verwendeten Probenstellen maximal $10 \mu\text{m}$ voneinander abweichen. Auch der anschließende Signalverlauf in den ersten zwei Pikosekunden ist erwartungsgemäß qualitativ gleich. Ein minimal früherer Signalabfall der 1.6 GHz-Kurve resultiert aus einer mit 25 fs ungefähr 15 fs kürzeren Pulsdauer dieses Lasers. Beide Signale erreichen bei ca. 2.3 ps Zeitverzögerung ihr absolutes Minimum und verzeichnen dort negative Transmissionsänderungen. Jedoch ist bei höherer Wiederholrate eine geringere Amplitude dieser negativen Transmissionsänderung zu beobachten. Das Verhältnis der beiden Offsets zueinander beträgt $O_{\text{GHz}}/O_{\text{MHz}} = 0.273$.

Die Abhängigkeit des Offsets von der Wiederholrate des Lasers weist auf einen Akkumulationseffekt hin. Bei einem Pulsabstand von 625 ps ist – wie auch der Langzeitscan bestätigt – der Halbleiter noch nicht wieder in seinen Grundzustand relaxiert. Aus dem Verhältnis der Offsets beider Messungen kann auf einfache Art eine Zeitkonstante des langsamen Signalbeitrages ermittelt werden. Dabei werden folgende Annahmen gemacht: Die Signalrelaxation ist monoexponentiell und bei niedriger Wiederholrate ist eine Akkumulation nicht relevant. Für die Betrachtung können die leicht unterschiedlichen Pulslängen vernachlässigt werden, da Langzeiteffekte davon nicht betroffen sind. Bei der Berücksichtigung von Akkumulationseffekten durch vorhergehende Pulse, die über das Verhältnis $O_{\text{GHz}}/O_{\text{MHz}}$ und den 625 ps-Pulsabstand im GHz-Fall in die Simulation eingehen, ergibt sich aus der numerischen Simulation eine Zeitkonstante von ca. 400 ps. Dieser Wert stimmt gut mit den schon ermittelten 310 ps überein. Dies bekräftigt die Annahme, daß die Reduktion des Offsets beim 1.6 GHz-Laser durch Akkumulation hervorgerufen wird. Bemerkenswert ist ferner, daß die Relaxationszeit anscheinend mit den für nicht ausgeheiltes LTG GaAs ermittelten 300 ps aus [69] korreliert. Dort wird diese Zeit als Rekombinationszeit eingefangener Ladungsträger identifiziert und als rele-

vanter Relaxationskanal dargestellt. Dieser Interpretation muß für das hier untersuchte Material widersprochen werden. Eine wesentliche Eigenschaft dieses Signalbeitrages ist seine Sättigung schon für Anregungsdichten von wenigen 10^{17} cm^{-3} . Dies würde schon für Anregungsdichten von einigen 10^{18} cm^{-3} Ladungsträgern eine deutliche Zunahme der Einfangzeit freier Elektronen bedeuten, da der Relaxationskanal blockiert wäre (siehe auch Seite 129 in Kapitel 6.3). Ein solches Verhalten kann jedoch nicht beobachtet werden. Für den Fall, daß es sich um die Besetzung tiefer Störstellen handelt, scheinen diese demnach nicht den einzigen Relaxationskanal zu stellen. Über den Ursprung des diskutierten Signalbeitrages läßt sich weiter spekulieren. Grund könnten auch Oberflächenzustände sein, die sich aufgrund des speziellen Wachstums von denen in Standard GaAs unterscheiden.

Die Messung der THz-Transmission nach optischer Anregung in Kapitel 6 werden noch einmal bestätigen, daß auch keine freien Ladungsträger für die induzierte langlebige Absorption verantwortlich sein können. Es ist letztendlich festzustellen, daß aufgrund der Sättigung schon bei geringer Dichte die ultraschnelle Dynamik von LTG GaAs nicht beeinflußt ist.

Die schnelle Ladungsträgerrelaxation ist abhängig von dem beim Wachstum eingebauten As-Überschuß. Steigende Wachstumstemperatur T_g bedingt geringere Störstellendichten (siehe Seite 14). Da in der Literatur bis zum jetzigen Zeitpunkt nur ungenaue Bestimmungen der Abhängigkeit der Ladungsträgereinfangzeit (oder genauer: Ladungsträgerbeweglichkeitszeit) mit T_g vorhanden sind [57], soll als letzter Punkt in diesem Unterabschnitt diese Abhängigkeit untersucht werden. Die Ungenauigkeiten resultieren zum einen aus einer zu hohen Abtastenergie sowie der verwendeten Meßmethode (Reflexionsmessung in [57]) und zum anderen auf die Vernachlässigung der Pulsdauern. Wie bereits erläutert, ist dies bei Zeitkonstanten von minimal 100 fs, wie sie in [57] berichtet werden, nicht korrekt.

Zur Untersuchung stehen neben der 200 °C-Probe drei Proben mit den Wachstumstemperaturen 235 °C, 245 °C und 275 °C zur Verfügung. Diese sind vom Institut für Technische Physik I der Friedrich Alexander Universität Erlangen bereitgestellt worden. Alle Proben sind bei 600 °C ausgeheilt. In Abbildung 5.3 sind Transmissionsmessungen bei identischen Anregebedingungen gezeigt. Es werden Ladungsträgerdichten von ca. $5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ bei einer Pulsenergie von 1.46 eV – 40 meV oberhalb der Bandlücke – induziert. Zum besseren Vergleich sind die Transienten auf eins normiert. Alle Proben zeigen exponentielle Signalabfälle auf einer Pikosekundenzeitskala. Wieder ist jeweils ein kleiner negativer Signalbeitrag nach fünf Pikosekunden zu erkennen. Die Ergebnisse für die Beweglichkeitszeit freier Ladungsträger τ_μ der numerisch angepaßten Kurven nach dem Modell von Seite 67 sind in der folgenden Tabelle aufgelistet:

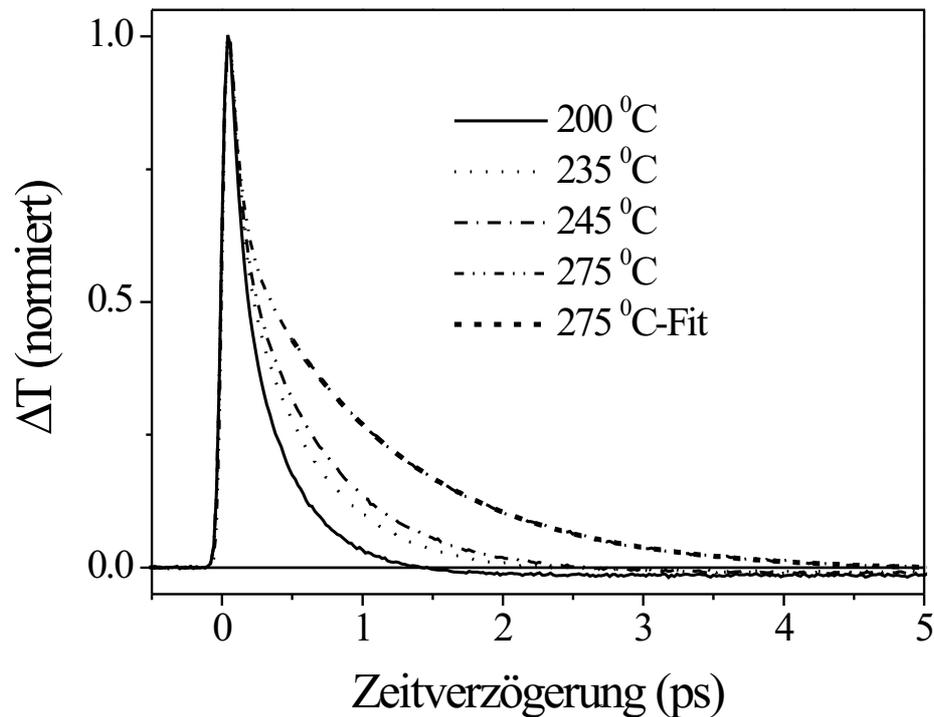


Abbildung 5.3.: Transiente Transmissionsänderungen für verschiedene Wachstumstemperaturen zwischen 200 °C und 275 °C und einer Ausheiltemperatur von 600 °C bei gleichen Anregebedingungen.

	200 °C	235 °C	245 °C	275 °C
τ_μ	0.3 ps	0.5 ps	0.55 ps	1.2 ps

Als Beispiel ist für die Transiente der 275 °C–Probe die numerisch angepaßte Kurve ab einer Zeitverzögerung von 0.5 ps in die Abbildung aufgenommen.

Deutlich wird, daß mit sinkender Wachstumstemperatur die ermittelten Beweglichkeitszeiten kürzer werden. Dies entspricht der Erwartung, bei höherer Störstellendichte einen effektiveren Ladungsträgereinfang zu haben. Es liegen leider keine Werte der Gitterfehlpassung für die verschiedenen Wachstumstemperaturen vor. Somit ist eine Abschätzung des As–Überschusses über Gleichung (2.7) nicht möglich und die Zeitkonstanten können nicht in Abhängigkeit mit der Störstellendichte gebracht werden. Das Gleiche gilt für eine eventuelle Korrelation der Ausscheidungsdichte und der Zeitkonstanten wie es in [64] postuliert wird. Die untersuchten LTG GaAs-Proben sind vergleichbar mit den in [57] untersuchten LTG GaAs–Materialien. Ein Vergleich mit den dort für die Ladungsträgereinfangzeit τ_μ erzielten Resultaten zeigt, daß die hier gemessenen Zeitkonstanten größer sind als in Referenz [57] bei gleicher Wachstumstemperatur.

Die kleinsten Zeitkonstanten in [57] sind für eine Wachstumstemperatur von 220 °C mit 0.1 ps bestimmt worden. Für 200 °C steigt die Zeitkonstante wieder auf ca. 0.2 ps an. Dies liegt aller Wahrscheinlichkeit nach an den eben erwähnten unzulänglichen experimentellen Voraussetzungen und ist, obwohl es in [57] so dargestellt wird, kein Wiederanstieg der Beweglichkeitszeit bei sinkender Temperatur T_g . Die hier gemessenen längeren Zeitkonstanten sind somit erheblich genauer. Sie weisen kein Minimum auf, werden also mit sinkendem T_g kleiner. Zusätzlich zeigt die Diskrepanz zwischen den kürzesten Zeitkonstanten in [57] von 0.1 ps und den 0.3 ps aus Abbildung 5.3, daß Reflexionsmessungen deutlich kürzere Zeitkonstanten liefern können. Dies ist auch näher in [59] analysiert worden.

Einschränkend muß darauf hingewiesen werden, daß es sich um Proben aus zwei verschiedenen MBE-Anlagen handelt. Um generelle Aussagen machen zu können, wäre jedoch eine Probenserie aus nur einer MBE-Anlage wünschenswert, bei denen eine vollständige Strukturanalyse wie die Ermittlung der Störstellendichten vor der Ausheilung und TEM-Aufnahmen nach der Ausheilung durchzuführen sind.

5.2. Dynamik unterhalb der Bandlücke

Untersuchungen zur Ladungsträgerdynamik in LTG GaAs beschränken sich bis auf wenige Ausnahmen [67, 124, 125, 126] auf Anrege/Abfrage-Experimente oberhalb der Bandlücke. Zumeist sind in diesem Bereich auch nur Daten zu transienten Reflexionsänderungen publiziert [56, 57, 61]. Wie aus dem vorherigen Abschnitt ersichtlich wurde, können auch bei Transmissionsmessungen in Abhängigkeit von der Überschußenergie photoinduzierter Ladungsträger unterschiedliche Zeitkonstanten bestimmt werden. Die Gründe dafür sind bereits ab Seite 66 erläutert worden. Die im letzten Abschnitt ermittelte Zeitkonstante τ_μ kann als Zeit, in der photogenerierte Elektronen eine hohe Beweglichkeit besitzen, interpretiert werden. Es stellt sich jedoch die Frage, welche Bedeutung bandlückennahe Zustände für die Relaxationsdynamik haben. Diese sind deutlich in den Dauerstrichuntersuchungen von Kapitel 4.5 zu erkennen. Aufgrund der Störung der Bandstruktur in LTG GaAs ist eine Trennung von z.B. Elektronen im Leitungsbandminimum von Elektronen in flachen Störstellen in den bisher vorgestellten zeitaufgelösten Experimenten kaum möglich. Eine Unterscheidungsmöglichkeit mag in einer Messung der Mobilität der Ladungsträger liegen. Diese sollte sich für Ladungsträger in flachen Störstellen reduzieren.

Die Tatsache, daß es sich bei dem bei $T_g = 200$ °C und $T_a = 600$ °C hergestellten LTG GaAs auch bei Raumtemperatur um hochresistives Material handelt, zeigt, daß nur eine vernachlässigbare Dotierdichte 20 bis 30 meV unterhalb der Bandlücke vorhanden ist und die Fermienergie deutlich unterhalb dieser Zustände liegen muß. Dies wird

auch durch elektrische Charakterisierungen bestätigt (Kapitel 2.2). Vielmehr erfährt die lineare Absorption in Halbleitern generell eine Modifikation zu theoretischen Bandstrukturechnungen, bei denen das Material ideal kristallin angenommen und Phononeffekte nicht betrachtet werden [127]. Unordnung verändert die Bandstruktur eines reinen Kristalls auf solche Art und Weise, daß die Zustandsdichten sowohl des Valenzbandes als auch des Leitungsbandes exponentiell in die Bandlücke abfallen. Die Ausläufer der Absorption werden als *Urbach-Tail* oder *Urbach-Martienssen-Tail* bezeichnet [128]. Die empirische Regel dieses exponentiellen Abfalls

$$\alpha(\nu) = \alpha_0 \exp[(h\nu - E_G(T))/E_0(T)] \quad (5.6)$$

ist sehr universell. Die Energie $E_G(T)$ liegt in Nähe der Bandlückenenergie des reinen Kristalls. Die Energie $E_0(T)$ charakterisiert den Grad der Unordnung im betrachteten Material. Sie liegt bei amorphen Materialien als dem einen Extremfall im Bereich von 30 meV bis 200 meV. Bei kristallinen Materialien dagegen sind Werte zwischen 1 meV und 30 meV üblich. Der Urbach-Tail setzt sich im allgemeinen aus einem dynamischen, temperaturabhängigen und einem statischen Anteil zusammen: Der dynamische Anteil resultiert aus der Wechselwirkung der Kristallatome mit Phononen und tritt somit auch in reinen Kristallen auf. Ein nicht temperaturabhängiger Anteil resultiert aus statischer Unordnung wie Störstellen. Die Relaxation von thermischen Gitterplatzauslenkungen erfolgt um Größenordnungen langsamer als die optische Absorption. Damit kann die optische Absorption als instantaner Prozeß bezüglich der Gitterauslenkung betrachtet werden, d.h. statischer und dynamischer Anteil zum Urbach-Tail sind additiv. Der thermische Anteil zu $E_0(T)$ beträgt in GaAs bei Raumtemperatur ca. 10 meV [129, 130]. Um phononische Einflüsse auf die Untersuchung der bandlückennahen Zustände zu vermeiden, werden die folgenden Experimente bei 8 Kelvin durchgeführt. Die Saphirplatte, auf der sich der LTG GaAs-Film befindet, wird dazu auf einen Kupferhalter in einem Kryostat montiert. Die verglichen mit Glas hohe Wärmeleitfähigkeit von Saphir erweist sich wieder als Vorteil.

Der Vergleich der linearen Absorption der LTG GaAs Probe mit der linearen Absorption von Standard GaAs (Abbildung 5.4) zeigt die Aufweichung der Bandlücke sowie die inhomogene Verbreiterung der exzitonischen Resonanz auch bei 8 Kelvin. Es ist wichtig, festzustellen, daß qualitativ keine Änderung zur Raumtemperaturmessung auftritt. Das Fehlen einer exzitonischen Resonanz in LTG GaAs ist prinzipiell zu erwarten, wenn man bedenkt, daß die Mott-Dichte in GaAs um den Wert $3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ liegt [6]. Sie hat in GaAs aufgrund des großen Bohrradiuses der Exzitonen diesen kleinen Wert. Da die Störstellendichte in LTG GaAs um $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ liegt, werden allein aus diesem Grund keine ungestörte Elektron-Loch-Paare in LTG GaAs vorliegen können.

Im Folgenden wird speziell die Relaxationsdynamik, die nach der Erzeugung freier Ladungsträger zu beobachten ist, bis zu 40 meV unterhalb der Bandlücke betrachtet.

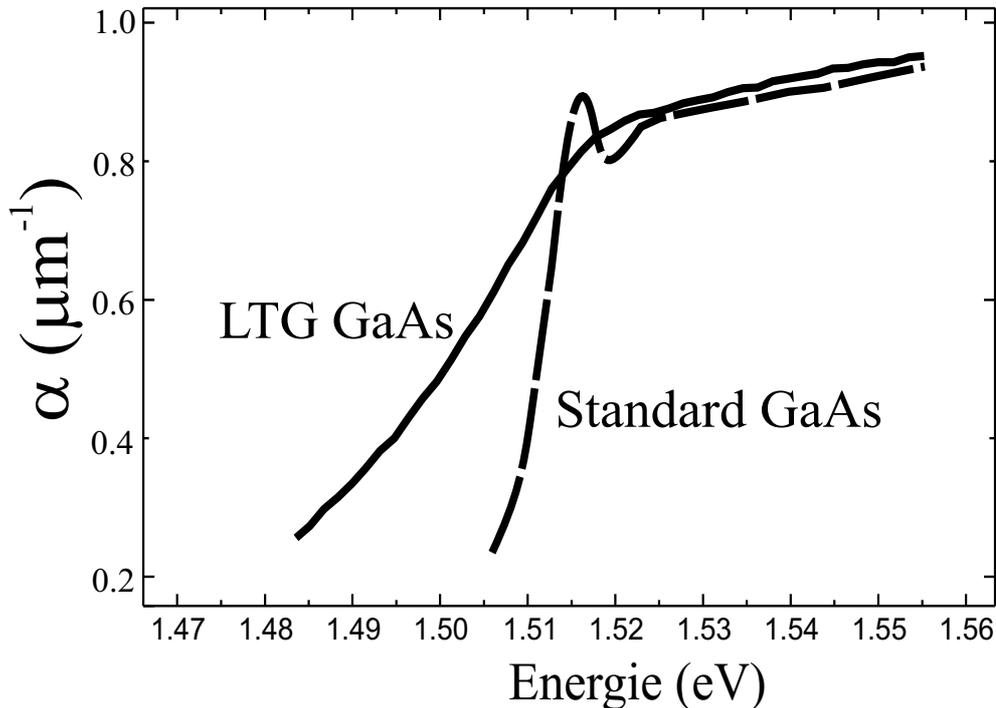


Abbildung 5.4.: Vergleich der linearen Absorption bei 8 Kelvin von optimiertem LTG GaAs und Standard GaAs.

5.2.1. Ergebnisse und Diskussion

In einem ersten Schritt muß überprüft werden, ob die ultraschnelle Dynamik freier Ladungsträger nach optischer Anregung bei tiefen Temperaturen der Dynamik bei Raumtemperatur entspricht. Dies läßt sich mit Abbildung 5.5 zeigen. Bei einer Anregungsdichte von $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ und einer Überschußenergie von 30 meV ist die Transmissionsänderung qualitativ mit den Raumtemperaturmessungen identisch. Das entartete Anrege/Abfrage-Experiment liefert eine Zeitkonstante von $\tau_{\mu} = 0.36 \text{ ps} \pm 0.02 \text{ ps}$. Dies entspricht den Zeitkonstanten, wie sie auch bei Raumtemperatur zu finden sind. Mögliche Hinweise einer Modifikation der Ladungsträgerdynamik werden ebenso in der Literatur nicht berichtet. Somit stellen die gewählten Tieftemperaturbedingungen keine besondere Einschränkung dar.

Zur genaueren Untersuchung der Dynamik an der Bandlücke wird der Anrege/Abfrage-Aufbau folgendermaßen modifiziert: Der spektral mit 40 meV FWHM breite Anregepuls wird mittels eines optischen Interferenzfilters auf eine spektrale Breite von ca. 5 meV reduziert, was gleichzeitig die zeitliche Dauer des Pulses um ungefähr den Faktor vier auf 200 fs erhöht. Der Abtastpuls behält die volle spektrale Breite und damit die zeitliche Dauer bei. Hinter der Probe wird der Abtastpuls über eine Glasfaserzuführung

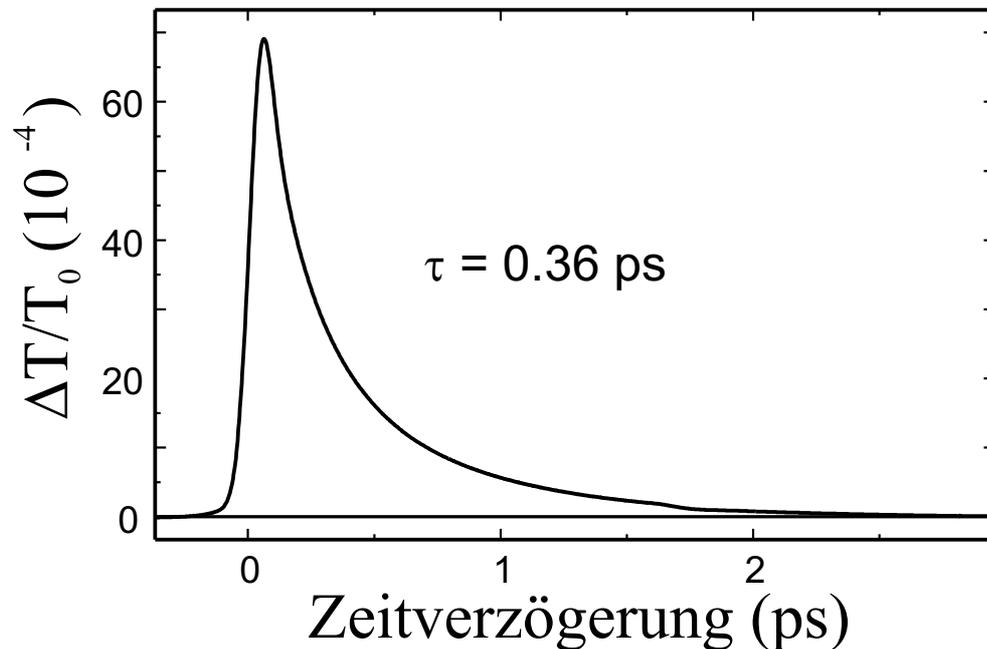


Abbildung 5.5.: Entartetes Anrege/Abfrage-Experiment 30 meV oberhalb der Bandlücke durchgeführt bei 8 Kelvin und einer Anregungsdichte von $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$.

in einen Monochromator eingekoppelt. Bei einer spektralen Auflösung von 2 meV wird das Signal mittels eines schnellen Photomultipliers detektiert. Dieser erlaubt den Einsatz des Fast-Scan-Meßsystems. Auf eine Differenzbildung mit einem Referenzsignal wie es in Abbildung 3.2 dargestellt ist, muß verzichtet werden, da ein zweiter Photomultiplier, wie er für diese Differenzbildung notwendig wäre, in der Regel einen unterschiedlichen Verstärkungsfaktor aufweist und so eine Eliminierung von Laserfluktuationen nicht möglich ist. Die beschriebene Konfiguration kann als ein Quasi-Zweifarbensexperiment aufgefaßt werden: Es lassen sich Zustände abtasten, die nicht initial durch den Anregepuls besetzt worden sind, die jedoch energetisch nicht mehr als einige zehn meV von der anfänglichen Besetzung entfernt sind. Positioniert man die Zentralwellenlänge des Lasers in Nähe der Bandlücke so, wie es in Abbildung 5.6 skizziert ist, so regt der Anregepuls bei geeigneter Wahl des Interferenzfilters in erster Linie freie Ladungsträger an. Mit einer Frequenzauflösung von 2 meV kann die Relaxation in Zustände unterhalb der Bandlücke und aus diesen Zuständen heraus aufgenommen werden.

Die Bandlücke von GaAs schiebt vom Raumtemperaturwert von $E_G = 1.42 \text{ eV}$ um 100 meV für Temperaturen unter 30 Kelvin auf $E_G = 1.52 \text{ eV}$ [5]. In diesem Unterabschnitt wird die Überschußenergie auf diesen Wert bezogen. Für die Experimente sind Anregungsdichten von $2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ bis $2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ gewählt. In Abbildung 5.7 sind zeit- und energieaufgelöste Transienten über einen Energiebereich von mehr als 40 meV

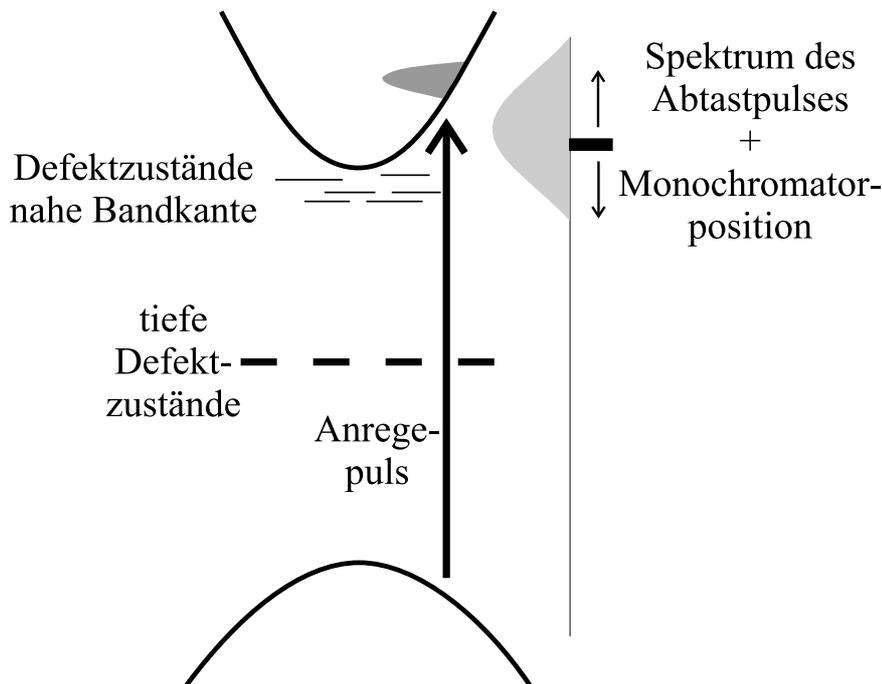


Abbildung 5.6.: Eingezeichnet sind die spektrale Positionen des Anregepulses und des Abfragepulses bezüglich der Bandlücke. Die Monochromatorposition kann kontinuierlich durchgestimmt werden.

um die Bandlücke gezeigt. Die Überschussenergie des Anregepulses beträgt 16 meV und liegt damit deutlich unter der Energie der LO-Phononen von 36 meV. Die Amplitude der Transmissionsänderung mit der höchsten Abtastenergie von $1.532 \text{ eV} - 4 \text{ meV}$ unterhalb des Anregepulses – beträgt $\Delta T/T_0 = 4.5 \times 10^{-3}$. An der Signalform dieser Transienten läßt sich die Zeitdauer des Anregepulses zu 190 fs abschätzen. Dies ist in guter Übereinstimmung mit gemessenen 210 fs, die aus einer Kreuzkorrelationsmessung von Anrege- und Abfragepuls resultieren. Die Ladungsträgerdichte bei den hier gezeigten Kurven beträgt $5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$. Für alle Abtastenergien werden erhöhte Transmissionen beobachtet, denen nur bei einer Photonenenergie von 1.490 eV ein kleines negatives Signal vorausgeht. Diese positiven Transmissionsänderungen sind wie in der bisherigen Interpretation Folge der Besetzung der vorhandenen Zustände. Neben dieser Gemeinsamkeit fallen qualitative Unterschiede der einzelnen Kurven auf. Ein wesentliches Merkmal der Transienten ist das zeitliche Schieben des Maximums. Je kleiner die Abtastenergie ist, desto später wird das Maximum der Transmissionsänderung erreicht. Diese Dynamik spielt sich auf einer Zeitskala unterhalb von 500 fs ab. Offensichtlich findet innerhalb dieser Zeit eine effektive Besetzung von Zuständen, die von Abtastenergien kleiner als die Bandlücke erfaßt werden, statt. Durch die spezielle experimentelle Konfiguration

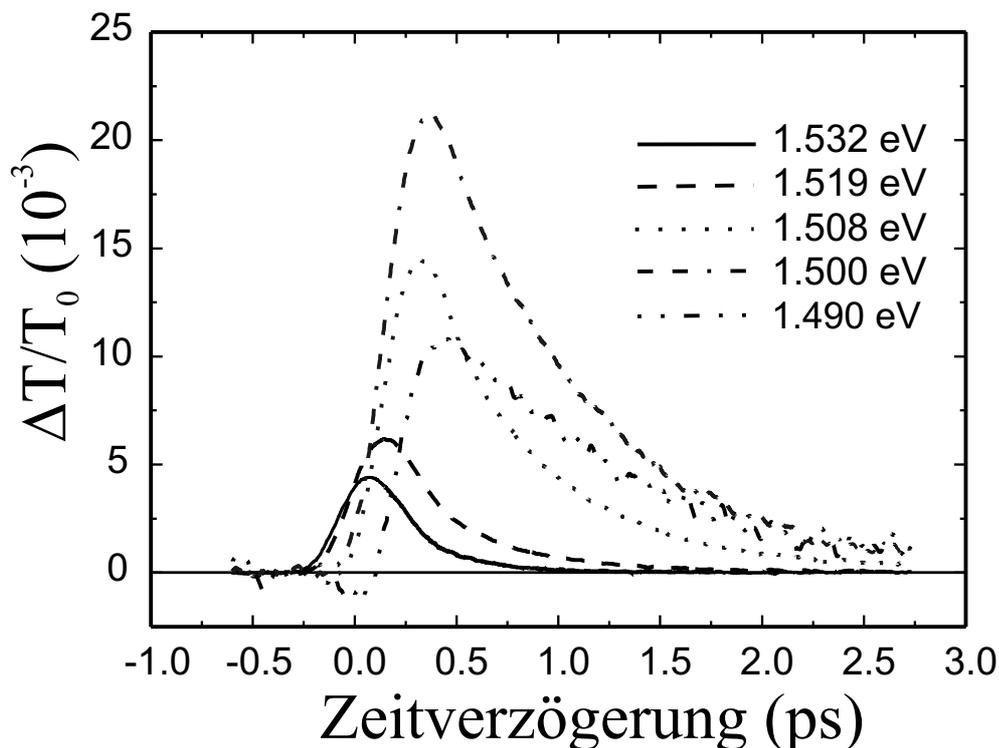


Abbildung 5.7.: Zeitaufgelöste und spektral aufgelöste Transienten an und unterhalb der Bandlücke. Die Anregeenergie beträgt 1.540 eV bei einer Anregungsdichte von $5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$.

können diese Zustände nicht initial über Photonen des Anregepulses besetzt werden. Die Beobachtung eines zeitlichen Schiebens des Maximums in Abhängigkeit der Abtastenergie unterstützt ferner die Annahme, daß initial überwiegend Interbandübergänge angeregt werden. Störstellenübergänge wie etwa die Ionisierung von As_{Ga}^0 mit der Erzeugung eines freien Elektrons können ein Schieben nicht erklären, da in diesem Fall keine definierten k -Raum-Übergänge ins Leitungsband vorliegen. Die energetische Verteilung der über $\text{As}_{\text{Ga}}^0 + h\nu \rightarrow e^- + \text{As}_{\text{Ga}}^+$ erzeugten Elektronen entspräche dann der Störstellenverbreiterung, die nach [38] jedenfalls größer als 100 meV wäre.

Nach Erreichen des Maximums findet ein rein monoexponentieller Zerfall der einzelnen Kurven statt. Abbildung 5.8 verdeutlicht dies. Die Signale sind auf einer halblogarithmischen Skala dargestellt. Zur besseren Übersicht sind alle Kurven auf eins normiert. Sie sind ab ihrem jeweiligen Maximum gezeigt, das auf einen gemeinsamen willkürlichen zeitlichen Wert gelegt ist. Hier wird besonders das vollkommen monoexponentielle Abklingen der induzierten Transmissionsänderung schon kurz nach dem Maximum für Abtastenergien unterhalb der Bandlücke hervorgehoben. Das monoexponentielle Verhalten

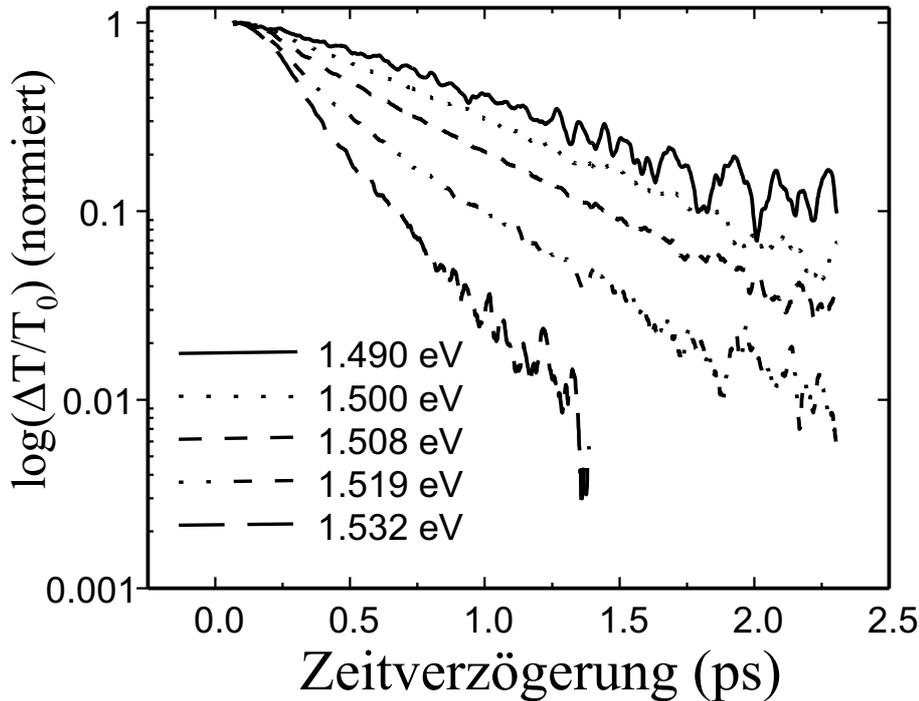


Abbildung 5.8.: Normierter semilogarithmischer Plot der Transienten. Zur besseren Übersicht sind die Maxima der Kurven auf einen gemeinsamen Zeitnullpunkt geschoben worden.

ist bis zur S/N-Begrenzung der einzelnen Kurven zu beobachten. Diese ist für niedrige Frequenzen eher erreicht, da man sich spektral immer weiter von der Zentralfrequenz des Laserpulses entfernt. Aufgrund der geringer werdenden Intensität in der Flanke des Abtastspektrums hat dies ein sich verschlechterndes S/N-Verhältnis zur Folge. Auch die beiden Kurven oberhalb bzw. bei E_G zeigen in guter Näherung ein monoexponentielles Verhalten.

Eine Tendenz, die auch schon bei den entarteten Anrege/Abfrage-Experimenten oberhalb der Bandlücke zu beobachten war (siehe Abbildung 4.2), tritt hier noch wesentlich deutlicher auf: Die Zeitkonstanten der Transienten nehmen mit sinkender Abtastenergie zu. Für die höchste Abtastenergie von 1.532 eV ergibt sich eine Zeitkonstante von $\tau_\mu = 0.26$ ps. Sie steigt bis zur Bandlücke auf $\tau = 0.48$ ps an. Unterhalb der Bandlücke liefern die gezeigten Kurven Zeitkonstanten von $\tau = 0.65$ ps bei 1.509 eV, $\tau = 0.78$ ps bei 1.5 eV sowie $\tau = 0.92$ ps bei 1.49 eV. Die Linearität dieses Anstiegs verdeutlicht Abbildung 5.9. Qualitativ erhält man nun gegenüber den entarteten Experimenten weiterführende Aussagen, da die Anregungsenergie und damit die initiale Besetzung konstant gehalten wird und Transmissionsänderungen bis zu 30 meV unter-

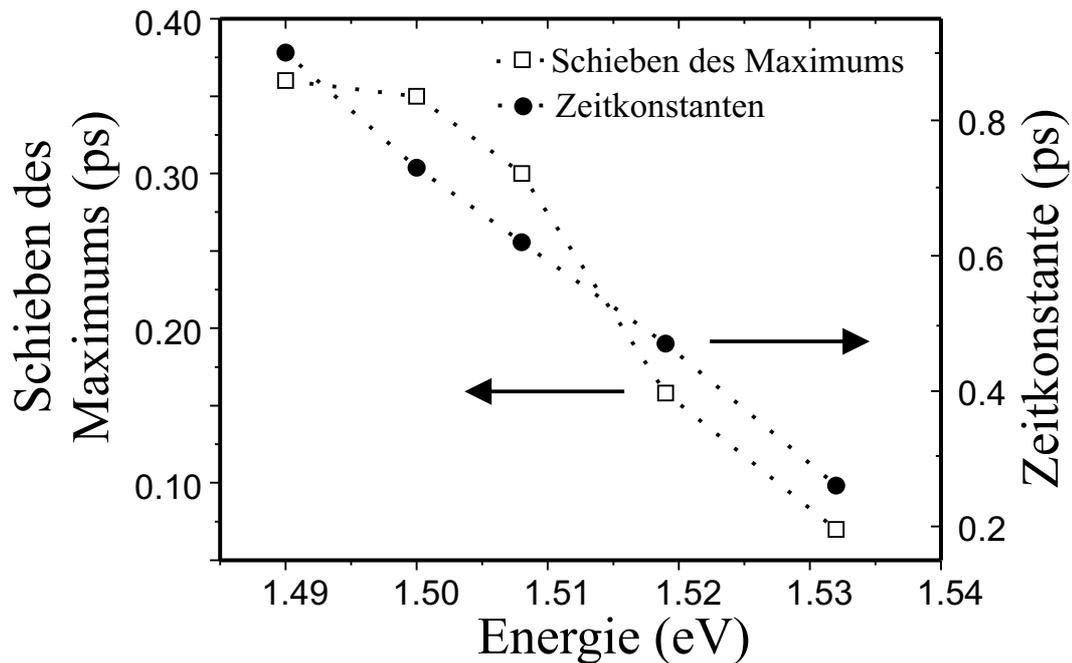


Abbildung 5.9.: Gezeigt sind die Verschiebungen der Signalmaxima und die Zeitkonstanten zu den Transienten in Abbildung 5.7.

halb der Bandlücke beobachtet werden. Die mit dem Anregepuls erzeugte heiße Ladungsträgerverteilung kann neben der Thermalisierung über Elektron–Elektron– und Elektron–Phonon–Streuung direkt heiße Ladungsträger durch Einfang in tiefe Störstellen verlieren. Offensichtlich findet in der verwendeten Anregesituation der direkte Einfang nicht so effizient statt, daß Relaxationsprozesse in Zustände an oder gerade unterhalb der Bandlücke nicht zu beobachten wären: Die Relaxation findet zu einem signifikanten Anteil über die Urbach-Tail-Zustände statt. Als solches kann der Relaxationsprozeß als zweistufig angesehen werden, bei dem eine schnelle Besetzung von bandlückennahen Zuständen einer Entleerung dieser Zustände vorausgeht.

Die Verschiebungen der Signalmaxima sind ebenfalls in Abbildung 5.9 gegen die jeweilige Abtastenergie aufgetragen. Bei den beiden niedrigsten Abtastenergien werden die Signalmaxima ca. 300 fs nach dem Maximum des Anregepulses erreicht. Da die Überschußenergie der Anregung zu den bandlückennahen Zuständen größer oder gleich einer LO–Phonon–Energie (36 meV) ist, wird die Relaxation in Form einer Thermalisierung über LO–Phonon–Emission ein wesentlicher Prozeß sein. Die zeitliche Verschiebung der Signalmaxima von 280 fs stimmt in ihrer Größenordnung mit Phononemissionszeiten von 170 fs überein, die für Standard GaAs gemessen wurden [131]. Hierbei muß beachtet werden, daß durch die vorhandene Unordnung in LTG GaAs mit der damit verbunde-

nen teilweisen Aufhebung der Translationsinvarianz k -Auswahlregeln für die Elektron-Phonon-Wechselwirkung nicht mehr in gleicher Schärfe gelten wie in einem idealen Kristall. Neben dem zeitlichen Schieben der Signalamplituden zeigt sich gleichzeitig ein nicht monotoner Verlauf der Signalamplituden mit der Abtastenergie. Mit sinkender Abtastenergie nimmt die Amplitude zuerst deutlich zu. Sie erreicht ihr Maximum bei einer Energie von genau 1.5 eV, um danach wieder zu fallen. Die höchste Nichtlinearität wird also nicht an der Bandlücke beobachtet³, sondern 20 meV unterhalb der Bandlücke. Diese Energie liegt eine Phononenergie unterhalb der initialen Ladungsträgerverteilung. Dies unterstützt die Behauptung der vornehmlich durch Phononemission verursachten Ladungsträgerrelaxation.

Optische Nichtlinearitäten von nahezu 2 % sind überraschend hoch. Sie sind vergleichbar mit Transmissionsänderungen, die bei Anregungen von exzitonischen Resonanzen in Quantentöpfen auftreten. Ähnlich große Transmissionsänderungen wurden in [132, 133] beim Vergleich von Dauerstrich-Elektroabsorptionsänderungen in LTG Al-GaAs und GaAs Quantentöpfen gefunden. Die Ursache der erhöhten optischen Nichtlinearitäten in Quantentöpfen ist auf die Einschränkung der Dimensionalität und einer daraus folgenden Erhöhung der Oszillatorstärke zurückzuführen. Analog sind auch Potentialfluktuationen für eine Lokalisierung elektronischer Wellenfunktionen verantwortlich. Es ist zu beachten, daß das 2 %-tige Signal bei einer Energie erreicht wird, bei der der lineare Absorptionskoeffizient auf ca. 50 Prozent des Bandlückenwertes gesunken ist. Dies macht das Material auch für schnelle optische Modulatoren und sättigbare Absorber in diesem Wellenlängenbereich attraktiv.

Diskussion

Die hohe optische Nichtlinearität gibt Hinweise auf den Ursprung der bandlückennahen Zustände in ausgeheiltem LTG GaAs. Zur Beobachtung der erhöhten optischen Nichtlinearitäten ist – wie bereits erwähnt – eine Lokalisierung der elektronischen Wellenfunktion Voraussetzung. Bei der hier durchgeführten Anregung ausgedehnter, blochartiger Zustände oberhalb der Bandlücke ist zur Lokalisierung eine Energierelaxation sowie eventuell ein räumlicher Transport notwendig. Der Transport kann ebenso zur Verzögerung in der Besetzung der bandlückennahen Zustände beitragen.

Als Ursache der räumlichen Potentialfunktionen sind zum einen Arsenausscheidungen zum anderen Punktdefekte denkbar. Im Folgenden werden beide Fälle diskutiert. Metallische Ausscheidungen mit Radien von einigen Nanometern wie sie mit den Arsenausscheidungen in LTG GaAs vorliegen, können zu einer inhomogenen Verbreiterung der Absorptionskante als Folge interner elektrischer Felder führen. Dieser inhomogene

³Dies ist die typische Situation für Standard GaAs, wo das Abtasten an der exzitonischen Resonanz auch die höchste optische Nichtlinearität ergibt.

Franz–Keldysch–Effekt sollte auch zu einer Absorption unterhalb der Bandlücke Anlaß geben. Die Entwicklung der linearen Absorption mit der Ausheiltemperatur wie sie in Kapitel 4.5 dargestellt ist, zeigt jedoch mit steigender Ausheiltemperatur eine stetige Verringerung der Absorption speziell unterhalb der Bandlücke. Ein offensichtlicher direkter Einfluß der Ausscheidungen auf die Absorption ist damit nicht erkennbar. Ferner würde die optische Anregung in diesen Schottkyfeldern zu einer teilweisen Abschirmung der Felder führen. Dies geht zwar einher mit einer positiven Transmissionsänderung, da bei geringerem Feld unterhalb der Bandlücke die momentane Absorption sinkt; die Abschirmung selber sollte jedoch ungefähr bei gleichen Zeitverzögerungen für die verschiedenen Abtastenergien auftreten und nicht – wie es beobachtet wird – mit größer werdender Verzögerung für sinkende Abtastenergie. Ebenso ist die Lokalisierung von Elektronen innerhalb zufällig verteilter Minima, die durch interne Felder zwischen den As–Ausscheidungen erzeugt werden, denkbar [49]. Dabei sollten die dann teilweise quantisierten Zustände jedoch oberhalb der Bandlücke auftreten und dort auch den dominierenden Beitrag zur nichtlinearen Absorption liefern. Dies steht jedoch auch in Widerspruch zur Messung, bei der die höchste Nichtlinearität 20 meV unterhalb der Bandlücke auftritt. As–Ausscheidungen können damit die Ergebnisse der Dauerstrich- und der Zeitbereichsmessungen nicht erklären. Die beobachtete Dynamik legt dagegen Punktdefekte als Ursache der räumlichen Potentialfluktuationen nahe.

Mit folgender Modellvorstellung lassen sich die Charakteristika der Messungen phänomenologisch erklären: Die Relaxation der Ladungsträger in die bandlückennahen Zustände verursacht eine Besetzungsänderung, die als positive Transmissionsänderung beobachtet wird. Dies geschieht auf einer Zeitskala von 0.3 ps. In einem weiteren Prozeß wird die Besetzung dieser Zustände abnehmen. Dies wird in den Transienten als monoexponentielle Relaxation sichtbar. Oberhalb der Bandlücke sind leichte Abweichungen vom monoexponentiellen Verhalten zu frühen Zeiten sichtbar. Dies ist Folge mehrerer möglicher Relaxationsprozesse. Unterhalb der Bandlücke gibt es demnach offensichtlich nur einen dominierenden Relaxationskanal aus den bandlückennahen Zuständen hinaus. Es findet der Ladungsträgereinfang aus diesen Zuständen in tiefe Zustände statt. Dagegen würden effektive Übergänge innerhalb der Verteilung der bandlückennahen Zustände eine Abweichung vom monoexponentiellen Abfall der Kurven zur Folge haben. Das Anwachsen der Einfangzeit erklärt sich in dieser Modellvorstellung durch die größer werdende Lokalisierung der elektronischen Wellenpakete mit sinkender Abtastenergie und der damit verbundenen Verringerung des Einfangwirkungsquerschnittes der lokalisierten Elektronen in die Einfangzentren. Dazu ist bei Störstellendichten im Bereich von $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ eine Lokalisierung auf einige Nanometer notwendig. Über elektrische Messungen und der Bestimmung von temperaturabhängigen Leitfähigkeiten ist die räumliche Ausdehnung von elektronischen Wellenfunktionen in den tiefen Störstellen zu ca. 0.8 nm bestimmt worden [33]. Bei der Annahme einer räumlichen Ausdehnung von einigen zehn

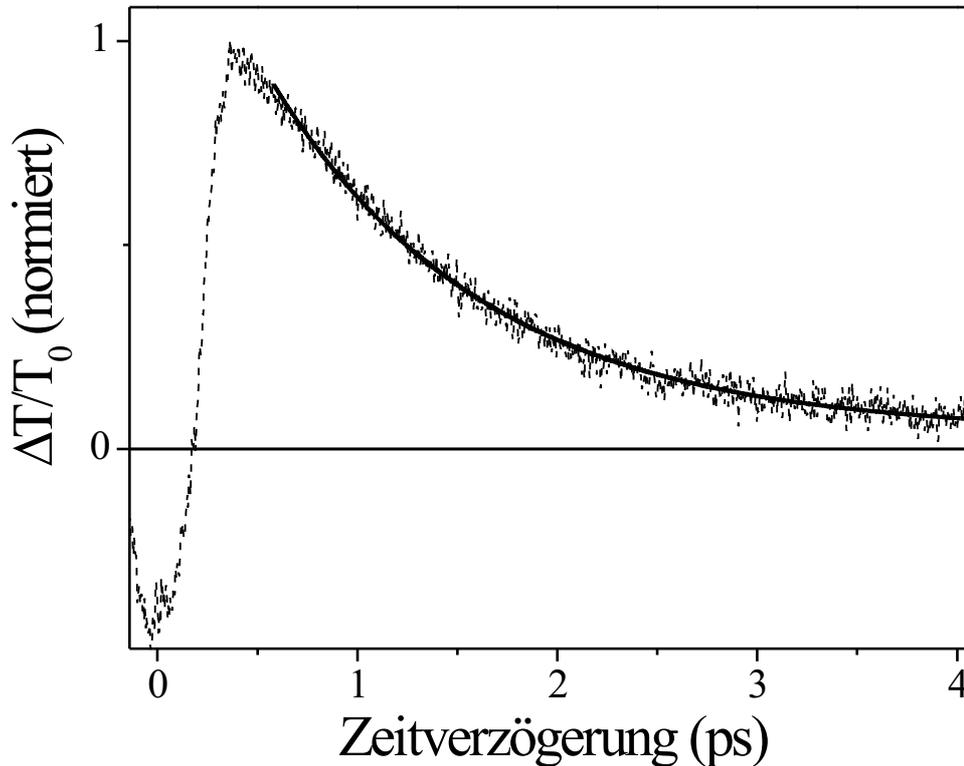


Abbildung 5.10.: Bei einer Abtastenergie von 1.47 eV ist mit einer Zeitkonstanten von 1.25 ps eine obere Grenze erreicht. Der monoexponentielle Fit ist ebenfalls gezeigt.

Nanometern der Wellenfunktionen in bandlückennahen Zuständen sollte eine Verlangsamung des Elektroneneinfangs aus statistischen Gründen nicht zu beobachten sein. In diesem Fall wäre die Übergangswahrscheinlichkeit aufgrund der räumlich konstanten Dichte tiefer Störstellen im wesentlichen unabhängig von der Ausdehnung der Wellenfunktionen in bandlückennahen Zuständen.

Die Aufnahme von Transienten mit niedrigeren Energien als 1.49 eV wird aufgrund der sinkenden Signalaufösung zunehmend schwieriger. Abbildung 5.10 zeigt eine Messung bei einer Abtastenergie von 1.47 eV. Das gute S/N-Verhältnis läßt sich durch Verzehnfachung der Meßdauer erklären. Auffallend ist ein negativer Signalbeitrag um den Zeitnullpunkt. Er resultiert vermutlich aus einer Bandkantenrenormierung. Der exponentielle Signalabfall beträgt 1.25 ps und liegt im oberen Bereich der in den Experimenten ermittelten Zeitkonstanten. Eine weitere Zunahme kann auch für niedrigere Energien nicht festgestellt werden⁴. Für den Ladungsträgereinfang aus bandlückenna-

⁴Aufgrund der sinkenden Signalamplitude und des erhöhten Rauschens wird die Bestimmung der Zeitkonstanten dort immer problematischer.

hen Zuständen in tiefe Einfangzustände läßt sich so eine ungefähre Zeitkonstante von $\tau_e = 1$ ps angeben. Diese Reduktion der Ladungsträger-Einfangraten kann bei der Verwendung von LTG GaAs beispielsweise in photokonduktiven Schaltern die erreichbare Bandbreite mindern. Dies ist weniger aufgrund eines möglicherweise zeitlich längeren Stromflusses als die im entarteten Anrege/Abfrage-Experiment ermittelten 0.3 ps zu erwarten. Vielmehr erhöht sich bei Raumtemperaturbetrieb der Rauschpegel aufgrund von Reemissionen von in den bandlückennahen Zuständen lokalisierten Elektronen. Ein solches erhöhtes Rauschen konnte bei auf LTG GaAs basierenden THz-Antennen festgestellt werden [134].

Ein qualitativ identisches Verhalten der Relaxationsdynamik unterhalb der Bandlücke in LTG GaAs ist von Smith et al. gesehen worden [67]. Neben geringeren Ausheiltemperaturen sind allerdings auch die Anregungsintensitäten dort um zwei Größenordnungen höher. Durch ein geringeres T_a ist zu vermuten, daß eine deutlich ausgeprägtere Absorption unterhalb der Bandlücke als in dem hier untersuchten Material besteht (siehe Abschnitt 4.5).

5.3. Ladungsträgerrelaxationsdynamik in tiefen Störstellen

Obwohl die Einsatzmöglichkeiten von LTG GaAs vielfältig sind und das Interesse an den zugrunde liegenden physikalischen Prozessen groß ist, beschränken sich Untersuchungen in der Regel auf die Beobachtung der Dynamik freier Ladungsträger. Wie die bisherigen Untersuchungen in dieser Arbeit zeigten, ist schon die Dynamik, die in entarteten Anrege/Abfrage-Experimenten mit Photonenenergien oberhalb oder an der Bandlücke untersucht werden kann, komplex. Speziell für optoelektronische schnelle Bauelemente spielen jedoch nicht nur die Einfangzeiten oder Beweglichkeitszeiten der freien Ladungsträger eine entscheidende Rolle. Vielmehr wird für hohe Wiederholraten die schnelle Rückkehr in den Ausgangszustand angestrebt. Dies bedeutet für den verwendeten Halbleiter die Rückkehr in seinen Grundzustand. Somit ist die endgültige Rekombinationszeit τ_r eingefangener Ladungsträger ein wesentlicher Parameter für die angesprochenen Bauelemente. In der Literatur sind häufig Spekulationen über die Rekombination eingefangener Ladungsträger zu lesen (siehe dazu auch Kapitel 2.2.1). Beispielsweise wird in nicht ausgeheiltem LTG GaAs in [69] von einer Rekombinationszeit von einigen hundert Pikosekunden berichtet. Eine entsprechende Rekombinationszeit in ausgeheiltem LTG GaAs würde die Tauglichkeit des Materials für den angestrebten Einsatz deutlich mindern.

Der Mangel an Kenntnis über die Dynamik eingefangener Ladungsträger mag auf die schwere experimentelle Zugänglichkeit dieser Dynamik zurückzuführen sein. Die Motiva-

tion für weitere Untersuchungen liegt auf der Hand. Wie gezeigt werden konnte, sind einerseits photoinduzierte freie Ladungsträger auf Pikosekundenzeitskala eingefangen, andererseits befindet sich das Material aber noch nicht wieder in seinem Grundzustand, da z.B. in Anrege/Abfrage-Experimenten über mehrere 100 ps konstante induzierte Transmissionsänderungen beobachtet werden können, wie in Abbildung 5.2 zu sehen ist. Es ist zu vermuten, daß eingefangene Ladungsträger eine längere Zeit in den Einfangzentren verweilen, wie es von vielen Störstellen in Halbleitermaterialien bekannt ist. Da strahlende Rekombination von lokalisierten Elektron-Loch-Paaren bisher in LTG GaAs nicht gefunden werden konnte und dies auch durch eventuelle Resonanzen in den linearen Absorptionsspektren nicht nahegelegt wird, ist es sinnvoll, zur Untersuchung der Dynamik eingefangener Ladungsträger wieder auf Anrege/Abfrage-Experimente zurückzugreifen. Bei einer Wahl der Abfrageenergie weit entfernt von den direkten Interbandübergängen ist man auch auf nicht strahlende Übergänge von beispielsweise tiefen Störstellen ins Leitungsband sensitiv, sofern die Wirkungsquerschnitte für solche Übergänge genügend groß sind.

Die Grundidee einer Abfrageenergie weit unterhalb von Interbandübergängen ist auf der linken Seite in Abbildung 5.11 skizziert. Ein Abfragepuls, der aufgrund seiner Photonenenergie keine direkten Interbandübergänge abtasten kann, ist sensitiv auf Besetzungsänderungen in der Bandlücke. Ein optisches Abtasten der verschiedenen Störstellen oder Änderungen der Besetzungen dieser Zustände setzt eine optische Kopplung voraus. Diese sollte nach Literatur für die in LTG GaAs relevanten Störstellen aufgrund der Ähnlichkeit zu EL2-Störstellen vorhanden sein. Auch bei anderen Rekombinationsmechanismen beispielsweise über As-Ausscheidungen ist eine Kopplung zu erwarten. Die initiale Population freier Ladungsträger wird mit einer Zeitkonstanten, die der Entleerungszeit der Ladungsträger aus den Bändern entspricht, übergehen in eine Population der Einfangzentren. In einer vereinfachten Vorstellung nur eines Relaxationskanals für photogenerierte Ladungsträger sollte der zeitliche Verlauf der Besetzung der Einfangzentren entscheidend von Verhältnis der Populationsrate zur Entleerungsrate dieser Zentren bestimmt werden.

In diesem Abschnitt werden zeitaufgelöste Anrege/Abfrage-Experimente vorgestellt, bei denen Abfrageenergien zwischen 0.8 eV ($1.55 \mu\text{m}$) und 0.92 eV ($1.35 \mu\text{m}$) des zur Verfügung stehenden OPOs genutzt werden (siehe Kapitel 3.1). Die einfachste Art der optischen Untersuchung der ultraschnellen Dynamik in diesem Wellenlängenbereich sind entartete (Einfarben-)Anrege/Abfrage Untersuchungen, bei denen also wieder Anrege- und Abfrageenergie identisch sind. Wie in Kapitel 3.2 beschrieben, lassen sich auch Zweifarben-Experimente durchführen. In beiden Fällen liegt der experimentelle Aufwand jedoch erheblich über den bisher gezeigten Experimenten. Dies gilt nicht nur aufgrund der Justage des zweiten Laseroszillators (OPO) und der komplizierten Strahlführung, sondern auch aufgrund einer komplexeren Auswertung der Daten. Kann man sich bei

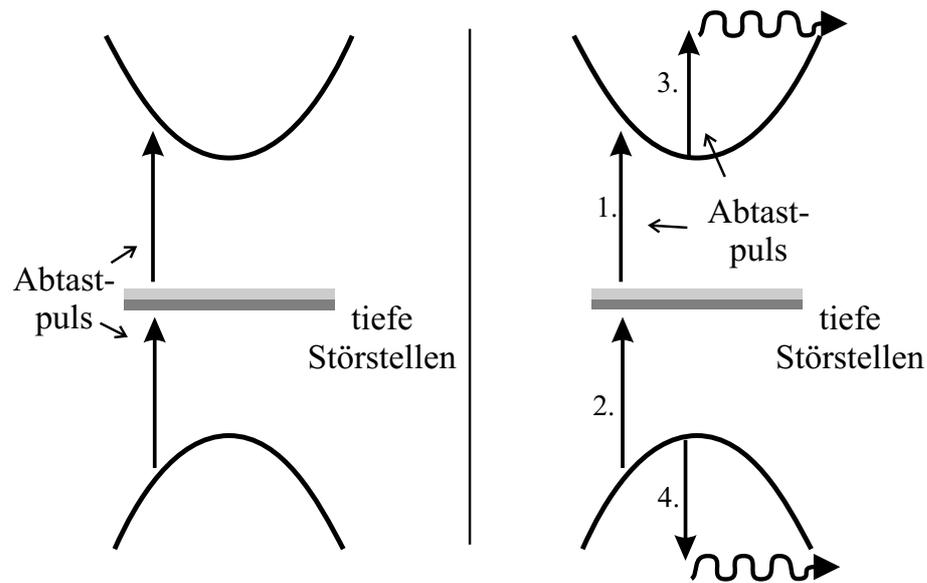


Abbildung 5.11.: Grundidee einer Abtastenergie deutlich unterhalb der Bandlücke. Linke Seite: Wesentliche Beiträge zum Signal sind durch das direkte Abtasten von Störstellendichten zu erwarten. Rechte Seite: Auch freie Ladungsträger werden Signalbeiträge über Phonon unterstützte Absorption der Abtastphotonen liefern.

Proben, deren Dicken in der Größenordnung der Absorptionslänge liegen, in vielen Fällen mit der Interpretation von Transmissionsänderungen als negative Absorptionsänderungen behelfen, wie es Gleichung (3.4)) ausdrückt, so stimmen diese Betrachtungen für Photonenenergien deutlich unterhalb der Bandlücke nicht mehr. Hier werden die Signale wesentlich durch FP-Oszillationen mitbestimmt. Ohne Anregepuls sind LTG GaAs-Filme bei Abtastenergien von z.B. 0.8 eV nahezu transparent und Vielfachreflexionen werden relevant. Die transiente Transmissionsänderung ist dann kein direktes Maß mehr für induzierte Absorptionsänderungen. Dies läßt sich schon an den Gleichungen der linearen Reflexion und Transmission im Anhang B – (B.16) und (B.17) – erkenne. Hier sind Transmission und Reflexion in nicht vernachlässigbarer Art und Weise miteinander gekoppelt. Die gewünschten Informationen wie die transiente Absorptionsänderung lassen sich jedoch bei gleichzeitiger Messung von ΔT und ΔR bestimmen.

Im Folgenden werden Methoden zur Analyse und zur Extraktion von Absorptions- und Brechungsindexänderungen erläutert. Faßt man T und R als Funktionen der Extinktion κ (oder Absorption α) und des Brechungsindex n auf, so können Änderungen in Transmission und Reflexion ΔT und ΔR ausgedrückt werden durch:

$$\Delta T(\kappa, n) = \frac{\partial T}{\partial \kappa} \Delta \kappa + \frac{\partial T}{\partial n} \Delta n \quad (5.7)$$

sowie

$$\Delta R(\kappa, n) = \frac{\partial R}{\partial \kappa} \Delta \kappa + \frac{\partial R}{\partial n} \Delta n. \quad (5.8)$$

Dieses lineare Gleichungssystem läßt sich nach $\Delta \kappa$ und Δn umformen, womit die Bestimmung der Absorptionsänderung auf eine simultane Messung von Transmissionsänderung und Reflexionsänderung zurückgeführt ist. Es ergibt sich:

$$\Delta \kappa = DT \frac{\partial_n R}{\partial_n R \partial_\kappa T - \partial_n T \partial_\kappa R} T - DR \frac{\partial_n T}{\partial_n R \partial_\kappa T - \partial_n T \partial_\kappa R} R, \quad (5.9)$$

und

$$\Delta n = DR \frac{\partial_\kappa T}{\partial_n R \partial_\kappa T - \partial_n T \partial_\kappa R} R - DT \frac{\partial_\kappa R}{\partial_n R \partial_\kappa T - \partial_n T \partial_\kappa R} T \quad (5.10)$$

mit den schon in Kapitel 3.2 eingeführten Abkürzungen der differentiellen Transmission DT bzw. differentiellen Reflexion DR. In den Gleichungen (5.9) und (5.10) sind partielle Ableitungen in üblicher abkürzender Schreibweise eingeführt worden. Der Zugang ist in [135] gewählt. Ähnliche Überlegungen gelten nicht nur für transparente Proben sondern auch für Anregungssituationen, bei denen die Änderung der Reflexion nicht mehr gegenüber einer Absorptionsänderung vernachlässigt werden darf. In [10, 136] wird auf diesen Effekt bei Sättigungsexperimenten hingewiesen, jedoch eine präzise Analyse vermieden. Dies liegt u.a. an numerischen Problemen, die sich aufgrund von bei bestimmten Frequenzen verschwindenden Nennern in (5.9) und (5.10) ergeben können. Entscheidende Größen bei der Extraktion von $\Delta \kappa$ – und somit auch $\Delta \alpha$ – aus den Meßdaten sind die partiellen Ableitungen von Reflexion und Transmission.

Die Energieabhängigkeit der numerisch berechneten Ableitungen ist für einen der untersuchten Filme einer Dicke von 445 nm in Abbildung 5.12 über den bei den Messungen abgedeckten Bereich aufgetragen. Ebenso wie das lineare Transmissionspektrum dieser Probe in Abbildung 4.7 werden auch die Ableitungen stark durch Interferenzeffekte beeinflusst. Dabei ist die Ableitung der Transmission nach der Extinktion κ bei allen Frequenzen negativ, d.h. eine Erhöhung der Absorption führt stets zu einem negativen Beitrag in der Transmissionsänderung. Dagegen oszillieren die übrigen Ableitungen um Null. Speziell Reflexionsänderungen werden nicht – wie es bei optisch dicken Halbleiterproben der Fall ist – durch Brechungsindexänderungen dominiert. Vielmehr können sie auch ausschließlich durch Absorptionsänderungen bestimmt sein. Dies ist dann der Fall, wenn die Ableitung $\partial_n R$ einen Nulldurchgang hat. Dieser liegt bei der gezeigten Probe bei 0.81 eV. Ist der Extinktionskoeffizient bzw. die lineare Absorption klein oder vernachlässigbar, ergibt sich über die dann gültige Näherung

$$\partial_n T = -\partial_n R, \quad (5.11)$$

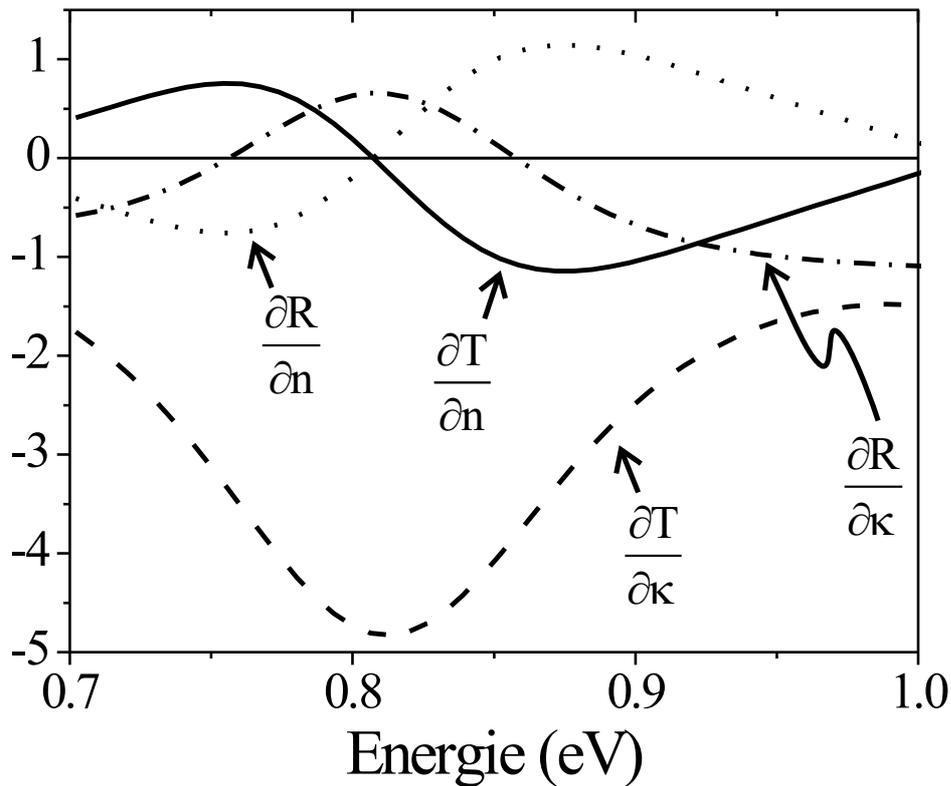


Abbildung 5.12.: Partielle Ableitungen der Reflexion bzw. Transmission einer 445 nm LTG GaAs-Schicht im relevanten Energiebereich.

wie aus $1 = T + R$ bei verschwindender Absorption gefolgert werden kann, eine starke Vereinfachung der Analyse. Aufgrund der geringen Absorption des Filmes unterhalb von 1 eV liegen die Nulldurchgänge von $\partial_n T$ und $\partial_n R$ beide bei 0.81 eV. Dies ist der Energiewert, bei dem die genauesten Ergebnisse von $\Delta\alpha$ zu erwarten sind. Andererseits kann dort verständlicher Weise kaum eine sinnvolle Bestimmung der Änderung des Brechungsindex erfolgen. Diese erfolgt günstigerweise beim Nulldurchgang von $\partial_\kappa R$ bei 0.865 eV. Hier werden gleichzeitig $\partial_n T$ und $\partial_n R$ maximal. In den Experimenten und den numerischen Analysen hat es sich jedoch herausgestellt, daß die Bestimmung von Δn erheblich kritischer ist als die von $\Delta\alpha$. Dies ist u.a. angesichts des deutlich größeren Betrages von $\partial_\kappa T$ gegenüber den anderen Ableitungen verständlich.

Bei der Analyse der Daten kommt die besonders einfache Probenstruktur wie sie Abbildung A.1 in Anhang A zeigt und wie sie hier ausschließlich benutzt wird, sehr zum tragen. Das van der Waals Bonden des Filmes gewährleistet ein sauberes Dreischichtsystem Luft/LTG GaAs/Saphir ohne zusätzliche FP-Oszillationen, die im Falle eines

aufgeklebten Filmes durch die Klebeschicht auftreten könnten⁵. Da für LTG GaAs, wie es in Kapitel 4.5 gezeigt wurde, Brechungsindex und Extinktionskoeffizient nur näherungsweise mit den Werten von Standard GaAs übereinstimmen, kann aus der Periode der FP-Oszillationen einer linearen Transmissionsmessung nicht auf die Dicke des Transmissionsfilms geschlossen werden, wie es z.B. in [10] für Standard GaAs gemacht wurde. Die Bestimmung der Filmdicke über Weißlichtinterferometrie ist in Abschnitt 4.5 genauer beschrieben worden.

Zu den bisherigen Ausführungen sind noch einige Anmerkungen zu machen. Die Gleichungen (5.9) und (5.10) sind genau genommen jeweils für genau eine Frequenz gültig. Die spektrale Breite der Abtastpulse beträgt ungefähr 20 meV. Die Änderungen der partiellen Ableitungen über das Abfragespektrum sind relativ gering und können somit in erster Näherung vernachlässigt werden. Eine Berücksichtigung der spektralen Pulsbreite ist numerisch zudem erheblich aufwendiger. Sie ist durchgeführt worden, hat aber nicht zu einem besseren Verständnis beigetragen. Daß keine signifikanten Änderungen bei Berücksichtigung der spektralen Pulsbreite auftreten, liegt u.a. an der Wahl der Probendicke. Sie ist entscheidend für das Maß der Änderung der partiellen Ableitungen über das Abfragespektrum. Im Allgemeinen liegen die Maxima von FP-Oszillationen bei einer dickeren Probe enger zusammen, was die Änderungen der partiellen Ableitungen über das Pulsspektrum soweit vergrößern kann, daß diese zu berücksichtigen sind. Für die Messungen wurde deshalb ein Kompromiß zwischen optisch induzierbaren Ladungsträgern und nicht zu dicht beieinander liegenden FP-Oszillationen mit einer Probendicke von 445 nm gefunden.

5.3.1. Ergebnisse und Diskussion

Es werden zuerst entartete Anrege/Abfrage-Experimente vorgestellt. Die Zentralenergie der Pulse wird von 0.8 eV bis 0.9 eV variiert. Die Detektion des Signals erfolgt über InGaAs-Photodioden, die über diesen Energiebereich eine nahezu konstante Sensitivität zeigen. Bei diesen Einfarben-Experimenten wird sich auf reine Transmissionsmessungen beschränkt, da Reflexionssignale nicht in der notwendiger Qualität erzielbar sind. Nicht polarisationserhaltende Streuung in dieser Geometrie verhindert ein effektives Unterdrücken von Streulicht. Nach den Erläuterungen über die Berechnung der induzierten Absorption im letzten Unterabschnitt heißt dies, daß die transienten Transmissionsänderungen nur bei Energien um 0.81 eV ein direktes Maß für Absorptionsänderungen sind.

In Abbildung 5.13 ist eine typische Transiente bei 0.81 eV dargestellt. Das Signal zeigt eine negative Reduktion der Transmission, die sich instantan mit Eintreffen des Anregepulses einstellt. Bei einer mittleren Energieflußdichte des Anregepulses von 10 μJ

⁵Der Einsatz von Antireflexionsschichten kommt nicht in Frage. Sie müßten einen Wellenlängenbereich von 1500 nm bis 750 nm abdecken, was technisch kaum realisierbar ist.

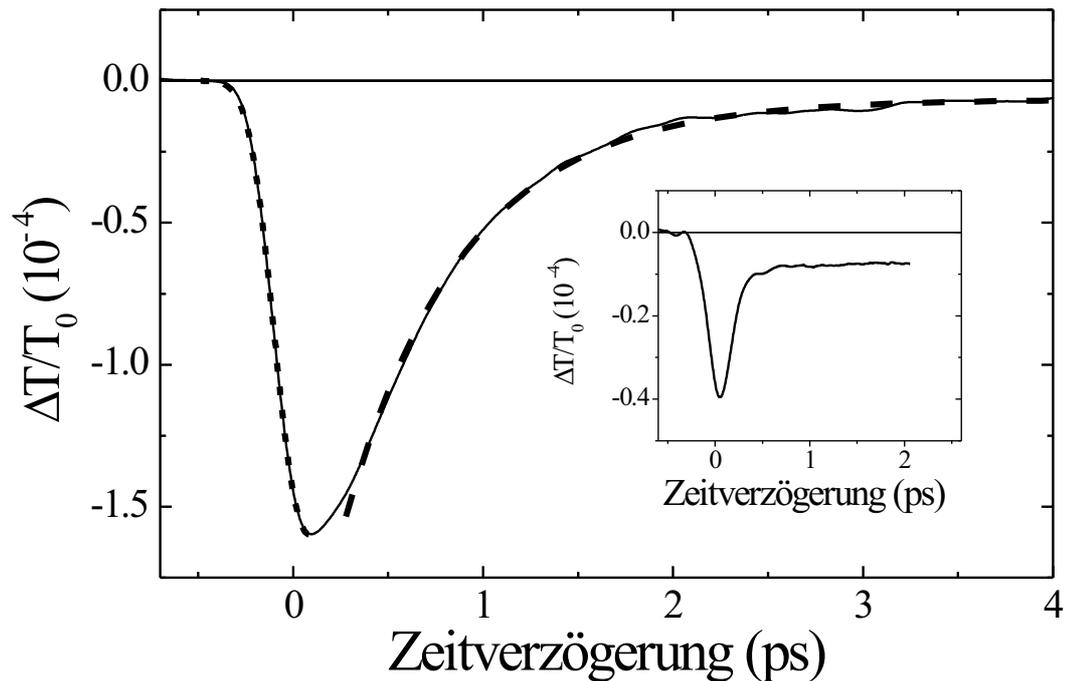


Abbildung 5.13.: Einfarben-Anrege/Abfrage-Signal bei einer Photonenergie von 0.81 eV. Das Signal zeigt einen exponentiellen Zerfall mit einer Zeitkonstanten von 0.75 ps (gestrichelte Linie). Der Signalanstieg ist unter der Annahme eines Gaußpulses mit 160 fs Pulsbreite angepaßt (gepunktete Linie). Im Einsatz ist zum Vergleich die Transiente eines Standard GaAs-Filmes bei gleicher Photonenergie gezeigt.

cm^{-2} und einer Pulslänge von 170 fs, die in einer Autokorrelationsmessung bestimmt wird, beträgt die maximale Transmissionsänderung 1.6×10^{-4} . Das Signal steigt im Rahmen der Meßgenauigkeit mit dem zeitlichen Integral des Anregepulses an. Die numerische Anpassung an die Flanke ist in der Abbildung gezeigt. Sie resultiert aus der Annahme eines Gaußpulses in der Zeit. Mit 160 fs wird die im Experiment bestimmte Pulsbreite sehr gut reproduziert. Ab einer Zeitverzögerung von 350 fs relaxiert das Signal mit einer Zeitkonstanten von $0.75 \text{ ps} \pm 0.1 \text{ ps}$, wie es sich aus einem monoexponentiellen Fit ergibt. In einem Zeitfenster von ca. 250 fs nach dem Zeitnullpunkt zeigen sich deutliche Abweichungen vom monoexponentiellen Fit: Die Dynamik scheint in diesem Bereich verlangsamt. Des Weiteren ist eine bleibende negative Transmissionsänderung von 0.9×10^{-5} nach 4 ps zu erkennen.

Die Transmissionsänderung trägt deutlich andere Signaturen als entsprechende Signale eines Standard GaAs-Films. Zum Vergleich zeigt der Einsatz in Abbildung 5.13 eine Transiente eines Standard GaAs-Films bei gleicher Zentralwellenlänge und gleichen Anregebedingungen. Die Transiente wird um den Zeitnullpunkt fast ausschließlich

von der Zweiphotonenabsorption bestimmt, wie es für intrinsische direkte Halbleiter unter diesen Bedingungen typisch ist: Das Signal entspricht somit im wesentlichen einem Kreuzkorrelationssignal, das durch die Faltung des Anrege- mit dem Abtastpuls entsteht. Die induzierte Absorption wirkt sich im Signal als negative Transmissionsänderung aus. Ein zweiter ebenfalls negativer Signalbeitrag ist über das gezeigte Zeitfenster konstant. Ursache für diesen Beitrag sind freie Ladungsträger, die durch ZPA aufgrund des Anregepulses erzeugt werden. Die so generierten Ladungsträger sind langlebig und führen beim Abtastpuls über Freie Ladungsträger Absorption (FLA) wie sie auf der rechten Seite von Abbildung 5.11 eingezeichnet sind zu einer reduzierten Transmission. Dieser Signalbeitrag wird – sofern eine laterale Diffusion der Ladungsträger vernachlässigbar ist – auf Nanosekunden-Zeitskala relaxieren. Auf Pikosekunden-Zeitskala zeigt dagegen nur die Kreuzkorrelation durch die ZPA bei gleichzeitigem Auftreffen von Anrege- und Abfragepuls auf die Probe eine schnelle (instantane) Dynamik. Es ist zu beachten, daß zum einen die Amplitude des Signals trotz gleicher Anregungsparameter um einen Faktor 4 kleiner ist als bei der LTG GaAs-Probe und zum anderen das Verhältnis vom Signalmaximum zum residuellen Signal mit einem Wert von 4 deutlich kleiner ist als bei LTG GaAs. Dort ist der Signaloffset um einen Faktor 16 kleiner als die Signalamplitude.

Die Unterschiede in den beiden Signalen von Standard GaAs und LTG GaAs zeigen deutlich, daß grundlegend andere Dynamiken bzw. Prozesse in LTG GaAs relevant sind. Da die Transmissionsänderungen aufgrund der gewählten Zentralwellenlänge proportional zur induzierten Absorption sind, erfährt der Abtaststrahl also ab dem Zeitnullpunkt ($\Delta t = 0$) durchgehend eine erhöhte Absorption. Aus der Signalform und –größe um $\Delta t = 0$ läßt sich schließen, daß der Beitrag der ZPA sicherlich nicht dominiert: An das Maximum schließt unmittelbar der monoexponentielle Abfall an. Diese Tatsache impliziert eine starke Abweichung des Signals von einer reinen zeitlichen Faltung um $\Delta t = 0$, wie es für ein einfaches ZPA-Signal der Fall ist. Es ist dagegen offensichtlich so, daß zu jedem Zeitpunkt das Signal im wesentlichen nur proportional zur Intensität des Anregestrahls ist. Wäre die typische Situation für eine ZPA gegeben, so wäre zum Zeitnullpunkt das Signal auch zur Intensität des Abtastpulses proportional. Für positive Zeitverzögerungen, für die kein zeitlicher Überlapp der beiden Pulse existiert, läge nur eine Proportionalität zur Anregeintensität vor.

Eine weitere Beobachtung unterstützt stark die Annahme, daß ein ZPA-Beitrag nicht dominiert. Die Variation der Anregeleistung in Abbildung 5.14 zeigt eine lineare Abhängigkeit der Signalamplitude von der Anregeleistung. Diese ist im Einsatz noch einmal aufgetragen. Dabei ist zu beachten, daß bei den Transienten mit 25 mW und 35 mW mittlerer Leistung im Anregestrahl die Abtastleistung auf 10 mW bzw. 15 mW erhöht ist. Die restlichen Transienten sind bei einer Abtastleistung von 5 mW durchgeführt. Auch die Erhöhung der Abtastleistung bringt keine Änderung im linearen Verhalten der Amplitude mit sich. Folglich ist das Signal im wesentlichen unabhängig von

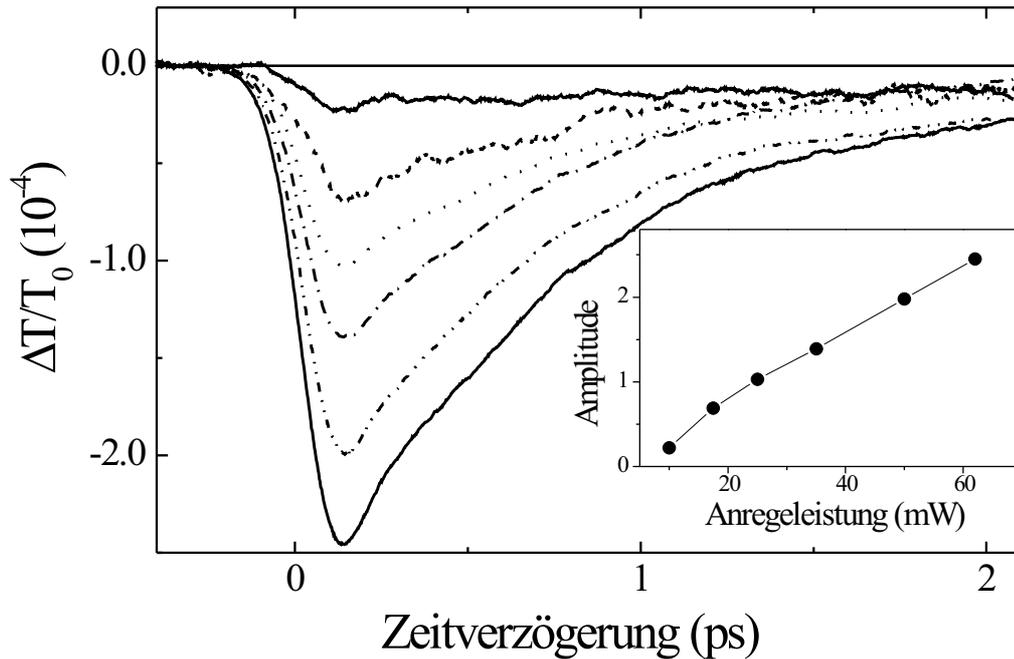


Abbildung 5.14.: Intensitätsvariation des Anregepulses von 10 mW auf 62 mW für eine Anregeenergie von 0.82 eV. Beobachtet wird ein lineares Ansteigen der detektierten Amplitude. Die Abtastleistung ist für die Messungen bei 25 mW und 35 mW Anregeleistung von 5 mW auf 10 mW bzw. 15 mW erhöht.

der Abtastleistung und es kann kein signifikanter Beitrag der ZPA nachgewiesen werden. Die ermittelten Relaxationszeiten dieser Transienten liegen zwischen 0.7 ps und 0.9 ps, wobei zu niedrigeren Leistungen die Qualität der Fits sinkt bzw. für die niedrigste Leistung keine Zeitkonstante bestimmt werden kann. Überraschenderweise ist jedoch auch bei der niedrigsten Leistung bereits ein ausgeprägtes langlebiges Signal zu sehen, das mit steigender Leistung nicht zu wachsen scheint. Allerdings sind die Transienten Untergrund behaftet, da sie sich bei einer Zeitverzögerung von 2 ps teilweise kreuzen. Dies darf streng genommen nicht sein.

Es stellt sich die Frage des Ursprungs des Signals. Zweifelsohne kann in LTG GaAs bei Anregung unterhalb der Bandlücke eine für dieses Material spezifische Dynamik detektiert werden. Diese kann aus einer Besetztesänderung tiefer Störstellen herrühren. Der Anregepuls wird eine Nichtgleichgewichtssituation über die Übergänge Valenzband–Störstelle sowie Störstelle–Leitungsband wie sie in Abbildung 5.11 auf der rechten Seite dargestellt sind induzieren. Auf diese Art werden auch freie Elektronen und Löcher induziert. Der Abtastpuls ist sensitiv auf die Besetztesänderung in den Störstellen aber auch über die freie Ladungsträgerabsorption FLA auf Elektronen im Leitungsband und

Löcher im Valenzband. Dies heißt, daß auch die Dynamik freier Ladungsträger beobachtet werden kann, wie es auf der rechten Seite in Abbildung 5.11 angedeutet ist. Im Gegensatz zur Abtastung der tiefen Störstellen verursacht der FLA-Beitrag jedoch stets eine positive Absorptionsänderung, da er ohne Anregung identisch Null ist. Das resultierende Vorzeichen der anderen Beiträge hängt dagegen von der Differenz der Wirkungsquerschnitte der Übergänge Valenzband-Störstelle sowie Störstelle-Leitungsband ab. Die beobachteten Relaxationszeiten um 0.8 ps sind deutlich länger als die gemessenen Zeitkonstanten $\tau_\mu = 0.34$ ps von Seite 70. Andererseits sind für die Entleerung bandlückennaher Zustände Zeitkonstanten um 1 ps zu registrieren. Es liegt also die Vermutung nahe, daß freie Ladungsträger, die durch den Anregepuls erzeugt werden, für die besondere Dynamik verantwortlich sind. Zur Abschätzung der zu erwartenden Signalamplitude ist allerdings u.a. die Kenntnis der Anregungsdichte notwendig, die hier nicht gegeben ist.

Die erzielten Ergebnisse können somit an dieser Stelle nicht abschließend diskutiert werden. Sie sind in Zusammenhang mit den übrigen Messungen in diesem Kapitel zu sehen.

Einen besseren Einblick als die entarteten Anrege/Abfrage-Spektroskopie in der Bandlücke liefert die Zweifarbenspektroskopie mit der Anregung oberhalb der Bandlücke und dem Abtasten mehrere 100 meV unterhalb der Bandlücke. Die Anregesituation selbst ist demnach ähnlich der Situation in Abschnitt 5.1: Im Gegensatz zur Anregung unterhalb der Bandlücke kann eine hohe Anzahl freier Ladungsträger induziert werden, deren Dichte aufgrund der Kenntnis des Absorptionskoeffizientens über die verwendete Laserleistung berechnet werden kann. In allen hier vorgestellten Zweifarbenexperimenten beträgt die Anregeenergie 1.54 eV. Experimentell sind simultane Transmissions- und Reflexionsmessungen erheblich sauberer durchführbar als in den entarteten Anrege/Abfrage-Experimenten in der Bandlücke, da sich Anregeleucht durch geeignete Frequenzfilter vollständig unterdrücken läßt. Transiente Absorptionsänderungen können so nach Gleichung (5.9) aus den Meßdaten extrahiert werden.

Zur numerischen Berechnung der Absorptionsänderung aus den Transienten von Transmission und Reflexion sind Erläuterungen zu machen: In der Numerik ist die Kenntnis des Brechungsindex sowie der Extinktion bei der Abtastwellenlänge erforderlich. In Abschnitt 4.5 konnte gezeigt werden, daß keine großen Abweichungen zu Werten von Standard GaAs bestehen. Die Annahme einer geringen Absorption ist jedoch nach [137] gerechtfertigt. Mit $\alpha_0 = 100 \text{ cm}^{-1}$ ist ein Wert genommen worden, der nach [124] für den Energiebereich von 0.8 bis 0.9 eV zu erwarten ist. Für den Brechungsindex n kann nach Abschnitt 4.5 über FP-Oszillationen eine Erhöhung um 0.03 auf $n = 3.41$ abgeschätzt werden. Mit geeigneten Annahmen läßt sich diese Erhöhung auch mit den zeitaufgelösten Messungen reproduzieren: Fordert man, daß sich über den Energiebereich der Abtast-

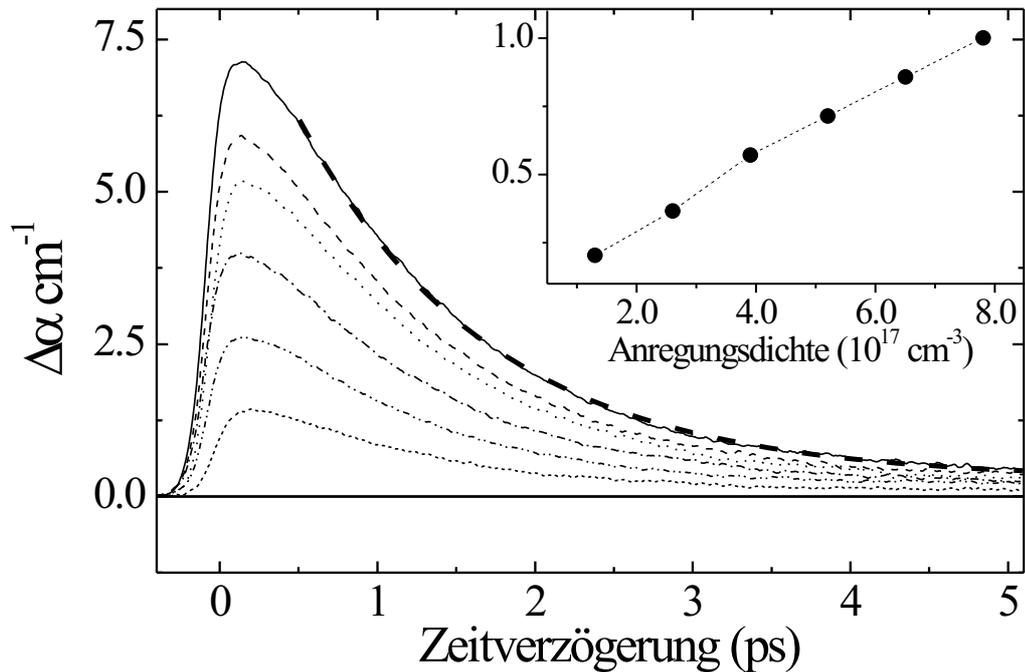


Abbildung 5.15.: Transiente Absorptionsänderungen bei Anregung oberhalb der Bandlücke und einer Abtastenergie von 0.82 eV. Es sind unterschiedliche Anregungsdichten von 1.3×10^{17} bis $8 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ gezeigt. Im Einsatz sind die resultierenden Amplituden aufgetragen.

pulse von 0.8 bis 0.9 eV die transienten Brechungsindexänderungen nur gering ändern, so kann für zwei energetisch benachbarte Messungen (ca. $\Delta 20 \text{ meV}$) der Brechungsindex so optimiert werden, daß errechneten Änderungen in n eine minimale Differenz aufweisen. Diese Forderung ist gerechtfertigt, da keine Resonanzen in diesem Energiebereich beobachtet werden können. Die Methode ergibt für den mittleren Brechungsindex der Probe einen Wert von $n_{\text{LTG GaAs}} = 3.42$. Sie ist in sehr guter Übereinstimmung mit der Abschätzung über die FP-Oszillationen. Es ist anzumerken, daß keine Kenntnis des Brechungsindexes von Standard GaAs bei der Optimierungsprozedur notwendig ist. Das Ergebnis zeigt im übrigen die Tauglichkeit der Analysemethode. Im weiteren wird ein erhöhter Brechungsindex nach Abschnitt 4.5 von $n_{\text{LTG GaAs}} = n_{\text{GaAs}} + 0.03$ verwendet.

Für eine Abtastenergie von 0.82 eV sind die aus Reflexions- und Transmissionsänderungen berechneten transienten Absorptionsänderungen über ein Zeitfenster von 5 ps in Abbildung 5.15 gezeigt. Bei einer Variation der Anregungsdichte von 1.3×10^{17} bis $8 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ steigt die Signalamplitude von 1.3 cm^{-1} auf fast 7.5 cm^{-1} an. Die Pulslänge des Anregestrahls ist 100 fs; die Pulse des Abtaststrahls haben bei dieser Zentralwellenlänge mit 180 fs fast die doppelte Länge. Der Zeitnullpunkt wird mit einem BBO-

Verdopplerkristall bestimmt. Ein Vergleich zwischen einem so gewonnen Kreuzkorrelationsignal und den Transienten bestätigt, daß der Signalanstieg der Absorption instantan mit Eintreffen des Anregepulses erfolgt. Nach dem Erreichen des Maximums relaxiert die Absorptionsänderung. Sie geht bei diesen Messungen nach ca. 0.35 bis 0.45 ps in einen monoexponentiellen Verlauf über. Zur Kurve mit der höchsten Anregungsdichte von $8 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ist eine numerisch angepaßte monoexponentielle Kurve gezeigt. Die Zeitkonstante des Fits beträgt $\tau = 1.25 \text{ ps}$. Ähnlich gute Ergebnisse lassen sich für alle Transienten erzielen. Nimmt man die Schwankung der Zeitkonstanten als Fehler an, so ergibt sich eine dichteunabhängige Zeitkonstante von $\tau = 1.25 \pm 0.1 \text{ ps}$. Eine eventuelle Sättigung des Signals kann – wie es im Einsatz von Abbildung 5.15 noch einmal verdeutlicht ist – im Rahmen der hier gegebenen experimentellen Möglichkeiten nicht beobachtet werden. Es ist ein lineares Ansteigen der Signalamplitude bis zur in diesem Versuchsaufbau maximal möglichen Anregungsdichte zu verzeichnen. Die numerisch angepaßten Kurven zeigen zudem noch eine Besonderheit: Mit steigender Anregungsdichte wächst in gleicher Weise linear ein residueller Signalanteil. Er beträgt weniger als ein Zehntel des Maximums. Das lineare Anwachsen dieses Beitrages deutet auf einen zusätzlichen Signalanteil hin, dessen Zeitkonstante im gegebenen Zeitfenster nicht aufgelöst werden kann.

Die Tatsache, daß das Signal instantan mit dem Eintreffen des Anregepulses ansteigt, läßt Rückschlüsse auf dessen Ursprung zu. Als Grund des raschen Signalanstiegs kann eine Besetzungsänderung in tiefen Störstellen praktisch ausgeschlossen werden. Der dominierende Beitrag einer Besetzungsänderung wird sicherlich durch den Einfang freier Ladungsträger hervorgerufen. Für diese Dynamik ist jedoch eine zeitliche Verschiebung des Signalanstiegs in Größenordnung der Einfangzeit zu erwarten. Es ist zwar denkbar, daß die Gleichgewichtsbesetzung von Störstellen beispielsweise durch den Übergang $\text{As}_{\text{Ga}}^0 + h\nu \rightarrow \text{As}_{\text{Ga}}^+ + e^-$ auch durch die Photonenenergien des Anregepulses von 1.54 eV geändert werden kann, jedoch werden vornehmlich freie Ladungsträger über Valenzband-Leitungsband-Übergänge erzeugt. Zudem würde der gerade beschriebene Prozeß eine negative Absorptionsänderung für den Übergang As_{Ga} -Leitungsband wie er auf der rechten Seite in Abbildung 5.11 mit 1. gekennzeichnet ist, bedeuten. Dagegen wird der Beitrag zur FLA stets positiv sein. Gleichzeitig wird die FLA ein instantanes Signal ergeben. Dies legt die Vermutung nahe, daß es sich in Abbildung 5.15 primär um eine FLA-Signatur handelt. Eine Bestätigung dieser Vermutung liefert der Vergleich der Signalamplitude mit Absorptionswirkungsquerschnitten σ der FLA in [138]. Danach ist die zu erwartende induzierte Absorption aufgrund von freien Ladungsträgern bei einer Dichte von $N = 8 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ mit

$$\Delta\alpha_{\text{FLA}} = \sigma_{e+h} \cdot N = 7 \times 10^{-18} \text{ cm}^2 \cdot N = 5.4 \text{ cm}^{-1} \quad (5.12)$$

nahe den ermittelten Werten. Für die angegebene Dichte läßt sich in Abbildung 5.15

eine maximale Absorptionsänderung von 7.2 cm^{-1} ablesen. Auch bei allen übrigen mit dieser Dichte gemessenen Transienten, die hier nicht gezeigt sind, liegen die maximalen induzierten Absorptionen zwischen 5 cm^{-1} und 9 cm^{-1} . Zu den Absorptionswirkungsquerschnitten der FLA sind zwei Anmerkungen zu machen: Zum ersten sind die Absorptionswirkungsquerschnitte von verschiedenen Gruppen über unterschiedliche Dotierungen (sowohl p- als auch n-Dotierungen) in GaAs gemessen worden (siehe [138]). Es handelt sich demnach um Absorptionswirkungsquerschnitte aus flachen Störstellen. Es ist vorstellbar, daß sich entsprechende Wirkungsquerschnitte für freie Ladungsträger speziell bei nichtthermischen Ladungsträgerverteilungen unterscheiden. Hierauf ist möglicherweise auch *eine* Ursache des nichtexponentiellen Signalverlauf bis zu einer Zeitverzögerung von ca. 0.4 ps zu suchen. Zum zweiten sind die Wirkungsquerschnitte für den interessierenden Wellenlängenbereich um $1.45 \mu\text{m}$ für FLA im Leitungsband bzw. im Valenzband ungefähr gleich groß. Anders als bei entarteten Anrege/Abfrage-Experimenten oberhalb der Bandlücke sollte man demnach nicht mehr nur sensitiv auf die Relaxationsdynamik von Elektronen sondern auch auf die der Löcher sein.

Die ermittelten Zeitkonstanten des exponentiellen Abfalls von $\tau = 1.25 \text{ ps}$ stimmen offensichtlich nicht mit der im entarteten Anrege/Abfrage-Experiment von Seite 70 gemessenen Zeit von $\tau_{\mu} = 0.34 \text{ ps}$ überein. Statt dessen liegen dieses Zeitkonstante eher im Bereich der langsameren Einfangzeiten um $\tau = 1 \text{ ps}$ aus bandlückennahen Zuständen wie sie in Abschnitt 5.2.1 bestimmt wurden. Der Vermutung, daß die beobachtete Zeitkonstante der Einfangzeit freier Löcher zuzuordnen ist, kann widersprochen werden. Wie bereits erwähnt, unterscheiden sich die Absorptionswirkungsquerschnitte von freien Elektronen und freien Löchern kaum. Dies ist gleichbedeutend mit gleichen Sensitivitäten des Experiments auf Elektronen und Löcher. Bei zwei unterschiedlichen Zeitkonstanten wäre ein doppelt exponentielles Abklingen zu beobachten, sofern die Einfangprozesse von Elektronen und Löchern im wesentlichen unabhängig voneinander sind. Ein doppelt exponentieller Zerfall kann jedoch nicht ermittelt werden. Unter der Annahme identischer Wirkungsquerschnitte sind in dem gegebenen 5 ps -Zeitfenster und bei gleichen initialen Amplituden Zeitkonstanten von $\tau = 1.25 \text{ ps}$ und $\tau = 1 \text{ ps}$ separierbar. Geringere Differenzen sind kaum aufzulösen. Dies spricht für eine Relaxation von Elektronen und Löchern aus bandlückennahen Zuständen auf gleicher Zeitskala. Zum gleichen Ergebnis kamen Sung et. al. [70], die für Beweglichkeitszeiten von Löchern in LTG GaAs gleiche Größen wie von Elektronen bestimmt haben. Außerdem sei auf die Ergebnisse von Kapitel 6 verwiesen, die bezüglich dieses Punktes zum gleichen Resultat wie Referenz [70] führen und konform mit den hier gemachten Beobachtungen sind. Vermutungen, daß in LTG GaAs eine deutlich längeren Locheinfangzeit vorliegt [139], sprechen somit gegen die Ergebnisse der hier gezeigten Zweifarben-Experimente.

⁶Die Schwankung beruht vornehmlich auf Ungenauigkeiten in der Bestimmung des Fokusbereichs.

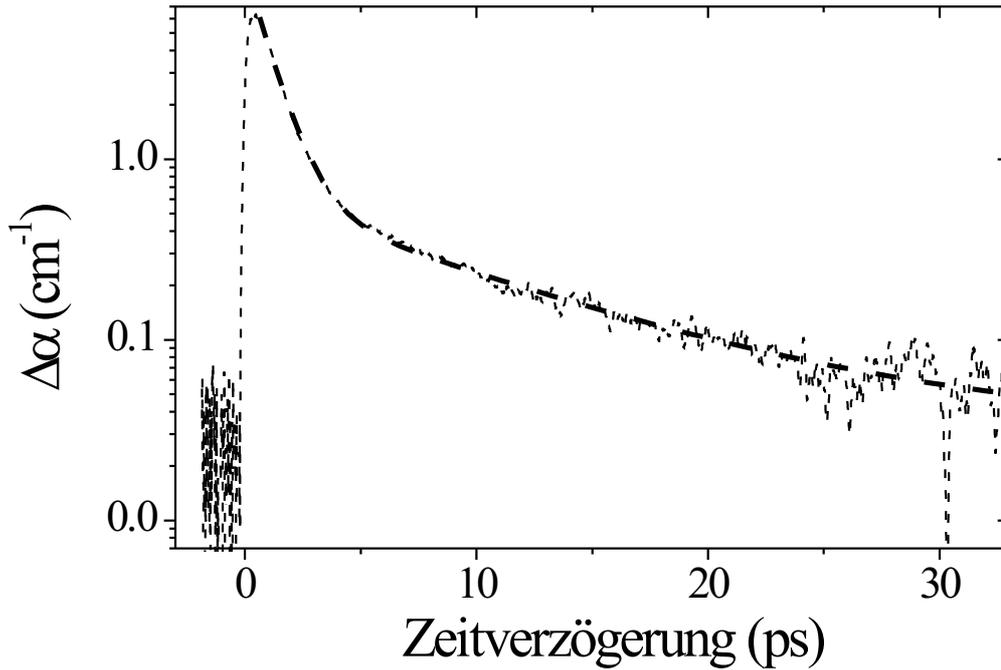


Abbildung 5.16.: Die Abbildung zeigt einen Zeitscan von mehr als 35 ps bei einer Abtastenergie von 0.845 eV und einer Anregungsdichte von $7 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$ in halblogarithmischer Darstellung. Ebenso ist der doppelt exponentielle Fit mit den Zeitkonstanten $\tau_1 = 1.15$ ps und $\tau_2 = 10$ ps als gestrichelte Kurve aufgetragen.

Zur genaueren Diskussion des weiteren Zeitverlaufs des Signals ist in Abbildung 5.16 ein Zeitfenster von 33 ps gezeigt. Die Transiente ist bei einer Abtastenergie von 0.845 eV aufgenommen. Die Anregungsdichte beträgt $7 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$. Die nach Gleichung (5.12) erwartete induzierte initiale Absorption für FLA wird erreicht. Innerhalb der 33 ps relaxiert die induzierte Absorption nahezu vollständig. Erkennbar wird, daß es sich nicht um einen monoexponentiellen Zerfall handelt. Dagegen reproduziert ein doppelt exponentieller Signalabfall die Meßdaten extrem gut. Die resultierenden Zeitkonstanten unterscheiden sich mit $\tau_1 = 1.15$ ps und $\tau_2 = 10$ ps deutlich voneinander. Zudem ist erkennbar, daß der Beitrag, der mit τ_2 zerfällt, klein gegen den τ_1 -Beitrag ist. Dies macht Zeitfenster, die deutlich größer sind als die langsame 10 ps-Zeitkonstante zu ihrer Bestimmung notwendig. Als Ursache für diesen zweiten Signalbeitrag können freie Löcher wieder ausgeschlossen werden, da die Signalamplituden der beiden Zeitkonstanten sich um eine Größenordnung unterscheiden. Dies spricht gegen gleiche Wirkungsquerschnitte von Elektronen und Löchern für die FLA. Es liegt der Schluß nahe, daß hier eine Besetzungsänderung tiefer Störstellen sichtbar wird. In der Abbildung kaum erkennbar ist ein

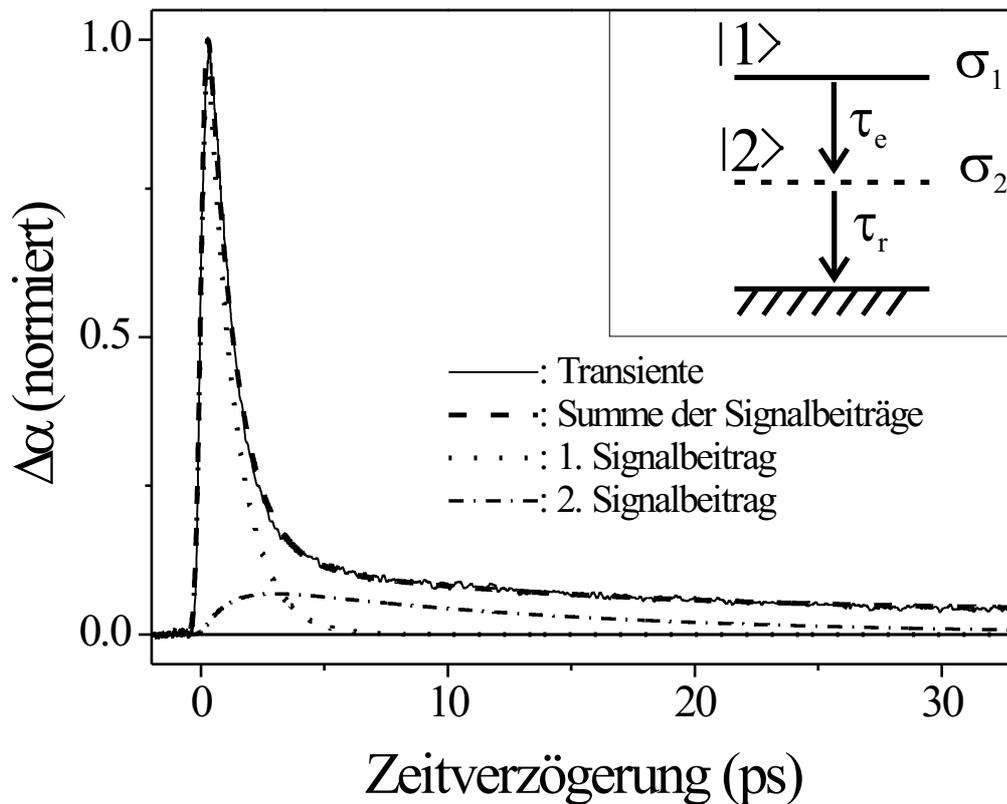


Abbildung 5.17.: Die Abbildung zeigt die normierte induzierte Absorption über einen Zeitbereich von 33 ps bei einer Abtastenergie von 0.890 eV. Die Anregungsdichte beträgt $7 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Der Einsatz zeigt das zur Simulation verwendete Modell mit zwei Wirkungsquerschnitten und zwei Zeitkonstanten. Die simulierte Kurve teilt sich in die beiden eingezeichneten Signalbeiträge auf. Der konstante, angepaßte Signaloffset (siehe Text) ist nicht gezeigt.

minimales residuelles Signal nach 33 ps, wie es sich auch aus dem doppelt exponentiellen Fit ergibt. Die Größe dieses Signals variiert in den Experimenten mit der gewählten Abtastwellenlänge.

Die induzierte Absorption bei einer Abtastenergie von 0.890 eV ist über 33 ps qualitativ fast identisch mit dem Ergebnis bei 0.845 eV. Es ist jedoch ein größeres residuelles Signal zu beobachten. Die Transiente zu dieser Abtastenergie ist in Abbildung 5.17 normiert dargestellt. Zur genaueren Extraktion der einzelnen Signalbeiträge eignet sich ein einfaches Mehrniveau-Modell, das im Einsatz der Abbildung skizziert ist: Der obere Zustand 1 repräsentiert dabei freie Ladungsträger, die über den Anregepuls induziert werden. Sie relaxieren mit der Einfangzeitkonstante τ_e in einen zweiten Zustand. Dieser

repräsentiert die relevanten Einfangzustände. Die endgültige Ladungsträgerrekombination findet mit der Zeitkonstanten τ_r statt. Der Abtastpuls ist auf Besetzungen in beiden Zuständen entsprechend den Absorptionswirkungsquerschnitten sensitiv. Die Simulation des Signals findet auf ähnliche Weise statt wie die Signalberechnung auf den Seiten 67 ff.. Die freie Ladungsträgerdichte (oberer Zustand) wird durch die Differentialgleichung

$$\frac{\partial N}{\partial t} = -\frac{N}{\tau_e} + G(t) \quad (5.13)$$

beschrieben. Die Ladungsträgerinjektion $G(t)$ folgt dem Anregepuls und wird als Gaußpuls angenommen. Die analytische Lösung von Gleichung (5.13) ist durch Gleichung (5.4) mit $\tau \equiv \tau_e$ gegeben. Einfangzustände (Zustand 2) werden im Modell entsprechend der Differentialgleichung

$$\frac{\partial n}{\partial t} = -\frac{n}{\tau_r} + \frac{N}{\tau_e} \quad (5.14)$$

entleert bzw. besetzt. Der Abtastpuls wird eine unterschiedliche Sensitivität auf freie und eingefangene Ladungsträger haben. Die induzierte Absorption, die er erfährt, ist in erster Näherung proportional zur Änderung der Besetzung der beiden Zustände:

$$\Delta\alpha = \sigma_1 N + \sigma_2 n + \Delta\alpha_0 \quad (5.15)$$

Dabei bezeichnet $\Delta\alpha_0$ den konstanten Signalbeitrag, der durch das Modell nicht simuliert werden kann. Sein zeitlicher Anstieg wird willkürlich mit dem zeitlichen Verlauf der Ladungsträgerinjektion gleichgesetzt. Im Modell angepaßt wird das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte σ_1 und σ_2 sowie die Zeitkonstanten τ_e und τ_r . Ferner wird auch die Anregepulsbreite w (siehe Gleichung (5.3)) numerisch optimiert, wohingegen die experimentell bestimmte Abtastpulsbreite direkt in die Simulation eingeht. Die Absorptionswirkungsquerschnitte σ_1 und σ_2 sind proportional zu den Wahrscheinlichkeiten, ein Photon des Abtastpulses über freie Ladungsträger bzw. eingefangene Ladungsträger zu absorbieren.

Die mit diesem Modell angepaßten Signalbeiträge der beiden Ladungsträgerdichten sind ebenfalls in Abbildung 5.17 zu sehen. Es ergeben sich Zeitkonstanten für den Einfang $\tau_e = 1.1$ ps und für die Rekombination $\tau_r = 12.5$ ps. Der residuelle Signalanteil beträgt 3.7 % des Gesamtsignals. Der Absorptionswirkungsquerschnitt σ_2 ist um einen Faktor 20 kleiner als σ_1 . Das vorgestellte Modell reproduziert die transienten Absorptionen im Energiebereich von 0.8 eV bis 0.92 eV gut. Abweichungen ergeben sich jedoch speziell um den Zeitnullpunkt. Dies spiegelt sich bei der gezeigten Transienten insbesondere in der Anregepulsbreite wider, die in der Simulation mit 350 fs deutlich über der wahren im Experiment bestimmten Pulsbreite von 120 fs liegt. Schon die Transienten in Abbildung 5.15 zeigen ein verzögertes Erreichen des Signalmaximums. Dies führt bei der numerischen Optimierung der Parameter zu einer längeren Pulsbreite.

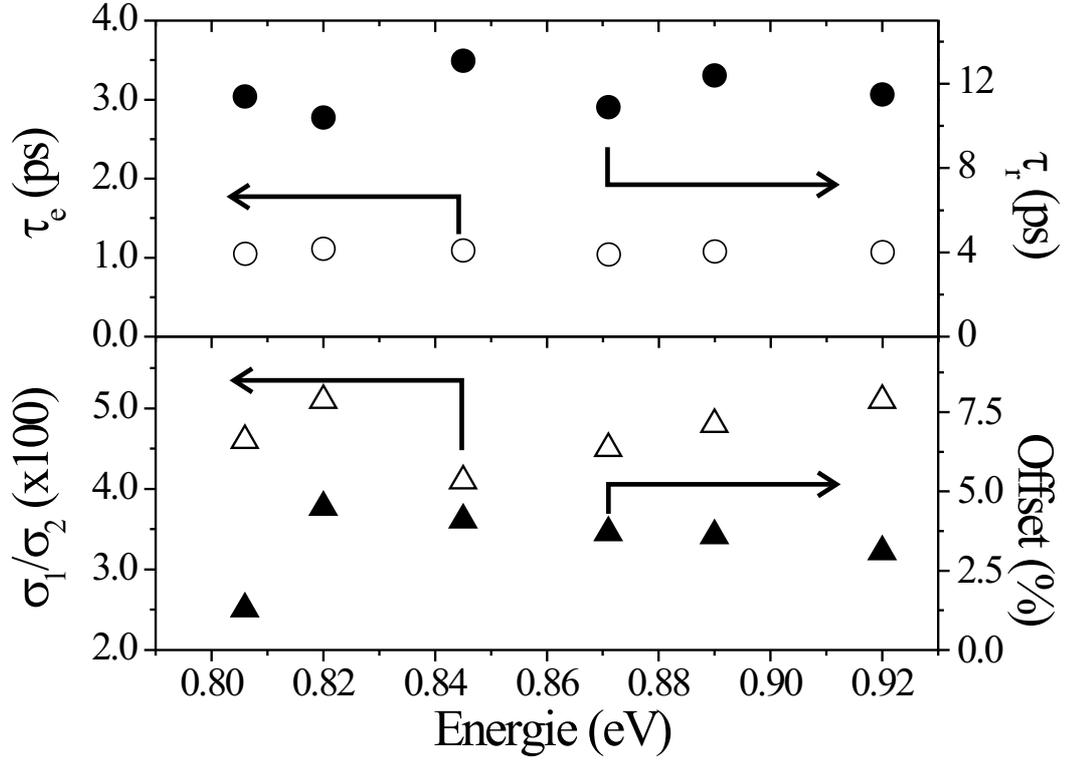


Abbildung 5.18.: Ergebnisse des Relaxationsmodells in Abhängigkeit der Abtastenergie. Die Zeitkonstanten τ_e und τ_r im oberen Teil zeigen eine nur geringe Variation über den Energiebereich von 120 meV. Gleiches gilt für das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte sowie des residuellen Signals.

In dem experimentell erfaßbaren spektralen Bereich von 0.8 bis 0.92 eV sind nur geringe Änderungen der induzierten Absorptionen festzustellen. Die Resultate des Relaxationsmodells zu allen Transienten sind in Abbildung 5.18 dargestellt. Die geringsten Schwankungen sind in der Zeitkonstante τ_e im oberen Teil der Abbildung zu verzeichnen. Der Mittelwert beträgt $\tau_e = 1.05 \pm 0.05$ ps. Mit $\tau_r = 11.5 \pm 0.5$ ps ergibt sich für die zweite Zeitkonstante eine ähnlich kleine Schwankung. Für alle ausgewerteten Transienten findet sich ein fast identisches Verhältnis der Wirkungsquerschnitte. Mit dem Wert für freie Ladungsträgerabsorption von $\sigma_1 = 7 \times 10^{-18} \text{ cm}^{-2}$ ergibt sich ein Mittelwert für σ_2 von $\sigma_2 = 0.33 \times 10^{-18} \text{ cm}^{-2}$. Dieser scheint insbesondere unabhängig vom beobachteten Signaloffset zu sein.

Diskussion

In den induzierten Absorptionen der Zweifarben-Anrege/Abfrage-Experimente zeigt sich mit einer Zeitkonstanten von 11.5 ps mindestens eine Dynamik, die in Anrege/Abfrage-Experimenten mit Photonenergien an oder über der Bandlücke nicht beobachtet werden kann. Dies ist ein wesentliches Argument, die Dynamik der Rekombination eingefangener Ladungsträger zuzuordnen.

In diesem Kontext ist auch das Relaxationsmodell von Abbildung 5.17 zu verstehen. Das Auftreten nur einer zusätzlichen Zeitkonstanten macht nur die Annahme eines Einfangniveaus im Modell sinnvoll. Geht man von den wichtigsten in LTG GaAs nachgewiesenen Störstellen – den As_{Ga} -Störstellen – aus, so treten diese im Grundzustand des Halbleiters in den zwei Konfigurationen As_{Ga}^0 und As_{Ga}^+ auf. Der neutrale Defekt As_{Ga}^0 kann nach [71] ionisiert werden. Entsprechend ist der As_{Ga}^+ -Zustand in der Lage, ein freies Elektron aufzunehmen. In der Schemazeichnung auf der rechten Seite von Abbildung 5.11 sind es die Übergänge 1. ($\text{As}_{\text{Ga}}^0 + h\nu \rightarrow \text{As}_{\text{Ga}}^+ + e$) bzw. 2. ($\text{As}_{\text{Ga}}^+ + h\nu \rightarrow \text{As}_{\text{Ga}}^0 + h$), die mittels des Abtastpulses beobachtbar sein sollten. Ordnet man ihnen die Absorptionswirkungsquerschnitte σ_n (1.) und σ_p (2.) gemäß der Notation in [71] zu, so läßt sich leicht zeigen, daß im Modell

$$\sigma_2 = \sigma_p - \sigma_n \equiv \Delta\sigma$$

gilt. Häufig wird der As_{Ga} -Störstelle eine entscheidende Rolle in der Relaxationsdynamik zugeschrieben. Aufgrund der Ähnlichkeit mit EL2-Störstellen werden für σ_n und σ_p Literaturwerte dieser Störstelle übernommen (siehe z.B. [109]). Für den hier untersuchten Bereich der Abtastenergien ist die Differenz der Wirkungsquerschnitte in [71] deutlich positiv. Sie beträgt ca. $\Delta\sigma = 2 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$, liegt also weit über dem hier erzielten Ergebnis für σ_2 . Zudem sind die induzierten Absorptionen im Experiment durchgehend positiv. Geht man jedoch von der einfachen Vorstellung der Besetzung der As_{Ga} -Störstellen durch Elektronen im Relaxationsprozeß aus, so ist danach eine transiente Erniedrigung der Absorption zu erwarten. Dies wird verständlich, wenn man die Änderung der Absorption $\Delta\alpha_s$ in den As_{Ga} -Störstellen betrachtet:

$$\Delta\alpha_s = -n_s \Delta\sigma (f^* - f).$$

Hierbei ist n_s die As_{Ga} -Konzentration ($n_s = [\text{As}_{\text{Ga}}^0] + [\text{As}_{\text{Ga}}^+]$). Durch f wird der Anteil der As_{Ga}^0 -Störstellen im Grundzustand repräsentiert. Durch Elektroneneinfang in As_{Ga}^+ -Störstellen erhöht sich dieser Anteil auf f^* . In diesem Falle ist also die Änderung dieses Absorptionsbeitrages negativ. Es läßt sich aus den angeführten Gründen das Fazit ziehen, daß Absorptionswirkungsquerschnitte von EL2-Störstellen die beobachteten induzierten Absorptionen nicht erklären können.

Ein Abweichen der Wirkungsquerschnitte in LTG GaAs von Literaturwerten des EL2-Defekts ist nicht erstaunlich, da in einigen Veröffentlichungen signifikante Unterschiede der As-Störstellen in LTG GaAs zu den EL2-Defekten belegt werden. So werden z.B. in [140, 55] auf As_{Ga} basierende Defekte nachgewiesen, die Störstellenkomplexe zu sein scheinen. Ebenso zeigen Ramanuntersuchungen in LTG GaAs hohe Konzentrationen As_{Ga} basierender Defekte mit geringer Symmetrie [43]. Es ist davon auszugehen, daß solche Defekte andere Wirkungsquerschnitte besitzen.

Die Interpretation, daß FLA einen wesentlichen Beitrag zur induzierten Absorption liefert, findet beim Vergleich mit Messungen von Tani et al.[141] neben der Argumentation über Gleichung (5.12) weitere Bestätigung. Tani hat den Einsatz von LTG GaAs bei der optischen Kommunikationswellenlänge von $1.55 \mu\text{m}$ gezeigt: Für eine photoleitende Antenne auf Basis von LTG GaAs konnte mit einem $1.55 \mu\text{m}$ -Abtastpuls eine überraschend hohe Sensitivität von 10 % im Vergleich zu $0.8 \mu\text{m}$ -Pulsen erzielt werden. Die geringere Sensitivität ist primär durch einen 10-fach geringeren Photostrom bedingt, der durch den Abtastpuls induziert wird. Der Photostrom resultierte dabei nachweislich kaum aus ZPA. Dies ist konsistent mit den Ergebnissen der entarteten Anrege/Abfrage-Experimente von Seite 91 ff. Zudem läßt sich aus der Transienten von Abbildung 5.13 aufgrund der Wahl der Abtastenergie eine maximale induzierte Absorption von $\Delta\alpha = 2 \text{ cm}^{-1}$ abschätzen. Skaliert man das Signal auf die gleiche Energieflußdichte wie sie in den Zweifarbenexperimenten vorliegen, ergibt sich so ein Verhältnis von 15 % \pm 5 % der Signalamplituden von Einfarben- zu Zweifarbenexperiment. Dies läßt sich mit einer entsprechend geringeren freien Ladungsträgerdichte für Anregungsenergien in der Bandlücke erklären. Das Ergebnis entspricht somit dem in der Referenz [141]: Bei gleicher Energieflußdichte erzeugt ein Anregepuls mit ca. 0.8 eV 15 % an freien Ladungsträgern wie im Falle resonanter Anregung. Die im Rahmen dieses Vergleiches sehr gute Übereinstimmung untermauert die Interpretation eines dominierenden Beitrags der FLA.

Somit kann die in Abbildung 5.13 zu beobachtende Dynamik im wesentlichen der Relaxation freier Ladungsträger zugeschrieben werden. Mit $\tau_e = 0.8 \text{ ps}$ wird eine Zeitkonstante gemessen, die nahe bei den $\tau_e = 1.05 \text{ ps}$ der Zweifarbenexperimente liegt. Über die geringe Differenz der Zeitkonstanten von ca. 0.2 ps kann nur spekuliert werden. Vorstellbar ist die Erhöhung der Dichte von Einfangzentren beispielsweise über einen Prozeß wie $\text{As}_{\text{Ga}}^0 + h\nu \rightarrow \text{As}_{\text{Ga}}^+ + e$ durch den Anregepuls bei Energien von 0.8 eV. Somit wäre ein schnellerer Einfang freier Ladungsträger möglich. Der langsame Signalbeitrag mit 11 ps, der prinzipiell ebenso bei den entarteten Anrege/Abfrage-Experimenten zu beobachten sein müßte, ist wegen des schlechten S/N-Verhältnisses und des kleineren Signals nicht auflösbar.

Die Bedeutung des in allen Energiekombinationen von Anrege- und Abfragepuls detektierten Signaloffsets für die Relaxation freier Ladungsträger ist als gering anzusehen. In den Zweifarbenexperimenten läßt sich mit $\tau_{\text{off}} > 100 \text{ ps}$ eine untere Schranke für eine

Zeitkonstante dieses Beitrages angeben. Es ist demnach durchaus möglich, daß der dort gemessene Offset den gleichen Ursprung wie der langsame Signalbeitrag von Abbildung 5.2 (entartete Anrege/Abfrage oberhalb der Bandlücke) hat. Die Tatsache, daß Sättigungseffekte in der Relaxationsdynamik freier Ladungsträger bis zu Dichten von $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ kaum zu beobachten sind, schließt als Ursprung des Beitrages einen *dominanten* Relaxationskanal aus.

Anders ist die Situation bei einer Rekombinationszeit von $\tau_r = 11.5 \text{ ps}$. Hier sind Sättigungseffekte bei den untersuchten Dichten nicht zu erwarten. In der Literatur wird bis zum heutigen Zeitpunkt von keinen anderen Zeitkonstanten für Rekombinationsprozesse eingefangener Ladungsträger berichtet. Die gewählten Abtastenergien liegen zudem in dem Bereich, in dem sich die Fermienergie von LTG GaAs befindet. Somit dürften Änderungen von Besetzungen gerade um die Fermienergie detektierbar sein. Dies sind Hinweise darauf, daß es sich hier um einen wichtigen Relaxationskanal handelt. Zu ähnlichen Ergebnissen gelangen auch Grenier et al. [124]. Die erheblich kleineren Zeitfenster von weniger als 8 ps sowie eine teilweise ungenaue Behandlung der Datenanalyse⁷ in dieser Veröffentlichung erlauben jedoch nur eine sehr ungenaue Bestimmung der Rekombinationszeit.

Insgesamt stellt sich die Dynamik optisch induzierter Ladungsträger im optimierten LTG GaAs nach den Ergebnissen dieses Kapitels wie folgt dar: Für die Beweglichkeitsdauer τ_μ kann in entarteten Anrege/Abfrage-Experimenten mit Energien oberhalb der Bandlücke ein Wert um

$$\tau_\mu \approx 0.34 \text{ ps}$$

ermittelt werden (Seite 70). Auf dieser Zeitskala erfolgt eine räumliche Lokalisierung der Ladungsträger in bandlückennahe Zustände, deren Ursache Potentialfluktuationen aufgrund von Punkdefekten und As-Ausscheidungen sind. Mit der Lokalisierung geht eine Verlangsamung der Relaxationsprozesse einher. Dies ist in gewisser Weise der umgekehrte Effekt, den eine Lokalisierung von Elektronen und Löchern in Quantentöpfen mit sich bringt: Dort geht der erhöhte Überlapp der Wellenfunktionen mit einer schnelleren Rekombinationszeit einher [142]. Lokalisierte Ladungsträger, deren Überlapp der Wellenfunktionen mit den relevanten Einfangzentren reduziert ist, werden langsamer relaxieren. Hierbei kann eine Zeit von

$$\tau_e \approx 1 \text{ ps}$$

bestimmt werden. Diese Zeit findet sich sowohl in den entarteten Anrege/Abfrage-Experimenten mit $h\nu \approx 0.8 \text{ eV}$ als auch in den Zweifarbenexperimenten wieder. Die

⁷Es wird dort eine Situation gewählt, in der näherungsweise $\partial_n T = -\partial_n R$ gilt und somit Δn nicht bestimmt werden kann. Andererseits beruht die Argumentation in [124] ganz wesentlich auf dem Verhalten von Δn .

Beobachtung einer nichtexponentiellen Signalrelaxation in den ersten 300 bis 400 fs dieser Experimente kann darauf hindeuten, daß sich Absorptionswirkungsquerschnitte von Ladungsträgern in den Bändern von denen in bandlückennahen Zuständen leicht unterscheiden. Somit ließe sich auch in diesen Experimenten die Beweglichkeitszeit $\tau_\mu = 0.34$ ps wiederfinden. Die einzige Zeitkonstante τ_r , die eine schnelle Rückkehr in den Grundzustand des Halbleiters ermöglicht, wird im Sinne dieses Modells der Ladungsträgerrekombination aus tiefen Störstellen zugeordnet. Mit

$$\tau_r \approx 11.5 \text{ ps}$$

kann sie jedoch mit Blick auf ultraschnelle optoelektronische Bauelemente negative Auswirkung haben. Diese sind in der möglichen effektiven Feldabschirmung begründet, die z.B. die Emissionsleistung von THz-Antennen stark reduzieren kann.

Es ist bemerkenswert, daß bisher für nicht ausgeheiltes LTG GaAs keine τ_r entsprechende Zeitkonstante veröffentlicht wurde. Für dieses Material werden in der Regel Relaxationszeiten freier Ladungsträger von mehreren hundert fs berichtet [69]⁸. Nach den Ergebnissen in [69] sollen eingefangene Ladungsträger über einige 100 ps in den Defekten verbleiben. Dies legt die Vermutung nahe, daß sich durch den Ausheilprozeß neue Relaxationskanäle ergeben. Als Kandidaten stehen hier die As-Ausscheidungen aber auch neue Störstellenkomplexe zur Diskussion, die sich erst durch die Ausheilung bilden. Über die Bedeutung der As-Ausscheidungen für die Ladungsträgerrekombination lassen sich bedingt Aussagen machen. Die Vermutung verschiedener Gruppen, die Relaxation freier Ladungsträger findet innerhalb der metallischen Ausscheidungen statt, ist nicht wahrscheinlich. Eine solche Relaxation spielt sich in der Regel im Subpikosekundenbereich ab [143]. Sie liegt demnach nicht in der relevanten Größenordnung von 10 ps. Allerdings könnten die Grenzflächen zwischen Ausscheidungen und GaAs-Matrix durchaus als Senken freier Ladungsträger dienen. Hier müßte dann eine Korrelation zwischen Ausscheidungsdichte und τ_μ zu beobachten sein, so wie es Ruda et al. [64] postulieren.

⁸Generell muß hierzu eine Bemerkung gemacht werden: Für nicht ausgeheiltes LTG GaAs ist die Methode der Bestimmung der Lebensdauer freier Ladungsträger über entartete Anrege/Abfrage-Experimente an der Bandlücke (von Standard GaAs!) sehr fragwürdig. Sowohl der niedrige spezifische Widerstand als auch die nicht vorhandene Bandkante in linearer Absorption zeigen, daß für dieses Material Bandkante und Beweglichkeitskante nicht identisch sind.

6. Sättigungseffekte in LTG GaAs

Bei möglichen Anwendungen von LTG GaAs in Bauelementen, bei denen höchste Wiederholraten sowie hohe optische Leistungsaufnahmen angestrebt sind, ist die Sättigungsdynamik optisch generierter Ladungsträger von besonderem Interesse. Das Auftreten von Engstellen in den Relaxationsprozessen könnte die Tauglichkeit des Materials für diese Art der Anwendung stark einschränken. Die Situation extrem hoher Anregungsdichten kann ferner einen tieferen Einblick in die Relaxationsdynamik der Ladungsträger bringen. Dies verlangt jedoch nach genau definierten experimentellen Vorgaben wie sie in bisherigen Untersuchungen in der Literatur nicht gegeben waren.

Dieses Kapitel beschäftigt sich mit der Spektroskopie freier Ladungsträger in LTG GaAs. Hierbei wird die Anregungsdichte über fast drei Größenordnungen variiert [144, 145]. Durch die Verwendung von THz-Strahlung als Abtastpulse wird sichergestellt, daß im Gegensatz zur in Abschnitt 5.1 genutzten Technik keine zusätzlichen Beiträge wie Besetzungsänderungen in Einfangzentren detektiert werden.¹ Nach der Demonstration der Tauglichkeit dieser neuen Meßtechnik zur Bestimmung von Ladungsträgerlebensdauern wird an einer Wachstumsserie von LTG GaAs-Materialien sowohl der Fall niedriger Anregungsdichte als auch der Fall höchster Anregungsdichten untersucht. Eine geeignete numerische Analyse gibt in beiden Fällen Aufschluß über die Dynamik freier Ladungsträger in LTG GaAs. Zusätzlich lassen sich transiente Beweglichkeiten der verschiedenen LTG GaAs-Materialien bestimmen. Eine abschließende Diskussion beendet das Kapitel.

6.1. THz-Spektroskopie an LTG GaAs

Nach den Ergebnissen des letzten Abschnittes 5.3 ist es fraglich, ob sich das untersuchte LTG GaAs für Anwendungen eignet, bei denen hohe Wiederholraten oder Modulationsfrequenzen ab etlichen GHz (> 50 GHz) gewünscht sind. Speziell bei optoelektronischen Schaltern kann die Tatsache, daß der Halbleiter nach einer optischen Anregung

¹Dies kann auf Grund des hohen spezifischen Widerstandes von ausgeheiltem LTG GaAs gefolgert werden. Für nicht ausgeheiltes Material muß dies nicht unbedingt gelten.

auf einer Zeitskala von 10 ps in den Grundzustand relaxiert, zu sehr effizienten Feldabschirmungen führen, die die Eignung des Materials für Hochfrequenzanwendungen stark einschränken. Es existieren bereits Hinweise in Veröffentlichungen, die beispielsweise eine Minderung der Qualität eines optoelektronischen LTG GaAs-Schalters mit steigender Pulsleistung nachweisen [146]. Diese wurde in Referenz [146] als Feldabschirmungen gedeutet. Wird außerdem bei hohen Anregungsdichten gearbeitet, kann eine Sättigung der tiefen Störstellen den schnellen Einfang freier Ladungsträger verhindern.

Eine Untersuchung des Sättigungsverhalten von LTG GaAs ist von prinzipieller Bedeutung für das Verständnis der Ladungsträgerrelaxation, da eine endgültige Rekombination eingefangener Ladungsträger mit einer konstanten Rate nicht gegeben sein muß. So ist die für elektrische Bauelemente wesentliche Rekombination von in Störstellen gefangenen Ladungsträgern – die so genannte Shockley-Read-Hall-Rekombination – abhängig von der momentanen Besetzung dieser Störstellen [32, 147]. Unter der Annahme einer konstanten Rekombinationsrate von $1/10 \text{ ps}^{-1}$ wie sie nach Abschnitt 5.3 erwartet werden könnte, ist eine deutlich längere Lebensdauer freier Ladungsträger als $\tau_{\mu} = 0.34 \text{ ps}$ zu erwarten, falls deren initiale Dichte die Dichte der Einfangzentren übersteigt. Die Beobachtung der Lebensdauer der freien Ladungsträger im Fall hoher Dichte entspricht dabei einer indirekten Beobachtung der Rekombinationsrate eingefangener Ladungsträger. Andererseits sind die freien Ladungsträger der entscheidende Faktor für die elektrischen Eigenschaften von optoelektronischen Schaltern, da ihre Beweglichkeit den Transport bestimmt.

Bisherige Methoden, die Sättigung tiefer Störstellen zu beobachten, basieren auf rein optischen Anrege/Abfrage-Experimenten mit Verstärkersystemen, bei denen sowohl der Anrege- als auch der Abfragepuls energetisch oberhalb der Bandlücke liegt [65, 67, 69]. Die sich bei einem solchen Zugang ergebenden Probleme sind vielfältig, wie es auch eigene Tests gezeigt haben. Neben experimenteller Schwierigkeiten wie große Temperaturgradienten über die Anregespots oder Stabilitätsproblemen des für die Abfrage zu erzeugenden Weißlichts² ist vor allem die Datenanalyse sehr komplex, da viele nichtlineare Prozesse zum Signal beitragen. Hierzu gehören Auger-Rekombinationseffekte [148] und Zwei-Photonen-Absorptionsprozesse. Gerade in der Nähe der Bandlückenenergie liefert auch die Bandlückenrenormierung einen wichtigen Beitrag zum Signal [7]. Ferner sind Signalbeiträge aufgrund der Besetzungsänderung von Störstellen zu erwarten: Eingefangene Ladungsträger können beispielsweise erneut angeregt werden und werden vom Abtastpuls als induzierte Absorption gesehen. Diese Komplikationen in der Analyse der Daten

²Die Erzeugung der Abtastwellenlänge oberhalb der Bandlücke erfolgt über die Generation von Weißlicht in einem Saphirkristall mit anschließender Wellenlängenselektion um 860 nm wie es z.B. in [65] durchgeführt wurde. Die spektrale Nähe des Laserlichtes bei 810 nm macht den Abtaststrahl extrem sensitiv auf Intensitätsfluktuationen der Quelle, da hoch nichtlineare Prozesse zur Weißlichterzeugung gerade im Bereich zwischen 700 nm und 900 nm beitragen.

erschweren eine Extraktion der Dynamik freier Ladungsträger erheblich bzw. machen sie unmöglich.

Bei der Wahl eines Abtaststrahls im ferninfraroten Spektralbereich lassen sich viele der Probleme eines Anrege/Abfrage-Experimentes mit bandlückennaher Abfragewellenlänge vermeiden. Die Verwendung von THz-Frequenzen zur Untersuchung der Dynamik freier Ladungsträger erscheint als eine natürliche Wahl, da nur Intrabandübergänge und damit freie Ladungsträger Signalbeiträge liefern. Bei einer Energie von wenigen meV sind Prozesse wie die Anregung einer neutralen As-Störstelle ($\text{As}_{\text{Ga}}^0 + h\nu \rightarrow \text{As}_{\text{Ga}}^+ + e^-$), die einige hundert meV benötigen, nicht möglich. Eine Bandlückenrenormierung aufgrund der hohen Ladungsträgerdichte spielt ebenso keine Rolle für reine Intrabandübergänge. Die Methode des zeitaufgelösten Abfragens optisch induzierter Ladungsträger mittels eines kurzen THz-Pulses hat sich zur Bestimmung frequenzabhängiger Leitfähigkeiten etabliert (siehe z.B. [149]). Die Ladungsträgerdynamik in LTG GaAs wurde in [150] für den Fall niedriger Dichte unterhalb von $5 \times 10^{15} \text{cm}^{-3}$ untersucht. Dabei wurden maximale Signaländerungen der THz-Intensität von einigen Prozent beobachtet. Dies verdeutlicht die hohe Sensitivität von THz-Strahlung auf freie Ladungsträger. Die hohe Sensitivität ist aufgrund der geringen Wiederholrate des Verstärkerlasers von 1 kHz notwendig, um ein gutes S/N-Verhältnis zu erhalten. So würden beispielsweise bei einem Anrege/Abfrage-Experiment mit Photonenergien oberhalb der Bandlücke Anregungsdichten von $5 \times 10^{15} \text{cm}^{-3}$ Signaländerungen von weniger als 10^{-5} ergeben. Diese Auflösung ist mit dem Verstärkerlaser nicht zu erreichen.

Der verwendete experimentelle Aufbau ist in Kapitel 3.4 beschrieben. Bei der Durchführung der Experimente sind die Proben auf einer Aperturblende mit einem Durchmesser von 2.5 mm angebracht und im Fokus des THz-Strahls positioniert. Die Blende hat die zusätzliche Wirkung eines Kantenfilters für Frequenzen unterhalb ca. 250 GHz. Die optische Anregung erfolgt kollinear zum THz-Strahl. Die parallele Strahlführung ist wichtig, um die zeitliche Auflösung nicht zu reduzieren. Der Strahldurchmesser des optischen Pulses beträgt an der Probenstelle 3.5 mm. Somit ist eine lateral homogene Anregung der Proben über den Fokus des Abtaststrahls gewährleistet. Um eine optimale Positionierung der Proben zu ermöglichen, wird der Probenhalter über eine computergesteuerten xyz-Schrittmotor mikrometergenau verfahren. Zur Vermeidung von Absorptionslinien von Wasser, die verstärkt im unteren THz-Bereich auftreten, wird der Aufbau mit Trockenluft gespült.

Für diese Untersuchungen stehen fünf verschiedenen LTG-GaAs-Materialien zur Verfügung. Neben der bisherigen Probe mit einer Wachstumstemperatur T_g von 200 °C und einer Dicke von 450 nm werden drei weitere Proben mit Werten von $T_g = 235$ °C, 245 °C und 275 °C und einer Dicke von jeweils 1 μm untersucht. Alle Proben sind bei $T_a = 600$ °C ausgeheilt. Eine fünfte Probe ist bei $T_g = 275$ °C hergestellt und bei 700 °C ausge-

heilt worden. Die Proben mit den von 200 °C abweichenden Wachstumstemperaturen sind am Institut für Technische Physik I der Friedrich Alexander-Universität Erlangen gewachsen worden und wurden von S. Tautz ausgeheilt. Sie werden mit UV-härtendem optischem Kleber auf Saphir aufgebracht. Das GaAs-Substrat wird daraufhin naßchemisch entfernt. Dabei wird mit der GaAs-selektiven Ätze $\text{H}_2\text{O}/\text{SO}_4$ bis auf die 50 nm dicke AlAs-Stopätzschicht geätzt. Zur Beseitigung eventueller Substratrete wird auch die AlAs-Schicht mit einer HF-Ätze entfernt. Bei dieser Präparationsmethode ist die Gefahr von Rissen in den Filmen kleiner als bei dem auf Seite 135 beschriebene van der Waals-Bonden. Sie bietet sich daher dann an, wenn nur sehr begrenzt Material zur Verfügung steht. Die Dicke der Klebefilme kann zu $< 2.5\mu\text{m}$ abgeschätzt werden. Bei der Verwendung von doppelbrechendem Saphir als Substrat ist der Einbau eines THz-Polarisators hinter den Proben hilfreich, um eventuelle Polarisationsdrehungen der THz-Strahlung zu eliminieren. Polarisationsdrehungen reduzieren die Signalamplitude bei der elektrooptischen Detektion. Bei einer Orientierung einer optischen Achse des Saphirsubstrates entlang der Polarisationsrichtung der THz-Pulse läßt sich der Einsatz eines Polarisators vermeiden.

Der experimentelle Aufbau wird üblicherweise dazu genutzt, frequenzabhängige Leitfähigkeiten $\sigma(\omega)$ im THz-Bereich zu bestimmen. Die Grundidee der Methode zur Bestimmung von $\sigma(\omega)$ läßt sich wie folgt beschreiben: Um $\sigma(\omega)$ beispielsweise eines Halbleiters zu messen, wird die Transmission des THz-Pulses durch die Probe aufgenommen. Ein Vergleich mit einer Referenzmessung, die ohne Probe durchgeführt wird, liefert bei bekannter Probendicke die zeitliche Verzögerung jeder Frequenzkomponente des THz-Pulses und damit im Prinzip den Brechungsindex $n(\omega)$. Die zusätzliche Dämpfung der spektralen Komponenten gibt Aufschluß über die jeweilige Absorption. Zahlreiche Untersuchungen zu intrinsischem und dotiertem GaAs liefern zuverlässige Ergebnisse [151, 149]. Es existieren ebenso Untersuchungen an intrinsischem GaAs nach einer optischen Anregung [152]. Dabei werden optisch dünne Schichten gewählt, um den Effekt von Dichtegradienten der erzeugten Ladungsträger in Durchstrahlrichtung möglichst gering zu halten. Auch nach einer optischen Anregung ist die Aufnahme der gesamten THz-Transienten ohne weiteres möglich, da die Transienten sehr kurz gegenüber der Ladungsträgerrekombination auf Nanosekunden-Zeitskala in Standard GaAs sind. In den folgenden Experimenten wird auf die vollständige Aufnahme der THz-Transienten verzichtet. Dies ist in der kurzen Lebensdauer freier Ladungsträger begründet. Damit ergibt sich nicht nur eine frequenz- sondern auch zeitabhängige Leitfähigkeit $\sigma(\omega, t)$.³ Anstelle der vollständigen THz-Transienten wird der zeitliche Verlauf der THz-Amplitude aufgenommen. In neuester Zeit ist eine entsprechende Messung an RD-SOS (engl.: *Radiation*

³Eine Zeit- und Frequenzanalyse der vorhandenen Proben ist aus rein zeitlichen Gründen schon nicht möglich: Um Daten in genügender Qualität und Dichte der beiden Koordinaten Zeit und Frequenz zu erhalten, kann eine reine Meßzeit von ungefähr 800 Stunden abgeschätzt werden.

Damaged Silicon on Sapphire) von Lui et al. [153] veröffentlicht worden. Die Datenanalyse unterscheidet sich jedoch von der in dieser Arbeit gemachten insofern, als dort die optischen Phasen der THz-Frequenzen nicht berücksichtigt werden. Die hier vorgenommene Analyse wird an geeigneter Stelle im Text erläutert. Es wird jedoch im ersten Teil des Ergebniskapitels die Tauglichkeit der Meßmethode analysiert.

6.2. Ergebnisse

Der oben erwähnte Vorteil der extrem hohen Sensitivität der THz-Strahlung kann sich auf den ersten Blick auf der anderen Seite als Nachteil auswirken: Schon bei relativ geringen Dichten zeigen sich nichtlineare Signaländerungen in Form von Signalsättigungen. Um die Möglichkeiten der Meßtechnik zu demonstrieren, wird eine einfache Analyse an den Transienten der bei 700 °C ausgeheilten Probe vorgestellt. Aufgrund der Herstellungsparameter ist eine Ladungsträgereinfangzeit deutlich oberhalb einer Pikosekunde zu erwarten. Dies bestätigt sich auch bei Anrege/Abfrage-Experimenten mit Energien von $\hbar\omega = 1.47$ eV, bei der eine Zeitkonstante von $\tau_\mu = 9$ ps gemessen werden kann, wie der Einsatz in Abbildung 6.1 zeigt. Es sind sowohl Transiente als auch exponentieller Fit aufgetragen. Das verstärkte Rauschen der Meßkurve bei einer Zeitverzögerung von 2.7 ps resultiert aus einem Rückreflex des Anregepulses am Substratträger.

In Abbildung 6.1 sind THz-Transienten der Probe für die vier verschiedenen Anregungsdichten $9 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, $3.3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, $1.1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ und $1.5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ über einen Zeitbereich von mehr als 50 ps gezeigt. Die induzierten Ladungsträgerdichten sind dabei so niedrig, daß Sättigungseffekte tiefer Störstellen nicht zu erwarten sind. Dies kann auch im rein optischen Anrege/Abfrage-Experiment verifiziert werden. Die Skalierung der abgebildeten Signale ist folgendermaßen zu verstehen: Vor dem Zeitnullpunkt sind keine freien Ladungsträger vorhanden. Die nicht abgeschwächte (maximale) THz-Feldamplitude wird transmittiert. Der so detektierte Pegel ist willkürlich auf Null gelegt. Zum Zeitnullpunkt induziert der nahinfrarote Puls freie Ladungsträger. Dies mindert die THz-Transmission aufgrund einer erhöhten Reflexion und einer Absorption durch die freien Ladungsträger. Auf der y-Achse ist also die Reduktion der THz-Amplitude normiert bezüglich der maximalen Amplitude E_{THz}^0 , die man ohne optische Anregung erhält, aufgetragen. Diese läßt sich direkt im Aufbau bestimmen. Eine unter identischen Bedingungen an Standard GaAs gemessene Transiente würde aufgrund der Nanosekundenlebensdauer auf der gezeigten Zeitskala eine Stufe ohne weitere erkennbare Dynamik innerhalb der gezeigten 50 ps liefern (siehe [107]).

In allen vier Fällen wird das Signalmaximum mit dem Zeitnullpunkt erreicht. Auf der gezeigten Zeitskala ist der Anstieg instantan. Für die niedrigste Anregungsdichte kann im weiteren ein monoexponentieller Zerfall des Signals beobachtet werden. Trotz der speziell

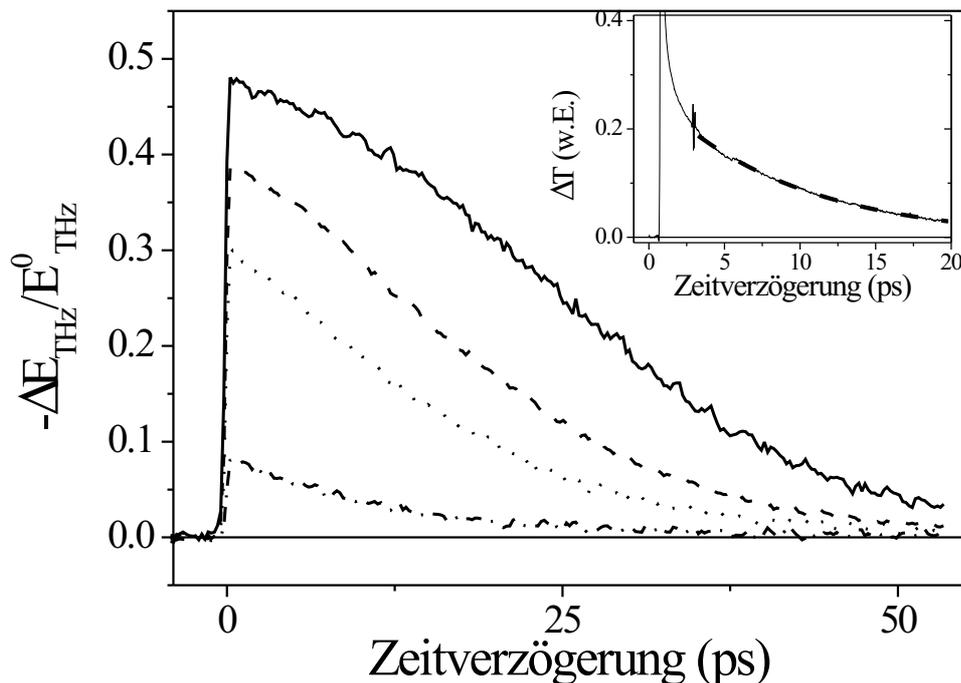


Abbildung 6.1.: THz-Transienten bei den vier unterschiedlichen Anregungsdichten $9 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, $3.3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, $1.1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ und $1.5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ für eine bei $700 \text{ }^\circ\text{C}$ ausgeheilte Probe. Der Einsatz zeigt eine rein optische Anrege/Abfrage-Messung an der gleichen Probe und einen exponentiellen Fit mit $\tau_\mu = 9 \text{ ps}$.

für einen Verstärkerlaser mit seinen hohen Pulsleistungen sehr geringen Anregungsdichte ist das Signal über mehr als 40 ps sauber zu detektieren. Mit höher werdenden Anregungsdichten erkennt man eine immer größere Abweichung dieses monoexponentiellen Verhaltens. Für die höchste Anregungsdichte werden maximale Transmissionsänderungen von $-\Delta E_{THz}/E_0 = 0.48$ detektiert. In diesem Bereich wird die Sättigung des Signals schon wesentlich. Dies bedeutet jedoch nicht, daß hier bereits die Relaxationsdynamik der freien Ladungsträger durch z.B. Störstellensättigung derart beeinflußt wird, daß ihr Einfang nicht mehr monoexponentiell verlaufen würde. Das THz-Signal skaliert aufgrund der hohen Sensitivität nur bei sehr geringen Dichten mit der erwarteten Abhängigkeit zur induzierten Ladungsträgerdichte N ($E_{THz} \propto \sqrt{N}$).

Daß die freie Ladungsträgerdynamik weiterhin ein monoexponentielle Relaxation aufweist, läßt sich auf eine einfache Art zeigen: Verschiebt man die drei Kurven der niedrigeren Anregungsdichten entlang der Zeitachse soweit, bis die Signalmaxima auf der Transienten der höchsten Dichte zu liegen kommen, so liegen alle Kurven auch im weiteren Verlauf im Rahmen der Meßgenauigkeit exakt übereinander. Dies ist im unteren Teil

von Abbildung 6.2 demonstriert. Offensichtlich hängen also die Signale zu jedem Zeitpunkt nur von der momentanen freien Ladungsträgerdichte aber nicht von der initialen Dichte ab. Dies ist jedoch nur dann möglich, wenn die Relaxationsdynamik nicht durch Effekte – wie etwa die Besetzung tiefer Störstellen – beeinflusst wird.

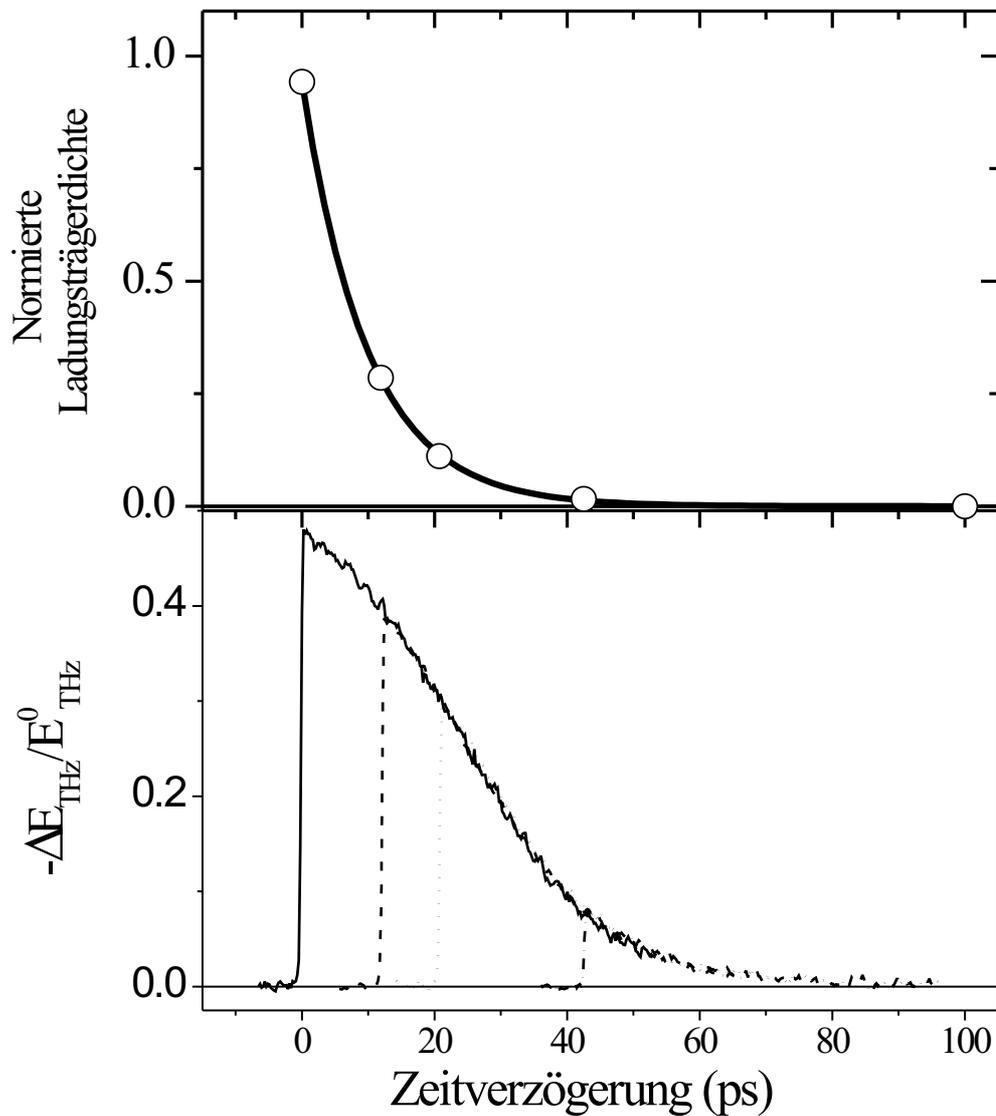


Abbildung 6.2.: Analyse der THz-Transmissionsdaten aus Abbildung 6.1 durch Verschiebung der Kurven entlang der Zeitachse. Der untere Teil der Abbildung zeigt die verschobenen Kurven. Im oberen Teil sind die gemessenen Ladungsträgerdichten gegen die Zeitverschiebungen des unteren Teils der Abbildung aufgetragen. Ein exponentieller Fit mit einer Zeitkonstanten von $\tau = 9.5$ ps ist eingezeichnet.

Der exponentielle Charakter der freien Ladungsträgerrelaxation kann folgendermaßen ermittelt werden: Im oberen Teil von Abbildung 6.2 sind die gemessenen initialen Ladungsträgerdichten gegen die Zeitverschiebungen aus dem unteren Teil der Abbildung, die zum Überlapp der einzelnen Kurven benötigt werden, aufgetragen. Zusätzlich ist ein Punkt bei 100 ps eingetragen, der aus einer Messung mit einer Anregungsdichte von ca. $1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ hervorgeht, bei der gerade noch ein minimales Signal erkennbar ist. Durch die so erhaltenen Punkte läßt sich eine monoexponentielle Kurve mit einer Zeitkonstanten von $\tau_\mu = 9.5 \text{ ps}$ anpassen. Diese paßt perfekt zu den Meßpunkten. Sie beschreibt die zeitliche Abnahme der freien Ladungsträger für die höchste initiale Dichte im unteren Teil der Abbildung. Der Wert stimmt mit der im Anrege/Abfrage-Experiment mit Photonenergien oberhalb der Bandlücke erhaltenen Zeit von $\tau_\mu = 9 \text{ ps}$ sehr gut überein. Betrachtet man den Kurvenverlauf der Originaldaten, so mag es wegen der starken Abweichung von einem exponentiellen Verhalten überraschen, daß mit der gezeigten einfachen Analyse die Zeitkonstante τ_μ bestimmt werden kann. Dies zeigt jedoch, daß die eingesetzte Meßtechnik sinnvoll ist. Ferner ergeben sich Vorteile gegenüber der rein optischen Bestimmung, da das Signal vollständig relaxiert. Damit kann auch eine erste Schlußfolgerung bezüglich der Einfangzeiten für Löcher gezogen werden: Die THz-Pulse sollten die gleiche Sensitivität auf leichte Löcher wie auf Elektronen haben. Aufgrund der sehr hohen Sensitivität sollte sich demnach eine eventuell deutlich längere Lebensdauer von leichten Löchern in einer signifikant längeren Zeitkonstanten als im rein optischen Experiment bemerkbar machen. Dies ist hier jedoch nicht der Fall. Auch hier kann also nur auf eine identische Lebensdauer freier Löcher geschlossen werden.

Anzumerken bleibt, daß für die durchgeführte Analyse die genaue Kenntnis der absoluten Anregungsdichten nicht notwendig ist, sondern die Anregeleistung als Maß der initialen Ladungsträgerdichten dient. Sind die zu beobachtenden Zeitkonstanten deutlich kürzer ($< 1 \text{ ps}$), wie es für Ausheiltemperaturen von 600 °C zu erwarten ist, kann diese Art der Analyse kaum noch durchgeführt werden, da bei einer sehr niedrigen Anregungsdichte das Signal innerhalb der Zeitaufösung den Rauschpegel der Meßvorrichtung erreicht und so das Variieren der initialen Dichte im Experiment keinen Sinn macht.

Das eigentliche Interesse der Untersuchungen besteht in der Beobachtung der Relaxationsdynamik freier Ladungsträger der bei 600 °C ausgeheilten LTG GaAs-Proben. Im Folgenden soll zuerst der Fall niedriger Dichten für diese Proben betrachtet werden. Der Begriff „niedrige Dichte“ beschreibt die Situation, bei der Sättigung von tiefer Störstellen vernachlässigbar ist. Da die in Abbildung 6.2 demonstrierte Analysemethode nicht angewandt werden kann, ist es notwendig, die gemessenen Signale mit einem geeigneten Modell zu simulieren. Das Modell soll an dieser Stelle kurz eingeführt werden.

Reflexion und Transmission elektromagnetischer Strahlung werden durch die dielek-

trische Funktion ϵ beschrieben. Der allgemeine Zusammenhang von ϵ mit dem komplexen Brechungsindex ist durch Gleichung (B.6) im Anhang B gegeben. Im Falle eines optisch angeregten Halbleiters und THz-Frequenzen deutlich unterhalb der LO-Phonon-Resonanz bei 8.75 THz ist die Plasmafrequenz ω_p eine entscheidende Größe, die Transmission und Reflexion bestimmt. Sie hängt über

$$\omega_p = \sqrt{\frac{Ne^2}{m^* \epsilon_0}} \quad (6.1)$$

mit der freien Ladungsträgerdichte N zusammen. Hierbei ist e die Elementarladung und m^* die reduzierte effektive Masse. Der wesentlichen Beitrag zur Transmission bzw. Reflexion kann über den Drude-Beitrag zur dielektrischen Funktion angegeben werden [2, 154]. Vernachlässigt man eine Plasmon-Phonon-Kopplung, so kann die dielektrische Funktion als

$$\epsilon(\omega, t) = \epsilon_{\text{stat}} - \frac{\omega_p^2(t)}{\omega(\omega + i\Gamma)} \quad (6.2)$$

geschrieben werden [3]. Über die Plasmafrequenz, die von der zeitlichen Entwicklung der freien Ladungsträgerdichte abhängt, erhält $\epsilon(\omega, t)$ die Zeitabhängigkeit. Die statische Dielektrizitätskonstante wird im weiteren zu $\epsilon_{\text{stat}} = 13.1$ angenommen [6]. Der in Gleichung (6.2) zu $\omega_p^2(t)$ proportionale Drude-Anteil enthält den phänomenologischen Parameter Γ , der die Bedeutung einer Stoßrate hat und alle Streumechanismen der Ladungsträger umfaßt. Eine Streuzeit τ_s läßt sich somit über $\tau_s = \Gamma^{-1}$ definieren.

Da die Bandbreite im Experiment mit 0.25–2.5 THz deutlich unterhalb der LO-Phonon-Resonanz liegt, ist eine Vernachlässigung gekoppelter Plasmon-Phonon-Moden gerechtfertigt. In der Tat haben eigene Simulationen für das transmittierte elektrische Feld Abweichungen von unter 2.5 % des Meßsignals ergeben. Dies liegt unterhalb der mit diesem Aufbau erreichbaren Meßgenauigkeit. Die Transmission des THz-Pulses durch die Probe wird mit der in Anhang B beschriebenen Transfer-Matrix Methode modelliert. Hierbei ist zu beachten, daß die Zeitabhängigkeit der dielektrischen Funktion sich auch auf die Fresnel-Koeffizienten für Transmission und Reflexion auswirkt. Die Transfer-Matrix ist demnach ebenfalls zeitabhängig. Das Spektrum des THz-Pulses wird berücksichtigt, indem der Zeitverlauf des durch die Probe transmittierten THz-Pulses über mehrere Pikosekunden ohne optische Anregung aufgenommen wird. Eine FFT-Analyse liefert zum einen für jede Frequenzkomponente die Gewichtung und zum anderen den Phasenfaktor jeder Frequenzkomponente. Die Simulationen bzw. Berechnungen werden mit einem Satz von zehn Frequenzen im Intervall von 0.25 bis 2.5 THz mit äquidistantem Abstand durchgeführt. Es wird der Brechungsindex von Saphir für den THz-Bereich aus [117] übernommen. Über die Zeitabhängigkeit der freien Ladungsträger $N(t)$ in Gleichung (6.2) lassen sich so einfache Relaxationsmodelle, wie sie beispielsweise auf Seite 25 vorgestellt sind, überprüfen.

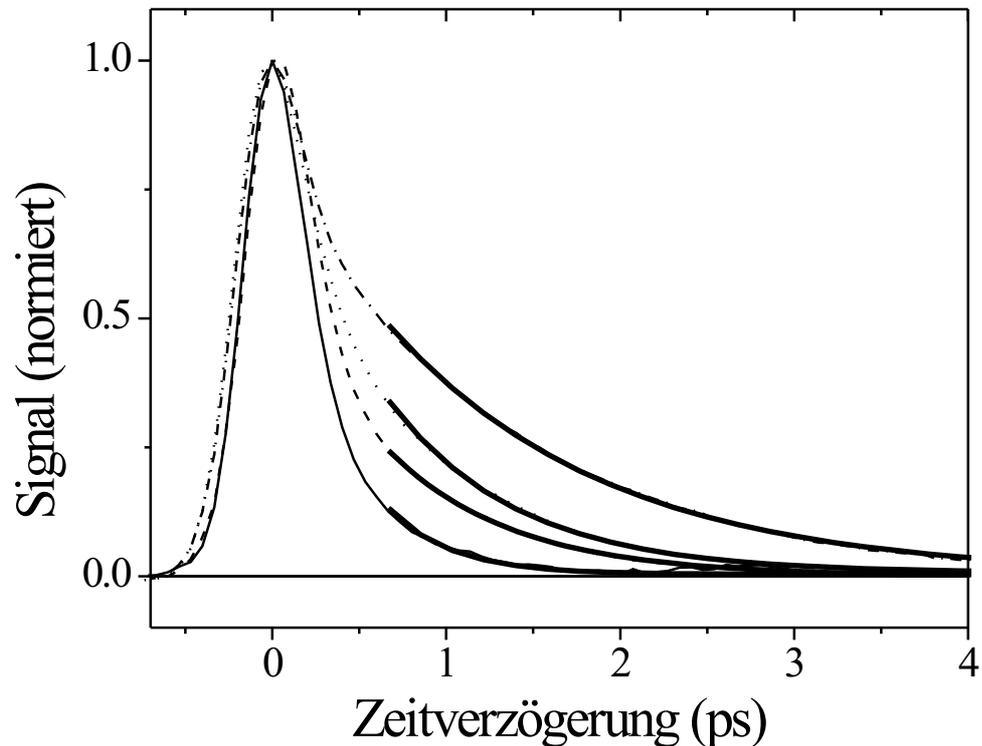


Abbildung 6.3.: Auf den Wert 1 normierte differentielle THz-Transienten der vier bei 600 °C ausgeheilten Proben bei niedriger Anregungsdichte ($5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$). Die relativen Änderungen der Amplituden bei Zeitverzögerung Null betragen 0.35 ($T_g = 200 \text{ °C}$), 0.31 ($T_g = 235 \text{ °C}$), 0.34 ($T_g = 245 \text{ °C}$) und 0.45 ($T_g = 275 \text{ °C}$). Fitkurven sind ebenso eingezeichnet (durchgezogene Linien).

6.2.1. Der Fall niedriger Anregungsdichte

Für die bei 600 °C ausgeheilten Proben sind die THz-Transienten bei einer Anregungsdichte von $5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ – also im Fall niedriger Dichten, bei dem eine Sättigung von Störstellen vernachlässigt werden kann – verglichen. Zur besseren Übersicht sind die Transienten normiert dargestellt. Die relativen Transmissionsmaxima sind in der Bildunterschrift angegeben. Ferner sind die Maxima willkürlich auf eine Zeitverzögerung von Null gelegt.

Alle vier Transienten zeigen das gleiche Anstiegsverhalten sowie eine bis zu einer Zeitverzögerung von ca. 0.3 ps sehr ähnliche Relaxation. Hier wird die Begrenzung der Zeitauflösung sichtbar, die sich zu etwa 0.35 ps abschätzen läßt. Im weiteren Verlauf treten deutliche Unterschiede in den Relaxationsgeschwindigkeiten auf. Es wird die schon in Abbildung 5.3 festgestellte Tatsache reproduziert, daß freie Ladungsträger bei niedrigerer

Wachstumstemperatur schneller eingefangen werden. Noch einmal sei darauf hingewiesen, daß eine niedrigere Wachstumstemperatur mit einem höheren Überschuß an Arsen einhergeht. Für alle Transienten wird kein Langzeitsignal beobachtet. Vielmehr erholt sich die THz-Transmission insbesondere für die drei niedrigen Wachstumstemperaturen innerhalb von 4 ps vollständig⁴.

Mit dem oben beschriebenen Modell der dielektrischen Funktion lassen sich aus den Meßdaten weitere Informationen extrahieren. In dem betrachteten Grenzfall niedriger Anregungsdichte zerfällt die freie Ladungsträgerdichte monoexponentiell. Um aus den Daten Zeitkonstanten τ_μ für die Beweglichkeitsdauer zu erhalten, werden deshalb die Kurven numerisch mit der Annahme

$$\omega_p^2(t) \propto N_0 \exp(-t/\tau_\mu)$$

angepaßt. Die initiale Besetzungsdichte N_0 kann dabei aus der Intensität des Anregungspulses berechnet werden. Die Verwendung des linearen Absorptionskoeffizienten ist in diesem Dichtebereich gerechtfertigt. Unter den gegebenen Voraussetzungen sind die einzigen numerisch anzupassenden Parameter die Stoßrate Γ und die Zeitkonstante τ_μ . Die angepaßten Kurven sind in Abbildung 6.3 gezeigt. Ein Beginn dieser Kurven erst ab einer Zeitverzögerung von 0.6 ps vermeidet Komplikationen mit Effekten nicht thermischer Ladungsträger sowie mit der Zeitauflösung innerhalb der ersten 0.5 ps.

Die aus den Fits resultierenden Streuzeiten Γ^{-1} liegen deutlich unterhalb von 100 fs:

	200 °C	235 °C	245 °C	275 °C
Γ^{-1}	16 fs	18 fs	19 fs	50 fs

Man erkennt eine nur leichte Variation der ermittelten Streuzeiten τ_s von 16 bis 19 fs für die drei niedrigen Wachstumstemperaturen 200 °C, 235 °C und 245 °C. Verglichen mit Standard GaAs sind diese Streuzeiten signifikant schneller. Unter ähnlichen Anregungsbedingungen können für Standard GaAs Streuzeiten um 80 fs gemessen werden [155]. Die für die höchste Wachstumstemperatur gemessene Streuzeit von 50 fs liegt in diesem Bereich. Die Tendenzen der hier ermittelten Streuzeiten sind eindeutig: Bei geringerer Störstellendichte und As-Ausscheidungsichte wird die Streuzeit länger. Dies läßt den Schluß zu, daß sicherlich bei dem sehr defektreichen ausgeheilten LTG GaAs der drei niedrigeren Wachstumstemperaturen Streuprozesse an As-Ausscheidungen und Punktdefekten die Stoßrate Γ dominieren. Eine Verminderung der Defektdichte durch eine erhöhte Wachstumstemperatur T_g führt zu einer reduzierten Stoßrate. Dies ist ebenfalls in Einklang mit den Mobilitäten, wie sie aus den Simulationen resultieren. Der Zusammenhang von Streuzeit τ_s und Mobilität μ ist über

$$\mu = \frac{e}{m^* \tau_s}$$

⁴Das Gleiche gilt für die 275-°C-Probe auf einer Zeitskala von 6 ps (siehe Abbildung 6.7).

gegeben. Danach steigt die Mobilität für die drei niedrigeren Wachstumstemperaturen von $450 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ ($T_g = 200 \text{ °C}$) über $500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ ($T_g = 235 \text{ °C}$) auf $530 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ ($T_g = 245 \text{ °C}$). Erst bei $T_g = 275 \text{ °C}$ ist ein deutlicher Anstieg der Mobilität auf $1400 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ zu verzeichnen. Veröffentlichte Werte zur Mobilität in LTG GaAs zeigen eine große Streuung, die kaum allein mit unterschiedlichen Herstellungsbedingungen zu erklären ist. Mobilitäten bis zu $2000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ werden von Stellmacher et al. [156] über die Photoleitfähigkeit bestimmt. Nemeč et al. [157] vermessen die THz-Emission großflächiger LTG GaAs-Antennen. Sie erhalten Werte um $3000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$. Gute Übereinstimmung mit den hier erzielten Ergebnissen findet sich bei Hall-Messungen von Look et al. [41] mit Werten um $300 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ für eine Wachstumstemperatur von 200 °C . Ebenfalls niedrige Mobilitätswerte mit $170 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ werden von Zamdmer et al. [158] berichtet. Die niedrigeren Mobilitäten erscheinen nach den hier erzielten Resultaten vertrauenswürdiger, zumal bei Veröffentlichungen mit hohen Mobilitäten Unstimmigkeiten zu verzeichnen sind. So nimmt in [157] die Mobilität mit steigender Wachstumstemperatur ab. Eine Erklärung für höhere Mobilitäten bei geringerer Störstellendichte wird allerdings nicht gegeben.

Im Gegensatz zu den gerade zitierten Veröffentlichungen bieten hier die zusätzlich durchgeführten rein optischen Anrege/Abfrage-Experimente eine Vergleichsmöglichkeit mit den THz-Daten. Großen Einfluß auf die ermittelten Streuzeiten bei der durchgeführten Analyse haben die absolute Amplituden der THz-Signale. Über die Kalibration der Amplitude können dabei leicht systematische Fehler von einigen Femtosekunden in der Streuzeit auftreten. Dies hat u.a. zur Folge, daß kürzere Streuzeiten mit einer höheren Unsicherheit behaftet sind. Da jedoch auch der zweite Fitparameter – die Zeitkonstante τ_μ – mit der Streuzeit gekoppelt ist, können die rein optischen Anrege/Abfrage-Ergebnisse als Kontrolle herangezogen werden. Die resultierenden Zeitkonstanten τ_μ sind in Abbildung 6.4 graphisch gegen die Wachstumstemperatur zusammen mit den Zeitkonstanten von Abbildung 5.3 dargestellt. Die zwei doch sehr verschiedenen Methoden liefern bemerkenswert ähnliche Zeitkonstanten. Dies bestätigt zum einen die Tauglichkeit der hier eingeführten THz-Abfragetechnik. Damit erscheinen auch die Mobilitätswerte als sinnvoll. Mit den hohen Mobilitäten aus [157, 156] sind die Transienten auch unter Annahme von systematischen Fehlern in der Amplitude von 20 % nicht zu erklären⁵. Die Abhängigkeit der Zeitkonstante gleicht tendenziell der Abhängigkeit in [57], wie es bereits in Abschnitt 5.1.1 festgestellt wurde. Andererseits ist es erwähnenswert, daß keine Zeiten für die 200 °C -Probe ermittelt werden, die den unterhalb der Bandlücke gemessenen Zeiten von ca. 1 ps (siehe beispielsweise Seite 82) entsprechen. Diese mit der Relaxation von Ladungsträger von Urbach-Tail-Zuständen in tiefere Einfangzustände in Verbindung gebrachte Dynamik ist mit einem THz-Abtastpuls nicht zu beobachten. Offensichtlich sind

⁵Ein Fehler in der Amplitude der Signale von 20 % wird an dieser Stelle willkürlich angenommen. Im Experimente liegt der Fehler deutlich unter diesem Wert.

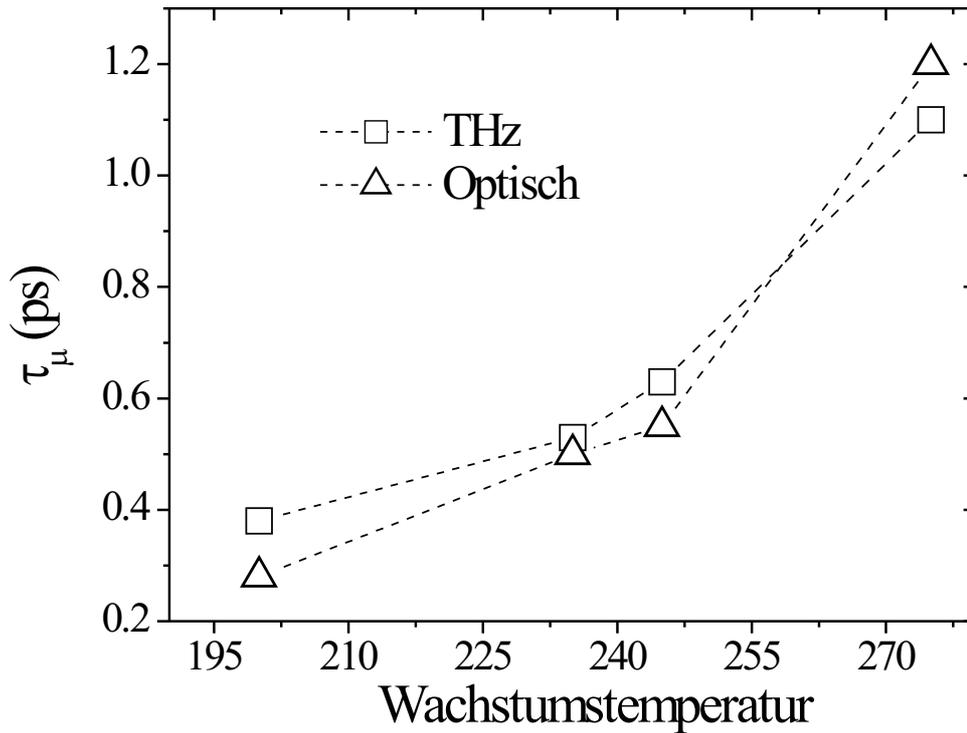


Abbildung 6.4.: Ergebnisse der Zeitkonstanten τ_μ unter Annahme eines exponentiellen Zerfalls der freien Ladungsträger und Anpassung der Transienten mithilfe des Drude-Modells. Ebenfalls gezeigt sind die entsprechenden Zeitkonstanten von Kapitel 5.1.1 der rein optischen Messungen.

die sich in Urbach-Tail-Zuständen befindenden Ladungsträger in ihrer Mobilität so weit eingeschränkt, daß sie nicht zur THz-Transmissionsänderung beitragen. Dies läßt den Schluß zu, daß die Mobilitätskanten der untersuchten LTG GaAs-Proben energetisch in der Nähe der Bandlücke von Standard GaAs liegen. An dieser Stelle findet auch die Bezeichnung der Zeitkonstanten τ_μ mit dem Index μ für die Mobilität (oder synonym Beweglichkeit) ihre Berechtigung. Zu diesen Messungen sei abschließend erwähnt, daß es auch hier im Rahmen der Meßgenauigkeit wie schon bei der bei 700 °C ausgeheilten Probe kein Anzeichen einer langsameren Relaxationszeit für leichte Löcher in Einfangzustände gibt.

6.2.2. Der Fall hoher Anregungsdichte

Das schon in Abbildung 6.1 erkennbare nichtexponentielle Verhalten des differentiellen Transmissionssignals wird auch für die bei 600 °C ausgeheilten Proben sehr ausgeprägt, sofern die Anregedichte stark erhöht wird. Dies verdeutlicht Abbildung 6.5, in der ein

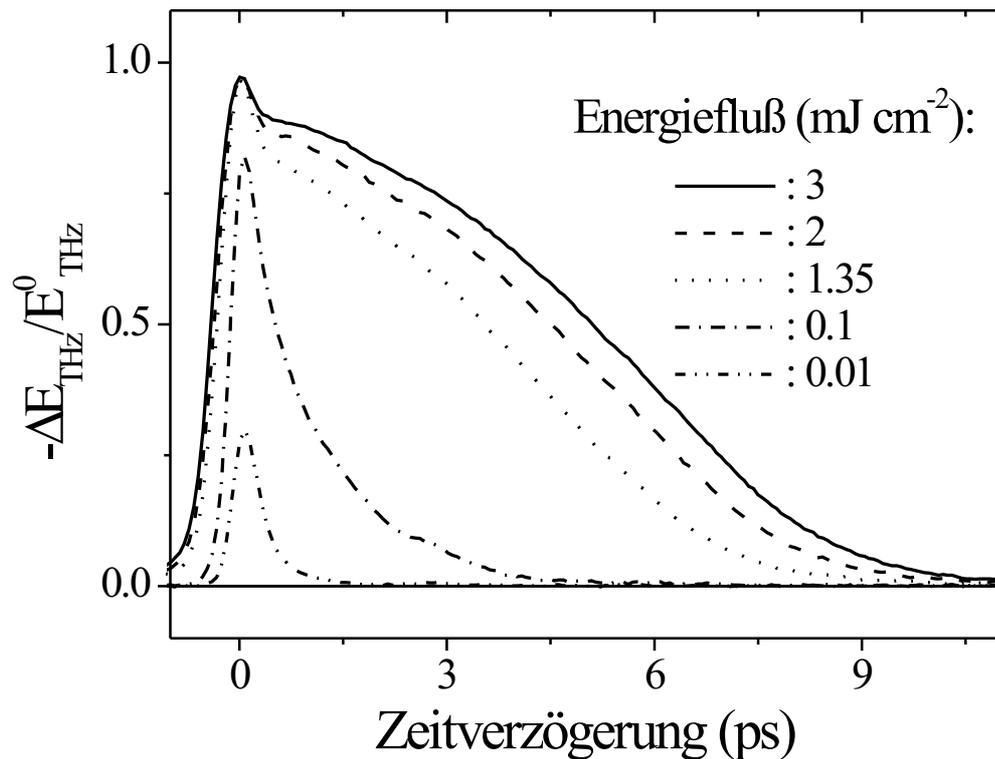


Abbildung 6.5.: Differentielle THz–Transmissionssignale der 200 °C–Probe bei einer Variation der Anregeleistung über zwei Größenordnungen.

Satz von transienten THz–Signalen der optimierten, bei $T_g = 200$ °C gewachsenen Probe gezeigt ist. Dabei unterscheiden sich die Energieflußdichten mit 0.01 mJ cm⁻² bis zu 3 mJ cm⁻² um mehr als zwei Größenordnungen. Nimmt man eine lineare Absorption auch für die höchste Flußdichte von 3 mJ cm⁻² an – was sicherlich nicht gerechtfertigt ist –, so kann die entsprechende Anregungsdichte zu 1.5×10^{20} cm⁻³ abgeschätzt werden. Mit Ausnahme der niedrigsten Anregungsdichte von 5×10^{17} cm⁻³, bei der die Annahme einer linearen Absorption noch berechtigt ist, übersteigt die Anregungsdichte jeweils die Dichte von As_{Ga} –Störstellen sowie auch die Dichte der As –Ausscheidungen. Die vier Kurven mit hohen Anregungsdichten zeigen zum Zeitnullpunkt relative Transmissionsänderungen von über 75 % bis nahe zu 100 %. Der LTG GaAs–Film hat also kurzzeitig metallischen Charakter. Es ist erkennbar, daß die Dynamik mit der Anregungsdichte variiert. Eine Abweichung vom monoexponentiellen Verhalten kann insbesondere dadurch belegt werden, daß die einzelnen Kurven sich nicht mehr durch Verschieben entlang der Zeitachse zum Überlapp bringen lassen wie es in Abbildung 6.2 für niedrige Dichten demonstriert ist. Der nichtexponentielle Verlauf der Kurven ist also im Falle hoher Anregungsdichten nicht allein auf eine Sättigung des Signals zurückzuführen sondern

auch auf eine Blockade von Relaxationskanälen. In der einfachsten Vorstellung findet eine Sättigung von Einfangzentren statt. Der Signalabfall ist so nicht mehr allein durch den Einfang freier Ladungsträger bestimmt, sondern wesentlich durch die Dynamik der Entleerung der Einfangzentren. Allerdings relaxiert das Signal selbst bei der höchsten Energieflußdichte so gut wie vollständig innerhalb von 10 ps. Dies schließt eine effektive Blockade von Relaxationskanälen über eine deutlich längere Zeitspanne aus. Es ist ferner kein residueller Signalanteil nach 12 ps zu verzeichnen. Auch ein thermischer Einfluß in Form einer Brechungsindexänderung, der eine längere Zeit detektierbar wäre, kann demnach nicht beobachtet werden.

Ein mit in Abbildung 6.5 vergleichbarer Satz differentieller THz-Transienten ist im oberen Teil der Abbildung 6.6 für die bei 235 °C hergestellte Probe zu sehen. Auch hier ist die Energieflußdichte des Anregepulses zwischen 0.01 mJ cm^{-2} und 3 mJ cm^{-2} variiert, was unter Annahme von linearer Absorption Anregungsdichten zwischen $4.5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ und $1.4 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ Ladungsträgern entsprechen würde. Die Daten zeigen die gleichen Merkmale wie die Transienten der 200 °C-Probe: Eine einfache Analyse durch ein zeitliches Verschieben der Kurven ist aufgrund der Sättigungseffekte von Einfangzentren nicht möglich und auch die Zeitskala, auf der sich die Dynamik der freien Ladungsträger abspielt, ist kaum unterschiedlich.

Um aus diesen Daten den zeitlichen Verlauf der Besetzungsdichten freier Ladungsträger mithilfe des Drude-Modells zu extrahieren, wird die Streuzzeit Γ^{-1} als konstant angenommen. Für Standard GaAs sind Veröffentlichungen bekannt, die den Verlauf der Streuzzeit mit der Ladungsträgerdichte näher untersuchen [159]. Hier ergeben sich gegenläufige Effekte. So nimmt z.B. die Streuzzeit aufgrund einer erhöhten Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung einerseits ab, andererseits wird dieser Effekt durch Abschirmeffekte zumindest teilweise kompensiert. Eine drastische Verkürzung der Streuzzeit in den Bereich der für LTG GaAs ermittelten Streuzeiten ist nicht zu erwarten. Diese sind – vor allem bei den hohen Defektdichten – im Falle einer niedrigen Anregungsdichte deutlich kürzer als in Standard GaAs. Es erscheint damit nicht sinnvoll, die Ergebnisse von Standard GaAs zu übernehmen. Vielmehr ist hier in erster Näherung eine konstante Streuzzeit realistischer, da als deren Ursache die von der Anregungsdichte unabhängige Dichte der Störstellen anzusehen ist.

Für die 235 °C-Probe ergeben sich mit einer Streuzzeit von $\Gamma^{-1} = 18 \text{ fs}$, wie sie auf Seite 117 ermittelt wurde, die freien Ladungsträgerdynamiken im unteren Teil der Abbildung 6.6. Es ist eine semilogarithmische Darstellung gewählt. Die numerisch berechneten Daten beginnen mit einer Zeitverzögerung von 0.7 ps. Zu früheren Zeitverzögerungen verhindern wieder Effekte heißer Ladungsträger und die begrenzte Zeitauflösung die Berechnung der Ladungsträgerdichten. Für eine Energiefluß von 0.01 mJ cm^{-2} zerfällt die Ladungsträgerdichte mit $\tau_{\mu} = 0.5 \text{ ps}$; es wird also das Resultat aus Abbildung 6.3 reproduziert. Bei Erhöhung des Energieflusses (bzw. der Anregungsdichte) verlangsamt sich

der Zerfall und die Dynamik wird zunehmend nichtexponentiell.

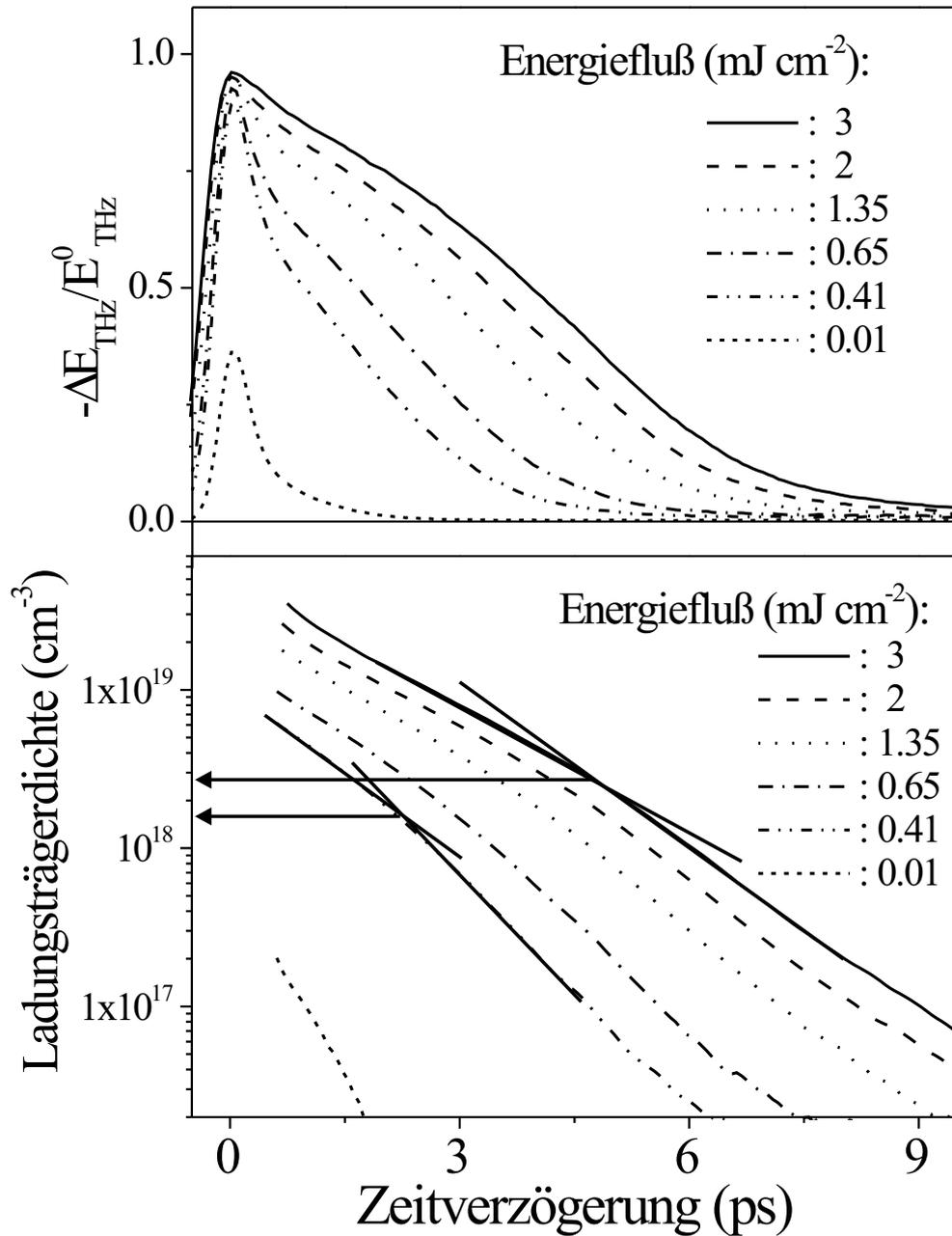


Abbildung 6.6.: Oberer Bildteil: Differentielle THz-Transmissionssignale der bei 235 °C gewachsenen Probe. Unterer Bildteil: Zeitabhängigkeit der freien Ladungsträgerdichte der Probe errechnet aus dem Drude-Modell in semilogarithmischer Darstellung.

Dieses nichtexponentielle Verhalten ist insbesondere dadurch gekennzeichnet, daß jeweils ein Knick in den Kurven eine anfänglich langsamere Dynamik von einer schnelleren Dynamik im späteren Verlauf trennt. Auf der Zeitachse schiebt dieser Knick von einer Zeitverzögerung von etwa 2.5 ps für 0.41 mJ cm^{-2} bis zu 5 ps für die höchste Anregungsdichte. Für diese beiden Kurven sind die Knicks durch den Schnittpunkt von jeweils zwei Geraden, die die Kurven approximieren, in der Abbildung markiert. So lassen sich den Transienten hoher Anregungsdichte grob zwei Zeitkonstanten zuordnen. In einem einfachen Bild liegt der Schluß nahe, daß eine schnellere Zeitkonstante im späteren Verlauf der Transiente aus dem Ende der Sättigung der Einfangzustände resultiert. Diese Interpretation wird durch die Beobachtung gestützt, daß sich die Kurvenknicks alle im Bereich einer Ladungsträgerdichte von $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ befinden, wie aus den Schnittpunkten der Geraden in Abbildung 6.6 ersichtlich ist. Dies korrespondiert zu der erwarteten Defektdichte von As_{Ga} in diesem Material⁶. Dies ist ein Indiz für eine wichtige Rolle von As_{Ga}^+ im Einfang- und Rekombinationsprozeß der optisch generierten Ladungsträger.

Zusätzlich zeigen die Messungen ebenfalls ein komplexes Bild der Relaxationsdynamik auf, das weiterer Klärung bedarf. So ist beispielsweise die zweite Zeitkonstante, die sich unterhalb einer Ladungsträgerdichte von $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ einstellt, langsamer als im Niederdichtefall. Dies zeigt der direkte Vergleich der Ladungsträgerdichten in Abbildung 6.6 mit der 0.01 mJ cm^{-2} -Transiente. Es ist ein Anstieg der Zeitkonstanten von 0.5 ps ($0.01 \text{ mJ cm}^{-2} = 5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ Ladungsträger) über 0.9 ps (0.41 mJ cm^{-2}) auf 1.3 ps (3 mJ cm^{-2}) zu verzeichnen. Eine mögliche Ursache der langsameren Relaxation nach Unterschreiten der Defektdichte deutet auf eine weiter bestehende merkliche Besetzung der Einfangzentren auch im weiteren Verlauf der Relaxation freier Ladungsträger hin. Aufgrund der damit nicht für freie Ladungsträger zugänglichen Einfangzentren reduziert diese Besetzung die Einfangrate. Ein zweiter Punkt, auf den später noch einmal eingegangen wird, betrifft die Erwartung, die man aufgrund der in Kapitel 5.3 und auch in [124] gemessenen Rekombinationszeit von $\tau_r = 11.5 \text{ ps}$ an die Dynamik hat. Im Falle einer Entleerungszeit tiefer Störstellen auf dieser Zeitskala und mit Blick auf eine viel kleinere Störstellendichte als der initialen freien Ladungsträgerdichte ist mit einer deutlich langsameren Dynamik zu rechnen als sie beobachtet wird. Die Ladungsträgerrekombination muß im Falle hoher Anregungsdichten demnach schneller von statten gehen als bei den relativ niedrigen Anregungsdichten von Kapitel 5. Dieser Schluß läßt sich im übrigen schon aus den reinen Transmissionsdaten gewinnen, die ja eine vollständige Erholung der THz-Transmission innerhalb von 12 ps für LTG GaAs nahe optimierter Herstellungsbedingungen zeigen. Dies ist gleichbedeutend mit der Aussage, daß nach 12 ps keine freien Ladungsträger mehr detektiert werden können. Eine Rekombinationszeit von über 10 ps kann bei den gegebenen Dichten diese Tatsache nicht erklären.

⁶Siehe hier auch Seite 60, wo die Untersuchung des Oberflächenfeldes Hinweise auf eine Störstellendichte von $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ bis $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ergab.

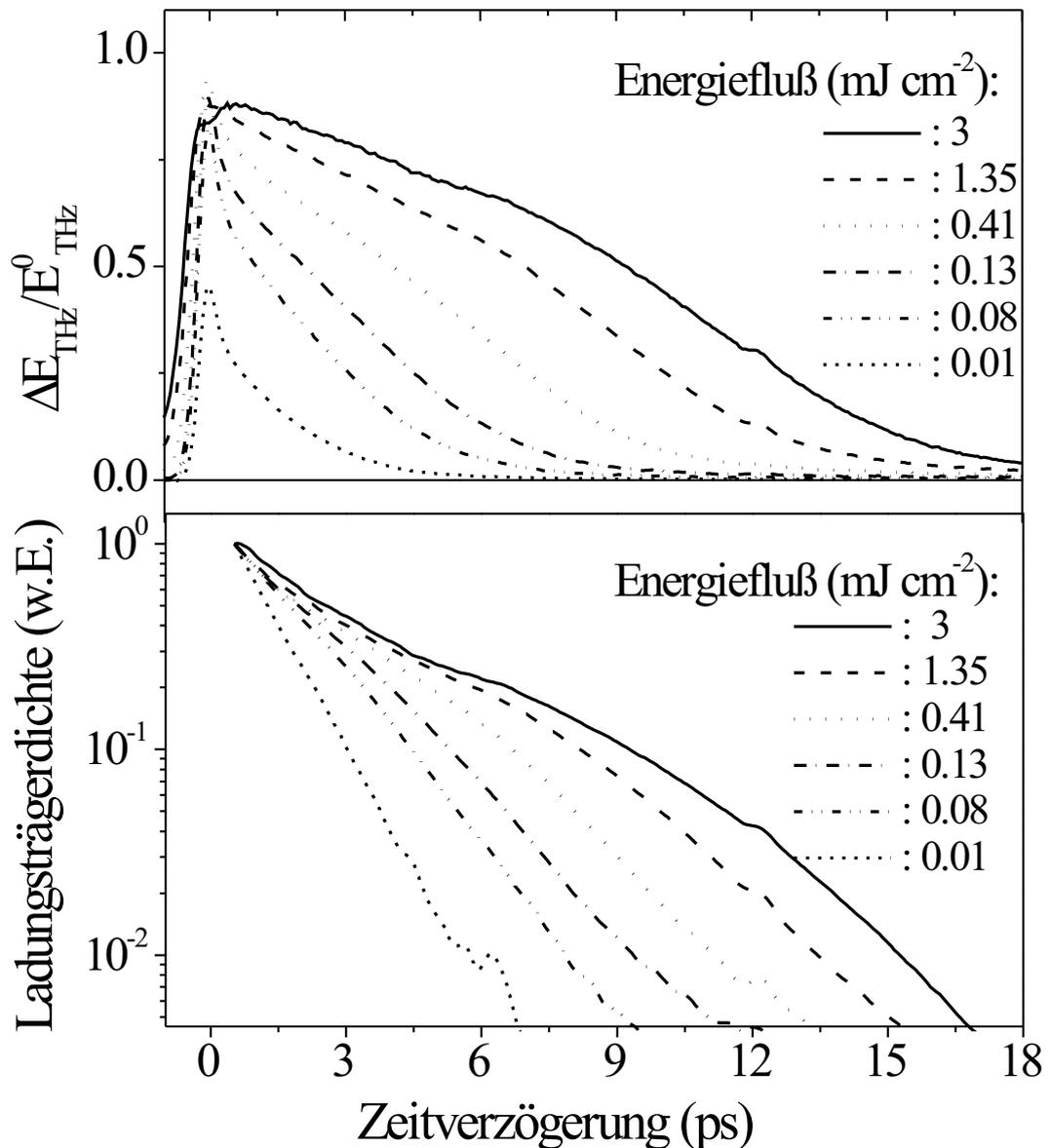


Abbildung 6.7.: Oberer Bildteil: Differentielle THz-Transmissionssignale der bei 275 °C gewachsenen Probe. Unterer Bildteil: Zeitabhängigkeit der freien Ladungsträgerdichte der Probe errechnet aus dem Drude-Modell in semilogarithmischer Darstellung und auf eins normiert.

Die Meßdaten zur Relaxationsdynamik freier Ladungsträger an der 275 °C-Probe vervollständigen die vorgestellten Untersuchungen. Sie sind in Abbildung 6.7 dargestellt: Der obere Teil zeigt wieder die relativen THz-Transmissionsänderungen. Qualitativ sind

im wesentlichen die gleiche Merkmale wie bei den LTG GaAs-Proben mit niedrigerer Wachstumstemperatur zu beobachten. Unterschiede sind dagegen speziell um den Zeitnullpunkt erkennbar. Es wird nicht, wie aufgrund des einfachen Drude-Modells zu erwarten ist, die größte Signalmodulation bei der höchsten Energieflußdichte erreicht sondern bereits bei 0.41 mJ cm^{-2} . Die Ursache hierfür ist unklar. Im weiteren Verlauf ist zu beobachten, daß die Relaxation der Ladungsträgerbesetzung langsamer erfolgt als in den beiden bisher gezeigten Proben. Dies konnte schon in den Experimenten mit niedrigen Dichten auf den Seiten 116 und 74 festgestellt werden und korreliert mit der geringeren Störstellen- und As-Ausscheidungsichte. Damit ist auch die Dynamik über eine längere Zeit beobachtbar: Nach ca. 20 ps können keine freien Ladungsträger mehr detektiert werden. Die Transiente mit der höchsten Anregungsdichte zeigt bei 12.5 ps ein erkennbares kleines Zusatzsignal. Dieses Signal geht auf eine Anregung durch einen schwachen optischen Rückreflex im Aufbau zurück.

Im unteren Teil von Abbildung 6.7 sind die aus den Messungen extrahierten freien Ladungsträgerdichten semilogarithmisch aufgetragen. Sie sind auf den Wert eins bei einer Zeitverzögerung von 0.7 ps normiert. Die Streuzeit Γ^{-1} ist wieder dichteunabhängig entsprechend dem Resultat bei niedrigen Dichten zu 50 fs angenommen worden. Für die niedrigste Anregungsdichte wird das monoexponentielle Verhalten mit einer Zeitkonstanten von $\tau_{\mu} = 1.1 \text{ ps}$ reproduziert. Für steigende initiale Dichten wird ein nichtexponentieller Verlauf der Kurven immer deutlicher. Er ist ausgeprägter als bei den Proben mit niedriger Wachstumstemperatur. Die Separation in zwei annähernd monoexponentielle Bereiche für die drei höchsten Anregungsdichten ist kaum noch möglich. Im Gegensatz zu den bisher gezeigten Proben ist hier bei diesen sehr hohen Energieflüssen innerhalb der ersten 5 ps ein schnellerer Signalabfall zu erkennen. Erst dann verlangsamt sich die Dynamik, um nach einer Zeitverzögerung von 7 bis 9 ps wieder schneller zu werden.

Die zwei Transienten mit den Energieflußdichten von 0.08 mJ cm^{-2} und 0.13 mJ cm^{-2} lassen sich dagegen wie bei der $235 \text{ }^{\circ}\text{C}$ -Probe aufteilen. In Abbildung 6.8 sind die nicht normierten Ladungsträgerdichten für die drei Transienten der Energieflüsse 0.08 mJ cm^{-2} , 0.13 mJ cm^{-2} und 0.41 mJ cm^{-2} aufgetragen. Ein Abknicken der Kurven der niedrigeren Energieflüsse kann bei einer Ladungsträgerdichte von ca. $5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ermittelt werden. Im kleineren Wert für den Schnittpunkt der Geraden spiegelt sich – konsistent zur bisherigen Interpretation – die geringere Dichte der Einfangzentren bei einer Wachstumstemperatur von $275 \text{ }^{\circ}\text{C}$ wider.

Bei einem Energiefluß von 0.41 mJ cm^{-2} ist die Annäherung der freien Ladungsträgerdichte durch zwei Geraden nicht möglich. Primär der anfänglich schnelle Abfall in den ersten Pikosekunden verhindert dies. Über die Ursache dieser zusätzlichen Signatur muß spekuliert werden. Möglicherweise sind an dieser Stelle Unzulänglichkeiten des verwendeten Modells verantwortlich. Berücksichtigt man die Tatsache, daß die Streuzeit bei der $275 \text{ }^{\circ}\text{C}$ -Probe in die Nähe von Streuzeiten in Standard GaAs gelangt, so ist

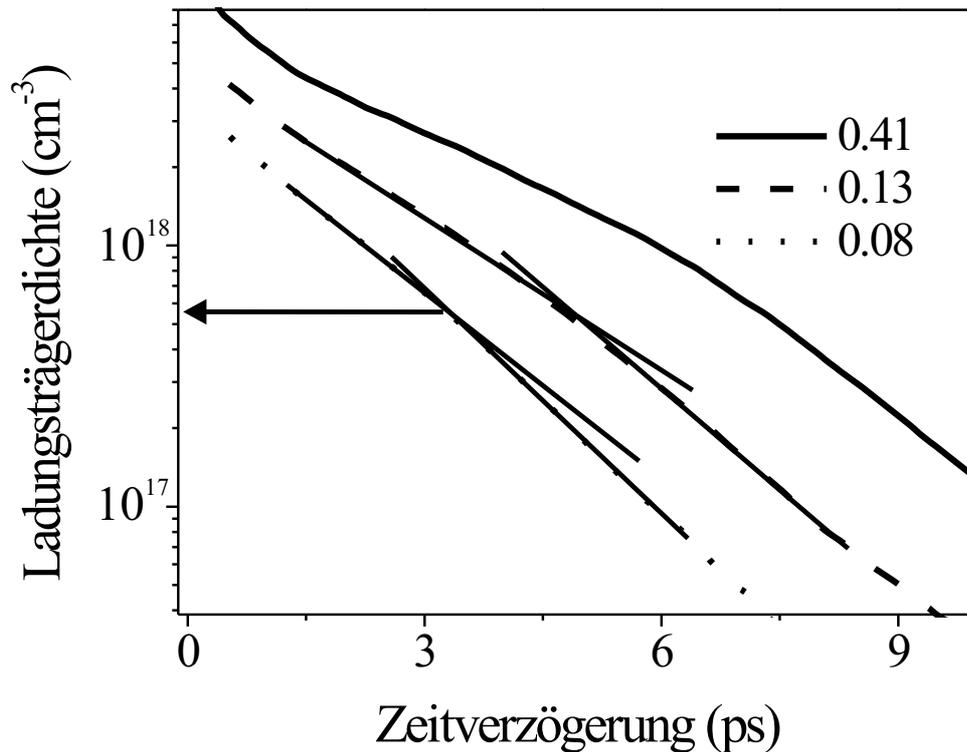


Abbildung 6.8.: Freie Ladungsträgerdichten der Energieflüsse 0.08 mJ cm⁻², 0.13 mJ cm⁻² und 0.41 mJ cm⁻² in semilogarithmischer Darstellung.

die Annahme einer konstanten Streuzeit eine sicherlich unbefriedigende Näherung. Wird die Streuzeit nicht mehr primär durch Defekte wie Störstellen und As-Ausscheidungen bestimmt, so ist eine dichte- und somit zeitabhängige Streuzeit anzunehmen. Die momentane Datenlage läßt eine sinnvolle Mitnahme der Dichteabhängigkeit nicht zu. Hierzu wäre sicherlich ein mikroskopisches Modell notwendig.

Wie bereits erwähnt, ist bei den maximalen Energieflüssen in diesen Experimenten die Annahme einer linearen Absorption des Anregepulses nicht gerechtfertigt. Dies läßt sich auch im Modell verifizieren. Für zwei der vier untersuchten Proben (245 °C und 275 °C) sind beispielhaft die initialen Anregungsdichten so wie sie sich aus dem Drude-Modell ergeben in Abbildung 6.9 als Funktion der nominellen Anregungsdichte aufgetragen. Diese ergibt sich unter Annahme einer linearen Absorption. Da alle Transienten der freien Ladungsträgerdichten erst nach einer Zeitverzögerung von 0.7 ps beginnen, müssen diese, um einen Wert am Zeitnullpunkt zu erhalten, extrapoliert werden. Dies läßt sich bei den drei Proben bei 200 °C, 235 °C und 245 °C aufgrund des exponentiellen Verhaltens in den ersten 3 ps problemlos durchführen. Für die 275 °C-Probe wird dagegen der schnelle initiale Anteil in den ersten Pikosekunden nicht berücksichtigt. Für alle vier Proben

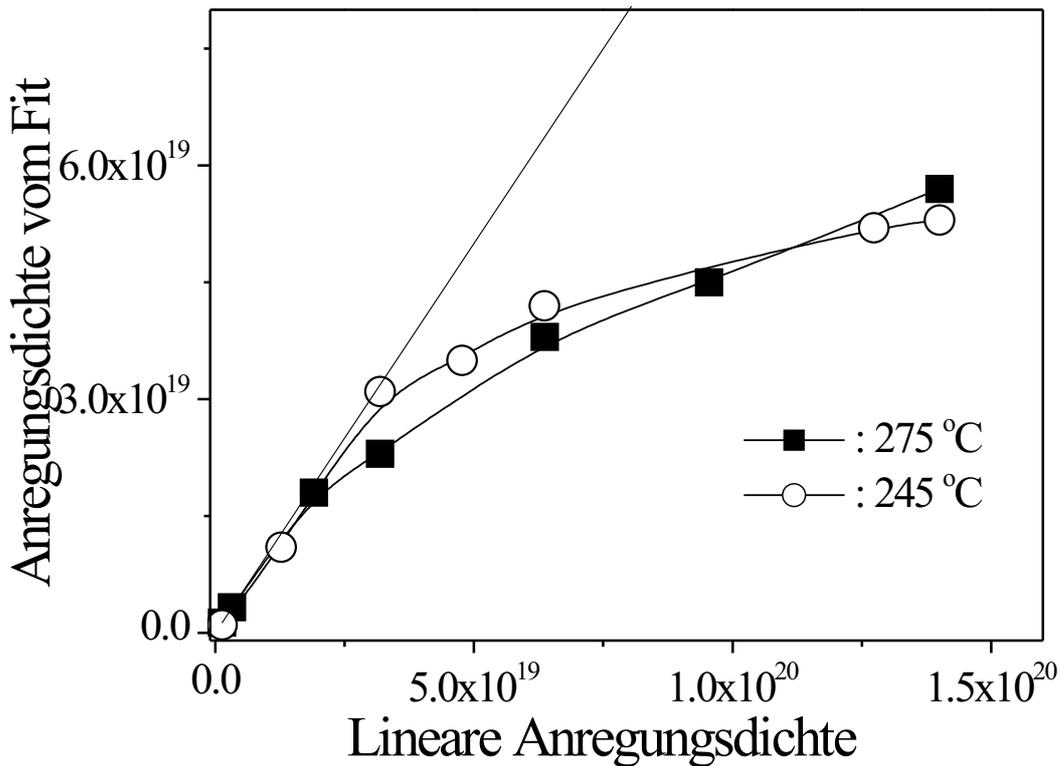


Abbildung 6.9.: Vergleich der freien Ladungsträgerdichte, wie sie aus einer Extrapolation zum Zeitnullpunkt aus dem Drude-Modell resultiert mit der nominellen Ladungsträgerdichte für die 245 °C- und die 275 °C-Probe. Die Gerade kennzeichnet den Fall der linearen Absorption.

ergeben sich ähnliche Ergebnisse: Oberhalb von $2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ Ladungsträgern weichen die extrapolierte (wirkliche) und die nominelle Dichte voneinander ab. Hier wird, wie es zu erwarten ist, die Absorption des Anregepulses nichtlinear. Die eingezeichnete Gerade gibt den linearen Verlauf an. Die gute Übereinstimmung der wirklichen mit der linearen Absorption für niedrige Dichten (Punkte auf der Geraden) resultiert teilweise aus der Vorgehensweise: Im Niederdichtefall von Abschnitt 6.2.1 ist die Anregungsdichte direkt als Meßwert in die Simulation eingegangen.

Als letzter Punkt soll noch einmal die Dynamik zu späten Zeiten aufgegriffen werden. Betrachtet man die Dynamik im unteren Teil von Abbildung 6.7, so ist wie bei der 235 °C-Probe festzustellen, daß die Relaxationszeiten nach dem Knick nicht die Zeitkonstante $\tau_{\mu} = 1.1 \text{ ps}$ des Falls niedriger Dichte erreichen. Die Interpretation einer teilweisen Besetzung von Einfangzentren, die Ursache einer langsameren Dynamik sein können, wirft wieder die Kernfrage nach einer endgültigen Rekombination der Ladungsträger

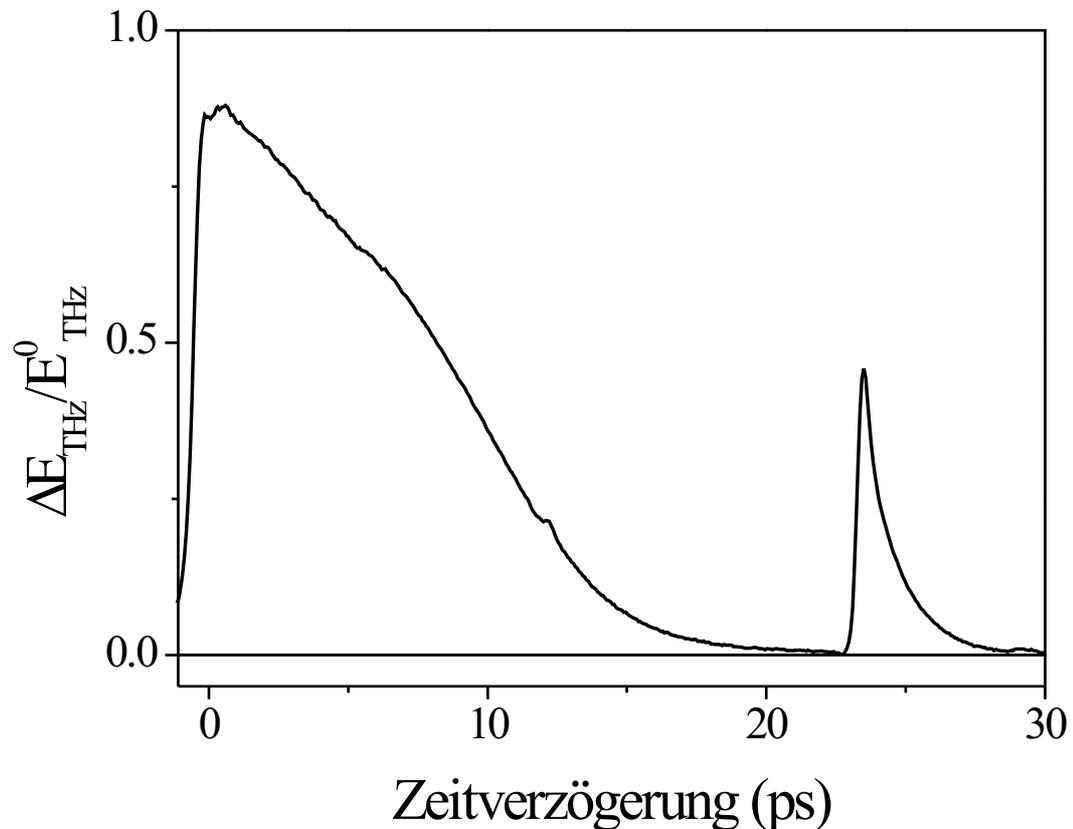


Abbildung 6.10.: Differenzielles THz-Transmissionssignal der 275 °C-Probe mit einer Energieflußdichte von 2 mJ cm^{-2} über ein Zeitfenster von 30 ps. Ein Reflex an der Saphirrückseite ist verantwortlich für die Anregung nach 23 ps.

auch aus diesen Einfangzentren auf. Abbildung 6.10 zeigt ein erweitertes Zeitfenster von über 30 ps eines differentiellen THz-Signals der 275 °C-Probe. Der Energiefluß des Anregepulses beträgt 2 mJ cm^{-2} . Nach 23 ps ist eine erneute Anregung aufgrund eines zweiten schwachen optischen Pulses zu erkennen. Er resultiert aus einem Rückreflex vom Saphirsubstrat und besitzt weniger als 1 % der Energie des ersten Pulses. Dies verdeutlicht noch einmal die hohe Sensitivität des THz-Abtastpulses auf freie Ladungsträger. Die Relaxationsdynamik des zweiten Signals ist mit einer Zeitkonstanten von 1.1 ps identisch mit der Relaxationsdynamik bei gleicher Pulsenergie ohne intensiven Vorpuls. Eine teilweise Blockade der Relaxation kann demnach nicht nachgewiesen werden. Die relevanten Einfangzustände scheinen innerhalb einer Zeitskala von 20-25 ps vollständig erholt.

6.3. Diskussion

Veröffentlichte Untersuchungen, die den Messungen in diesem Kapitel am nächsten kommen, sind von Sosnowski et al. [65] durchgeführt worden. Ein Vergleich mit den dort publizierten Ergebnissen, die im folgenden kurz skizziert werden, bietet sich deshalb an.

In Referenz [65] sind ebenfalls Sättigungsexperimente analysiert, die jedoch auf einer rein optischen Anrege/Abfrage-Technik (Laserenergien: 1.55 eV/1.46 eV) basieren. Es werden LTG GaAs-Proben einer Wachstumsserie von 200 °C bis 280 °C mit $T_a = 600$ °C untersucht. Die Transienten zu verschiedenen Anregungsdichten der 200 °C-Probe werden mit dem Modell auf der linken Seite von Abbildung 2.8 angepaßt. Es läßt sich einfach durch eine Ratengleichung für die freie Ladungsträgerdichte N

$$\frac{\partial N}{\partial t} = -\frac{1}{\tau_e} \left\{ 1 - \frac{n}{N_e} \right\} N + G(t) \quad (6.3)$$

und eine Ratengleichung für die Besetzungsdichte n der Einfangzentren

$$\frac{\partial n}{\partial t} = -\frac{1}{\tau_r} n + \frac{1}{\tau_e} \left\{ 1 - \frac{n}{N_e} \right\} N \quad (6.4)$$

beschreiben. Es gehen Einfangzeit τ_e , Rekombinationszeit τ_r und die Dichte der Einfangzentren N_e in das Modell ein. Über die Zeitfunktion $G(t)$ läßt sich die Pulsform in erster Näherung berücksichtigen. Bei einer Sättigung der Einfangzentren verlangsamt sich die Relaxation der freien Ladungsträger in diesem Modell unter zwei Bedingungen:

1. Die Rekombinationszeit τ_r ist langsamer als die Einfangzeit τ_e und
2. die Anregungsdichte N_0 ist größer als die Dichte der Einfangzentren N_e .

Im Extremfall, wenn also τ_r viel langsamer als τ_e und N_0 deutlich größer als N_e ist, nimmt die Ladungsträgerdichte linear in der Zeit ab. Die mit diesem Modell in [65] erzielten Ergebnisse lassen sich wie folgt zusammenfassen: Das Modell reproduziert die gemessene Daten ⁷. Für die 200 °C-Probe ist τ_r mit 10 ps erheblich langsamer als τ_e mit 0.4 ps. Mit steigender Wachstumstemperatur werden wie erwartet die Einfangzeiten länger. Gleichzeitig verkürzen sich die Rekombinationszeiten, die bei den höchsten Wachstumstemperaturen dann deutlich unter den Einfangzeiten liegen.

Die Ergebnisse sind zweifelhaft: Zum einen kann eine Verlangsamung der Relaxation innerhalb dieses Modells nur dann beobachtet werden, wenn $\tau_r > \tau_e$ gilt, was bei drei von vier Proben in Referenz [65] nicht der Fall sein soll. Zum anderen wäre eine schneller werdende Rekombinationszeit mit geringerer Defektdichte erstaunlich.

Der Versuch, die in diesem Kapitel gezeigten Messungen mit den Ratengleichungssystem (6.3) und (6.4) zu erklären, war nicht erfolgreich. Dies ist der Fall, obwohl mit τ_r

⁷Leider sind nur die Daten einer Probe (200 °C) gezeigt.

und N_e zwei weitere freie Parameter zu Verfügung stehen. Eine Anpassung von Kurven verschiedener Anregungsintensitäten mit genau einem Parametersatz wäre das Idealergebnis. Hierbei sind jedoch nicht akzeptable Resultate erzielt worden. Läßt man dagegen eine Variation der Dichte der Einfangzentren N_e mit der Anregungsdichte zu, so erhält man relativ gute Fitkurven. Die Dichte N_e steigt dann allerdings bei den höchsten Anregungsdichten auf Werte um $5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, liegt also deutlich oberhalb der erwarteten 10^{18} cm^{-3} . Eine Erhöhung der Dichte N_e mit steigender Anregungsdichte ist in einem engen Rahmen plausibel, da über die Anregung von z.B. As_{Ga}^0 zusätzliche Einfangzentren generiert werden könnten. Allerdings können Werte von $N_e = 5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ so nicht erklärt werden. Insgesamt muß festgestellt werden, daß das getestete Ratengleichungssystem unzureichend ist. Die Messungen widersprechen so in fast allen Punkten denen aus [65]. So ist die Zeitskala, auf der sich die freie Ladungsträgerdynamik der 275 °C–Probe abspielt, mit 20 ps deutlich länger als die 10 ps–Zeitskala beispielsweise der 200 °C–Probe. Die Behauptung, daß die Rekombination der Ladungsträger bei höherer Wachstumstemperatur schneller wird, ist so kaum haltbar.

Vergleicht man die Resultate mit Sättigungsexperimenten, die in [69] an nicht ausgeheiltem LTG GaAs durchgeführt wurden, so erkennt man signifikante Unterschiede. In [69] wird eine induzierte Absorption bei hohen Anregungsdichten als Störstellensättigung interpretiert. Ihr kann eine Zeitkonstante über mehrere hundert Pikosekunden zugeordnet werden. Die offensichtlich viel effizientere Ladungsträgerrekombination in ausgeheiltem LTG GaAs deutet darauf hin, daß zumindest bei hohen Anregungsdichten As–Ausscheidungen eine entscheidende Rolle einnehmen. Hier muß wieder auf die bisher einzige Veröffentlichung zu einer Theorie der Ladungsträgerrekombination in LTG GaAs von Ruda et al. [64] hingewiesen werden, die eine Rekombinationszeit proportional zum mittleren Abstand der As–Ausscheidungen voraussagt.

Mit Blick auf die Anwendung des Materials in optoelektronischen Bauelementen ist festzustellen, daß sich die positiven Eigenschaften von LTG GaAs auch unter extremen Anregungsbedingungen nur geringfügig verschlechtern. Dies bezieht sich insbesondere darauf, daß sich eine Blockade der Relaxationskanäle nur über eine Zeit von ca. 10 ps beobachten läßt. Des Weiteren macht die Zunahme der Mobilität mit sinkender Störstellendichte eine Optimierung des Materials für die jeweilige Anwendung erforderlich. Eine schmalbandige Antenne, deren Emission bei einem Terahertz liegt, wird mit LTG GaAs, dessen Mobilität hoch ist und bei dem die Relaxationszeit eine genügend große Bandbreite gewährleistet, eine höhere Emissionsleistung erbringen als mit LTG GaAs, das speziell auf kurze Relaxationszeiten optimiert ist und eine deutlich geringere Mobilität aufweist.

7. Resumée und Ausblick

MBE gewachsene GaAs-Materialien, deren Wachstumstemperaturen T_g unterhalb von 300 °C liegen, haben in den letzten 10 Jahren das Interesse zahlreicher Forschergruppen aufgrund ihres Potentials für ultraschnelle optoelektronische Anwendungen geweckt. Die Wachstumstemperaturen sind gegenüber dem üblichen MBE-Wachstum von GaAs bei 600 °C (Standard GaAs) stark reduziert. Aufgrund dieser Besonderheit findet ein erhöhter Einbau von Arsenatomen statt. Das Material weist eine nichtstöchiometrische Zusammensetzung mit einem As-Überschuß bis zu 1.5 % auf. Durch eine anschließende Temperung ändern sich die strukturellen und physikalischen Eigenschaften von LTG GaAs nachhaltig. Eine Reduktion der Punktdefektdichte der Form As_{Ga} erfolgt durch Bildung von As-Ausscheidungen während der Temperung. Die in dieser Arbeit gezeigten TEM-Aufnahmen weisen die kristalline Struktur sowohl der GaAs-Matrix als auch der Ausscheidungen nach. Das so hergestellte Material hat zum einen einen hohen spezifischen Widerstand, der nur wenig unter dem von Standard GaAs liegt; zum anderen betragen die Lebensdauern optisch generierter Ladungsträger weniger als eine Pikosekunde. Dies sind zwei wesentliche Voraussetzungen für die Verwendung von LTG GaAs als photoleitendes Material in ultraschnellen optoelektronischen Schaltern. Ein Einsatzgebiet ist z.B. die Erzeugung kohärenter elektromagnetischer Strahlung im THz-Bereich. Die Tauglichkeit von LTG GaAs für solche oder ähnliche Anwendungen ist jedoch nicht allein durch einen hohen spezifischen Widerstand und eine kurze Lebensdauer freier Ladungsträger gegeben. Vielmehr können Relaxationszeiten eingefangener Ladungsträger die Tauglichkeit nachhaltig negativ beeinflussen. Trotz der offensichtlichen Relevanz von LTG GaAs für schnelle optoelektronische Schalter sind grundlegende Fragen bezüglich der Relaxations- und der Sättigungsdynamik bis heute kaum behandelt.

Der Schwerpunkt der in der vorliegenden Arbeit gezeigten Untersuchungen liegt auf der Beobachtung und Analyse der Relaxationsdynamik photogenerierter Ladungsträger. Die hierzu durchgeführten Kurzzeitexperimente basieren durchgehend auf Anrege/Abfrage-Techniken. Über die einfachste Art der Wahl gleicher Anrege- und Abfrageenergien hinausgehend, wird die Relaxationsdynamik durch Variationen der Abfrageenergie spektral aufgelöst. Dabei ermöglicht u.a. der Einsatz von synchronisierten Kurzpulslasern verschiedener Zentralfrequenzen die Beobachtung von Einfang- und Rekombinations-

prozessen.

Als Standardmethode zur Bestimmung der Lebensdauer freier Ladungsträger in LTG GaAs haben sich entartete Anrege/Abfrage-Experimente (identische Laserspektren für Anregung und Abfrage) etabliert. Im Gegensatz zur häufig in der Literatur zu LTG GaAs verwendeten Reflexionsgeometrie wird die sinnvollere Transmissionsgeometrie angewandt. Erstmals ergeben sich so zuverlässige Werte von Lebensdauern freier Ladungsträger in technologisch interessanten LTG GaAs-Materialien mit Wachstumstemperaturen unterhalb von 280 °C und einer Ausheiltemperatur von 600 °C. Mit einer Relaxationszeit von $\tau_\mu = 0.34$ ps wird bei einer Wachstumstemperatur von $T_g = 200$ °C der niedrigste Wert gemessen. Dieses Material ist speziell auf eine möglichst kurze Relaxationszeit τ_μ optimiert. Der Index μ deutet an, daß dies die Zeitskala ist, während der die Ladungsträger beweglich sind. Ferner korreliert die Relaxationszeit offensichtlich mit dem beim Wachstum eingebauten Arsenüberschuß. Die Relaxationszeit kann somit im Prinzip über die Wachstumstemperatur eingestellt werden. Sie steigt monoton mit der Wachstumstemperatur an und erreicht bei $T_g = 275$ °C einen Wert von 1.2 ps.

Die genaue zeitaufgelöste Spektroskopie von Ladungsträgern in bandlückennahen Zuständen speziell des optimierten Materials ergibt eine deutliche Verlangsamung der Relaxation. Ursache dieser Zustände bis zu 40 meV unterhalb der Bandlücke sind räumliche Potentialfluktuationen aufgrund der vielfältigen mikroskopischen Gitterstörungen. Im Experiment ist sowohl die Besetzung innerhalb von 0.34 ps als auch die anschließende Entleerung dieser Zustände mit einer Zeitkonstanten von ca. $\tau_e = 1$ ps zu beobachten. Auf dieser Zeitskala findet demnach der Ladungsträgereinfang in tiefe Zustände, die in der Mitte der Bandlücke liegen, statt.

Die so erzielten Resultate sind konsistent mit den Schlüssen, die sich aus dem Abtasten tiefer Störstellen mit Energien um 0.85 eV ziehen lassen. Entartete Anrege/Abfrage-Experimente in diesem Energiebereich zeigen in LTG GaAs deutlich andere Signaturen als in Standard GaAs. Insbesondere ist das detektierte Signal bei einer Vergleichsmessung unter identischen Bedingungen um eine Größenordnung größer. Aus der Analyse der Messungen bei einer Anregung oberhalb der Bandlücke und einem Abtasten mit 0.85 eV ergibt sich eine endgültige Rekombination von eingefangenen Ladungsträgern mit einer Zeitkonstanten von $\tau_r = 11.5$ ps. Ebenso läßt sich aus diesen Experimenten wieder die Einfangzeit zu $\tau_e = 1.1$ ps bestimmen. An dieser Stelle reicht ein einfaches Relaxationsmodell mit drei Niveaus aus, die Meßdaten zu erklären. Ferner sind Absorptionswirkungsquerschnitte von EL2-Störstellen ungeeignet, die transienten Absorptionsänderungen in den Experimenten zu beschreiben. Die in der Literatur häufig gemachte Annahme, daß die in LEC-GaAs (Liquid Encapsulated Czochralski) dominierende EL2-Störstelle auch die Eigenschaften von LTG GaAs bestimmt, ist somit sehr fraglich. Die Ergebnisse sind unter dem Aspekt zu sehen, daß die induzierten freien Ladungsträgerdichten die Dichte tiefer Störstellen, die als Einfangzentren dienen, nicht

übersteigen.

Erstmals ist eine systematische Variation der Anregungsdichte weit über die Störstellendichte hinaus für unterschiedliche Herstellungsparameter durchgeführt worden. Es zeigt sich, daß einfache Relaxationsmodelle wie sie in der Literatur vertreten werden, die Relaxationsdynamik unter diesen Bedingungen nicht korrekt wiedergeben können. Dabei kann experimentell durch den Gebrauch kohärenter THz-Pulse als Abtastpulse sichergestellt werden, daß nur freie Ladungsträger Signalbeiträge liefern. Dies ist ein entscheidender Fortschritt gegenüber bisherigen Experimenten mit LTG GaAs bei hohen Anregungsdichten. Es wird eine Verlangsamung der Relaxationsdynamik freier Ladungsträger beobachtet. Diese ist auf die Sättigung von Einfangzentren zurückzuführen. Allerdings ist nach dem vorgestellten Relaxationsmodell mit drei Niveaus eine erheblich ausgeprägtere Verlangsamung zu erwarten. Dies zeigt, daß die Relaxationsdynamik optisch generierter Ladungsträger ein sehr komplexer Prozeß ist, für dessen Verständnis neue theoretische Ansätze erforderlich sind. Die Beobachtung, daß ausgeheiltes LTG GaAs ein zu nicht ausgeheiltem LTG GaAs grundsätzlich unterschiedliches Sättigungsverhalten aufweist, das nicht allein durch die Reduktion der Punktdefektdichte zu erklären ist, gibt dabei erstmals konkrete Hinweise auf eine wichtige Funktion der As-Ausscheidungen im Relaxationsprozeß optisch generierter Ladungsträger.

Die verwendete zeitaufgelöste THz-Spektroskopie liefert Werte für Mobilitäten in LTG GaAs in Abhängigkeit von der Wachstumstemperatur. Eine Verdreifachung der Mobilität von ca. $500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ für Wachstumstemperaturen unter $250 \text{ }^\circ\text{C}$ auf fast $1500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ für eine Wachstumstemperatur von $275 \text{ }^\circ\text{C}$ stellt die bisherige Vorgehensweise der Auswahl von Herstellungsparametern für ultraschnelle optoelektronische Schalter in Frage. Soll beispielsweise die THz-Emissionsleistung eines Auston-Schalters auf LTG GaAs-Basis für ein Terahertz optimiert werden, so ist nach diesem Ergebnis sicherlich eine höhere Mobilität einer ultrakurzen Lebensdauer freier Ladungsträger vorzuziehen.

Die durchgeführten Untersuchungen zeigen die Richtung zu einer theoretischen Modellierung der Dynamiken, die über Bilanzgleichungen in Form einfacher Ratengleichungen hinausgehen. Dabei ist vor allem zu erwähnen, daß Ratengleichungssysteme, wie sie in verschiedenen Veröffentlichungen Verwendung finden, entweder nur sehr limitiert Gültigkeit haben oder aber aufgrund der hohen Zahl frei wählbarer Parameter wenig zum Verständnis der Dynamik beitragen. Für ein tieferes Verständnis der in LTG GaAs ablaufenden Relaxationsprozesse bieten sich aufgrund der präsentierten Ergebnisse weiterführende Untersuchungen zur transienten Mobilität in LTG GaAs und eine spektrale Erweiterung der Zweifarben-Anrege/Abfrage-Experimente an. Hier ist vor allem die Entwicklung der transienten Mobilität bei extern angelegtem Feld zu nennen. Dies könnte einerseits Diskrepanzen zwischen veröffentlichten Mobilitätswerten in der Literatur erklären. Zum anderen gibt es Hinweise auf eine Feldabhängigkeit der Mobilität

[160], die wahrscheinlich eng mit der Bandstruktur von GaAs verknüpft ist. Ebenso dürften neuartige Lasersysteme den Spektralbereich oberhalb der Bandkante bis hinunter zu 0.4 eV vollständig abdecken können. Solche Untersuchungen dürften u.a. Auskunft über Zustandsdichten und spektrale Verteilung der Defektzustände liefern.

A. Probenpräparation und -design

Die für die Untersuchungen in Kapitel 5 verwendeten Proben sind jeweils von Wafern hergestellt worden, die mit den optimierten Parametern gewachsen worden sind. Somit sind eine gute Vergleichbarkeit der erzielten Resultate bzw. mögliche Schlußfolgerungen von einem Experiment zum anderen Experiment zulässig. Wesentlich für eine einfache Beschreibung der Meßergebnisse bei den hier verwendeten Energien der Abtastpulse, die sich von 0.8 eV bis 1.7 eV erstrecken, ist eine möglichst einfache Probenstruktur. Zu diesem Zweck sind die LTG GaAs-Schichten von nominell 500 nm auf eine 20 nm bis 50 nm dicke AlAs-Schicht gewachsen worden, wie es die linke Seite von Abbildung .A.1 zeigt. Die Herstellung einer Transmissionsprobe erfolgt nach folgenden Prozeßschritten, deren Ergebnis auf der rechten Seite in Abbildung A.1 skizziert ist:

1. Der gereinigte Wafer wird dünn (etwa 0.5 mm) mit dem Wachs Apiezon bedeckt. Dazu kann das Apiezon in Chloroform gelöst werden. Diese Lösung läßt sich leicht auf den Wafer aufbringen.
2. Nach dem Trocknen des Apiezons wird der Wafer in Stücke der gewünschten Größe von ca. $3 \times 3\text{mm}^2$ gesägt.
3. In einem Flußsäurebad ist es möglich, durch Entfernen der AlAs-Schicht das LTG GaAs vom Wafer zu lösen. Die hoch selektiv ätzende HF-Säure (geschätztes Verhältnis der Ätzraten AlAs/GaAs: 10^8) kann dabei bedenkenlos viele Stunden einwirken. Dieser Lift-off genannte Prozeß kann ebenfalls dazu genutzt werden, ganze Schaltungen von einem Wafer abzuheben. Das Apiezon ist notwendig, um den Film zum einen zu stabilisieren und zum anderen besser handhabbar zu machen.
4. Nach dem Entfernen des Wachses liegt nun ein 500 nm dicker LTG GaAs-Film vor. Dieser wird auf Saphir aufgebracht, wobei die Haftung aufgrund von van der Waals-Kräften ausgenutzt wird. Diese Methode wird auch als van der Waals-Bonding bezeichnet [161].

Für eine genauere Beschreibung der Probenpräparation sei auf [162] verwiesen.

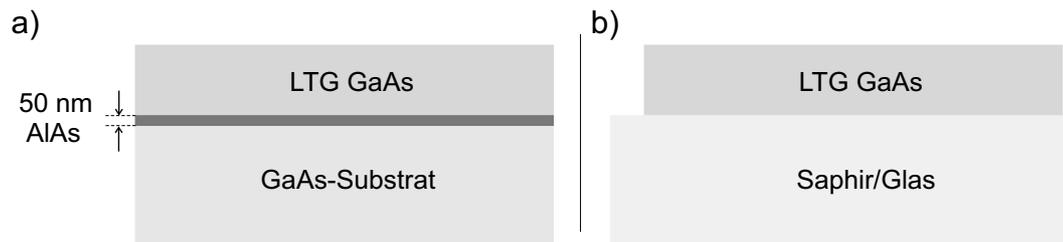


Abbildung A.1.: a) MBE-gewachsener LTG GaAs Wafer mit einer 50 nm dicken AlAs-Opferschicht auf GaAs-Substrat. b) Transmissionsprobe nach den beschriebenen Prozeßschritten.

Ein alternativer Prozeß der Probenpräparation besteht darin, das LTG GaAs auf das Saphir mit einem optischen Kleber aufzukleben und den Buffer bis zum LTG GaAs durchzuätzen. Diese Methode hat jedoch mehrere Nachteile. Zum ersten ist die Wärmeleitfähigkeit des Klebers sehr schlecht, was zur Folge hat, daß GaAs-Filme erfahrungsgemäß bei Anregungsdichten oberhalb ca. $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ zerstört werden. Zum zweiten verhindert der dünne Klebefilm eine genaue Bestimmung der Schichtdicke wie sie in Kapitel 5 benötigt wird. Ferner läßt die zusätzliche Schicht FP-Effekte „unübersichtlicher“ werden und würde eine genaue Kenntnis der Dicke des Klebers voraussetzen. Die hier aufgezeigten Probleme dieser Präparationsart spielen beim Abtasten mit THz-Strahlung, wie sie in Kapitel 6 durchgeführt wird, keine wesentliche Rolle. Da sich mit ihr auf leichtere Art größere LTG GaAs-Filme erzeugen lassen als mit der Lift-off-Technik, ist sie für diese Proben eingesetzt worden.

B. Die Transfer–Matrix–Methode

Die Propagation von Licht in Materie wird durch die Maxwell-Gleichungen beschrieben. Für ein homogenes Medium werden diese durch ebene Wellen mit Frequenz ω gelöst:

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 e^{-i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})}. \quad (\text{B.1})$$

Für den Betrag des Wellenvektors \mathbf{k} gilt die Beziehung zum komplexen Brechungsindex \tilde{n} :

$$\mathbf{k} = \frac{\omega}{c} \tilde{n}. \quad (\text{B.2})$$

Der Realteil von \tilde{n} ist der Brechungsindex n des Mediums, wohingegen der Imaginärteil κ – der Extinktionskoeffizient – direkt proportional zum Absorptionskoeffizienten α ist:

$$\tilde{n} = n + i\kappa, \quad (\text{B.3})$$

$$\kappa = \frac{c}{\omega} \frac{\alpha}{2}. \quad (\text{B.4})$$

Die letzte Gleichung kann als Definition von α angesehen werden. Aufgrund des Faktors $1/2$ wird die Intensität $I = |\mathbf{E}|^2$ der elektromagnetischen Welle mit $e^{-\alpha r}$ gedämpft. Dies läßt sich unschwer aus Gleichung B.1 erkennen, wenn der Exponentialterm durch n und α ausgedrückt wird:

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 e^{-\frac{\alpha}{2} r} e^{-i\omega(t - \frac{n}{c} r)} \quad (\text{B.5})$$

Der zweite Exponentialterm spiegelt die Propagation der elektromagnetischen Welle wider. In einer phänomenologischen oder auch mikroskopischen Theorie zu optischen Eigenschaften eines Mediums ist nicht der komplexe Brechungsindex \tilde{n} die relevante Größe, sondern die durch die Vielzahl von Resonanzen des Mediums gegebene dielektrische Funktion $\epsilon(\omega)$. Hier gilt der einfache Zusammenhang:

$$\tilde{n} = \sqrt{\epsilon(\omega)}. \quad (\text{B.6})$$

Neben der Propagation der elektromagnetischen Welle durch das Medium spielen auch die Einkopplung der Welle ins bzw. die Auskopplung aus dem Medium eine wichtige

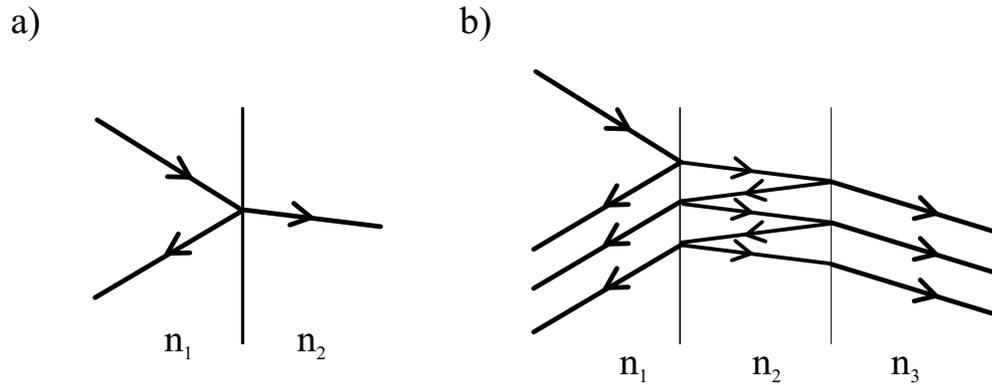


Abbildung B.1.: Transmission an einer dielektrischen Grenzschicht (linke Seite) und Vielfachreflexionen an zwei Grenzschichten (rechte Seite).

Rolle. Die linke Seite von Abbildung B.1 zeigt eine Grenzfläche zweier Dielektrika mit Brechungsindex n_1 und n_2 . Aufgrund der Linearität der Maxwell-Gleichungen lassen sich die Amplituden E_2 und E_1^r der transmittierten und reflektierten Wellen bezüglich der einfallenden Welle mit Amplitude E_1 angeben. Setzt man nicht magnetische Materialien voraus, so gilt bei senkrechtem Einfall

$$E_1^r = \rho_{12} E_1 \quad \text{mit} \quad \rho_{12} = \frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2} \quad (\text{B.7})$$

und

$$E_2 = \tau_{12} E_1 \quad \text{mit} \quad \tau_{12} = \frac{2n_1}{n_1 + n_2}. \quad (\text{B.8})$$

Der Transmissionskoeffizient τ_{12} und der Reflexionskoeffizient ρ_{12} setzen sich im allgemeinen aus den jeweiligen Brechungsindexen n zusammen und sind demnach ebenfalls komplexe Größen. Ihr Zusammenhang mit Experimenten, in denen die Intensität I des reflektierten/transmittierten Lichtes die relevante Meßgröße ist, wie etwa Messungen zur linearen Absorption, ist gegeben durch:

$$R = \left| \frac{E_1^r}{E_1} \right|^2 = |\rho_{12}|^2$$

$$T = \left| \frac{E_2}{E_1} \right|^2 = \frac{n_2}{n_1} |\tau_{12}|^2.$$

Die vereinfachte Situation einer Grenzfläche läßt sich leicht auf realistische Mehrschichtsysteme erweitern. Bei mehr als einer Grenzschicht treten unendlich viele Reflexionen auf, wie es auf der rechten Seite von Abbildung B.1 angedeutet ist. Aus diesem Grund

ist es sinnvoll, zu einem allgemeinen Formalismus zur Berechnung von transmittiertem und reflektiertem elektrischen Feld überzugehen. Die *Transfer-Matrix-Methode* macht sich dabei den Umstand der Linearität der Maxwell-Gleichungen zu nutze [163], [154]. Die Reflexionen an jeder einzelne Grenzschicht werden ebenso durch eine Matrix G repräsentiert wie die Propagation des elektrischen Feldes im Dielektrikum durch eine Matrix P . Die Matrix $G_{i,i+1}$ für die Grenzschicht zwischen dem i 'ten und dem $(i+1)$ 'ten Dielektrikum hat die Form

$$G_{i,i+1} = \frac{1}{\tau_{i,i+1}} \begin{pmatrix} 1 & \rho_{i,i+1} \\ \rho_{i,i+1} & 1 \end{pmatrix}. \quad (\text{B.9})$$

Sie verknüpft den reflektierten mit dem transmittierten Anteil des elektrischen Feldes. Dagegen ist die Matrix P_i des i 'ten Dielektrikums diagonal und beschreibt Phasensprünge und Absorption im Medium:

$$P_i = \begin{pmatrix} \exp\left(i\frac{\omega}{c}n_i d_i - \frac{\alpha_i}{2}d_i\right) & 0 \\ 0 & \exp\left(-i\frac{\omega}{c}n_i d_i + \frac{\alpha_i}{2}d_i\right) \end{pmatrix}. \quad (\text{B.10})$$

Bei Kenntnis der Brechungsindexe n_i sowie der Schichtdicken d_i und Absorptionen α_i der einzelnen Schichten i läßt sich so die Transfermatrix S für N Schichten berechnen:

$$\begin{pmatrix} E_r \\ E_0 \end{pmatrix} = \left[G_{1,2} \prod_{i=2}^{N-1} P_i G_{i,i+1} \right] \begin{pmatrix} 0 \\ E_t \end{pmatrix} =: S \begin{pmatrix} 0 \\ E_t \end{pmatrix}. \quad (\text{B.11})$$

Dabei sind E_0 , E_r und E_t die Amplituden der einfallenden, der reflektierten und der transmittierten Welle. Der resultierende Gesamtreflexionskoeffizient ρ des N -Schicht-Systems ist dann gegeben durch

$$\rho = \frac{E_r}{E_0} = \frac{S_{1,2}}{S_{2,2}}. \quad (\text{B.12})$$

Die Transmission durch das Schichtsystem erhält man mit

$$\tau = \frac{E_t}{E_0} = \frac{1}{S_{2,2}}. \quad (\text{B.13})$$

Sind wieder Intensitäten der Reflexion bzw. Transmission die relevanten Größen, so können diese über die Beziehungen

$$R = |\rho|^2 \quad (\text{B.14})$$

und

$$T = \frac{n_N}{n_1} |\tau|^2 \quad (\text{B.15})$$

erhalten werden. Für ein Dreischichtsystem ergeben sich also für Reflexion und Transmission jeweils die Zusammenhänge [164]

$$R = \frac{R_1 - 2\sqrt{R_1 R_2} e^{-\alpha d} \cos(2kd) + R_2 e^{-2\alpha d}}{1 - 2\sqrt{R_1 R_2} e^{-\alpha d} \cos(2kd) + R_1 R_2 e^{-2\alpha d}} \quad (\text{B.16})$$

und

$$T = \frac{(1 + \kappa^2/n^2)(1 - R_1)(1 - R_2)e^{-\alpha d}}{1 - 2\sqrt{R_1 R_2} e^{-\alpha d} \cos(2kd) + R_1 R_2 e^{-2\alpha d}}. \quad (\text{B.17})$$

Sofern möglich, sollten Strukturen zur Bestimmung der linearen Absorption über einen großen Wellenlängenbereich mit drei Schichten möglichst einfach gehalten werden. D.h. unter anderem auch, daß bei der Präparation eines Filmes am besten auf ein Aufkleben des Filmes verzichtet werden sollte. Ist dies nicht möglich, kann ein optischer Kleber ausgesucht werden, dessen Brechungsindex dem des Substrates angepaßt ist.

Für nicht lineare Kurzzeitexperimente, wie sie in dieser Arbeit durchgeführt werden, ist die Vermeidung zusätzlicher FP-Oszillationen noch wichtiger. Aus diesem Grund ist der Lift-off Prozeß, wie er in Anhang A beschrieben wird, von entscheidender Bedeutung für eine korrekte Auswertung der Daten.

Literaturverzeichnis

- [1] F.W. SMITH, A.R. CALAWA, C.L. CHEN, M.J. MANFRA, UND L.J. MAHONEY. GROWTH DEPENDENCE IN MOLECULAR BEAM EPITAXY OF GAAS. *IEEE Electron. Device Lett.*, 9:77–79, 1988.
- [2] N. ASHCROFT UND D. MERMIN. *Solid State Physics*. SAUNDERS COLLEGE, 1976.
- [3] M.V. KLEIN. *Light Scattering in Solids 1*, VOLUME 8 OF *Topics in Applied Physics*. SPRINGER VERLAG BERLIN, 1992.
- [4] M.L. COHEN UND J.R. CHELIKOWSKY. *Electronic Structure and Optical Properties of Semiconductors*. SPRINGER VERLAG BERLIN, 1988.
- [5] E.D. PALIK, EDITOR. *Handbook of Optical Constants of Solids*. ACADEMIC PRESS, SAN DIEGO, 1985.
- [6] S. ADACHI. *GaAs and Related Materials*. WORLD SCIENTIFIC, SINGAPORE, 1994.
- [7] B.R. BENNETT, R.A. SOREF, UND J.A. DEL ALAMO. CARRIER-INDUCED CHANGE IN REFRACTIVE INDEX OF INP, GAAS, AND INGAASP. *IEEE J. Quantum Elec.*, 26:113–122, 1990.
- [8] C.F. KLINGSHIRN. *Semiconductor Optics*. SPRINGER VERLAG BERLIN, 1997.
- [9] MADELUNG. *Festkörpertheorie II: Wechselwirkungen*. SPRINGER VERLAG BERLIN, 1972.
- [10] S. HUNSCHE. *Spektroskopie ultraschneller Prozesse in elektro-optischen Materialien*. DISSERTATION, RWTH AACHEN, AACHEN, 1995.
- [11] H. HAUG UND S.W. KOCH. *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors*. WORLD SCIENTIFIC, SINGAPORE, 1990.

- [12] J. SHAH. *Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures*, VOLUME 115. SPRINGER SERIES IN SOLID-STATE SCIENCES, 2ND EDITION EDITION, 1999.
- [13] R. VENKATASUMBRAMANIAN. MBE GROWTH OF COMPOUND SEMICONDUCTORS, PART II: APPLICATIONS OF THE STOCHASTIC MODEL. *J. Mater. Res.*, 7:1235–1242, 1992.
- [14] C. KADOW, S.B. FLEISCHER, UND A.C. GOSSARD. SUBPICOSECOND CARRIER DYNAMICS IN LOW-TEMPERATURE GROWN GAAS ON SI SUBSTRATES. *Appl. Phys. Lett.*, 75:3020–3022, 1999.
- [15] C. KADOW, A.W. JACKSON, J.P. IBBETSON, S.B. FLEISCHER, UND A.C. GOSSARD. LTG-GAAS GROWN ON SI SUBSTRATES FOR THZ-PHOTOMIXER APPLICATIONS. IN T. MAREK, EDITOR, *Symposium On Non-Stoichiometric III-V Compounds*, VOLUME 6, PAGES 99–104. PHYSIK MIKROSTRUKTURIERTER HALBLEITER, 1998.
- [16] M. KAMINSKA UND E.R. WEBER. LOW TEMPERATURE GAAS: ELECTRICAL AND OPTICAL PROPERTIES. *Mat. Science Forum*, 83:1033–1040, 1992.
- [17] M.R. MELLOCH, J.M. WOODALL, E.S. HARMON, N. OTSUKA, F.H. POLLAK, D.D. NOLTE, R.M. FEENSTRA, UND M.A. LUTZ. LOW-TEMPERATURE GROWN III-V MATERIALS. *Ann. Rev. Mat. Sci.*, 25:547–600, 1995.
- [18] M. LUYBERG, H. SOHN, A. PRASAD, P. SPECHT, Z. LILIENTAL-WEBER, E.R. WEBER, J. GEBAUER, UND R. KRAUSE-REHBERG. EFFECTS OF THE GROWTH TEMPERATURE AND AS/GA FLUX RATIO ON THE INCORPORATION OF EXCESS AS INTO LOW TEMPERATURE GROWN GAAS. *J. Appl. Phys.*, 1:561–566, 1998.
- [19] A. SUDA UND N. OTSUKA. ARSENIC FLUX DEPENDENCE OF INCORPORATION OF EXCESS ARSENIC IN MOLECULAR BEAM EPITAXY OF GAAS AT LOW TEMPERATURE. *Appl. Phys. Lett.*, 73:1529–1531, 1998.
- [20] P. THOMPSON, Y. LI, J. ZHOU, D.L. SATO, L. FLANDERS, UND H. P. LEE. DIFFUSE REFLECTANCE SPECTROSCOPY MEASUREMENT OF SUBSTRATE TEMPERATURE AND TEMPERATURE TRANSIENT DURING MOLECULAR BEAM EPITAXY AND IMPLICATIONS FOR LOW-TEMPERATURE III-V EPITAXY. *Appl. Phys. Lett.*, 70:1605–1607, 1997.

-
- [21] M.O. MANASREH, D.C. LOOK, K.R. EVANS, UND C.E. STUTZ. INFRARED ABSORPTION OF DEEP DEFECTS IN MOLECULAR-BEAM-EPITAXY GAAS LAYERS GROWN AT 200 °C. *Phys. Rev. B*, 41:10272–10275, 1990.
- [22] X. LIU, A. PRASAD, J. NISHIO, E.R. WEBER, Z. LILIENTAL-WEBER, UND W. WALUKIEWICZ. NATIVE POINT DEFECTS IN LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS. *Appl. Phys. Lett.*, 67:279–281, 1995.
- [23] J.I. LANDMAN, C.G. MORGAN, J.T. SCHICK, P. PAPOULIAS, UND A. KUMAR. ARSENIC INTERSTITIALS AND INTERSTITIAL COMPLEXES IN LOW-TEMPERATURE GROWN GAAS. *Phys. Rev. B*, 67:15581–15584, 1997.
- [24] J. GEBAUER, R. KRAUSE-REHBERG, S. EICHLER, M. LUYSBERG, H. SOHN, UND E.R. WEBER. GA VACANCIES IN LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS IDENTIFIED BY SLOW POITRONS. *Appl. Phys. Lett.*, 71(5):638–640, 1997.
- [25] J. GEBAUER, R. KRAUSE-REHBERG, C. DOMKE, K. URBAN, UND T. STAAB. DIRECT IDENTIFICATION OF AS VACANCIES IN GAAS USING PORITRON ANNIHILATION CALIBRATED BY SCANNING TUNNELING MICROSCOPY. *Phys. Rev. B*, 63, 2001.
- [26] M. KAMINSKA, E.R. WEBER, Z. LILIENTAL-WEBER, R. LEON, UND Z.U. REK. STOICHIOMETRY-RELATED DEFECTS IN GAAS GROWN BY MOLECULAR-BEAM EPITAXY AT LOW TEMPERATURES. *J. Vac. Sci. Technol. B*, 7:710–713, 1989.
- [27] N. CHEN, Y. WANG, H. HE, UND L. LIN. EFFECTS OF POINT DEFECTS ON LATTICE PARAMETERS OF SEMICONDUCTORS. *Phys. Rev. B*, 54(12):8516–8521, 1996.
- [28] D.C. LOOK, D.C. WALTERS, M.O. MANASREH, J.R. SIZELOVE, C.E. STUTZ, UND K.R. EVANS. ANOMALOUS HALL-EFFECT RESULTS IN LOW-TEMPERATURE MOLECULAR-BEAM-EPITAXIAL GAAS: HOPPING IN A DENS EL²-LIKE BAND. *Phys. Rev. B*, 42:3578–3581, 1990.
- [29] D.C. LOOK. ON COMPENSATION AND CONDUCTIVITY MODELS FOR MOLECULAR-BEAM-EPITAXIAL GAAS AT LOW TEMPERATURE. *J. Appl. Phys.*, 70:3148–3151, 1991.
- [30] J. DABROWSKI UND M. SCHEFFLER. THEORETICAL EVIDENCE FOR AN OPTICALLY INDUCIBLE STRUCTURAL TRANSITION OF THE ISOLATED AS ANTI-SITE IN GAAS: IDENTIFICATION AND EXPLANATION OF EL²? *Phys. Rev. Lett.*, 60:2183–2187, 1988.

- [31] J.C. BOURGOIN, H.J. BARDELEBEN, UND D. STIEVENARD. NATIVE DEFECTS IN GALLIUM ARSENIDE. *J. Appl. Phys.*, 64:R65–R91, 1988.
- [32] R. ENDELEIN UND A. SCHENK. *Grundlagen der Halbleiterphysik*. AKADEMIE VERLAG, BERLIN, 1991.
- [33] P. KORDOS, A. FÖRSTER, J. BETKO, M. MORVIC, UND J. NOVAC. SEMI-INSULATING GAAS LAYERS GROWN BY MOLEKULAR-BEAM EPITAXY. *Appl. Phys. Lett.*, 67:983–985, 1995.
- [34] X. LIU, A. PRASAD, W.M. CHEN, A. KURPIEWSKI, A. STOSCHEK, Z. LILIENTAL-WEBER, UND E.R. WEBER. MECHANISM RESPONSIBLE FOR THE SEMI-INSULATING PROPERTIES OF LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS. *Appl. Phys. Lett.*, 65:3002–3004, 1994.
- [35] X. LIU, A. PRASAD, W.M. CHEN, A. KURPIEWSKI, A. STOSCHEK, Z. LILIENTAL-WEBER, UND E.R. WEBER. RESPONSE TO „COMMENT ON 'MECHANISM RESPONSIBLE FOR THE SEMI-INSULATING PROPERTIES OF LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS' “. *Appl. Phys. Lett.*, 67(9):1333–1335, 1995.
- [36] P. SPECHT, S. JEONG, H. SOHN, M. LUYSBERG, A. PRASAD, J. GEBAUER, R. KRAUSE-REHBERG, UND E.R. WEBER. DEFECT CONTROL IN AS-RICH GAAS. *Mater. Sci. For.*, 258-263:951–956, 1997.
- [37] F. BÖRNER, J. GEBAUER, R. KRAUSE-REHBERG, UND S. EICHLER. MICROSCOPIC NATURE AND ABUNDANCE OF VACANCIES IN LTG GAAS REVEALED BY POSITRON ANNIHILATION. IN T. MAREK, EDITOR, *Symposium On Non-Stoichiometric III-V Compounds*, VOLUME 6, PAGES 47–52. PHYSIK MIKROSTRUKTURIERTER HALBLEITER, 1998.
- [38] S. TAUTZ. *Thin Layers of Low Temperature Grown GaAs in p-i-n Diodes: A Versatile Tool for Material Characterization*. DISSERTATION, FRIEDRICH-ALEXANDER-UNIVERSITÄT, 2001.
- [39] K.F. PFEIFFER, S. TAUTZ, P. KIESEL, C. STEEN, S. MALZER, UND G.H. DÖHLER. INVESTIGATION OF DEEP ELECTRONIC CENTERS IN LOW-TEMPERATURE GROWN GAAS USING EXTREMELY THIN LAYERS. *Appl. Phys. Lett.*, 77:2349–2351, 2000.
- [40] N.C. CHEN, P.Y. WANG, UND J.F. CHEN. ROLE OF 0.66 eV DOMINANT TRAP IN ANNEALED LOW-TEMPERATURE GROWN MOLECULAR BEAM EPITAXIAL GAAS. *J. Appl. Phys.*, 83(3):1403–1409, 1998.

-
- [41] D.C. LOOK, D.C. WALTERS, G.D. ROBINDON, J.R. SIZELOVE, M.G. MIER, UND C.E. STUTZ. ANNEALING DYNAMICS OF MOLECULAR-BEAM EPITAXIAL GAAS GROWN AT 200 C. *J. Appl. Phys.*, 74(1):306–310, 1993.
- [42] M. TOUFELLA, P. PUECH, R. CARLES, C. FONTAINE, UND A. CLAVERIE. DIAMETER OF AS CLUSTERS IN LT-GAAS BY RAMAN SPECTROSCOPY. *J. Appl. Phys.*, 85:2929–2931, 1999.
- [43] H. SANO, A. SUDA, T. HATANAKA, G. MIZUTANI, UND N. OTSUKA. RAMAN SCATTERING STUDY OF GAAS CRYSTALLINE LAYERS GROWN BY MOLECULAR BEAM EPITAXY AT LOW TEMPERATURE. *J. Appl. Phys.*, 88:3948–3953, 2000.
- [44] Z. LILIENTAL-WEBER, X.W. LIU, J. WASHBURN, UND W. SCHAFF. RAPID THERMAL ANNEALING OF LOW-TEMPERATURE GAAS LAYERS. *Appl. Phys. Lett.*, 66:2086–2088, 1995.
- [45] I.M. LIFSHITZ UND V.V. SLYSOZOV. THE KINETICS OF PRECIPITATION FROM SUPERSATURATED SOLID SOLUTIONS. *J. Phys. Chem. Solids*, 19:35–50, 1961.
- [46] J.K. LUO, H. THOMAS, D.V. MORGAN, UND D. WESTWOOD. THERMAL ANNEALING EFFECT ON LOW TEMPERATURE MOLECULAR BEAM EPITAXY GROWN GAAS: ARSENIC PRECIPITATION AND THE CHANGE OF RESISTIVITY. *App. Phys. Lett.*, 64(26):3614–3616, 1994.
- [47] M.R. MELLOCH, D.D. NOLTE, N. OTSUKA, C.L. CHANG, UND J.M. WOODALL. ARSENIC CLUSTER ENGINEERING FOR EXCITONIC ELECTRO-OPTICS. *J. Vac. Sci. Technol.*, B 11:795–798, 1993.
- [48] K. THUL. FORMATION OF ARSENIC PRECIPITATES IN BE DOPED LOW-TEMPERATURE GALLIUMARSENIDE AND THEIR INFLUENCE ON ELECTRICAL PROPERTIES. DIPLOMARBEIT, RWTH AACHEN, 1998.
- [49] A. WARREN, J.M. WOODALL, J.L. FREEOUF, D. GRISCHKOWSKY, D.T. MCINTURFF, M.R. MELLOCH, UND N. OTSUKA. ARSENIC PRECIPITATES AND THE SEMI-INSULATING PROPERTIES OF GAAS BUFFER LAYERS GROWN BY LOW-TEMPERATURE MOLECULAR BEAM EPITAXY. *Appl. Phys. Lett.*, 57:1331–1333, 1990.
- [50] M.R. MELLOCH UND J.M. WOODALL. COMMENT ON 'MECHANISM RESPONSIBLE FOR THE SEMI-INSULATING PROPERTIES OF LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS'. *Appl. Phys. Lett.*, 67(9):1331–1333, 1995.

- [51] A.C. WARREN, J.M. WOODALL, P.D. KIRCHNER, X. YIN, F. POLLAK, M.R. MELLOCH, N. OTSUKA, UND K. MAHALINGAM. ROLE OF EXCESS AS IN LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS. *Phys. Rev. B*, 46:4417–4420, 1992.
- [52] J. IBBETSON. THE ROLE OF MICROSTRUCTURE IN THE ELECTRICAL PROPERTIES OF GAAS GROWN AT LOW TEMPERATURE. *J. Elec. Mater*, 22:1421, 1993.
- [53] Y.H. CHEN, Z. YANG, R.G. LI, Y.Q. WANG, UND Z.G. WANG. REFLECTANCE-DIFFERENCE SPECTROSCOPY STUDY OF THE FERMI-LEVEL POSITION OF LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS. *Phys. Rev. B*, 55(12):R7379–R7382, 1997.
- [54] T.M. HSU, W.C. LEE, J.R. WU, UND J.I. CHYI. FERMI LEVEL OF LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS ON SI- δ -DOPED GAAS. *Phys. Rev. B*, 51:17215–17218, 1995.
- [55] D.C. LOOK, Z.Q. FANG, J.R. SIZELOVE, UND C.E. STUTZ. NEW AS_{Ga} RELATED CENTER IN GAAS. *Phys. Rev. Lett.*, 70:465, 1993.
- [56] S. GUPTA, M.Y. FRANKEL, J.A. VALDMANIS, J.F. WHITAKER, G.A. MOUROU, F.W. SMITH, UND A.R. CALAWA. SUBPICOSECOND CARRIER LIFETIME IN GAAS GROWN BY MOLECULAR BEAM EPITAXY AT LOW TEMPERATURES. *Appl. Phys. Lett.*, 59:3276–3278, 1991.
- [57] K.A. MCINTOSH, K.B. NICHOLS, S. VERGHESE, UND E.R. BROWN. INVESTIGATION OF ULTRASHORT PHOTOCARRIER RELAXATION TIMES IN LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS. *Appl. Phys. Lett.*, 70:354–356, 1996.
- [58] J.S. YU, H.C. HO, S. HORNG, UND C.C. CHI. SPECTRAL DEPENDENCE OF TIME-RESOLVED PHOTOREFLECTANCE OF LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 36:2144–2150, 1997.
- [59] J.S. YU, S. HORNG, UND C.C. CHI. WELL-ABOVE TRANSIENT PHOTOREFLECTANCE CHARACTERISATION OF LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 37:554–559, 1998.
- [60] E.S. HARMON, M.R. MELLOCH, J.M. WOODALL, D.D. NOLTE, N. OTSUKA, UND C.L. CHANG. CARRIER LIFETIME VERSUS ANNEAL IN LOW TEMPERATURE GROWTH GAAS. *Appl. Phys. Lett.*, 63:2248–2250, 1993.
- [61] S. GUPTA, J.F. WHITAKER, UND G. MOUROU. ULTRAFAST CARRIER DYNAMICS IN III-V SEMICONDUCTORS GROWN BY MOLECULAR-BEAM EPITAXY AT

- VERY LOW SUBSTRATE TEMPERATURES. *IEEE J. Quantum Electron.*, 28:2464–2472, 1992.
- [62] S. MARCINKEVICIUS, A. KROTKUS, V. JASUTIS, H.H. TAN, C. JAGADISH, UND M. KAMINSKA. TIME AND SPATIALLY RESOLVED PHOTOLUMINESCENCE MEASUREMENTS OF NONSTOICHIOMETRIC GAAS. *Appl. Phys. Lett.*, 68:397–399, 1996.
- [63] A.J. LOCHTEFELD, M.R. MELLOCH, J.C.P. CHANG, UND E.S. HARMON. THE ROLE OF POINT DEFECTS AND ARSENIC PRECIPITATES IN CARRIER TRAPPING AND RECOMBINATION IN LOW-TEMPERATURE GROWN GAAS. *Appl. Phys. Lett.*, 69(10):1465–1467, 1996.
- [64] H. RUDA UND A. SHIK. NONEQUILIBRIUM CARRIERS IN GAAS GROWN BY LOW-TEMPERATURE MOLECULAR BEAM EPITAXY. *Phys. Rev. B*, 63:85203–85208, 2001.
- [65] T.S. SOSNOWSKI, T.B. NORRIS, H.H. WANG, P. GRENIER, UND J.F. WHITAKER. HIGH-CARRIER-DENSITY ELECTRON DYNAMICS IN LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS. *Appl. Phys. Lett.*, 70(24):3245–3247, 1997.
- [66] S.D. BENJAMIN, H.S. LOCA, UND P.W.E. SMITH. ULTRAFAST DYNAMICS OF NONLINEAR ABSORPTION IN LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS. *Appl. Phys. Lett.*, 68(18):2544–2547, 1996.
- [67] P.W.E. SMITH, S.D. BENJAMIN, UND H.S. LOKA. TAILORING OF TRAP-RELATED CARRIER DYNAMICS IN LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS. *Appl. Phys. Lett.*, 71(9):1156–1159, 1997.
- [68] H.L. LOKA, S.D. BENJAMIN, UND P.W.E. SMITH. REFRACTIVE INDEX AND ABSORPTION CHANGES IN LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS. *Opt. Com.*, 155, 1998.
- [69] U. SIEGNER, R. FLUCK, G. ZHANG, UND U. KELLER. ULTRAFAST HIGH-INTENSITY NONLINEAR ABSORPTION DYNAMICS IN LOW-TEMPERATURE GROWN GALLIUM ARSENIDE. *Appl. Phys. Lett.*, 69:2566–2568, 1996.
- [70] C.Y. SUNG, H.H. WANG, T.B. NORRIS, UND J.F. WHITAKER. ULTRAFAST ELECTRON AND HOLE TRAPPING TIMES AND DEFECT BAND SATURATION DYNAMICS IN LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS. IN *CLEO*, 1996.
- [71] P. SILVERBERG, P. OMLING, UND L. SAMUELSON. HOLE PHOTOIONIZATION CROSS SECTIONS OF EL2 IN GAAS. *Appl. Phys. Lett.*, 52:1689–1691, 1988.

- [72] F.X. ZACH UND A. WINNACKER. OPTICAL MAPPING OF THE TOTAL EL²-CONCENTRATION IN SEMI-INSULATING GAAS-WAFERS. *Jap. J. Appl. Phys.*, PAGES 957–960, 1989.
- [73] M. LAGADAS, Z. HATZOPOULOS, K. KARADIMA, M. KORILINOS, C. LIOUTAS, UND A. CHRISTOU. IMPROVED PERFORMANCE OF MESFET DEVICES WITH LT-GAAS BUFFER LAYERS. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, 378:789–793, 1995.
- [74] B. LIN, C. KOCOT, D. MARS, UND R. JAEGER. ANOMALIES IN MODFET'S WITH LOW-TEMPERATURE BUFFER. *IEEE Trans. Electron. Devices*, 36:45, 1990.
- [75] J. ALLAM, N. BAYNES, UND I. OHBU. MONOLITHICALLY-INTEGRATED OPTOELECTRONIC CIRCUIT FOR ULTRAFAST SAMPLING OF A DUAL-GATE FIELD-EFFECT TRANSISTOR. *Opt. Quant. Electron.*, 28:875, 1996.
- [76] U.D. KEIL UND D.R. DYKAAR. ULTRAFAST PULSE GENERATION IN PHOTOCONDUCTIVE SWITCHES. *IEEE J. Quantum Electron.*, 32:1664–1671, 1996.
- [77] U. KEIL. *Generation, Propagation, and Detection of Ultrashort Electrical Pulses*. TECHNICAL UNIVERSITY OF DENMARK, LYNGBY, 1999.
- [78] T. DEKORSY, G. SEGSCHNEIDER, M. NAGEL, H.-M. HEILIGER, R. HEY, K. PLOOG, UND M. LUYSBERG. CHARACTERISATION AND APPLICATION OF LOW TEMPERATURE GROWN-GAAS BASED ON FEMTOSECOND LASER. IN T. MAREK, EDITOR, *Symposium On Non-Stoichiometric III-V Compounds*, VOLUME 6, PAGES 85–91. PHYSIK MIKROSTRUKTURIERTER HALBLEITER, 1998.
- [79] R.P. JOSHI UND J.A. MCADOO. PICOSECOND DYNAMIC RESPONSE OF NANOSCALE LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS METAL-SEMICONDUCTOR-METAL PHOTODETECTORS. *Appl. Phys. Lett.*, 68:2853–2855, 1996.
- [80] M. KLINGENSTEIN, J. KUHL, R. NÖTZEL, K. PLOOG, J. ROSENZWEIG, C. MOGLESTUE, A. HÜLSEMANN, J. SCHNEIDER, UND K. KÖHLER. ULTRAFAST METAL-SEMICONDUCTOR-METAL PHOTODIODES FABRICATED ON LOW-TEMPERATURE GAAS. *Appl. Phys. Lett.*, 60:627–629, 1992.
- [81] D.T. MCINTURFF, J.M. WOODALL, A.C. WARREN, N. BRASAU, G.D. PETTIT, P.D. KIRCHNER, UND M.R. MELLOCH. PHOTOEMISSION SPECTROSCOPY OF GAAS:AS PHOTODIODES. *Appl. Phys. Lett.*, 60:448–450, 1992.
- [82] H. ERLIG, S. WANG, T. AZFAR, A. UDUPA, H.R. FETTERMAN, UND D.C. STREIT. LT-GAAS DETECTOR WITH 451 FS RESPONSE AT 1.55 μm VIA TWO-PHOTON ABSORPTION. *Elec. Lett.*, 35(2):173–174, 1999.

- [83] E.R. BROWN, K.A. McINTOSH, UND F.W. SMITH. COHERENT MILLIMETER-WAVE GENERATION BY HETERODYNE CONVERSION IN LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS PHOTOCONDUCTORS. *J. Appl. Phys.*, 73(3):1480–1484, 1993.
- [84] E.R. BROWN, K.A. McINTOSH, K.B. NICHOLS, UND C.L. DENNIS. PHOTOMIXING UP TO 3.8 THZ IN LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS. *Appl. Phys. Lett.*, 66:285–287, 1995.
- [85] S. VERGHESE, K.A. McINTOSH, UND E.R. BROWN. OPTICAL AND TERAHERTZ POWER LIMITS IN LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS PHOTOMIXERS. *Appl. Phys. Lett.*, 71:2743–2745, 1997.
- [86] U. KELLER, K.J. WEINGARTEN, F.X. KÄRTNER, D. KOPF, UND B. BRAUN. SEMICONDUCTOR SATURABLE ABSORBER MIRRORS (SESAM'S) FOR FEMTOSECOND TO NANOSECOND PULSE GENERATION IN SOLID-STATE LASERS. *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, 2:435–458, 1996.
- [87] H. QUAST. UNTERSUCHUNG PHOTOKONDUKTIVER EMITTER ZUR ERZEUGUNG VON DAUERSTRICH THZ-STRAHLUNG. DIPLOMARBEIT, J.W. GOETHE-UNIVERSITÄT, FRANKFURT, 2001.
- [88] K. SIEBERT, G. SEGSCHNEIDER, H. QUAST, H.G. ROSKOS, S. TAUTZ, P. KIESEL, G.H. DÖHLER, UND V. KROZER. AN OPTOELECTRONIC CW THZ SOURCE FOR IMAGING APPLICATIONS. IN *Proceedings of THz conference, Darmstadt*, 2000.
- [89] S. VERGHESE, K.A. McINTOSH, UND E.R. BROWN. HIGHLY TUNABLE FIBER-COUPLED PHOTOMIXERS WITH COHERENT TERHERTZ OUTPUT POWER. *IEEE Trans. Microwave Theory and Techniques*, 45:1301–1309, 1997.
- [90] C.A. BALANIS. *Antenna Theory*. WILEY & SONS, 1982.
- [91] PROF. KROZER. PRIVATE MITTEILUNG.
- [92] C. JAGADISH, H.H. TAN, J. JASINSKI, M. KAMINSKA, M. PALCZEWSKA, A. KROTKUS, UND S. MARCINKEVICIUS. HIGH RESISTIVITY AND PICOSECOND LIFETIME OF GAAS IMPLANTED WITH MEV GA IONS AT HIGH FLUENCES. *Appl. Phys. Lett.*, 67:1724–1726, 1995.
- [93] C. JAGADISH, H.H. TAN, K.P. KORONA, M. KAMINSKA, A. KROTKUS, UND S. MARCINKEVICIUS. ULTRAFast CARRIER TRAPPING IN HIGH ION IMPLANTED GALLIUM ARSENIDE. *Appl. Phys. Lett.*, 68(16):2225–2227, 1996.

- [94] M. HAIML, U. SIEGNER, UND E.R. WEBER. FEMTOSECOND RESPONSE TIMES AND HIGH OPTICAL NONLINEARITY IN BERYLLIUM-DOPED LOW-TEMPERATURE GROWN GAAS. *Appl. Phys. Lett.*, 74:1269–1271, 1999.
- [95] A. KROTKUS, K. BERTULIS, UND S. MARCINKEVICIUS. ULTRAFAST CARRIER TRAPPING IN BE-DOPED LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS. *Appl. Phys. Lett.*, 75:3336–3338, 1999.
- [96] D.E. SPENCE, P.N. KEAN, UND W. SIBBETT. 60-FSEC PULSE GENERATION FROM A SELF-MODE-LOCKED TI:SAPPHIRE LASER. *Opt. Lett.*, 16(42), 1991.
- [97] L. XU, C. SPIELMANN, F. KRAUSZ, UND R. SZIPÖCS. ULTRABROADBAND RING OSCILLATOR FOR SUB-10-FS PULSE GENERATION. *Opt. Lett.*, 21:1259–1275, 1996.
- [98] A. BARTELS. *Entwicklung von Femtosekundenlasern mit Repetitionsraten oberhalb 1 GHz und ihre Anwendungen*. DISSERTATION, RWTH AACHEN, 2001.
- [99] A.E. SIEGMAN. *Lasers*. UNIVERSITY SCIENCE BOOK, 1986.
- [100] F. SIEBE, K. SIEBERT, UND H.G. ROSKOS. A FULLY TUNABLE DUAL-COLOR CW TI: AL₂O₃ LASER. *Ieee J. Quant. Electron.*, 35:1731, 1999.
- [101] M. STRAHNEN. *Konzeption, Realisierung und Einsatz eines schnellen Datenerfassungs- und Datenverarbeitungssystems in der optischen Kurzzeitspektroskopie*. DISSERTATION, RWTH AACHEN, 1990.
- [102] F. GANIKHANIV, K.C. BURR, UND C.L. TANG. ULTRAFAST DYNAMICS OF HOLES IN GAAS PROBED BY TWO-COLOR FEMTOSECOND SPECTROSCOPY. *Appl. Phys. Lett.*, 73(1):64–66, 1998.
- [103] A.M. KIM, S. HUNSCHE, T. DEKORSY, UND K. KÖHLER. TIME-RESOLVED STUDY OF INTERVALENCE BAND THERMALIZATION IN A GAAS QUANTUM WELL. *Appl. Phys. Lett.*, 68:2956–2958, 1996.
- [104] M. FÖRST, G. SEGSCHNEIDER, T. DEKORSY, UND K. KÖHLER. MID-GAP ELECTRO-OPTIC DETECTION OF BLOCH OSCILLATIONS. *Phys. Rev. B*, 61:R10563–R10566, 2000.
- [105] A. YARIV. *Quantum Electronics*. JOHN WILEY, 1989.
- [106] G.C. CHO UND W.A. KÜTT. SUBPICOSECOND TIME-RESOLVED COHERENT-PHONON OSCILLATION IN GAAS. *Phys. Rev. Lett.*, 65:764–766, 1990.

-
- [107] F. JACOB. QUELLEN UND DETEKTIONSVERFAHREN FÜR LASERERZEUGTE INTENSIVE THZ-PULSE. DIPLOMARBEIT, J.W.-GOETHE UNIVERSITÄT FRANKFURT, 2000.
- [108] Q. WU, M. LITZ, UND X.-C. ZHANG. BROADBAND DETECTION CAPABILITY OF ZNTE ELECTRO-OPTIC FIELD DETECTORS. *Appl. Phys. Lett.*, 68:2924–2926, 1996.
- [109] S. DANKOWSKI. *Non-Stoichiometric (Al)GaAs as a Key Material for Ultrafast Electronics and Optics - Static and Dynamic Investigation of Electroabsorption*. DISSERTATION, FRIEDRICH-ALEXANDER-UNIVERSITÄT, ERLANGEN, 1998.
- [110] M. CHANG, J.W. PAN, J.CHYI, K.C. HSIEH, UND T.E. NEE. EFFECT OF COLUMN III VACANCY ON ARSENIC PRECIPITATION IN LOW-TEMPERATURE GROWN III-V ARSENIDES. *Appl. Phys. Lett.*, 72(5):587–589, 1998.
- [111] A. CLAVERIE UND Z. LILIENTAL-WEBER. STRUCTURE AND ORIENTATION OF AS PRECIPITATES IN GAAS. *Philos. Mag. A*, 65:981–1002, 1992.
- [112] T. DEKORSY, T. PFEIFER, UND W. KÜTT. SUBPICOSECOND CARRIER TRANSPORT IN GAAS SURFACE-SPACE-CHARGE FIELDS. *Phys. Rev. B*, 47:3842–3849, 1993.
- [113] T. DEKORSY, H. KURZ, X.Q. ZOU, UND K. PLOOG. INVESTIGATION OF FIELD, CARRIER, AND COHERENTE PHONON DYNAMICS IN LOW-TEMPERATURE GROWN GAAS. *Appl. Phys. Lett.*, 63:2899–2901, 1993.
- [114] P.Y. YU UND M. CARDONA. *Fundamentals of Semiconductors Physics and Material Properties*. SPRINGER-VERLAG, BERLIN, 1999.
- [115] T. DEKORSY. *Kohärente und inkohärente Ladungsträger- und Gitterdynamik in Halbleitern und Halbleiterheterostrukturen*. DISSERTATION, RWTH AACHEN, 1997.
- [116] TODD HOLDEN, W.D. SUN, FRED H.POLLAK, J.L. FREEOUF, D. MCINTURFF, UND J.M. WOODALL. REFLECTION ANISOTROPY SPECTROSCOPY STUDY OF THE NEAR-SURFACE ELECTRIC FIELDS IN UNDOPED, N- AND P-DOPED LOW-TEMPERATURE GROWN GAAS (001). *Phys. Rev. B*, 58(12):7795–7798, 1998.
- [117] I.H. MALITSON, F.V. MURPHY, UND W.S. RODNEY. REFRACTIVE INDEX OF SYNTHETIC SAPHIRE. *J. opt. Soc. Am.*, 48:72–73, 1958.

- [118] M. UEMATSU, P. WERNER, M. SCHULTZ, T.Y. TAN, UND U. M. GÖSELE. SULFUR DIFFUSION AND THE INTERSTITIAL CONTRIBUTION TO ARSENIC SELF-DIFFUSION IN GAAS. *Appl. Phys. Lett.*, 67:2863–2865, 1995.
- [119] M. NISOLI, S. DE SILVESTRI, A. CAVALLERI, A.M. MALVEZZI, A. STELLA, G. LANZANI, P. CHEYSSAC, UND R. KOFMAN. COHERENT ACOUSTIC OSCILLATIONS IN METALLIC NANOPARTICLES GENERATED WITH FEMTOSECOND OPTICAL PULSES. *Phys. Rev. B*, 55(20):R13424–R13427, 1997.
- [120] D.D. NOLTE. OPTICAL SCATTERING AND ABSORPTION BY METAL NANOCUSTER IN GAAS. *J. Appl. Phys.*, 76(6):3740–3745, 1994.
- [121] N. HOZHABRI, S.H. LEE, UND K. ALAVI. INFRARED MEASUREMENTS IN ANNEALED MOLECULAR BEAM EPITAXY GAAS GROWN AT LOW TEMPERATURE. *Appl. Phys. Lett.*, 66:2546–2548, 1995.
- [122] R.I. DEVLEN, J. KUHL, UND K. PLOOG. PLASMON-PHONON COUPLING AND HOT CARRIER RELAXATION IN GAAS AND LOW TEMPERATURE GROWN GAAS. *Ultrafast Phenomena*, VIII, 1992.
- [123] R. TOMMASI, P. LANGOT, UND F. VALLEE. FEMTOSECOND HOLE THERMALIZATION IN BULK GAAS. *Appl. Phys. Lett.*, 66:1361–1363, 1995.
- [124] P. GRENIER UND J. F. WHITAKER. SUBBAND GAP CARRIER DYNAMICS IN LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS. *Appl. Phys. Lett.*, 70(15):1998–2000, 1997.
- [125] G. SEGSCHNEIDER, T. DEKORSY, H. KURZ, R. HEY, UND K. PLOOG. ENERGY RESOLVED ULTRAFast RELAXATION DYNAMICS IN LOW-TEMPERATURE GROWN GAAS CLOSE TO THE BAND EDGE. *Appl. Phys. Lett.*, 71:2779–2782, 1997.
- [126] T. DEKORSY, G. SEGSCHNEIDER, A.M.T. KIM, UND S. HUNSCHE. NONLINEAR OPTICS IN SEMICONDUCTORS AND MULTIPLE QUANTUM WELLS. *Pure and Applied Optics*, 7:313–318, 1998.
- [127] S. JOHN UND C.H. GREIN. INSTANTONS, POLARONS, LOCALIZATION AND THE URBACH OPTICAL ABSORPTION EDGE IN DISORDERED SEMICONDUCTORS. *Rev. of Sol. Stat. Science*, 4:1–59, 1990.
- [128] F. URBACH. THE LONG-WAVELENGTH EDGE OF PHOTOGRAPHIC SENSITIVITY AND OF THE ELECTRONIC ABSORPTION OF SOLIDS. *Phys. Rev.*, 92:1324–1331, 1953.

-
- [129] S.R. JOHNSON UND T. TIEDJE. TEMPERATURE DEPENDENCE OF THE URBACH EDGE IN GAAS. *J. Appl. Phys.*, 78:5609–5613, 1995.
- [130] C.W. GREEFF UND H.R. GLYDE. ANOMALOUS URBACH TAIL IN GAAS. *Phys. Rev. B*, 51:1778–1783, 1995.
- [131] J.A. KASH, J.C. TSANG, UND J.M. HVAM. SUB-PICOSECOND TIME-RESOLVED RAMAN SPECTROSCOPY OF LO PHONONS IN GAAS. *Phys. Rev. Lett.*, 54:2151–2154, 1985.
- [132] D.D. NOLTE, M.R. MELLOCH, J.M. WOODALL, UND S.J. RALPH. ENHANCED ELECTRO-OPTIC PROPERTIES OF LOW-TEMPERATURE-GROWTH GAAS AND ALGAAS. *Appl. Phys. Lett.*, 62:1356–1358, 1993.
- [133] D.D. NOLTE. SEMI-INSULATING SEMICONDUCTOR HETEROSTRUCTURES: OPTOELECTRONIC PROPERTIES AND APPLICATIONS. *J. Appl. Phys.*, 85(9):6259–6289, 1999.
- [134] M. VOSSEBÜRGER. PRIVATE MITTEILUNG.
- [135] H.T. GRAHN, C. THOMSEN, UND J. TAUC. INFLUENCE OF INTERFERENCE ON PHOTOINDUCED CHANGES IN TRANSMISSION AND REFLECTION. *Opt. Comm.*, 58:226–230, 1986.
- [136] S. HUNSCHE UND H. HEESEL. INFLUENCE OF REFLECTIVITY ON FEMTOSECOND TRANSMISSION SPECTROSCOPY OF THIN GAAS FILMS. *Opt. Commun.*, 109:258, 1994.
- [137] N. HOZHABRI, J. C. MONTOYA, UND K. ALAVI. PHOTOCURRENT STUDY OF MOLECULAR BEAM EPITAXY GAAS GROWN AT LOW TEMPERATURE. *J. Appl. Phys.*, 87:2353–2356, 2000.
- [138] A. DARGYS UND J. KUNDROTAS. *Handbook on Physical Properties of Ge Si GaAs and InP*. SCIENCE AND ENCYCLOPEDIA, 1994.
- [139] V.V. CHALDYSHEV, P.N. BRUNKOV, A.V. CHERNIGOVSKII, UND A. MOSKALENKO. CAPACITANCE SPECTROSCOPY OF N-I-N AND P-I-P GAAS SANDWICH STRUCTURES WITH NANOSCALE AS CLUSTERS IN THE I-LAYERS. IN T. MAREK, EDITOR, *III. Symposium On Non-Stoichiometric III-V Compounds*, VOLUME 21, PAGE 54. PHYSIK MIKROSTRUKTURIERTER HALBLEITER, 2001.
- [140] Z.Q. FANG UND D.C. LOOK. PROMINENT THERMALLY STIMULATED CURRENT TRAP IN LOW-TEMPERATURE-GROWN MOLECULAR BEAM EPITAXIAL GAAS. *Appl. Phys. Lett.*, 63(2):219–221, 1993.

- [141] M. TANI, K.-S. LEE, UND X.-C. ZHANG. DETECTION OF TERAHERTZ RADIATION WITH LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS-BASED PHOTOCONDUCTIVE ANTENNA USING 1.55 μM PROBE. *Appl. Phys. Lett.*, 77:1396–1398, 2000.
- [142] E.O. GÖBEL, H. JUNG, J. KUHL, UND K. PLOOG. RECOMBINATION ENHANCEMENT DUE TO CARRIER LOCALIZATION IN QUANTUM WELL STRUCTURES. *Phys. Rev. Lett.*, 51:1588–1591, 1983.
- [143] J.Y. BIGOT, J.C. MERLE, O. CREGUT, UND A. DAUNOIS. ELECTRON DYNAMICS IN COPPER METALLIC NANOPARTICLES PROBED WITH FEMTOSECOND OPTICAL PULSES. *Phys. Rev. Lett.*, 75(25):4702–4705, 1995.
- [144] G. SEGSCHNEIDER, F. JAKOB, T. LÖFFLER, H.G. ROSKOS, S. TAUTZ, P. KIESEL, UND G. DÖHLER. FREE-CARRIER DYNAMICS IN LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS AT HIGH EXCITATION DENSITIES INVESTIGATED BY TIME-DOMAIN THZ SPECTROSCOPY. *Phys. Rev. B*, 2002. IM DRUCK.
- [145] G. SEGSCHNEIDER UND H.G. ROSKOS. DYNAMICS OF MOBILE CARRIERS IN LT-GAAS AT HIGH EXCITATION DENSITIES. IN T. MAREK, EDITOR, *III. Symposium On Non-Stoichiometric III-V Compounds*, VOLUME 21, PAGES 80–86. PHYSIK MIKROSTRUKTURIERTER HALBLEITER, 2001.
- [146] H.-M. HEILIGER, M. VOSSEBÜRGER, H.G. ROSKOS, R. HEY, UND K. PLOOG. APPLICATION OF LIFTOFF LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS ON TRANSPARENT SUBSTRATES FOR THZ SIGNAL GENERATION. *Appl. Phys. Lett.*, 69:2903–2905, 1996.
- [147] S.M. SZE. *Physics of Semiconductor Devices*. WILEY & SONS, 1981.
- [148] U. STRAUSS, W.W. RÜHLE, UND K. KÖHLER. AUGER RECOMBINATION IN INTRINSIC GAAS. *Appl. Phys. Lett.*, 62(1):55–57, 1992.
- [149] T.I. JEON, D. GRISCHKOWSKY, A.K. MUKHERJEE, UND R. MEON. ELECTRICAL CHARACTERIZATION OF CONDUCTING POLYPYRROLE BY THZ TIME-DOMAIN SPECTROSCOPY. *Appl. Phys. Lett.*, 77(16):2452–2454, 2000.
- [150] S.S. PRABHU, S.E. RALPH, M.R. MELLOCH, UND E.S. HARMON. CARRIER DYNAMICS OF LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS OBSERVED VIA THZ SPECTROSCOPY. *Appl. Phys. Lett.*, 70(18):2419–2421, 1997.
- [151] N. KATZENELLENBOGEN UND D. GRISCHKOWSKY. ELECTRICAL CHARACTERIZATION TO 4 THZ OF N- AND P-TYPE GAAS USING THZ TIME-DOMAIN SPECTROSCOPY. *Appl. Phys. Lett.*, 61:840–842, 1992.

-
- [152] M. SCHALL UND P.U. JEPSEN. PHOTOEXCITED GAAS SURFACE STUDIED BY TRANSIENT TERAHERTZ TIME-DOMAIN SPECTROSCOPY. *Opt. Lett.*, 25:13–15, 2000.
- [153] K.P. LUI UND F.A. HEGMANN. ULTRAFAST CARRIER RELAXATION IN RADIATION-DAMAGED SILICON ON SAPPHIRE STUDIED BY OPTICAL-PUMP-TERAHERTZ-PROBE EXPERIMENTS. *Appl. Phys. Lett.*, 78:3478–3480, 2001.
- [154] M.V. KLEIN. *Optics*. JOHN WILEY & SONS, 1986.
- [155] F.W. WISE, I.A. WALMSLEY, UND C.L. TANG. EXPERIMENTAL DETERMINATION OF HOT-CARRIER SCATTERING PROCESSES IN ALX GA_{1-X}AS. *Appl. Phys. Lett.*, 51:605–607, 1987.
- [156] M. STELLMACHER, J.P. SCHNELL, D. ADAM, UND J. NAGEL. PHOTOCONDUCTIVITY INVESTIGATION OF THE ELECTRON DYNAMICS IN GAAS GROWN AT LOW TEMPERATURE. *Appl. Phys. Lett.*, 74(9):1239–1241, 1999.
- [157] H. NEMEC, A. PASHKIN, P. KUZEL, UND I. WILKE. CARRIER DYNAMICS IN LOW-TEMPERATURE GROWN GAAS STUDIED BY THZ EMISSION SPECTROSCOPY. *J. Appl. Phys.*, 78:2003–2007, 2001.
- [158] N. ZAMDNER, Q. HU, UND S. VERGHESE. INCREASE IN RESPONSE TIME OF LOW-TEMPERATURE-GROWN GAAS PHOTOCONDUCTIVE SWITCHES AT HIGH VOLTAGE BIAS. *Appl. Phys. Lett.*, 75:2313–2315, 1999.
- [159] B.E. SERNELIUS. GENERALIZED DRUDE APPROACH TO THE CONDUCTIVITY RELAXATION TIME DUE TO ELECTRON-HOLE COLLISIONS IN OPTICALLY EXCITED SEMICONDUCTORS. *Phys. Rev. B*, 40(18):12438–12440, 1989.
- [160] K. SIEBERT. PRIVATE MITTEILUNG.
- [161] E. YABLONOWITCH, D.M. HWANG, T.J. GMITTER, L.T. FLOREZ, UND J.P. HARBISON. VAN DER WAALS BONDING OF GAAS EPITAXIAL LIFTOFF FILMS ONTO ARBITRARY SUBSTRATES. *Appl. Phys. Lett.*, 56(24):2419–2421, 1990.
- [162] M. HEILIGER. *Einsatzmöglichkeiten von dünnen abgelösten niedertemperaturgewachsenen GaAs-Filmen im (Sub)-Millimeterbereich*. DISSERTATION, RWTH AACHEN, 1998.
- [163] E. HECHT. *Optics*. ADDISON-WESLEY PUBLISHING COMPANY, 1974.
- [164] M. BORN UND E. WOLF. *Principles of Optics*. PERGAMON PRESS, OXFORD, 6TH EDITION EDITION, 1980.

Danksagung

Diese Arbeit konnte nur durch die Mithilfe vieler entstehen. Zu aller erst möchte ich mich bei Herrn Prof. Roskos für sein mir entgegengebrachtes Vertrauen und die Möglichkeit zur Fertigstellung dieser Arbeit bedanken.

Mein Dank gilt auch Herrn Prof. Aßmus für die Übernahme des Zweitgutachtens. Für gute wissenschaftliche Zusammenarbeit möchte ich die Gruppe um Herrn Prof. Döhler aus Erlangen und insbesondere Sönke Tautz, Peter Kiesel und Christian Steen hervorheben. Für die Bereitstellung von LTG GaAs-Proben bedanke ich mich herzlich bei Herr R. Hey vom Paul-Drude-Institut in Berlin. Die TEM-Untersuchungen für diese Arbeit sind dankenswerterweise von Frau M. Luysberg durchgeführt worden.

Für alle verwaltungstechnischen Aufgaben und zahlreichen nützlichen Tips bei der Überwindung organisatorischer Probleme war Frau Marion Jordan unersetzlich.

Allen Roskosianern gilt mein ausdrücklicher Dank nicht nur für die fachliche Unterstützung sondern auch für die angenehme Atmosphäre in der Gruppe. Erwähnen möchte ich ausdrücklich Karsten Siebert, Tobias Bauer, Thorsten Hofmann, Thorsten Löffler, Pablo Richter, Holger Quast, Marc Thomson, Robert Sachs, Frank Jacob, Anne Beate Hummel, Johanna Kolb, Kai Rönning und Markus Abt. Zahlreiche Cafe-Bauer-Missionen sowie neuartige Eiskreationen haben die Lebensqualität nie unter Null sinken lassen.

Ohne die Unterstützung meiner Eltern und Geschwister wäre diese Arbeit nicht möglich gewesen: Herzlichen Dank.

Mein tiefster Dank gilt meiner Frau Michaela und meinen Kindern Esther und Linus. Danke für alles, was ihr bereit wart, auf Euch zu nehmen.

Lebenslauf

Name : Gregor Segschneider
Geboren am : 13. Juli 1967
In : Rheydt

Ausbildung

1974–1978 : Besuch der Katholische Grundschule Erkelenz
1978–1987 : Besuch des Cusanus-Gymnasiums Erkelenz
1987–1888 : Grundwehrdienst
10/1988–05/1995 : Studium der Physik an der RWTH Aachen.
Diplomarbeit bei Prof. Stahl am Institut
für Theoretische Festkörperphysik. Thema:
Quantenoptik in Halbleitern: Vergleich von
semiklassischer und voll quantisierter
Beschreibung
08/1995–03/1998 : wissenschaftlicher Angestellter am
Institut für Halbleitertechnik II der RWTH Aachen
04/1998–10/1999 : Netzwerkbetreuung und -umstrukturierung am
Institut für Halbleitertechnik II
11/1999–04/2001 : wissenschaftlicher Angestellter am
Physikalischen Institut der Johann
Wolfgang–Goethe Universität Frankfurt am Main
seit 12/2001 : angestellt bei der Firma GiKOM-CSE in Bonn