

Masterarbeit

# Spektroskopie an Ge-basierten Halbleiterstrukturen auf Silizium

von

Kolja Kolata

aus

Bremen



Marburg, November 2010

Erstgutachter: PD Dr. Sangam Chatterjee  
Zweitgutachter: Prof. Dr. S. W. Koch





# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>9</b>
<b>2</b>	<b>Die Proben</b>	<b>11</b>
2.1	Probenstruktur . . . . .	11
2.2	Die Bandstruktur . . . . .	12
2.2.1	Bloch-Wellenfunktionen . . . . .	12
2.2.2	Die LCAO Methode . . . . .	13
2.3	Die Zustandsdichte . . . . .	15
2.4	Exzitonen . . . . .	17
2.5	Verspannung . . . . .	18
<b>3</b>	<b>Das Experiment</b>	<b>21</b>
3.1	Das Messprinzip . . . . .	21
3.2	Die Details des Aufbaus . . . . .	23
3.2.1	Der Verstärker . . . . .	24
3.2.2	Die Optisch Parametrische Verstärkung . . . . .	25
3.2.3	Die Weisslichterzeugung . . . . .	26
3.2.4	Die Datenerfassung . . . . .	26
<b>4</b>	<b>Der AC Stark Effekt</b>	<b>27</b>
4.1	AC Stark Effekt in GaAs . . . . .	27
4.1.1	„Bekleidete Exzitonen“ und ihre Auswirkung . . . . .	28
4.1.2	Halbleiter-Bloch-Gleichungen . . . . .	30
4.1.3	Die abnormale Rotverschiebung und ihre Herkunft . . . . .	32
4.2	Der Gigantische AC Stark Effekt in Germanium . . . . .	34
4.2.1	Einfluss der Intensität . . . . .	34
4.2.2	Einfluss der Verstimmung . . . . .	39
4.2.3	Hochenergetische Anregung . . . . .	41
4.3	Zusammenfassung . . . . .	44
<b>5</b>	<b>Heiße Löcher</b>	<b>47</b>
5.1	Grundlagen der heißen Ladungsträger . . . . .	47
5.2	Experimentelle Messungen . . . . .	51

## Inhaltsverzeichnis

5.3	Zusammenfassung . . . . .	55
<b>6</b>	<b>Optische Verstärkung</b>	<b>57</b>
6.1	Einleitung . . . . .	57
6.2	Grundlagen . . . . .	58
6.3	Experimentelles . . . . .	59
6.4	Zusammenfassung . . . . .	62
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>63</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>65</b>





# 1 Einleitung

Im Zeitalter des Internets existiert eine ständige Nachfrage nach höheren Übertragungsraten und größerer Bandbreite. Deshalb setzt man nun schon seit 20 Jahren bei der Kommunikation zwischen den Hauptverteilen auf die Vorzüge des Lichts. Die Hauptvorteile sind dabei die Geschwindigkeit, der hohe verfügbare Frequenzbereich und die nichtvorhandene Wechselwirkung zwischen zwei Signalen. Bei konventionellen Netzwerken und bei der Intra- und Interchipkommunikation basiert die Signalverarbeitung allerdings immer noch auf elektrischer Signalübertragung. Für eine integrierte optische Datenverarbeitung sind drei Bauteile essentiell: eine monochromatische Lichtquelle (Laser), einen optischen Modulator und einen Photodetektor. Dabei sind die in der Telekommunikation hauptsächlich verwendeten beiden Wellenlängen  $\lambda = 1310 \text{ nm}$  (O<sup>1</sup>-Band) und  $\lambda = 1550 \text{ nm}$  (C<sup>2</sup>-Band) zu berücksichtigende Randbedingungen bei der Realisierung dieser Bauelemente.

Unglücklicherweise erweist sich Silizium als vollkommen ungeeignet für diese Anforderungen. Die indirekte Bandstruktur von Silizium macht eine Laseraktivität durch Inversion am direkten Bandübergang unmöglich. Nur mit höchster Anstrengung, in Form eines Raman-Lasers, ist es gelungen, einen indirekten Siliziumlaser zu fertigen [46]. Dieser ist allerdings höchst ineffizient und benötigt deswegen sehr hohe Anregungsintensitäten. Zusätzlich ist dieser auch nur geringfügig miniaturisierbar, wodurch er sich nicht wesentlich von einem Off-Chip Konzept mit externem Laser unterscheidet. Auch ein optischer Modulator rein auf Siliziumbasis lässt sich auf Grund der sehr schwachen Pockel-, Kerr- und Franz-Keldysh-Effekte bei den Telekommunikationswellenlängen nicht effizient umsetzen [52, 45]. Ähnliches gilt für den Photodetektor, da die Bandlücke von Silizium bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 1100 \text{ nm}$  liegt und unterhalb dieser Silizium nur durch sehr ineffiziente Mehrphotonenprozesse absorbiert. Um dennoch die kosteneffizienten Vorteile, wie die CMOS<sup>3</sup>-Kompatibilität der Siliziumtechnik zu nutzen und eine optische Datenverarbeitung zu ermöglichen, bedarf es einem weiteren Materialsystem, welches sich gleichzeitig auf Silizium integrieren lässt und den optischen Anforderungen entspricht.

Im Jahre 1984 gelang es Luryi et al. [37] zum ersten Mal Germanium epitaktisch auf Silizium zu wachsen. Die dort proklamierte Wachstumsmethode wurde entscheidend

---

<sup>1</sup>„O“ = original

<sup>2</sup>„C“ = conventional auch „Erbium Fenster“

<sup>3</sup>CMOS = Complementary Metal Oxide Semiconductor

## Einleitung

von Fitzgerald et al. [18] weiterentwickelt, so dass man heutzutage in der Lage ist Germanium homogen auf Silizium zu wachsen. Germanium ist wie Silizium ein Gruppe IV-Halbleiter, ebenfalls indirekt und auch mit der CMOS-Technik kompatibel. Sie unterscheiden sich allerdings bei der Lage der Bandkante, die bei Germanium bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 1550$  nm liegt und somit genau in dem C-Band. Dies führte zu einer Reihe von Fortschritten auf dem Gebiet der Siliziumphotonik. So konnte im Jahre 2000 der erste Germaniumphotodetektor monolithisch integriert auf Silizium präsentiert werden [11] und in den folgenden Jahren bezüglich der Bandbreite und des Dunkelstroms erheblich verbessert werden [25, 1]. Auch bei der Entwicklung optischer Modulatoren auf Siliziumbasis erhielt die Germaniumtechnologie Einzug: So gelang es Kuo et al. einen solchen Germaniummodulator unter Ausnutzung des Quantum Confined Stark Effekt zu realisieren [29]. Schließlich gelang es dann Lange et al. im Jahre 2009 transiente optische Verstärkung (transient gain<sup>4</sup>) in Germanium Quantenfilmen nachzuweisen und auch der Nachweis von stationärer optischer Verstärkung (CW<sup>5</sup> gain) folgte kurz darauf [30, 36]. Nur ein Jahr später gelang die erste Präsentation eines optisch angeregten Germaniumlasers auf Silizium von Liu et al. [35].

Diese rasante Entwicklung in den letzten Jahren zeigt das große Potential von Germanium für die erfolgreiche Umsetzung der Siliziumphotonik. Trotzdem steht die optische Charakterisierung von Germanium noch am Anfang. Bisher wurden nur sehr wenige Ultrakurzzeitmessungen an Germanium durchgeführt [30, 31], was durchaus verwunderlich ist. Schließlich unterscheidet sich das indirekte Germanium physikalisch erheblich vom direkten GaAs, welches im Gegensatz zu Germanium ausführliche Ultrakurzzeitanalysen erfahren hat. Mit Hilfe einer rigorosen Ultrakurzzeitanalyse lässt sich also nicht nur das Potential des Germaniums für die Siliziumphotonik näher ergründen, sondern sie liefert auch neue Erkenntnisse fundamentaler Art.

Das Ziel dieser Arbeit ist es einen kleinen Teil dieser großen Lücke zu schließen und drei der vier existierenden Zeitregimes nach einer optischen Anregung näher zu beleuchten. Die untersuchten Zeitregimes sind dabei das kohärente Regime, das Regime der heißen Ladungsträger und das quasi-stationäre Regime. Die dadurch gewonnenen Erkenntnisse sollen weiteren Aufschluss über das Potential von Germanium als Materialsystem für die Siliziumphotonik geben und den gewonnenen positiven Eindruck der letzten Jahre untermauern.

---

<sup>4</sup>gain = Verstärkung

<sup>5</sup>CW = continuous wave

## 2 Die Proben

Dieses Kapitel befasst sich mit der Struktur der verwendeten Germanium Proben. Das besondere Interesse liegt dabei auf der elektronischen Bandstruktur von Germanium, die sich auf Grund ihrer indirekten Eigenschaft fundamental von den optisch sehr gut untersuchten Materialsystemen wie GaAs unterscheidet. Es wird im Folgenden auch auf die physikalischen Phänomene der in der linearen Absorption der Probe auftauchenden Effekte kurz eingegangen.

### 2.1 Probenstruktur

Der Fokus der Arbeit liegt auf der Untersuchung der optischen Eigenschaften von Germanium. Die dafür verwendeten Proben ist sowohl die Mehrfachquantenfilm Probe mit der Nummer #8009 als auch die Volumenmaterial Probe mit der Nummer #56427. Das Wachstum dieser Proben erfolgte mit Hilfe der Gasphasenepitaxie, bei der während der Wachstumsphase die Probe mit einem niederenergetischen Argonplasma bestrahlt wird. Der Vorteil dieser mit LEPECVD<sup>1</sup> abgekürzten Methode, ist das gezielte Einstellen der Wachstumsgeschwindigkeit, die jetzt primär vom Argonionenstrom abhängt [47]. Bei der Probe #8009 dient als Substrat ein Silizium(001)-Kristall auf dem dann eine  $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$  Pufferschicht mit graduierlich steigender Germaniumkonzentration gewachsen wird. Der Germaniumanteil wächst dabei von  $x = 0$  bis auf  $x = 0.9$  an. Die Gesamtdicke der Pufferschicht beträgt am Ende  $13 \mu\text{m}$ . Danach wird eine  $2 \mu\text{m}$  dicke  $\text{Si}_{0.1}\text{Ge}_{0.9}$  Schicht auf den Puffer gewachsen, um die Qualität des virtuellen Substrats zu erhöhen. Schließlich werden abwechselnd die  $14 \text{ nm}$  dicken, verspannten Germanium Quantenfilme und die  $20 \text{ nm}$  dicken  $\text{Si}_{0.15}\text{Ge}_{0.85}$  Barrieren mit insgesamt 50 Quantenfilmen auf das virtuelle Substrat gewachsen. Bei dieser verspannungsangepassten Wachstumsmethode, werden die SiGe-Barrieren tensil und die Quantenfilme kompressiv verspannt. Im Gegensatz zur Probe #8009 wird bei der Probe #56427 eine  $1 \mu\text{m}$  Dicke Germaniumschicht unter kontrolliertem Phosphoreinbau direkt auf das Silizium gewachsen. Durch den Phosphoreinbau erzielt man eine n-Dotierung des Germaniums, dessen Zweck im Kapitel (6) näher erläutert

---

<sup>1</sup>LEPECVD=Low-Energy Plasma-Enhanced Chemical Vapor Deposition

## Die Proben

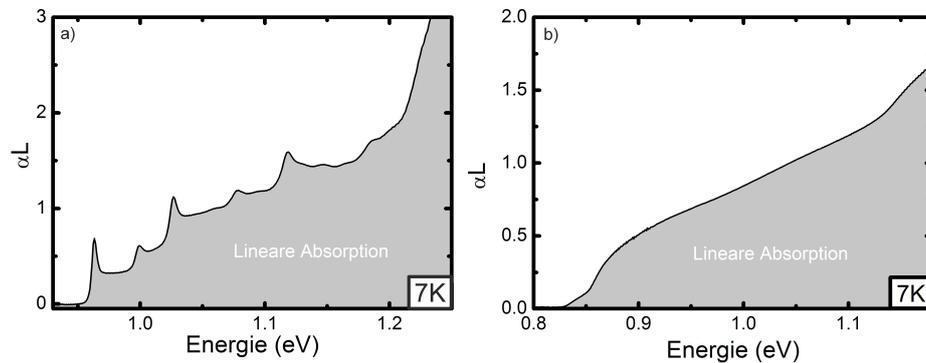


Abbildung 2.1: Lineare Absorptionen der Proben #8009 (Abbildung (a)) und #56427 (Abbildung (b)) bei einer Temperatur von 7 K.

wird. Zusätzlich wird die 1  $\mu\text{m}$  dicke Germaniumschicht beim Wachstum gezielt tensil verspannt. Nähere Erläuterungen zur tensilen Verspannung erfolgen am Ende des Kapitels.

## 2.2 Die Bandstruktur

In der Abbildung (2.1) sind die linearen Absorptionsspektren der zwei verschiedenen Germaniumproben zu sehen. Auffällig ist bei der linearen Absorption der Probe #8009 die ausgeprägte Stufenform und die starken Resonanzen an den Stufenkanten. Bei der Probe #56427 ist die schwache, langsam zu höheren Energien ansteigende Absorption unterhalb der Absorptionskante bemerkenswert. Für das Verständnis der einzelnen Übergänge ist die elektronische Bandstruktur von Germanium unentbehrlich.

### 2.2.1 Bloch-Wellenfunktionen

Germanium gehört zu den Gruppe IV Halbleitern und weist eine Diamantkristallstruktur mit rein kovalenten Bindungen auf. Auf Grund der Symmetrieeigenschaften einer solchen Kristallstruktur, gehört Germanium der Raumgruppe  $O_h^7$  an. Elektronen die sich nun in einem solchen periodischen Potential bewegen, können an Hand von Bloch-Wellenfunktionen beschrieben werden:

$$\phi_{n,k}(\mathbf{r}) = u_{n,k}(\mathbf{r})e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}, \quad (2.1)$$

## Die Bandstruktur

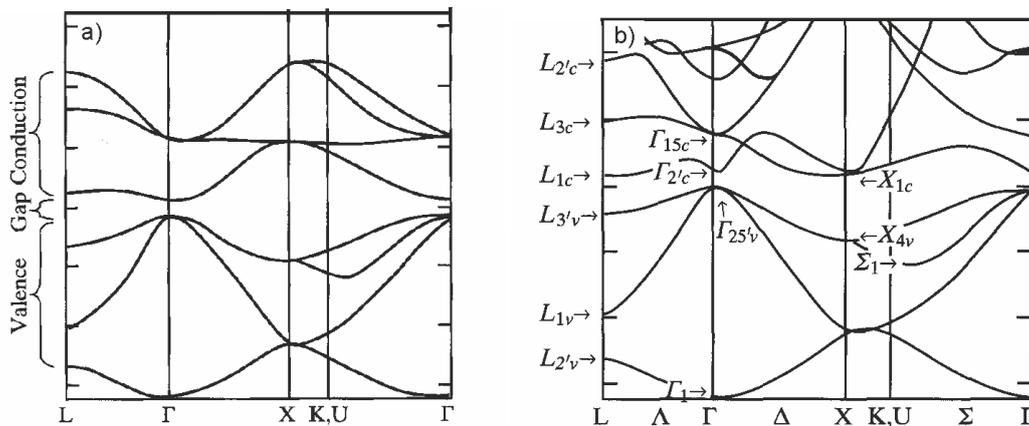


Abbildung 2.2: Die LCAO Bandstrukturberechnung für Germanium ist in Abbildung (a) zu sehen. Sie zeigt eine sehr gute Übereinstimmung mit der gemessenen Bandstruktur in Abbildung (b).

wobei  $u_{n,k}(\mathbf{r})$  eine periodische Funktion entsprechend der Kristallstruktur ist. In der LCAO<sup>2</sup>-Methode zur Berechnung der Bandstruktur von Germanium kommen die Bloch-Wellenfunktionen erfolgreich zum Einsatz.

### 2.2.2 Die LCAO Methode

Die LCAO Methode geht von den Orbitalwellenfunktion einzelner Germanium Atome aus, die ganz nah zusammengeschoben werden bis die Abstände zwischen zwei Atomen vergleichbar mit der Gitterkonstante von Germanium ist. Dadurch überlappen die einzelnen Orbitalwellenfunktionen und bilden die für Festkörper typischen Energiebänder aus. Der Ansatz der LCAO Methode besteht darin, dass der Hamilton Operator des Gesamtsystems sich zusammensetzt aus der Summe der ungestörten Hamilton Operatoren der einzelnen Atome ( $H_{Atom_i}$ ) und den zusätzlichen Wechselwirkungstermen ( $W_{ijkl}$ ):

$$H_{ges} = \sum_l H_{Atom_l} + \frac{1}{4} \sum_{i \neq j \neq k \neq l} W_{ijkl}. \quad (2.2)$$

Die Wellenfunktionen des ungestörten Hamilton Operators ( $H_0 = \sum_l H_{Atom_l}$ ) lassen sich nun aus Linearkombinationen der einzelnen atomaren Wellenfunktionen konstruieren. Auf Grund der Translationssymmetrie des Kristalls können die Wellenfunktio-

<sup>2</sup>LCAO = Linear Combination of Atomic Orbitals auch als Tight-Binding-Methode bekannt.

## Die Proben

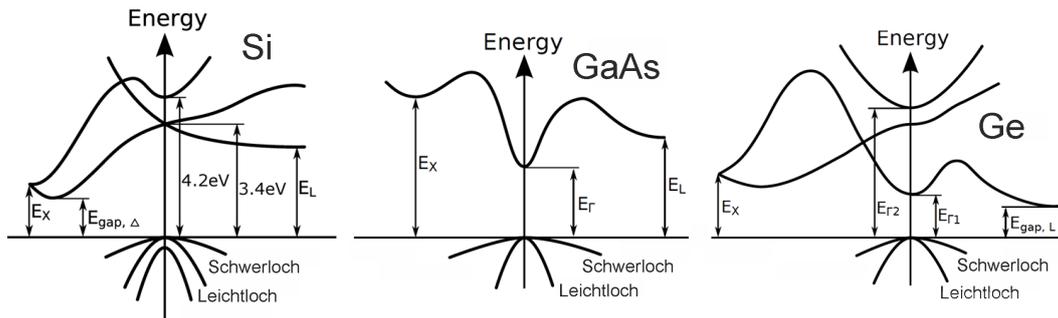


Abbildung 2.3: Die Bandstrukturen von GaAs, Si und Ge weisen erhebliche Unterschiede auf. Si und Ge sind im Gegensatz zu GaAs indirekt, wobei Ge allerdings ein lokales Minimum am  $\Gamma$ -Punkt besitzt.

nen als Blochwellenfunktionen geschrieben werden:

$$\Phi_{mlk} = \sum_l e^{ik \cdot r_l} \phi_{Atom_{ml}}(\mathbf{r}_l), \quad (2.3)$$

wobei  $\Phi_{mlk}$  die Blochwellenfunktion für den Zustand  $m$  und dem Gitterplatz  $l$  ist. Der Ansatz für die Wellenfunktionen des gesamten Hamilton Operators ( $H_{ges}$ ) wird aus Linearkombinationen der Wellenfunktionen aus Gl. (2.3) konstruiert und lässt sich wie folgt schreiben:

$$\Psi_k = \sum_{m,l} C_{ml} \Phi_{mlk}. \quad (2.4)$$

Die Wellenfunktionen des gesamten Hamilton Operators lassen sich nun mit Hilfe des Ansatzes in Gl. (2.4) bestimmen. Eine solche Bandstrukturberechnung im Vergleich zu einer gemessenen Bandstruktur für Germanium ist in Abbildung (2.2) gezeigt. Bei der Berechnung wurden nur die  $s^2$  und die  $p^6$  Elektronen betrachtet, außerdem wurden nicht alle Einheitszellen berücksichtigt, sondern ausgehend von einem Atom lediglich die nächsten Nachbarn. Trotz dieser Annahmen stimmt die berechnete Bandstruktur mit der Gemessenen sehr gut überein. In Abbildung (2.3) sind die Bandstruktur von Germanium, Silizium und GaAs gegenübergestellt. GaAs wird auf Grund der globalen Extrema von Valenz- und Leitungsband am  $\Gamma$ -Punkt als direkter Halbleiter bezeichnet. Sowohl Silizium als auch Germanium weisen dagegen eine indirekte Bandstruktur auf, jedoch besitzt die Bandstruktur von Germanium gegenüber der von Silizium ein lokales Leitungsband-Minimum am  $\Gamma$ -Punkt. Deswegen wird Germanium auch als quasi-direkter Halbleiter bezeichnet. Für eine Probe #8009 ähnliche Quantenfilmprobe wurde mit Hilfe der LCAO Methode die Bandstruktur bestimmt, mit welcher man dann die einzelnen optischen Übergänge berechnen konnte (siehe Abbildung (2.4)) [7].

## Die Zustandsdichte

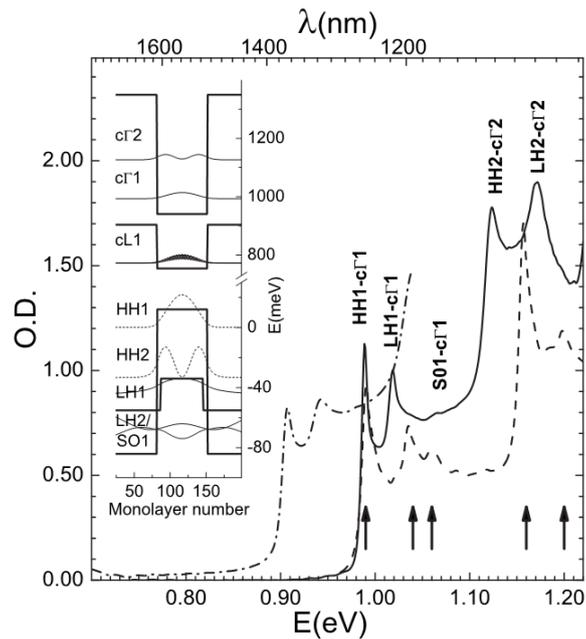


Abbildung 2.4: LCAO-Berechnung zur #8009 ähnlichen Quantenfilmprobe. Die einzelnen Übergänge der Subbänder können so direkt identifiziert werden. (aus Ref. [7])

## 2.3 Die Zustandsdichte

Mit Hilfe der Zustandsdichte (DOS<sup>3</sup>) lässt sich der unterschiedliche Verlauf der in Abbildung (2.1) gezeigten linearen Absorptionen erklären. Die DOS ist definiert durch die Anzahl der Zustände  $N(E)$  pro Energieintervall  $[E, E + dE]$ :

$$D(E) = \frac{dN(E)}{dE}. \quad (2.5)$$

Entgegen dem von der Bandstruktur suggeriertem Bild der kontinuierlichen  $k$ -Zustände, sind diese in der Realität diskret. Dies ist ein direktes Resultat aus der periodischen Struktur des Kristallgitters, wobei die erlaubten  $k$ -Werte z.B. in  $x$ -Richtung  $\pm 2n\pi/L$  mit  $n = 1, 2, 3, \dots, n$  sind.  $L$  ist dabei die Länge der Einheitszelle des Kristallgitters. Im Triplet  $(k_x, k_y, k_z)$  entfällt dann genau ein erlaubter Wellenvektor auf das Volumenelement  $(2\pi)/L^3$  im dreidimensionalen  $k$ -Raum. Folglich ist die Zustandsdichte im  $k$ -Raum mit  $D(k) = V/(2\pi)^3$  konstant, wobei  $V$  das Volumen der Einheitszelle ist. Das Integral über den  $k$ -Raum im gewünschten Energieintervall  $[E, E + dE]$

<sup>3</sup>DOS = Density of states

## Die Proben

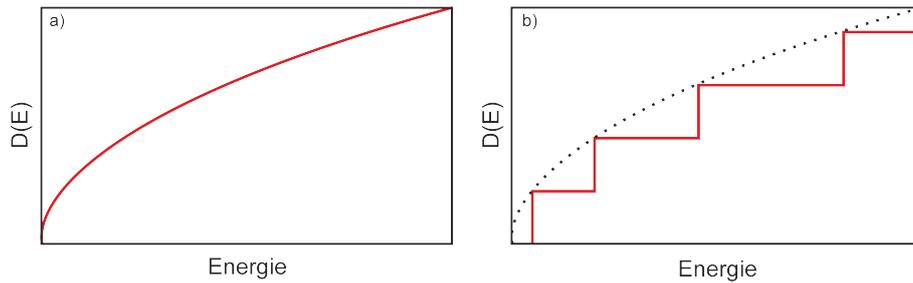


Abbildung 2.5: Abbildung (a) zeigt die Zustandsdichte für ein dreidimensionales Elektronengas. In Abbildung (b) ist die stufenförmige Zustandsdichte eines Quantentopfs gezeigt.

multipliziert mit der Zustandsdichte liefert die Gesamtzahl der erlaubten Zustände:

$$N = \frac{V}{(2\pi)^3} \int_{k(E)}^{k(E+dE)} dk. \quad (2.6)$$

Bei einem dreidimensionalen freien Elektronengas im Grundzustand füllen die Elektronen im  $k$ -Raum eine Kugel mit dem entsprechenden Volumen  $4\pi k^3/3$  und der Energie  $E(k) = \hbar^2 k^2/2m$ . Nach einsetzen in Gl. (2.6) und unter Verwendung von Gl. (2.5) erhält man dann für die Zustandsdichte  $D(E)$ :

$$D(E) = \frac{V}{2\pi^2} \left( \frac{2m}{\hbar^2} \right)^{3/2} \sqrt{E}. \quad (2.7)$$

In Abbildung (2.5) ist die Zustandsdichte über die Energie aufgetragen. Man kann sehr gut die Ähnlichkeit zur linearen Absorption des Volumenmaterials #56427 erkennen.

Bei der Quantenfilmprobe #8009 existieren in Wachstumsrichtung nur wenige Atomlagen des Germaniums, wodurch sich für die Ladungsträger die Anzahl der räumlichen Freiheitsgrade ändert. So können die Ladungsträger sich nur noch in der  $(x,y)$ -Ebene frei bewegen, während sie in  $z$ -Richtung „confined“<sup>4</sup> sind. Dieses Confinement erzielt man bei Schichtdicken unterhalb des Exziton-Bohrradius, welcher in Germanium bei 24 nm liegt [38]. Im Idealfall verhält sich der Quantenfilm in  $z$ -Richtung wie ein Quantentopf mit unendlich hohen Barrieren, wodurch sich die aus Quantenmechanik Einführungsbüchern bekannten diskreten Energieniveaus mit den zugehörigen stehenden Wellen ausbilden. Die Energieeigenwerte sind dann gegeben durch:

$$E_n(k) = E_{n_z} + \frac{\hbar^2(k_x^2 + k_y^2)}{2m} \quad \text{mit } n = 1, 2, 3, \dots, n. \quad (2.8)$$

<sup>4</sup>confined = eingeschränkt; in ihrer Bewegung eingeschränkt

## Exzitonen

Bei jedem höheren  $n$  beginnt ein neues Subband mit konstanter Zustandsdichte (siehe Abbildung (2.5)). Dadurch erklärt sich die Stufenform der linearen Absorption von der Probe #8009. Jedoch können die starken Resonanzen am Anfang eines jeden Übergangs nicht mit diesem Modell reproduziert werden. Der Grund liegt bei der vernachlässigten Coulomb-Wechselwirkung, die in Form von Exzitonen zusätzlich gebundene Zustände hervorruft.

## 2.4 Exzitonen

Die Coulomb-Wechselwirkung führt zu gebundenen Elektron-Loch-Paar Zuständen, welche Exzitonen genannt werden. Diese Quasiteilchen besitzen in typischen Halbleitern, wie Germanium, eine wesentlich höheren Bindungsradius als die Einheitszelle des Kristalls. Auf Grund dieser Voraussetzung können die Exzitonen in der Wannier-Näherung beschrieben werden [57]. Die Wellenfunktion lässt sich in die Schwerpunktswellenfunktion des Exzitons und die Relativwellenfunktion der Elektronen und Löcher aufteilen. Die Schwerpunktswellenfunktion des Exzitons ist eine Bloch-Welle ähnlich dem des freien Elektrons, während die Relativwellenfunktion der Wellenfunktion des Wasserstoff-atoms entspricht. Für die Exzitonenbindungsenergie mit entsprechendem Exziton-Radius im Bohr'schen Atommodell gilt:

$$E_{Exziton} = -\frac{\hbar}{2m_r a_B^2} \frac{1}{n^2} \quad \text{mit} \quad a_B = \frac{\epsilon_0 \epsilon \hbar^2}{m_r e^2}. \quad (2.9)$$

Die entscheidenden Unterschiede gegenüber des Wasserstoffatoms liegen vor allem in der dielektrischen Konstante  $\epsilon$  des Halbleitermaterials und der reduzierten Masse  $m_r$  von Elektronen und Löchern (die im Gegensatz zu Elektron und Proton ähnlich große effektive Massen besitzen). Die Bindungsenergie des Exzitons in Germanium wird in der Literatur mit  $E_{Exziton} = 1.3 \text{ meV}$  angegeben [39]. In Analogie zum Wasserstoffatom werden die einzelnen Zustände mit 1s, 2p, etc. bezeichnet. Die einfache Annahme in Gl.(2.9) würde allerdings scharfe Absorptionslinien erwarten, was offensichtlich nicht der Fall ist.

Eine rigorose quantenmechanische Behandlung des Problems mit Berücksichtigung der Exzitonlebensdauer und den verschiedenen Übergangswahrscheinlichkeiten liefert die Elliott-Formel [17]. Wie in Abbildung (2.6) zu sehen ist, beschreibt sie das Absorptionsverhalten qualitativ richtig. Im Gegensatz zur Theorie sind in der vermessenen Probe lediglich die 1s-Zustände zu beobachten, außerdem überlappen die Resonanzen mit den Kontinuumszustände auf Grund von starker inhomogener Verbreiterung durch Streuung an Störstellen.

## Die Proben

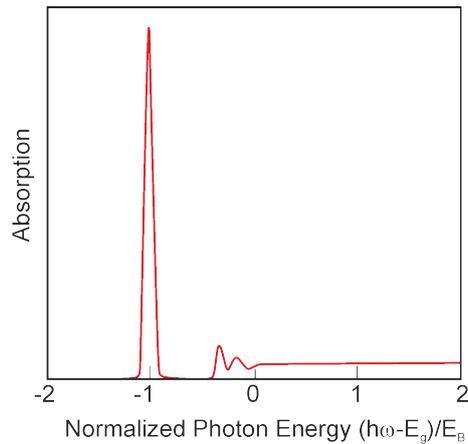


Abbildung 2.6: Berechnete Bandkantenabsorption mit Hilfe der Elliot-Formel. Neben der starken 1s-Resonanz sind zusätzlich noch höherenergetische Niveaus sichtbar, welche man in der Probe nicht beobachten konnte. (Abbildung aus Ref. [44])

## 2.5 Verspannung

Die Gitterkonstanten von Silizium und Germanium unterscheiden sich um 4%, wobei die Gitterkonstante von Germanium mit  $5.68 \text{ \AA}$  größer ist. Eingangs in der Wachstumsbeschreibung wurde erwähnt, dass sich die Verspannung des Germaniummaterials in beiden Proben unterscheidet. In der Quantenfilmprobe existiert eine kompressive Verspannung, während in dem Volumenmaterial das Germanium tensil verspannt ist. Grundsätzlich führt eine Verspannung des Kristallgitters immer zu einer Änderung der Eigenenergien der jeweiligen Bloch-Wellenfunktionen und somit zu einer Änderung der Bandstruktur. Theoretische Berechnungen zeigen, dass eine tensile Verspannung eine energetische Erniedrigung der Valenz- zu Leitungsbandübergänge am  $\Gamma$ - und L-Punkt hervorruft [15]. Bemerkenswert ist dabei die unterschiedlich stark ausgeprägte Abnahme der Energielücke der beiden Punkte. So wird ab einer tensilen Verspannung von etwa 2% ein energetisch globales Minimum am  $\Gamma$ -Tal erwartet (siehe Abbildung (2.7)). Natürlich hat die Verspannung auch einen Einfluss auf die Valenzbänder und auch dort spalten die vorher am  $\Gamma$ -Punkt entarteten Leicht- und Schwerlochbänder auf [23, 15]. So wird bei hohen tensilen Verspannungen ein direkter Übergang vom Leichtlochband zum  $\Gamma$ -Leitungsband erwartet (siehe Abbildung (2.7)). Die Spaltung zwischen Leicht- und Schwerlochband ist auch die Erklärung für das niederenergetische lokale Maximum vor der Bandkante bei der linearen Absorption von Probe #56427 (Abbildung (2.1)). Dieses lokale Maximum ist ein Resultat des Leichtlochübergangs, welcher auf Grund der geringeren DOS am  $\Gamma$ -Punkt eine verminderte Absorptionstärke aufweist als der höherenergetische Schwerlochübergang.

## Verspannung

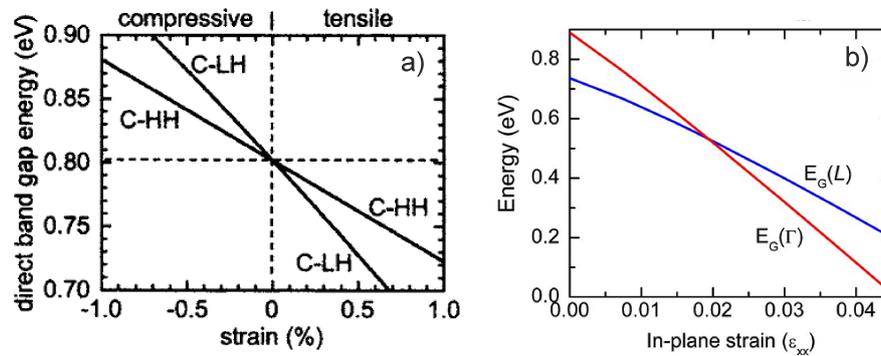


Abbildung 2.7: Die beiden Graphen zeigen den energetischen Verlauf der Valenz- und Leitungsbänder unter Einfluss von einer planaren Verspannung im Germaniumgitter. Ab einer tensilen Verspannung von 2.2% wird das Germanium direkt (aus Ref. [23, 15]).

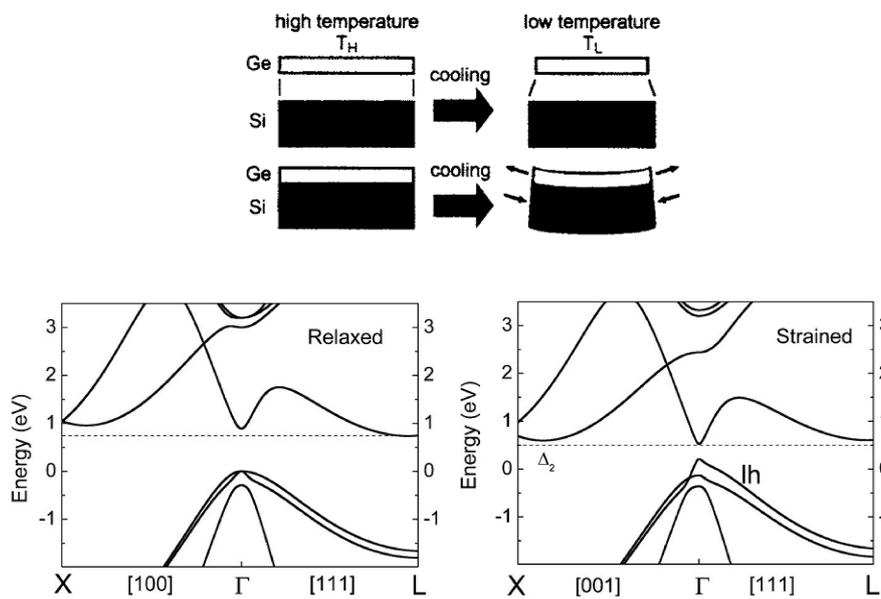


Abbildung 2.8: Oberes Bild: Prinzip des Wachstumsverfahrens zur Einstellung der tensilen Verspannung. Untere Bilder: Resultat der tensilen Verspannung auf die Bandstruktur von Germanium (aus Ref. [23, 15]).

## Die Proben

Die kompressive Verspannung bewirkt einen umgekehrten Effekt und verstärkt die energetische Differenz zwischen L- und  $\Gamma$ -Punkt. Die tensile Verspannung ist somit die präferierte Disposition, aber auf Grund der größeren Gitterkonstante von Germanium gegenüber der von Silizium nur durch ein geschicktes Wachstumsverfahren zu erzielen: Der Ausdehnungskoeffizient von Germanium ist größer als der von Silizium und diese Diskrepanz nutzt man beim Wachstum aus. Bei hohen Temperaturen werden die beiden Materialien quasi-morphologisch aufeinander gewachsen und danach rapide abgekühlt. Die folgende Abnahme der Gitterkonstante von Germanium in planarer Ebene wird nun von der Abnahme der Gitterkonstante im Silizium moderiert. Die Gitterkonstante von Germanium in Wachstumsrichtung ist davon unbeeinträchtigt, wodurch eine Anisotropie zwischen den beiden Gitterkonstanten induziert wird. Effektiv bleibt dabei in planarer Ebene nach der Abkühlung eine tensile Verspannung übrig (siehe Abbildung (2.8)) [23]. Die kompressive Verspannung in der Quantenfilmprobe ist im Gegensatz zur tensilen Verspannung eine direkte Konsequenz aus den unterschiedlichen Gitterkonstanten der beiden Materialien.

## 3 Das Experiment

Sämtliche Experimente in dieser Arbeit basieren auf der Anrege-Abfrage-Spektroskopie (engl.: pump-probe-spectroscopy). Dieses nichtlineare optische Verfahren eignet sich besonders gut zur Analyse der Ladungsträgerdynamik und der optischen Verstärkung innerhalb eines Materialsystems. Dieses Kapitel widmet sich den Prinzipien und den Details des Aufbaus und erklärt die dahinterliegenden physikalischen Eigenschaften.

### 3.1 Das Messprinzip

Das Verfahren der Anrege-Abfrage-Spektroskopie bedient sich eines recht simplen Prinzips: Im typischen Fall wird das System durch Anregung mit Licht aus seinem Gleichgewichtszustand gebracht und dann dabei beobachtet, wie es in seinen Gleichgewichtszustand zurückkehrt. Als anschauliches Beispiel möchte ich hier die Schneekugel anführen, die man in jedem Souvenirladen findet: Das Schütteln der Kugel führt dem System Energie zu und die entstehenden Strömungen innerhalb der Kugel bringen die Plastikflöckchen zum Tanzen. Nun kann man mit Hilfe einer Kamera die Relaxationsdynamik der Plastikflöckchen verfolgen und mögliche Rückschlüsse auf die Hydrodynamik des Inneren der Kugel ziehen. Der Fokus dieser Arbeit liegt aber nicht auf Plastikflöckchen in einem Wassergemisch, sondern auf Ladungsträger in dem Halbleitermaterial Germanium. Die Dynamik dieser Ladungsträger spielt sich im Gegensatz zu dem Schneekugelexperiment aber nicht auf Sekundenskalen, sondern auf Femtosekundenskalen<sup>1</sup> ab. Um diese kurzzeitigen Prozesse auflösen zu können, benötigt man ein Ereignis das zeitlich ähnlich kurz bzw. noch kürzer ist. Glücklicherweise steht seit den 80er Jahren eine solche Technik in Form der gepulsten Femtosekundenlaser mit Impulslängen von etwa 100 fs zur Verfügung.

Zwei solcher Laserimpulse sind ausreichend für die Anrege-Abfrage-Spektroskopie. Beide Laserimpulse werden auf die Probe fokussiert, wobei der Eine den Halbleiter anregt und der Andere den Zustand des Halbleiters abfragt. Der anregende Laserimpuls ist vergleichbar mit dem Schüttelvorgang der Schneekugel, während der abfragende Laserimpuls die Funktion der Kamera übernimmt. Der Anregeimpuls

---

<sup>1</sup>1 Femtosekunde =  $1 \cdot 10^{-15}$  Sekunden

## Das Experiment

ist ein meist schmalbandiger ( $\Delta\lambda \approx 10 \text{ nm}$ ) Laserimpuls mit einer hohen Intensität ( $I_{pump} \approx 1 \cdot 10^{14} - 1 \cdot 10^{19} \text{ Photonen/cm}^2$ ), im Gegensatz zum Abfrageimpuls, welcher sehr breitbandig ist ( $\Delta\lambda > 900 \text{ nm}$ ) und nur einen kleinen Bruchteil der Intensität des Anregeimpulses besitzt. Gemessen wird dann die Änderung der Transmission die wie folgt gegeben ist:

$$\frac{\Delta T}{T} = \frac{|E_p(\omega)|_{mit \text{ Anregepuls}}^2 - |E_p(\omega)|_{ohne \text{ Anregepuls}}^2}{|E_p(\omega)|_{ohne \text{ Anregepuls}}^2}. \quad (3.1)$$

Wenn man kohärente Effekte vernachlässigt, kann man die Abnahme der Intensität mit dem Beer-Lambert Gesetz beschreiben [4]:

$$|E_p(\omega)|_{ohne \text{ Anregepuls}}^2 = |E_0|^2 e^{-\alpha L} \quad (3.2)$$

$$|E_p(\omega)|_{mit \text{ Anregepuls}}^2 = |E_0|^2 e^{-(\alpha L + \Delta\alpha L)}, \quad (3.3)$$

wobei  $L$  die Transmissionslänge im Medium,  $\alpha$  der lineare Absorptionskoeffizient und  $\Delta\alpha L$  die Änderung dieses Absorptionskoeffizienten sind. Die im Experiment gemessenen Größen (3.3) werden nach

$$- \ln \left( \frac{|E_p(\omega)|_{mit \text{ Anregepuls}}^2}{|E_p(\omega)|_{ohne \text{ Anregepuls}}^2} \right) = \Delta\alpha L \quad (3.4)$$

verrechnet und man erhält direkt die Änderung der Absorption durch die Anregung. Als qualitative Größe eignet sich  $\Delta\alpha L$  sehr gut, allerdings muss man für eine rigorose Analyse der kohärenten und inkohärenten Prozesse die Messgröße (3.1) in Betracht ziehen. Durch Einsetzen von (3.3) in (3.1) kann dann  $\Delta T/T$  sehr einfach aus den Messdaten ermittelt werden:

$$\frac{\Delta T}{T} = e^{-\Delta\alpha L} - 1. \quad (3.5)$$

In der Auswertung werden beide Größen auftauchen, je nachdem ob etwas qualitativ veranschaulicht werden soll (dafür ist  $\Delta\alpha L$  intuitiver), oder etwas quantitativ ausgewertet wird (hier eignet sich  $\Delta T/T$  als unveränderte Messgröße besser).

Da die Ladungsträgerdynamik in dieser Arbeit die zentrale Rolle spielt ist es notwendig  $\Delta T/T$  zeitaufgelöst zu vermessen. Die Laserquelle für den Anregeimpuls und den Abfrageimpuls („das Weisslicht“) ist die Selbe, so dass durch eine Änderung der Weglänge des Abfrageimpulses es zu einer zeitlichen Änderung des  $\Delta T/T$  -Signals kommt. Eine 1 m lange Verschiebestrecke mit vierfachem Strahldurchgang im Abfragearm ermöglicht es, einen Zeitbereich von 10 ns abzufahren, wobei die einzelnen Zeitschritte individuell einstellbar sind. Das letztendlich gemessene Signal ist somit  $\Delta T/T(\omega, t)$  und man erhält einen 2D-Falschfarbenplot. Typische  $\Delta\alpha L$ -Spektren für die angeregte Probe #8009 sind in Abbildung (3.1) zu sehen. Wobei hier lediglich die

## Die Details des Aufbaus

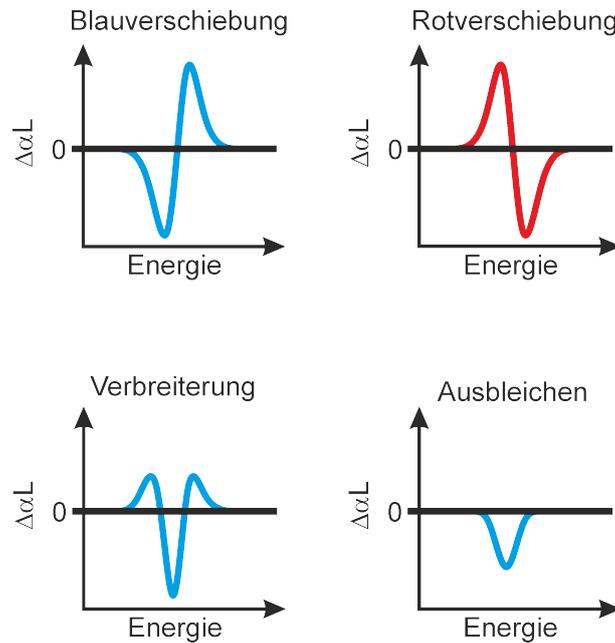


Abbildung 3.1: Typische differentielle Absorptionsspektren ( $\Delta\alpha L$ ) für eine angeregte Resonanz. Die gezeigten Spektren treten in der Realität meist in kombinierter Form auf, wodurch eine Linienform-Analyse notwendig ist den genauen Charakter des gemessenen Signals zu identifizieren.

Änderung eines einzelnen exzitonischen Zustandes gezeigt ist. Die in Abbildung (3.1) gezeigten Formen treten zumeist überlagert auf, so dass nur eine genaue Linienform-Analyse des  $\Delta\alpha L$ -Spektrums Aufschluss geben kann, ob man z. B. wirklich ein Ausbleichen gepaart mit einer Verbreiterung beobachtet, oder lediglich eine Verbreiterung ohne Ausbleichen. Dabei hilft eine Integration über das gesamte Signal: ist das Integral von null verschieden, liegt effektiv eine Änderung der Oszillatorstärke vor und somit ein Ausbleichen.

## 3.2 Die Details des Aufbaus

Der Aufbau des Experiments ist in Abbildung (3.2) gezeigt. Der Aufbau teilt sich in den Anrege und den Abfragearm auf, welche durch das regenerative Verstärkersystem gespeist werden. Das signifikante Element im Anregearm ist der optisch parametrische Verstärker (OPA<sup>2</sup>). Im Abfragearm sind die Verzögerungsstrecke und

<sup>2</sup>OPA = Optical Parametric Amplifier

## Das Experiment

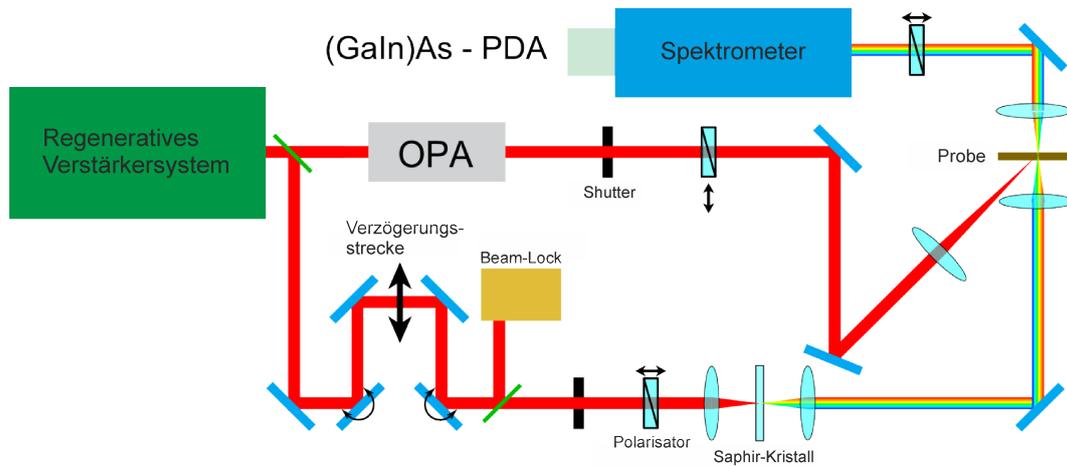


Abbildung 3.2: Skizze des Anrege-Abfrage-Spektroskopie Aufbaus.

der Korund<sup>3</sup>-Kristall zur Weisslichterzeugung die Hauptbestandteile. Die einzelnen Bestandteile des Experiments werden im Folgenden im Detail erklärt.

### 3.2.1 Der Verstärker

Als Lichtquelle des Experiments dient das Verstärkersystem des Typs „Spitfire“ von Spectra-Physics. Ein 80 MHz-Ti:Saphir Laser injiziert so genannte „Seed“ - Laserimpulse mit einer Zentralwellenlänge von  $\lambda_0 = 800$  nm und einer zeitlichen Halbwertsbreite von 100 fs in den Verstärker. Von den 80 Millionen Seed-Laserimpulsen pro Sekunde koppeln die Pockel-Zellen des Verstärkers lediglich jeden achtzigtausendsten in die Kavität ein, wo dieser dann optisch weiter verstärkt wird. Somit ergibt sich für das Verstärkersystem eine Repititionsrate von 1 kHz. Nach mehreren Kavitätsumläufen erreicht der Laserimpuls eine durchschnittliche Energie von 1 mJ und wird ausgekoppelt. Für eine stabile Strahlage sorgen zwei „Beam-Locks“<sup>4</sup> der Firma TEM, die nach dem Verstärkersystem und nach der Weisslichtverschiebstrecke positioniert sind.

<sup>3</sup> $Al_2O_3$

<sup>4</sup>Mit Hilfe von zwei Photodioden, die über eine Weglänge von einem halben Meter getrennt sind, zwei Piezogesteuerten Spiegeln und einer Steuereinheit lassen sich Strahlagenfluktuationen auf Grund von Konvektionsströmen herauskorrigieren.

### 3.2.2 Die Optisch Parametrische Verstärkung

Der zweite wesentliche Bestandteil in diesem Aufbau ist der OPA. Der OPA ist in der Lage, einen Anregeimpuls mit einer Zentralwellenlänge zwischen 600 nm und 2.7  $\mu\text{m}$  zu erzeugen. Dadurch wird einerseits eine hohe Flexibilität bezüglich der energetischen Struktur des Materialsystems gewährleistet, andererseits bietet der OPA auch einen weiteren freien Parameter, den man im Zuge des Experiments variieren kann. Die Funktionsweise des OPAs basiert auf dem optisch nichtlinearen  $\chi^2$  Prozess der parametrischen Verstärkung und benötigt somit einen Kristall mit einem nichtvorhandenen Inversionszentrum (wie in unserem Fall ein BBO<sup>5</sup>-Kristall). Bei der parametrischen Verstärkung werden in dem nicht entarteten Fall ein Pumpimpuls („Pump“) und ein Signalimpuls („Signal“) kollinear in den BBO-Kristall eingestrahlt. Beim Durchlaufen des Kristalls kommt es anfänglich zu einer Differenzfrequenz Erzeugung (DFG<sup>6</sup>) zwischen Pump- und Signalimpuls:

$$\omega_I = \omega_P - \omega_S. \quad (3.6)$$

Die DFG generiert einen weiteren, dritten Laserimpuls, genannt den „Idler“. In folgedessen werden Signal- und Idlerimpuls weiter verstärkt, während die Amplitude des Pumpimpulses abnimmt. In der einfachen, stationären Dispersionstheorie lässt sich dieser Vorgang wie folgt beschreiben:

$$\frac{\partial A_I}{\partial r} \propto \chi^2 A_S A_P e^{-i\Delta k r} \quad (3.7)$$

$$\frac{\partial A_S}{\partial r} \propto \chi^2 A_I A_P e^{-i\Delta k r} \quad (3.8)$$

$$\frac{\partial A_P}{\partial r} \propto -\chi^2 A_I A_S e^{+i\Delta k r}, \quad (3.9)$$

mit den komplexen Amplituden  $A_P, A_S, A_I$  und der Phasenfehlانpassung  $\Delta k = k_P - (k_S + k_I)$  von Pump, Signal und Idler [54]. Aus (3.9) geht hervor, dass die Phasenfehlانpassung entscheidend ist für die Konversionseffizienz. Auf Grund der Relation

$$k_i = \frac{\omega_i}{\nu_{Ph}} \quad \text{mit } i = P, I, S, \quad (3.10)$$

mit der Phasengeschwindigkeit  $\nu_{Ph}$ , sowie dem anisotropen Brechungsindex  $n$  von BBO-Kristallen ändern sich je nach Einstrahlwinkel die Kreisfrequenzen  $\omega_I$  und  $\omega_S$  für eine optimale Phasenfehlانpassung. Diese Eigenschaft ermöglicht das gezielte Einstellen der gewünschten Anregungsfrequenz.

<sup>5</sup> $\beta$ -Bariumborat;  $\beta - \text{BaB}_2\text{O}_4$

<sup>6</sup>Difference Frequency Generation

### 3.2.3 Die Weisslichterzeugung

Die Weisslichterzeugung ermöglicht es nicht nur einzelne, sondern alle relevanten Zustände abzufragen, ohne die sehr gute Zeitauflösung zu verlieren. Die für die Weisslichterzeugung notwendige  $\chi^3$ -Nichtlinearität ist die erste, nichtverschwindende Nichtlinearität von Korund-Kristallen. Ein darin propagierender Laserimpuls mit langsam ändernder Einhüllenden  $A(t, r)$  kann man in der ersten Ordnung der Dispersionsstheorie auf folgender Weise beschreiben:

$$\frac{\partial A(t, r)}{\partial r} + \frac{1}{\nu_G} \frac{\partial A(t, r)}{\partial t} \propto i\chi^3 |A(t, r)|^2 A(t, r). \quad (3.11)$$

Nach einer Koordinatentransformation  $\eta = t - r/\nu_G$  ist die Lösung von (3.11) gegeben durch:

$$A(\eta, r) \propto A_0(\eta) e^{ix^3 |A_0(\eta)|^2 r}. \quad (3.12)$$

Die Phase des propagierenden Laserimpulses ist dann gerade:

$$\varphi(\eta, r) = \chi^3 I_0(\eta) r. \quad (3.13)$$

Wenn man nun die zeitliche Ableitung der Phase berechnet erhält man die instantane Frequenz des Laserimpulses:

$$\delta\omega(\eta, r) = -\frac{\partial\varphi(\eta, r)}{\partial t} = -\chi^3 \frac{\partial I_0(\eta)}{\partial \eta} r. \quad (3.14)$$

Wie aus (3.14) ersichtlich ist, hängt die instantane Phase linear mit der zeitlichen Änderung der Intensität des Laserimpulses ab. Bei sehr hohen Intensitätsänderungen mit der Zeit, wie es bei bandbreitebegrenzten, 100 fs langen 80  $\mu$ J-Laserimpulsen der Fall ist, wird eine starke zeitliche Phasenänderung im transmittierten Laserimpuls induziert, die dann eine spektrale Verbreiterung hervorruft. Diese spektrale Verbreiterung umfasst mehrere hundert Nanometer, womit die Anforderung für ein ultrakurzzeit Weisslicht erfüllt wären.

### 3.2.4 Die Datenerfassung

Die Intensität des von der Probe transmittierten Abfrageimpulses wird mit Hilfe eines SpectraPRO 500i Spektrometers von ACTON spektral aufgelöst und mit einer Stickstoff gekühlten InGaAs-Photodiodenzeile (512 Pixel) erfasst. Je nach eingesetztem Gitter ist eine Auflösung von bis zu 0.1 nm möglich, der limitierende Faktor ist dabei allerdings die Pixelgröße der einzelnen Pixel in der Photodiodenzeile und nicht das Gitter selbst. Es wurde in dieser Arbeit das Gitter so gewählt, um eine möglichst spektral breite Analyse durchzuführen, wodurch die Auflösung des Messaufbaus auf 1 nm sank.

## 4 Der AC Stark Effekt

Optische Modulatoren sind essentielle Bestandteile einer angestrebten optischen Signalverarbeitung in integrierten Schaltkreisen. Eine mögliche Realisierung eines solchen Schalters ist die gezielte Manipulation der Bandkante von Germanium mit Hilfe des Stark Effekts. Der AC Stark Effekt bietet dabei einen schnellen Zugang zu den kohärenten Prozessen des Effekts und eignet sich dementsprechend gut für die Grundlagenforschung. Das folgende Kapitel gibt eine kurze Einführung in den sehr gut bekannten AC Stark Effekt in GaAs, und wird sich dann mit dem gigantischen AC Stark Effekt in Germanium beschäftigen.

### 4.1 AC Stark Effekt in GaAs

Der AC Stark Effekt<sup>1</sup> ist, wie der Name schon sagt, nach dem Entdecker des energetischen Schiebens und Aufspaltens der atomaren Spektrallinien bei einem angelegten elektrischen Feld, Johannes Stark benannt. Mit dem ursprünglichen Stark Effekt Experiment, wo ein elektrisches Feld mit Hilfe von Plattenkondensatoren angelegt wurde, lässt sich der AC Stark Effekt nur schwer vergleichen. Viel eher liegt der Vergleich mit der Lamb-Verschiebung nahe, bei dem spontan nichtresonante Photonen emittiert und reabsorbiert werden und es dadurch zu einer Verschiebung der atomaren Absorptionslinien kommt. Beim AC Stark Effekt erfolgt diese Verschiebung nicht spontan, sondern wird durch ein extern eingestrahltes, elektromagnetisches Feld induziert. Dieses Phänomen wurde an Atomen mit dem gesamten verfügbaren Frequenzbereich (Radiofrequenzen, Mikrowellen und auch Optisch) ausführlich in den 60er Jahren diskutiert [9, 32]. Im Zuge des steigenden Interesses für Halbleiter, auf Grund von neuartigen elektronischen Bauelementen, wie der Diode oder auch dem Transistor und der ersten Realisierung eines Lasers im Jahre 1960, wurden auch vermehrt optische Experimente an Halbleitern durchgeführt. Allerdings kam es erst im Jahre 1985 und 1986 zur ersten Beobachtung von Verschiebungen exzitonischer Resonanzen auf Grund von nichtresonanter optischer Anregung (Abbildung (4.1)) [19, 42]. Der in diesem Fall an GaAs Quantenfilmen gemessene AC Stark Effekt wurde mit

---

<sup>1</sup>auch bekannt unter dynamischen Stark Effekt

## Der AC Stark Effekt

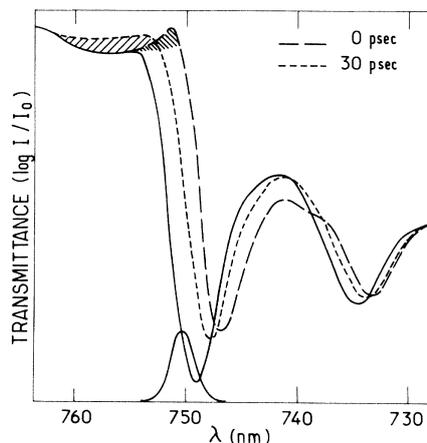


Abbildung 4.1: Exzitonische AC Stark Effektmessung von Mysyrowicz et al. an GaAs Mehrfachquantenfilmen. Das Experiment wurde bei 15 K und einer Anregeleistung von  $10^{10}$  W/cm<sup>2</sup> durchgeführt. Die maximale Blauverschiebung betrug dabei 5,5 meV.

Hilfe eines Femtosekundenlaserimpulses induziert. Das Schwerlohexziton (hh1-e1-Exziton) wird um etwa 5,5 meV zu höheren Energien blauverschoben und verliert dabei an Oszillatorstärke. Nachdem der Anregeimpuls das Medium verlassen hat, geht das System in seinen Ausgangszustand zurück. Nach ein paar Pikosekunden beobachtet man dann eine vollkommene Erholung des Systems.

Auf Grund der hohen Intensitäten, die bei diesem Experiment zu trage kommen, kann man das Problem nicht wie beim ursprünglichen Stark Effekt mit dem Formalismus der Störungsrechnung betrachten. Stattdessen bediente man sich anfangs des Bildes, der „Dressed-Atoms<sup>2</sup>“, welches schon sehr erfolgreich in der atomaren Spektroskopie seine Anwendung gefunden hat und für stark nichtresonante Anregung qualitativ richtige Ergebnisse liefert.

### 4.1.1 „Bekleidete Exzitonen“ und ihre Auswirkung

Der Formalismus des bekleideten Atoms fand seine erste Anwendung bei der Beschreibung von Fluoreszenz- und Absorptionsspektren von multilevel Atomen in starken elektromagnetischen Feldern [10]. Vorherige Phänomene in elektromagnetisch getriebenen 2-level Systemen wie z.B. den Autler-Townes Effekt [2] oder auch das Mollow-Triplet [40] lassen sich ganz natürlich mit dem Bild des bekleideten Atoms beschreiben.

<sup>2</sup>Dressed-Atoms = engl. Bekleidete Atome

## AC Stark Effekt in GaAs

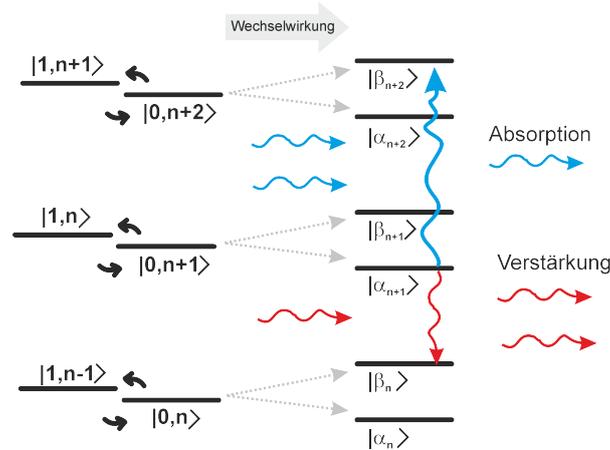


Abbildung 4.2: Die bekleideten Exzitonen: Die Exziton-Photon Wechselwirkung bewirkt eine Aufspaltung der quasi entarteten Zustände und bildet dabei neue Eigenzustände des Systems aus. Beim Abfragen der neuen Eigenzustände kommt es dann zu den jeweiligen Phänomenen der exzitonischen Blauverschiebung und auch der Verstärkung unterhalb der Bandkante.

Der Formalismus der bekleideten Atome kann nun in erster Näherung in Festkörpern auf Exzitonen übertragen werden, da sich die Übergänge der Exzitonen wie die der Wasserstoffatome verhalten. Diese „bekleideten Exzitonen“ geben eine Erklärung für die beobachtete Blauverschiebung der exzitonischen Schwerlochresonanzen, sowie die transiente optische Verstärkung ohne Besetzungsinversion unterhalb der Bandkante [42, 41]. Im Folgenden gibt es eine kurze Einführung in das Bild der bekleideten Exzitonen.

Der Grundzustand des Halbleitersystems ist hierbei gegeben durch  $|0, n\rangle$ , wobei 0 die Anzahl der Exzitonen und  $n$  die Anzahl der Photonen im System ist. Dieser Zustand ist quasi-entartet mit dem Zustand  $|1, n-1\rangle$ . Das gleiche gilt für die Zustände  $|0, n+1\rangle$  und  $|1, n\rangle$  und kann beliebig weitergeführt werden. Die quasi-entarteten Zustände ( $|0, n\rangle$ ,  $|1, n-1\rangle$ ) koppeln nun über die Exziton-Photon Wechselwirkung und bilden dann neue Eigenzustände ( $|\alpha_i\rangle$ ,  $|\beta_i\rangle$ ) im System aus (siehe Abbildung(4.2)). Bei starker Verstimmung der Anregungsenergie sind nur die  $|\alpha_i\rangle$ -Zustände besetzt [42].

Die einfallenden Abfrageimpulse fragen nun die neuen Eigenzustände  $|\alpha_i\rangle$  und  $|\beta_i\rangle$  des Systems ab. Somit kommt es zu einer Blauverschiebung der exzitonischen Resonanzen beim Übergang  $|\alpha_n\rangle \rightarrow |\beta_{n+1}\rangle$  und einer optischen Verstärkung unterhalb der Bandkante beim Übergang  $|\alpha_{n+1}\rangle \rightarrow |\beta_n\rangle$ . Die Aufspaltung der Eigenzustände ist dabei gegeben durch:

$$\hbar\Delta = \hbar [(\omega - \omega_0)^2 + \Omega^2]^{1/2}. \quad (4.1)$$

## Der AC Stark Effekt

Die Größe  $(\omega - \omega_0)$  ist die Verstimmung des Anregeimpulses gegenüber der Exzitonenresonanz und  $\Omega = \mu|E|/\hbar$  ist die Rabi-Frequenz mit dem effektiven Dipolmatrixelement  $\mu$  und dem Betrag des elektrischen Feldes des Anregeimpulses  $|E|$ .

Dieses Model der bekleideten Exzitonen liefert nahe resonanter, bei resonanter und oberhalb resonanter Anregungsenergien stark falsche Ergebnisse. Die Hauptannahmen in diesem Model, wie z. B. die Betrachtung des Exzitons als 2-level-System oder die homogene Verbreiterung des Exzitons, sind in der Realität nicht gegeben. Bei resonanter Anregung und Anregung oberhalb der Bandkante spielen zusätzlich noch die höherliegenden Niveaus sowie die Kontinuumszustände des Exzitons eine wichtige Rolle.

Zusätzlich werden wichtige Prozesse innerhalb des Halbleiters, die verantwortlich sind für die nichtlineare Antwort, bei diesem Modell vernachlässigt, was zu quantitativ falschen Ergebnissen führt. So sind die Streuraten der Atome in Gasen doch erheblich geringer als die Streuraten der Exzitonen und können somit nicht vernachlässigt werden. Zusätzlich spielen Korrelationseffekte zwischen den Exzitonen bei der nichtlinearen Antwort eine große Rolle [20]. Dieses Model eignet sich konsequenter Weise nur zur Veranschaulichung des Effekts und sollte nicht als theoretisch richtige Beschreibung strapaziert werden. Es benötigt also eine rigorose Vielteilchentheorie, um quantitativ richtige Ergebnisse zu erzielen.

### 4.1.2 Halbleiter-Bloch-Gleichungen

Eine sehr erfolgreiche Theorie, welche im Zuge der Beschreibung des AC Stark Effekts entwickelt wurde, sind die Halbleiter-Bloch-Gleichungen. Diese Gleichungen wurden mit Hilfe von verschiedenen Methoden abgeleitet: nichtgleichgewichts Greensfunktionen [48], Projektionsoperatoren [34] und einem Dichtematrix Formalismus [3]. Die Gleichungen für einen 2-Band Halbleiter gekoppelt an ein externes Feld in der Hartree-Fock Näherung sind gegeben durch:

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} P_k &= \left( \epsilon_k - i\gamma - 2 \sum_{k'} V_{k-k'} f_{k'} \right) P_k - \left( \mu E + \sum_{k'} V_{k-k'} P_{k'} \right) (1 - 2f_k) \\ \hbar \frac{\partial}{\partial t} f_k &= 2Im \left( \mu^* E P_k + \sum_{k'} V_{k-k'} P_{k'}^* P_k \right). \end{aligned} \quad (4.2)$$

Diese Differentialgleichungen sind Bewegungsgleichungen für die Funktionen der Interband Polarisation  $P_k$ , und der Verteilungsfunktion von Elektronen und Löchern  $f_k$ . Die Größe  $\gamma$  ist hierbei eine phänomenologische Dephasierungszeit und  $\epsilon_k$  die Dispersionsfunktion gegeben durch:  $\epsilon_k = \hbar^2 k^2 / 2m + E_{BI}$  mit der effektiven Elektron-Loch-Masse  $m$  und der Bandlücke  $E_{BI}$ . In den Gleichungen (4.2) wurde dabei die

## AC Stark Effekt in GaAs

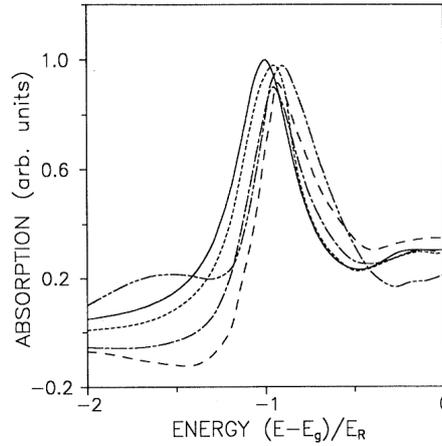


Abbildung 4.3: Exemplarische Theorieberechnung vom AC Stark Effekt für GaAs Volumenmaterial: Die einzelnen Kurven zeigen die Spektren für verschiedene zeitliche Verzögerungen zwischen Anrege- und Abfrageimpuls. (Abbildung aus Ref. [6])

Relation  $f_e = f_h = f$  angewandt, die in dem kohärenten Regime ohne Ladungsträgerstreuung gültig ist. Außerdem wurden Abschirmeffekte auf Grund von angeregten Ladungsträgern aus dem selben Grund vernachlässigt [48, 6].

Der Coulomb-Term  $\sum_{k'} V_{k-k'} P_{k'}$  ist verantwortlich für die exzitonischen Effekte, während der Term  $\sum_{k'} V_{k-k'} f_{k'}$  die Renormalisierung der Übergangsenergie beschreibt. Die Mischterme, die mehr als nur  $P_k$  oder  $f_k$  beinhalten, wie z. B.  $\sum_k V_{k-k'} P_{k'} f_k$  sind die Austauschbeiträge.

Das am Detektor gemessene Signal ist nach Ref. [3] wie folgt gegeben:

$$\alpha(\omega) \propto \frac{\text{Im}(\mu^* E_p^*(\omega) \sum_k \delta P(\mathbf{k}, \omega))}{|\mu E_p(\omega)|^2}, \quad (4.3)$$

wobei  $\delta P$  der Teil von  $P_k$  ist, der sich gerade in Richtung vom Abfrageimpuls ausbreitet. Durch numerisches Lösen der gekoppelten Differentialgleichung mit den im Experiment relevanten Parametern wie Anregeenergie, Impulslängen sowie die Dephasierungszeiten lassen sich für verschiedene zeitliche Verzögerungen zwischen Anrege- und Abfrageimpuls die entsprechenden Spektren berechnen. Solch eine theoretische Berechnung des AC Stark Effekts sieht man in Abbildung (4.3).

### 4.1.3 Die abnormale Rotverschiebung und ihre Herkunft

Die bisherigen Experimente beinhalteten keinerlei polarisationsabhängige Phänomene und wurden ausschließlich in „ko-linearer“ Polarisation ( $\uparrow\uparrow$ ) durchgeführt. Eine polarisationsabhängige Analyse von C. Sieh et. al. [51] in GaAs Quantenfilmen brachte ein überraschendes Ergebnis für die Versuchsanordnung in „gegenläufig-zirkularer“ Polarisation ( $\circ\circ$ ). Anstelle der im vorherigen Abschnitt gezeigten Blauverschiebung ergab die Messung für eine Anregung von 4,5 meV unterhalb des Exzitons eine Rotverschiebung der Resonanz, welches sich nicht als Biexzitonische Signatur herausstellt (Abbildung(4.4)). Diese Rotverschiebung kann bei theoretischer Betrachtung nicht durch die in Ref. [34] beschriebenen Halbleiter-Bloch Gleichungen in Hartree-Fock Näherung erklärt werden. Um die dahinterliegenden Prozesse der Rotverschiebung zu verstehen, muss man alle Terme im  $\chi^3$ -Limes in den Halbleiter-Bloch Gleichungen mit einbeziehen [8, 51, 27]. Die Grundstruktur dieser Gleichungen sieht wie folgt aus:

$$i\frac{\partial}{\partial t}P = \omega_P P + \mu E(1 - 2P^*P) + VP^*PP + VP^*B \quad (4.4)$$

$$i\frac{\partial}{\partial t}B = \omega_B B + VPP, \quad (4.5)$$

wobei  $P$  die Amplitude des Exzitons und  $B$  die Amplitude des Biexzitons ist mit den entsprechenden Energien  $\omega_P$  und  $\omega_B$ . Eine ausführliche Herleitung der Halbleiter-Bloch Gleichungen im  $\chi^3$ -Limes findet man in Ref. [33]. Aus Gl. (4.5) lassen sich die für den AC Stark Effekt entscheidenden optischen Nichtlinearitäten identifizieren: der Pauli-Blockade Term ( $\propto \mu EP^*P$ ), der Hartree-Fock Term ( $\propto VP^*PP$ , Coulomb Korrelationsterm erster Ordnung) und die Coulomb-Korrelationsterme höherer Ordnung ( $\propto VP^*B$ ). Anhand einer „Switch-off“ Analyse, in der systematisch die einzelnen nichtlinearen Terme ausgeschaltet werden, lassen sich deren Beitrag zur Verschiebung betrachten. So stellt sich heraus, dass der entscheidende Beitrag zur Rotverschiebung gerade vom Coulomb-Korrelationsterm höherer Ordnung stammt (siehe Abbildung (4.4)). Allerdings kommt der Beitrag nicht von der Bildung von Biexzitonen, wie früher angenommen [13], sondern vom sogenannten „Coulomb-Memory“-Effekt. Dieser Effekt tritt allerdings nur bei Anregung in einem geringen spektralen Fenster auf und setzt eine ausreichende energetische Differenz zwischen Schwer- und Leichtloch voraus (in Ref. [8]  $\Delta_{hh-lh} = 12$  meV).

## AC Stark Effekt in GaAs

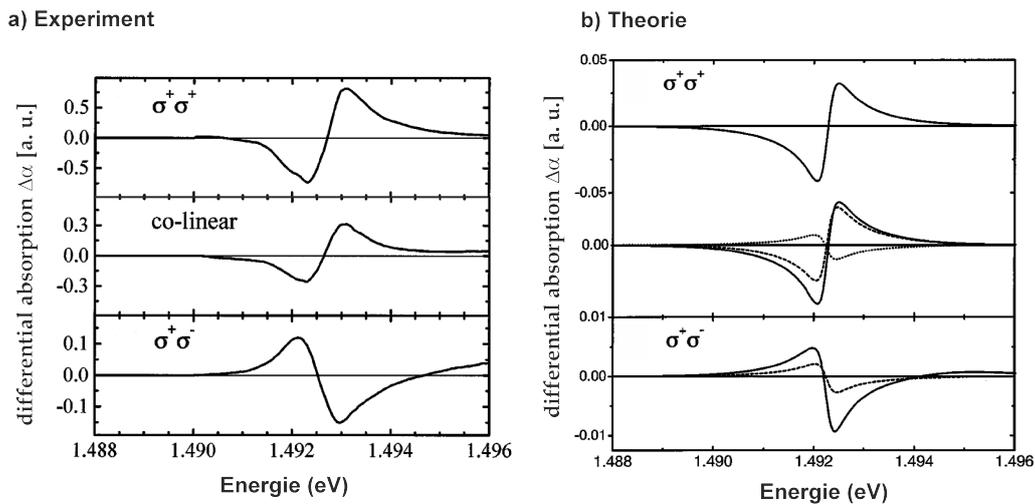


Abbildung 4.4: Abbildung (a): Differentielle Absorptionsspektren der polarisationsabhängigen Messungen des AC Stark Effekts in GaInAs/GaAs Mehrfachquantenfilmen. Im Fall der gegenläufig-zirkularen Polarisation ist eine eindeutige Rotverschiebung zu erkennen. Abbildung (b): „Switch-off“-Analyse der einzelnen nichtlinearen Bestandteile des AC Stark Effekts für die gleichläufig- und gegenläufig-zirkuläre Polarisation. Beiträge im einzelnen im zirkularen Fall: (—)Pauli-Blokade, (---)Hartree-Fock, (···)Coulomb-Korrelation höherer Ordnung. Die gestrichelte Linie im gegenläufig-zirkularen Fall zeigt das Resultat ohne Berücksichtigung von Biexzitonen. (Abbildung aus Ref. [51])

## 4.2 Der Gigantische AC Stark Effekt in Germanium

Wie in der Einleitung beschrieben, bietet der AC Stark Effekt die Möglichkeit, die Bandkante mit Hilfe von Licht für wenige hundert Femtosekunden zu verschieben. Die bisherigen AC Stark Effekt Messungen wurden nur an direkten Halbleiterstrukturen wie z.B. GaAs durchgeführt. Allerdings hat Germanium in den letzten Jahren seine Fähigkeit als mögliches Material für optische Modulatoren auf Silizium unter Beweis gestellt; so wurde mit Hilfe des Quantum Confined Stark Effekts<sup>3</sup> (QSCE) an Germanium Mehrfachquantenfilmen beim Anlegen einer Spannung eine starke Rotverschiebung gemessen [29]. Es bietet sich jetzt die Frage an, ob man auch im Germanium einen AC Stark Effekt beobachten kann und ob dieser sich ähnlich verhält wie der in GaAs.

Der dafür nötige Versuchsaufbau ist der im Kapitel (3) beschriebene Anrege-Abfrage-Spektroskopieaufbau mit der Möglichkeit die Polarisation der Anrege- und Abfrageimpulse einzustellen. Zwei Polarisationseinstellungen kommen dabei zum Einsatz: gleichläufig-zirkulare Polarisation ( $\odot\odot$ ), wo sowohl Anrege- und Abfrageimpuls die selbe Drehrichtung des elektromagnetischen Felds besitzen und gegenläufig-zirkulare Polarisation ( $\odot\ominus$ ), wo die Polarisation der beiden Impulse entgegengesetzte Drehrichtungen besitzen. Beide Impulse werden auf die Probe fokussiert, die Größe der angeregten Fläche beträgt dann  $600 \mu\text{m}^2$ . Die verwendete Probe ist die im Kapitel (2) beschriebene Germanium Mehrfachquantenfilmprobe #8009. Um eine rigorose Analyse des AC Stark Effekts zu garantieren, werden alle relevanten Versuchsparameter vermessen. Die dabei variierten Versuchsparameter zusätzlich zur Polarisation sind die Intensität und die energetische Verstimmung des Anregeimpulses im Bezug zur exzitonischen Schwerlochresonanz. Ausgenommen davon ist die Temperatur, die abgesehen von einigen wenigen Raumtemperaturmessung bei Heliumtemperatur (7 K) gehalten wird.

Die Ergebnisse sind in drei Teile aufgeteilt und beinhalten zuerst die Abhängigkeit des AC Stark Effekts von der Intensität bei konstanter Anregungsenergie, danach wird die Abhängigkeit von der Anregungsenergie untersucht bei der folgerichtig die Intensität konstant gehalten wird, schließlich befasst sich der letzte Abschnitt mit den Ergebnissen der hochenergetischen Anregung, d. h. Anregung in das Kontinuum des Mehrfachquantenfilmmaterials.

### 4.2.1 Einfluss der Intensität

Die Untersuchung der Intensitätsabhängigkeit erfolgte bei konstanter Anregungsenergie von 0.95 eV, was einer Verstimmung von 8 meV entspricht. Die Ergebnisse

---

<sup>3</sup>Quantum Confined Stark Effect = etwa „beschränkter/eingeengter Starkeffekt“

## Der Gigantische AC Stark Effekt in Germanium

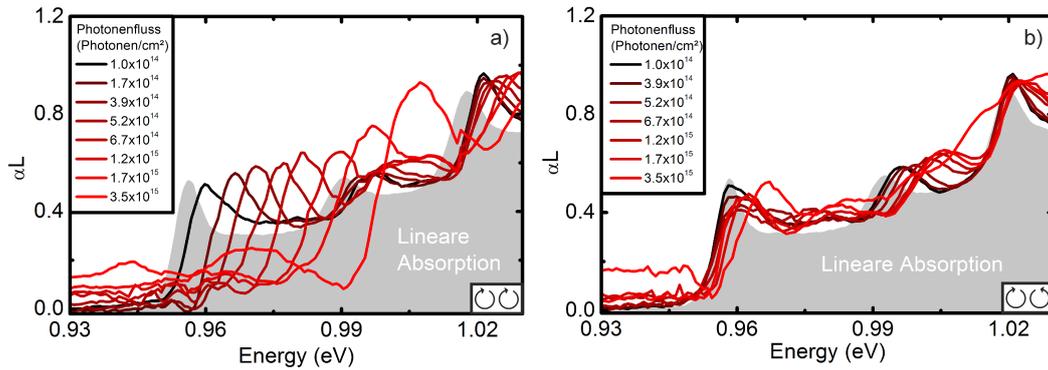


Abbildung 4.5: Abbildung (a): Intensitätsabhängige Messung in zirkularer Polarisation am Punkt  $t_{delay} = 0$ . Der 1s-Schwerlochexziton Übergang weist eine gigantische Blauverschiebung auf. Die erhöhte Absorption unterhalb der Bandkante resultiert aus 2-Photonen-Absorptionsprozessen in das Silizium Substrat. Die in dem Graph gezeigte, höchste Blauverschiebung beträgt 60 meV. Abbildung (b): Gleiche Anregungsbedingungen wie in Abbildung (a) mit dem Unterschied der gegenläufig-zirkularen Polarisation. Es ist nur eine leichte Blauverschiebung des 1s-Schwerlochexzitons zu erkennen. Andererseits zeigt das Leichtlochexziton eine starke Blauverschiebung.

für gleichläufig-zirkulare und gegenläufig-zirkulare Polarisation sind in Abbildung(4.5) gezeigt, bei denen ein Intensitätsbereich von drei Größenordnungen abgefahren wurde. Die Verzögerungszeit zwischen Anrege- und Abfrageimpuls betrug  $t_{delay} = 0$ . Bei gleichläufig-zirkularer Polarisation zeigt das Schwerlochexziton eine starke Blauverschiebung, die ab einer Leistung von  $5 \cdot 10^{14}$  Photonen/cm<sup>2</sup> gigantisch wird. Diese gigantische Blauverschiebung ist so stark noch in keinem anderen Materialsystem gemessen worden. Die über den gesamten Wellenlängenbereich gleichmäßige Erhöhung der Absorption resultiert von 2-Photonen-Absorptionsprozessen aus Anrege- und Abfrageimpuls in das Silizium Volumenmaterial und tritt verstärkt auf, wenn der Überlapp zwischen den beiden Impulsen maximal ist. Auch die Messung mit gegenläufig-zirkularer Polarisation zeigt ein sehr interessantes Verhalten: Das 1s-Schwerlochexziton erfährt im Vergleich zur gleichläufig-zirkularen Polarisation nur eine sehr geringe Blauverschiebung, die mit einem starken Ausbleichen der Resonanz begleitet ist. Allerdings verschiebt sich das 1s-Leichtlochexziton mit 20 meV nicht unerheblich. Die genauen Unterschiede zwischen den beiden Polarisationen wird besonders deutlich in der Änderung der Absorption ( $\Delta\alpha L$ ) in Abbildung (4.6). Die Studie der Blauverschiebung des Leichtlochexzitons erweist sich bei gleichläufig-zirkularer Polarisation jedoch als schwierig, da die starke Verschiebung des Schwerlochexzitons die anderen Resonanzen überlagert, womit eine quantitative Analyse unmöglich wird.

## Der AC Stark Effekt

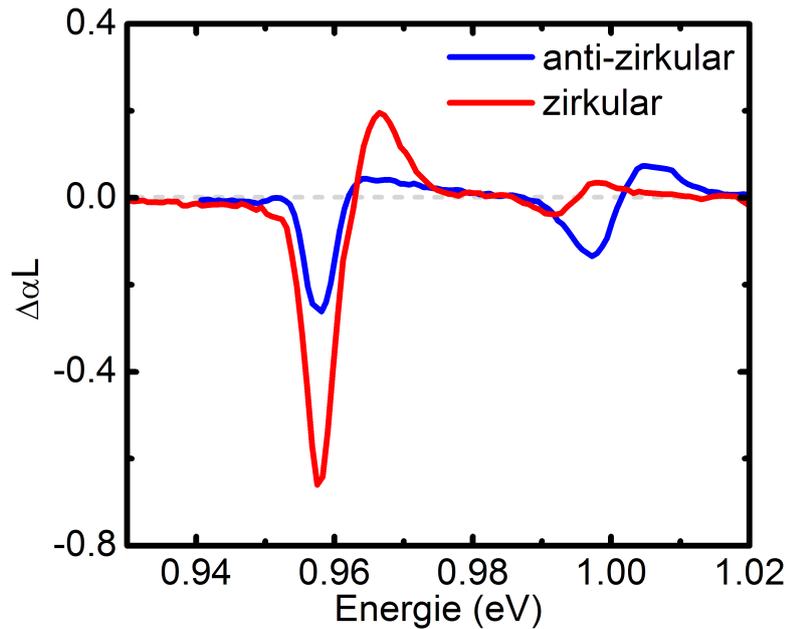


Abbildung 4.6: An hand der Änderung der Absorption für gleichläufig- und gegenläufig-zirkularer Polarisation ist man in der Lage die Unterschiede zwischen den beiden Polarisationen genauer zu analysieren. So zeigt die  $\Delta\alpha L$ -Signatur des 1s-Schwerlochexziton Übergangs bei gleichläufig-zirkularer Polarisation eine Überlagerung von Verschiebungs- und Ausbleicheffekten. Der Leichtlochexziton Übergang zeigt dagegen nur eine geringe Änderung. Bei gegenläufig-zirkularer Polarisation dominiert beim Schwerlochexziton die Ausbleichsignatur, während beim Leichtlochexziton eine starke Blauverschiebung zu beobachten ist.

## Der Gigantische AC Stark Effekt in Germanium

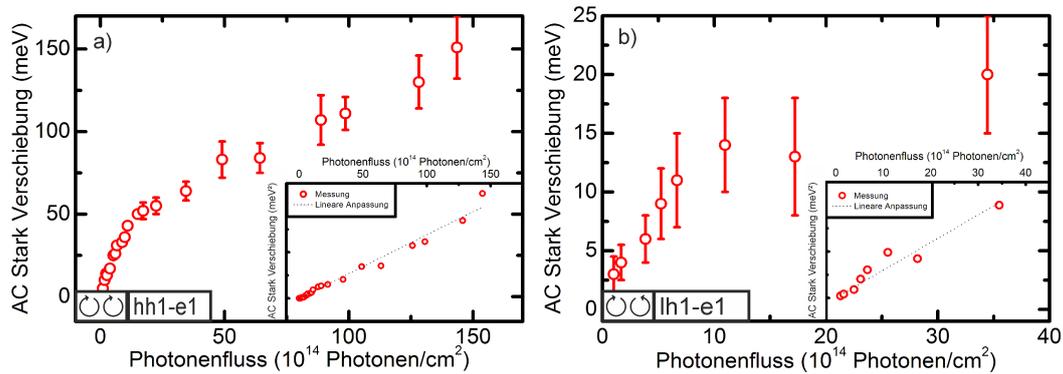


Abbildung 4.7: Abbildung (a): Aufgetragen ist die Blauverschiebung des 1s-Schwerlohexzitons in Abhängigkeit der Intensität für gleichläufig-zirkuläre Polarisation. Die maximale Blauverschiebung wird auf 150 meV beziffert. Im Inset ist das Quadrat der Verschiebung zur Intensität aufgetragen mit dazugehöriger linearer Anpassung. Abbildung (b): Gezeigt ist die Blauverschiebung des 1s-Leichtlohexzitons in Abhängigkeit der Intensität für die gegenläufig-zirkuläre Polarisation. Im Inset ist wiederum das Quadrat der Verschiebung in Abhängigkeit der Intensität aufgetragen.

In Abbildung (4.7) ist die Blauverschiebung in Abhängigkeit der Intensität für beide Polarisationen aufgetragen. Die maximale Blauverschiebung beträgt dabei 150 meV. Mit dem Verstärkersystem sind noch weitaus höhere Photonenflussdichten möglich, allerdings überwiegt dann die 2-Photonenabsorption und eine einwandfreie Identifikation der stark verbreiterten Bandkante ist nicht mehr möglich. Auch bei der gegenläufig-zirkulären Polarisation war es für höhere Intensitäten nicht mehr möglich die verschobene Leichtlochresonanz zu erkennen. Dennoch ist die Ähnlichkeit des Verlaufs der beiden Linien auffällig. Beim Auftragen des Quadrats der Blauverschiebung gegenüber der Intensität erhält man ein lineares Verhalten, zu sehen im jeweiligen Inset der Abbildung (4.7). Dieses Verhalten stimmt überraschend gut mit dem stark vereinfachten Bild des bekleideten Exzitons aus Gl. (4.1) überein.

Die unterschiedliche Antwort des Systems auf die beiden verschiedenen Polarisationen lässt sich mit Hilfe des Diagramms in Abbildung (4.8) erklären. Auf Grund der Auswahlregeln sind Anregungen durch ein Photon je nach Polarisation nur mit einer Änderung der Magnetquantenzahl  $m = \pm 1$  erlaubt. Es ist hilfreich für das Verständnis das Schwerloch- und das Leichtlochsystem einzeln zu betrachten. In gleichläufig-zirkulärer Polarisation werden dann mit dem Anregeimpuls das Schwerlochsystem  $m_{SL} = -\frac{3}{2}$  mit dem elektronischen Spinsystem  $m_e = -\frac{1}{2}$  gekoppelt. Der Abfrageimpuls untersucht nun auch das selbe elektronische Spinsystem  $m_e = -\frac{1}{2}$ . Somit tritt der reguläre, durch den Hartree-Fock Term dominierte Effekt der Blauverschiebung

## Der AC Stark Effekt

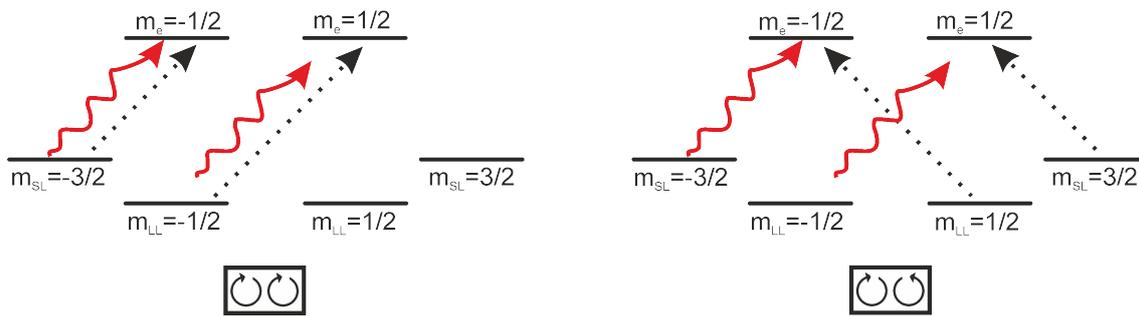


Abbildung 4.8: Die Anrege- und Abfragesituation bei den beiden Polarisationen wird in diesem vereinfachten Modell veranschaulicht. Ausgehend von dem Schwerlochsystem wird bei gleichläufig-zirkularer Polarisation das elektronische Spinsystem  $m_e = -\frac{1}{2}$  abgefragt und bei gegenläufig-zirkularer Polarisation das elektronische Spinsystem  $m_e = \frac{1}{2}$ . Ausgehend vom Leichtlochsystem gilt genau der umgekehrte Fall.

ein [51]. Im gegenläufig-zirkularen Fall fragt der Abfrageimpuls gerade das andere elektronische Spinsystem von  $m_{SL} = \frac{3}{2}$  nach  $m_e = \frac{1}{2}$  ab. Aus dem Schwerlochsystem tragen bei dieser Polarisation also nur Korrelationseffekte höherer Ordnung bei, wodurch der AC Stark Effekt erheblich abgeschwächt wird.

Die Betrachtung des Leichtlochsystems erfolgt auf der selben Art und Weise. Man widmet sich wieder erst der gleichläufig-zirkularen Polarisationkonfiguration. In diesem Fall untersucht der Abfrageimpuls das elektronische Spinsystem  $m_e = \frac{1}{2}$  ausgehend vom Leichtlochsystem  $m_{LL} = -\frac{1}{2}$ . Auf Grund der energetisch höheren Verstimmung sind die Hartree-Fock Einflüsse hier geringer, und das Leichtlochsystem erfährt eine geringere Blauverschiebung. In gegenläufig-zirkularer Polarisationskonfiguration allerdings wird das elektronische Spinsystem  $m_e = -\frac{1}{2}$  ausgehend vom Leichtlochsystem  $m_{LL} = \frac{1}{2}$  abgefragt. Dieses ist aber gerade das angeregte Spinsystem, wodurch wiederum der hohe Hartree-Fock Beitrag die starke Blauverschiebung verursacht.

In erster Näherung sind die beiden Blauverschiebung des Schwer- und Leichtlochs für die unterschiedlichen Polarisationen also vergleichbar. Allerdings schon bei einer genaueren Betrachtung sieht man, dass z. B. bei der Abfrage des Schwerlochsystems  $m_{SL} = \frac{3}{2}$  in gegenläufig-zirkularer Polarisation nicht nur die höheren Ordnungseffekte beitragen, sondern auch Hartree-Fock Beiträge vom Leichtlochsystem  $m_{LL} = -\frac{1}{2}$  nicht zu vernachlässigen sind. Auch bei der Abfrage des Leichtlochsystems  $m_{LL} = \frac{1}{2}$  kommen zu den Hartree-Fock Beiträgen eben auch Korrelationseffekte höherer Ordnung vom Leichtlochsystem  $m_{LL} = -\frac{1}{2}$  hinzu. Diese genannten zusätzlichen Terme sind die dominierenden Faktoren für die unterschiedlich starke Verschiebung des Schwerlochexzitons bei gleichläufig-zirkularer Polarisation und des Leichtlochexzitons bei gegenläufig-zirkularer Polarisation.

## 4.2.2 Einfluss der Verstimmung

Als nächstes ist es interessant sich die Abhängigkeit des AC Stark Effekt von der Verstimmung der Anregungsenergie anzugucken. Wiederum werden beide Polarisationskonfigurationen untersucht. Die Ergebnisse sind in Abbildung (4.9) zusammengefasst. Das grundsätzliche Verhalten des AC Stark Effekts ändert sich mit größerer Verstimmung der Anregungsenergie nicht. Sowohl das Ausbleichen der exzitonischen Resonanzen, als auch das selektive Verhalten der Blauverschiebung bei unterschiedlicher Polarisationskonfiguration bleibt bei hoher Verstimmung erhalten. Beide Effekte schwächen mit zunehmender Verstimmung ab. Das entspricht den Erwartungen und wurde in der Art und Weise auch in GaInAs/GaAs beobachtet [6, 8]. Bemerkenswert ist auch die Abnahme und schließlich das Verschwinden der transienten Vertärkung unterhalb der Bandkante bei gleichläufig-zirkularer Polarisation. Dieses Verhalten wurde auch in der Form erwartet [6]. Der zeitliche Verlauf des AC Stark Effekts ist in Abbildung (4.10) in Form von ausgewählten Spektren gezeigt. Daraus wird ersichtlich, dass nur während der Anwesenheit des Anregeimpulses im Material der AC Stark Effekt zu beobachten ist und somit knapp 150 fs anhält. Das zeitliche Verhalten bestätigt, dass es sich um einen rein kohärenten, induzierten Effekt handelt.

Die entscheidenden drei nichtlinearen Terme, die die Art und das Ausmaß des AC Stark Effekts bestimmen sind der Pauli-Blockade Term, der Hartree-Fock Term und der Coulomb-Korrelations Term höherer Ordnung. Die ersten beiden Terme verursa-

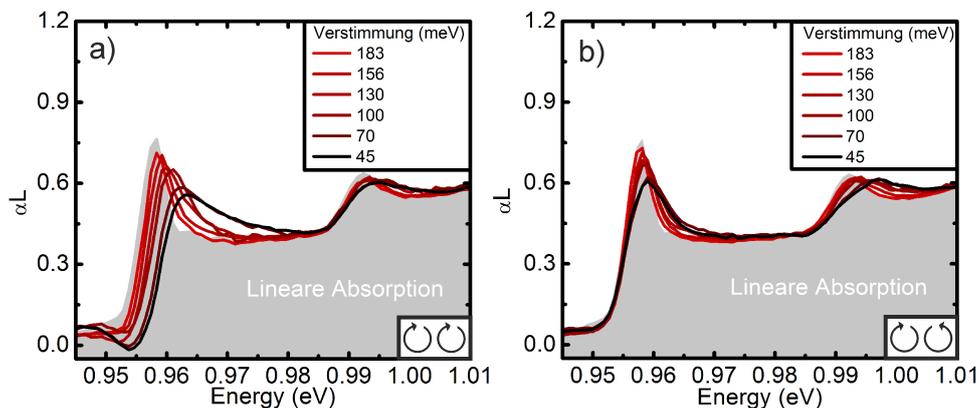


Abbildung 4.9: Abbildung (a): Spektren für verschiedene Verstimmung der Anregungsenergie in gleichläufig-zirkularer Polarisation. Die Blauverschiebung des Schwerlochexzitons nimmt merklich mit Zunahme der Verstimmung ab. Abbildung (b): Gleiches Szenario wie in (a), nur mit gegenläufig-zirkularer Polarisation. In diesem Fall zeigt das Leichtlochexziton das stark von der Verstimmung abhängige Verhalten.

## Der AC Stark Effekt

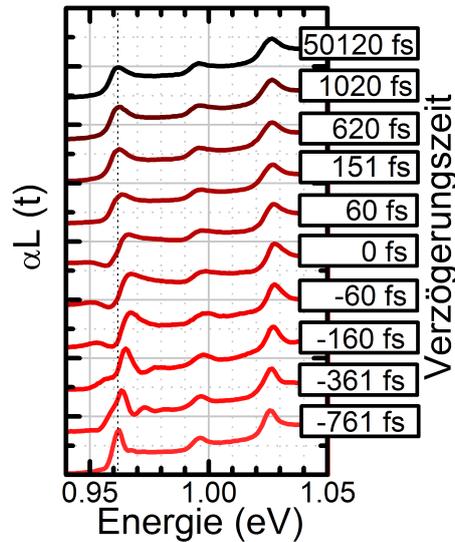


Abbildung 4.10: Die im Diagramm gezeigten Spektren zeigen den zeitlichen Verlauf des AC Stark Effekts bei einer Verstimmung der Anregungsenergie von 45 meV und gleichläufig-zirkularer Polarisationskonfiguration.

chen eine Blauverschiebung, während der letzte Term gerade eine Rotverschiebung als Konsequenz besitzt. Die Signifikanz der einzelnen Terme fällt unterschiedlich stark mit der Verstimmung der Anregungsenergie ab. So fällt der Einfluss des Pauli-Blokade Terms gerade mit  $\Delta_{SL}^{-1}$  ab, wobei  $\Delta_{SL}$  gerade die Verstimmung bezüglich des Schwerlochexzitons ist. Der Hartree-Fock Term fällt mit  $\Delta_{SL}^{-2}$  ab und die Coulomb-Korrelationen höherer Ordnung mit  $\Delta_{SL}^{-3}$ . Auf Grund des langsamen Abfallverhaltens, der für die Blauverschiebung verantwortlichen Terme ist noch für sehr starke Verstimmungen der Anregungsenergie eine Blauverschiebung zu erwarten, was das Experiment bestätigt (Abbildung (4.9)). Auch die nichtbeobachtete Rotverschiebung bei gegenläufig-zirkularer Polarisation lässt sich mit der rasanten Abfallzeit des Einflusses der Coulomb-Korrelation erklären: schon die GaIn/GaAs Messungen in Ref. [8] zeigten nur bei einem sehr kleinen Anregungsenergiefenster eine Rotverschiebung. Die energetische Differenz zwischen Schwer- und Leichtloch spielt zusätzlich noch eine Rolle. Allerdings bestätigte sich hier nicht das Phänomen, das eine große Differenz schon zu einem großen Effekt führt, da in der untersuchten Probe # 8009 die Differenz zwischen den beiden Lochsystemen um ein Vielfaches höher war.

Abschließend ist es im Zuge einer möglichen kommerziellen Anwendung erstrebenswert zu wissen, ob auch bei Raumtemperatur der AC Stark Effekt zu beobachten ist. Eine solche Messung in gleichläufig-zirkularer Polarisation ist in Abbildung (4.11) zu sehen. Die Anregungsenergie betrug diesmal 0,87 eV, resultierend aus der temperaturabhängigen Änderung der Bandlücke auf Grund von der Ausdehnung des Kris-

## Der Gigantische AC Stark Effekt in Germanium

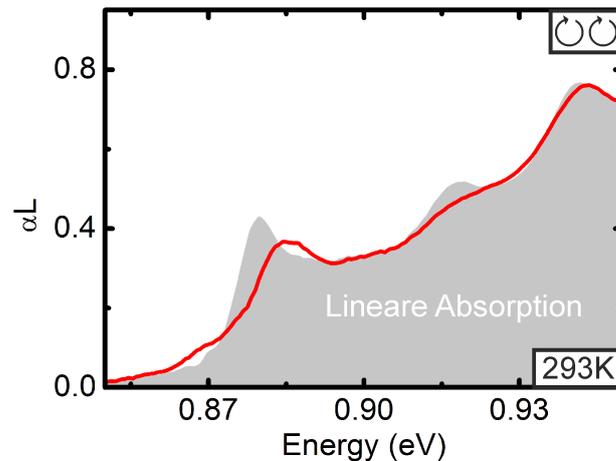


Abbildung 4.11: Raumtemperatur Messung in gleichläufig-zirkularer Polarisation. Die Anregungsenergie betrug 0.87 eV bei einer Photonenflussdichte von  $1 \times 10^{17}$  Photonen/cm<sup>2</sup>. Selbst bei Raumtemperatur ist noch eine Blauverschiebung von 8 meV zu beobachten.

tallgitters und erhöhter Elektron-Phonon-Kopplung. Obwohl die Dephasierungszeit bei Raumtemperatur stark reduziert ist, ist immer noch eine Blauverschiebung des Schwerlohexzitons von 8 meV zu beobachten. Die angelegte Photonenflussdichte ist mit  $1 \times 10^{17}$  Photonen/cm<sup>2</sup> im Vergleich zur 7K-Messungen allerdings um zwei Größenordnungen höher. Bei gegenläufig-zirkularer Polarisation konnte kein AC Stark Effekt beobachtet werden.

### 4.2.3 Hochenergetische Anregung

Der letzte Abschnitt widmet sich den Ergebnissen bei „hochenergetischer“ Anregung. Mit „hochenergetischer“ Anregung ist gemeint, dass die Anregungsenergie oberhalb des Schwerlohexzitons stattfindet. Solche Anregungen in das Kontinuum wurden erst vor kurzem in Germanium Mehrfachquantenfilmen durchgeführt und auf Femtosekundenskalen untersucht [30, 31], allerdings mit der Absicht eine Besetzungsinversion zu erzielen und die Dynamik der angeregten Ladungsträger näher zu untersuchen. Die für solche Zwecke hohen Anregungsleistungen lassen eine Analyse des kohärenten Regimes mit diesem Messaufbau nicht zu; die Dephasierungszeiten sind bei den Bedingungen unterhalb des zeitlichen Auflösungsvermögens ( $< 50$  fs). Das Ziel ist es nun, bei geringeren Anregungsleistungen die Analyse des kohärenten Regimes möglich zu machen.

Bei Anregung oberhalb des Schwerlohexzitons erwartet die Theorie eine Rotverschiebung und ein Ausbleichen dieser Resonanz, auf Grund von Pauli-Blockade- und

## Der AC Stark Effekt

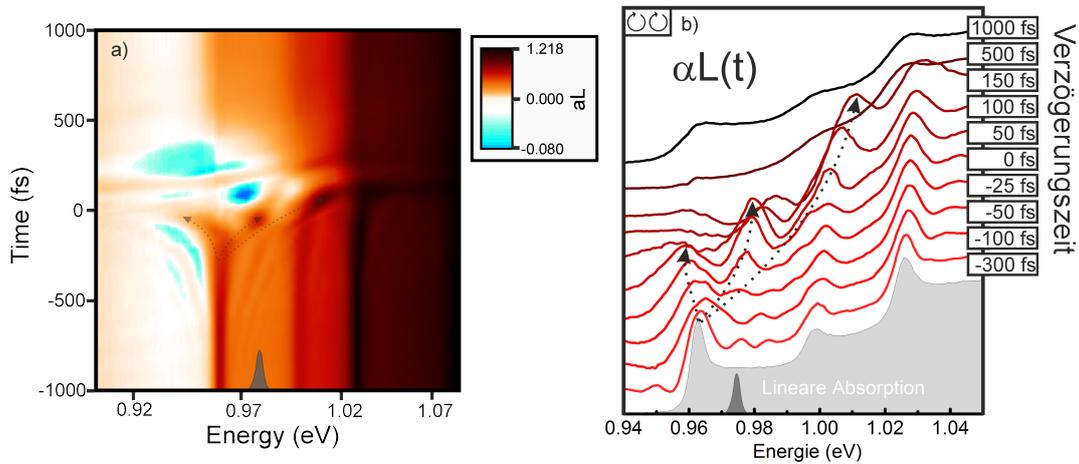


Abbildung 4.12: Abbildung (a): Zweidimensionaler Falschfarbenplot der Absorption in Abhängigkeit von der Verzögerung zwischen Anrege- und Abfrageimpuls. Die Anregungsenergie betrug dabei 0.976 eV, bei einer Photonflussdichte von  $4.5 \times 10^{15}$  Photonen/cm<sup>2</sup>. Einzelne exemplarische Spektren sind in Abbildung (b) aufgetragen.

Abschirmungs-Effekten. Bei der in der Abbildung (4.12) gezeigten Messung liegt die Anregungsenergie mit 0.976 eV oberhalb des Schwerlochexzitons aber unterhalb des Leichtlochexzitons. Die Messung zeigt sehr Eindrucksvoll den Übergang vom kohärenten Regime in das nichtkohärente Regime. Anfangs erkennt man die oszillatorischen Signaturen des kohärenten Regimes, die sich in einem solchen Ausmaß präsentieren, dass aus der vorherigen Schwerlochresonanz vermeintlich drei „Absorptionsflanken“ entspringen ( $t_{delay}=0$  fs). Die beiden niederenergetischen Flanken sind nach 100 fs abgeklungen und übrig bleibt eine reine Blauverschiebung mit kohärenter, optischer Verstärkung. Der AC Stark Effekt hält allerdings nur wenige Femtosekunden und weicht einem allgemeinen Ausbleichen der Absorption durch inkohärente Ladungsträger. Diese leiten dann das inkohärente Regime ein, welches durch die Elektronenstreuung in das L-Tal dominiert wird. Nach etwa einer Pikosekunde ist das ursprüngliche Absorptionsverhalten fast wiederhergestellt, lediglich eine Verbreiterung des Schwerlochexzitons einhergehend mit einer Rotverschiebung bleiben zurück, verursacht durch die sich nun im L-Tal befindenden Elektronen.

In einem weiteren Experiment erfolgte die Anregung knapp unterhalb des zweiten Schwerlochexzitons bei einer Energie von 1.016 eV. Die dazugehörigen Ergebnisse sind in Abbildung (4.13) gezeigt. Auch bei dieser Messung sind wiederum die starken oszillatorischen Signaturen dafür verantwortlich, dass aus der zweiten Schwerlochresonanz eine weitere Absorptionsflanke herauswächst ( $t_{delay}=50$  fs). Der darauffolgende Verlauf des Absorptionsverhalten ist vergleichbar mit der Messung in Abbil-

## Der Gigantische AC Stark Effekt in Germanium

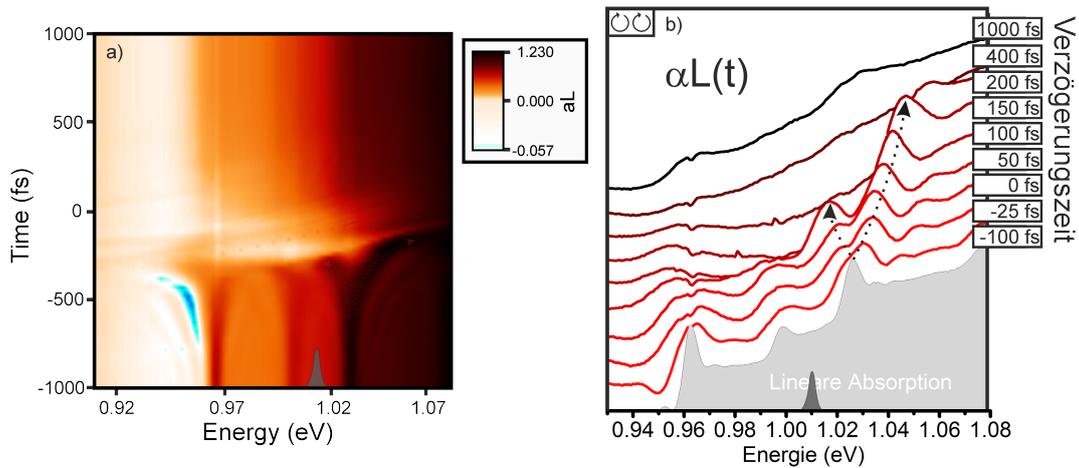


Abbildung 4.13: Abbildung (a): Zweidimensionaler Falschfarbenplot der Absorption in Abhängigkeit von der Verzögerung zwischen Anrege- und Abfrageimpuls. Die Anregungsenergie betrug dabei 1.016 eV, bei einer Photonenflussdichte von  $4.5 \times 10^{15}$  Photonen/cm<sup>2</sup>. Wiederum sind einzelne Spektren in Abbildung (b) aufgetragen.

dung (4.12).

Nun stellt sich die Frage, ob man bei gegenläufig-zirkularer Polarisationskonfigurationen ein ähnliches Verhalten für das Leichtlochexziton finden kann. Die Ergebnisse solch einer Messung sind in Abbildung (4.14) zu sehen. Bei dieser Konfiguration zeigt das Leichtlochexziton ein erstaunlich ähnliches Verhalten, wie das Schwerlochexziton in Abbildung (4.13). Auch die zeitliche Änderung befindet sich im selben Regime. Nun gilt es die Ursache dieser starken, oszillatorischen Signaturen zu evaluieren. Bei der Anregung oberhalb der ersten Schwerlochresonanz verlässt man das Regime des „adiabatic-followings“<sup>4</sup>, wo die induzierte Polarisation dem elektrischen Feld des eingestrahlten Impulses folgt, und man betritt das Feld der Rabi-Flops, wo die induzierte Polarisation während der Anwesenheit des elektrischen Feldes oszilliert [5]. Auf Grund der Vielzahl an k-Zuständen innerhalb der exzitonischen Resonanz wird bei resonanter Anregung nur ein Bruchteil der k-Zustände auch wirklich resonant angeregt. Die Mehrzahl der k-Zustände ist gegenüber der Anregungsenergie leicht verstimmt. Diese energetische Verstimmung führt zu vielen verschiedenen Rabi-Frequenzen, die in einer Wellenvektor abhängigen, allgemeinen Rabi-Frequenz zusammengefasst werden:

$$\Omega(k) = \frac{1}{\hbar} \left( \mu E + \sum_{k'} V_{k-k'} P_{k'} \right). \quad (4.6)$$

<sup>4</sup>adiabatic-following = adiabatisch folgend

## Der AC Stark Effekt

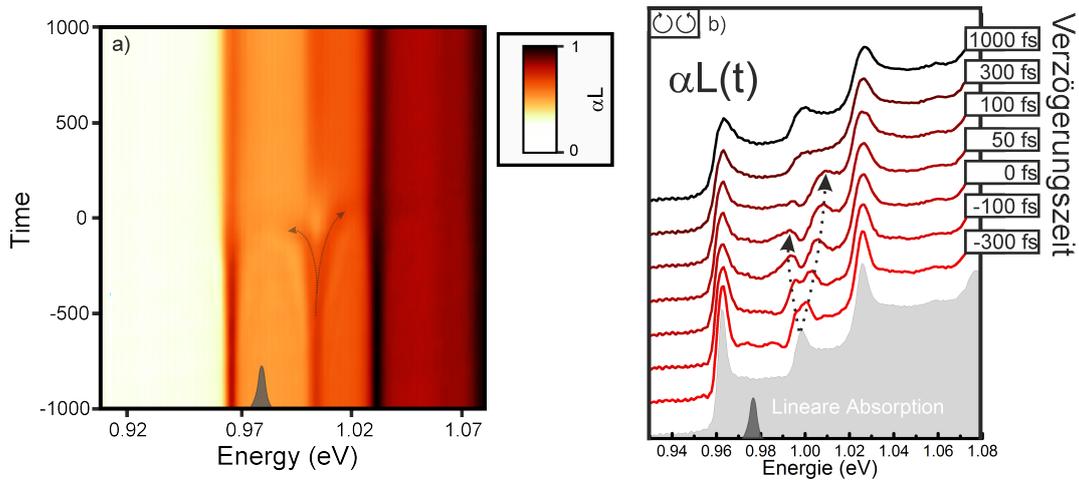


Abbildung 4.14: Abbildung (a): Messung mit gleicher Anregungsbedingung wie in Abbildung (4.12), bloß mit gegenläufig-zirkularer Polarisation und bei einem Photonenfluss von  $7 \times 10^{14}$  Photonen/cm<sup>2</sup>. Die einzelnen Spektren sind wiederum in Abbildung (b) aufgetragen.

In Ref. [5] wird gesagt, dass dies zu ausgeprägten Interferenz-Effekten führen kann. Somit werden wahrscheinlich die starken oszillatorischen Signaturen von den verschiedenen Rabi-Oszillationen hervorgerufen. Zur Bestätigung dieser Hypothese bedarf es allerdings fundierter theoretischer Berechnungen, die bis zum heutigen Zeitpunkt noch ausstehen.

### 4.3 Zusammenfassung

Die Eingangs formulierte Motivation zur Untersuchung des Germaniummaterialsystems beinhaltete als Fernziel einen optischen Modulator auf Siliziumbasis. Dafür sollte der schon in GaAs ausführlich untersuchte AC Stark Effekt auf seine Existenz in Germanium untersucht und für einen möglichen Modulator ausgenutzt werden. Die im Zuge dieser Arbeit untersuchte Probe zeigt im Vergleich zu Literaturwerten von GaAs einen überraschend starken AC Stark Effekt. Dies ist eine direkte Konsequenz aus der kürzeren Dephasierungszeit in Germanium gegenüber der in GaAs [6]. Der Einfluss der Dephasierungszeit auf das gemessene Spektrum lässt sich wie folgt erklären: Das gemessene Abfragespektrum ist gerade die Fouriertransformation des Polarisationsterms in Abfragerichtung. Wie in den vorherigen Abschnitten beschrieben, folgt der AC Stark Effekt dem elektrischen Feld des Anregeimpulses. Dieser ist allerdings im Vergleich zur Dephasierungszeit in GaAs (900 fs) mit 150 fs kurz. Die zeitliche Integration über die Polarisation in Abfragerichtung mittelt nun über den gesamten

## Zusammenfassung

Zeitraum, womit ein Großteil des AC Stark Effekts ausgewaschen wird. Die Dephasierungszeit von Germanium lässt sich mit Hilfe einer  $T_2$ -Zeit Analyse der kohärenten Oszillationen bestimmen [24], wobei sich herausstellt, dass die Dephasierungszeit von Germanium mit 210 fs vergleichbar ist mit dem zeitlichen FWHM des Anregeimpulses. Dadurch wird die Zeitintegration der Polarisation in Abfragerichtung vom AC Stark Effekt dominiert und somit resultiert daraus eine stärkere Blauverschiebung. Weitere interessante Erkenntnisse brachten auch die Polarisationsabhängigen Messungen. So konnte je nach Polarisationskonfiguration selektiv entweder das Schwerlochsystem oder das Leichtlochsystem stark blauverschoben werden. Dieses Verhalten lässt sich sehr gut mit dem Diagramm in Abbildung (4.8) erläutern. So treten gerade dann starke Blauverschiebungen auf, wenn Pauli-Blockade und Hartree-Fock Terme die abzufragenden Zustände dominieren. Dieses ist bei gleichläufig-zirkularer Polarisation das Schwerlochsystem und bei gegenläufig-zirkularer Polarisation das Leichtlochsystem. Allerdings konnte im Unterschied zu GaAs keine Rotverschiebung festgestellt werden. Das selektive Schalten verspricht eine noch kürzere Schaltzeit zusätzlich zur ohnehin schon 6700fachen ( $1\text{ns}/150\text{fs} \approx 6700$ ) schnelleren Schaltzeit gegenüber einem möglichen QCSE-Modulator.

Reduziert man die Anregungsenergie lässt sich eine Abnahme des AC Stark Effekts beobachten. Zusätzlich verschwindet die kohärente optische Verstärkung unterhalb der Bandkante und das Ausbleichen der exzitonischen Resonanz nimmt ab. Das Verhalten ist sehr gut von GaAs bekannt und wurde z. B. in Ref. [6] ausführlich behandelt. Grundsätzlich lassen diese Ergebnisse den Schluss zu, dass die indirekte Natur von Germanium keine wesentlichen Auswirkung auf den AC Stark Effekt hat.

Die abschließenden Messungen bei hochenergetischer Anregung (Anregung oberhalb des  $1s$ -Schwerlohexzitons) zeigten eine starke nichtlineare Antwort des Systems, welches vermutlich auf vielfache Rabi-Oszillationen in diesem Regime zurückzuführen ist. So dominieren bei den Messungen oszillatorische Signaturen die für das Herauswachsen von vereinzelt Flanken aus den ursprünglichen exzitonischen Resonanzen oder auch der kohärenten, transienten Verstärkung verantwortlich sind. Bei diesen Oszillationen handelt es sich jedoch nicht um die kohärenten Oszillationen, auch wenn diese sich im selben Zeitregime aufhalten [6]. Ausführliche, theoretische Berechnungen sollten Aufschluss über die Herkunft dieser stark ausgeprägten Signaturen geben, stehen allerdings bis zum heutigen Tage noch aus.



# 5 Heiße Löcher

Dieses Kapitel befasst sich mit dem Effekt eines erst nach einigen Pikosekunden nach der Anregung auftretenden Ausbleichen der einzelnen exzitatorischen Resonanzen in Germanium Quantenfilmen. Man befindet sich im zeitlichen Regime der heißen Ladungsträger, wo Abkühleffekte der heißen Löcher auf Gittertemperatur die optischen Signaturen dominieren.

## 5.1 Grundlagen der heißen Ladungsträger

Die Antwort des Systems nach der optischen Anregung lässt sich zeitlich in vier Zeitregimes einteilen: das kohärente Regime, das Regime der nichtthermisch verteilten Ladungsträger, das Regime der heißen Ladungsträger und schließlich der quasi-stationäre Zustand. Der im vorherigen Kapitel behandelte AC Stark Effekt spielte sich im kohärenten Regime ab. Eine ausführliche Analyse von Germanium im Regime der nichtthermischen Ladungsträgerverteilungen findet man in Ref.[31]. Dort wird eine Streuzeit der Elektronen in die L-Täler unterhalb von 500 fs angegeben. Nach etwa einer Pikosekunde geht man von einem thermalisierten Ladungsträgersystem aus, folglich lässt sich die energetische Verteilung der Ladungsträger mit der Fermi-Dirac-Statistik beschreiben. Die Dynamik des Systems wird nun vom Abkühlen der Ladungsträger auf Gittertemperatur dominiert, womit man sich im Regime der heißen Ladungsträger befindet. Abschließend erreicht man den quasi-stationären Zustand, wo die Verteilungsfunktion der Ladungsträger sich auf den beobachteten Zeitskalen nicht mehr ändert. Die Abkühlung des Ladungsträgersystems wird an hand von sogenannten Kühlkurven veranschaulicht. Bei diesen Kurven wird die Ladungsträgertemperatur gegenüber der Zeit aufgetragen. Solche Kühlkurven lassen sich aus der Energieverlustrate des Ladungsträgersystems an das Gitter berechnen (Abbildung (5.1)). Dabei kann man die Kurven in zwei Bereiche aufteilen: der Bereich der optischen Phononen und der Bereich der akustischen Phononen.

In Abbildung (5.2) ist die Phononendispersion von Germanium aufgetragen. Die optischen Phononen am  $\Gamma$ -Punkt besitzen eine Energie von 38 meV, dadurch wird der Abkühlungsprozess bei einer Ladungsträgertemperatur oberhalb dieser Energie von optischen Phononen dominiert (siehe Abbildung (5.1)). Dieser Prozess kühlt

## Heiße Löcher

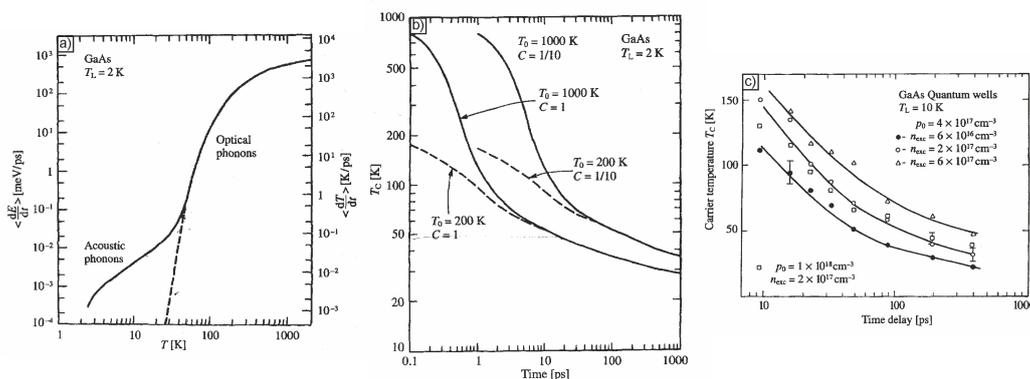


Abbildung 5.1: In Abbildung (a) ist eine berechnete Energieverlustkurve eines Elektronen-Loch-Plasmas für GaAs bei einer Gittertemperatur von 2 K gezeigt. Das Plasma wurde mit einer Maxwell-Boltzmann Verteilung approximiert. Abbildung (b) zeigt Kühlkurven bei zwei verschiedenen anfänglichen Ladungsträgertemperaturen und Ladungsträger-Phonon Kopplungskonstanten [49]. In Abbildung (c) sind experimentelle Kühlkurven aus Lumineszenzmessungen von GaAs bei verschiedenen Anregungsintensitäten gezeigt [26].

das System innerhalb weniger Pikosekunden auf eine Temperatur ab, die in etwa der optischen Phononenenergie entspricht. Sobald diese Energie unterschritten wird findet eine weitere Abkühlung hauptsächlich durch akustische Phononen statt. Energetisch liegen die akustischen Phononen weit unterhalb der optischen und fallen zum  $\Gamma$ -Punkt hin bis auf null ab (Abbildung 5.2). Konsequenter Weise wird der Abühlungsprozess stark verlangsamt und die Energieverlustrate an das Gitter reduziert sich erheblich. Bei den gezeigten Kühlkurven wurden allerdings erhebliche Annahmen gemacht, so wurde die Verteilung der Ladungsträger unter anderem mit einer Maxwell-Boltzmann Verteilung angenommen. Dies ist bei hohen Ladungsträgerdichten nicht mehr gegeben, und die Verteilungsfunktion muss durch die Fermi-Verteilung ersetzt werden. Durch die hohen Ladungsträgerdichten können außerdem vermehrt Streukanäle auf Grund der Pauli-Blockade verboten sein, was dann zu einer Reduktion der Energieverlustrate führt. Ein weiterer nichtlinearer Prozess, der erheblich die Energieverlustrate beeinflusst ist der sogenannte „Hot-Phonon<sup>1</sup>“-Effekt [50]. So kann eine hohe Ladungsträgerdichte zu einer starken, nichtgleichgewichts Phononen-Population am  $\Gamma$ -Punkt (hohe DOS siehe Abbildung (5.2)) führen, die auf Grund des geringen k-Vektors nur eine geringe Gruppengeschwindigkeit aufweist und somit eine Reabsorption durch Ladungsträger sehr wahrscheinlich macht [55, 12]. Somit führt diese nichtgleichgewichts Phononenpopulation wieder-

<sup>1</sup>Hot-Phonon= engl. heiße Phononen

## Grundlagen der heißen Ladungsträger

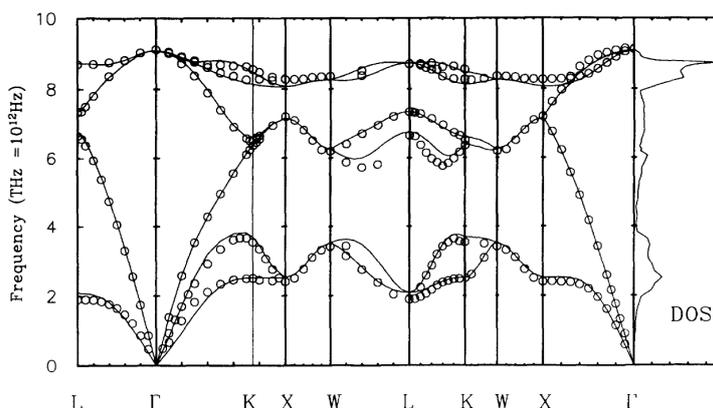


Abbildung 5.2: Berechnete Phononendispersion für Germanium mit dazugehöriger DOS. Die höchste Energie besitzen die optischen Phononen am  $\Gamma$ -Punkt mit 38 meV.

um zu einer Abnahme der Energieverlustrate und der Abkühlungsgeschwindigkeit des Ladungsträgersystems auf Gittertemperatur. Außerdem spielen bei hohen Ladungsträgerdichten Vielteilchenwechselwirkungs- und Abschirmungseffekte eine wichtige Rolle. So kommt es zu Plasmon-Phononkopplung bei hohen Ladungsträgerdichten aber auch zu Abschirmungseffekten der Ladungsträger-Phononkopplung durch das anwesende Plasma. Die Anwesenheit verschiedenartiger Plasmen (Schwerloch, Leichtloch, Elektronen) und deren verschiedener Kopplungsstärke an das Gitter verkomplizieren das Abkühlungsverhalten des Ladungsträgersystems erheblich [14, 59].

Bei den im vorherigen Kapitel gezeigten Messungen zum AC Stark Effekt wiesen die Spektren bei späten Verzögerungszeiten eine langsame Abnahme der einzelnen exzitonischen Resonanzen auf. Eine solche Messung der differentiellen Absorption ist in Abbildung (5.3) gezeigt. Die starke nichtlineare Zeitskala zeigt zu späten Verzögerungszeiten eine deutliche Abnahme der Absorption. Da es die selbe Messung wie die vom AC Stark Effekt ist, handelt es sich bei der Probe wiederum um die Germanium Mehrfachquantenfilm Probe #8009. Die indirekte Natur des Germaniums, wie Eingangs erwähnt, veranlasst ein Streuen der Elektronen in das L-Tal innerhalb weniger hundert Femtosekunden. Diese haben dann nur noch einen indirekten Effekt auf das Absorptionsverhalten in Form von einer Bandkantenrenormalisierung hin zu geringeren Energien und eine Verbreiterung der exzitonischen Resonanz. Deswegen kann es sich bei der späten Abnahme der Absorption nicht um ein Pauli-Blockade Effekt der Elektronen handeln. Auf Grund der langsamen Dynamik des Absorptionsabfalls und der langen Lebenszeit der Löcher am  $\Gamma$ -Punkt liegt die Vermutung nahe, dass die Abnahme der Absorption durch das abkühlenden Lochsystem hervorgerufen wird, so wie es in Abbildung (5.4) modelhaft dargestellt ist. Dies gilt es zu Überprüfen.

## Heiße Löcher

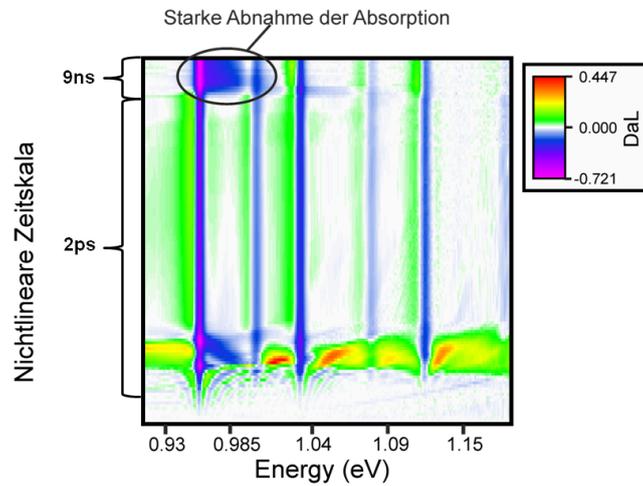


Abbildung 5.3: Differenzielles Absorptionsspektrum für verschiedene Verzögerungszeiten. Zu späten Zeiten beobachtet man eine langsame Abnahme der Absorption.

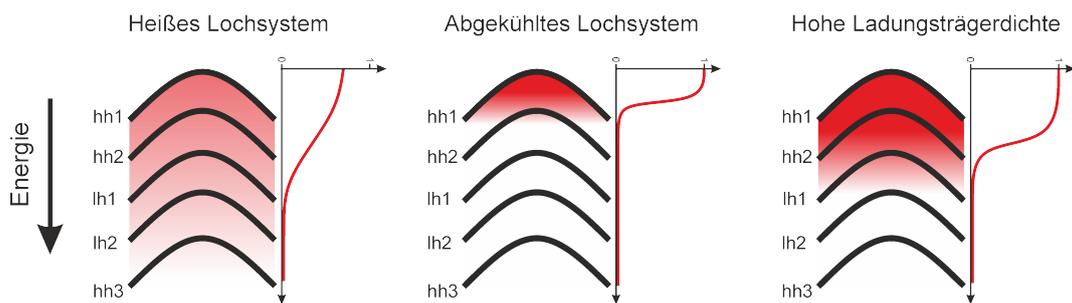


Abbildung 5.4: Vermintlicher Prozess verantwortlich für die spät auftretende Absorption an den niederenergetischen Übergängen. Die nebenstehenden Graphen zeigen die Fermi-Verteilungen für die jeweilige Situation.

## 5.2 Experimentelle Messungen

Sämtliche Messungen erfolgten bei einer Temperatur von 4 K, die Anregungsbedingungen wurden in der Intensität und der Anregungsenergie des Anregeimpulses variiert. Im Gegensatz zur Analyse des AC Stark Effekts wurden hier anstatt der Absorptionsspektren ( $\alpha L(t)$ ) die Transmissionsspektren ( $T(t)$ ) verwendet.

Die Division des  $\Delta\alpha L$ -Signals durch die Anzahl der Quantenfilme ergibt die Änderung der Absorption eines einzelnen Quantenfilms. Nach Gl. (3.3) erhält man die Transmission und kann durch anschließender Subtraktion von eins ( $1 - T$ ) die Absorption eines einzelnen Quantenfilms extrahieren. Die Integration über einen breiten Energiebereich einer Subbandabsorption ermöglicht es Verschiebungs- und Verbreiterungseffekte zu kompensieren (siehe Abbildung (5.5)). Diese integrierte, zeitliche Absorption wird dann ins Verhältnis zur integrierten, nichtangeregten Absorption gesetzt:

$$A = \frac{\int_{\omega_i}^{\omega_j} (1 - T(t, \omega)) d\omega}{\int_{\omega_i}^{\omega_j} (1 - T_0(\omega)) d\omega}. \quad (5.1)$$

Dadurch erhält man die prozentuale Änderung der Oszillatorstärke, die direkt mit den anwesenden Ladungsträgern im Quantenfilm in dem jeweiligen Energiebereich korreliert ist. Da allerdings die Kontinuumszustände des energetisch niedrigeren Subbandes die des höheren Subbandes überlagert, ist eine Aussage über die absolute Besetzung innerhalb eines Subbandes aus den Messdaten nicht möglich. Somit ist eine Abnahme der Absorption beim ersten Leichtlochsubband nicht zwangsläufig einhergehend mit einer Besetzung dieses Bandes, sondern kann auch von den Kontinuumszuständen des ersten Schwerlochbandes resultieren. Dennoch gibt die Änderung der Absorption einen Hinweis über die Besetzung und somit über die Temperatur des Ladungsträgersystems an.

Anfänglich gilt es zu verifizieren, ob es sich bei der Abnahme der Absorption wirklich um das abkühlende Lochsystem handelt. In Abbildung (5.6) sind dafür drei Messungen gegenübergestellt, wobei jeweils die Anregungsenergie bei gleichbleibender Photonenflussdichte variiert wurde. Die Anregungsenergie lag bei den ersten beiden Messungen unterhalb der Bandkante. In den Diagrammen sind die Transienten der einzelnen Subbänder zu sehen. Es ist ein deutlicher Unterschied zwischen den ersten beiden Messungen, und der dritten Messung zu erkennen. Im Gegensatz zur dritten Messung, ist bei den Messungen mit einer Anregung unterhalb der Bandkante und niedriger Photonenflussdichte keine späte Dynamik in der Absorption zu beobachten. Erst bei hohen Photonenflussdichten zeigt sich eine Änderung der Absorption, die für die ersten beiden Messungen gleiche Werte annimmt. Allerdings ist diese Abnahme wesentlich geringer im Vergleich zur Messung mit einer Anregung oberhalb der Bandkante. Dieses Verhalten bestätigt die Annahme, dass es sich um

## Heiße Löcher

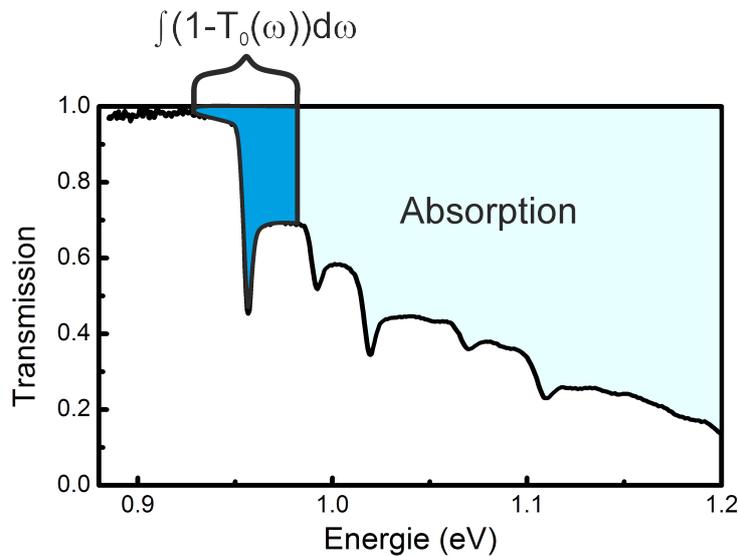


Abbildung 5.5: In der Abbildung ist die integrierte Absorption für das 1s-Schwerloch mit den Kontinuumszuständen dargestellt. Die Integrationen über die anderen einzelnen Zustände ist auf Grund der Überlagerung mit den Kontinuumszuständen der niederenergetischen Niveaus fehlerbehaftet.

das auf Gittertemperatur abkühlende Lochsystem handelt. Die Löcher bei der Anregung unterhalb der Bandkante entstammen keinem direkten Übergang, sondern sind ein Resultat der 2-Photonenabsorption in die Quantenfilme, in die Barrieren und in das Silizium, die bei hohen Intensitäten verstärkt auftritt. Um den Einfluss der 2-Photonenabsorption bei der nachfolgenden Analyse ausschließen zu können, werden nur die Transienten bei geringen Photonenflussdichten betrachtet. Schon in den Messungen von Abbildung (5.6) wird deutlich, dass sich das Abkühlen des Lochsystems auf extrem langen Zeitskalen abspielt. Um die Abkühlungszeiten näher zu untersuchen, sind in Abbildung (5.7) die Transienten des ersten Schwerlochsubbandes für verschiedene Photonenflussdichten und einer Anregungsenergie von 0.963 eV aufgetragen. Die Halbwertszeiten für den Absorptionsabfall sind im Vergleich zu GaAs, bei ähnlichen Temperaturen des Ladungsträgersystems (um die 400 K) um Größenordnungen erhöht (Abbildung (5.1)). Eine weitere bemerkenswerte Beobachtung ist die sinkende Halbwertszeit bei steigender Intensität. Dies entspricht nicht den in der Einleitung geäußerten Erwartungen.

Im zweiten Diagramm in Abbildung (5.7) ist die Abnahme der Absorption in Abhängigkeit der Intensität aufgetragen. Zu höheren Intensitäten hin zeigt der Verlauf der Kurve ein sättigendes Verhalten. Durch diese Sättigung im untersuchten Subbandbereich wird die abkühlende Dynamik des Lochsystems überlagert und somit die

## Experimentelle Messungen

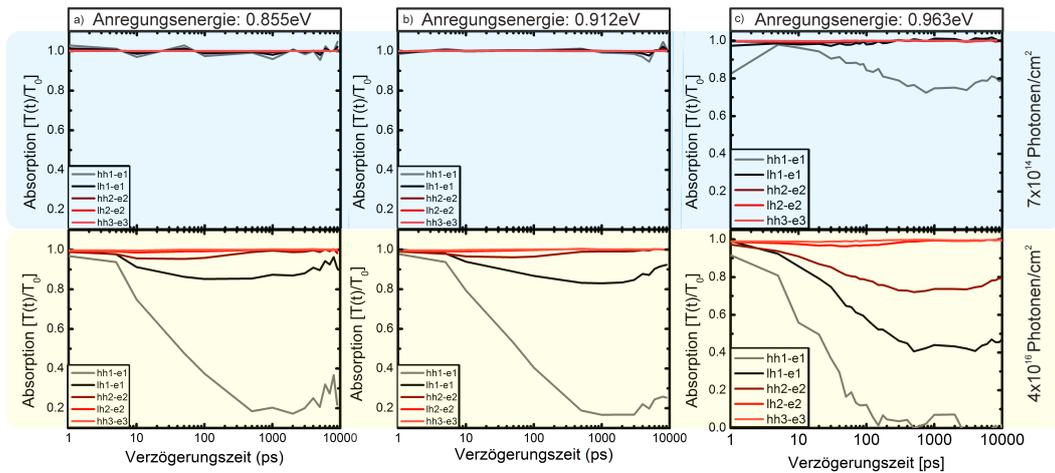


Abbildung 5.6: Vergleich der einzelnen Subband-Transienten für verschiedene Anregungsenergien. Nur bei starken Photonenflussdichten ist eine Absorptionsabnahme zu späten Zeiten bei Anregung unterhalb der Bandkante zu beobachten.

Halbwertszeit verfälscht. Dies bestätigt auch das zweite Diagramm, bei dem die Halbwertszeit gegenüber der Intensität aufgetragen ist. Erst bei einem Einsetzen des sättigenden Verhaltens ist eine starke Änderung der Halbwertszeit zu erkennen. Um dennoch eine Aussage über die Abkühlzeit bei den hohen Intensitäten zu treffen, muss man sich die Dynamik der höherliegenden Energieniveaus anschauen. In Abbildung (5.8) ist das zeitliche Absorptionsverhalten des Leichtlochsubbandes aufgetragen. Diese Transienten zeigen mehr Dynamik als die des Schwerlochsubbandes. So erkennt man bei geringen Anregungsintensitäten ab ca. 100 ps eine Zunahme der Absorption. Dies ist ein Indiz für den Abkühlvorgang im Lochsystem. Die Abfallkurven bei hohen Anregungsintensitäten zeigen nun ähnlich hohe Halbwertszeiten wie die Abfallkurven bei geringen Anregungsintensitäten in Abbildung (5.7). Dies untermauert die Vermutung des Auffülleffekts des unteren Subbandbereichs bei hohen Intensitäten (siehe auch modelhafte Darstellung in Abbildung (5.4)). Bemerkenswerterweise bedeutet dies allerdings auch, dass die Abkühlzeiten für die verschiedenen Intensitäten sich nur geringfügig unterscheiden und somit um mindestens eine Größenordnung langsamer sind als z.B. in GaAs.

Zusätzlich ist in Abbildung (5.7, a) bei geringen Anregungsintensitäten noch ein langsames Einsetzen der Rekombination der Ladungsträger zu erkennen. So nimmt dort die Absorption ab einer Nanosekunde graduierlich zu. Die vollständige Erholung des Systems spielt sich allerdings außerhalb des zeitlichen Auflösungsvermögens der Messapparatur ab.

Ein Vergleich des Absorptionsabfalls bei verschiedenen Anregungsenergien erfolgt in Abbildung (5.9). Der Einfluss einer höheren Anregungsenergie bei gleicher Intensität

## Heiße Löcher

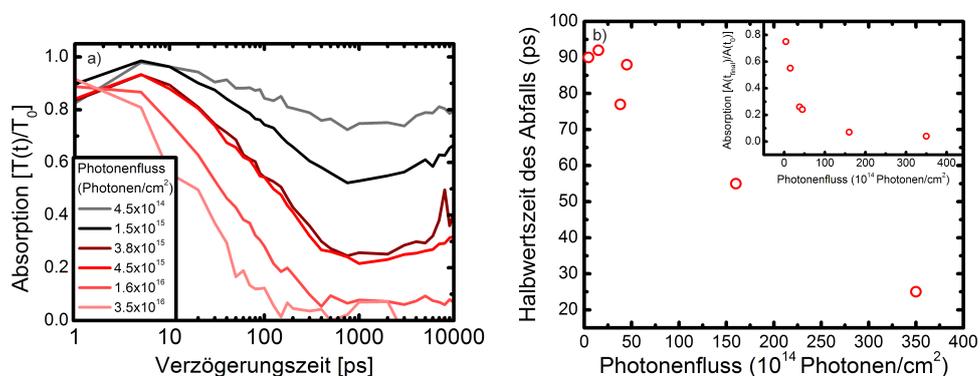


Abbildung 5.7: Abbildung (a): Intensitätsstudie des Absorptionsabfalls beim ersten Subband. Das Abfallverhalten bei hohen Intensitäten ist deutlich erhöht. Abbildung (b): Halbwertszeit des Absorptionsabfalls in Abhängigkeit der Zeit. Im Inset ist die maximale Absorptionsabnahme für die verschiedenen Intensitäten aufgetragen. Die Graphen geben Hinweis auf eine Überlagerung des Abkühlereffekts durch einen Auffüllereffekt.

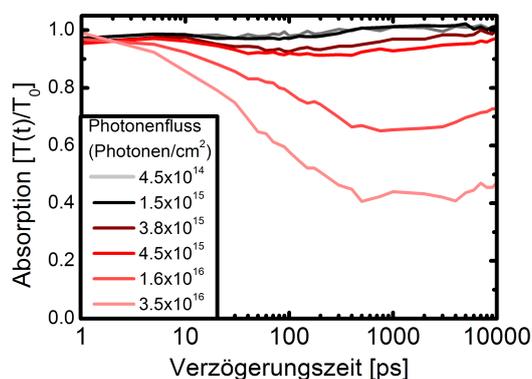


Abbildung 5.8: Transienten des Absorptionsabfalls für den Leichtlochsubbandbereich. Die Transienten bei geringen Intensitäten weisen eine Ab- und Zunahme der Absorption auf, eine Folge des abkühlenden Lochsystems. Die Dynamik bei hohen Intensitäten ist deutlich verlangsamt, was die Annahme des Auffüllereffekts untermauert.

## Zusammenfassung

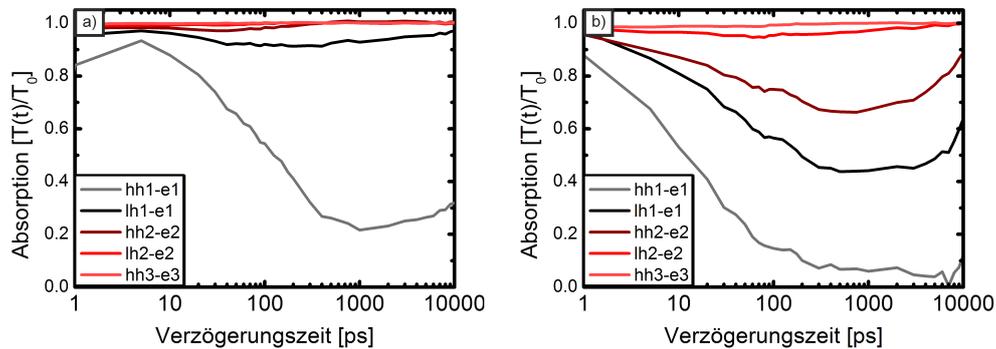


Abbildung 5.9: Analyse des Einflusses der Anregungsenergie bei gleicher Intensität. In Abbildung (a) lag die Anregungsenergie bei 0.965 meV bei einer Photonenflussdichte von  $4.5 \times 10^{15}$  Photonen/cm<sup>2</sup>. In Abbildung (b) lag die Anregungsenergie bei 1.08 meV und gleicher Photonenflussdichte. Wie erwartet nimmt die Ladungsträgeranzahl bei höherer Anregungsenergie zu.

führt, wie erwartet, zu einem Anstieg der angeregten Ladungsträger im System und somit zu einer stärkeren Abnahme der Absorption zu späten Zeiten. Die Rekombination der Ladungsträger, obwohl sie über den gesamten Energiebereich gleichmäßig abläuft, ist nur bei den höheren Subbändern zu beobachten. Der Grund dafür ist die auf Femtosekundenskala stattfindende Thermalisierung des Lochsystems durch Coulomb-Streuprozesse [58]. Sie verlangsamt nur scheinbar die Rekombinationsrate der energetisch tieferliegenden Subbandzustände. Auch wenn das Fermi-Niveau sich bei den verschiedenen Anregungsenergien erheblich voneinander unterscheidet, weist die Abkühlungskurve des Lochsystems keine signifikante Änderung auf. Somit wird weder durch Erhöhung der Intensität noch durch Erhöhung der Anregungsenergie im hier beobachteten Regime eine Änderung des Abkühlungsprozesses beobachtet.

### 5.3 Zusammenfassung

Die Messungen haben gezeigt, dass der späte Absorptionsabfall durch das auf Gittertemperatur abkühlende Lochsystem hervorgerufen wird. Dabei ist der Verlauf des Abkühlprozesses im Vergleich zu GaAs Messungen bei ähnlichen Anregungsbedingungen um Größenordnungen verlangsamt. Es fällt dabei auf, dass selbst bei einer Überschussanregungsenergie von 9 meV der Absorptionsabfall erst nach etwa 10 ps einsetzt (Abbildung (5.9)). Dieses Verhalten deutet auf ein sehr heißes Lochsystem hin, welches die Überschussanregungsenergie weit übersteigt. Eine Erklärung des schein-

## Heiße Löcher

baren Energiegewinns im Lochsystem liefert das L-Tal im Materialsystem. Dieses befindet sich energetisch 154 meV unterhalb des  $\Gamma$ -Tals. Die Streuzeiten der Elektronen in das energetisch günstigere L-Tal betragen wenige hundert Femtosekunden und die intraband Thermalisierungszeiten liegen auf der gleichen Zeitskala. Der Energieüberschuss des L-Tals liefert also die nötige Energie, um das Lochsystem weit über die vermeintlichen 9 meV Überschussenergie zu heizen. Der langsame Abfall lässt sich dann durch den „hot-phonon“-Effekt und der fehlenden Fröhlichwechselwirkung, auf Grund der rein kovalenten Bindungen in Germanium erklären.

Bei den Messungen konnten zwei weitere Phänomene beobachtet werden, die die reine Abkühl-dynamik überlagerten. Hohe Anregungsintensitäten führten zu einem Auffüll-effekt der unteren Subbandzustände und ließen dann schnellere Abkühlzeiten vermuten. Bei der Betrachtung der höherliegenden Zustände allerdings zeigten sich ähnliche Abkühlhalbwertszeiten wie bei den Messungen mit geringer Anregungsintensität. Zusätzlich konnte ab einer Verzögerungszeit von 1 ns eine Zunahme der Absorption beobachtet werden. Diese Zunahme ist durch die eintretende Rekombination der Ladungsträger zu erklären. Diese Rekombination erfolgt gleichwahrscheinlich über die gesamten Subbänder, so wird die Zunahme der Absorption, auf Grund der schnellen Thermalisierung des Lochsystems zuerst bei den energetisch höherliegenden Subbändern beobachtet.

## 6 Optische Verstärkung

Der Laser auf Silizium ist seit Jahren ein angestrebtes Ziel der Halbleiterphysik. Ein solcher Laser ist ein entscheidender Schlüssel für eine On-Chip optische Datenverarbeitung. Germanium ist dabei ein vielversprechendes Materialsystem zur Realisierung solch eines Lasers. Das folgende Kapitel beschäftigt sich mit der optischen Verstärkung in dotiertem Germanium Volumenmaterial.

### 6.1 Einleitung

Silizium ist der Grundbaustein sämtlicher Datenverarbeitungstechnik. Silizium besitzt allerdings im Gegensatz zu vielen III-V-Halbleitern eine indirekte Bandstruktur, die für eine Laseranwendung sehr ungeeignet ist. Silizium ist aber ein weitverbreiteter, günstiger Rohstoff und verfügt mit  $\text{SiO}_2$  über ein natives Oxid mit hervorragenden Isolationseigenschaften. Zudem entwickelt sich die Siliziumtechnik nun schon seit 40 Jahren stetig weiter. Aus diesen Gründen ist ein Verzicht auf Silizium nicht ratsam und technologisch zur Zeit unmöglich. Folgerichtig bleibt für die optische Datenverarbeitung nur eine Hybridlösung übrig, die Silizium weiterhin für die elektronischen Komponenten und ein weiteres Materialsystem für die optischen Komponenten verwendet. Große Anstrengungen im vergangenen Jahrzehnt haben erste erfolgreiche Ansätze diesbezüglich hervorgebracht: Eine LED aus Erbium dotiertem Silizium [61], der Silizium-Raman-Laser [46] oder die erfolgreiche Integration von III-V-Halbleitern auf Silizium [28]. All diese Ansätze haben aber nicht zu verachtende Nachteile; der Silizium-Raman-Laser hat nur eine geringe Effizienz, außerdem ist die fehlende Fähigkeit zur Miniaturisierung unbefriedigend. Bei der Integration von III-V-Halbleitern auf Silizium fehlt die CMOS-Kompatibilität, auch das Wachstumsverfahren ist verhältnismäßig aufwendig, da mindestens zwei Reaktoren notwendig sind. Erbium scheidet auf Grund seiner insgesamt geringen Verstärkungswerte, die sehr lange Wechselwirkungslängen wie in Faserlasern verlangen, für eine On-Chip-Lösung aus. Wie in dem vorherigen Absatz bereits erwähnt, ist Silizium ein indirekter Halbleiter und lange Zeit war man der Meinung, dass eine Besetzungsinversion als notwendige physikalische Grundlage für Laseraktivität in einem solchen Material nicht möglich ist. Erst

kürzlich veröffentlichte Beobachtungen lassen vermuten, dass dieses Dogma überdacht werden muss: Im Jahre 2009 wurde bei Ge/SiGe-Heterostrukturen zum ersten Mal transiente optische Verstärkung gemessen [30]. Germanium ist trotz seiner indirekten Natur sehr interessant für optische Anwendungen. Nicht nur Germanium Quantenfilme wie in Ref. [30], sondern auch Germanium Volumenmaterial, wie im Folgenden gezeigt wird, zeigen ein hohes Potential für die Realisierung eines Lasers auf Silizium.

## 6.2 Grundlagen

Der für die optische Verstärkung verantwortliche Prozess ist die stimulierte Emission von Photonen. Dieser bei Einstrahlung von Licht in ein angeregten Halbleiter auftretende Effekt tritt in Konkurrenz zu zwei weiteren Prozessen: die erneute Absorption und die spontane Emission eines Photons. Bei der Evaluierung der optischen Verstärkung geht man von einem stationären System aus und man befindet sich somit im letzten zeitlichen Abschnitt eines angeregten Halbleiters. Im stationären Zustand lässt sich die Häufigkeit der drei auftretenden Prozesse mit Hilfe einer Rategleichung wie folgt bestimmen:

$$\dot{n}_2 = -B_{21}n_2|E(\omega)|^2 - A_{12}n_2 + B_{12}n_1|E(\omega)|^2 = -\dot{n}_1 = 0, \quad (6.1)$$

$n_1$  und  $n_2$  sind die Besetzungen des Grund- und Endzustandes und die Koeffizienten  $A_{12}$ ,  $B_{12}$  und  $B_{21}$  die Übergangswahrscheinlichkeiten des jeweiligen Prozesses. Überwiegt die stimulierte Emission gegenüber der Spontanen, so kommt es zu einer Verstärkung des eingestrahlt Lichts. Die Bedingung dafür ist die sogenannte Besetzungsinversion  $n_2 > n_1$ .

Da bei der Absorption und Emission von elektromagnetischen Licht nur ein sehr geringer Impulsübertrag erfolgt sind die hohen Besetzungen von Elektronen und Löchern an ähnlichen k-Punkten für eine solche Inversion erforderlich. Bei direkten Halbleitern, wie GaAs, ist dies für hohe Anregungsdichten am  $\Gamma$ -Punkt erfüllt, in indirekten Halbleitern, wie Silizium und Germanium, liegt das globale Minimum des Leitungsbandes allerdings nicht am  $\Gamma$ -punkt (siehe Abbildung (2.3)). Dadurch ist die Voraussetzung für eine Besetzungsinversion nicht mehr gegeben, und die spontane Emission ist die dominierende Kraft. Vergleicht man die in Abbildung (2.3) gezeigten Bandstrukturen von Silizium und Germanium, so lässt sich ein wichtiger Unterschied ausmachen. Germanium besitzt am  $\Gamma$ -Punkt ein lokales Minimum. Zusätzlich beträgt die energetische Differenz zwischen L- und  $\Gamma$ -Punkt im Vergleich zu Silizium lediglich 150 meV. Dementsprechend liegt es nahe, die Germaniumbandstruktur so weit zu manipulieren, bis eine Besetzungsinversion möglich wird.

Eine Möglichkeit die Bandstruktur zu manipulieren ist die gezielte Verspannung des

## Experimentelles

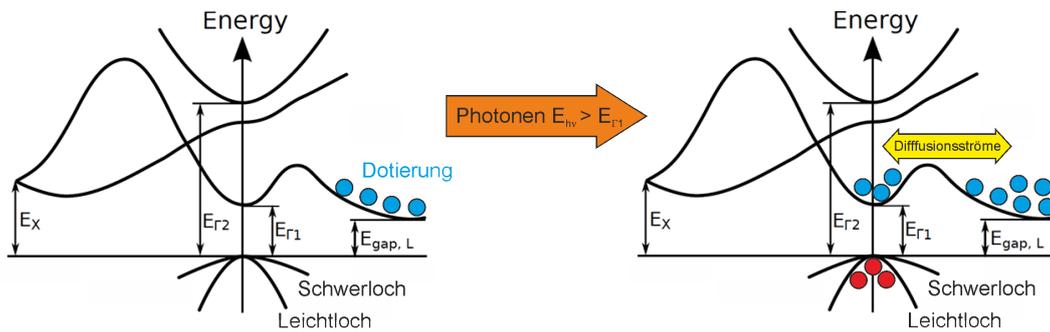


Abbildung 6.1: Mit Hilfe von n-Dotierung werden die L-Täler mit Elektronen gefüllt. Nach der Anregung besitzen die Elektronen auf Grund von Diffusionsströmen nun eine endliche Aufenthaltswahrscheinlichkeit am  $\Gamma$ -Punkt, um im bestmöglichen Fall eine Besetzungsinversion zu erzielen.

Kristallgitters, wie sie in Kapitel (2) beschrieben wurde. Allerdings lassen sich Gitterverspannungen nur bis zu einem gewissen Grad einstellen, danach wächst der Kristall nicht mehr homogen. Die mögliche einstellbare Verspannung reicht leider nicht aus, um die Differenz zwischen den beiden Tälern vollständig zu kompensieren. Somit bedarf es weiterer Mittel, um eine Besetzungsinversion zu erzielen. Durch gezielte n-Dotierung gelingt dies. Die zusätzlichen sich im Leitungsband befindenden Elektronen füllen das L-Tal und heben damit das Fermi-Niveau stark an (Abbildung (6.1)). Dadurch erhöht sich das Fermi-Niveau nach der optischen Anregung soweit, dass Diffusionsströme zwischen dem  $\Gamma$ -Tal und den L-Tälern einsetzen, die folglich für einen großen Anteil der angeregten Elektronen eine endliche Aufenthaltswahrscheinlichkeit am  $\Gamma$ -Punkt garantieren. Bei ausreichend hohen Anregungsdichten ist es somit möglich eine Besetzungsinversion am  $\Gamma$ -Punkt zu erzielen. Basierend auf diesem Prinzip führt eine höhere Umgebungstemperatur zu einer breiteren Fermi-Verteilung des Elektronensystems; folglich steigt die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen am  $\Gamma$ -Punkt weiter an, woraus eine verbesserte Quanteneffizienz resultiert.

## 6.3 Experimentelles

Die bei den Messungen untersuchte Probe ist die in Kapitel (2) beschriebene, dotierte Germanium Volumenmaterial Probe #56427. Die Temperatur wird bei den Messungen auf 7 K eingestellt. Durch zwei Gitter, die gezielt die einzelnen spektralen Komponenten unterschiedlich lange Wege laufen lassen, wird der ursprünglich 150 fs lange Anregeimpuls auf 80 ps gestreckt. Damit befindet sich die Anregung im quasi-stationären Regime und die erhöhte Transmission durch Pauli-Blockade wird

## Optische Verstärkung

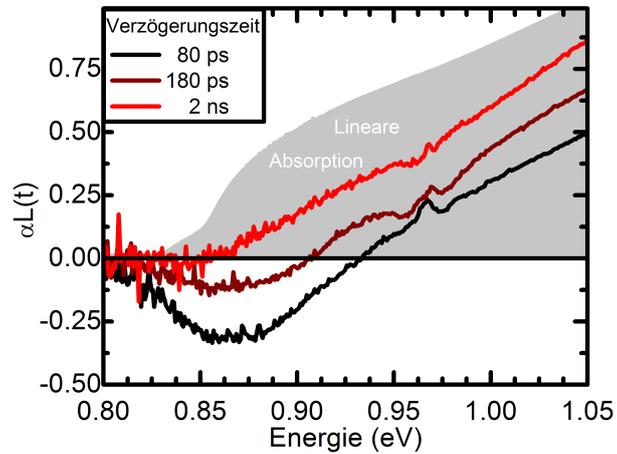


Abbildung 6.2: Zeitliche Entwicklung der optischen Verstärkung in der Probe #56427. Der minimale  $\Delta\alpha L$ -Wert wird mit  $-0.3$  kurz nach der Anregung erreicht. Nach etwa  $2\text{ ns}$  ist keine Verstärkung mehr zu beobachten.

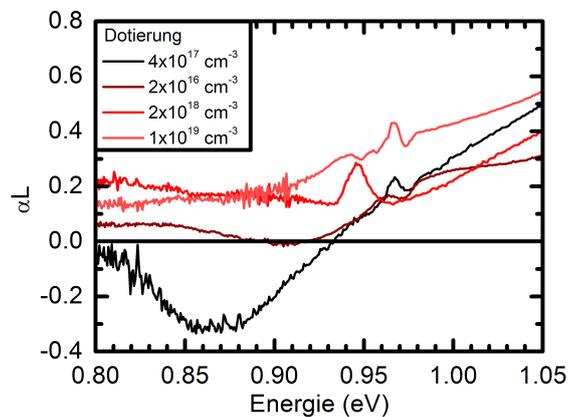


Abbildung 6.3: Anrege-Abfrage-Spektren für verschiedene Proben mit unterschiedlichem Dotierungsgrad im Vergleich mit dem Verstärkungsspektrum von der Probe #56427. Keine andere Probe weist optische Verstärkung auf, es wird lediglich die Transparenz erreicht. Auffällig ist die erhöhte Unterbandkantenabsorption.

## Experimentelles

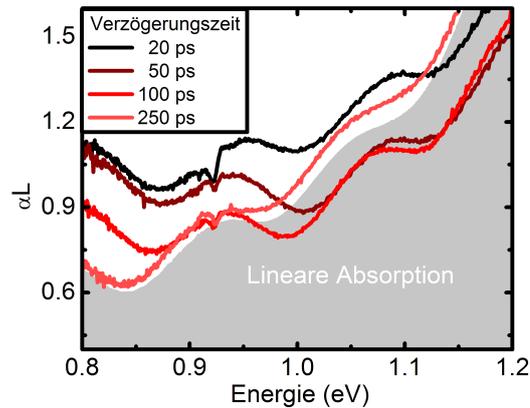


Abbildung 6.4: Absorptionsspektren der angeregten, p-dotierten Germaniumprobe. Nach der Anregung zeigt sich eine starke, breitbandige Anhebung der Absorption. Die Unterbandkantenabsorption in den n-dotierten Proben ist also ein Resultat der Anregung der erzeugten Löcher in höhere Zustände.

reduziert. Die einzelnen zeitlichen Spektren der Messung bei einer Photonenflussdichte von  $1 \times 10^{18}$  Photonen/cm<sup>2</sup> und einer Anregungsenergie von 0.968 meV sind in Abbildung (6.2) gezeigt.

Man erkennt deutlich, dass die Absorption der Probe in den ersten 80 ps auf einen negativen  $\Delta\alpha L$ -Werte von -0.3 ansteigt, korrespondierend mit einer optischen Verstärkung des eingestrahlt Lichts in einem Energiebereich von 0.82 meV bis 0.93 meV. Die Verstärkungswerte, sowie die zeitliche Dynamik sind vergleichbar mit denen in typischen III-V-Halbleitern, allerdings bei wesentlich geringeren Photonenflussdichten. Der zweite Teil der Messungen befasst sich mit dem Einfluss des Dotierungsgrades. Die dabei untersuchten Proben besitzen sowohl höhere, als auch niedrigere Dotierdichten. In Abbildung (6.3) sind die Spektren der einzelnen Proben gezeigt. Diese zeigen jeweils den für die Probe minimal erzielten  $\alpha L$ -Wert.

Lediglich für die Probe #56247 konnte eine optische Verstärkung festgestellt werden, die anderen Proben erreichten maximal die Transparenz. Auffällig ist auch die Absorption unterhalb der Bandkante nach erfolgter Anregung. Diese Absorption hemmt, oder in den meisten Fällen verhindert komplett eine optische Verstärkung. Diese Unterbandkantenabsorption resultiert entweder von den angeregten Elektronen oder den angeregten Löchern. Die freie Ladungsträgerabsorption von Elektronen erfolgt in Germanium hauptsächlich phononen-assistiert im L-Tal, während bei den Löchern Übergänge von den Leicht- und Schwerlochbändern in das Split-Off Band möglich sind [60]. Um die Ursache der Unterbandkantenabsorption näher zu ergründen wird eine p-dotierte Probe untersucht. Dementsprechend befasst sich der letzte Teil dieses Kapitels der p-dotierten Probe #56456. Abgesehen von der Dotierung, unterschei-

det sich die Probe nicht von der Probe #56427. Die Anregungsbedingungen entsprechen ebenfalls den Messbedingung der Probe #56427. Die zeitlichen Spektren sind in Abbildung (6.4) gezeigt. Überraschender Weise zeigt sich ein inverser Effekt gegenüber der n-dotierten Probe. Die Absorption wird breitbandig stark erhöht und klingt erst nach mehreren 100 ps ab. Dieser Effekt ist anscheinend die verstärkte Variante der Unterbandkantenabsorption. So werden die erzeugten Löcher vom Schwer- und Leichtlochband in energetisch höhere Zustände angeregt. Auf Grund der flach verlaufenden Lochbänder erfolgt diese Absorption in einem breiten Spektralbereich. Dieser Effekt wurde bereits im Jahre 1957 von Newman und Tyler identifiziert [43].

### 6.4 Zusammenfassung

Es konnte gezeigt werden, dass durch gezielte Verspannung und Dotierung eine Besetzungsinversion in Germanium Volumenmaterial möglich ist. Dabei wurden Verstärkungswerte ähnlich denen von III-V-Halbleitern erreicht. Auf Basis solch einen Materials ist es mittlerweile gelungen einen Laser zu bauen [35]. Somit ist Germanium ein vielversprechender Kandidat für die erfolgreiche Integration eines Lasers auf Silizium. Der nächste Schritt ist es, die Besetzungsinversion elektrisch zu erzielen.

Die anderen Messungen haben ebenfalls interessante Ergebnisse geliefert, so konnte die Unterbandkantenabsorption eindeutig der Anregung der Löcher in energetisch höhere Zustände zugeordnet werden. Gerade die Untersuchung der p-dotierten Probe brachte dies eindrucksvoll zur Schau. Die nichtvorhandene optische Verstärkung bei höher n-dotierten Proben im Vergleich zur Probe #56427 lässt sich durch schlechtere Materialqualität und erhöhte Inhomogenitäten erklären. Somit besteht ein äußerst sensibles Verhalten zwischen Verspannung und Dotierungsgrad. Grundsätzlich sollten höherdotierte Proben eine bessere Quanteneffizienz aufweisen. Schließlich war das Verstärkungsmaterial beim ersten Germanium-Laser auch wesentlich höherdotiert als die Probe #56427 [35]. Mittlerweile sind weitere Untersuchungen an verschiedenen Germanium Konstitutionen durchgeführt worden [22, 16, 53, 21]. Diese Entwicklung, die in den letzten beiden Jahren stattgefunden hat lässt hoffen, dass Germanium der lange gesuchte Schlüssel für die Integration von optischen Bauelemente auf Silizium ist. Hierfür sprechen auch die CMOS-Kompatibilität von Germanium, der energetische Abstand der direkten Bandlücke (einstellbar auf die Telekomfrequenz [56]), sowie die mittlerweile sehr guten Wachstumsmethoden.

## 7 Zusammenfassung

Es konnte gezeigt werden das Germanium nicht nur ein vielversprechender Kandidat für die Siliziumphotonik ist, sondern auch ein sehr interessantes Material zur Untersuchung fundamentaler, physikalischer Phänomene. Germanium zeigt einen gigantischen AC Stark Effekt, welcher rein kohärent ist und somit sich schon nach 150 fs vollständig erholt. Die dabei erzielten Bandkantenverschiebungen von bis zu 150 meV sprechen für das große Potential von Germanium als ultraschnellen, breitbandigen optischen Modulator. Bei der Anregung oberhalb der Bandkante konnten weitere interessante kohärente Effekte beobachtet werden, welche in der Form noch in keinem Halbleitermaterial zu sehen waren. Allerdings bleibt einem, ohne eine rigorose Vielteilchentheorie, ein vollkommenes Verständnis verwehrt. Dennoch sind weitere Untersuchungen erstrebenswert.

Desweiteren konnte eine optische Verstärkung in n-dotiertem Germanium Volumenmaterial nachgewiesen werden und somit die Ergebnisse von Liu et al. [35] bestätigen. Damit ist es erwiesen, dass ein Laser auf Siliziumbasis zu kostengünstigen Bedingungen grundsätzlich möglich ist. Trotzdem ist es bis zu einer kommerziellen Anwendung noch weit. So ist zu klären, warum die Probe mit geringerer Dotierung optische Verstärkung gezeigt hat und die höherdotierten Proben nicht. Dieses Ergebnis ist auch im Vergleich zu Ref. [35] überraschend, da die dort verwendete Probe wesentlich höherdotiert war. Das zeigt, dass das Zusammenspiel zwischen Dotierung und Verspannung dabei der entscheidende Faktor ist. Zusätzlich muss das homogene Wachstum dieser beiden Parameter über die gesamte Probe noch stark verbessert werden, da die optische Verstärkung nur in einem geringen örtlichen Bereich der Probe beobachtet wurde. Außerdem bereiten parasitäre Effekte wie die über den gesamten Spektralbereich auftretende Loch-Interbandabsorption Probleme, die die optische Verstärkung teilweise wieder reabsorbiert. Das Fernziel bleibt ein elektrisch angeregter Germaniumlaser auf Siliziumbasis und erst dann ist eine kommerzielle Anwendung realistisch.

Letztendlich wurde beobachtet, dass die indirekte Natur von Germanium erheblichen Einfluss auf die Ladungsträgerabkühlung auf Kristallgittertemperatur hat. So zeigt sich, dass das Lochsystem sich weit über die Überschussenergie der Anregung aufheizt. Der Grund dafür ist der Energiegewinn der Elektronen durch Streuung in das 154 meV energetisch tiefere L-Tal. Die gesamte Abkühlung des Ladungsträgersystems läuft dann um Größenordnungen langsamer ab als bei GaAs. Diese langsame

## Zusammenfassung

Abkühlung wird einem starken Hot-Phonon-Effekt im Germanium zugeschrieben. Abschließend ist zu sagen, dass Germanium, trotz der schon langen wissenschaftlichen Interesse an diesem Material, noch viel Raum für Untersuchungen im Bereich der Ultrakurzzeitspektroskopie und der Siliziumphotonik bietet.

# Literaturverzeichnis

- [1] D. Ahn, C. Yin Hong, J. Liu, W. Giziewicz, M. Beals, L. C. Kimerling, J. Michel, J. Chen, and F. X. Kärtner. High performance, waveguide integrated ge photodetectors. *Opt. Express*, 15(7):3916–3921, 2007.
- [2] S. H. Autler and C. H. Townes. Stark effect in rapidly varying fields. *Phys. Rev.*, 100(2):703–722, Oct 1955.
- [3] I. Balslev, R. Zimmermann, and A. Stahl. Two-band density-matrix approach to nonlinear optics of excitons. *Phys. Rev. B*, 40(6):4095–4104, Aug 1989.
- [4] A. Beer. Bestimmung der absorption des roten lichts in farbigen flüssigkeiten. *Annalen der Physik und Chemie*, 86:78–88, 1852.
- [5] R. Binder, S. W. Koch, M. Lindberg, N. Peyghambarian, and W. Schäfer. Ultrafast adiabatic following in semiconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 65(7):899–902, Aug 1990.
- [6] R. Binder, S. W. Koch, M. Lindberg, W. Schäfer, and F. Jahnke. Transient many-body effects in the semiconductor optical stark effect: A numerical study. *Phys. Rev. B*, 43(8):6520–6529, Mar 1991.
- [7] M. Bonfanti, E. Grilli, M. Guzzi, M. Virgilio, G. Grosso, D. Chrastina, G. Isella, H. v. Känel, and A. Neels. Optical transitions in ge/sige multiple quantum wells with ge-rich barriers. *Physical Review B*, 78(4), 2008.
- [8] P. Brick, C. Ell, S. Chatterjee, G. Khitrova, H. M. Gibbs, T. Meier, C. Sieh, and Koch. Influence of light holes on the heavy-hole excitonic optical stark effect. *Physical Review B*, 64 (075323), 2001.
- [9] C. Cohen-Tannoudji. *Ann. Phys.*, 423(7), 1962.
- [10] C. Cohen-Tannoudji and S. Reynaud. Dressed-atom description of resonance fluorescence and absorption spectra of a multi-level atom in an intense laser beam. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, 10(3), 1977.
- [11] L. Colace, G. Masini, G. Assanto, H.-C. Luan, K. Wada, and L. C. Kimerling. Efficient high-speed near-infrared ge photodetectors integrated on si substrates. *Applied Physics Letters*, 76(10), 2000.

## Literaturverzeichnis

- [12] J. Collet, A. Cornet, M. Pagnet, and T. Amand. Cooling of high density electron-hole plasma. *Solid State Communications*, 42(12):883 – 887, 1982.
- [13] M. Combescot and R. Combescot. Excitonic stark shift: A coupling to semivirtual biexcitons. *Phys. Rev. Lett.*, 61(1):117–120, Jul 1988.
- [14] S. Das Sarma. Hot carriers in semiconductor nanostructures: physics and applications. *Boston, Academic Press.*, pages 53–85, 1992.
- [15] M. El Kurdi, G. Fishman, S. Sauvage, and P. Boucaud. Band structure and optical gain of tensile-strained germanium based on a 30 band k.p formalism. *Journal of Applied Physics*, 107(013710), 2010.
- [16] M. El Kurdi, T. Kociniewski, T.-P. Ngo, J. Boulmer, D. Dabarre, P. Boucaud, J. F. Damlencourt, O. Kermarrec, and D. Bensahel. Enhanced photoluminescence of heavily n-doped germanium. *Applied Physics Letters*, 94(19), 2009.
- [17] R. J. Elliott. Theory of the effect of spin-orbit coupling on magnetic resonance in some semiconductors. *Phys. Rev.*, 96(2):266–279, Oct 1954.
- [18] E. A. Fitzgerald. Dislocations in strained-layer epitaxy - theory, experiment and applications. *Mater. Sci. Rep.*, 7:87–140, 1991.
- [19] D. Fröhlich, A. Nöthe, and K. Reimann. Observation of the optical star effect in a semiconductor. *Physical Review Letters*, 55, 1985.
- [20] H. Haug and S. W. Koch. *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors*. World Scientific, 2009.
- [21] W. Hu, B. Cheng, C. Xue, H. Xue, S. Su, A. Bai, L. Luo, Y. Yu, and Q. Wang. Electroluminescence from ge on si substrate at room temperature. *Applied Physics Letters*, 95(092102), 2009.
- [22] Y. Huo, H. Lin, Y. Rong, M. Makarova, T. I. Kamins, J. Vuckovic, S. James, and J. S. Harris. Direct band gap tensile-strained germanium, 2009.
- [23] Y. Ishikawa, K. Wada, J. Liu, D. D. Cannon, H.-C. Luan, J. Michel, and L. C. Kimmerling. Strain-induced enhancement of near-infrared absorption in ge epitaxial layers grown on si substrate. *Journal of Applied Physics*, 98(1):013501, 2005.
- [24] M. Joffre, D. Hulin, a. Migus, a. Antonetti, C. Benoit à la Guillaume, N. Peyghambarian, M. Lindberg, and S. W. Koch. Coherent effects in pump-probe spectroscopy of excitons. *Optics letters*, 13(4):276–8, Apr. 1988.
- [25] M. Jutzi, M. Berroth, G. Wohl, M. Oehme, and E. Kasper. *IEEE Photonics Technology Letters*, 17:1510 – 1512, 2005.
- [26] K. Kash, J. Shah, D. Block, A. Gossard, and W. Weidmann. *Physica B & C*, 134B+C:189–197, 1985.

## Literaturverzeichnis

- [27] S. W. Koch, C. Sieh, M. T., F. Jahnke, A. Knorr, P. Brick, M. Hübner, C. Ell, J. Prineas, G. Khitrova, and H. M. Gibbs. Theory of coherent effects in semiconductors. *Journal of Luminescence*, 83-84, 1999.
- [28] B. Kunert, I. Nemeth, S. Zinnkann, G. Lukin, R. Fritz, K. Volz, W. Stolz, C. Lange, N. S. Koester, D. J. Franzbach, S. Chatterjee, W. Rühle, N. C. Gerhardt, N. Koukourakis, and M. Hoffmann. Lasing of latticematched ga(nasp) quantum well heterostructures monolithically integrated on (001) si substrate, 2009.
- [29] Y.-H. Kuo, Y. K. Lee, Y. Ge, S. Ren, J. E. Roth, T. I. Kamins, D. A. B. Miller, and J. S. Harris. Strong quantum-confined stark effect in germanium quantum-well structures on silicon. *Nature*, 437(7063), 2005.
- [30] C. Lange, N. S. Köster, S. Chatterjee, H. Sigg, D. Chrastina, G. Isella, H. v. Känel, M. Schäfer, M. Kira, and S. W. Koch. Ultrafast nonlinear optical response of photoexcited ge/sige quantum wells: Evidence for a femtosecond transient population inversion. *Physical Review B*, 79(20), 2009.
- [31] C. Lange, N. S. Köster, S. Chatterjee, H. Sigg, D. Chrastina, G. Isella, H. v. Känel, B. Kunert, and W. Stolz. Comparison of ultrafast carrier thermalization in gaxin1-xas and ge quantum wells. *Physical Review B*, 81(045320), 2010.
- [32] P. F. Liao and J. E. Bjorkholm. Direct observation of atomic energy level shifts in two-photon absorption. *Phys. Rev. Lett.*, 34(1):1–4, Jan 1975.
- [33] M. Lindberg, Y. Z. Hu, R. Binder, and S. W. Koch. chi(3) formalism in optically excited semiconductors and its applications in four-wave-mixing spectroscopy. *Phys. Rev. B*, 50(24):18060–18072, Dec 1994.
- [34] M. Lindberg and S. W. Koch. Effective bloch equations for semiconductors. *Physical Review B*, 38(5), 1988.
- [35] J. Liu, X. Sun, R. Camacho-Aguilera, L. C. Kimerling, and J. Michel. Ge-on-si laser operating at room temperature. *Optics Letters*, 35(5), 2010.
- [36] J. Liu, X. Sun, L. C. Kimerling, and J. Michel. Direct-gap optical gain of ge on si at room temperature. *Optics Letters*, 34(11):1738–1740, 2009.
- [37] S. Luryi, A. Kastalsky, and J. C. Bean. New infrared detector on a silicon chip. *IEEE Trans. Electron. Dev.*, ED-31:1135–1139, 1984.
- [38] Y. Maeda, N. Tsukamoto, Y. Yazawa, Y. Kanemitsu, and Y. Masumoto. Visible photoluminescence of ge microcrystals embedded in sio<sub>2</sub> glassy matrices. *Applied Physics Letters*, 59(24):3168–3170, 1991.
- [39] T. P. McLean and R. Loudon. Exciton energy levels in germanium and silicon. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 13(1-2):1 – 9, 1960.

## Literaturverzeichnis

- [40] B. R. Mollow. Power spectrum of light scattered by two-level systems. *Physical Review*, 188 (5), 1969.
- [41] B. R. Mollow. Stimulated emission and absorption near resonance for driven systems. *Physical Review A*, 5 (5), 1972.
- [42] A. Mysyrowicz, D. Hulin, A. Antonetti, A. Migus, W. T. Masselink, and H. Morokoc. Dressed excitons in a multiple-quantum-well structure: Evidence for an optical stark effect with femtosecond response time. *Physical Review Letters*, 56(25), 1986.
- [43] R. Newman and W. W. Tyler. Effect of impurities on free-hole infrared absorption in p-type germanium. *Physical Review*, 105(3), 1957.
- [44] N. Peyghambarian, S. W. Koch, and A. Mysyrowicz. *Introduction to Semiconductor Optics*. Prentice Hall, Englewood Cliffs, New Jersey, 1993.
- [45] G. T. Reed and A. P. Knights. *Silicon Photonics: An Introduction*. Wiley, 2004.
- [46] H. Rong, A. Liu, R. Jones, O. Cohen, D. Hak, R. Nicolaescu, A. Fang, and M. Paniccia. An all-silicon raman laser. *Nature*, 433(7023), 2005.
- [47] B. Rossner, D. Chrastina, G. Isella, and H. von Kanel. Scattering mechanisms in high-mobility strained ge channels. *Applied Physics Letters*, 84(16):3058–3060, 2004.
- [48] S. Schmitt-Rink and D. S. Chemla. Collective excitations and the dynamical stark effect in a coherently driven exciton system. *Physical Review Letters*, 57 (21), 1986.
- [49] J. Shah and R. F. Leheny. Semiconductors probed by ultrafast laser spectroscopy. *Orlando, FL, Academic Press*, pages 45–75, 1984.
- [50] J. Shah, R. C. C. Leite, and J. F. Scott. Photoexcited hot lo phonons in gaas. *Solid State Communications*, 8(14):1089 – 1093, 1970.
- [51] C. Sieh, T. Meier, F. Jahnke, A. Knorr, S. W. Koch, P. Brick, M. Hübner, C. Ell, J. Prineas, G. Khitrova, and H. M. Gibbs. Coulomb memory signatures in the excitonic optical stark effect. *Physical Review Letters*, 82(15), 1999.
- [52] R. Soref and B. Bennett. Electrooptical effects in silicon. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 23:123–129, 1987.
- [53] X. Sun, J. Liu, L. C. Kimerling, and J. Michel. Direct gap photoluminescence of n-type tensile-strained ge-on-si. *Applied Physics Letters*, 95(1), 2009.
- [54] Träger, editor. *Springer Handbook of Lasers and Optics*. Springer, 2007.
- [55] H. M. van Driel. Influence of hot phonons on energy relaxation of high-density carriers in germanium. *Phys. Rev. B*, 19(11):5928–5932, Jun 1979.

## Literaturverzeichnis

- [56] M. Virgilio and G. Grosso. Type-i alignment and direct fundamental gap in sige based heterostructures. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 18:1021–1031, 2006.
- [57] G. H. Wannier. The structure of electronic excitation levels in insulating crystals. *Phys. Rev.*, 52(3):191–197, Aug 1937.
- [58] M. Woerner, W. Frey, M. T. Portella, C. Ludwig, T. Elsaesser, and W. Kaiser. Ultrafast thermalization of nonequilibrium holes in p-type germanium studied by femtosecond infrared spectroscopy. *Phys. Rev. B*, 49(24):17007–17010, Jun 1994.
- [59] J. F. Young, T. Gong, P. M. Fauchet, and P. J. Kelly. Carrier-carrier scattering rates within nonequilibrium optically injected semiconductor plasmas. *Phys. Rev. B*, 50(4):2208–2215, Jul 1994.
- [60] P. Y. Yu and M. Cardona. *Fundamentals of Semiconductors*. Springer, 2005.
- [61] B. Zheng, J. Michel, F. Y. G. Ren, L. C. Kimerling, D. C. Jacobson, and J. M. Poate. Room-temperature sharp line electroluminescence at 1.54 micrometres from an erbium-doped, silicon light-emitting diode. *Applied Physics Letters*, 64(21), 1994.



# Danksagung

Als erstes möchte ich mich bei PD Dr. Sangam Chatterjee und Prof. Dr. W. W. Rühle für die freundliche Aufnahme in die Arbeitsgruppe „Experimentelle Halbleiterphysik“ bedanken. PD Dr. Sangam Chatterjee danke ich zusätzlich für die vielen konstruktiven Gespräche bezüglich der untersuchten Materie, sowie für die vielen nützlichen Hinweise und praktischen Hilfen im Labor.

Ein besonderer Dank geht an meinen Betreuer Niko Köster, dessen bedingungslose Hilfe bei den auch kleinsten Problemen ein großer Segen war. Bei den vielen Gesprächen mit ihm rund um die Physik konnte ich sehr viel Neues lernen aber auch Altes endlich verstehen. Ein großer Dank geht auch an die restlichen Mitglieder der Arbeitsgruppe „Experimentelle Halbleiterphysik“, die immer hilfsbereit zur Seite standen und auch für ein zu gutes Arbeitsklima sorgten.

Für die technische Unterstützung bedanke ich mich bei Rüdiger Rink, der Feinmechanik Werkstatt und der Elektronik Werkstatt.

Einen herzlichen Dank geht an meine Eltern, dessen Liebe und Unterstützung mir das Studium ermöglicht haben.

Vielen Dank auch an meinen Bruder Kevin, dem ich vollkommen vertraue und auf dessen Unterstützung ich immer zählen kann.

Abschließend bedanke ich mich bei meinem Engel Phaedra Yunuen Schulz,  
I Love You.