

# Zur Dynamik bestimmter Ladungsträger-Transferprozesse in Halbleiterquantenfilmen

Dissertation

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

dem Fachbereich Physik  
der Philipps-Universität Marburg



vorgelegt von

**Michael J. Drexler**

aus

Wolfenbüttel

Marburg, September 2015

Marburg (2015)

Hochschulkennziffer 1180

Vom Fachbereich Physik  
der Philipps-Universität Marburg  
als Dissertation angenommen am: 09.12.2015

Tag der mündlichen Prüfung: 17.12.2015

Erstgutachter: Prof. Dr. Martin Koch  
Zweitgutachter: Dr. habil. Wolfgang Stolz





# **Dynamics of specific charge-carrier transfer processes in semiconductor quantum films**

## **Abstract**

Semiconductor devices have a vast impact on today's economy and society. Not only are they constantly used in everyday life, for example in personal computers, mobile phones and illumination from light-emitting diodes (LED) [29]. Also, Vertical Cavity Surface Emitting Lasers (VCSEL) [64] enable high-speed optical data transmission as a key component of the global communication network. Microprocessors and sensors based on semiconductor technologies deliver a wide range of functionalities not only for use in complex products themselves but also in the process of their manufacturing.

Besides combining different concepts for applications, there is an ongoing development of semiconductor devices [77]. Not only does the control of complex processes play a major role, but also emerging new materials seem to hold promise for future devices and application. Enormous activity concentrates on the class of true two-dimensional crystal structures where Graphene is only one of many possibilities [26].

The ever-decreasing size of electronic circuits creates challenges for the chip architecture, demanding new concepts to avoid parasitic effects at interfaces [84]. However, applications such as solar cells call for knowledge and control of the interface-dominated processes, where the separation of charge is connected with dissociation and transport at the interfaces [4, 60, 43, 112].

Next to countless studies on the prediction and realization of the electronic structure through calculation and specific growth of a wide range of semiconductor materials, there has always been the fundamental idea to manipulate and control states of matter with light. Whether these research efforts may be justified with the motivation to construct quantum-computers [89] or ultrafast switches or memories cannot be answered here. Nevertheless, it can be stated that realizing coherent (s. chap. 2.1.2) control over states of matter requires as well as stimulates an enormous depth of knowledge of the light-matter interaction.

In this respect, novel insights could not only be achieved by a continuous development of a microscopic theory [93, 51, 3], but also by a vast improvement of the experimental technique [71, 103]. Consequently, light sources with photon energies in the range of meV or frequencies in the range of THz have played a major role in revealing new phenomena of light-matter interaction [34, 114, 28]. Furthermore, certain implications of coulomb interaction in semiconductors, such as the dynamics of

---

plasma screening [35] or the time-scale of the formation of direct excitons [65, 42], could be clarified.

Recently, the novel concept of an indirect population transfer with THz pulses through interfaces has been proposed [104] which illustrates the broader context of this work. By using selective THz pulses resonant to specific transitions in an asymmetric double quantum well (compare systems studied in chap. 5), either excitons, plasma or – through swapping – only the correlations can be transferred from the indirect to the direct configuration [104].

In this work, coherent effects of the light-matter interaction within a THz-induced transfer are studied, and the basis for studies on the influence of the interface on the transfer dynamics is established.

Chapter 3 and 4 present aspects regarding the THz-induced transfer in well-known semiconductor (GaIn)As quantum film systems and in a sheet of bulk GaAs. Here, features of the exact temporal shape of a manipulated excitonic polarization according to the prediction of the microscopic theory [21] are confirmed experimentally.

The first realization of a FWM experiment in combination with the generation of strong THz fields leads to the observation of different regimes of coherent manipulation. Within this combination, possible sequences of pulses are characterized and discussed in the model of the THz-induced manipulation of the microscopic polarization while detecting the macroscopic polarization.

In studying the dependence on the THz field strength, qualitative agreement with a field-ionization picture is found from a threshold at higher field strengths for signatures dominated by 2s and energetically higher excitonic levels compared to signatures dominated by energetically lower 1s excitonic levels.

At last, the reversibility for intermediate field strengths of the THz-induced transfer is observed explicitly for the first time in this configuration, qualitatively confirming the microscopic theory.

In addition, the subsequent observation of coherent oscillations in bulk GaAs due to a THz-induced temporal truncation of the polarization is reported for the first time. This result is an anticipated consequence of an irreversible THz-induced transfer of an 1s excitonic polarization. Due to the high spectral resolution, small changes in the temporal truncation of the polarization are accessible, thereby confirming a faster temporal truncation with higher THz fields than at intermediate fields. This is consistent with a field-ionisation picture and with the prediction of a microscopic theory.

Finally, in chapter 5 model systems based on (GaIn)As/GaAs/Ga(NAs) double quantum wells are established in order to study the electron transfer through the GaAs

---

barrier and the evolving spatially indirect population.

The electronic structure is clarified by comparing the results of linear absorption, time-resolved PL and pump-probe spectroscopy. In order to access the transfer times, several experimental methods are employed and compared with predictions from an existing simplistic model. Besides the expected increase of transfer times with increasing barrier thicknesses, deviations from the model and limiting processes are discussed. Further investigations have been initiated by varying the morphology of the interfaces.

Using pump-probe spectroscopy, carrier dynamics on time scales from approximately 40 fs to 5 ns are studied. Depending on the barrier thickness and excitation conditions, the transfer process is found on timescales ranging from approximately 30 fs to 100 ps while partially concurring cooling processes occur within several 10 ps. A quasi-equilibrium is reached on nanosecond timescales, although the true recombination and life times could not be accessed in the present experimental setup.

Spectral signatures starting with an initial red shift that evolves into a blue shift give information about the dominating contributions of screening and phase-space filling. As a consequence of the dominating homogeneous broadening for the case of the thinnest barrier a lineshape narrowing is found for an existing indirect population. This indicates an increased time for the electron transfer process.

Within this work, important insights into the dynamics of the intra-excitonic transfer are gained and the basis for extended studies on the influence of the interface on transfer dynamics is established. Despite the vast number of previous studies on these established semiconductor systems, advances are made in analyzing and ultimately controlling the carrier transfer through interfaces as indicated in the discussion of chap. 6.





# Inhaltsverzeichnis

<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2 Grundlagen</b>	<b>5</b>
2.1 Halbleitersysteme . . . . .	5
2.1.1 Niedrig-dimensionale Systeme . . . . .	5
2.1.2 Zeitregime der Ladungsträgerdynamik . . . . .	7
2.2 Theorie der Licht-Materie-Wechselwirkungen im Halbleiter . . . . .	8
2.2.1 Optische Bloch-Gleichungen . . . . .	8
2.2.2 Exzitonen . . . . .	9
2.2.3 Halbleiter-Bloch-Gleichungen . . . . .	9
<b>3 THz-induzierter intraexzitonischer Transfer</b>	<b>11</b>
3.1 Einführung . . . . .	11
3.2 Methodik . . . . .	13
3.2.1 THz-Erzeugung . . . . .	13
3.2.2 Vier-Wellen-Mischen . . . . .	17
3.2.3 Aufbau . . . . .	21
3.3 Experimentelle Charakterisierung . . . . .	25
3.3.1 Probenstruktur und lineare Absorption . . . . .	25
3.3.2 Parameterraum der induzierten ungestörten Polarisierung . . . . .	27
3.3.3 Zeitliche Entwicklung der ungestörten FWM- $\tau$ -Transiente . . . . .	30
3.4 Sequenzielle Manipulation . . . . .	33
3.4.1 Manipulierte Interferenz . . . . .	33
3.4.2 Diskussion einzelner Sequenzen . . . . .	36
3.5 Schwellverhalten . . . . .	40
3.6 Reversibler und irreversibler Transfer . . . . .	43
3.6.1 Theoretischer Zusammenhang . . . . .	43
3.6.2 Experimentelle Ergebnisse . . . . .	46
3.6.3 Zwischenfazit . . . . .	49

3.7	Spektrale Signaturen . . . . .	50
3.8	Zusammenfassung . . . . .	58
<b>4</b>	<b>Kohärente Oszillationen durch irreversiblen Transfer</b>	<b>61</b>
4.1	Einführung . . . . .	61
4.2	Methodik . . . . .	62
4.2.1	Kohärente Oszillationen . . . . .	62
4.2.2	Transiente Absorption . . . . .	63
4.3	Experimentelle Charakterisierung . . . . .	64
4.3.1	Probenstruktur . . . . .	64
4.3.2	Detektion der Polarisierung durch Aufkonversion . . . . .	65
4.4	Transiente Änderung der Absorption . . . . .	68
4.5	Kohärente Oszillationen . . . . .	73
4.6	Zusammenfassung . . . . .	77
<b>5</b>	<b>Ladungsträgertransfer in gekoppelten Quantentöpfen</b>	<b>79</b>
5.1	Einführung . . . . .	79
5.2	Methodik . . . . .	81
5.2.1	Lineare Absorption . . . . .	81
5.2.2	Zeitaufgelöste Photolumineszenz . . . . .	83
5.2.3	Zeitaufgelöste Anrege-Abfrage-Spektroskopie . . . . .	84
5.3	Charakterisierung der Quantenfilmsysteme . . . . .	89
5.3.1	Diskussion der Bandstruktur . . . . .	89
5.3.2	Experimentell ermittelte Übergänge . . . . .	92
5.4	Transfer in der zeitaufgelösten Photolumineszenz . . . . .	98
5.4.1	Blauverschiebung . . . . .	103
5.4.2	Ratenmodell . . . . .	106
5.5	Transferzeiten . . . . .	112
5.5.1	Modell zur Tunnelzeit . . . . .	113
5.5.2	Analyse der Linienform . . . . .	114
5.5.3	Transfer in der Anrege-Abfrage-Spektroskopie . . . . .	116
5.5.4	Zwischenfazit . . . . .	118
5.6	Ladungsträgerdynamik . . . . .	120
5.7	Zusammenfassung . . . . .	126
<b>6</b>	<b>Schlussbetrachtung</b>	<b>129</b>

<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>133</b>
<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>145</b>
<b>Tabellenverzeichnis</b>	<b>147</b>



# 1 Einleitung

Der Einfluss von Halbleiterbauelementen auf Wirtschaft und Gesellschaft ist immens. Neben der unmittelbaren alltäglichen Verwendung beispielsweise von Computern, Smartphones oder Beleuchtung in Form von Leuchtdioden (LED) [29] sind unter anderem spezielle Halbleiterlaser (VCSEL) [64] für die optische Datenkommunikation unerlässlich. Halbleiterbasierte Mikroprozessoren und Sensoren erfüllen eine Vielzahl von Funktionen, nicht nur für viele Produkte selbst, sondern bereits im Prozess ihrer Herstellung.

Neben neuen Kombinationen verschiedener Anwendungskonzepte schreitet die Entwicklung der Halbleiterbauelemente stetig voran [77]. Dabei spielen nicht nur die immer tiefere Prozesskontrolle für bewährte Systeme eine Rolle, auch neue Materialien versprechen Verbesserungen und Innovationen. Enorme Aufmerksamkeit richtet sich dabei auf eine Klasse von zweidimensionalen Kristallstrukturen, unter denen Graphen nur ein Material von vielen ist [26].

Die zunehmende Miniaturisierung stellt besondere Herausforderungen an die Chiparchitektur, welche neue Lösungsansätze erfordern [84], um störende Effekte an Grenzflächen zu minimieren. Für andere Anwendungen hingegen versucht man Grenzflächeneffekte gezielt zu nutzen: In Solarzellen beispielsweise ist die Effizienz mit der Trennung der optisch generierten Ladungsträger durch Dissoziation und Transport durch Grenzflächen verknüpft [4, 60, 43, 112].

Neben einer Vielzahl an Untersuchungen unterschiedlicher Halbleitermaterialien und neben der Vorhersage und Realisierung der elektronischen Struktur durch Berechnungs- und Wachstumsverfahren, existiert seit Beginn der Halbleiterphysik das Ziel, mittels Licht Zustände der Materie gezielt zu kontrollieren. Ob man die Motivation dafür in der möglichen Realisierung von Quantencomputern [89], von ultraschnellen Schaltern oder Speichern anführen möchte, soll hier offen bleiben. Unabhängig davon lässt sich jedoch feststellen, dass die Realisierung der sogenannten kohärenten (s. Kap. 2.1.2) Kontrolle über Materie-Zustände ein tieferes Verständnis der Licht-Materie-Wechselwirkung in Halbleitersystemen fördert und erfordert.

Neue Einsichten konnten dabei nicht nur durch die umfassende Weiterentwicklung

der mikroskopischen Theorie erzielt werden [93, 51, 3], sondern auch durch stetig fortschreitende experimentelle Techniken [71, 103]. Der Entwicklung gepulster kohärenten Strahlquellen mit Photonenenergien im Bereich von meV bzw. Frequenzen im Bereich von THz kommt hier eine zentrale Bedeutung zu: Neben neuen Phänomenen der Licht-Materie-Wechselwirkung [34, 114, 28] konnten vorhandene Konzepte der elektronischen Wechselwirkung in Halbleitern wie beispielsweise die Effekte der Abschirmung des Plasmas [35] oder der Zeitskala in der Formierung von Exzitonen [65, 42] aufgeklärt werden.

Das kürzlich vorgestellte Konzept des Transfers durch THz-Pulse von räumlich indirekten Populationen durch Grenzflächen hinweg [104] illustriert den weiteren Zusammenhang der Untersuchungen in dieser Arbeit. Durch die gezielte Abstimmung von THz-Pulsen auf die Übergänge in einem asymmetrischen Doppelquantenfilm (vergleichbar mit den in Kap. 5 untersuchten Systemen) können dabei entweder vorhandene Exzitonen, Plasma oder durch gegenseitige Vertauschung sogar die Korrelationen aus dem indirekten in den direkten Zustand gelangen [104].

In dieser Arbeit werden einerseits Grundlagen zur Untersuchung des Einflusses von Grenzflächeneffekten auf den Ladungsträgertransport gelegt, andererseits werden kohärente Effekte der Licht-Materie-Kopplung durch THz-induzierten Transfer in Weiterentwicklung zweier vorangegangener Experimente untersucht.

Der Aufbau der Arbeit ist wie folgt: Zunächst werden in Kap. 2 wesentliche theoretische Grundlagen übersichtsartig und komprimiert dargestellt. Daran schließen sich drei thematisch orientierte Kapitel an. Innerhalb jedes dieser Kapitel findet sich zu Beginn eine Einordnung in den Stand der Forschung und der aktuellen Literatur. Daran schließen sich Ausführungen über die jeweils dort verwendeten experimentellen Methoden an.

Der Ergebnisteil beginnt mit der experimentellen Charakterisierung bevor schließlich die Ergebnisse nach Aspekten aufgeteilt vorgestellt und diskutiert werden. Eine Zusammenstellung der Ergebnisse beschließt jedes Kapitel.

Durch eine neuartige Kombination experimenteller Methoden werden in Kap. 3 gezielt Eigenschaften des THz-induzierten Transfers innerhalb exzitonischer Zustände studiert.

Die Untersuchungen in Kap. 4 zeigen die beobachtete Ausbildung kohärenter Oszillationen aufgrund der Ionisierung einer exzitonischen Polarisation durch einen THz-induzierten Transfer.

In Kap. 5 sind Untersuchungen zur Ladungsträgerdynamik in teilweise gekoppelten

---

Quantenfilmen vorgestellt. Unterschiedliche experimentelle Methoden erlauben dabei die Evaluierung der Dynamik des Ladungsträgertransfers durch die Grenzflächen der Barrieren.

In der Schlussbetrachtung werden die wichtigsten Ergebnisse zusammengefasst und die sich daraus ableitenden weiterführenden Möglichkeiten erörtert.





## 2 Grundlagen

In diesem vorangestellten Abschnitt soll eine knappe Übersicht über die Grundlagen niedrig-dimensionaler, anorganischer Halbleiterheterostrukturen gegeben werden. Nach einer phänomenologischen Übersicht über die Ladungsträgerdynamik wird anschließend auf die wesentlichen theoretischen Ausgangspunkte zur Beschreibung verschiedener Aspekte der Licht-Materie-Wechselwirkung eingegangen.

### 2.1 Halbleitersysteme

#### 2.1.1 Niedrig-dimensionale Systeme

Auch wenn für das Materialsystem  $\text{Cu}_2\text{O}$  natürliche Kristalle mit der höchsten Reinheit aufweisen können [45], so wird für gewöhnlich die beste Materialqualität durch definiertes Kristallwachstum erzielt. Die in dieser Arbeit verwendeten Halbleiterkristalle wurden dabei über das Verfahren der metallorganischen Gasphasenepitaxie im Wissenschaftlichen Zentrum für Materialwissenschaften (WZMW) von Dr. habil. Wolfgang Stolz und Dr.-Ing. Philip Hens hergestellt. Neben der definierten Zusammensetzung insbesondere für ternäre und quaternäre Materialsysteme lassen sich auf diese Weise auch unterschiedliche Abfolgen von Materialien kontrolliert als geordnete Halbleiterheterostrukturen herstellen.

Über die Eigenschaft der Periodizität idealer kristalliner Halbleitersysteme lässt sich das Problem der Beschreibung des elektronischen Systems nach der Definition eines fouriertransformierten  $k$ -Raums mithilfe des sogenannten Bloch-Theorems lösen. Verschiedene Methoden wie beispielsweise die „tight-binding“ Näherung oder die  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  Theorie ermöglichen in einem nächsten Schritt die Berechnung der erlaubten Energien des Problems. Auf diese Weise wird die sogenannte Bandstruktur  $E(\mathbf{k})$ , d.h. Energie als Funktion des Wellenvektors  $\mathbf{k}$ , als Dispersionsrelation erhalten, welche die Grundlage zur Berechnung und Diskussion der elektronischen Eigenschaften der Systeme bildet. Im Übergang von diskreten Energieniveaus einzelner Atome zum geordneten Festkörper bilden sich erlaubte Energiebänder aus. Dabei wird das oberste gefüllte

Band als Valenzband, das nächsthöhere als Leitungsband bezeichnet. Charakteristisch für einen Halbleiter ist nun eine geringe energetische Lücke zwischen Valenz- und Leitungsband, welche als Bandlücke  $E_g$  bezeichnet wird.

Mit dem Wachstum eines geordneten Kristalls aus Schichten von unterschiedlichen Halbleitermaterialien mit verschiedenen Bandlücken können sogenannte Quantenfilme realisiert werden. Dabei wird durch einen Potentialtopf in Wachstumsrichtung eine räumliche Einschränkung (engl. „confinement“) für Elektronen und Defektelektronen, auch Löcher genannt, erreicht. Neben der zusätzlichen Quantisierungsenergie ergibt sich eine Veränderung der Zahl der möglichen Zustände pro Energie. Als Zustandsdichte  $D_n(E)$  ausgedrückt, findet man für quasi-eindimensionale Systeme mit  $n = 1$  einen inversen Verlauf mit  $D_1 \propto 1/\sqrt{E}$ , eine Stufenfunktion für quasi-zweidimensionale Systeme  $D_2 \propto \theta(E)$  und einen wurzelförmigen Verlauf im Falle eines dreidimensionalen Systems  $D_3 \propto \sqrt{E}$ .

Die Abhängigkeit der Zustandsdichte von der Energie geht in die Berechnung der Absorption für freie Ladungsträger unter Vernachlässigung der Coulomb-Wechselwirkungen ein, wobei sich deren Energieabhängigkeit entsprechend in der Absorption widerspiegelt. Aus dem Imaginärteil der Suszeptibilität erhält man in der Zwei-Band-Näherung für die Absorption freier Ladungsträger [31]:

$$\alpha(\omega) \propto \hbar\omega \left( \hbar\omega - E_g - E_0^{(n)} \right)^{\frac{n-2}{2}} \cdot \theta(\hbar\omega - E_g - E_0^{(n)}) \cdot A(\omega). \quad (2.1)$$

Dabei ist  $E_0^{(n)}$  als eine Energiegröße entsprechend der Dimension  $n$ , also der räumlichen Einschränkung, definiert. Die Größe  $A(\omega)$  wird auch als Bandfüllfaktor bezeichnet und ist von den Fermi-Verteilungen der Elektronen und Löcher  $f_e, f_h$  und dem chemischen Potential  $\mu$  abhängig [31]:

$$A(\omega) = [ (1 - f_e(\omega)) \cdot (1 - f_h(\omega)) + f_e(\omega)f_h(\omega) ] \cdot \tanh\left( \frac{1}{2k_B T} (\hbar\omega - E_g - \mu) \right). \quad (2.2)$$

Für eine Ladungsträgerinversion kann  $A(\omega)$  negativ werden, was einer Verstärkung einfallenden Lichts entspricht. Über diesen Bandfüllfaktor äußern sich damit dichteabhängige nichtlineare Effekte, die eine deutliche Abweichung von der linearen Absorption im nicht angeregten Fall darstellen können. Zusammen mit Vielteilchen-Effekten werden Band-Füll-Effekte in der Diskussion der Anrege-Abfrage-Messungen in Kap. 5.6 aufgeführt.

### 2.1.2 Zeitregime der Ladungsträgerdynamik

Über die Zeitskalen einer optischen Anregung in einem Halbleitersystem lassen sich verschiedene Bereiche der Ladungsträgerdynamik unterscheiden.

Im ersten Schritt lässt sich die Anregung durch ein kohärentes Lichtfeld  $\mathcal{E}(t)$  einer zentralen Photonenenergie resonant zu  $E_g$  als Induzierung einer Polarisierung  $P(t)$  im Material verstehen, welche sich als Interband-Polarisierung  $P_{vc}$  von Valenz- (v) und Leitungsband (c) ausdrücken lässt [31]. Durch Streuprozesse gehen Phaseninformationen verloren und die Interband-Polarisierung fällt ab, was als Dephasierung bezeichnet wird. Dies geschieht typischerweise auf einer Zeitskala von 100 fs bis wenigen ps (vgl. Kap. 3.3.3 und 4.5). Die Untersuchungen der Kapitel 3 und 4 beschränken sich dabei auf dieses kohärente Regime, welches durch die kohärenten optischen Bloch-Gleichungen und Halbleiter-Bloch-Gleichungen (vgl. Kap. 2.2.3) beschrieben wird. Da die Interband-Polarisierung mit der zeitabhängigen Ladungsträgerverteilung  $n_{c,v}(t)$  verknüpft ist [31], wird in diesem Zusammenhang des kohärenten Regimes für eine exzitonische Polarisierung auch von kohärenten Exzitonen gesprochen (s. Kap. 2.2.2).

Im Anschluss an dieses kohärente Regime kann die Dynamik der Population in der Zeitabhängigkeit der Ladungsträgerverteilung  $n_{c,v}(t)$  weiter verfolgt werden. Man unterscheidet dabei zwischen thermischer und nicht-thermischer Ladungsträgerverteilung. Zu einem frühen Zeitpunkt nach der Anregung lässt sich die Ladungsträgerverteilung nicht durch eine Fermiverteilung, auch nicht unter Annahme einer sehr hohen Temperatur beschreiben, da die injizierten Ladungsträger abhängig von der Pulsform der Anregung eine schmale Überhöhung der Verteilung im k-Raum bilden. Der Übergang durch Coulomb-Streuung und Wechselwirkung mit Phononen zu einer thermischen Verteilung mit entsprechender Temperatur fällt in das zeitliche Regime der Relaxation. Dies findet auf einer ähnlichen Zeitskala wie die Dephasierung statt, da bei diesen Prozessen die Phase nicht erhalten bleibt.

Die je nach Anregungsbedingung und Relaxationsmechanismen unterschiedlich große Temperatur der Ladungsträgerverteilungen nimmt im letzten Regime durch Emission von Phononen bis auf die Gittertemperatur ab. Die Zahl der Ladungsträger reduziert sich unterdessen durch strahlende und nichtstrahlende Rekombination bis sich das Halbleitersystem wieder im Grundzustand befindet.

## 2.2 Theorie der Licht-Materie-Wechselwirkungen im Halbleiter

Vollständige Darstellungen der relevanten Gleichungen, ausführliche Herleitungen und weiterführende Diskussionen finden sich beispielsweise in den einschlägigen Lehrbüchern [31, 78] und in den Veröffentlichungen [49, 48].

### 2.2.1 Optische Bloch-Gleichungen

Vielfach profitiert die Beschreibung von Halbleitersystemen von Analogien aus der Atomphysik. Betrachtet man ein einfaches Wasserstoffatom im monochromatischen Lichtfeld und beschränkt sich auf ein unteres ( $\hbar\omega_1$ ) und oberes ( $\hbar\omega_2$ ) Energieniveau, so gelangt man über die stationäre Schrödinger-Gleichung mit dem Hamiltonoperator  $\mathcal{H}_0$  für kinetische und potentielle Energie und dem Hamiltonoperator  $\mathcal{H}_I = -d\mathcal{E}(t)$  für das Dipolmoment  $d$  und einem monochromatischen elektrischen Feld  $\mathcal{E}(t) = \frac{1}{2}\mathcal{E}(\omega)(e^{-i\omega t} + c.c.)$  zu den optischen Bloch-Gleichungen (s. [31]):

$$i\hbar \frac{da_1}{dt} = -d_{12} \frac{\mathcal{E}(\omega)}{2} (e^{-i(\omega+\omega_{21})t} + e^{-i(\omega-\omega_{21})t}) a_2 \quad (2.3)$$

$$i\hbar \frac{da_2}{dt} = -d_{21} \frac{\mathcal{E}(\omega)}{2} (e^{-i(\omega-\omega_{21})t} + e^{-i(\omega+\omega_{21})t}) a_1 \quad (2.4)$$

Dabei sind  $a_{1,2}(t)$  die zeitabhängigen Koeffizienten zu den stationären Eigenfunktionen der Schrödingergleichung. In der weitergehenden Analyse dieser gekoppelten Differentialgleichungen für Frequenzen vergleichbar zu  $\omega_{21} = \omega_2 - \omega_1$  stellt man über eine Approximation und der Einführung der sogenannten Rabi-Frequenz  $\omega_R = \frac{d_{21}\mathcal{E}}{\hbar}$  fest, dass die beiden Energieniveaus jeweils eine Aufspaltung proportional zur Rabi-Frequenz aufweisen. Damit erhält man im Spektrum statt einer Übergangsenergie  $\hbar\omega_{21}$  zusätzlich zwei weitere Übergangsenergien mit  $\hbar(\omega_{21} - \omega_R)$ ,  $\hbar(\omega_{21} + \omega_R)$ . Dieses sogenannte Rabi-Splitting, welches zum Autler-Townes Effekt führt, ist damit auch von der Stärke und der nahresonanten Frequenz  $\omega$  des eingestrahlten elektrischen Feldes abhängig. Diese modellhafte Beschreibung eines stark resonant getriebenen Systems in der Zeitdomäne geht in die Diskussion der Resultate in Kap. 3.6 mit ein.

### 2.2.2 Exzitonen

Erweitert man die Beschreibung der Halbleitersysteme um die Coulomb-Wechselwirkungen mit einzuschließen, findet man neben Vielteilchen-Effekten wie Abschirmung und Renormierung der Energien nach dem Konzept der Quasi-Teilchen (vgl. [3, 10]) korrelierte Elektron-Loch-Paare, welche als Exzitonen bezeichnet werden. In Anlehnung an die Atomphysik kann eine Beschreibung analog zum Formalismus des Wasserstoff-Problems vorgenommen werden.

Die Formulierung für ausgedehnte korrelierte Elektron-Loch-Paare ist durch die Wannier-Gleichung [31] gegeben, weshalb sich auf diese Quasi-Teilchen auch als Wannier-Exzitonen bezogen wird. Analog zum Wasserstoff-Problem werden die effektiven Massen der Elektronen und Löcher verwendet und je nach Dimension des Problems das entsprechende Potential. Dabei kann ein Bohr-Radius für das Exziton als  $\alpha_0 = \frac{\hbar^2 \epsilon_0}{e^2 m_r}$  und die Rydberg-Energie des Exzitons als  $E_0 = \frac{\hbar^2}{2m_r \alpha_0^2}$  mit der reduzierten Masse  $m_r$  definiert werden. Für den dreidimensionalen Fall findet man die Energien  $E_n^{(3d)} = -E_0 \frac{1}{n^2}$  mit  $n = 1, 2 \dots$ , was in exakt zwei Dimensionen zu  $E_n^{(2d)} = -E_0 \frac{1}{(n+1/2)^2}$  mit  $n = 0, 1, 2 \dots$  wird [31]. Damit ist einsehbar, dass die Bindungsenergie in exakt zwei Dimensionen der vierfachen Bindungsenergie in drei Dimensionen entspricht.

Eine allgemeine, grundlegende Einführung zusammen mit der Diskussion der besonderen Rolle der THz-Spektroskopie für Quasi-Teilchen findet sich in [59]. Die Beschreibung der Wechselwirkung mit THz-Strahlung und die exzitonische THz-Absorption wird unter anderem in [49] formuliert.

### 2.2.3 Halbleiter-Bloch-Gleichungen

Die Beschreibung der Dynamik des Halbleitersystems unter Einbeziehung der Coulomb-Wechselwirkung führt zur Formulierung einer Art übergeordneten Bloch-Gleichung. Das System wird einerseits durch den Hamiltonoperator der Wechselwirkung mit dem Lichtfeld  $\mathcal{H}_I$  in erweiterter Form [31] und andererseits mit dem Hamiltonoperator des elektronischen Systems  $\mathcal{H}_{el}$  beschrieben [31]. Mit der Einführung der Interband-Polarisation  $P(\mathbf{k}, t)$  und der Abtrennung der Streuteile (engl. „scattering parts“, sc) gelangt man zu den Halbleiter-Bloch-Gleichungen (s. [31]):

$$\frac{\partial P(\mathbf{k})}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} [E'_e(\mathbf{k}) + E'_h(\mathbf{k})] P(\mathbf{k}) - i[n_e(\mathbf{k}) + n_h(\mathbf{k}) - 1] \omega_R(\mathbf{k}) + \frac{\partial P(\mathbf{k})}{\partial t} \Big|_{sc} \quad (2.5)$$

$$\frac{\partial n_e(\mathbf{k})}{\partial t} = -2\text{Im}[\omega_R(\mathbf{k})P^*(\mathbf{k})] + \frac{\partial n_e(\mathbf{k})}{\partial t} \Big|_{sc} \quad (2.6)$$

$$\frac{\partial n_h(\mathbf{k})}{\partial t} = -2\text{Im}[\omega_R(\mathbf{k})P^*(\mathbf{k})] + \frac{\partial n_h(\mathbf{k})}{\partial t} \Big|_{sc} \quad (2.7)$$

Ein prominenter Vielteilchen-Effekt ist die Renormalisierung der Energien  $E'_e(\mathbf{k}) + E'_h(\mathbf{k})$  und Frequenzen, so dass die aus Kap. 2.2.1 bekannte Rabi-Frequenz als generalisierte Rabi-Frequenz lautet:

$$\hbar\omega_R(\mathbf{k}, t) = \mathbf{d}_{cv}(\mathbf{k})\mathcal{E}(t) + \sum_{\mathbf{q} \neq \mathbf{k}} V(|\mathbf{k} - \mathbf{q}|)P(\mathbf{q}, t). \quad (2.8)$$

Auch hier lassen sich die entsprechenden Beiträge des Füllens des Phasenraums als Term  $n_e(\mathbf{k}) + n_h(\mathbf{k}) - 1$  in der Gleichung 2.5 identifizieren.

Die Behandlung der Streuterme („sc“) erfordert typischerweise Annahmen, welche sich nach den Anregungsbedingungen und dominierenden Mechanismen richten. Diese Halbleiter-Bloch-Gleichungen bilden die Grundlage zur Beschreibung der Ladungsträgerdynamik im kohärenten Regime und im Quasi-Gleichgewicht. Sie dienen als Ausgangspunkt zur Beschreibung der nichtlinearen Spektroskopie an Halbleitersystemen. Unter anderem kann in diesem Rahmen die Anrege-Abfrage-Spektroskopie und die Vier-Wellen-Misch-Spektroskopie beschrieben werden, was sich in verschiedener Komplexität beispielsweise in den Lehrbüchern [31, 78] findet. Zur Theorie der Photolumineszenz, beschrieben durch die Halbleiter-Lumineszenz-Gleichungen, sei auf die Arbeit [48] verwiesen. Ein weiterführendes Feld der Halbleiter-Quantenoptik erweitert die Betrachtungen um nicht-klassisches Licht und wird in [50] eingeführt.

# 3 THz-induzierter intraexzitonischer Transfer

Die experimentellen Ergebnisse in diesem Teil der Arbeit wurden gemeinsam mit Ronja Woscholski und Sina Lippert erzielt, während die vorgestellte Analyse und Interpretation der Daten größtenteils eigenständig erfolgte.

## 3.1 Einführung

In diesem Abschnitt wird anhand einer neuartigen Methode der Transfer zwischen unterschiedlichen energetischen Zuständen der Exzitonen im betrachteten Halbleitersystem untersucht. Der teilweise umkehrbare Transfer wird dabei von einem starken THz-Feld verursacht.

Aus atomaren Systemen kennt man den induzierten, zyklischen Energieaustausch zwischen einem unteren und einem oberen Niveau unter dem treibenden Einfluss eines resonanten elektrischen Feldes als Rabi-Oszillationen (vgl. Kap. 2.2.1). Dies wurde bereits 1937 für magnetische Resonanz in [95] beschrieben. In Halbleitern dagegen konnte dieser Effekt erst geraume Zeit später in einem speziellen Propagationsexperiment [15] nachgewiesen werden. Dabei wurden zwei Laserpulse mit festem zeitlichen Abstand von 1.5 ps energetisch leicht unterhalb einer Exzitonenresonanz eingestrahlt und das aufkonvertierte Signal des zweiten Pulses vermessen, dessen abweichender zeitlicher Verlauf mit Nulldurchgang als indirekte Signatur von Rabi-Flopping interpretiert wurde. Eine direktere Methode fand sich über ein zweifarbiges Anrege-Abfrage-Experiment [100] des gekoppelten Leichtloch-Schwerloch-Systems, bei dem mehrere exzitonische Rabi-Oszillationen sichtbar wurden. Für sehr hohe Intensitäten des eingestrahnten elektrischen Feldes kann die Rabi-Frequenz auch vergleichbar mit der Frequenz des eingestrahnten Feldes werden, wie es beispielsweise für GaAs [82] und bei THz-Frequenzen für InSb [41] beobachtet werden konnte.

Hier soll es jedoch im Speziellen um Rabi-Oszillationen von intraexzitonischen Zuständen gehen, welche nach einer optischen Anregung des Systems vorliegen kön-

nen. Für typische Halbleitersysteme liegen die  $1s$ - $2p$ -Übergangsenergien im meV-Bereich oder entsprechend im THz-Frequenzbereich. Ein derartiges Experiment wurde beispielsweise am  $1s$ - $2p$ -para-Übergang im dreidimensionalen  $\text{Cu}_2\text{O}$  Kristall durchgeführt [70]. Dieser Übergang entsprach einer Frequenz von 30 THz, wobei in einem vorangegangenen Schritt der  $1s$ -Zustand bevölkert wurde, so dass eine abgekühlte  $1s$ -Verteilung vorlag. Anschließend wurde ein zum Übergang resonantes THz-Feld mit bis zu 0.5 MV/cm eingestrahlt. Es wurden mithilfe einer mikroskopischen Theorie mehrere Rabi-Oszillationen in der Polarisation sichtbar, wobei Ionisationseffekte eine untergeordnete Rolle spielten.

Der direkten Beobachtung intraexzitonischer Rabi-Oszillationen in der Zeitdomäne steht dabei in der spektralen Domäne der Autler-Townes-Effekt gegenüber. Für Halbleitersysteme existieren bereits verschiedene Studien, in denen in einem transienten Absorptionsexperiment (vgl. Kap. 4.2.2) intraexzitonische Übergänge in Quantenfilmen quasi-resonant mit Frequenzen von einigen THz getrieben werden [9, 17, 108, 33, 21]. Dabei macht sich der kohärente Energieaustausch zwischen den Niveaus – die Rabi-Oszillation – als Aufspaltung der  $1s$ -Exziton-Resonanz bemerkbar (vgl. Kap. 2.2.1). Der vereinfachten Beschreibung im Rahmen eines Zwei-Niveau-Systems wurde eine mikroskopische Theorie, welche auch höhere exzitonische Zustände umfasst, gegenübergestellt [21]. Dort wurden die Grenzen der Beschreibung im Zwei-Niveau-System angelehnt an atomare Systeme deutlich. Neben den Beiträgen aus der korrekten Beschreibung als Vielteilchensystem und der ponderomotiven Beiträge spielt die Ionisation von Exzitonen eine größere Rolle. Besonders zu höheren THz-Feldstärken dominieren daher die Rabi-Oszillation nicht mehr die Dynamik des Systems: Durch den Vergleich der Theorie mit der experimentellen Linienform der transienten Absorption lässt sich eine Vorhersage über den zeitlichen Verlauf der Besetzung ableiten [21]. Es zeigt sich zum einen eine deutliche Abweichung des gemessenen zeitlichen Verlaufs von dem mehrerer Rabi-Oszillationen im Zwei-Niveau-System. Nach der vollen Theorie findet eher eine einzelne, gedämpfte Rabi-Oszillation der  $1s$ -Besetzung statt. In diesem Zusammenhang wurde dabei der Begriff des reversiblen Transfers geprägt [21]. Für höhere Feldstärken würde man im Zwei-Niveau-System nun eine Zunahme der Frequenz der Rabi-Oszillationen erwarten, auch hier zeigt die volle Theorie wieder eine deutliche Abweichung. Demnach ist die zeitliche Entwicklung der  $1s$ -Besetzung eher durch einen schnellen Transfer gekennzeichnet, wobei aufgrund von Ionisation keine Rückkehr stattfindet. Dies wurde als irreversibler Transfer der kohärenten exzitonischen Besetzung bezeichnet [21].

Um diese Dynamik ohne zusätzliche Analyse durch eine mikroskopische Theorie di-



rekt experimentell nachzuweisen, wurde eine bisher nicht durchgeführte experimentelle Kombination realisiert. Zum einen soll ein direkter Zugriff auf die zeitliche Entwicklung der 1s, 2s und höheren exzitonischen Polarisierungen realisiert werden, zum anderen soll genau diese Dynamik manipuliert werden.

Dazu wurde ein sogenanntes Vier-Wellen-Misch-Experiment durchgeführt, welches die exzitonische Polarisation umfasst, wobei gleichzeitig ein starkes THz-Feld eintrifft, dessen zentrale Photonenenergie in der Größenordnung des 1s–2p-Übergangs liegt.

Zunächst werden in einem methodischen Teil die experimentellen Voraussetzungen vorgestellt und die Technik des Vier-Wellen-Mischens rekapituliert. Anschließend werden die optimalen Bedingungen zur Durchführung des Experiments erarbeitet, bevor dann in einem nächsten Schritt die Ergebnisse dieser neuartigen Methodik einerseits auf der Grundlage von bisherigen transienten Absorptionsexperimenten und andererseits vor dem Hintergrund vorangegangener Vier-Wellen-Misch-Experimente diskutiert werden. Schließlich werden die Ergebnisse zum reversiblen und irreversiblen Transfer vorgestellt.

## 3.2 Methodik

### 3.2.1 THz-Erzeugung

In diesem Abschnitt werden kurz die Grundlagen der experimentellen Erzeugung von THz-Pulsen diskutiert. Dabei soll zunächst eine Definition des Ausdrucks „starke THz-Felder“ erfolgen, welcher in diesem und dem nachfolgenden Kapitel zum THz-induzierten Transfer verwendet werden.

Die Parameter des angelegten elektrischen Feldes im THz-Frequenzbereich werden dabei auf Polarisierungen bezogen, welche exzitonische Zustände umfassen. Typische intraexzitonische Übergänge liegen dabei im Bereich von meV, beispielsweise für die hier untersuchte GaAs-Probe, bzw. mehreren meV, wie für (GaIn)As-Quantenfilme. Das Spektrum der hier verwendeten THz-Pulse erstreckt sich typischerweise von etwa 1 meV bis 8 meV und ist damit unter Umständen resonant zu intraexzitonischen Übergängen.

Es ist weiterhin instruktiv, die Energiedichte eines typischen Wannier-Exzitons gegenüber der Energiedichte abzuschätzen, welche durch typische THz-Feldstärken in einem Dielektrikum erreicht werden können:

$$w_{\text{Exziton}} \approx \frac{E_b}{a_b^3} = 306 \text{ J/m}^3, \quad w_{\text{THz}} \approx \frac{1}{2} \epsilon_0 \epsilon_b |E_{\text{THz}}|^2 = 128.5 \text{ J/m}^3 \quad (3.1)$$

### 3 THz-induzierter intraexzitonischer Transfer

---

Dabei wurden typische Parameter von GaAs mit einer Exzitonenbindungsenergie von  $E_b = 4.2$  meV und eines 1s-Exzitonradius von  $a_b = 14$  nm verwendet. Mit der Größe  $E_{THz}$  soll im Folgenden die maximale Feldstärke des zeitlich veränderlichen THz-Feldes verstanden werden. Als repräsentative Werte für die THz-Feldstärke wurden  $E_{THz} = 15$  kV/cm und als Dielektrizitätskonstante im GaAs  $\epsilon_b = 12.9$  eingesetzt. Es wird deutlich, dass diese THz-Feldstärken die Größenordnung der Energiedichte von Exzitonen erreichen.

Mit THz-Feldstärken im Bereich um 10 kV/cm und einem THz-Spektrum, welches einige meV umfasst, wird damit ein extrem nicht-lineares Regime für intraexzitonische Übergänge erreicht. Zum einen sind die Photonenenergien der eingestrahlten Pulse mit den Energien der Übergänge vergleichbar, zum anderen erreichen die eingestrahlten Intensitäten Energiedichten, welche den internen Energiedichten entsprechen. In diesem extremen Regime können viele neuartige Phänomene jenseits der bekannten Elektroabsorption erwartet werden, wie es beispielsweise in [80] für den Fall einer extern angelegten Gleichspannung untersucht wurde. Dies rechtfertigt die Verwendung des Begriffs der starken THz-Felder bezüglich der Beobachtung exzitonischer Phänomene.

Die Erzeugung besagter THz-Felder im Experiment erfolgt über eine großflächige photoleitende Antenne. Diese besteht aus einem Halbleitermaterial, auf welches Elektroden aufgebracht werden, um in dessen Ebene ein Feld zu erzeugen. Ein optischer Puls mit einer Photonenenergie größer als die Bandlücke des Halbleiters erzeugt Ladungsträger, welche durch das angelegte elektrische Feld in der Ebene beschleunigt werden. So kommt es zur Abstrahlung eines elektrischen Feldes senkrecht zur Ebene.

Die wesentlichen Voraussetzungen für eine effiziente Abstrahlung im THz-Frequenzbereich lassen sich nach einem einfachen Modell eines oszillierenden Dipols verstehen [37]. Es lässt sich die Feststellung machen, dass das abgestrahlte elektrische Feld in der Fernfeld-Näherung proportional zur ersten Ableitung der Stromdichte ist. Daraus lässt sich ableiten, dass das abgestrahlte Spektrum mit der Ladungsträgerdynamik in der Antenne verknüpft ist [37]. Im Wesentlichen muss der zeitliche Anstieg der Stromdichte innerhalb weniger ps erfolgen, um eine Abstrahlung im THz-Frequenzbereich zu erhalten. Über ein angepasstes Drude-Modell [37] lässt sich weiterhin verstehen, dass auch die Zahl der erzeugten Ladungsträger das THz-Frequenzspektrum zu höheren Frequenzen beeinflusst. Es gehen weiterhin das angelegte elektrische Feld aber auch die effektive Masse und die Rekombinationsrate der Ladungsträger ein. So zeigen sich hohe elektrische Felder, geringe effektive Massen und schnelle Rekombinationsraten in der Intensität und spektralen Breite des abge-

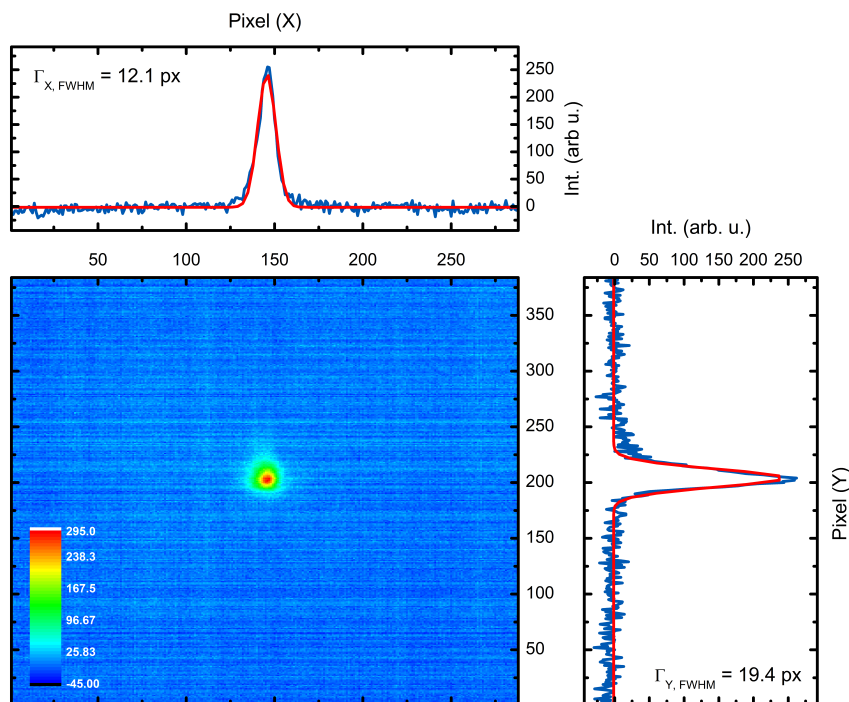
strahlten Feldes. Häufig werden daher spezielle GaAs-Volumenmaterialien verwendet, welche bei tiefen Temperaturen epitaktisch auf einem GaAs-Substrat abgeschieden werden um über einen hohen Arsen-Überschuss die Einfangzeiten zu reduzieren (Tieftemperatur GaAs, LT-GaAs). Weitere Ansätze um mithilfe optimierter Ladungsträgerdynamik eine verbesserte Effizienz und THz-Feldcharakteristik zu erzielen sind Gegenstand aktueller Forschung.

Hier wird eine großflächige photoleitende GaAs-Antenne Tera-SED verwendet, welche über eine Fläche von  $10 \times 10 \text{ mm}^2$  mit 120 fs Pulsen (s. 3.2.3) beleuchtet wird. Dabei wurde die Antenne mit einer fingerartigen Metallisierung versehen, welche sich über die gesamte Fläche erstreckt. Abwechselnd sind die einzelnen Leiterbahnen mit einem hohen und niedrigen Potential verbunden. Jede zweite Reihe ist dabei abgeschattet. Auf diese Weise werden gleichgerichtete Ströme erzeugt, deren Abstrahlung sich im Fernfeld näherungsweise zu einer Fortsetzung der Wellenfronten des erzeugenden Strahls addiert.

Die Antenne wird über einen Pulsgenerator mit bis zu  $U_{\text{Antenne}} = 70 \text{ V}$  betrieben, wobei die Pulslänge unter  $1 \mu\text{s}$  beträgt. Der von der Elektronik-Werkstatt des Fachbereichs Physik entworfene Pulsgenerator ist mit der Repetitionsrate des Verstärkersystems synchronisiert, wobei der genaue Zeitpunkt des Spannungspulses zusätzlich durch eine Zeitverzögerungseinheit Stanford Research DG535 variiert werden kann, so dass das Zeitfenster des Spannungspulses mit der optischen Anregung überlappt.

Eine nachträgliche Charakterisierung der räumlichen Verteilung der THz-Intensität in einem justierten THz-Aufbau wurde mit einer Mikrobolometer-Kamera INO IRXCAM-384THz realisiert. Das Ergebnis ist als Falschfarbendarstellung in Abb. 3.1 gegen die laufende Pixelnummer aufgetragen. An der Position der maximalen Intensität wurden Profile in der x- und y-Richtung oben und rechts aufgetragen. Aus der Anpassung der Gaussfunktion folgt als volle Halbwertsbreite (FWHM)  $\Gamma_x = 12.1 \text{ Pixel}$  und  $\Gamma_y = 19.4 \text{ Pixel}$ . Mit dem Abstand zwischen den Pixel von  $0.035 \text{ mm}$  ergibt sich für einen THz-Aufbau mit einem großflächigen THz-Emitter ohne zusätzliche optische Elemente ein durchschnittlicher Strahldurchmesser in der Fokusebene von  $d_{\text{THz}} = 0.55 \text{ mm}$  und eine Fläche von  $A_{\text{THz}} = 0.24 \text{ mm}^2$  der vollen Halbwertsbreite.

Zur Bestimmung der THz-Leistung wurde eine Golay-Zelle Tydex GC-1P verwendet. Durch die Absorption der ferninfraroten THz-Strahlung innerhalb einer geschlossenen Kammer erhöht sich die Temperatur des in der Kammer befindlichen Gases leicht. Über die Auslenkung einer Membran wird dies optisch registriert und dient auf eine Spannung übertragen als Messgröße.



**Abb. 3.1:** Intensitätsverteilung des THz-Pulses in der Fokusebene, dargestellt in Falschfarben als laufender Pixelindex. Oben und rechts sind Profile in der x- und y-Richtung der Indizes des Maximums aufgetragen. Die Anpassung einer Gaussfunktion ergibt ein FWHM von  $\Gamma_X = 12.1$  Pixel bzw.  $\Gamma_Y = 19.4$  Pixel woraus sich ein durchschnittlicher Strahldurchmesser von  $d_{THz} = 0.55$  mm (FWHM) ergibt.

Über die Intensität  $I$  der Pulse

$$I = \frac{P_{cw}}{\Delta t \cdot A \cdot f_{rep}} \quad (3.2)$$

mit der gemessenen mittleren zeitlichen Leistung  $P_{cw}$ , der Repetitionsrate  $f_{rep} = 1$  kHz der Pulslänge  $\Delta t = 1$  ps und der gemessenen Fläche  $A$  gelangt man zur Feldstärke  $E_{THz}$ :

$$E_{THz} = \sqrt{\frac{2 \cdot I}{\epsilon_0 \cdot c}} = \sqrt{\frac{2 \cdot P_{cw}}{\epsilon_0 \cdot c \cdot \Delta t \cdot A \cdot f_{rep}}} \quad (3.3)$$

Im Vier-Wellen-Misch-Aufbau wurde die THz-Feldstärke inklusive der Transmission der Polymethylpente (TPX) Fenster des Kryostaten bei einer Antennenspannung von  $U_{Antenne} = 60$  V zu  $E_{THz} = 9.0$  kV/cm abgeschätzt. Dabei wurden die Werte für die THz-Feldstärke in einer Wiederholung des transienten Absorptions-Experiments aus [21] an den dort verwendeten Mehrfachquantenfilmen verifiziert. Zusätzlich wurde sichergestellt, dass sich die mittlere zeitliche Leistung der Golay-Zelle quadratisch mit der angelegten Antennenspannung verhält, so dass insgesamt die THz-Feldstärke proportional zur angelegten Spannung ist. Es bleibt zu bemerken, dass die Messung der absoluten THz-Feldstärke mithilfe der Golay-Zelle mit einem größeren Fehler im Bereich von 10% [110] behaftet sein kann, während die relative Feldstärke durch die Variation der Antennenspannung innerhalb der jeweiligen Messreihen mit einem Fehler von wenigen Prozent eine recht genaue Einstellung erlaubt.

### 3.2.2 Vier-Wellen-Mischen

Ein Vier-Wellen-Misch-Experiment (englisch: Four-Wave-Mixing, FWM) basiert auf einer Nichtlinearität der dritten Ordnung in einem zu untersuchenden Material:

$$\mathbf{P}_{NL}^{(3)} \propto \chi^{(3)} \mathbf{E}^3 \quad (3.4)$$

Dabei können die elektrischen Felder  $\mathbf{E}$  von drei verschiedenen Pulsen eingehen, welche letztlich aufgrund der Suszeptibilität  $\chi^{(3)}$  zur nichtlinearen Polarisation  $\mathbf{P}_{NL}^{(3)}$  beitragen. Als Messgröße wird meist die Intensität  $I_{FWM} \propto |\mathbf{P}_{NL}^{(3)}|^2$  der abgestrahlten nichtlinearen Polarisation detektiert (vgl. 3.3.3).

Anhand dieser Grundüberlegung lassen sich bereits die wesentlichen Parameter eines FWM-Experiments aufzählen, welche unterschiedliche Klassen von FWM-Experimenten bilden. Zunächst lässt sich zwischen dem ersten und zweiten Puls eine Zeit-

verzögerung definieren, die meist als  $\tau$  bezeichnet wird. Zwischen dem zweiten und dritten Puls kann eine weitere Zeitverzögerung definiert werden, typischerweise mit  $T$  bezeichnet.

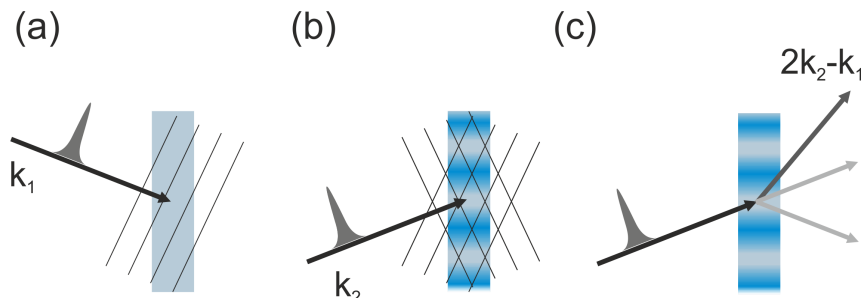
Darüberhinaus ließen sich prinzipiell alle Parameter des elektrischen Feldes der drei Pulse unterschiedlich wählen (Drei-Puls-Konfiguration). Dies kann zum einen die jeweilige zentrale Frequenz und/oder die zeitliche Breite der Pulse betreffen (Zwei-Puls-Konfiguration mit einem spektral gefilterten Puls [16]) und wird allgemein auch als „coherent excitation spectroscopy“ (CES, [78] Kap. 13) bezeichnet. Im weiteren Verlauf sollen die elektrischen Felder aller einfallenden Pulse stets als identisch angenommen werden bis auf den jeweiligen Wellenvektor  $\mathbf{k}$ , was auch experimentell eine Vereinfachung bei der Erzeugung der Replika mithilfe von Strahlteilern darstellt.

Falls anstelle der FWM-Intensität  $I_{FWM}$  die Amplitude und Phase des abgestrahlten elektrischen Feldes als Funktion der Zeitversätze  $T, \tau$  in der Drei-Puls-Konfiguration detektiert werden, so spricht man von zwei-dimensionaler Fouriertransformations-Spektroskopie (2DFTS). Beide zuletzt genannten Verfahren bieten neben weiteren Informationen Vorteile beim expliziten Nachweis einer Kopplung zwischen Resonanzen [14].

Weiterhin lässt sich die Intensität des abgestrahlten elektrischen Feldes etwas vereinfacht zur letztgenannten Methode einerseits als Funktion der Wellenlänge  $I_{FWM}(\lambda, \tau, \dots)$  messen, was auch als spektral aufgelöstes FWM (SR-FWM) bezeichnet wird. Zum anderen lässt sich ein zusätzlich zeitaufgelöstes Signal des abgestrahlten Feldes durch die Technik der Aufkonversion gewinnen  $I_{FWM}(t, \tau, \dots)$ , was man unter zeitaufgelöstem FWM (TR-FWM) kennt. Beide Methoden haben sich dabei als geeignet erwiesen, die Ursachen eines zeitlich modulierten FWM-Signals als Funktion von  $\tau$  entweder als Interferenz unterschiedlicher, nicht gekoppelter Resonatoren (Polarisationsinterferenz) oder aber als Resultat von gekoppelten angeregten Zuständen (beispielsweise eines Drei-Niveau-Systems) zu bestimmen (sogenannter „Quantenschwebungen“) (TR-FWM [55], SR-FWM [76]).

Die experimentell einfachste Variante eines FWM-Experiments ist schließlich die zeitintegrierte Detektion von  $I_{FWM}(\tau)$ . Dabei werden häufig anstelle von drei zeitversetzten Pulsen (Drei-Puls-Konfiguration) lediglich zwei Pulse mit einem Zeitversatz  $\tau$  verwendet (Zwei-Puls-Konfiguration). Auf diesen einfachsten Fall soll im folgenden Verlauf stets als FWM-Experiment Bezug genommen werden, sofern nicht explizit die spektrale Komponente oder die Realzeit erwähnt wird.

Die tatsächlich induzierte Polarisation der Pulse kann mit dem abgestrahlten FWM-Signal verknüpft werden, wie es auch beispielsweise in Gl. (3.10) ausgedrückt ist. Im



**Abb. 3.2:** Illustration zum Vier-Wellen-Misch Experiment, hier für den Fall einer Zwei-Puls-Konfiguration, adaptiert nach [14].

**(a)** Zunächst trifft der erste Puls unter  $\mathbf{k}_1$  auf die Probe und induziert dort eine Polarisation mit gleicher Phasenbeziehung entlang der eintreffenden Wellenfront (schwarze Linien).

**(b)** Der zweite Puls unter  $\mathbf{k}_2$  wechselwirkt etwas später mit der vorhandenen Polarisation dergestalt, dass sich an den Punkten der räumlichen Überschneidung der existierenden Polarisationsfronten und den Wellenfronten des Pulses eine Population der angeregten Zustände (dunkelblau) bildet, welche räumlich moduliert ist.

**(c)** An der resultierenden räumlich veränderten Absorption kann ein Teil desselben zweiten Pulses unter  $\mathbf{k}_2$  abgelenkt werden in Richtung  $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ .

Alternativ detektiert man in der Drei-Puls-Konfiguration die Abbeugung eines dritten Pulses unter  $-\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3$ .

Anschluss daran soll eine anschauliche Beschreibung des FWM-Experiments geliefert werden. Dazu wurde Abb. 3.2 nach [14] für die Zwei-Puls-Konfiguration adaptiert. Ausgangssituation ist zur Vereinfachung eine angenommene räumliche Verteilung von Zwei-Niveau-Systemen mit Grundzustand und angeregtem Zustand. Ein erster resonanter einfallender Puls, in Abb. 3.2 (a) eintreffend unter  $\mathbf{k}_1$ , treibt die Zwei-Niveau-Systeme mit einer festen Phasenbeziehung entlang der Wellenfronten (schwarze Linien), so dass eine kohärente Polarisation mit einer vorgegebenen räumlich leicht unterschiedlichen Phase entsteht. Dabei ist die zeitliche Entwicklung der Polarisation insbesondere nach Abwesenheit des ersten Pulses durch die intrinsischen Mechanismen der Probe selbst gegeben. Diese intrinsischen Mechanismen bilden das Hauptziel der Untersuchungen des Materials mit dieser Methode.

Ein zweiter Puls unter  $\mathbf{k}_2$  in Abb. 3.2 (b) trifft nach  $\tau$  zeitversetzt ein und wechselwirkt zum einen mit der existierenden kohärenten Polarisation. Verkürzt kann die Wechselwirkung auch als ein Abbruch der Polarisation in Anlehnung an die in Kap. 4 beschriebenen kohärenten Oszillationen verstanden werden, was jedoch nicht allen beobachtbaren FWM-Phänomenen Rechnung trägt. Man kann in vereinfachter Weise dennoch davon ausgehen, dass durch das Eintreffen des zweiten Pulses die Polarisation in eine Population konvertiert wird [58]. Dabei spielt die genaue Beziehung zwischen den Polarisationsfronten und den Wellenfronten des zweiten Pulses eine Rolle. Das heißt, dass die relative Phase zwischen der Polarisation und des zweiten

Pulses entscheidend ist. An denjenigen Orten, welche in Übereinstimmung bezüglich der Phase sind (Überschneidung der schwarzen Linien (b)), entsteht eine Population des angeregten Zustands. Umgekehrt verbleibt an denjenigen Orten mit entgegengesetzter Phase lediglich eine Population des Grundzustands. Dies ist in (b) dargestellt als dunkelblau variierende Färbung.

Schließlich lässt sich das Resultat des zweiten Pulses in Abb. 3.2 (c) in seiner doppelten Funktion als eine Selbstabbeugung verstehen. In einer Drei-Puls-Konfiguration übernimmt ein dritter Puls separat diese Funktion, während die Zwei-Puls-Konfiguration auch als FWM-Experiment unter Selbstabbeugung bezeichnet wird. Durch die räumlich modulierte Population des angeregten Zustands (dunkelblau) ist auch die Absorption in den angeregten Zustand des Systems räumlich moduliert. Dies verursacht schließlich analog zur Beugung an einem Gitter ein Signal in die Richtung  $\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ , wobei ebenso weitere Beugungsordnungen auch in Reflexion auftreten.

Durch die Beschreibung des FWM-Experiments als eine Art transientes Gitter kann intuitiv der Unterschied zwischen Zwei- und Drei-Puls-Konfiguration verstanden werden: Während die Zwei-Puls-Konfiguration unter der Selbstabbeugung sensitiv auf die intrinsischen Materialparameter der Dephasierung ist, kann die Drei-Puls-Konfiguration zusätzlich Aufschluss über die Rekombination und räumliche Diffusion der Population liefern.

#### 3.2.3 Aufbau

Diese Technik des Vier-Wellen-Mischens erfordert niedrige Anregungsdichten, bei denen die Polarisation nicht zusätzlicher Dephasierung durch vermehrte Ladungsträger-Streuung aufgrund der Vielzahl an generierten Ladungsträgern ausgesetzt ist. Dieses Phänomen würde ebenso als Linienverbreiterung in der Absorption sichtbar werden und ist unter dem Begriff „Excitation Induced Dephasing“ (EID) bekannt.

In der Vergangenheit wurden daher Ti:Sa-Oszillatoren als Strahlquelle eingesetzt, die durch ihre Durchstimbarkeit, hohe Repetitionsrate von typischerweise 80 MHz und moderaten Pulsleistung bei Pulslängen im Bereich von 100 fs die Anforderungen an ein Vier-Wellen-Misch-Experiment optimal erfüllen.

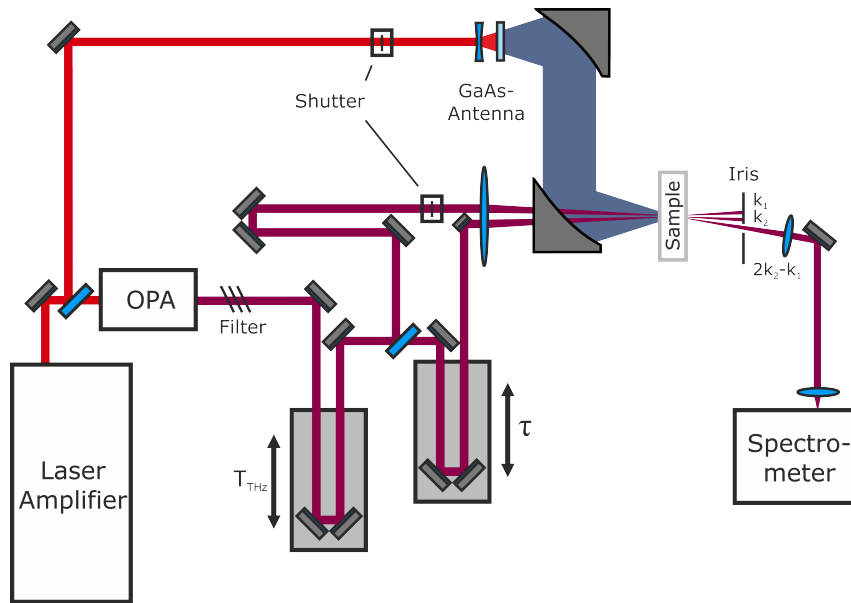
Um ein solches Experiment jedoch unter dem Einfluss starker THz-Felder durchzuführen, muss die Erzeugung der THz-Transienten ermöglicht werden. Dabei können mit Ti:Sa-Oszillatoren lediglich Feldstärken um etwa 0.1 kV/cm erreicht werden. Es ist daher erforderlich, für dieses Experiment eine Strahlquelle mit höherer Pulsenergie zu verwenden (s. Kap. 3.2.1), was jedoch mit einer geringeren Repetitionsrate



einhergeht. Lediglich ein weiteres Experiment [96] ist bekannt, bei dem in der Vergangenheit ein Verstärker mit Repetitionsraten von einem kHz eingesetzt wurden. Daher stellt die Realisierung eines solchen Vier-Wellen-Misch-Experiments unter starken THz-Feldern eine besondere Herausforderung dar.

In Abb. 3.3 ist der verwendete Aufbau schematisch skizziert. Es wird ein regenerativer Ti:Sa-Verstärker (Spectra-Physics Spitfire) mit einer Repetitionsrate von 1 kHz und einer nominellen Pulsleistung von 0.8 mJ verwendet, bei einer Pulslänge von 120 fs und einer Zentralwellenlänge von 802 nm. Der Ti:Sa-Kristall des Verstärkers wird von einem ns-Laser (Spectra-Physics Empower 15) mit einer Leistung von 10 mJ bei 1 kHz frequenzverdoppelt bei einer Wellenlänge von 527 nm in Inversion gebracht. Die Pulse eines Ti:Sa-Oszillators (Spectra-Physics Tsunami, 80 MHz, 120 fs, 0.8 W cw-Äquivalent) werden nach Aufprägung einer massiven Dispersion in mehrfachen Durchläufen im Ti:Sa-Kristall verstärkt. Dabei dient ein Paar von Pockelszellen und ein Brewster-Fenster zur gezielten Ein- und Auskopplung von Pulsen in die Kavität des regenerativen Verstärkers. Die Frequenz des Oszillators dient als Taktgeber, welche entsprechend geteilt die Synchronisation des ns-Lasers und der Pockelszellen über eine zentrale Einheit steuert. Durch anschließende Umkehrung der vorher aufgeprägten Dispersion erreicht man nach der Verstärkung Pulse von äußerst hohen Spitzenleistung im Bereich von mehreren bis hunderten Gigawatt, welche als ultrakurze Pulse auf andere Weise als sogenannte „chirped pulse amplification“ (CPA) nicht erzeugt werden könnten.

Diese hochenergetischen Pulse werden an diesem Aufbau des Spectra-Physics Spitfires zum überwiegenden Teil mit 0.7 mJ in einen optisch-parametrischen Verstärker (OPA) geleitet, während die restliche Pulsenergie zur THz-Erzeugung zur Verfügung steht (Kap. 3.2.1). Im optisch-parametrischen Verstärker (Light Conversion Ltd. TOPAS-800) findet über einen  $\chi^2$ -Prozess in einem nichtlinearen Kristall eine umgekehrte Summenfrequenz-Erzeugung statt. Das bedeutet, dass die Energie eines Pumpphotons auf zwei Photonen unter Energie- und Impulserhaltung aufgeteilt wird. Durch geeignet gewählte Phasenanpassung kann die Energie in gewissen Grenzen unterschiedlich aufgeteilt werden. Dabei bezeichnet man als Idler die Photonen mit geringerer Energie als der Hälfte der Pumpphotonen und als Signal diejenigen Photonen mit entsprechend höherer Energie. Auf diese Weise kann aus einer Wellenlänge von eingangs 800 nm Signal und Idler mit Wellenlängen von 1150–2600 nm gewonnen werden. Für die umgekehrte Summenfrequenz-Erzeugung müssen anfangs die energetisch passenden Signal- und Idler-Photonen eingestrahlt werden. Dies geschieht in aktuellen OPA-Modellen in einem separaten  $\chi^3$ -Medium, in dem ein Superkonti-



**Abb. 3.3:** Schematische Zeichnung des Aufbaus zum Vier-Wellen-Mischen unter starken THz-Feldern. Zwei Positioniereinheiten dienen zur Zeitverzögerung zum Eintreffen des THz-Pulses ( $T_{THz}$ ) und beider optischen Pulse untereinander ( $\tau$ ). Mittels zweier mechanischer Verschlüsse wird das abgebeugte Signal der Probe sequentiell in einem Spektrometer erfasst. Die Probe wird dabei in einem Kryostaten bei  $T = 10$  K gehalten.

num erzeugt wird, welches die passenden Photonenenergien enthält. Im vorliegenden Modell findet hingegen auch die Generation der passenden Photonenenergien im  $\chi^2$ -Medium über den Prozess der Superfluoreszenz statt. Insgesamt ist im Unterschied zu optisch-parametrischen Oszillatoren festzuhalten, dass ausgehend von der anfangs geringen Zahl an Signal- und Idler-Photonen durch mehrfaches Durchlaufen der umgekehrten Summenfrequenzerzeugung lediglich eine mehrfache Verstärkung ohne Resonator vorgenommen wird.

Die Energien der Signal- und Idler-Photonen lassen sich in einem nachgeschalteten Schritt in einem weiteren  $\chi^2$ -Medium verdoppeln, so dass schließlich eine abstimmbare Strahlquelle von 580–2600 nm mit 120 fs bei 1 kHz und Pulsenergien zwischen 10–100  $\mu$ J zur Verfügung steht.

Die Pulse aus diesem OPA werden anschließend auf zwei Strahlwege aufgeteilt, wobei zunächst die Leistung durch mehrere Filter abgeschwächt wird. Die Länge beider Wege wird gleich gehalten, eine Positioniereinheit in einem der Strahlarme ermöglicht einen Zeitversatz  $\tau$  zwischen beiden Pulsen. Beide Strahlen treffen in geringem Abstand parallel auf eine langbrennweitige Linse, so dass am Ort der Probe der Strahldurchmesser 280  $\mu$ m als FWHM beträgt. Ein flacher Winkel zwischen beiden kollinear polarisierten Strahlen erleichtert dabei unter anderem die Justage durch einen teil-

weise ausgehöhlten Parabolspiegel mit einer zur optischen Achse zentrierten Ausbohrung.

Durch eine weitere Positioniereinheit vor der Aufteilung der beiden FWM-Pulse lässt sich die Verzögerung  $T_{THz}$  in Bezug auf das zeitliche Eintreffen der THz-Pulse verschieben. Diese werden vom letzten Parabolspiegel gleichermaßen auf die Probe fokussiert. Die Probe wird dabei in einem Kryostaten mit flüssigem Helium bei  $T = 10$  K gehalten; alle folgenden Messungen dieses Kapitels wurden bei dieser Temperatur durchgeführt. Die Ein- und Ausgangsfenster bestehen aus Polymethylpentene TPX einer Dicke von 2 mm, welche im Frequenzbereich zwischen 0.2–4 THz eine Transmission zwischen 80 % und 90 % und im nahinfraroten Bereich von 900 nm eine Transmission von etwa 85 % aufweisen [40].

Nach Transmission durch die Probe erhält man als typisches Beugungsmuster die beiden einfallenden Strahlen unter dem entsprechenden Winkel sowie die abgebeugten höheren Ordnungen auf beiden Seiten in derselben Ebene. Die erste abgeugte Ordnung zur Seite  $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$  tritt zunächst durch eine Irisblende, um störende Hintergrundsignale zu unterdrücken. Anschließend wird das Licht kollimiert und in ein Spektrometer fokussiert.

Das Spektrometer (Acton Spectra Pro 500i) besitzt drei verschiedene Gitter zu 80, 300 und 900 l/mm. Als Detektoren stehen eine Silizium CCD-Kamera mit 330x1100 Pixel (Roper Scientific) und eine (GaIn)As-Zeilenkamera mit 1x512 Pixel (Roper Scientific) zur Verfügung, jeweils über einen Flüssigstickstoffbehälter gekühlt. Aufgrund der höheren Empfindlichkeit im zu untersuchenden Spektralbereich wird hier die Silizium-Kamera ausgewählt.

Als Messgröße ergibt sich damit die abgebeugte Intensität als Funktion der THz-Feldstärke  $E_{THz}$ , der detektierten Wellenlänge  $\lambda$  und der beiden Zeitverzögerungen zu  $I_{FWM}(\tau, T_{THz}, E_{THz}, \lambda)$ . Um einerseits Hintergrundsignale zu berücksichtigen und andererseits die Änderung des Vier-Wellen-Misch-Signals durch das THz-Feld zu bestimmen, sind zwei mechanische Verschlusseinheiten eingebracht. Auf diese Weise werden sequentiell zu einem Parametertripel  $\tau, T_{THz}, E_{THz}$  vier Spektren aufgenommen. Zunächst sind dies die Hintergrundsignale  $I_{Bg}$ , bei dem beide Verschlüsse geschlossen bleiben. Mit Öffnen des Verschlusses im THz-Pfad werden die Hintergrundsignale  $I_{Bg+THz}$  aufgenommen. Umgekehrt erhält man das vollständige FWM-Signal  $I_{0,FWM}$ . Sind beide Verschlüsse geöffnet, so wird das FWM-Signal unter THz-Feldeinwirkung  $I_{0,FWM+THz}$  aufgenommen.

Man erhält daraus das ungestörte FWM-Signal  $I_{FWM} = I_{0,FWM} - I_{Bg}$  einerseits sowie

das Verhältnis von gestörtem zu ungestörtem FWM-Signal

$$FWM_{Ratio} = \frac{I_{0,FWM+THz} - I_{Bg+THz}}{I_{0,FWM} - I_{Bg}} \quad (3.5)$$

oder aber die Differenz von gestörtem zu ungestörtem FWM-Signal

$$\Delta I_{FWM} = (I_{0,FWM+THz} - I_{Bg+THz}) - (I_{0,FWM} - I_{Bg}). \quad (3.6)$$

Es hat sich als nützlich erwiesen, spektrale Abhängigkeiten als Differenz und zeitliche Abhängigkeiten als Verhältnis wiederzugeben. Für die Darstellung der zeitlichen Abhängigkeit über etwa zwei Größenordnungen wird dabei über das gesamte gemessene Spektrum jeweils summiert und anschließend auf die ungestörte Intensität normiert.

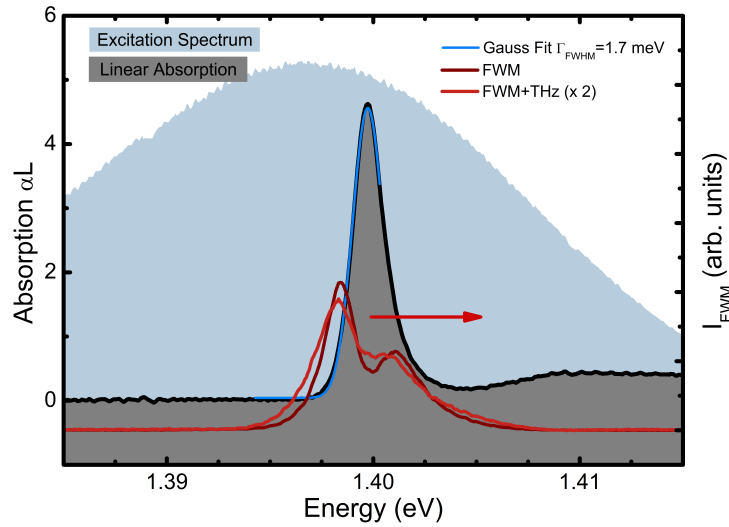
## 3.3 Experimentelle Charakterisierung

### 3.3.1 Probenstruktur und lineare Absorption

Für die Untersuchungen zum intraexzitonischen Transfer wird ein (GaIn)As-Quantenfilmsystem herangezogen, zu welchem einerseits Berechnungen eines intraexzitonischen Transfers zu den Messungen der transienten Absorption existieren [21] und welches andererseits in mehreren FWM-Experimenten untersucht wurde [56]. Die hier verwendete Probe besteht aus einer 50-fachen Abfolge von 8.5 nm  $Ga_xIn_{1-x}$ As-Quantenfilmen ( $x=0.124$ ) und 8.2 nm  $Ga_xAs_{1-x}$ P-Barrieren ( $x=0.272$ ) und wurde von W. Stolz hergestellt (laufende Bezeichnung #1714).

Zur Vorcharakterisierung wird der in Abb. 3.3 dargestellte Aufbau verwendet. Dazu werden beide mechanischen Verschlüsse geschlossen gehalten, der verbleibende nahinfrarote Strahl tritt durch die Probe, welche im Kryostaten bei  $T = 10$  K gehalten wird. Die Irisblende und die kollimierende Optik wird derart justiert, dass der transmittierte Strahl in das Spektrometer fällt, während die Intensität des transmittierten Strahls mittels Filter soweit abgeschwächt wird, dass keine Verbreiterung aufgrund einer Anregung stattfindet (excitation induced dephasing, EID). Auf diese Weise kann die lineare Absorption der Probe im FWM-Aufbau selbst bestimmt werden. Das Ergebnis ist in Abb. 3.4 als graue Kurve aufgetragen.

Deutlich ist die exzitonische 1s-Resonanz bei 1.3997 eV zu erkennen, während die 2s-Resonanz im Kontinuum der Zustände verborgen bleibt. Dennoch lässt sich eine ungefähre Exzitononenbindungsenergie von  $E_B = 9.3$  meV abschätzen. Die 1s-Resonanz



**Abb. 3.4:** Lineare Absorption der (GaIn)As-Probe im FWM-Experiment zum intraexzitonischen Transfer (grau) bei  $T = 10$  K. Die  $1s$ -Exziton-Resonanz ist gaußförmig verbreitert mit  $\Gamma_{FWHM} = 1.7$  meV (hellblau). Weiterhin ist das Spektrum der eintreffenden nahinfraroten Pulse (blau) gezeigt, sowie exemplarisch zwei Spektren des abgebeugten FWM-Signals ohne THz-Feld (dunkelrot) und mit THz-Feld (rot). Eine ausführliche Diskussion der spektralen Daten findet sich in Kap. 3.7.

weist eine gaußförmige Linienform mit  $\Gamma_{inhom} = 1.7$  meV auf und ist damit inhomogen verbreitert. Durch die kompressive Verspannung des (GaIn)As-Quantenfilms sind Schwerloch- und Leichtloch-Resonanz mit einer Aufspaltung von  $\Delta E_{lh-hh} = 64$  meV energetisch weit voneinander getrennt, was andernfalls die Interpretation des FWM-Experiment durch mehr beteiligte Energieniveaus erschweren würde (vgl. Kap. 4.3.2).

Es ist weiterhin das Spektrum der eintreffenden nahinfraroten Pulse (blau) mit willkürlichen Einheiten der Intensität gezeigt. Exemplarisch sind außerdem zwei Spektren des abgebeugten FWM-Signals dargestellt (rot, dunkelrot), auf die im späteren Verlauf in Kap. 3.7 zurückgegriffen wird.

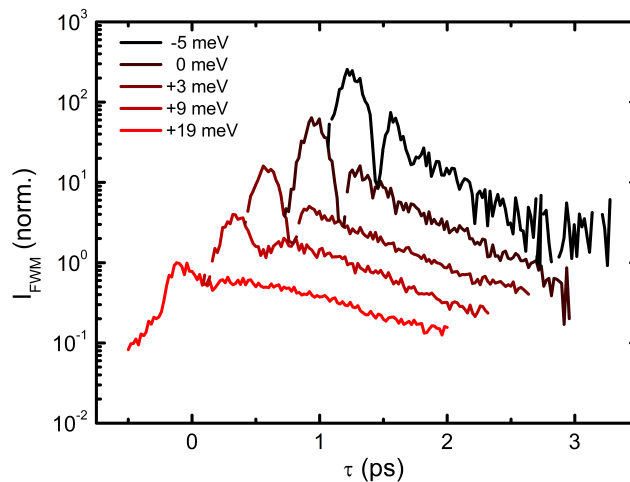
### 3.3.2 Parameterraum der induzierten ungestörten Polarisation

Der genaue zeitliche Verlauf der ungestörten FWM- $\tau$ -Transiente ist zum einen abhängig von der Anregungsleistung und zum andern maßgeblich von der energetischen Verstimmung der Anregung im Vergleich zur exzitonischen Resonanz bestimmt. Es wurden daher Messreihen durchgeführt, um die optimalen Parameter für dieses Experiment zu definieren. Aus der vorangegangenen Abb. 3.4 wird zunächst die Verstimmung als Differenz der zentralen Photonenenergie zur  $1s$ -Resonanz zu  $\Delta = E_{1s} -$

### 3 THz-induzierter intraexzitonischer Transfer

$E_{FWM} = 3.0 \text{ meV}$  bestimmt. Bei einer niedrigen kombinierten Photonendichte von ungefähr  $2.4 \cdot 10^{12} \text{ Photonen/cm}^2$  wurde eine Variation dieser Verstimmung durchgeführt, aufgetragen in Abb. 3.5.

Mit zunehmender Verstimmung sinkt zum einen die maximale Intensität vor dem Hintergrund von etwa zwei Größenordnungen bei  $\Delta = -5 \text{ meV}$  (schwarz) zu etwa einer Größenordnung bei  $\Delta = +19 \text{ meV}$  (rot), zum anderen steigt die Dephasierungszeit mit Zunahme von  $\Delta$ . Weiterhin wird ein zweites Maximum, welches bei  $\Delta = -5 \text{ meV}$  noch abgesetzt nach etwa  $0.4 \text{ ps}$  erscheint, im Verhältnis zum ersten Maximum zunehmend größer mit steigender Verstimmung, außerdem nimmt die Modulationstiefe des Minimums bei etwa  $0.2 \text{ ps}$  ab. Damit wurde der Einfluss der Verstimmung, wie er aus [56] bekannt ist, korrekt reproduziert. Eine Diskussion erfolgt im Rahmen des folgenden Abschnitts (Kap. 3.3.3).

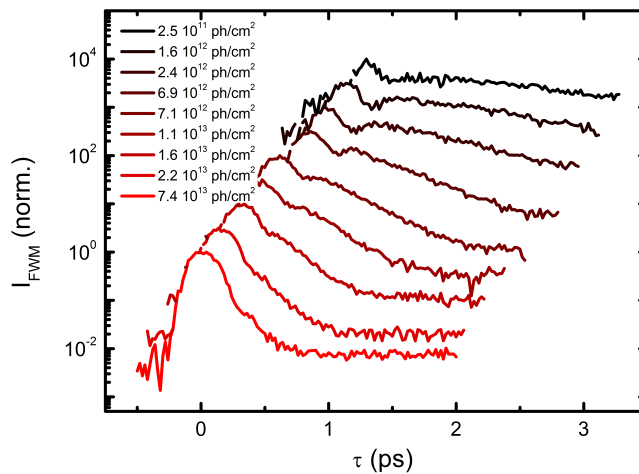


**Abb. 3.5:** Abhängigkeit der ungestörten FWM- $\tau$ -Transiente von der Verstimmung, die von  $\Delta = -5 \text{ meV}$  energetisch oberhalb der  $1s$ -Resonanz zu  $\Delta = +19 \text{ meV}$  energetisch unterhalb der  $1s$ -Resonanz variiert wurde. Die Photonendichte wurde dabei bei etwa  $2.4 \cdot 10^{12} \text{ Photonen/cm}^2$  gehalten. Zur besseren Übersicht wurden die Transienten gleichmäßig horizontal und vertikal versetzt.

Für alle weiteren gezeigten Messungen in diesem Abschnitt wird die Verstimmung bei etwa  $\Delta = +3 \text{ meV}$  gehalten, um sowohl Änderungen der Modulationstiefe als auch die Dynamik zu späteren Verzögerungszeiten  $\tau$  im Rahmen einer qualitativen Diskussion untersuchen zu können.

Für diese Verstimmung wird nun die Intensität der einfallenden FWM-Pulse variiert, so dass die kombinierte Photonendichte für den weiteren Verlauf festgelegt werden kann. In Abb. 3.6 sind die Ergebnisse dieser Messreihe aufgetragen. Deutlich

wird, dass die Dephasierungszeiten der  $\tau$ -Transienten mit steigender Dichte von  $2.5 \cdot 10^{11}$  Photonen/cm<sup>2</sup> (schwarz) bis hin zu  $7.4 \cdot 10^{13}$  Photonen/cm<sup>2</sup> (rot) stark abnehmen. Auch die Modulationstiefe zwischen dem ersten und zweiten Maximum, ebenso wie das zweite Maximum selbst, sind mit steigender Photonendichte weniger deutlich abgesetzt.



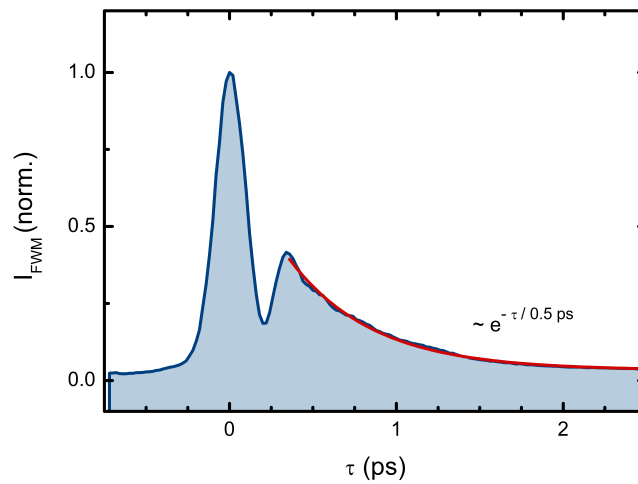
**Abb. 3.6:** Abhängigkeit der FWM- $\tau$ -Transiente von der kombinierten Photonendichte, variiert von  $2.5 \cdot 10^{11}$  Photonen/cm<sup>2</sup> bis  $7.4 \cdot 10^{13}$  Photonen/cm<sup>2</sup>. Die Verstimmung beträgt etwa  $\Delta = 3$  meV. Zur besseren Übersicht wurden die Transienten gleichmäßig horizontal und vertikal versetzt.

Dies illustriert den Einfluss des sogenannten Excitation Induced Dephasing (EID). Im Gegensatz zur freien Dephasierung durch intrinsische Prozesse werden mit zunehmender Anregungsdichte und steigender Ladungsträgerzahl Streuprozesse unter Ladungsträgern selbst relevant. Für sehr hohe Ladungsträgerzahlen dominieren diese schnellen Ladungsträger-Streuprozesse die Dephasierungszeit. Diese erheblich vergrößerte Dämpfung der Polarisation wird hier im FWM-Experiment direkt sichtbar, gleichermaßen kann die Linienform der exzitonischen Resonanz von der Verbreiterung durch die verkürzte Lebensdauer dominiert werden.

Für die folgenden Messungen wurde eine Photonendichte von etwa  $2.4 \cdot 10^{12}$  Photonen/cm<sup>2</sup> gewählt. Für niedrigere Photonendichten ändert sich die Abklingzeit nur noch unwesentlich, für höhere Photonendichte allerdings beginnt sich der Einfluss der Ladungsträger-Streuung vermehrt bemerkbar zu machen. Aufgrund der niedrigen Signalintensitäten wird die Photonendichte an der Grenze zu diesem Regime festgesetzt.

### 3.3.3 Zeitliche Entwicklung der ungestörten FWM- $\tau$ -Transiente

Zu diesen ermittelten Parametern werden nun die Effekte von THz-Feldern auf die exzitonische Polarisation untersucht. Die dabei gewonnenen Referenzen zu den in Abb. 3.8 – 3.11 gezeigten Messungen wurden als Gesamtheit gemittelt und sind in Abb. 3.7 zu finden. Diese ungestörte  $\tau$ -Transiente entspricht im Wesentlichen den in [54] vorgestellten Ergebnissen, daher soll lediglich im Hinblick auf die Diskussion der Situation unter THz-Feldern die Dynamik kurz rekapituliert werden.



**Abb. 3.7:** Ungestörte FWM- $\tau$ -Transiente als Mittelung aller relevanten Referenzmessungen, mit einer Verstimmung von  $\Delta = 3$  meV und einer Photonendichte von etwa  $2.4 \cdot 10^{12}$  Photonen/cm<sup>2</sup>. Für  $\tau > 0.4$  ps beobachtet man im Wesentlichen ein exponentielles Abklingen mit einer Zeitkonstante von 0.5 ps. Die zeitliche Dynamik davor ist durch die Interferenz der 1s-Polarisation mit derjenigen Polarisation, die alle höherliegenden s-artigen Zustände umfasst, zu erklären.

Zunächst wird auf den Verlauf für Verzögerungszeiten von  $\tau > 0.4$  ps eingegangen. Dieser lässt sich durch einen exponentiellen Verlauf mit einer Zeitkonstanten von 0.5 ps gut repräsentieren. Nach [53] gilt im Falle einer homogenen Linienverbreiterung für die FWM-Intensität näherungsweise

$$I_{FWM}^{hom} \propto |\mathbf{P}^{(3)}(\tau)|^2 \propto |e^{-\tau/T_2}|^2 \propto e^{-2\tau/T_2}, \quad (3.7)$$

während der Intensitätsverlauf bei einer inhomogenen Verbreiterung aufgrund der Photonechos bei  $t = 2\tau$  durch

$$I_{FWM}^{inhom} \propto |\mathbf{P}^{(3)}(t = 2\tau)|^2 \propto |e^{-2\tau/T_2}|^2 \propto e^{-4\tau/T_2}, \quad (3.8)$$



beschrieben werden kann (vgl. auch [56]). Da für diesen Fall eine inhomogene Verbreiterung dominiert, kann die Dephasierungszeit zu  $T_2 = 2$  ps bestimmt werden in Übereinstimmung mit vorangegangenen Untersuchungen an vergleichbaren (GaIn)As-Strukturen [54]. Daraus ergibt sich eine Verbreiterung von  $\Gamma_{FWM}^{(inhom)} = 2\hbar/T_2 = 0.66$  meV, für den Grenzfall einer rein homogenen Verbreiterung wäre  $\Gamma_{FWM}^{(hom)} = 1.32$  meV. Beide Werte liegen unterhalb der gaußschen Verbreiterung von  $\Gamma_{inhom} = 1.7$  meV aus der linearen Absorption, daher ist in jedem Fall die Annahme einer dominierenden inhomogenen Verbreiterung gerechtfertigt.

Der Zeitbereich von  $\tau < 0.4$  ps weist eine deutliche Abweichung vom einfachen exponentiellen Abfall auf. Als Modell für diesen einfachen exponentiellen Abfall wurde eine Polarisation diskutiert, welche aus dem Ensemble von 1s-Resonanzen gebildet wird. Aufgrund der spektralen Breite des anregenden Pulses müssen auch höhere exzitronische Resonanzen in Betracht gezogen werden, so dass die gesamte Polarisation ein Ensemble von 1s, 2s und weiteren höheren s-artigen Zuständen umfasst. Dabei liegen die weiteren Zustände 3s, 4s usw. energetisch nah am 2s-Zustand, während 1s- und 2s-Zustand energetisch um mehrere meV voneinander entfernt liegen. Die mikroskopische Polarisation beinhaltet nun diese jeweiligen Resonanzenergien, welche zusätzlich energetisch verteilt durch eine inhomogene Verbreiterung sein mögen. Es lassen sich jedoch aufgrund des großen energetischen Unterschiedes die Polarisation, welche das Ensemble der 1s-Resonanzen umfasst, mit der Polarisation, welche aus dem Ensemble aus 2s und höheren s-artigen Resonanzen besteht, gegenüberstellen. Im folgenden soll aus Gründen der Übersichtlichkeit die jeweilige Polarisation bestehend aus dem Ensemble der einzelnen Resonanzen sprachlich verkürzt als „1s-Polarisation“ und zum anderen als „2s+H-Polarisation“ bezeichnet werden.

Auf dieser Grundlage kann das erste Maximum als konstruktive Interferenz aller beteiligten Polarisationen verstanden werden. Das nachfolgende Minimum ist die entsprechende destruktive Interferenz der 1s- mit der 2s+H-Polarisation, mit dem sich anschließenden zweiten Maximum aufgrund der konstruktiven Interferenz entsprechend des energetischen Unterschiedes zwischen 1s und 2s+H. Aufgrund der schnelleren Dephasierung der 2s+H-Zustände ist eine Interferenzstruktur anschließend nicht mehr zu beobachten und das Signal wird wie bereits besprochen von der 1s-Polarisation bestimmt. Die Höhe des ersten Maximums im Vergleich zum zweiten Maximum kann nur teilweise aufgrund der schnellen Dephasierungsmechanismen diskutiert werden. Letztlich kann für das erste Maximum aufgrund der zeitlichen Breite der FWM-Pulse schwerlich zwischen der Abstrahlung der Polarisation und der Selbstabbeugung um  $\tau \approx 0$  fs zeitlich unterschieden werden.

Es kann nun im Nachtrag auch die veränderte Dynamik mit der energetischen Verstimmung  $\Delta$  zur 1s-Resonanz verstanden werden wie er in Abb. 3.5 gezeigt wurde. Zunächst muss bemerkt werden, dass sich mit abnehmender Verstimmung die Zahl der Ladungsträger im System vergrößert. Die daraus resultierenden Effekte wurden im Zusammenhang mit Abb. 3.6 diskutiert, und erklären die zunehmend schnellere Dephasierung mit abnehmender Verstimmung. Davon abgesehen kann jedoch die Interferenz-Struktur zwischen  $\tau = 0 \dots 1$  ps erklärt werden. Für zunehmende Verstimmung wird das Amplituden-Verhältnis zwischen 1s- und 2s+H-Polarisation zugunsten der 2s+H-Polarisation verändert, wobei im Detail natürlich die entsprechenden Oszillator-Stärken berücksichtigt werden müssten. Dennoch lässt sich auf diese Weise die zunehmende Höhe der ersten konstruktiven Interferenz, die zunehmende Tiefe der destruktiven Interferenz sowie die beginnende Ausprägung einer zweiten destruktiven Interferenz mit abnehmender Verstimmung verstehen.

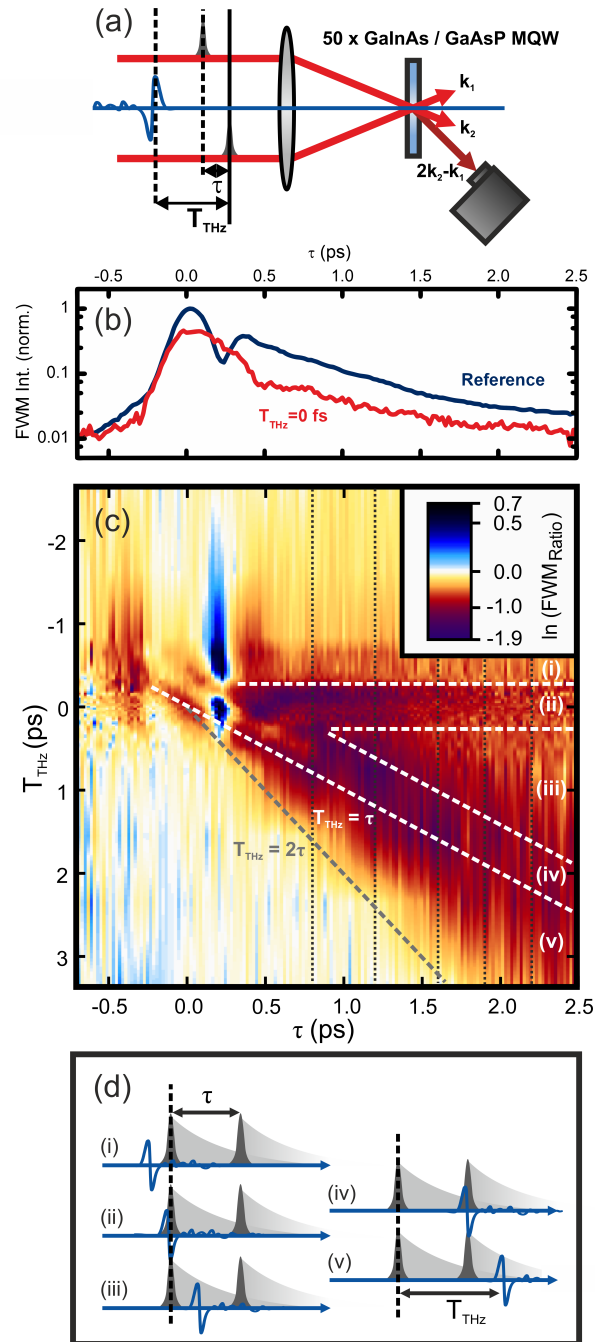
## 3.4 Sequenzielle Manipulation

Nach der Zusammenfassung der Diskussion des ungestörten Verlaufs der  $\tau$ -Transienten soll nun das Verhalten unter Einstrahlung eines THz-Feldes untersucht werden. Zunächst wird der Fall diskutiert, bei dem das THz-Feld gleichzeitig mit dem ersten der beiden FWM Pulse eintrifft bei  $T_{THz} = 0$  fs und  $E_{THz} = 9$  kV/cm. In Abb. 3.8 (a) ist ein Schema zur Definition der Parameter  $\tau, T_{THz}$  abgebildet. Dabei wird die Zeitverzögerung jeweils zum ersten der beiden FWM-Pulse dann als positiv definiert, wenn die Pulse zeitlich später eintreffen. Die Zeitachse in dieser Darstellung des Experiments ist daher nach links positiv. Für den Betrag des elektrischen Feldes des THz-Pulses wird die Zeitverzögerung bezüglich des ersten der beiden Maxima festgelegt.

### 3.4.1 Manipulierte Interferenz

Das Ergebnis der THz-Manipulation (rot) zusammen mit der ungestörten Referenz (blau) ist in Abb. 3.8 (b) gezeigt. Aufgrund der unterschiedlichen Zahl an Mittelungen für die Referenz und das FWM-Signal mit THz-Feld weisen beide Kurven unterschiedlich starkes Rauschen auf.

Zunächst fällt auf, dass das erste Maximum deutlich unterdrückt wird, ebenso ist die destruktive und konstruktive Interferenz als solche nicht mehr zu beobachten. Auch nach Durchlauf des THz-Pulses nach etwa 1 ps bleibt das FWM Signal unterdrückt. Hier wird bereits deutlich, dass das THz-Feld nicht lediglich eine transiente Modifikation im



**Abb. 3.8:** (a) Schematische Zeichnung zur Definition der Zeitverzögerungen und Winkel der Pulse zur Probe bei Detektion unter  $2k_2 - k_1$ .  
 (b) Ungestörte (dunkelblau) und manipulierte (rot)  $\tau$ -Transiente für  $E_{THz} = 9 \text{ kV/cm}$ ,  $T_{THz} = 0 \text{ ps}$  in logarithmischer Auftragung.  
 (c) Zweidimensionale, logarithmische Falschfarbendarstellung des FWM-Verhältnis mit/ohne THz für  $T_{THz}$  gegen  $\tau$ . Transienten mit festgehaltenem  $\tau$  (schwarz gepunktet) sind in Abb. 3.9 gezeigt. Zusätzlich sind Linien bei  $T_{THz} = \tau$  (weiß gestrichen) und  $T_{THz} = 2\tau$  (grau gestrichen) eingezeichnet.  
 (d) Schematische Zeichnung der Pulssequenz für verschiedene in (c) markierte (weiß gestrichen) Situationen.  
 Reprinted figure with permission from [19]. Copyright 2015 by the American Physical Society.

Quantenfilm darstellt. Vielmehr scheint es zu irreversiblen Wechselwirkungen mit der induzierten Polarisation zu kommen.

Vorangegangene FWM-Experimente [106], [105], die unter einem externen, statischen elektrischem Feld in Wachstumsrichtung der Struktur durchgeführt wurden, berichten von einer Modifikation in der Abklingzeit aber auch von einem Verschwinden der destruktiven Interferenz. Da im vorliegendem Experiment das elektrische Feld in die Ebene der Quantenfilme ausgerichtet ist, lassen sich neben einem qualitativen Vergleich der verschwindenden Interferenz nur bedingt Vergleiche ziehen, insbesondere was Feldstärken und Ionisationszeiten betrifft.

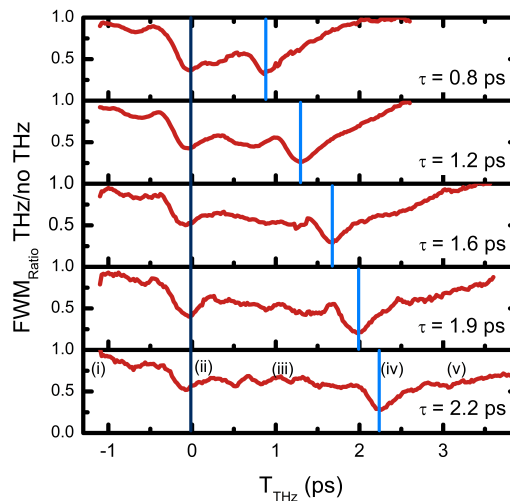
Man kann dieses Verhalten zunächst vereinfacht im Bild der Ionisation diskutieren. Ein elektrisches Feld verändert dabei das Coulomb-Potential, wodurch die Ionisationsbarriere reduziert werden kann. Von diesem Effekt sind die höher liegenden exzitonischen Zustände stärker betroffen, was in einem der folgenden Kapitel 3.5 noch explizit experimentell bestätigt werden wird. Aufgrund dieser schnelleren Dephasierung der höher liegenden Zustände wird zum einen die konstruktive Interferenz der 1s- mit der 2s+H-Polarisation unterdrückt, zum anderen kann keine destruktive Interferenz stattfinden, weshalb das Verhältnis mit THz/ohne THz ( $FWM_{\text{Ratio}}$ ) Werte  $> 1$  annimmt. Einzig die verbleibende 1s-Polarisation sollte das Signal dominieren, wobei auch diese einer zusätzlichen Dephasierung durch das elektrische Feld unterliegt. An dieser Stelle erfolgt keine weitere Auswertung der Dephasierungszeiten unter elektrischem Feld, da die Effekte der zeitlichen Änderung des THz-Feldes auf der Zeitskala des Abfalls der FWM-Intensität letztlich schwer zu berücksichtigen sind.

Nun wird im nächsten Schritt sukzessive der Zeitpunkt der Einstrahlung des THz-Feldes variiert. Dazu werden insgesamt 27 Schritte für die Zeitverzögerung  $T_{\text{THz}}$  mit geringem Abstand auf den Bereich von  $-1 \text{ ps} < T_{\text{THz}} < 1 \text{ ps}$  und mit größerem Abstand auf den verbleibenden Zeitbereich verteilt, wobei insgesamt für die Darstellung in Abb. 3.8 (c) linear interpoliert wurde. Für die Zeitverzögerung  $\tau$  werden 161 Schritte verwendet mit einem Abstand von 20 fs. Die Auftragung der  $FWM_{\text{Ratio}}$  nach Gl. (3.5) ist in Falschfarben als Logarithmus kodiert.

Zunächst lassen sich mehrere markante Zeitbereiche unterscheiden. Zur Verdeutlichung wurden diese Zeitbereiche in der zweidimensionalen Darstellung markiert und nummeriert (weiß gestrichelt, (i) – (v)). Unter genauer Betrachtung stellt sich heraus, dass sich jedem Zeitbereich eine gewisse Sequenz von Pulsen zuordnen lässt. Abb. 3.8 (d) zeigt eine schematische Zeichnung für die Bereiche (i) – (v) für beide FWM-Pulse (dunkelgrau) sowie den THz-Puls (dunkelblau) mit den beiden Zeitverzögerungen  $\tau$  und  $T_{\text{THz}}$ . Die Zeitachse ist hier nach rechts positiv dargestellt. Zusätzlich ist die indu-

zierte mikroskopische Polarisierung unter freier Dephasierung beispielhaft eingezeichnet (hellgrau). Die Sequenz (i) entspricht einem Eintreffen des THz-Pulses zeitlich vor beiden FWM-Pulsen, Sequenz (ii)+(iv) repräsentiert die Situation, bei der der THz-Puls gemeinsam mit dem ersten oder dem zweiten FWM-Puls eintrifft. Wird das THz-Feld zeitlich zwischen beiden FWM-Pulsen eingestrahlt, so ist dies als Sequenz (iii) bezeichnet. Ein zeitlich späteres Eintreffen des THz-Feldes nach beiden FWM-Pulsen ist in Sequenz (v) wiedergegeben.

Um die in der Abb. 3.8 (c) sichtbaren Bereiche explizit zu verifizieren, wurden bei festgehaltenem  $\tau$  entlang der eingezeichneten Linien (schwarz gepunktet) zusätzliche FWM-Transienten mit variablem  $T_{THz}$  aufgenommen. Diese sind in Abb. 3.9 als  $FWM_{Ratio}$  nach Gl. (3.5) gezeigt. Die Kurven wurden dabei mit einem Fenster von 120 fs gemittelt. Man beobachtet zwei ausgeprägte Minima, wobei ein Minimum kurz vor der Zeitnull auftritt (dunkelblau), während das andere zur entsprechenden Zeitverzögerung zwischen beiden FWM-Pulsen unter  $T_{THz} = \tau$  auftritt (hellblau).



**Abb. 3.9:**  $T_{THz}$ -Transienten als  $FWM_{Ratio}$  zu bestimmten  $\tau$  entlang der in Abb. 3.8 (c) eingezeichneten Linien (schwarz gepunktet). Es sind zwei Minima zu erkennen, die entsprechend der Pulssequenz als (ii) (dunkelblau), und (iv) (hellblau) markiert wurden. Reprinted figure with permission from [19]. Copyright 2015 by the American Physical Society.

### 3.4.2 Diskussion einzelner Sequenzen

Im Folgenden werden die einzelnen Sequenzen mit Bezug auf Abb. 3.8 (c),(d) und Abb. 3.9 gemeinsam beschrieben und diskutiert.

Falls das THz-Feld vor beiden optischen FWM-Pulsen eintrifft (i), so erwartet man zunächst keine Änderung des abgebeugten FWM-Signals. Wie in Abb. 3.8 (d) dargestellt,

sollte der THz-Puls keinen Einfluss auf die zeitlich später induzierten Polarisierungen ausüben können. Allerdings ist der zeitliche Verlauf des THz-Feldes kein strikter, zeitlich begrenzter Zyklus, sondern es existieren leichte Auslenkungen auch nach dem Hauptpuls. In Abb. 3.8 (d) (blau) ist das reale elektrische Feld des THz-Pulses exemplarisch wiedergegeben. Auf diese Weise lässt sich die leichte Änderung in dem Abschnitt (i) Abb. 3.8 (c) (hellgelb) erklären, da der reale THz-Puls kleine Änderungen im elektrischen Feld aufweist, nachdem der Hauptpuls das System durchlaufen hat.

Tritt das THz-Feld gleichzeitig mit dem ersten (ii) / dem zweiten (iv) der beiden FWM-Pulse auf, so lässt sich für diese Fälle die größte Verringerung des FWM-Signals beobachten. Einerseits ist dies als horizontaler und vertikaler Bereich in Abb. 3.8 (c) (violett) sichtbar, andererseits zeigen sich wie bereits erwähnt zwei Minima in den  $T_{THz}$ -Transienten (Abb. 3.9). Aufgrund der Geometrie des FWM-Experiments ist es bekannt, dass das maximale FWM-Signal zeitlich leicht verzögert nach beiden optischen Pulsen auftritt. Da hier die Zeitnull bezüglich des Maximums des FWM-Signals gewählt wurde, ergibt sich hier für die THz-Manipulation während des ersten optischen Pulses (ii, dunkelblau) ein kleiner Zeitversatz. Das zweite Minimum (iv, hellblau) hingegen verschiebt sich mit der Position des zweiten FWM-Pulses  $\tau$ , so dass das Minimum (iv) der Linie  $\tau = T_{THz}$  folgt.

Für den Zeitbereich von  $T_{THz}$  und  $\tau$  zwischen  $0 \dots 0.5$  ps müssen die Interferenzeffekte zwischen der 1s- und 2s+H-Polarisationen berücksichtigt werden. Unter dem Einfluss des THz-Feldes ändert sich wie eingangs diskutiert die Ionisationsbarriere insbesondere für die 2s+H-Polarisation, so dass die konstruktive Interferenz stark unterdrückt wird.

Aus vorangegangenen Experimenten zur transienten Absorption [21], [63] ist andererseits bekannt, dass die exzitonische Absorption unter starken THz-Feldern reduziert erscheint. Es lässt sich daher anführen, dass bei gleichzeitigem Auftreffen des THz-Pulses mit einem der beiden FWM-Pulse die Amplitude der induzierten Polarisation verringert wird. Dies hat eine reduzierte Intensität des abgebeugten FWM-Signals zur Folge. Insbesondere für die Sequenz (iv) bei Zeiten von  $T_{THz}, \tau > 0.5$  ps kann dies als Hauptursache für die Ausprägung der Minima (Abb. 3.9) betrachtet werden. Andernfalls ist dieser Effekt jedoch kaum von der kohärenten Manipulation der vorliegenden Polarisation zu trennen, welcher insbesondere zu Beginn die 2s+H-Polarisation ausgesetzt ist. Eine detaillierte Unterscheidung zwischen veränderter Absorption und veränderter Polarisation ist jedoch unsinnig, da beide Ausdruck ein und derselben Licht-Materie-Wechselwirkung sind. Ohne die korrekte Beschreibung im Rahmen einer mikroskopischen Theorie, die diese Wechselwirkungen insbesondere auf der Zeitskala

der erzeugenden FWM- und THz-Pulse berücksichtigt, ist es müßig, die genauen Konsequenzen der Effekte auf dieser Ebene diskutieren zu wollen. Mithilfe der Auswertung der spektralen Signaturen können jedoch die dominierenden THz-Wechselwirkungen dem FWM-Signal zugeschrieben werden (vgl. Kap. 3.7). Im Folgenden werden darüberhinaus hauptsächlich eindeutige Pulsesequenzen wie (v) und (ii) untersucht und diskutiert. Im letzteren Fall mag beispielsweise eine veränderliche Absorption für den ersten FWM-Puls eine Rolle gespielt haben, der zweite FWM-Puls kann jedoch als unabhängig betrachtet werden.

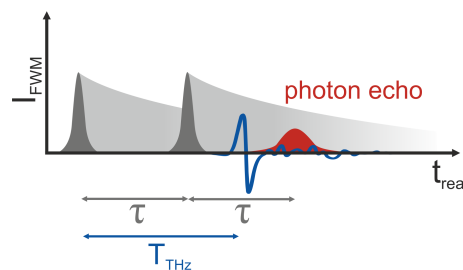
Trifft das THz-Feld zeitlich zwischen beiden FWM-Pulsen ein (iii), so ergibt sich ein verringertes FWM-Signal aufgrund der Manipulation der abklingenden Polarisation des ersten Pulses. Dies wird als breites Plateau in Abb. 3.8 (c) und Abb. 3.9 sichtbar.

Zuletzt bleibt die Sequenz zu diskutieren, bei der zunächst beide FWM-Pulse die Probe durchtreten haben, der THz-Puls hingegen zeitlich später auftritt (v). Es ist hier zunächst verwunderlich, warum ein deutliches Signal als Ausläufer in diesem Bereich in Abb. 3.8 (c) und Abb. 3.9 auftritt. Zu erwarten wäre, dass die Änderungen mit einer gewissen zeitlichen Breite zu  $T_{THz} = \tau$  hin beschränkt bleiben. Stattdessen ergibt sich als Begrenzung der Ausläufer der Zusammenhang  $T_{THz} = 2\tau$ , welcher in Abb. 3.8 (c) (grau gestrichen) eingezeichnet ist.

Zur Klärung dieses Zusammenhangs kann auf vorangegangene FWM-Experimente zurückgegriffen werden, welche zusätzlich zum Zeitversatz  $\tau$  zwischen beiden FWM-Pulsen das abgebeugte Signal selbst mittels der Technik der Aufkonversion (vgl. Kap. 4.3.2) zeitlich auflösen [57, 36, 109, 47]. Dabei wird zwischen zeitintegrierten Messungen (TI-FWM) mit Auftragung gegen  $\tau$  und zeitaufgelösten Messungen (TR-FWM) mit Auftragung der zusätzlichen Zeitverzögerung als Realzeit  $t_{real}$  unterschieden. Nicht zuletzt mithilfe von mikroskopischen Rechnungen [36], [73], [99] zeigt sich, dass für ein einfaches Zwei-Niveau-System das Maximum des TR-FWM Signals entsprechend  $t_{real} = \tau$  folgt. Für ein sehr stark inhomogen verbreitertes System hingegen wird das FWM-Signal zeitlich nicht zu  $t_{real} = \tau$  abgestrahlt. Typischerweise klingt in diesem Fall die makroskopische Polarisation zunächst schneller ab als die mikroskopische Polarisation. Diese existiert mithin weiter und wird, stimuliert durch den zweiten FWM-Puls, nach der doppelten bis dahin verstrichenen Zeit  $\tau$  als makroskopische Polarisation abgestrahlt. Dies ist als sogenanntes Photonenecho bekannt. Eine anschauliche Erklärung findet sich beispielsweise in [53]. Es gilt für diesen Fall dann der Zusammenhang  $t_{real} = 2\tau$ . Eine schematische Illustration der verschiedenen Zeitverzögerungen für die Sequenz (v) ist gemeinsam mit dem zeitlich abgesetzten Photonenecho (rot) in Abb. 3.10 gezeigt.

### 3 THz-induzierter intraexzitonischer Transfer

Nun wurde beispielsweise in [36] das TR-FWM-Signal für eine um 10 nm fluktuierende (GaIn)As-Quantentopfdicke berechnet, um den Zusammenhang zwischen dem Auftreten eines abgesetzten Photonenechos und einer inhomogenen Verbreiterung darzustellen. Im Fall des vorliegenden Quantenfilmsystems kann jedoch nur von einer leichten inhomogenen Verbreiterung gesprochen werden, welche die Linienform dominiert (Kap. 3.3.3). Man erwartet daher für diese Probe kein zeitlich deutlich abgesetztes Photonenecho zu  $t_{real} = 2\tau$  wie in Abb. 3.10 skizziert, dennoch kann von einer deutlichen Abweichung der TR-FWM-Signale zwischen  $t_{real} = \tau \dots 2\tau$  ausgegangen werden.



**Abb. 3.10:** Skizzenhafte Illustration der Pulssequenz ( $\nu$ ) mit der Zeitverzögerung  $\tau$  zwischen beiden FWM-Pulsen (dunkelgrau) und  $T_{THz}$  zum Zeitpunkt des eintreffenden THz-Feldes (blau). Im Hintergrund (hellgrau) ist beispielhaft die mikroskopische Polarisation unter freier Dephasierung (FID) gezeigt, bei  $t_{real} = 2\tau$  kann für stark inhomogen verbreiterte Systeme ein zeitlich abgesetztes Photonenecho im abgestrahlten TR-FWM-Experiment auftreten (rot).

Im Rahmen dieses Experiments findet nun eine Veränderung des Signals im Zeitbereich um  $T_{THz}$  statt, welche zusammen mit der Realzeit  $t_{real}$  der abgestrahlten FWM-Signale verstanden werden muss. Jedoch wird durch das eingestrahlte THz-Feld die mikroskopische Polarisation zu jedem Zeitpunkt zwischen  $\tau$  und  $2\tau$  manipuliert. In der Folge erfährt die makroskopische Polarisation – abgestrahlt zu einem späteren Zeitpunkt – durch diese Manipulation eine Veränderung. Dies erklärt, warum letztlich die Änderung des FWM-Signals durch das THz-Feld von  $T_{THz} = \tau$  an hin zu  $T_{THz} = 2\tau$  stetig abnimmt. Es wäre in diesem Zusammenhang interessant, eine weitere Probe zu untersuchen, welche in vorangegangenen Experimenten deutliche Photonenechos aufgezeigt hat. Da die Interaktion des THz-Feldes einzig über die mikroskopische Polarisation stattfindet, sollte die THz-induzierte Änderung zwischen  $T_{THz} = \tau$  und  $T_{THz} = 2\tau$  das gesamte Photonenecho bei  $2\tau$  stören, so dass man für diesen Bereich bis  $T_{THz} = 2\tau$  eine Art Plateau erwarten könnte. Anschließend ließe sich erwarten, dass die Änderung des FWM-Signals mit der halben zeitlichen Halbwertsbreite des Photonenechos abfällt.

Es fallen noch weitere Strukturen in Abb. 3.8 (c) auf, die im Folgenden näher disku-



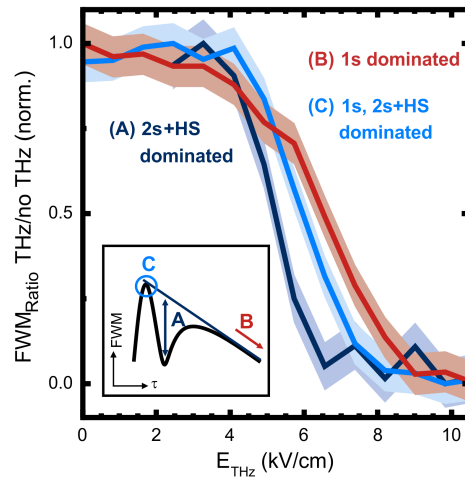
tiert werden. Zunächst ist eine dunkelblaue Färbung ( $FWM_{\text{Ratio}} > 1$ ) um  $\tau \approx 0.16$  ps sichtbar. Diese Veränderung entspricht der eingangs besprochenen modifizierten Interferenz; eine destruktive Interferenz zwischen 1s- und 2s+H-Polarisation kann aufgrund der Feldionisation nicht mehr stattfinden.

In der Region zwischen  $-1$  ps und  $+1$  ps für  $(\tau, T_{\text{THz}})$  ist darüberhinaus eine gewisse Doppelstruktur zu erkennen. Diese Doppelstruktur besitzt einen Abstand von etwa  $0.5$  ps sowohl entlang von  $\tau$  als auch von  $T_{\text{THz}}$ . Zusätzliche Messungen, bei denen entlang der Diagonalen von  $\tau = T_{\text{THz}}$  (weiß gestrichelt) und entlang einer dazu versetzten Linie von  $\tau = T_{\text{THz}} - 0.22$  ps gemessen wird, bestätigen darüberhinaus ein Auswaschen dieser Doppelstruktur bis etwa  $\tau = T_{\text{THz}} = 0.75$  ps. Diese Phänomene sind einerseits natürlich der Transiente des THz-Feldes geschuldet, dessen Maximum und Minimum im Abstand von etwa  $0.5$  ps sich in den Messungen widerspiegeln. Andererseits kann das Abbilden dieser Struktur und das Auswaschen bis zu einem Zeitbereich von etwa  $\tau = T_{\text{THz}} = 0.75$  ps erneut über das zeitliche Verhalten des FWM-Signals im Realraum verstanden werden. Die in [36] berechneten zeitaufgelösten FWM-Signale im Realraum für inhomogen verteilte exzitonische Resonanzen (FIG. 2 in [36]) zeigen einen deutlichen Anstieg der zeitlichen Halbwertsbreite mit zunehmender Verzögerung  $\tau$ , in dem dortigen Fall von anfangs etwa  $0.5$  ps bis zu  $1$  ps für  $\tau = 1.5$  ps. Dabei wird mithilfe einer genaueren Analyse der beitragenden Effekte in [36] deutlich, dass die Verschiebung und zunehmende Verbreiterung des TR-FWM-Signals mit zunehmendem  $\tau$  alleine aus der inhomogenen Verbreiterung herrühren, während die Interferenz-Struktur durch Vielteilchen Coulomb-Wechselwirkungen zustande kommt. Dies könnte erklären, warum für das vorliegende leicht inhomogen verbreiterte System die Doppelstruktur anfangs abgebildet werden kann, für spätere Zeiten aber aufgrund der angestiegenen realen zeitlichen Halbwertsbreite des FWM-Signals nicht mehr sichtbar ist.

### 3.5 Schwellverhalten

Im nächsten Schritt werden nun für zwei verschiedene Pulssequenzen die Abhängigkeit der Signaturen von der Stärke des eingestrahlten elektrischen Feldes  $E_{\text{THz}}$  untersucht. Zunächst wird das Augenmerk auf die Interferenz-Strukturen gelegt, wie sie sich für  $\tau < 0.5$  ps in der FWM- $\tau$ -Transiente als Pulssequenz (ii) ergeben. Die eingesetzte Zeichnung in Abb. 3.11 gibt dies schematisch wieder.

Es werden bei einer festen Zeitverzögerung von  $T_{\text{THz}} = -0.15$  ps FWM- $\tau$ -Transienten mit einer Schrittweite von  $20$  fs jeweils mit und ohne THz-Feld aufgenommen. Sukzes-



**Abb. 3.11:** Abhängigkeit verschiedener Signaturen von der THz-Feldstärke  $E_{THz}$  für das abgebeugte FWM-Signal. In der eingesetzten Zeichnung sind drei ausgewählte Signaturen (A-C) für die  $\tau$ -Transiente schematisch dargestellt. Die destruktive Interferenz (A) (dunkelblau) mit  $T_{THz} = -0.15$  ps,  $\tau = 0.16$  ps zeigt dabei eine niedrigere Schwelle als diejenige Situation (B) (rot), welche mit  $T_{THz} = 1.6$  ps,  $\tau = 1.08 \pm 0.21$  ps von der 1s-Polarisation dominiert wird. Eine dritte Situation (C) (hellblau) der konstruktiven Interferenz mit  $T_{THz} = \tau = -0.15 \pm 0.24$  ps zeigt, dass deren Schwellverhalten zwischen (A) und (B) liegt. Der Fehler für das normierte Verhältnis wurde anhand der Streuung der Messwerte abgeschätzt. Reprinted figure with permission from [19]. Copyright 2015 by the American Physical Society.

sive wird nach jeder  $\tau$ -Transiente das elektrische Feld des THz Pulses  $E_{THz}$  über die jeweils angelegte Antennenspannung von  $E_{THz} = 0$  kV/cm bis etwa  $E_{THz} = 10.6$  kV/cm in 14 Schritten variiert.

Zur Auswertung der destruktiven Interferenz, welche in Abb. 3.11 mit (A) (dunkelblau) bezeichnet ist, wird für jede  $\tau$ -Transiente zu einer Feldstärke  $E_{THz}$  bei einer Verzögerungszeit von  $\tau = 0.16$  ps die Differenz zwischen einer auf logarithmischen Skala eingezeichneten Linie und der Tiefe des Einbruchs ausgewertet. Auf diese Weise kann ein Maß für die destruktive Interferenz vor einem veränderlichen Hintergrund angegeben werden. Diese Größe wird anschließend ins Verhältnis zum ungestörten Einbruch gesetzt.

Die konstruktive Interferenz – mit einem Kreis in der eingesetzten Zeichnung in Abb. 3.11 (C) (hellblau) markiert – wird als Verhältnis des durch das THz-Feld gestörten Signals zum ungestörten Fall angegeben. Dazu wird das Signal im Zeitbereich von  $\tau = -0.39$  ps bis zu  $\tau = +0.09$  ps summiert und durch die Summe der Referenz desselben Zeitbereichs geteilt.

Als drittes wird eine weitere Pulssequenz ( $\nu$ ) zu sehr späten Verzögerungszeiten zwischen den in 3.8 (c) aufgetragenen  $T_{THz} = \tau$  und  $T_{THz} = 2\tau$ -Linien betrachtet.

Nach der vorangegangenen Diskussion kann davon ausgegangen werden, dass für diese Sequenz die 2s+H-Polarisation weitestgehend durch Dephasierung unterdrückt wurde und damit hauptsächlich die 1s-Polarisation zum FWM-Signal beiträgt. Es wird daher für diese Situation (B) (rot) in Abb. 3.11 ein Zeitversatz von  $T_{THz} = 1.6$  ps gewählt. Ebenso werden für diese Einstellungen vierzehn  $\tau$ -Transienten unter Variation der THz-Feldstärke mit zugehörigen Referenzen und gleichbleibender  $\tau$ -Schrittweite gemessen. Anschließend wird das Verhältnis aus der Summe des FWM-Signals im Zeitbereich von  $\tau = 0.87$  ps bis  $\tau = 1.29$  ps mit und ohne THz-Feld gebildet.

Um diese unterschiedlichen Größen vergleichen zu können, werden alle gebildeten Verhältnismerte zwischen Minimum und Maximum zu 0 und 1 normiert. Desweiteren wird der Fehler aus der Streuung der Werte zum konstanten Erwartungswert bei vernachlässigbaren Feldstärken und im Bereich der Sättigung abgeschätzt.

Aus der Auftragung in Abb. 3.11 wird deutlich, dass die Signatur (A) die niedrigste Schwelle mit steigender THz-Feldstärke aufweist, die Werte bei (B) hingegen die höchste Schwelle besitzen, während für (C) eine Zwischensituation gilt.

Dies lässt sich im Rahmen der Feldionisation erörtern, wie auch im vorangegangenen Abschnitt bereits geschehen. Durch die reduzierte Coulomb-Barriere aufgrund des angelegten elektrischen Feldes müssen energetisch höher liegende exzitonische Zustände eine geringere Barriere überwinden, als die energetisch tief liegenden 1s-Zustände.

Da die destruktive Interferenz ohne existierende 2s+H-Polarisation nicht mehr ausgebildet werden kann, ist die Situation (A) besonders sensitiv auf die höheren exzitonischen Zustände, welche bereits bei niedrigeren THz-Feldstärken vollständig ionisiert werden. Daher wird neben der niedrigeren Schwelle auch früher eine Sättigung bezüglich der THz-Manipulation der Signatur in Situation (A) erreicht.

Die konstruktive Interferenz (C) dagegen wird sowohl aus energetisch tief liegenden 1s-Zuständen als auch 2s+H-Zuständen mit geringerer Energiebarriere gebildet. Es zeigt sich demzufolge ein ähnlicher Verlauf wie bei der destruktiven Interferenz, die Schwelle dieser kombinierten 1s-, 2s+H-Signatur und deren Sättigung werden allerdings erst für höhere Feldstärken erreicht.

Die Signaturen bei (B) zu späten Verzögerungszeiten werden wie erwähnt durch die 1s-Polarisation dominiert, für die betreffenden Zustände muss die höchste Energiebarriere überwunden werden. Konsequenterweise liegt hier auch die Schwelle und der Eintritt der Sättigung bei den höchsten Feldstärken. Interessanterweise zeigt sich hier ein früh einsetzender Trend zur Änderung der Signatur bei (B) auch bei deutlich kleineren THz-Feldstärken, was für (A) und (C) nicht der Fall zu sein scheint. Um

die Signifikanz dieser angedeuteten Tendenz zu erhöhen, müssten natürlich weitere Messungen mit einer deutlich höheren Zahl an Datenpunkten bei niedrigen Feldstärken durchgeführt werden. Dessen ungeachtet sollen dennoch Gründe für dieses angedeutete Verhalten auf Grundlage der unterschiedlichen Pulssequenzen (ii) und (v) angeführt werden. Während bei (v) das THz-Feld einzig auf die frei dephasierenden Polarisationen ohne weitere Interaktion mit den FWM-Pulsen wirkt, so tritt für die Sequenz (ii) im Zeitbereich der Interferenz der THz-Puls gleichzeitig mit dem ersten der beiden FWM-Pulse auf. Hier könnte man argumentieren, dass im Bereich sehr niedriger THz-Feldstärken die Amplitude der induzierten Polarisation durch den weiterhin präsenten FWM-Puls trotz leichter THz-induzierter Störung aufrechterhalten werden kann.

## 3.6 Reversibler und irreversibler Transfer

Nachdem die Abhängigkeit der einzelnen Signaturen von der THz-Feldstärke untersucht wurde, wird im Folgenden detailliert die Abhängigkeit der Dynamik des FWM-Signals von der Feldstärke studiert. Dabei soll die Diskussion der Dynamik nun über den Rahmen des Bildes der Feldionisation hinausgeführt werden.

### 3.6.1 Theoretischer Zusammenhang

Bevor auf die experimentellen Ergebnisse in Abb. 3.12 eingegangen wird, soll näher erläutert werden, welche Dynamik sich prinzipiell erwarten ließe. Der erste der beiden FWM-Pulse induziert eine kohärente exzitonische Polarisation  $P_1$ , die vom THz-Puls manipuliert wird. Die induzierte Polarisation  $P_2$  des zweiten FWM-Pulses wechselwirkt mit der vorhandenen Polarisation, was den Quellterm für die Polarisation dritter Ordnung darstellt  $P^{(3)}$ . Nach [78] lässt sich schließlich die Intensität des FWM-Signals ähnlich zu Kap. 3.3.3 ausdrücken als

$$I_{FWM}(\tau) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} |P^{(3)}(t, \tau)|^2 dt, \quad (3.9)$$

wobei unter Annahme von FWM-Pulsen der Form  $E_2(t) = \eta_2 \delta(t)$  für die Polarisation dritter Ordnung gilt [78]:

$$P^{(3)}(t, \tau) = 2 \frac{i}{\hbar} \eta_2^* \cdot P_2(t - \tau) \cdot P_1^*(\tau) \cdot e^{-ik_2 \cdot \mathbf{r}}, \quad (3.10)$$

Dabei müssen für  $P_1$  und  $P_2$  lediglich Terme mit den relevanten Phasenfaktoren,  $e^{-i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}}$  beziehungsweise  $e^{-i\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}}$ , zur Abstrahlung in Richtung  $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$  berücksichtigt werden. Diese vereinfachte Darstellung für den Fall eines Ensembles aus Zwei-Niveau-Systemen und deltaförmigen FWM-Pulsen lässt dennoch Rückschlüsse auf die physikalischen Ursachen zu, welche das FWM-Signal grundsätzlich bestimmen [78].

Anhand obiger Gleichungen wird insbesondere sichtbar, dass beide induzierten Polarisationen erster Ordnung  $P_1, P_2$  die Intensität des abgebeugten FWM-Signals  $I_{FWM}$  bestimmen. Es lässt sich daher erwarten, dass sich THz-induzierte Änderungen der Polarisation erster Ordnung, wie etwa von  $P_1$ , in diesem Experiment detektieren lassen. Aus vorherigen Experimenten zur transienten Absorption unter starken THz-Feldern [9, 17, 108, 33, 21] hat man die spektralen Signaturen des Rabi-Flopping untersucht.

In der Zeitdomäne der Polarisation selbst erwartet man für einen gewissen Bereich der THz-Feldstärke, bei der die Ionisation durch das Feld noch nicht die gesamte Dynamik dominiert, einen Einbruch der Polarisation, die sich anschließend jedoch wieder erholen sollte. In [21] wird eine mikroskopische Theorie vorgestellt, welche THz-induzierte, intraexzitonische Rabi-Oszillationen beschreiben.

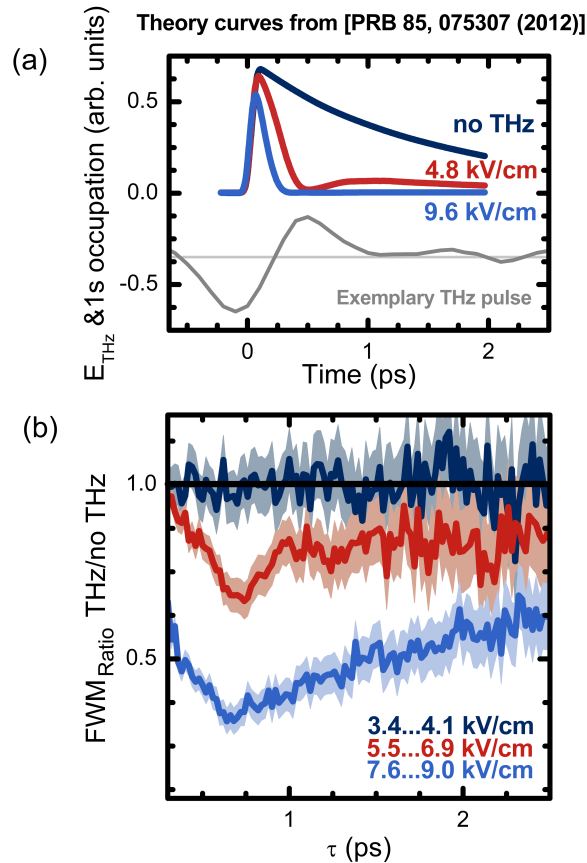
Die mikroskopische Theorie beschreibt dabei die THz-induzierte Änderung in der Transmission, darüberhinaus wird jedoch auch ein Erkenntnis über den genauen zeitlichen Verlauf der Besetzung der unterschiedlichen exzitonischen Zustände gewonnen, welche sich nicht direkt aus dem Experiment ergeben. Die THz-induzierte Dynamik für die Polarisationen  $P_{\mathbf{k}}$  wird dabei durch Gl. (1) aus Ref. [21] bestimmt, deren Herleitung sich in [49] findet. Nach [21] lässt sich im nächsten Schritt  $P_{\mathbf{k}}$  über die Wellenfunktionen des Wannier Exzitons  $\phi$  mit der Besetzungswahrscheinlichkeit  $n$  der exzitonischen Zustände verknüpfen:

$$n_{\lambda} = |\rho_{\lambda}|^2 = \left| \sum_{\mathbf{k}} \phi_{\lambda}^*(\mathbf{k}) P_{\mathbf{k}} \right|^2. \quad (3.11)$$

In der dortigen Notation werden die Quantenzahlen  $n$  und  $m$  im Index  $\lambda = (n, m)$  zusammengefasst und zwei Fälle vorgestellt. Zum einen wird der Fall des abgeschlossenen Zwei-Niveau-Systems diskutiert, zum anderen wird die realistischere Beschreibung des exzitonischen Systems mit allen weiteren höheren Zuständen als offenes System durchgeführt (FIG. 4 in [21]). Im Zwei-Niveau-System ist das Wechselspiel zwischen der Besetzung der hier erlaubten Zustände für den THz-Übergang des unteren  $1s$ - und des oberen  $2p$ -Niveaus für die Dauer der Einstrahlung des etwa 1 ps langen THz-Pulses erkennbar. Zwar ist diese Beschreibung instruktiv zum Verständnis der Rabi-Oszillationen, jedoch wird die Dynamik des Systems am besten durch die Einbe-

### 3 THz-induzierter intraexzitonischer Transfer

ziehung höherer angeregter Zustände beschrieben. In diesem Fall findet die wechselseitige Besetzung zwischen  $1s$ -Niveau und Niveaus mit  $n > 1$ ,  $m \neq 0$  (nicht s-artige, höhere dunkle Zustände) statt. Anstelle von mehreren Zyklen des Transfers zwischen den Zuständen wie im Zwei-Niveau-System erkennt man für das volle System nur eine einzige Wiederkehr der  $1s$ -Besetzung im Falle von mittleren THz-Feldstärken.



**Abb. 3.12:** (a) Vorhersage einer mikroskopischen Theorie für die  $1s$ -Besetzung für zwei verschiedene Feldstärken, erneut dargestellt aus [21]. Zusätzlich ist ein exemplarischer THz-Puls (grau) nach unten versetzt eingezeichnet für  $T_{THz} = -0.1$  ps. (b) Gemitteltetes Verhältnis der  $\tau$ -Transienten für verschiedene Feldstärken mit abgeschätztem Fehler. Bildet man aus dem Verlauf der Besetzungen in (a) die  $FWM_{Ratio}$  nach Gl. (3.5) mit THz/ohne THz, so kann der experimentelle Verlauf von Minimum und konstantem Wert für mittlere Feldstärken (rot) und stetig zunehmendem Wert bei hohen Feldstärken (hellblau) qualitativ erklärt werden. Reprinted figure with permission from [19]. Copyright 2015 by the American Physical Society.

Dieser Verlauf von  $n_{\lambda=1,0}(t)$  sollte sich nun nach obiger Diskussion in dem FWM-Signal  $I_{FWM}(\tau)$  wiederfinden lassen. Dabei wurden die theoretischen Berechnungen für die zeitliche Änderung der  $1s$ -Besetzung mit  $\lambda = (1, 0)$  erneut in Abb. 3.12 (a) aufgetragen. Der ungestörte Verlauf der  $1s$ -Besetzung zeigt dabei die typische int-

rinsische Dephasierung (dunkelblau), während für eine mittlere Feldstärke (rot) die Polarisation sich nach einem kurzen Einbruch zu einem kleinen Teil erholt. Für höchste Feldstärken dagegen (hellblau) bricht die 1s-Polarisation sofort ab, um auch später nicht wieder zurückzukehren.

Da die Besetzung auch für geringere Feldstärken keine mehrfachen Zyklen durchläuft, sondern eher einer einzelnen, gedämpften Rabi-Oszillation entspricht, wurde in [21] der Begriff „reversibler Transfer“ für dieses Verhalten geprägt, während die nicht wiederkehrende Besetzung bei hohen Feldstärken als „irreversibler Transfer“ bezeichnet wurde. Auf diese Weise lässt sich einerseits dem Verhalten der Rabi-Oszillation Rechnung tragen, andererseits kann so auch die Ionisation jenseits der gebundenen Zustände, welche auch bei niedrigeren Feldstärken bereits auftritt, berücksichtigt werden.

Diese Berechnungen wurden für 1s–2p-Übergangsenergien von etwa 6 meV für ein vergleichbares (GaIn)As/GaAs-Quantenfilmsystem durchgeführt. Das THz-Spektrum entsprach dabei dem auch hier vorliegenden THz-Spektrum mit vergleichbaren Feldstärken. Der Zeitversatz für die Berechnungen betrug vom ersten Extremum des THz-Feldes zum Beginn der Besetzung dabei etwa  $T_{THz} = +0.2$  ps [52]. Es ist in Abb. 3.12 (a) ein exemplarischer experimenteller THz-Puls eingezeichnet (grau), in diesem Falle jedoch für einen Zeitversatz von  $T_{THz} = -0.1$  ps, vertikal versetzt und mit beliebigen Einheiten.

#### 3.6.2 Experimentelle Ergebnisse

In dem hier durchgeführten FWM-Experiment lassen sich nun genau solche Signaturen im Zeitverlauf verfolgen, wie sie vorhergesagt wurden. Anhand der Pulssequenz (ii) wird eine erneute Messreihe durchgeführt. Der THz-Zeitversatz wird dafür auf  $T_{THz} = -0.1$  ps festgesetzt, während  $\tau$ -Transienten mit 20 fs Zeitschritten bei acht verschiedenen THz-Feldstärken von  $E_{THz} = 3.4$  kV/cm bis  $E_{THz} = 9.0$  kV/cm aufgenommen werden.

Abb. 3.12 (b) zeigt den Verlauf des FWM-Verhältnisses mit THz/ohne THz. Um die Aussagekraft des Signals weiter zu erhöhen, sind mehrere  $\tau$ -Transienten über einen angegebenen Bereich von THz-Feldstärken gemittelt, die eine ähnliche Dynamik aufweisen. Der Fehler (gefüllter Bereich zu den Kurven) wurde nachträglich anhand der absoluten Differenz zum jeweiligen Erwartungswert ab etwa  $\tau > 1$  ps abgeschätzt.

Zunächst ist nur die Dynamik für den Zeitbereich  $\tau > 0.3$  ps dargestellt. Die Abhängigkeit der Dynamik von der Feldstärke wird in dem Zeitbereich davor durch die

Interferenz zwischen  $1s$ - und  $2s+H$ -Zuständen auf eine nicht triviale Weise verändert, welche darüberhinaus keinen einfachen Vergleich mit der Vorhersage der mikroskopischen Theorie erlaubt. Darüberhinaus wurde für diesen Zeitbereich bereits das Schwellverhalten der Signaturen diskutiert. In diesem Vergleich der Dynamik wird sich ausschließlich auf die abklingende  $1s$ -Polarisation beschränkt, was aufgrund der kurzen Dephasierungszeit für die  $2s+H$ -Polarisation die Diskussion vereinfacht.

Sofern die THz-Feldstärke unterhalb von etwa  $4.1 \text{ kV/cm}$  bleibt, ist keine nennenswerte Änderung der Dynamik als Abweichung von eins im Verhältnis des FWM-Signals in Abb. 3.12 (b) (dunkelblau) erkennbar. Dieser Wert für die THz-Feldstärke ist in grundsätzlicher Übereinstimmung mit den Ergebnissen zur Feldabhängigkeit verschiedener FWM-Signaturen im vorangegangenen Kapitel. Da für diesen Referenzfall lediglich zwei  $\tau$ -Transienten gemittelt wurden, ist hier das Rauschen und der entsprechende Fehler für dieses Regime höher.

Ab einer Feldstärke von etwa  $5.5 \text{ kV/cm}$  bis  $6.9 \text{ kV/cm}$  in Abb. 3.12 (b) (rot) kommt es zu einer Abweichung von der ungestörten Dynamik. Zunächst bricht das gestörte FWM-Signal bei etwa  $\tau = 0.67 \text{ ps}$  mit einer Steigung von  $-0.9 \text{ 1/ps}$  ein. Anschließend erholt sich das Verhältnis zügig innerhalb von etwa  $0.2 \text{ ps}$  mit einer Steigung von  $+0.7 \text{ 1/ps}$  auf einen konstanten Wert – für diesen Bereich der Feldstärken auf einen Mittelwert von etwa  $\text{FWM}_{\text{Ratio}} = 0.8$ . Obwohl die Fehlerbalken insbesondere für  $\tau > 1.5 \text{ ps}$  recht groß werden, ist dennoch eine signifikante Abweichung dieses Verlaufs von eins zu erkennen.

Im Bereich maximaler Feldstärken von etwa  $7.6 \text{ kV/cm}$  bis  $9.0 \text{ kV/cm}$  in Abb. 3.12 (b) (hellblau) zeigt sich ein sättigendes, strukturloses Verhalten. Zunächst findet wieder ein sehr tiefer Einbruch im Mittel von etwa  $\text{FWM}_{\text{Ratio}} = 0.3$  bei etwa  $\tau = 0.67 \text{ ps}$  mit einer Steigung von etwa  $-0.7 \text{ 1/ps}$  statt. Im Anschluss daran erkennt man kein abgesetztes Minimum wie im Falle von mittleren Feldstärken, stattdessen zeigt sich ein etwa linearer Verlauf mit einer Steigung von etwa  $+0.2 \text{ 1/ps}$ .

Weiterhin lässt sich aus der THz-induzierten Dynamik feststellen, dass insbesondere für den Verlauf bei mittleren Feldstärken die größte Änderung der Dynamik bis etwa  $\tau = 1 \text{ ps}$  stattfindet. Dies ist dem Zeitversatz des THz-Feldes in Abb. 3.12 (a) (grau) geschuldet, so dass bis zur oben genannten Zeit von  $1 \text{ ps}$  die Amplitude des elektrischen Feldes bereits abgenommen hat. Man kann also in erster Näherung davon ausgehen, dass anschließend keine Manipulation der exzitonischen Polarisation durch das THz-Feld mehr stattfindet.

Der Zeitpunkt  $\tau$  für den ersten Einbruch scheint sich darüberhinaus mit höheren Feldstärken leicht zu früheren Zeiten zu verschieben. Der Unterschied lässt sich al-



lerdings nur auf etwa 0.03 ps beziffern. Vor dem Hintergrund der zeitlichen FWM-Pulslänge von 120 fs kann dieser Unterschied nicht als verlässlich betrachtet werden. Dennoch kann dies im Zusammenhang mit der theoretischen Vorhersage in Abb. 3.12 (a) als Hinweis darauf gesehen werden, dass mit höherer Feldstärke die Polarisation früher abbricht und die Ionisationszeit sich mit der Feldstärke verkürzt. Diesem Indiz wird im nächsten Abschnitt 4 mit einer weiteren Methode nachgegangen, welche besonders sensitiv auf diese Zeitunterschiede ist.

Dieses oben beschriebene Verhalten lässt sich grundsätzlich anhand der Vorhersage aus der mikroskopischen Theorie nachvollziehen (Abb. 3.12 (a)), wenn jeweils das Verhältnis aus gestörter und ungestörter Polarisation gebildet wird. Für mittlere Feldstärken (rot) findet demnach zunächst ein THz-induzierter Transfer aus besetzten  $1s$ -Zuständen in höhere Zustände statt, welche nicht zur hier detektierten  $s$ -artigen Polarisationen beitragen. Anschließend kommt es mit Abklingen des elektrischen THz-Feldes zu einer Rückkehr aus diesen höheren, dunklen Zuständen in den  $1s$ -Zustand, welcher wiederum in diesem Experiment detektiert werden kann. Somit liegt ein reversibler Transfer vor. Durch den experimentell bestätigten konstanten Verlauf der  $FWM_{\text{Ratio}}$  unterhalb von eins kann einerseits der Schluss gezogen werden, dass die zurückgekehrte Polarisation derselben Dephasierung wie die ungestörte Polarisation unterworfen ist, so dass hier tatsächlich die kohärente  $1s$ -Polarisation zurückkehrt. Andererseits gibt das konstante Verhältnis Aufschluss darüber, dass tatsächlich nur ein gewisser Prozentsatz der Polarisation zurückgekehrt ist, wie es auch mit Einschränkung im Vergleich mit dem theoretischen Verlauf (rot) sichtbar ist.

Für die höchsten Feldstärken (Abb. 3.12 (a)+(b) (hellblau)) findet im ersten Schritt erneut ein Transfer aus besetzten  $1s$ -Zuständen in höhere, nicht zum FWM-Signal beitragende Zustände statt. Die Polarisation bricht damit schnell ab, jedoch ohne in die  $1s$ -Zustände zurückzukehren. Durch die dominierende Ionisation wird dieser Transfer daher irreversibel. Der experimentell nachgewiesene Verlauf, welcher nicht konstant, sondern monoton steigend ist, bestätigt, dass keine  $1s$ -Polarisation zurückgekehrt ist. Wird ein von Null verschiedener, konstanter Hintergrundwert des FWM-Signals durch den ungestörten exponentiellen Verlauf dividiert, so lässt sich der monoton steigende Verlauf im Experiment nachvollziehen. Der Vergleich mit dem theoretischen Wert für das Verhältnis zwischen gestörter und ungestörter Polarisation macht an dieser Stelle die experimentellen Unzulänglichkeiten dahingehend deutlich, dass durch die THz-Manipulation selbst bei höchsten Feldstärken nicht die gesamte Polarisation unterdrückt wird, sondern ein steter Hintergrundwert detektiert wird. Zwar zeigt dieser ein deutlich anderes Zeitverhalten, jedoch beschränkt dieser Hintergrundwert den mög-

lichen Kontrast mit und ohne THz und muss in einer quantitativen Diskussion berücksichtigt werden. Für das auf eins normierte FWM-Signal liegt dieser Hintergrundwert bei etwa  $I_{FWM+THz} = 0.015$  und damit knapp über dem noch messbaren Hintergrund des FWM-Signals ohne THz mit  $I_{FWM} = 0.01$ .

Die THz-induzierte Dynamik zeigt sich im drastischen ersten Einbruch, welcher für mittlere Feldstärken eine schnelle Änderung mit  $-0.9$  1/ps bewirkt, während für höchste Feldstärken dies im hier ausgewählten Zeitbereich nur mit  $-0.67$  1/ps stattfindet. Die Rückkehr der 1s-Polarisation im Fall mittlerer Feldstärken geschieht vom Minimum an bis zum konstanten Wert mit  $+0.73$  1/ps. Es ist davon auszugehen, dass für den Fall der höchsten Feldstärke eher Ausläufer der Polarisation bis hin zum Minimum sichtbar sind, während bei mittleren Feldstärken tatsächlich ähnlich der theoretischen Vorhersage die Rückkehr der 1s-Polarisation mit einer geringeren Zeitkonstante als der Transfer aus diesen Zuständen heraus zu erfolgen scheint.

#### 3.6.3 Zwischenfazit

Insgesamt konnte mittels dieses Experiments der Verlauf sowohl eines reversiblen als auch irreversiblen intra-exzitonischen Transfers direkt in der Zeitdomäne nachgewiesen werden. Es bleibt festzustellen, dass in der vorangegangenen Diskussion zum Vergleich mit der in [21] berechneten Theorie weder die Ausbreitungsrichtung des FWM Signals in  $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$  Richtung noch der Einfluss des zweiten Pulses oder gar der Reabsorption berücksichtigt wurde.

Dennoch kann der Vergleich unter folgenden Vereinfachungen gerechtfertigt werden: Es wird angenommen, dass das THz-Feld lediglich auf den ersten FWM-Puls wirkt. Dies lässt sich anhand des zeitlichen Verlaufs des THz-Feldes mit Sicherheit für  $\tau > 1$  ps behaupten. Alleine aus diesem Bereich wird bereits die Tatsache eines reversiblen und irreversiblen Transfers deutlich. Weiterhin werden delta-förmige Pulse angenommen, was den Zusammenhang zwischen zeitaufgelöstem und zeitintegriertem FWM-Signal stark vereinfacht, aber dennoch die fundamentale Dynamik wiedergibt [78]. Da nach Gl. (3.10) nur die Terme des ersten Pulses für  $e^{-i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}}$  berücksichtigt werden müssen [78], kann auch die THz-induzierte Dynamik der Polarisation des ersten Pulses in [21] als Faktor in Gl. (3.10) eingehen und den zeitlichen Verlauf des Signals entsprechend verändern.

Nichtsdestotrotz bleibt diese Argumentation qualitativ zurück hinter einer rigoros entwickelten Vielteilchentheorie, welche erweitert auf THz-Felder auch die höheren Terme der Polarisation für ein realistisches Mehr-Niveau-System bei entsprechenden

Pulsbreiten berücksichtigt.

Um dieses Zwischenfazit abzuschließen, soll der Frage nachgegangen werden, welche neuen Erkenntnisse speziell durch die hier vorgestellten Ergebnisse gewonnen werden. Zunächst ist im Zusammenhang mit den vorangegangenen Studien zur transienten Absorption [9, 17, 108, 33, 21] zu bemerken, dass nicht ohne Weiteres von einer Aufspaltung der  $1s$ -Exziton-Resonanz auf einen reversiblen Transfer, also eine tatsächlich stattfindende Rabi-Oszillation geschlossen werden kann, wie der Vergleich zwischen Transmission und Besetzung in [21] zeigt. Mit der vorliegenden Arbeit konnte dagegen in einer direkten Weise das Regime für einen reversiblen Transfer von einem irreversiblen Transfer unterschieden werden.

Im Zusammenhang mit der direkten Beobachtung von Rabi-Oszillationen in [70] ließ sich in der vorliegenden Arbeit explizit die Reversibilität des kohärenten Transfers nachweisen. Zwar wurde auch in [70] der intraexzitonische Übergang in der Zeitdomäne untersucht, jedoch wurde dabei das treibende und das reemittierte THz-Feld detektiert. Damit bestand eine feste Phasenbeziehung zwischen der Anregung und dem emittierten Feld, welches hinsichtlich der oszillierenden Besetzung in der zentralen Anregungsfläche des THz-Feldes interpretiert wurde. In der vorliegenden Arbeit besteht dagegen keine feste Phasenbeziehung zwischen der Detektion der Polarisation durch die FWM-Pulse und dem treibenden THz-Feld. Daher konnte hier insbesondere die Tatsache nachgewiesen werden, dass trotz eines reversiblen Transfers die Kohärenz für die zurückgekehrte  $1s$ -Polarisation erhalten wurde.

## 3.7 Spektrale Signaturen

Abschließend soll nun eine Besprechung der spektral aufgelösten FWM-Daten erfolgen, welche durch den Einsatz des Spektrometers mit einer (GaIn)As-Detektorzeile zusätzlich für jeden Zeitversatz und jede THz-Feldstärke zur Verfügung stehen. Es muss vorbemerkt werden, dass nur wenige theoretische und experimentelle Arbeiten auch die spektralen Eigenschaften des FWM-Signals berücksichtigen [16, 56, 76]. Daher wird im folgenden Abschnitt ein phänomenologischer Ansatz verfolgt. Dennoch lassen sich Signaturen identifizieren, welche konsistent mit vorangegangenen Studien sind.

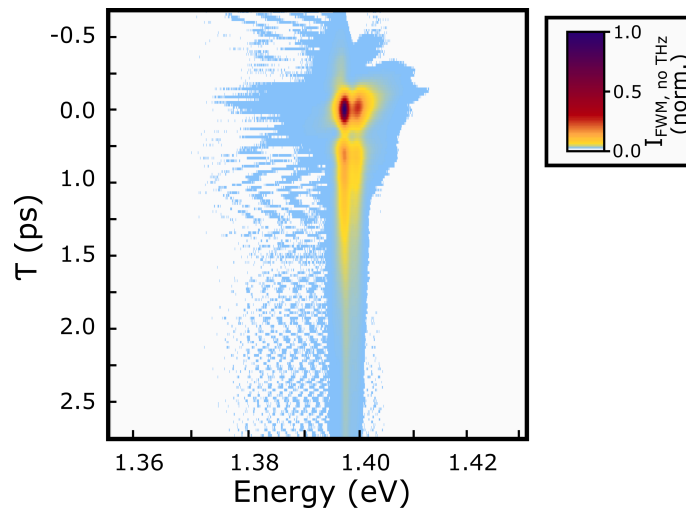
Zunächst sollen die spektralen Eigenschaften des ungestörten FWM-Signals behandelt werden, bevor im zweiten Teil des Abschnitts auf die THz-induzierten spektralen Änderungen eingegangen wird. Dazu wird in einem Rückgriff auf die lineare Absorption des Quantenfilmsystems in Kap. 3.3.1 die dortige Abb. 3.4 erneut besprochen.

Zusätzlich zur linearen Absorption ist dort das spektral aufgelöste FWM-Signal in beliebigen Einheiten aufgetragen. Zur Zeitverzögerung  $\tau = 0$  ps wurde das ungestörte FWM-Spektrum (dunkelrot) aufgenommen, während unter Einstrahlung des THz-Feldes zu  $T_{THz} = -0.1$  ps das FWM-Spektrum mit einem Faktor zwei multipliziert (rot) dargestellt ist.

Vergleicht man die ungestörten FWM-Spektren mit den spektral aufgelösten Daten aus Abb. 14 in Ref. [56], so treten dort keine Modulationen des Signals des 20-fachen (GaIn)As-Quantenfilms auf. Dagegen kann man in Abb. 2 aus Ref. [16] ebenso deutlich wie in den hier präsentierten Daten eine spektrale Modulation des abgebeugten FWM-Signals erkennen. In der dortigen Arbeit wurde ebenso wie hier ein 50-facher (GaIn)As-Quantenfilm verwendet. Zusammen mit der Tatsache, dass der Einbruch im abgestrahlten FWM-Spektrum jeweils um die exzitonische Resonanz der linearen Absorption zentriert ist, legt dies den Schluss nahe, dass aufgrund der hohen Zahl der Quantenfilme eine Reabsorption des abgestrahlten FWM-Signals stattfindet. Dabei ist zu bemerken, dass die über das gesamte Spektrum integrierten Daten das Schwebungsverhalten und die Dephasierungszeit im Vergleich mit [56] korrekt wiedergeben. Eine weitere Diskussion von Propagationseffekten findet sich ebenso in [56], wobei eine Änderung der Form mit zunehmender Anzahl an Quantenfilmen zwar sichtbar wird, die erste Quantenschwebung aber stets deutlich abgesetzt hervortritt. In der weiteren Diskussion wird daher lediglich bezüglich der THz-induzierten Änderung darauf Bezug genommen.

Der spektrale Datensatz der ungestörten FWM-Spektren als Funktion von  $\tau$  ist in Falschfarben kodiert in Abb. 3.13 zu sehen. Dabei wurden die Intensitätswerte auf das globale Maximum normiert. Neben der bekannten Doppelstruktur, die sich spektral unterhalb von 1.4 eV über den gesamten Zeitbereich erstreckt, erscheint das spektral vollständig abgesetzte Maximum (rot) und das darauffolgende exponentiell abklingende Signal (gelb). Auch hier ist analog zu [56] eine spektrale Verbreiterung um die Zeitnull und eine abnehmende spektrale Breite für spätere Verzögerungszeiten  $\tau$  zu erkennen, welche durch Coulomb-Effekte der Ladungsträgerverteilung zustande kommen [56]. In dieser Referenz ist ebenso die Diskussion über die Abwesenheit der Signale zur Energie der  $2s+H$ -Exziton-Resonanz enthalten.

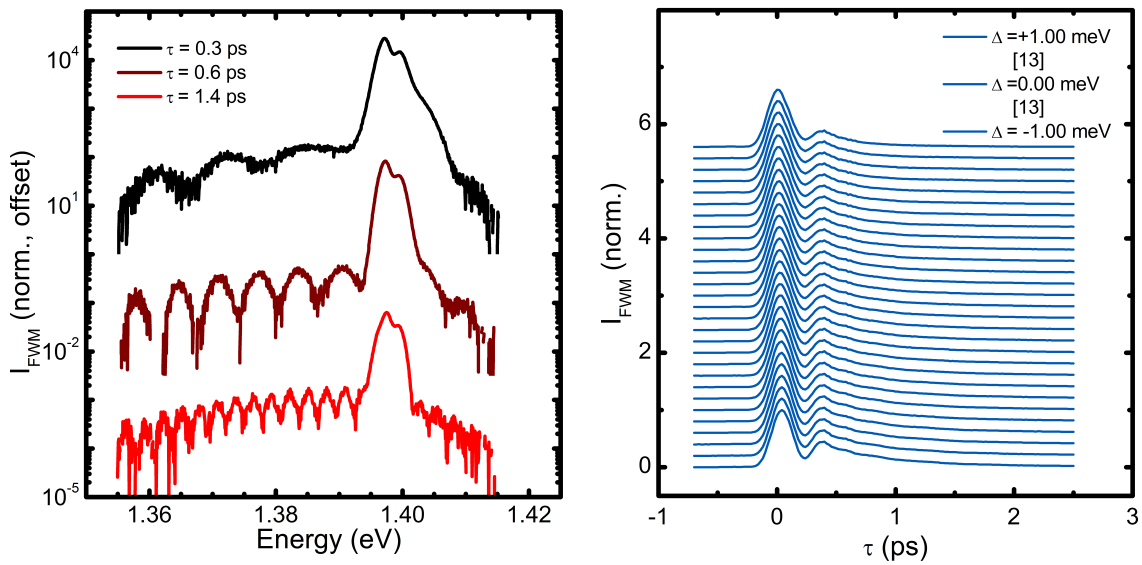
Um sehr kleine spektrale Änderungen in Abb. 3.13 sichtbar zu machen, wurde ein schmaler blauer Bereich in die Farbzuordnung eingefügt. Auf diese Weise werden oszillatorische Strukturen sichtbar, welche mit der Zeit  $\tau$  variieren. Dabei ist um die Zeitnull herum eine solche Struktur nicht zu sehen, während ausgehend von dort in positive und negative Zeitrichtung die Oszillationen erscheinen. Dabei nimmt der



**Abb. 3.13:** Darstellung der ungestörten FWM-Intensität als Spektren gegen die Zeitverzögerung  $\tau$ . Die Intensitäten wurden insgesamt auf den maximalen Wert normiert und als Falschfarben entsprechend der Legende kodiert. Man sieht zur Zeitnull ein Maximum (rot), welches durch Reabsorption aufgrund der hohen Zahl der Quantenfilme moduliert ist. Davon abgesetzt setzt sich der exponentielle Verlauf mit  $\tau$  fort (gelb). Mit sehr geringer Intensität (hellblau) erkennt man oszillatorische Strukturen, deren energetischer Abstand zur Zeitnull hin zunimmt.

energetische Abstand mit zunehmendem  $\tau$  ab. Gleichzeitig folgen die Maxima der Oszillationen keiner Linie, vielmehr scheint es zu Phasensprüngen in der oszillatorischen Struktur zu kommen.

Exemplarisch wurden für einzelne Zeitschritte  $\tau = 0.3, 0.6$  und  $1.4$  ps Spektren logarithmisch in Abb. 3.14 (links) aufgetragen (schwarz, dunkelrot, rot respektive). Ein gleichmäßiger vertikaler Versatz dient dabei der besseren Übersicht. Neben dem bereits erwähnten modulierten Maximum und der Abnahme der spektralen Breite wird hier die oszillatorische Struktur mit abnehmenden energetischen Abständen für einen zunehmenden Zeitversatz  $\tau$  sichtbar. Dabei erstreckt sich die Regelmäßigkeit über einen weiten spektralen Bereich. Eine mögliche, aber keine zwingende Erklärung für dieses Phänomen, könnte die Manifestierung kohärenter Oszillationen in einem spektral aufgelösten FWM-Experiment sein. Zwar wurde nach aktuellem Stand bisher nicht explizit davon berichtet, es erscheint jedoch nach Rekapitulation der Beschreibung des Experiments im Bild des transienten Gitter in Kap. 3.2.2 plausibel. Eine allgemeinere Einführung erfolgt in Kap. 4.2.1 in der Terminologie eines Zwei-Puls Anrege-Abfrage-Experiments. Die erzeugte Polarisation des zeitlich zuerst eintreffenden Pulses bricht instantan beim Eintreffen des zweiten nachfolgenden Pulses ab, was zur Beobachtung spektraler Oszillationen mit einer Periode entsprechend dem zeitlichen Abstand beider Pulse zueinander führt. Interessant hierbei ist, dass diese Signatu-



**Abb. 3.14:** Auftragung einzelner Spektren (links) und Transienten (rechts) der ungestörten FWM-Intensität zur zweidimensionalen Darstellung in Abb. 3.13.

**Links:** Intensität der insgesamt normierten FWM-Spektren zu  $\tau = 0.3, 0.6$  und  $1.4$  ps in logarithmischer Darstellung. Die Spektren wurden im gleichmäßigen Abstand vertikal versetzt. Neben der abnehmenden Breite des FWM-Signals mit zunehmendem  $\tau$  wird die veränderliche oszillatorische Struktur sichtbar.

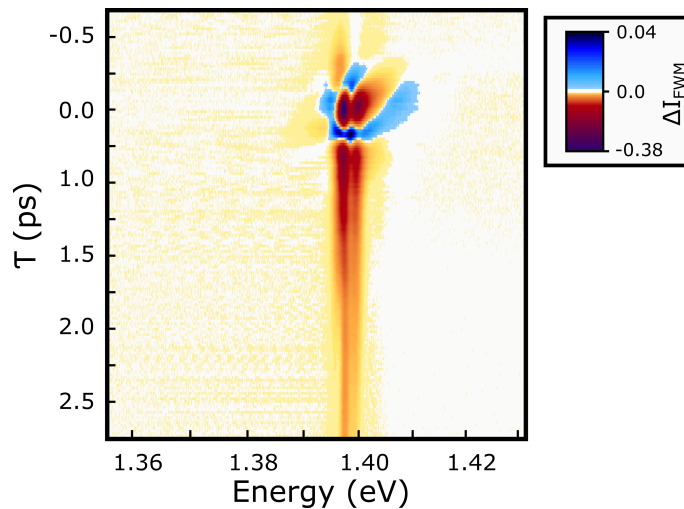
**Rechts:** Jeweils einzeln normierte FWM- $\tau$ -Transienten im energetischen Abstand von  $0.07$  meV mit einer Verstimmung zur Resonanz von  $\Delta = 1.3997$  meV  $- E$ . Der gleichmäßige Einbruch über das gesamte Spektrum bestätigt, dass es sich nicht um eine Polarisationsinterferenz sondern echte Quantenschwebungen der exzitonischen Niveaus handelt [76].

ren in Richtung des abgebeugten FWM-Signals erfolgen. In einem Anrege-Abfrage-Experiment werden die Signaturen in Transmissionsrichtung  $\mathbf{k}_1$  eines einfallenden Pulses detektiert, wobei jedoch keine Phasensprünge der Oszillationen beobachtet werden. Es wäre denkbar, dass die Abstrahlung der Oszillationen in Richtung  $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$  ebenso wie ein Teil des zweiten FWM-Pulses an dem transienten Gitter abgebeugt wird. Dies könnte dann einen Grund dafür liefern, dass zufällig erscheinende Phasensprünge zwischen den Zeitschritten durch unzureichende interferometrische Stabilität zwischen den Laufwegen beider FWM-Pulse erfolgen.

Zum Abschluss der Diskussion ungestörter Spektren wurden in Abb. 3.14 (rechts) Transienten um die Resonanz herum aufgetragen mit  $\Delta = 1.3997 \text{ meV} - E$  in einem energetischen Abstand von  $0.07 \text{ meV}$ . Die  $\tau$ -Transienten wurden auf den jeweiligen Maximalwert normiert und gleichmäßig vertikal versetzt aufgetragen. Es lässt sich nach [76] auf diese Weise unterscheiden, ob die beobachtete Modulation des FWM-Signals Quantenschwebungen oder eine Interferenz der Polarisationen ungekoppelter Zwei-Niveau-Systeme zur Ursache hat. In letzterem Fall kann nachgewiesen werden, dass für ungekoppelte Zwei-Niveau-Systeme die zeitliche Modulation sich nicht spektral gleichmäßig fortsetzt (Abb. 1 in Ref. [76]). In diesem Fall existieren energetische Verstimmungen  $\Delta = \hbar\omega_1 - E$ , deren zeitlicher Verlauf mit  $\tau$  nicht durch Oszillationen bestimmt ist. Hingegen werden Quantenschwebungen eines gekoppelten Mehr-Niveau-Systems spektral durchgängig von Oszillationen bestimmt. Die durchgängigen Oszillationen in Abb. 3.14 (rechts) stehen damit wie erwartet für die echten Quantenschwebungen des gekoppelten intra-exzitonischen Mehr-Niveau-Systems.

Im zweiten Schritt werden nun THz-induzierte Änderungen der spektralen Signaturen diskutiert. Es ist dazu instruktiv, die Differenz aus gestörten und ungestörten Spektren  $\Delta I_{FWM} = I_{FWM \text{ mit THz}} - I_{FWM \text{ ohne THz}}$  nach Gl. (3.6) zu bilden. Diese Größe kann analog zur Diskussion der differentiellen Absorption als  $\Delta\alpha L$  in Kap. 5.2.3 diskutiert werden. Dabei werden jedoch aufgrund der stark veränderlichen Signalstärke der ungestörten Referenz die Verhältnisse der THz-induzierten Änderung schlecht vergleichbar.

In Abb. 3.15 ist diese Größe in Abhängigkeit der Zeitverzögerung  $\tau$  in Falschfarben kodiert dargestellt, die Größe der Änderung bezieht sich dabei auf die Normierung in Abb. 3.13. Es wurde über alle in Abb. 3.8 (c) aufgetragenen Verzögerungszeiten  $T_{THz}$  gemittelt, wobei hinzuzufügen ist, dass auf diese Weise die Änderungen um die Zeitnull herum aufgrund der höheren Zahl der Datensätze mit geringer Verzögerung  $T_{THz}$  dort überbetont werden. Dennoch können anhand dieser Auftragung wesentliche Signaturen abgeleitet werden. Neben der Reduzierung des FWM-Signals für spätere



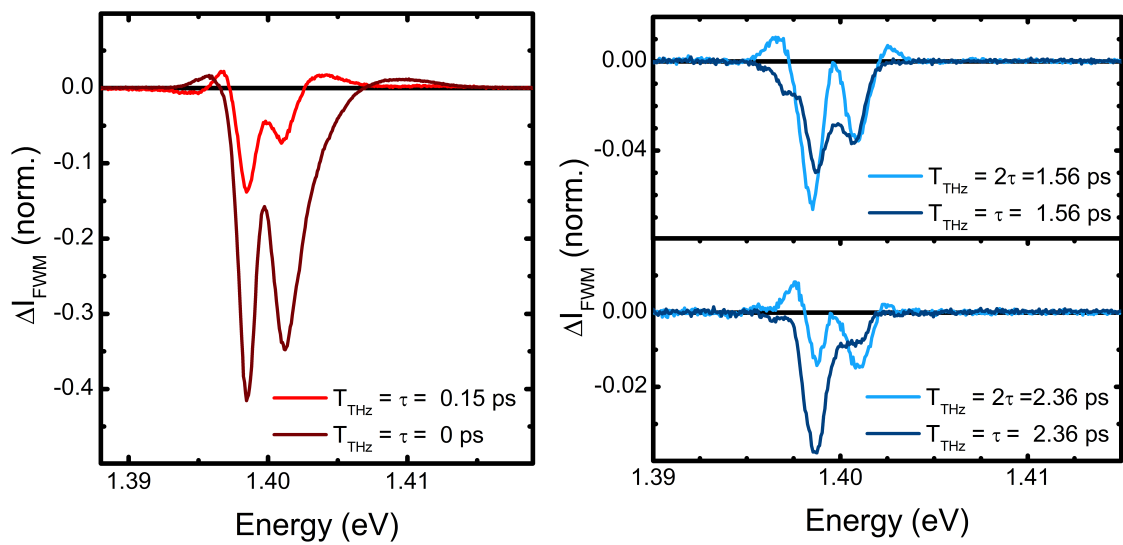
**Abb. 3.15:** THz-induzierte Änderungen der FWM-Spektren aufgetragen als Differenz  $\Delta I_{FWM} = I_{FWM \text{ mit THz}} - I_{FWM \text{ ohne THz}}$  gegen  $\tau$  in Falschfarben kodiert. Dabei wurden über alle in Abb. 3.8 (c) aufgetragenen Verzögerungszeiten  $T_{THz}$  gemittelt. Zur Zeitnull lässt sich auf diese Weise – analog der Interpretation von  $\Delta\alpha L$ -Spektren (vgl. Kap. 5.2.3) – eine Verbreiterung (blau-rot-blau) erkennen (vgl. auch Abb. 3.4 und 3.16).

Zeitverzögerungen  $\tau$  (rot, orange) und des abwesenden Einbruchs (dunkelblau) kann an der Zeitnull selbst eine spektrale Signatur abgelesen werden. Für  $\tau = 0$  ergibt die differentielle Intensität den spektralen Verlauf von niederenergetisch leicht positiv (hellblau), an der Resonanzenergie negativ (dunkelrot) und energetisch oberhalb wieder leicht positiv (hellblau). Dies entspricht einer  $\Delta\alpha L$ -Signatur der Verbreiterung. Eine Betrachtung beider FWM-Spektren aus Abb. 3.4 illustriert diesen Zusammenhang für  $T_{THz} = -0.1$  ps explizit. Dort wird die reduzierte FWM-Intensität um etwa einen Faktor zwei deutlich, aber ebenso ist eine leichte Verbreiterung unter Einstrahlung des THz-Feldes sichtbar. Dies zeigt sich im zweimaligen Nulldurchgang der differentiellen Größe  $\Delta I_{FWM}$ , was in Abb. 3.16 (links) einzeln für zwei Zeiten  $T_{THz} = \tau = 0$  und 0.15 ps (dunkelrot und rot) dargestellt ist.

Nach den FWM-Untersuchungen unter statischem elektrischem Feld in [106] kann davon ausgegangen werden, dass die Ionisation unter externem elektrischem Feld eine verkürzte Dephasierungszeit bewirkt, was sich spektral als eine Verbreiterung des abgebeugten FWM-Signals niederschlägt.

Für ein veränderliches elektrisches Feld wie in diesem Fall der etwa 1 ps lange THz-Puls ist es daher interessant, die Effekte der Verbreiterung zeitlich zu untersuchen. Für kleine Verzögerungszeiten wie in Abb. 3.16 (links) stimmt der Zeitpunkt der Verbreiterung gut mit  $T_{THz} = \tau$  überein. Größere Verzögerungszeiten (rechts) zeigen jedoch analog zur Diskussion des Photonenechos in Kap. 3.4.2 ein abweichendes Verhalten.





**Abb. 3.16:** Auftragung einzelner FWM-Spektren als  $\Delta I_{FWM} = I_{FWM} \text{ mit THz} - I_{FWM} \text{ ohne THz}$  zum Datensatz der zweidimensionalen Darstellung in Abb. 3.13 (c), normiert auf das globale Maximum  $I_{FWM}$  ohne THz-Feld.

**Links:** Für kleine Verzögerungszeiten mit festem  $T_{THz} = \tau = 0$  und 0.15 ps (rot und dunkelrot) kommt es neben einer Reduktion des Signals mit modulierter Intensität um die Resonanzenergie zu einer leichten spektralen Verbreiterung.

**Rechts:** Für spätere Verzögerungszeiten zu  $T_{THz} = 1.56$  ps (oben) und  $T_{THz} = 2.36$  ps (unten) lässt sich zunächst eine einfache Signalabnahme zu  $T_{THz} = \tau$  (dunkelblau) beobachten (Situation (iv), Abb. 3.8 (d)). Für  $T_{THz} = 2\tau$  (hellblau) kommt es jedoch zu einer leichten Verbreiterung der Spektren (Situation (v), Abb. 3.8 (d)).

Man erkennt nach wie vor ein reduziertes FWM-Signal für zwei ausgewählte Zeitversätze  $T_{THz} = \tau$  (dunkelblau), ein Nulldurchgang energetisch unterhalb und oberhalb des Einbruchs ist jedoch nicht vorhanden. Diese Verbreiterung tritt erst für die Zeitversätze unter  $T_{THz} = 2\tau$  (hellblau) auf.

Damit kann in diesem zeitaufgelösten Experiment erstmals gezeigt werden, dass für die spektrale Verbreiterung durch ein elektrisches Feld allein der Zeitpunkt der Abstrahlung der FWM-Polarisation entscheidend ist. Im Gegensatz dazu kann die Dynamik des FWM-Signals durch das eingestrahlte Feld zu jedem Zeitpunkt zuvor verändert werden, so dass zu einem späteren Zeitpunkt ein vermindertes FWM-Signal erscheint. Die in [106] beschriebene spektrale Verbreiterung tritt jedoch nur auf, falls zum Zeitpunkt der Abstrahlung des FWM-Signals ein elektrisches Feld die instantane makroskopische Dephasierung manipuliert.

Die erfassten Daten weisen eine Reihe weiterer spektraler Signaturen auf, welche interessante dynamische Eigenschaften besitzen. Neben der deutlich erkennbaren Verbreiterung lassen sich weitere Signaturen jedoch schwerlich ohne eine Theorie interpretieren, die neben dem zeitlichen Verlauf auch die spektralen Eigenschaften des FWM-Signals unter veränderlichem elektrischen Feld berücksichtigt.

Es soll abschließend diskutiert werden, inwiefern die im FWM-Signal sichtbare Reabsorption auf die THz-induzierten Signaturen einwirkt. Aus den vorangegangenen Experimenten zur transienten Absorption [21, 63] ist bekannt, dass sich in der Absorption unter THz-Feldern eine Verbreiterung, eine Aufspaltung und ein Ausbleichen in der Linienform der 1s-Exziton-Resonanz zeigt. Da die Aufspaltung nur eine minimale Änderung darstellt, sollen die diesbezüglichen Konsequenzen nicht weiter berücksichtigt werden.

Für die in diesem Abschnitt diskutierte Signatur der THz-induzierten Verbreiterung kann folgendermaßen argumentiert werden: Falls die Reabsorption die Signatur dominiert, so sollte die THz-induzierte Änderung, wie durch die eingangs erwähnten Experimente gezeigt, eine energetisch verbreiterte Reabsorption hervorrufen. Dies würde für das auf diese Weise maskierte ursprüngliche FWM-Signal im Endresultat jedoch eine energetische Verschmälerung im Vergleich zum ungestörten FWM-Signal hervorrufen. Im Experiment wird jedoch die erwartete Verbreiterung mit eingestrahlttem THz-Feld beobachtet, weshalb geschlossen werden kann, dass die spektralen Signaturen nicht von der Reabsorption dominiert werden.

Die in den vorangegangenen Abschnitten diskutierte FWM-Dynamik unter THz-Feldern kann auf ähnliche Weise gerechtfertigt werden. Man beobachtet mit THz-Feldern eine Reduktion des FWM-Signals zum Zeitpunkt der Einstrahlung und eine anschließend

veränderte Dynamik, die sich ebenso durch ein reduziertes FWM-Signal auszeichnet. Für die Reabsorption würde man unter THz-Einstrahlung ein Ausbleichen erwarten. Konsequenterweise würde dies in der Signalamplitude des so maskierten FWM-Signals eine Vergrößerung der Amplitude bewirken. Da abermals im Experiment das Gegenteil beobachtet wird, kann auch für die FWM-Signalamplitude in der Dynamik geschlossen werden, dass sie nicht von der Reabsorption dominiert ist.

## 3.8 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde erstmals eine experimentelle Kombination eines resonanten nahinfraroten FWM-Experiments unter der Einwirkung starker THz-Pulse vorgestellt. Nach einer Untersuchung des Parameterraums konnte zunächst der ungestörte zeitliche Verlauf gegen vorangegangene Experimente verifiziert werden [56]. Anschließend wurden die wesentlichen Merkmale dieser speziellen experimentellen Kombination hinsichtlich der Pulssequenz anhand einer zweidimensionalen Darstellung beider experimenteller Zeitverzögerungen erarbeitet.

Es wurden im weiteren Verlauf verschiedene Signaturen in der FWM-Dynamik besprochen, welche durch verschiedene Zusammensetzung der  $1s$ - und höheren  $s$ -artigen Zustände gekennzeichnet sind. Konsistent mit dem Bild der Feldionisation konnte für Signaturen der energetisch höher liegenden exzitonischen  $s$ -artigen Zustände eine geringere Schwelle mit veränderlicher THz-Feldstärke im Vergleich zu den energetisch tiefsten  $1s$ -Signaturen nachgewiesen werden.

Im Hauptteil konnte schließlich erstmals in der zeitlichen Domäne direkt ein reversibler Transfer beobachtet werden. Signaturen der Ionisation als irreversibler Transfer zeigten sich entsprechend bei den höchsten Feldstärken des Experiments. Da eine THz-induzierte spektrale Aufspaltung der  $1s$ -Resonanz nicht zwangsweise mit einem reversiblen Transfer verbunden ist, gewinnt die Beobachtung des reversiblen Transfers der  $1s$ -Population in der Zeitdomäne an Relevanz. In Übereinstimmung mit einer verwandten mikroskopischen Theorie [21] konnte ebenso der Unterschied zwischen mehreren Rabi-Oszillationen in einem System mit Zwei-Niveau-Charakter zu dem hier vorliegenden Fall eines einzelnen reversiblen Transfers in der Zeitdomäne bestätigt werden, was die Bedeutung der Beschreibung der exzitonischen Polarisation als Viel-Niveau-System unterstreicht. Darüberhinaus konnte die Erhaltung der Kohärenz während des reversiblen Transfers erstmals illustriert werden.

Zuletzt wurde die Änderung spektraler Signaturen im FWM-Signal diskutiert. Dabei konnte gezeigt werden, dass als erwartete Konsequenz der Feldionisation eine

spektrale Verbreiterung des FWM-Signals nur zum Zeitpunkt der Abstrahlung der makroskopischen Polarisation auftritt.

Mögliche weiterführende Anwendungen dieser Methodik ergeben sich beispielsweise aus der Untersuchung anderer Halbleitersysteme und des Schwellverhaltens für höhere Zustände. Interessant – nicht nur im Zusammenhang mit anderen Materialsystemen, sondern auch mit einem variablen THz-Spektrum – wäre die genaue Quantifizierung der Reversibilität unter verschiedenen Anregungszuständen. Diese Methodik könnte auf diese Weise eine rein experimentelle Aussage zum Grad der Reversibilität liefern.

Insgesamt bleibt jedoch festzustellen, dass eine Vielzahl von Signaturen, sei es in der genauen Dynamik oder auch in der spektralen Form des FWM-Signals nur mithilfe einer eigens entwickelten mikroskopischen Theorie bestätigt werden können. Ungeachtet der Tatsache, dass aus dieser experimentellen Kombination mithilfe der Theorie weiterführende Erkenntnisse zur Licht-Materie-Wechselwirkung gewonnen werden könnten, ist dennoch auf der experimentellen Grundlage das Verständnis des THz-induzierten intra-exzitonischen Transfers erweitert worden.

# 4 Kohärente Oszillationen durch irreversiblen Transfer

## 4.1 Einführung

Nachdem der prinzipielle zeitliche Verlauf der Polarisierung für einen reversiblen und irreversiblen intraexzitonischen Transfer bestimmt werden konnte, sollen im folgenden Kapitel weitere Eigenschaften untersucht werden. Die mikroskopische Theorie in [21] sagt für den Fall eines Quantenfilmsystems mit steigender THz-Feldstärke eine kürzere Abbruchzeit der Polarisierung voraus (vgl. Abb. 3.12 (a)). Zwar konnten im vorangegangenen Kapitel die Signaturen des reversiblen und irreversiblen Transfers bestimmt werden, jedoch ist die zeitliche Auflösung der dort verwendeten Methode zu begrenzt um einen zeitlichen Versatz von unter 100 fs zeitlich aufzulösen.

Ein plötzlicher Abbruch der Polarisierung durch einen THz-induzierten Transfer sollte jedoch eine charakteristische Abstrahlung in der spektralen Domäne nach sich ziehen. Diese charakteristische, spektrale Abstrahlung, auch kohärente Oszillationen genannt, wurde theoretisch in [58] für die Methodik der Anrege-Abfrage-Messungen beschrieben und beispielsweise in [61] an Germanium-Quantenfilmen als Methode zur Ermittlung der Dephasierungszeiten eingesetzt.

Allerdings wurde von diesem Effekt in den bisherigen Arbeiten [9, 17, 108, 33] zur transienten Absorption unter starken THz-Feldern nicht berichtet. Dabei wurden zwei Arbeiten [21, 63] zur transienten Absorption mit einem prinzipiell verwandten Aufbau innerhalb der Arbeitsgruppe durchgeführt.

Im folgenden Kapitel wird der Fall des GaAs-Volumenhalbleiters diskutiert, bei dem THz-induzierte kohärente Oszillationen erstmalig beobachtet werden konnten.

## 4.2 Methodik

### 4.2.1 Kohärente Oszillationen

Die theoretischen Beschreibungen in [58] behandeln eine Vielzahl an optischen Nicht-linearitäten in Halbleitern, wie sie in Anrege-Abfrage-Experimenten sichtbar werden. Die Grundlagen der Anrege-Abfrage-Methodik werden in Kap. 5.2.3 diskutiert.

Trifft der Abfrage-Puls erheblich vor dem Anrege-Puls auf der Probe auf, so wird dieser Zeitversatz als negativ definiert. In diesem Regime des negativen Zeitversatzes kann es zu oszillatorischen Signaturen in der Änderung der Absorption kommen, die jedoch verschiedene Ursachen aufweisen können [58].

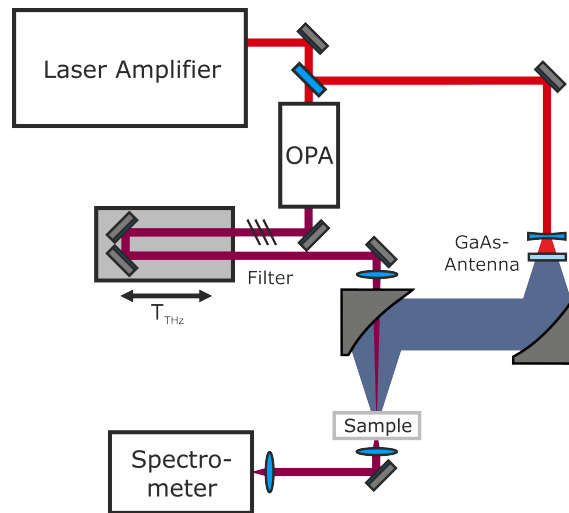
Man unterscheidet oszillatorische Signaturen, die um die Energie des eingestrahlten Anrege-Pulses herum auftreten, von solchen, die um die Energie einer exzitoni-schen Resonanz auftreten. Für eine Anregung an der exzitoni-schen Resonanz kommt es für gewöhnlich zu einer Verschiebung der Resonanz aufgrund des elektrischen Fel-des der eingestrahlten Anregung, dem sogenannten dynamischen Stark-Effekt. Diese Verschiebung um die Zeitnull und die Oszillationen für negative Zeiten gehen dabei ineinander über [58].

Schließlich existiert der Fall der nicht-resonanten Anregung, bei der die Anregungs-energie weit entfernt von der Resonanz liegt und eine erhebliche Menge an Ladungs-trägern generiert werden kann. Aufgrund dieser sprunghaft erhöhten Zahl an La-dungsträgern bricht die Polarisierung durch Coulomb-Streuung quasi instantan ab. Dies manifestiert sich spektral als kohärente Oszillationen. Schematisch ist dieser Zusam-menhang zwischen Abbruchzeit und Periode der Oszillation über die Fourier-Transfor-mation in Abb. 4.7 (unten) gezeigt, was in Kap. 4.5 anhand des Experiments näher betrachtet wird.

In [39] werden kohärente Oszillationen für den Fall einer dünnen ( $0.5 \mu\text{m}$ ) GaAs-Volumenprobe diskutiert. Jede Störung der Kohärenz der induzierten Polarisierung kann laut [39] als Ursache für kohärente Oszillationen in Betracht gezogen werden. Ein solcher Abbruch der Polarisierung kann daher auch von einem starken THz-Feld verur-sacht werden, der zu einem irreversiblen Transfer oder einer Ionisation der kohären-ten Exzitonen führt. Letzteres wurde im vorangegangenen Kapitel mit der Methode des Vier-Wellen-Mischens explizit bestätigt.

### 4.2.2 Transiente Absorption

Die Methode der transienten Absorption ist grundlegend verwandt mit einem Anrege-Abfrage-Experiment (vgl. Kap. 5.2.3). Als transiente Absorption soll im Folgenden ein Experiment verstanden werden, bei dem ein schwacher Puls auf die Probe trifft, gefolgt von einem starken THz-Puls. Das optische Spektrum des schwachen Pulses bildet



**Abb. 4.1:** Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus zur transienten Absorption. Durch starke THz-Pulse, welche in einer photoleitenden Antenne erzeugt werden (vgl. Kap. 3.2.1), kann die Polarisation manipuliert werden. Letztere wird durch stark abgeschwächte, resonante Pulse des OPAs im Materialsystem induziert. Die Transmission wird im Spektrometer erfasst.

als Funktion des Zeitversatzes zwischen beiden Pulsen die Messgröße  $\alpha L$ . Weiterhin kann das elektrische Feld des THz-Pulses variiert werden, so dass insgesamt drei Parameter  $\alpha L(E, T_{THz}, E_{THz})$  zur Verfügung stehen. Der schwache optische Puls – zumeist resonant zur fundamentalen Absorption – ist einerseits als Abfrage und andererseits als Anregung zu verstehen, da der THz-Puls ohne vorhergehende Erzeugung einer Polarisation keine Änderung der Zustände bewirken könnte.

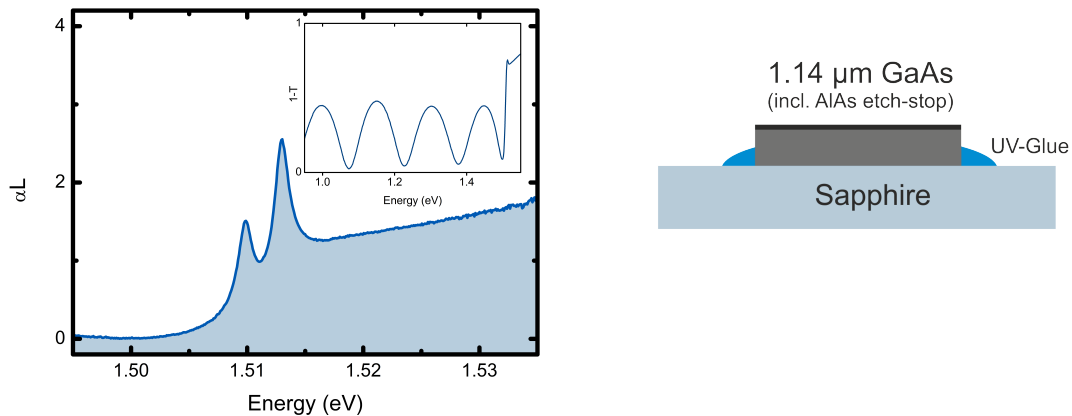
Der experimentelle Aufbau nach Abb. 4.1 wurde am regenerativen Verstärker Spectra-Physics Modell Spitfire umgesetzt wie im Kap. 3.2 näher spezifiziert. Dabei erfolgt die Erzeugung starker THz-Pulse analog zu Kap. 3.2.1. Der optisch-parametrische Verstärker (OPA) wurde resonant zur fundamentalen Absorption bei  $E_G = 1.51$  eV mittels Verdopplung des sogenannten Idlers eingestellt. Da sich diese Energie in der Nähe der fundamentalen Energie des regenerativen Verstärkers befindet, kann wie in verwandten Aufbauten [21, 63] nicht die Saphir-Weißlichtquelle zur transienten Absorption verwendet werden. Um sicherzustellen, dass die Absorption im linearen Regime stattfindet, werden entsprechende Filter zur Leistungsabschwächung eingesetzt, so

dass die Absorption nicht durch sogenanntes „Excitation Induced Dephasing“ (EID, vgl. Kap. 3.3.2) verbreitert ist. Die Detektion der Spektren erfolgt analog wie in Kap. 3.2.3 beschrieben.

## 4.3 Experimentelle Charakterisierung

### 4.3.1 Probenstruktur

Das Ausgangsmaterial besteht aus einer dünnen Schicht GaAs, gefolgt von einer Schicht AlAs, epitaktisch abgeschieden auf einem GaAs-Substrat [12]. Mittels eines



**Abb. 4.2: Links:** Lineare Absorption des GaAs-Volumenhalbleiters im Aufbau zur transienten Absorption bei  $T = 10$  K.

**Verkl. Darstellung:** Fabry-Perot-Interferenz unterhalb der fundamentalen Absorption, im Aufbau wie in Kap. 5.2.1 beschrieben bei  $T = 10$  K gemessen.

**Rechts:** Präparierte GaAs-Probe auf Saphir-Glas.

Glasklebstoffs, dessen Aushärtung mit UV-Licht erfolgt, wurde die Schicht auf einem Saphirglas befestigt und durch mechanisches Polieren ausgedünnt. Im letzten Schritt wurde in einem Ätz-Verfahren das Substrat bis hin zur AlAs Schicht entfernt (Abb. 4.2 rechts). Die Prozessierung der Probe wurde von B. Heinen durchgeführt.

Durch den Brechungsindexunterschied an den Übergängen kommt es zur Ausprägung von Fabry-Perot-Interferenzen unterhalb der fundamentalen Absorption. Eine spektral erweiterte Aufnahme ist in Abb. 4.2 (links, verkl. Darstellung) dargestellt. Aus dem energetischen Abstand lässt sich die Gesamtlänge bestimmen:

$$\Delta E = h\Delta\nu = \frac{hc}{2nL} \quad (4.1)$$

Mit  $n = 3.55$  erhält man für die gesamte Materialdicke von GaAs und AlAs eine Länge



von  $L = (1.14 \pm 0.08) \mu\text{m}$ . Die im weiteren Verlauf diskutierte Absorption wird entsprechend von Photonen dominiert, die nach  $nL/c_0 = 13.5 \text{ fs}$  durch das Material getreten sind. Dies rechtfertigt die Vernachlässigung der Mehrfachreflexe bei der folgende Besprechung der Dynamik auf einer Zeitskala größer als 100 fs.

Eine ungestörte Absorption findet sich in Abb. 4.2 (links) wie sie im Aufbau zur transienten Absorption vermessen wurde. Man beobachtet zwei getrennte exzitonische Resonanzen bei 1.510 eV und 1.513 eV und eine anschließend strukturlose Absorption, charakteristisch für Volumenhalbleiter.

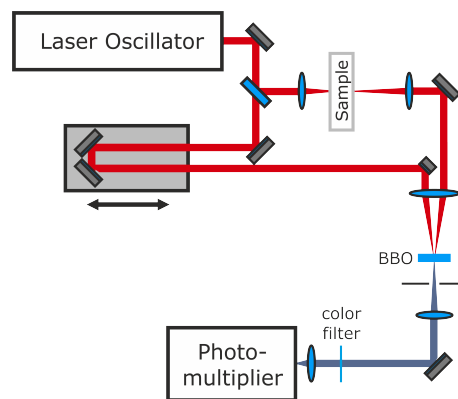
Der unterschiedliche thermische Ausdehnungskoeffizient von GaAs und Saphir kann für tiefe Temperaturen bei  $T = 10 \text{ K}$  zu einer Verspannung der dünnen Schicht führen [102]. Im Speziellen führt die biaxiale Verspannung zu einer leichten Reduktion der Bandlücke [92]. Die Entartung für die obersten als Leichtloch (lh) und Schwerloch (hh) bezeichneten Valenzbänder am  $\Gamma$ -Punkt wird dabei aufgehoben. Unter Vernachlässigung anderer Richtungen als der des E-Feldes in der Ebene der Verspannung, liegt das Schwerloch-Band energetisch über dem Leichtloch-Band [92].

Zusammen mit der geringeren Exzitonen-Bindungsenergie für die Schwerloch-Resonanz entsprechen daher die beiden Übergänge der hh-Exzitonresonanz  $E_{hh} = 1.510 \text{ eV}$  und lh-Exzitonresonanz  $E_{lh} = 1.513 \text{ eV}$ .

#### 4.3.2 Detektion der Polarisation durch Aufkonversion

Zur erweiterten Charakterisierung der Probe soll zusätzlich mit einer anderen experimentellen Technik die induzierte Polarisation explizit detektiert werden. Dies gelingt mithilfe einer als Aufkonversion bekannten Technik, welche schematisch in Abb. 4.3 gezeigt ist.

Mithilfe dieser Technik konnte beispielsweise der direkte Nachweis von Polariton-Schwebungen in  $\text{Cu}_2\text{O}$  erbracht werden [24]. Vereinfacht gesprochen ist dies ein Autokorrelationsaufbau, bei dem ein Teil der Pulse zusätzlich die zu untersuchende Probe durchlaufen. Dabei wird mit kurzen, resonanten aber leistungsschwachen Pulsen eine Polarisation im Material induziert. Die Probe steht dabei in einer Transmissionsgeometrie im fokussierten Strahl. Das transmittierte Licht wird anschließend auf ein geeignetes  $\chi^2$ -Medium zur Erzeugung der doppelten Photonenenergie unter einem geringen Winkel fokussiert. Der zweite Teil der Pulse wird über eine Verschiebeeinheit geleitet und trifft gleichermaßen fokussiert unter einem geringen Winkel auf das  $\chi^2$ -Medium. Für eine Wellenlänge von 800 nm ist dabei Beta-Barium-Borat (BBO) ein guter Kompromiss zwischen Zerstörschwelle, Transparenz und nichtlinearer Konversi-



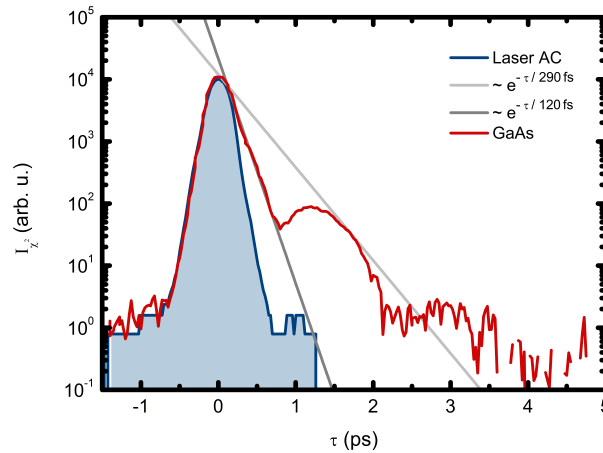
**Abb. 4.3:** Schematische Zeichnung zur Methode der Aufkonversion am Oszillator-System. Während ein Puls durch das zu untersuchende Material tritt, wird ein zweiter Puls zeitverzögert in einem  $\chi^2$ -Medium mit dem transmittierten Puls überlagert. Die Probe befindet sich in einem Transmissions-Kryostaten.

onseffizienz des Mediums.

Wenn beide Pulse zur selben Zeit am selben Ort eine Polarisation im BBO induzieren, so kommt es – falls hierfür die Phasenanpassung gegeben ist – zur effizienten Abstrahlung der zweiten Harmonischen bei der doppelten Photonenenergie („second harmonic generation“, SHG) in die entsprechende Raumrichtung unter Energie und Impuls-Erhaltung. Falls dabei einer der Pulse zusätzlich die abgestrahlte Polarisation aus einer Probe mit sich trägt, so kann die kombinierte Intensität als Funktion des Zeitversatzes  $\tau$  gemessen werden.

Die energetisch verdoppelten Pulse können über eine Blende weitestgehend hintergrundfrei detektiert werden. Zur weiteren Unterdrückung von störenden Signalen wird ein Farbfilter (Schott Glass BG38) eingesetzt, außerdem wird mithilfe optischer Modulation einer der beiden Strahlen (Thorlabs MC1F10) und Lock-In-Technik (Stanford Research SR830) gemessen. Zur Detektion wurde ein hochempfindlicher Photomultiplier (Hamamatsu PMT R928) bei einer Spannung von  $U_{HV} = 0.8 \text{ kV}$  an einem Strom/Spannungs-Verstärker (Stanford-Research SR570) betrieben.

Aufgrund der niedrigen Anregungsdichten bei hohen Wiederholraten wurde diese Methode an einem Titan-Saphir Oszillator umgesetzt. Über einen doppelbrechenden Filter innerhalb des Oszillators kann eine Auswahl der zentralen Photonenenergie der Pulse vorgenommen werden. Die Photonenenergie der etwa 180 fs langen Pulse mit einer Rate von 80 MHz werden auf die fundamentale Absorption der GaAs-Probe zu  $E_{\text{photon}} = 1.511 \text{ eV}$  eingestellt. In einer separaten Messreihe wurde durch Variation der Leistung sichergestellt, dass sich die Dephasierungszeit nicht mit der Leistung ändert und die Bedingungen für niedrige Anregungsdichten mit einer Leistung des



**Abb. 4.4:** Zeitlicher Verlauf der Polarisation im Aufkonversions-Experiment bei  $T = 10$  K. Aufgetragen ist die Intensität der verdoppelten Photonenergie zur fundamentalen Absorption gegen die zeitliche Verschiebung des Aufkonversions-Pulses. Neben der asymmetrischen Form um  $0$  ps erkennt man einen Einbruch aufgrund der gekoppelten Leicht- und Schwerloch-Polarisationen. Damit erscheint die Polarisationsdynamik zunächst durch eine schnelle Zeitkonstante von  $120$  fs (dunkelgrau) bestimmt.

cw-Äquivalents von  $1 \mu\text{W}$  und einer Fläche von  $120 \mu\text{m}$  eingehalten sind.

Eine Autokorrelation des Laserpulses ohne Probe ist in logarithmischer Auftragung in Abb. 4.4 (blau) gezeigt. Im Vergleich hierzu ist bei der Messung mit GaAs bei  $T = 10$  K eine asymmetrische Form zu erkennen. Dies zeigt, dass die abgestrahlte Polarisation aus der Probe das Signal für spätere Zeiten  $\tau > 0$  ps dominiert. Nach einem Einbruch bei  $0.8$  ps erhöht sich die Intensität erneut leicht, um schließlich bei  $2$  ps auf das Niveau des Hintergrundrauschens zu fallen. Dieses Verhalten lässt sich auf eine Quantenschwebung aufgrund der gekoppelten Polarisationen des Schwer- und Leichtlochsystems zurückführen. Durch den gemeinsamen Elektronenzustand und die unterschiedlichen Energien der Lochzustände kommt es in der Folge wie in Kap. 3.2.2 erläutert zur zeitlichen Schwebung der makroskopischen Polarisation. Der zeitliche Abstand von  $1.5$  ps entspricht nach [53] einem energetischem Abstand von  $2.7$  meV und ist damit in der Größenordnung der Aufspaltung der Lochbänder von etwa  $3$  meV.

Zunächst erscheint daher die Polarisationsdynamik durch eine schnellen exponentielle Funktion mit  $120$  fs (Abb. 4.4, dunkelgrau) bestimmt. Dies führt zu einer Zeitkonstanten von  $240$  fs, wobei der Faktor  $2$  dem Zusammenhang zwischen Polarisation und der gemessenen Intensität entstammt. Eine zweite, größere Zeitkonstante für die Einhüllende der Quantenschwebung mit  $2 \cdot 290$  fs (Abb. 4.4, hellgrau) entspräche nach [53] einer Verbreiterung von  $2.27$  meV, was in ungefähre Übereinstimmung mit der

Verbreiterung des Leichtloch-Exzitons von 2.4 meV ist. Dieser Wert ist im Vergleich zu anderen hochreinen GaAs-Proben verhältnismäßig groß, in [83] beispielsweise wird eine Probe mit einer Verbreiterung von 100  $\mu\text{eV}$  untersucht.

### 4.4 Transiente Änderung der Absorption

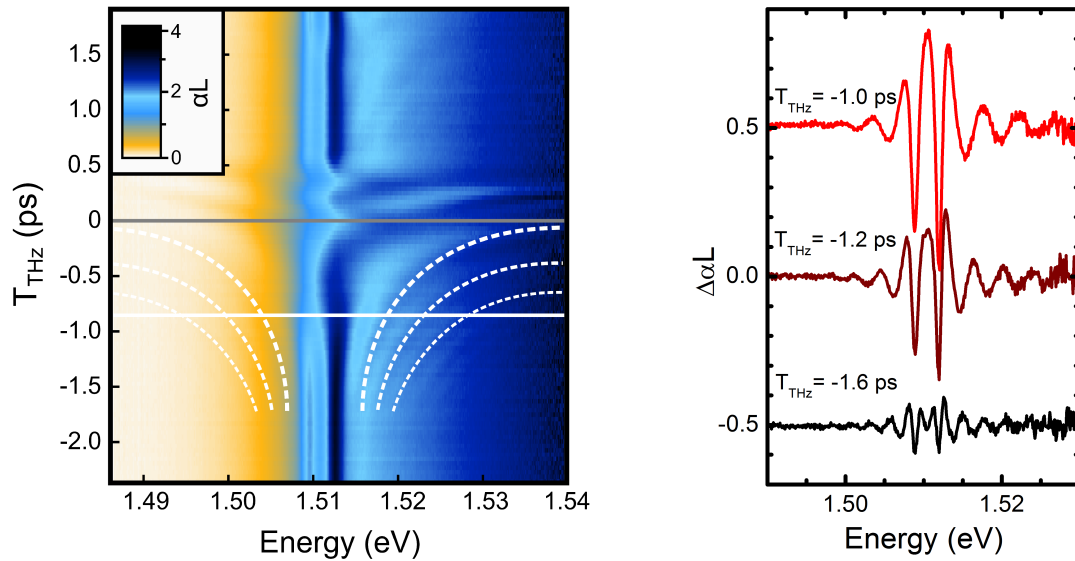
Wird nun zusätzlich zum Absorptions-Puls ein starkes THz-Feld auf die Probe gebracht, so erhält man die Absorption als Funktion des Zeitversatzes  $T_{\text{THz}}$ , wie es in Abb. 4.5 zu sehen ist. Weit vor und nach der Zeitnull erkennt man in dunkleren Farben die beiden exzitonischen Resonanzen an der Bandkante. Ein leichter Schatten einer regelmäßigen oszillierenden Struktur erkennt man zu negativen Zeiten, welche zusätzlich auch durch weiß gestrichene Linien hervorgehoben sind. In der Auftragung als Änderung der Absorption in Abb. 4.5 (rechts) erkennt man deutlich, dass der energetische Abstand der Oszillationen zunimmt, wenn der Zeitversatz  $T_{\text{THz}}$  zunimmt.

Dies ist charakteristisch für besagte kohärenten Oszillationen, welche im nachfolgenden Kap. 4.5 ausführlicher besprochen werden.

In der Region um die Zeitnull werden breite Ausläufer zu höheren und niedrigeren Energien sichtbar, welche sich nach etwa 0.4 ps wiederholen. Gleichzeitig erscheinen beide exzitonischen Resonanzen in der Absorption stark vermindert. Es ist dennoch erkennbar, dass sich das Maximum der Absorption, beginnend bei 1.513 eV deutlich zu höheren Energien verschiebt. Im weiteren zeitlichen Verlauf nimmt die Verschiebung ab, um anschließend nach etwa 0.4 ps erneut einzusetzen. Der prinzipielle zeitliche Verlauf um die Zeitnull ist hauptsächlich der Transiente des elektrischen Feldes des THz-Pulses geschuldet, wie er beispielhaft in Abb. 3.12 (a) gezeigt wird.

Messungen unter Variation der Feldstärke wurden nun an verschiedenen Stellen durchgeführt. Zunächst wurde die transiente Absorption bei  $T_{\text{THz}} = 0$  ps (graue Linie) untersucht, wie sie in Abb. 4.6 (links) dargestellt ist.

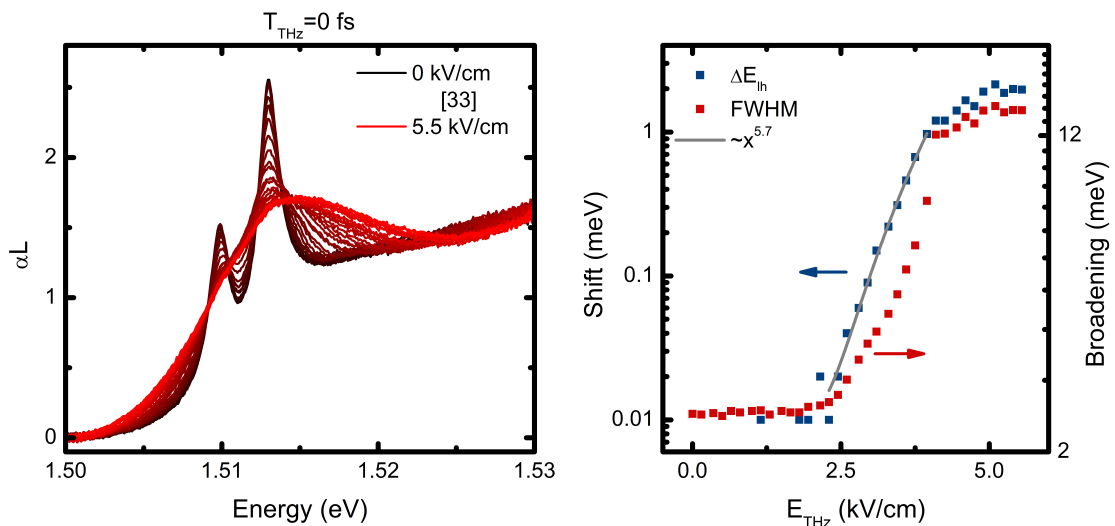
Es wurden insgesamt 35 äquidistante Schritte in der THz-Feldstärke verwendet, was hier als kontinuierlicher Farbverlauf dargestellt ist. Zur genaueren Analyse wurde für jeden Schritt in der THz-Feldstärke eine Gauß-Funktion an die Flanke der lh-Resonanz angepaßt. Die so bestimmte energetische Position und Verbreiterung wurde als Funktion der Feldstärke in Abb. 4.6 (rechts) aufgetragen. In einem separaten Vergleich der Abhängigkeit zur Feldstärke zwischen hh- und lh-Resonanz lassen sich nicht zuletzt auch aufgrund der massiven Verbreiterung kaum Unterschiede feststellen. Eine Aufspaltung analog zu den vorangegangenen Experimenten [21, 63] lässt sich aus eben diesem Grund nicht beobachten. Nichtsdestotrotz wird für die höchsten Feldstärken



**Abb. 4.5:** Transiente Absorption des Volumenhalbleiters GaAs in Abhängigkeit des Zeitversatzes  $T_{THz}$  zum 5.5 kV/cm starken THz-Feld bei  $T = 10$  K.

**Links:** Die Darstellung der veränderten transienten Absorption  $\alpha L$  wurde in Falschfarben kodiert. Zwei Linien illustrieren die zeitliche Position der Messungen zur Variation der THz-Leistung bei  $T_{THz} = 0$  ps (grau, Abb. 4.6) und  $T_{THz} = -0.88$  ps (weiß, Abb. 4.8). Zusätzlich sind zur Verdeutlichung der ungefähre Verlauf der kohärenten Oszillationen (weiß gestrichen) eingezeichnet.

**Rechts:** Darstellung einzelner differenzieller Spektren als  $\Delta\alpha L$  zu den Zeiten  $T_{THz} = -1.6$  ps (schwarz),  $T_{THz} = -1.2$  ps (dunkelrot) und  $T_{THz} = -1.0$  ps (rot). Der energetische Abstand der Oszillationen nimmt mit abnehmendem Zeitversatz  $T_{THz}$  zu.



**Abb. 4.6: Links:** Transiente Absorption bei  $T_{THz} = 0$  ps unter Variation der THz-Feldstärke.

**Rechts:** Auswertung der Verschiebung und der Verbreiterung der Leichtloch-Resonanz. Bei höchster Feldstärke beträgt die Verschiebung bis zu 2 meV.

ein breites Plateau sichtbar, welches keiner einfachen Gaußfunktion folgt.

Bis zu einer Feldstärke von etwa 2.5 kV/cm lässt sich von keiner nennenswerten Verschiebung berichten. Eine leichte Verbreiterung der Resonanz setzt allerdings bereits etwas früher bei etwa 2 kV/cm ein. Die Abhängigkeit der Verschiebung lässt sich durch die Potenz  $\sim (E_{\text{THz}})^{5.7}$  gut beschreiben, bis sie schließlich analog zur Verbreiterung bei etwa 4 kV/cm eine Sättigung erfährt. Maximal beträgt die Verschiebung etwa 2 meV bei einer Verbreiterung von etwa 14 meV.

Zunächst zur Diskussion der Dynamik der transienten Absorption: Wie bereits beschrieben, folgt für diese GaAs-Volumenprobe die Transiente um die Zeitnull etwa dem Betrag der THz-Feldstärke mit zwei separaten Maxima. Im Vergleich mit vorangegangenen Experimenten stellt man fest, dass eine ähnliche Doppelstruktur die transiente Absorption der Ge-Quantenfilme dominiert [63]. Die transiente Absorption der (GaIn)As-Quantenfilme weist diese Doppelstruktur jedoch nicht auf [21].

Dieses Verhalten kann prinzipiell anhand der Abklingzeiten der Polarisation verstanden werden. Für Ge-Quantenfilme beträgt die Dephasierungszeit etwa 250 fs [61], für (GaIn)As-Quantenfilme dagegen 1.32 ps (exponentieller Zerfall der berechneten ungestörten Polarisation in [21]). Die Polarisation der hier untersuchten GaAs-Probe weist entsprechend der in Abb. 4.4 gezeigten Messungen einen anfänglichen starken Einbruch mit einer Zeitkonstanten von 240 fs auf.

Es lässt sich also argumentieren, dass auf der Zeitskala des THz-Pulses von etwa 1 ps die transiente Absorption für kurze Abklingzeiten von hunderten fs dem Feldstärkenverlauf folgen kann, Abklingzeiten von einigen ps dagegen zu einem abweichenden Verhalten führen.

Die Verbreiterung der exzitonischen Absorption kann zunächst in einem semiklassischen Bild illustriert werden. Einer der ersten Veröffentlichungen zur exzitonischen Absorption in Quantenfilmen unter externem elektrischem Feld [80] beschreibt den sogenannten Quantum-Confined-Stark-Effect unter senkrechtem Feld einerseits, und die Feldionisation im parallelen Fall wie er hier vorliegt andererseits. Das Konzept der Feldionisation wurde bereits im vorangegangenen Abschnitt diskutiert. Im semiklassischen Bild kann durch das zusätzliche Feld die Potentialbarriere der Coulomb-Bindung durch Tunneln überwunden werden. Dabei wird die zu überwindende Barriere mit zunehmender Stärke des elektrischen Feldes reduziert. Dies zeigt sich wiederum in einer verkürzten Lebensdauer der Zustände, welche sich wiederum als Verbreiterung in der transienten Absorption niederschlägt [31].

Es soll nun qualitativ das Schwellverhalten diskutiert werden. In [80] wird für 3d-Exzitonen im GaAs eine Verbreiterung der Resonanz vorausgesagt, welche sich qua-

dratisch mit der Feldstärke des statischen elektrischen Feldes ohne Schwelle beginnend bei 0 kV/cm verhält. Auch in [21] werden für (GaIn)As-Quantenfilme bereits von Beginn an Effekte auf die transiente Absorption ohne später einsetzende Schwelle beobachtet, im Gegensatz zu [63] und dem vorliegenden Experiment. Dies ist aufgrund der höheren Exzitonenbindungsenergie von etwa 7.5 meV [52] im Vergleich zu den deutlich niedrigeren Energien im Ge-Quantenfilmen und im GaAs einerseits verwunderlich. Andererseits kann dies wiederum anhand des Unterschiedes der Zeitkonstanten der Polarisation verstanden werden, da aufgrund der langen Dephasierungszeiten im (GaIn)As die gesamte Energie des THz-Pulses auf einen Zeitschritt einwirken kann. Berechnungen der Zeit zur Ionisierung eines Exzitons einer GaAs-Volumenprobe wurden analytisch und als Lösung der Halbleiter-Bloch-Gleichungen in [106] durchgeführt. Unter Annahme eines statischen elektrischen Feldes wird hier eine Zeit zur Ionisierung von etwa 2 ps bei einer Feldstärke von 1 kV/cm angegeben [106]. Diese Zeit reduziert sich auf 0.1 ps bzw. 0.2 ps bei 2 kV/cm [106]. Da im vorliegenden Experiment die ungefähre Dauer des THz-Pulses 1 ps beträgt, ist nach der in [106] berechneten Zeit für eine Feldstärke von 1 kV/cm keine Ionisierung des Exzitons möglich. Damit wird deutlich, dass die entsprechenden THz-Feldstärken für das GaAs-Volumensystem nicht ohne Weiteres beispielsweise mit den Werten des in [80] diskutierten Gleichspannungsfelds verglichen werden können. Vielmehr muss in einem Experiment zur transienten Absorption das zeitlich veränderliche Feld zusammen mit der Zeitkonstante der Polarisation betrachtet werden.

Die Verschiebung der Resonanz wird zunächst vereinfacht diskutiert. Wesentliche Effekte eines externen Feldes auf die Absorption der exzitonischen Resonanz sind der AC-Stark-Effekt, aber auch der dynamische Franz-Keldysh-Effekt (DFKE) [86]. In beiden Fällen werden durch das externe Feld die energetischen Niveaus der Übergänge verschoben. Laut [86] lassen sich zwei Fälle unterscheiden: Falls die Energie des 1s–2p-Übergangs kleiner ist als die THz-Photonenergie  $\omega_{THz} < \omega_{1,2}$ , kann zunächst der AC-Stark-Effekt eine Rotverschiebung bewirken. Dies ist beispielsweise in der Arbeit zu ZnSe-Quantenfilmen [33] der Fall. Für höhere Feldstärken kann insgesamt eine Blauverschiebung auftreten, bei der der DFKE dominiert. Falls hingegen  $\omega_{THz} > \omega_{1,2}$  gilt, so kommt es sowohl aufgrund des AC-Stark-Effekts als auch aufgrund des DFKE zu einer Blauverschiebung. Die hier auftretende Blauverschiebung wäre also in Übereinstimmung mit der etwas höheren zentralen THz-Photonenergie im Vergleich zur Energie des ersten internen Übergangs 1s–2p. Allerdings lässt sich für diese experimentellen Bedingungen keine quadratische Abhängigkeit feststellen, wie es im Falle des Stark-Effekts erwartet wird.

Die Größe der Verschiebung ist dabei im Vergleich zur Exzitonenbindungsenergie erheblich. Letztere beträgt im Falle des 3d-Exzitons in GaAs 4.2 meV [101], das bedeutet, dass in diesem Experiment eine maximale Verschiebung von 47 % der Exzitonenbindungsenergie  $E_B$  sichtbar wird. In der vorhergehenden Arbeit [63] findet man ebenso eine erhebliche Verschiebung über mehrere meV auf der Größenordnung von  $E_B$ , während im Experiment [21] nur eine unwesentliche Verschiebung von wenigen Prozent der  $E_B$  berichtet wird.

Die genauen Gründe für dieses Verhalten können nicht innerhalb des sehr begrenzten Bildes des AC-Stark Effekts oder des DFKE diskutiert werden. Insbesondere aufgrund des speziellen Regimes, bei der die THz-Photonenenergie und die Exzitonenbindungsenergie in derselben Größenordnung liegen und zusätzlich die Stärke des THz-Feldes vergleichbar mit dem Coulomb-Potential wird, lassen sich die Beobachtungen nicht mehr zwingend anhand einzelner, bekannter Effekte diskutieren. Die obige Diskussion kann daher lediglich der Illustration der Prozesse dienen, nicht aber der korrekten Reproduktion der Ergebnisse. Letztlich liefert die Beschreibung der Experimente im Rahmen einer mikroskopischen Viel-Teilchen-Theorie die quantitativ besten Ergebnisse [21, 63]. Die Dynamik des spektralen Verhaltens wird dabei von Gl. (1) in [21] beschrieben. Die genauen quantitativen Konsequenzen entstammen der Kombination unterschiedlicher Werte für die effektive Masse  $\mu$ , der Dephasierung  $\Gamma$ , des Strom-Matrix-Elements  $j_k$  und der generalisierten Rabi-Frequenz  $\Omega_k$  und können daher schwerlich a priori abgeschätzt werden.

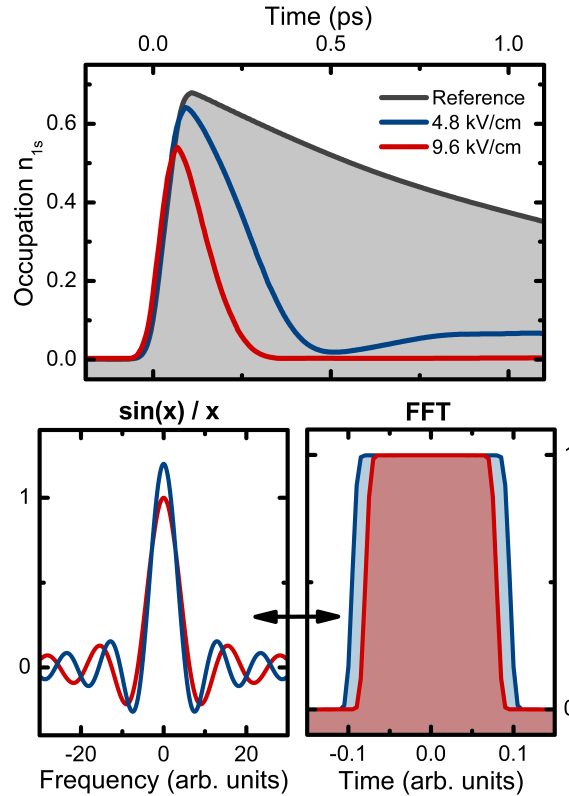
### 4.5 Kohärente Oszillationen

Im Folgenden sollen die kohärenten Oszillationen für den Bereich negativer Zeitverzögerungen  $T_{THz} < 0$  ps diskutiert werden. Wie bereits erwähnt, ist in diesem Zeitregime der nachfolgende Anrege-Puls verantwortlich für den Abbruch der Polarisation des ersten Pulses [61]. In dem vorliegenden Experiment ist der für den Polarisationsabbruch verantwortliche Mechanismus die Ionisation der exzitonenischen Polarisation durch das elektrische Feld des THz-Pulses.

Der ungestörte Verlauf der Polarisation ist zunächst den Mechanismen der Dephasierung unterworfen und kann durch einen einfachen exponentiellen Zerfall beschrieben werden. Abb. 4.7 (oben) zeigt eine solche ungestörte Polarisation (grau) für den Fall eines (GaIn)As-Quantenfilmsystems. Die Werte zu dieser Darstellung entstammen der mikroskopischen Theorie aus der Veröffentlichung [21] und wurden hier erneut aufgetragen. Sie zeigen die Besetzung der 1s-Quantenzahl  $\lambda = (m, n) = (1, 0)$ . Über



den Zusammenhang  $n_\lambda = |p_\lambda|^2$  kann daraus der zeitliche Verlauf der Polarisation verstanden werden.



**Abb. 4.7: Oben:** Aus [21] entnommener theoretischer Verlauf der 1s-Exziton-Besetzung für ein (GaIn)As-Quantenfilmsystem im Falle mittlerer und hoher Feldstärken. Mit höheren Feldstärken bricht der zeitliche Verlauf früher ab.

**Unten:** Schematische Darstellung des Zusammenhangs zwischen kohärenten Oszillationen und dem zeitlichen Verlauf der Polarisation am Beispiel einer  $\sin(x)/x$  Funktion, jeweils normierte Darstellung.

Trifft nun ein THz-Puls zu einem Zeitpunkt  $T_{THz} < 0$  ps auf die Probe, so wird der ungestörte Verlauf der Polarisation (in Abb. 4.7 mit positiver Zeitachse) unterbrochen. Der zeitliche Verlauf wurde anhand der mikroskopischen Theorie [21] für ein Eintreffen des THz-Pulses kurz nach der Zeitnull berechnet. Für eine mittlere und eine hohe Feldstärke ergibt sich dabei ein leicht unterschiedliches Bild. Der spätere Verlauf und die eventuelle Rückkehr der 1s-Polarisation als reversibler Transfer wurde dabei im vorangegangenen Kapitel 3 bereits ausgiebig diskutiert.

Hier soll das Augenmerk auf den zeitlichen Unterschied des ersten Polarisationsabbruchs gelegt werden. Aus den Rechnungen wird deutlich, dass für höhere Feldstärken (rot) die Polarisation deutlich früher abbricht als für mittlere Feldstärken (blau). Dieser Zusammenhang lässt sich ebenso im Bild der Feldionisation verstehen. Hier trägt

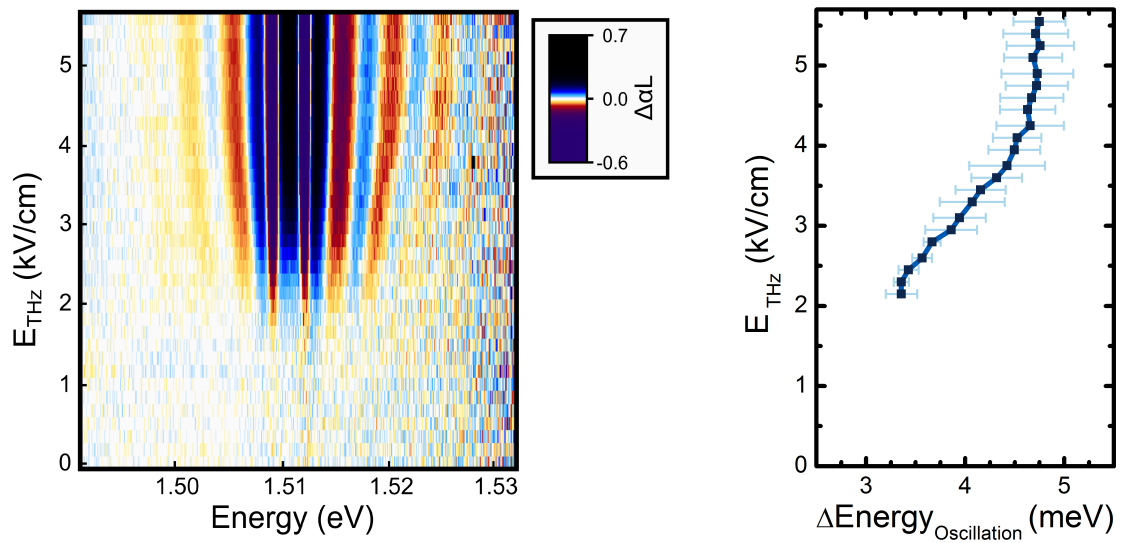
das elektrische Feld zu einer Reduzierung der Ionisationsbarriere der exzitonischen Polarisation bei. Während das ungestörte Potential aus der analogen Beschreibung des Wasserstoffatoms ein Coulomb-Potential bildet, so wird dieses durch das externe Feld leicht verkippt. Dadurch wird ein Tunneln durch die reduzierte Potentialbarriere ermöglicht. Die Tunnelzeit sollte dabei umso kürzer werden, je stärker die Potentialbarriere mit dem steigenden externen Feld reduziert wird.

Der Polarisationsabbruch in der Zeit zieht nun in der Frequenzdomäne eine oszillatorische Änderung nach sich. Dieser prinzipielle Zusammenhang wird in Abb. 4.7 (unten) verdeutlicht. Auf der rechten Seite ist in der Zeitdomäne in willkürlichen Einheiten eine instantan abbrechende Polarisation dargestellt. Zur Vereinfachung der Darstellung wird die Dephasierung vernachlässigt. Dabei wird der Fall der späteren Abbruchzeit (blau) mit einer früheren Abbruchzeit (rot) verglichen. In der Frequenzdomäne erhält man durch Fourier-Transformation eine  $\sin(x)/x$  Funktion, bei der der Amplitudenabstand kleiner ist (blau) für die entsprechend spätere Abbruchzeit (blau).

Diese Oszillationen werden in der Änderung der Absorption als Funktion der Energie sichtbar, wenn zum Zeitpunkt des Abbruchs der Polarisation die oszillatorischen Signaturen entstehen. Da diese Signaturen eine sehr geringe Ausprägung besitzen, ist es instruktiv die Darstellung der Änderung der Absorption zu wählen. Für einen festen Zeitversatz von  $T_{THz} = -0.88$  ps (Abb. 4.5, weiße Linie) wird diese Änderung als Funktion der Energie und Variation der THz-Feldstärke aufgetragen (Abb. 4.8 (links)).

Aufgrund der energetischen Aufspaltung zwischen Schwer- und Leichtloch Resonanz werden zwei ausgeprägte Minima (lila) deutlich. Dennoch zeigt sich angefangen bei maximalen THz-Feldstärken eine klare oszillatorische Struktur symmetrisch zentriert an der Energie der doppelten Resonanz. Hin zu niedrigeren Feldstärken zeigt sich jedoch nicht nur eine Abnahme der Amplitude, sondern ebenso eine Veränderung in der energetischen Position der Oszillationen. Der energetische Abstand der einzelnen Maxima und der einzelnen Minima (Abb. 4.8 (links) blau bzw. rot) jeweils für die nieder- und höherenergetische Seite der Oszillationen wurde entsprechend ausgewertet und in Abb. 4.8 (rechts)) als Mittelwert (schwarz) aufgetragen. Zusammen mit der Standardabweichung (hellblau) zeigt sich eine signifikante Abnahme des energetischen Abstands der Oszillationen mit sinkender Feldstärke.

Anhand der vorangegangenen Ausführungen lässt sich dieser Unterschied bei gleichbleibendem Zeitpunkt des Eintreffens des THz-Pulses nur über eine Änderung in der Polarisationsdauer verstehen. Mit hohen Feldstärken erfolgt der Abbruch der Polarisation nach diesen experimentellen Ergebnissen daher früher als für mittlere Feldstärken. Diese Messungen bestätigen daher erneut explizit die Vorhersage der mikrosko-



**Abb. 4.8: Links:** Falschfarbendarstellung der differentiellen Absorption  $\Delta\alpha L$  aufgetragen über die Energie einerseits und als Variation der THz-Feldstärke  $E_{\text{THz}}$  andererseits. Die Zeitverzögerung zwischen beiden Pulsen wird festgehalten bei  $T_{\text{THz}} = -0.88$  ps. Als Funktion der abnehmenden Feldstärke nimmt nicht nur die Amplitude der Oszillationen gleichmäßig ab, insbesondere wird auch der energetische Abstand der Oszillationen verändert.

**Rechts:** Separate Auftragung des Mittelwerts des energetischen Abstands der nieder- und höherenergetischen Maxima und Minima (schwarz). Weiterhin ist die Standardabweichung aufgetragen (hellblau), was die Signifikanz des verringerten energetischen Abstands der Oszillationen mit sinkender Feldstärke bestärkt. Dieses Verhalten wird erklärt mit einer längeren Lebensdauer der Polarisation für niedrigere Feldstärken wie in Abb. 4.7 (oben) von einer mikroskopischen Theorie [21] vorhergesagt.

pischen Theorie, wonach eine größere Feldstärke zu einem schnelleren Transfer der exzitonischen Polarisation führt.

## 4.6 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden erstmals kohärente Oszillationen aufgrund eines THz-induzierten Transfers diskutiert. Nach einer grundlegenden Charakterisierung der verwendeten GaAs-Volumenprobe wurde der ungestörte zeitliche Verlauf der Probe in einem Aufbau zur Aufkonversion diskutiert. Dabei wurde neben der vergleichsweise hohen Dämpfung eine schnelle Zeitkonstante im Bereich von 240 fs über zwei Größenordnungen der  $\chi^2$ -Intensität festgestellt. Im Experiment zur transienten Absorption unter starken THz-Feldern wurde neben einer qualitativen Diskussion zur Verbreiterung und Verschiebung der Resonanzen eine entsprechende schnelle Dynamik festgestellt. Analog zum Ge-Quantenfilmsystem ist die Dynamik hauptsächlich durch den zeitlichen Verlauf des elektrischen Feldes des THz-Pulses dominiert, konsistent mit dem Experiment zur Aufkonversion.

Schließlich wurde der unterschiedliche Amplitudenabstand der kohärenten Oszillationen bei gleicher Verzögerungszeit und unterschiedlichen Feldstärken diskutiert. Die Interpretation dieser Ergebnisse bestätigt explizit den schnelleren Abbruch der Polarisation für höhere Feldstärken. Dies ist in Übereinstimmung mit der Vorhersage der mikroskopischen Theorie in [21] und ebenso im Rahmen der Feldionisation als reduzierte Tunnelzeit durch Reduzierung der Potentialbarriere verständlich.

# 5 Ladungsträgertransfer in gekoppelten Quantentöpfen

Nachdem in den vergangenen Teilen der Arbeit der erzwungene, durch eingestrahlte starke THz-Felder induzierte Transfer innerhalb exzitonischer Zustände näher untersucht wurde, wird nun auf den räumlichen Transfer von Elektronen durch eine Potentialbarriere eingegangen. Teile der experimentellen Arbeit wurden von den Studenten Markus Stein und Natalie Wilson durchgeführt, welche im Rahmen dieser Doktorarbeit betreut wurden. Diese Untersuchungen schaffen gemeinsam mit den Möglichkeiten zum induzierten Transfer die Grundlagen für ein experimentelles Modellsystem des Ladungsträgertransports durch modifizierte Grenzflächen.

## 5.1 Einführung

Nach der Motivation in der Einleitung zu dieser Arbeit, müssen für ein tieferes physikalische Verständnis von Wechselwirkungen an den Grenzflächen von Halbleitersystemen zunächst Methoden und Modellsysteme entwickelt und verbessert werden. Im Rahmen dieser Arbeit wird besonderes Augenmerk auf den Ladungsträgertransport vorwiegend von Elektronen durch eine möglichst definierte Grenzfläche gelegt. Dazu müssen in Frage kommende Modellsysteme nach einer Anregung von Elektron-Loch-Paaren eine Separation der Elektronen- und Lochpopulation erlauben. Dabei kann einerseits eine Separation im Impulsraum erfolgen. Ein prominentes Beispiel hierfür ist das indirekte Materialsystem Germanium, welches nach Anregung von Elektronen und Löchern am  $\Gamma$ -Punkt der Bandstruktur einen Elektronentransfer zum globalen Leitungsbandminimum am  $L$ -Punkt der Bandstruktur innerhalb von etwa 200 fs aufweist [61].

Andererseits kann eine räumliche Separation in Halbleiterheterostrukturen erfolgen aufgrund einer Typ-II Anordnung der Bandstruktur. In einem solchen System befinden sich das globale Valenzband- und Leitungsbandminimum nicht am selben Ort der Struktur.

Schließlich kann auch eine Kombination aus beiden oben genannten Möglichkeiten auftreten, wie es beispielsweise im Fall von GaAs/AlGaAs-Quantenfilmsystemen auftritt [7].

Es sind also verschiedene Modellsysteme denkbar, welche indirekt im Impulsraum, indirekt im Ortsraum oder aber indirekt im Impuls- und Ortsraum sind. In dieser Arbeit wird zunächst der Fall der indirekten Population im Ortsraum eingehend untersucht, wobei bereits Vorarbeiten geleistet wurden, um auch im Orts- und Impulsraum indirekte Modellsysteme untersuchen zu können.

In der Vergangenheit wurde bereits intensiv die Dynamik des  $\Gamma$ - $X$  und Orts-Transfers an GaAs/AlGaAs-Übergittern erforscht [23]. Dort wurde von einer Zeitkonstante unterhalb einer Pikosekunde berichtet. In dieser Materialklasse wurden ebenso entsprechende Quantenfilm-Strukturen eingehend untersucht [22, 91, 90, 79, 25], auch im Hinblick auf eine praktische Anwendung als schneller THz-Filter [72]. Daneben wird auch von der optischen Charakterisierung von II-IV Halbleitersysteme mit einer Typ-II Bandstruktur berichtet [2, 113], wobei dort vom Transfer von Löchern berichtet wird.

Eine besondere praktische Anwendung der Untersuchung von Grenzflächeneffekten und der Dynamik des Transfers kann beispielsweise in der Realisierung eines Scheibenlasers mit einer sogenannten „W“-artigen Leitungsbandstruktur erfolgen. Anhand der theoretischen Überlegungen in [6], kann es trotz der räumlich indirekten Elektron- und Loch-Population zur Ausbildung eines optischen Gewinns kommen, bei der die Ladungsträger unter Aussendung eines Photons über die Grenzflächen hinweg rekombinieren. Das dort gewählte Materialsystem mit einer technisch relevanten Emissionswellenlänge von  $\lambda > 1.2 \mu\text{m}$  ist ein (GaIn)As/Ga(AsSb)/Ga(NAs)-System. Dies motiviert zusätzlich die Untersuchungen eines räumlich indirektes Modellsystem, welches im Wesentlichen aus einer GaAs-Barriere, einem (GaIn)As- und einem Ga(NAs)-Quantenfilmsystem besteht.

Als eine mögliche Untersuchungsmethode wurde in der Vergangenheit die zeitaufgelöste Photolumineszenz zur Aufklärung der Dynamik der Ladungsträgerverteilung eingesetzt [87, 68, 113, 5]. Für den Großteil der zeitaufgelösten Messungen hat sich jedoch die Anrege-Abfrage-Spektroskopie aufgrund der guten Zeitauflösung von unter 100 fs und der gleichzeitigen hohen spektralen Auflösung als Methode der Wahl erwiesen. Auf diese Weise konnte einerseits der schnelle Orts- und  $\Gamma$ - $X$ -Transfer [23] und weitere Mechanismen für die Dynamik [22, 2] beobachtet werden. Andererseits wurde im Spektrum als Folge einer indirekten Population auch eine Verschiebung festgestellt. Dabei wurde sowohl von einer Blauverschiebung [91, 90, 79] als auch von einer Rotverschiebung der Resonanz [2] berichtet.

In dieser Arbeit kommen daher neben der linearen Absorption entsprechend zeitaufgelösten Methoden zum Einsatz. Dabei werden die gewonnenen Ergebnisse bezüglich der bisherigen Literatur eingeordnet und damit die Methode und die Mechanismen im Materialsystem verifiziert. Schließlich wird von der verlangsamten Transferdynamik durch eine vorhandene Population berichtet. Letzteres konnte unseres Wissens nach zum ersten Mal im Rahmen dieser Arbeit in einem räumlich indirekten System mittels Anrege-Abfrage-Messungen explizit beobachtet werden.

## 5.2 Methodik

Die verwendeten Techniken der optischen Charakterisierung von Halbleiterstrukturen werden im Folgenden kurz dargestellt. Der Schwerpunkt liegt dabei weniger auf der Vorstellung der weit etablierten Methoden sondern auf der Umsetzung der entsprechenden experimentellen Aufbauten.

Entsprechend der zunächst diskutierten linearen Absorption eines Halbleiters kann eine Anregung mit ultrakurzen Laserpulsen erfolgen, welche im resonanten Fall energetisch mit einer in der Absorption sichtbaren Resonanz überlappen. Findet eine Anregung oberhalb der Resonanz, aber innerhalb des Quantenfilms statt, so soll der Begriff quasi-resonant verwendet werden. Eine Anregung, welche auch die Barrieren des Quantenfilms umfasst wird als nicht-resonant bezeichnet.

Zur genauen Aufklärung der zeit- und spektral-aufgelösten Ladungsträgerdynamik nach einer optischen Anregung haben sich die zeitaufgelöste Photolumineszenz und Anrege-Abfrage-Spektroskopie als weitverbreitete Methoden etabliert, welche ebenso näher diskutiert werden. Im Gegensatz zum Studium der genauen Dynamik der Polarisation in den beiden vorangegangenen Kapiteln sind diese Methoden vornehmlich dazu geeignet, die Dynamik der Population zu erfassen.

### 5.2.1 Lineare Absorption

Zunächst kennt man aus der makroskopischen Beschreibung von Licht in Materie die Veränderung von Amplitude und Phase des durchdringenden elektrischen Feldes. Daraus ergibt sich ein exponentieller Zusammenhang von der Intensität des durchtretenden Lichts  $I$

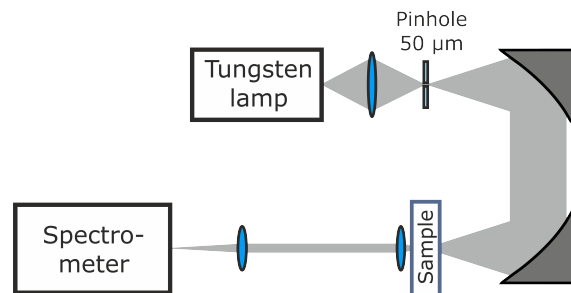
$$I = I_0 \cdot e^{-\alpha L} \quad (5.1)$$

mit der Länge des Materials  $L$  und der einfallenden Intensität  $I_0$ . Der Koeffizient  $\alpha$  kann dabei prinzipiell auch Streueffekte des einfallenden Lichts beinhalten. Diese werden

hier aufgrund der guten Oberflächenqualität der Halbleiterproben vernachlässigt, so dass im weiteren Verlauf  $\alpha$  als Absorptionskoeffizient bezeichnet wird. Da die Länge der Quantenfilmsysteme teilweise nicht trivial zu bestimmen ist, wird weiterhin stets die kombinierte, einheitenlose Messgröße  $\alpha(E)L$  als Funktion der Photonenenergie  $E$  verkürzt als Absorption bezeichnet. Unter der verkürzten Annahme eines flachen Reflexionshintergrundes wird im Experiment aus dem einfallenden Licht  $I_0$  und dem transmittiertem Licht  $I_{transm.}$  auf die Absorption des Materials geschlossen:

$$\alpha L = -\ln\left(\frac{I_{transm.} - I_{BG}}{I_0 - I_{BG}}\right) \quad (5.2)$$

Dabei werden beide Spektren jeweils durch einen Hintergrund  $I_{BG}$  korrigiert. Der experimentelle Aufbau, wie er auch in [11] verwendet wurde, ist in Abb. 5.1 schematisch skizziert.



**Abb. 5.1:** Schematische Zeichnung des Aufbaus zur Messung der linearen Absorption. Eine Wolfram Lampe erzeugt spektral breites Weißlicht, welches auf eine Lochblende von 50 µm Durchmesser fokussiert wird. Diese Lochblende wird durch zwei Parabolspiegel auf die Probe in einem Kryostaten fokussiert. Das transmittierte Licht wird in einem kommerziellen Spektrometersystem erfasst.

Eine Wolframlampe erzeugt spektral breites inkohärentes Licht, welches zunächst auf eine Lochblende mit einem Durchmesser von 50 µm fokussiert wird. Diese wird durch ein Paar von Parabolspiegeln auf die Probenoberfläche fokussiert, wobei die Leistung im Bereich von 20 nW liegt. Die Probe selbst befindet sich in einem Kryostaten und wird bei  $T = 10$  K gehalten. Das transmittierte Licht wird von einem kommerziellen Spektrometersystem „Optical Spectrum Analyzer“ AQ-6315A Ando erfasst.

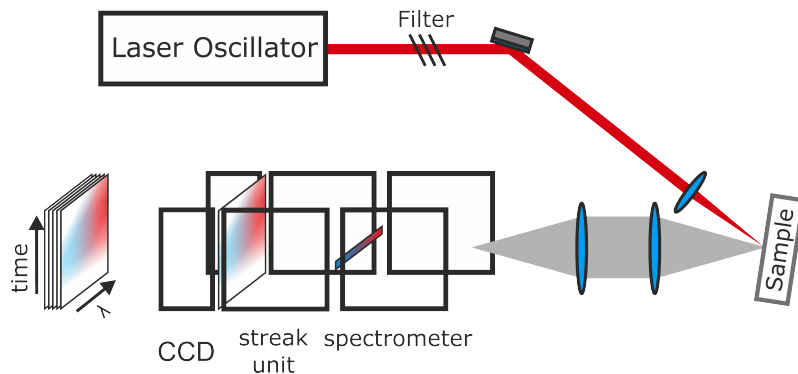
### 5.2.2 Zeitaufgelöste Photolumineszenz

Nach Anregung der Quantenfilme, bei denen definiert durch einen kurzen optischen Puls eine Nichtgleichgewichts-Population erzeugt wird, kommt es nach Thermalisierung und Relaxation zur Rekombination der Ladungsträger. Die strahlende Rekombination von Elektron-Loch-Paaren findet dabei unter Aussendung eines Photons statt.



Eine zeitlich- und spektral-aufgelöste Detektion dieser Photolumineszenz kann daher sowohl Aufschluss über energetische Zustände als auch die Mechanismen der Relaxation und weiterer Kanäle der Rekombination geben.

Eine umfassende Einführung zur zeitaufgelösten Photolumineszenz (engl.: time-resolved photoluminescence, TR-PL) findet sich in der Arbeit [11]. Hier soll lediglich der experimentelle Aufbau, wie er in Abb. 5.2 gezeigt ist, kurz rekapituliert werden.



**Abb. 5.2:** Schematische Zeichnung des experimentellen Aufbaus zur Messung der zeitaufgelösten Photolumineszenz. Ein im infraroten Durchstimmbaren Ti:Sa-Oszillator wird mit definierter Intensität einstellbar durch verschiedener Graufilter auf eine Probe im Kryostaten fokussiert. Die emittierte Photolumineszenz wird kollimiert und eine sogenannte „Streak-Kamera“ fokussiert. Ein Spektrometer zerlegt das analysierte Licht zunächst in Spektralkomponenten (x-Achse, blau-rot). Anschließend werden in einer sogenannten „Streak-Unit“ über eine zur Repetitionsrate synchronisierte Ablenkspannung die in einen Elektronenstrahl umgewandelte Photonen zeitlich aufgelöst (xy-Achse, Wellenlänge  $\lambda$  gegen Zeit  $t$ ). Dies wird schließlich von einer CCD-Einheit erfasst.

Ein Ti:Sa-Oszillator wie er in Kap. 4.3.2 beschrieben wurde, kann spektral im nahen Infrarotbereich durchgestimmt werden. Mehrere Graufilter dienen der definierten Leistungsabschwächung der Pulse, welche zu einer Größe von  $d_{FWHM} = 30 \mu\text{m}$  auf die Probenoberfläche fokussiert werden. Die Probe befindet sich in einem Kryostaten, der bei einer Temperatur von  $T = 10 \text{ K}$  gehalten wird. Die zunächst in alle Raumrichtungen emittierte PL (grau gezeichnet) wird von einer Optik mit größerer numerischen Apertur auf den Eingangsspalt einer sogenannten „Streak-Kamera“ fokussiert (Hamamatsu M5675(S-1)).

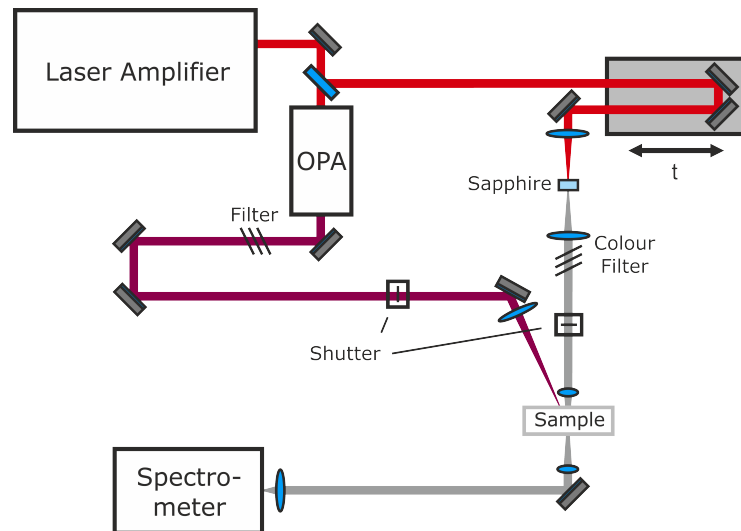
Diese besteht im Wesentlichen aus drei Komponenten. Zunächst erfolgt eine Aufspaltung des eingehenden Lichts in spektrale Komponenten, wobei die enthaltene Zeitinformation entlang des Spektrums unverändert bleibt (x-Achse, Wellenlänge  $\lambda$ ). Nun wird im zweiten Schritt in der sogenannten „streak-unit“ die Zeitinformation extrahiert. Dazu treffen die Photonen zunächst auf eine Photokathode, wobei die dort herausgelösten Elektronen durch eine Hochspannung beschleunigt werden. Eine peri-

odische Ablenkspannung, synchronisiert zur Repetitionsrate des Lasers liegt an einem Plattenkondensator an, wodurch der Elektronenstrahl je nach eingetroffener Zeit unterschiedlich stark in Richtung der  $y$ -Achse abgelenkt wird. Mit einem orts aufgelöster Elektronenvervielfacher und einer phosphoreszierenden Schicht wird schließlich die Intensität des Elektronenstrahls abgebildet. Dies wird von der dritten Komponente, einer CCD-Kamera erfasst. Durch mehrfache Belichtungen (s. Abb. 5.2) wird anschließend durch Korrekturfunktionen zum einen in der Wellenlänge und zum anderen in der Zeit die Messgröße der PL-Intensität  $I_{PL}(\lambda, t)$  in Abhängigkeit von Wellenlänge ( $x$ -Achse) und Zeit ( $y$ -Achse) gebildet. Eine detaillierte Beschreibung der genauen Funktionsweise findet sich in der einschlägigen Literatur.

### 5.2.3 Zeitaufgelöste Anrege-Abfrage-Spektroskopie

Eine ergänzende Methode zur Aufklärung der Ladungsträgerdynamik ist die Beobachtung der Absorption, welche durch die Besetzung von Zuständen durch die angeregten Ladungsträger verändert wird (vgl. Gl. (2.1) und (2.2)). Indem die Abfrage und auch die Anregung des Systems als zeitlich begrenzte Pulse sukzessive in der Zeit gegeneinander verzögert werden, kann nacheinander die spektrale Änderung der Absorption erfasst werden. Ein wesentlicher Unterschied ist hier die sukzessive Erfassung der zeitlichen Dynamik des Systems im Gegensatz zur vorangegangenen Methode der zeitaufgelösten PL, bei der eine Messung stets die Akkumulierung der emittierten Photonen aus einer einzigen Anregung darstellt. Damit sind Zeit- und Energie-Auflösung der TR-PL über die Heisenbergsche Unschärferelation verknüpft, während für die zeitaufgelöste Anrege-Abfrage-Spektroskopie (engl.: pump and probe, PP) die Auflösung in Zeit und Energie unabhängig erfolgt. Dabei liegt die Annahme zugrunde, dass durch die gute Kontrolle der Anregungsbedingung des Systems eine identische Dynamik beobachtet werden kann.

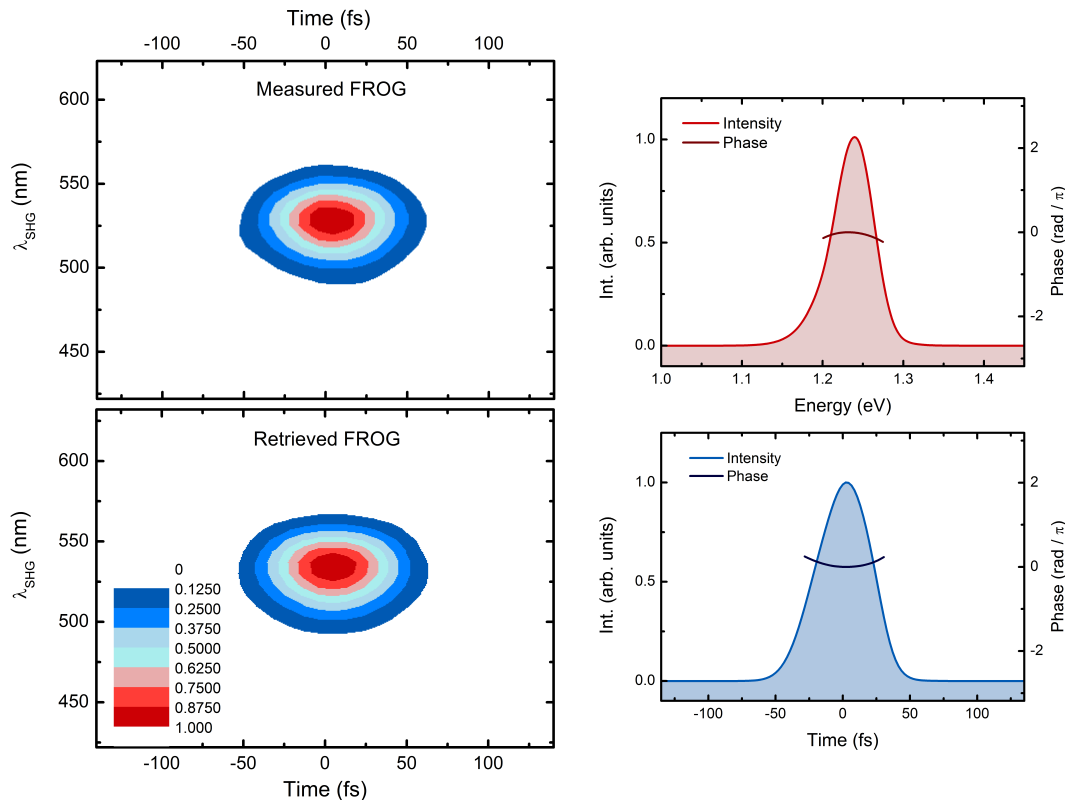
Das Experiment wurde hier an einem neu erworbenen Verstärkersystem wie in Abb. 5.3 gezeigt realisiert, wobei das grundlegende Schema des beispielsweise in [62] beschriebenen Aufbaus erhalten blieb. Das Lasersystem besteht aus einem kommerziellen 5 mJ, 1 kHz, 35 fs regenerativem Ti:Sa-Verstärker Spitfire Ace von Spectra-Physics mit einer zentralen Photonenenergie von 800 nm. Von der gesamten Pulsenergie wird zunächst 1 mJ durch einen dielektrischen Strahlteiler transmittiert. Zur Dispersionskompensation werden anschließend anti-reflex beschichtete Borosilikat-Krongläser in den Strahlengang eingebracht, bevor die Pulse einen optisch-parametrischen Verstärker (OPA) UFS-Topas-Prime von Light-Conversion durchlaufen. Für die hier beschrie-



**Abb. 5.3:** Schematische Zeichnung des experimentellen Aufbaus zur Messung der zeitaufgelösten Anrege-Abfrage-Spektroskopie. Der im optisch-parametrischen Verstärker (OPA) erzeugte Anrege-Strahl trifft unter flachem Winkel auf die Probe. Am selben Ort wird der Abfrage-Strahl als gepulstes Weißlicht aus der Selbstphasenmodulation aus einem Saphir-Kristall fokussiert. Über eine Positioniereinheit lässt sich die Zeitverzögerung  $t$  zwischen beiden Pulsen variieren, zwei Verschlussseinheiten lassen eine differenzielle Messung zu. Der transmittierte Abfrage-Puls wird anschließend in einem Spektrometer mit einer CCD-Kamera spektral analysiert.

benen Experimente unter resonanter Anregung wird der sogenannte Idler-Puls durch Frequenz-Verdopplung zu einer Zentralwellenlänge von  $\lambda = 1000 \text{ nm}$  (Abb. 5.3, violett gezeichnet) gebracht. Nach weiteren Filtern zur Separation und zur definierten Einstellung der Anregungsleistung wird der Puls auf eine Größe von  $d_{FWHM} = 100 \mu\text{m}$  am Ort der Probe fokussiert.

Das Spektrum und der zeitliche Verlauf der Anregung ohne der fokussierenden Optik wurde mithilfe einer besonderen Art der Puls-Korrelation in einem nichtlinearen Medium realisiert, ähnlich zur in Kap. 4.3.2 vorgestellten Technik der Aufkonversion. Hier wird jedoch in einer kommerziellen Messeinheit Grenouille-8-20-USB von Swamp Optics der Puls mit einem Replica seiner selbst überlagert, um schließlich durch eine geschickt gewählte Kristallgeometrie eine frequenzverdoppelte Intensität in Abhängigkeit des Spektrums und des Zeitversatzes zu erhalten. Diese Messmethode wird auch als frequency-resolved optical gating (FROG) bezeichnet. Für die gewählte Zentralwellenlänge ist eine solche Messung in Abb. 5.4 (links oben) gezeigt. Ein geeigneter Algorithmus berechnet im Anschluss daran die Parameter des elektrischen Feldes, um eine solche Intensitätsverteilung zu erhalten. Das Ergebnis zeigt Abb. 5.4 (links unten). Es lassen sich nun die Amplitude und Phase für das elektrische Feld in Abhängigkeit von Photonenenergie und Zeit angeben, dargestellt in Abb. 5.4 (rechts oben)



**Abb. 5.4:** Spektral- und zeitlich aufgelöste Charakterisierung des Anregepulses bei einer Zentralwellenlänge von  $\lambda_c = 1006$  nm mittels der sogenannten FROG Messmethode.

**Links oben:** Normierte gemessene Intensität dargestellt in Falschfarben für den Zeitversatz zwischen beiden Pulsen bei den entsprechend verdoppelten Wellenlängen. Die Skala für die Wellenlänge beinhaltet keine erweiterte Korrektur der Dispersion und ist in dieser und der unteren Darstellung nicht exakt.

**Links unten:** Normierte Intensität anhand der simulierten Pulsform mittels des kommerziellen Auswertalgorithmus.

**Rechts oben:** Ermitteltes spektrales Profil der Anregung als Intensität (rot) und Phase (dunkelrot) aufgetragen.

**Rechts unten:** Intensität (blau) und Phase (dunkelblau) der zeitlichen Komponente des Anregepulses.

und unten respektive).

Das Spektrum (rot) weist den für die OPA-Erzeugung typische Asymmetrie zur niederenergetischen Flanke hin auf mit einer spektralen Halbwertsbreite von  $\lambda_{FWHM} = 48$  nm, besitzt daneben jedoch eine weitestgehend unveränderte Phase. Neben der experimentell ermittelten zeitlichen Autokorrelation von  $66 \text{ fs}/\sqrt{2}$ , lässt sich durch die Rekonstruktion des elektrischen Feldes auch direkt die zeitliche Halbwertsbreite (blau) des Pulses von  $\tau_{FWHM} = 49$  fs angeben mit wiederum relativ konstanter Phase.

Die Pulse zur Erzeugung der Abfrage werden aus einem Bruchteil der restlichen 4 mJ aus der Transmission eines hier nicht eingezeichneten Strahlteilers gewonnen. Nach einer Verkleinerung des Strahldurchmessers durch eine Teleskop-Optik gelangt

der Strahl über eine Verzögerungseinheit, welche den Zeitversatz  $t$  bestimmt. Eine Strahlstabilisierung korrigiert dabei auftretende Fehler in der Position des Strahls, bevor dieser auf einen Saphir-Kristall fokussiert wird. Aufgrund der Selbstphasenmodulation kommt es zu einer massiven spektralen Verbreiterung des Pulses mit einem breiten Spektrum vom sichtbaren bis hin zum nah-infraroten Bereich, was auch als Superkontinuum bezeichnet wird. Hier wird anhand geeigneter Farbfilter der für diese Messungen relevante Teil des Spektrums ohne der erzeugenden Zentralwellenlänge von  $\lambda = 880 - 1200$  nm ausgewählt (Abb. 5.3, grau gezeichnet). Aufgrund des erzeugenden Prozesses kommt es zu einer zeitlichen Verzögerung verschiedener Anteile des Spektrums, was auch als Chirp bezeichnet wird. In diesem Experiment wurde der maximale Chirp zu  $0.17$  nm/fs bestimmt. Da für dieses Kapitel lediglich schmale spektrale Bereiche diskutiert werden, wird dieser Zeitversatz nicht korrigiert. Dennoch ließe sich mit einem geeignetem Polynom auch über den gesamten erfassten spektralen Bereich eine sehr gute Zeitauflösung erhalten aufgrund der eindeutigen Zuordnung zwischen Wellenlänge und Zeit.

Schließlich werden die Abfrage-Pulse auf eine Größe von  $d_{FWHM} = 60$   $\mu\text{m}$  am Ort der Probe fokussiert. Die Probe befindet sich dabei in einem Kryostaten und wird bei einer Temperatur von  $T = 10$  K gehalten. Ein Spektrometer mit einem Gitter von  $80$  l/mm und einer (GaIn)As-CCD-Zeile mit  $512$  Pixeln erfasst das Spektrum des einfallenden Lichts, wobei durch senkrecht zueinander linear polarisierte Anregung und Abfrage das Streulicht der Anregung mit einem Polarisator effektiv unterdrückt werden kann. Zwei Verschlusseinheiten im Strahlengang der Anregung und Abfrage lassen eine differentielle Messung der Spektren zu.

Die Messgröße wird aus einer Sequenz von vier Spektren gewonnen. Sind beide Verschlüsse sind geöffnet, so wird die angeregte Intensität  $\tilde{I}_{Anregung}$  erfasst. Die ungestörte Abfrage wird durch  $\tilde{I}_{Abfrage}$  bei geschlossener Anregung detektiert. Bei geschlossener Abfrage wird das Streulicht und die Photolumineszenz hervorgerufen durch die geöffnete Anregung als  $I_{PL}$  erfasst. Schließlich wird der Hintergrund  $I_{BG}$  registriert wenn beide Verschlüsse geschlossen bleiben. Dabei werden die gemessenen Intensitäten  $\tilde{I}$  der Anregung und der Abfrage mit den korrigierten Intensitäten für  $I_{Anregung}$  und  $I_{Abfrage}$  wie folgt verknüpft:

$$\tilde{I}_{Anregung} = I_{Anregung} + I_{PL} = I_0 \cdot e^{-(\alpha L + \Delta\alpha L)} + I_{PL} \quad (5.3)$$

$$\tilde{I}_{Abfrage} = I_{Abfrage} + I_{BG} = I_0 \cdot e^{-\alpha L} + I_{BG} \quad (5.4)$$

Hieraus lässt sich schließlich die differentielle Absorption  $\Delta\alpha L$  bilden:

$$\Delta\alpha L = -\ln\left(\frac{\tilde{I}_{Anregung} - I_{PL}}{\tilde{I}_{Abfrage} - I_{BG}}\right) \quad (5.5)$$

Damit wird die Messgröße  $\Delta\alpha L(E, t)$  eine Funktion der detektierten Energie  $E$  und des Zeitversatzes  $t$ .

### 5.3 Charakterisierung der Quantenfilmsysteme

Das Modellsystem für diese Arbeit bildet ein Mehrfach-Quantenfilmsystem aus teilweise gekoppelten Quantentöpfen. Diese wurden im WZMW Marburg von Dr. Philip Hens mittels Gasphasenepitaxie hergestellt. Auf ein GaAs-Substrat wird zunächst eine 250 nm dicke GaAs-Pufferschicht aufgebracht. Anschließend wird eine Sequenz von  $\text{Ga}_{1-x}\text{In}_x\text{As}$  / GaAs /  $\text{GaN}_y\text{As}_{1-y}$  mit einer weiteren 50 nm breiten Schicht GaAs fünfmal wiederholt. Über die Variation des Stickstoffgehalts kann das globale Leitungsbandminimum entweder im (GaIn)As-Quantenfilm oder im Ga(NAs) erreicht werden. Über eine Variation der Barrierendicke des GaAs kann die Kopplung zwischen beiden Quantenfilmen eingestellt werden. In dieser Arbeit wurden drei unterschiedlich gekoppelte Systeme untersucht. Für eine Serie wurde dabei der Stickstoffgehalt derart angepasst, dass nach resonanter Anregung im Quasi-Gleichgewicht eine im Ortsraum direkte Population entsteht, während in der zweiten Serie mit höherem Stickstoffgehalt nach resonanter Anregung sich eine im Ortsraum indirekte Population ausbilden sollte.

In den Arbeitsgruppen von Prof. K. Volz und PD W. Stolz wurden an Probenstücken der gewachsenen Strukturen TEM-Aufnahmen und XRD-Messungen realisiert. Die daraus gewonnenen Parameter werden gemeinsam mit der laufenden Probennummer in Tabelle 5.1 zusammengefasst. Es wird im weiteren Verlauf aus Gründen der Übersicht der Probensatz mit niedrigem Stickstoffgehalt sprachlich verkürzt als direkt und entsprechend der Probensatz mit hohem Stickstoffgehalt als indirekt bezeichnet.

Aufgrund der aufwendigen Probenpräparation wurden lediglich für den indirekten Probensatz TEM-Aufnahmen angefertigt. Aus diesen Bildern lassen sich anschließend die einzelnen Schichtdicken der Strukturen bestimmen. Mit den genauen Werten für die Schichtdicken werden Simulationen zu gemessenen XRD-Daten aussagekräftiger aufgrund des reduzierten Parameterraums. Der Fehler für die Bestimmung der Stickstoffkonzentration beträgt hierbei etwa 0.5 % [32]. Die ermittelten Parameter der direkten Strukturen können dagegen mit größeren Fehler behaftet sein da keine sepe-

<b>b (nm)</b>	<b>x - N<sub>In</sub> (%)</b>	<b>y - N<sub>N</sub> (%)</b>	<b>d<sub>(GaIn)As (nm)</sub></b>	<b>d<sub>Ga(NAs) (nm)</sub></b>	lfd. Nr.
Direkte Strukturen					
<b>2.0</b>	24.1	0.4	9.9	8.8	#25862
<b>4.0</b>	24.1	0.5	9.9	8.2	#25863
<b>7.0</b>	24.0	0.6	9.8	7.4	#25861
Indirekte Strukturen					
<b>0.8</b>	24.0	4.8	9.9	4.1	#25858
<b>3.4</b>	24.2	4.8	9.5	3.5	#25859
<b>5.5</b>	24.0	4.5	10.0	4.5	#25857

**Tabelle 5.1:** Übersicht über die Wachstumsparameter des direkten und indirekten Probensatzes [32]. Die Parameter der direkten Strukturen wurden aus Simulationen zu XRD-Messungen gewonnen. Für die indirekten Strukturen wurden die Schichtdicken durch TEM-Aufnahmen bestimmt, was eine genauere Simulation zu den XRD-Messungen erlaubte.

rate Bestimmung der Schichtdicken erfolgte.

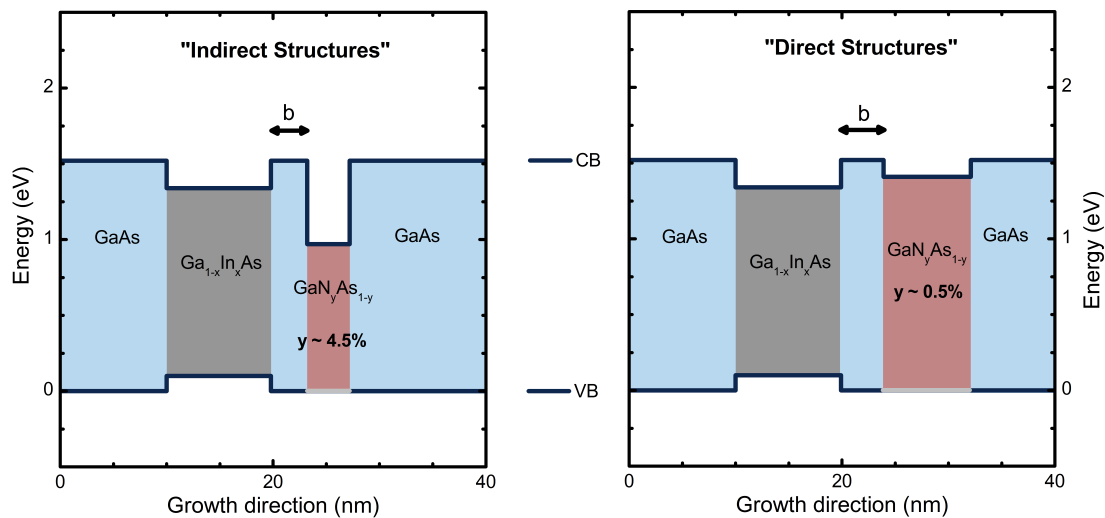
### 5.3.1 Diskussion der Bandstruktur

Auf der Grundlage dieser ermittelten Parameter lässt sich eine Abschätzung für die Bandstrukturen anfertigen. Exemplarisch findet sich eine schematische Auftragung in Abb. 5.5 für den Fall der mittleren Barrierendicke der indirekten Strukturen (links) und der direkten Strukturen (rechts). In Wachstumsrichtung mit willkürlich gesetztem Nullpunkt wurden zu Beginn und zum Ende die etwa 50 nm breite GaAs-Barriere (blau) eingezeichnet. Die Dicke  $b$  der mittleren GaAs-Barriere (blau) wurde wie in Tab. 5.1 angegeben variiert. Durchgehend eingezeichnet ist das Valenzband (VB) und das Leitungsband (CB) jeweils bezüglich der Energie am  $\Gamma$ -Punkt.

Die Energieskala wurde zu 0 eV zum Valenzband im GaAs gesetzt, danach liegt das Leitungsband der GaAs-Strukturen bei 1.52 eV für  $T = 10\text{ K}$  [67]. Aufgrund der vernachlässigbaren Verspannung sind im GaAs Schwer- und Leichtlochband nicht entartet.

Die Bandlücke von (GaIn)As (grau) beziffert sich auf etwa 1.19 eV [67] mit einem Verhältnis der Leitungs- zu Valenzbanddiskontinuität bezüglich GaAs von 0.65 [85]. In der Ga(NAs)-Schicht (rot) der indirekten Strukturen (links) mit  $N_N \approx 4.5\%$  liegt eine Bandlücke von etwa 0.96 eV vor [107, 111]. Für die direkten Strukturen mit einer geringen Konzentration von etwa  $N_N \approx 0.5\%$  der Ga(NAs)-Schicht (rot) wird eine Bandlücke von etwa 1.3 bis 1.4 eV angesetzt [107].

Es ist aus der bisherigen Literatur unklar, welcher Energieabstand das Valenzband



**Abb. 5.5:** Schematische Auftragung der Bandstrukturen des Valenzband (VB) und des Leitungsbandes (CB) in Abhängigkeit der Wachstumsrichtung. Dargestellt ist die Materialabfolge von GaAs (hellblau),  $\text{Ga}_{1-x}\text{In}_x\text{As}$  (grau) und  $\text{GaN}_y\text{As}_{1-y}$  (rot) mit der variierenden Barrierendicke  $b$ . Für Stickstoffkonzentrationen von  $N_N \approx 4.5\%$  existiert ein globales Minimum im Leitungsband der Ga(NAs)-Schicht.

der Ga(NAs)-Schicht zum GaAs aufweist, da hierzu unterschiedliche, nicht konsistente experimentelle Aussagen getroffen wurden. Unter Umständen ließen sich auch negative Valenzband-Diskontinuitäten erwarten. In [107] wird bis auf weiteres ein Verhältnis der Leitungs- zu Valenzband Diskontinuität von  $\approx 1$  vorgeschlagen. Da sich der genaue Valenzbandverlauf der Ga(NAs)-Schicht für die gesamte energetische Struktur unwesentlich auswirkt, bleibt der genaue Verlauf für die Ga(NAs)-Schicht im Folgenden unberücksichtigt.

Gebundene Zustände lassen sich einerseits für Valenz- und Leitungsband der (GaIn)As-Schicht und andererseits für das Leitungsband der Ga(NAs)-Schicht erwarten. Wie bereits ausgeführt werden im Valenzband der Ga(NAs)-Schicht keine gebundenen Zustände erwartet. Aufgrund des skizzierten Potentialverlaufs in beiden Schichten lassen sich die Lösungen der Schrödinger-Gleichung teilweise durch die bekannten Zustände des Quantentopfmodells mit endlicher Barriere beschreiben.

Für die direkten Strukturen liegt damit der tiefste Zustand im Leitungsband des (GaIn)As-Quantenfilm. Die geringe Breite der Ga(NAs)-Schicht des indirekten Probenatzes führt zu einer Anhebung des ersten Zustandes im dortigen Leitungsband (confinement), welcher jedoch aufgrund der größeren Energiedifferenz von etwa 0.3 eV zur (GaIn)As-Struktur niedriger liegt als der erste Zustand des Leitungsbandes der (GaIn)As-Struktur.



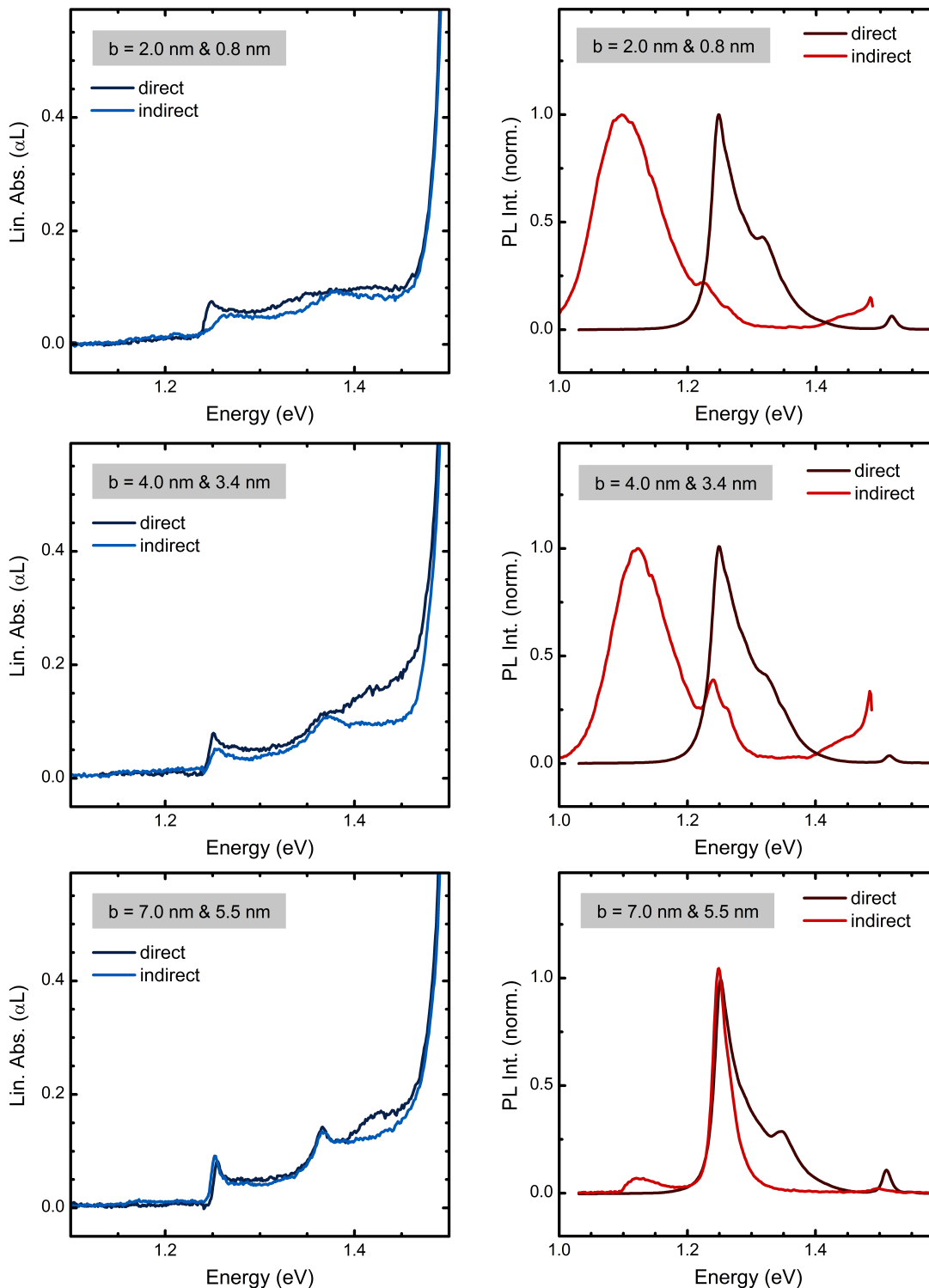
Es ist zu erwarten, dass insbesondere für die dünnen Barrieren von wenigen nm Dicke gemeinsame Leitungsband-Zustände durch die Barriere hinweg existieren, da die Wellenfunktionen eine endliche Eindringtiefe in die Barriere aufweisen. Dabei wurde der Grad der Kopplung, die Existenz gemeinsamer Wellenfunktionen und die grundsätzliche Bandstruktur mittels einer kommerziellen Simulation verifiziert. Die beiden Quantentöpfe lassen sich daher für dünne Barrierendicken als gekoppelt bezeichnen.

#### 5.3.2 Experimentell ermittelte Übergänge

Die grundsätzlichen energetischen Eigenschaften dieser Strukturen können durch die anfangs beschriebenen optischen Methoden charakterisiert werden. Dazu wurden neben linearen Absorptionsmessungen auch zeitaufgelöste PL-Messungen bei  $T = 10\text{ K}$  durchgeführt. Anhand der in Abb. 5.6 dargestellten Ergebnisse lassen sich die vorangegangenen Überlegungen zur Bandstruktur ausführen und bestätigen.

Die Ergebnisse der linearen Absorption sind in Abb. 5.6 (links) aufgetragen, jeweils als Gegenüberstellung der direkten (dunkelblau) und der indirekten Strukturen (hellblau). Dabei nimmt die Barrierendicke von oben nach unten hin zu. Alle Proben zeigen dabei den Einfluss des Substrats und der Barrieren durch die massive Absorption ab etwa ca. 1.5 eV. Beginnend bei dem Fall der größten Barrierendicke in Abb. 5.6 (unten) lassen sich zwei klare Resonanzen erkennen, welche sich jeweils an den Kanten einer stufenförmigen Absorption befinden. Dies ist die zu erwartende Absorption eines Quantenfilmsystems (Kap. 2.1.1). Dabei existieren bei der jeweils nächsthöheren Quantenzahl exzitonische Resonanzen als Manifestationen der Coulomb-Wechselwirkung des Vielteilchen-Systems (Kap. 2.2.2). Die Resonanzen können den Übergängen vom Valenzband der schweren Löcher (hh) zum Leitungsband (c) des (GaIn)As als  $hh1-c1$  und  $hh2-c2$  zugeordnet werden. Der zweite Übergang erfährt dabei eine größere Verbreiterung aufgrund der höheren Aufenthaltswahrscheinlichkeiten in der Barriere einerseits und durch die reduzierten Potentialbarrieren andererseits. Dabei unterscheiden sich das direkte und das indirekte System kaum; die Größe und Verbreiterung der beiden Resonanzen stimmt sehr gut überein. Damit können die Systeme für die größten Barrierendicken als getrennte, elektronisch nicht gekoppelte Quantenfilme bezeichnet werden.

Einzig bei einer Energie von etwa 1.43 eV lässt sich für das direkte System eine stark verbreiterte Absorption ausmachen. Da der nominell einzige Unterschied die deutlich geringere Stickstoffkonzentration in der Ga(NAs)-Schicht darstellt sind nur zwei Erklärungen möglich. Zum einen wäre durch das energetisch angehobene Leitungsband



**Abb. 5.6:** Experimentelle Verifikation der direkten (dunkel) und indirekten Strukturen (hell) mit von oben nach unten zunehmender Barrierendicke  $b$  (grau hinterlegt), wobei jeweils an erster Stelle die Dicke der direkten Strukturen und an zweiter Stelle die Dicke der indirekten Strukturen genannt ist. Die links aufgetragene lineare Absorption (blau) zeigt die erwartete Quantenfilmstruktur. Zur weiteren Charakterisierung der Zustände wurden auf der rechten Seite TRPL-Messungen über einen Zeitraum von 2 ns integriert dargestellt (rot) nach nicht-resonanter Anregung in die Barrieren mit hohen Photonendichten um  $5 \cdot 10^{13}$  Photonen/cm<sup>2</sup>.

der Ga(NAs)-Schicht ein Zustand für  $n = 1$  denkbar, welcher sich aufgrund der reduzierten Potentialbarriere bis in die (GaIn)As-Schicht erstreckt. Zum anderen würde die Energie der Bandlücke der Ga(NAs)-Schicht von bis zu 1.4 eV zusammen mit der Quantisierungsenergie für die Leitungsbandzustände grundsätzlich mit der beobachteten erhöhten Absorption übereinstimmen. Zwar kann ohne exakte Rechnung nicht zwischen beiden Möglichkeiten unterschieden werden. Dennoch müsste für das indirekte System demzufolge eine erhöhte Absorption oberhalb von 1.05 eV aus der Bandlücke von 0.96 eV und einer Quantisierungsenergie von mehr als 0.1 eV zu beobachten sein. Dies ist jedoch zum vorliegenden Stand der Untersuchungen weder für die größte noch für die mittlere Barrierendicke zu beobachten.

Weil demnach keine gebundenen Lochzustände ermöglicht werden, kann aus diesen Erkenntnissen geschlussfolgert werden, dass keine oder eine positive Valenzbanddiskontinuität der Ga(NAs)-Schicht zum GaAs vorliegt. Die erhöhte Absorption des direkten Systems um 1.43 eV wird daher eher einem ausgedehnten Leitungsband-Zustand der Ga(NAs)-Schicht zugeschrieben.

Die Absorption der mittleren Barrierendicken in Abb. 5.6 (mittig) zeigt ein vergleichbares Verhalten. Die Absorption des direkten Systems weist eine ähnliche Verbreiterung des  $hh1-c1$ -Übergangs wie die breiteste Barriere auf, während hingegen die Absorption des  $hh2-c2$ -Übergangs nur noch stark verbreitert erkennbar ist mit ähnlicher spektraler Breite wie der  $hh2-c2$ -Übergangs des indirekten Systems. Hier ist bereits der Einfluss der reduzierten Barrierendicke zu erkennen, welcher eine schwache Kopplung insbesondere der höheren Leitungsband-Zustände aufgrund der reduzierten Potentialbarriere erlaubt. Erneut ist eine weitere Erhöhung bei etwa 1.43 eV ausschließlich für das direkte System zu erkennen was die vorangegangene Diskussion unterstützt. Der  $hh1-c1$ -Übergang des indirekten Systems erscheint stärker verbreitert, da im Gegensatz zum direkten Fall das Leitungsband-Niveau der Ga(NAs)-Schicht energetisch tiefer liegt, so dass eine leichte Kopplung ermöglicht wird. Durch den so reduzierten Überlapp der Elektronen- und Lochwellenfunktionen nimmt auch die Stärke der Übergänge ab weshalb die Absorption des indirekten Systems etwas geringer ausfällt. Bis auf leichte Artefakte unterhalb der Bandkante, welche durch zufällige Messfehler zustande kommen, lässt sich auch hier keine erhöhte Absorption unterhalb der Bandkante und oberhalb von 1.05 eV aufgrund von etwaiger direkter Absorption innerhalb des Ga(NAs)-Quantenfilms feststellen.

Für den Fall der geringsten Barrierticken in Abb. 5.6 (oben) lassen sich deutliche Unterschiede zu den beiden diskutierten Fällen ausmachen. Es zeigt sich zwar noch eine abgesetzte  $hh1-c1$ -Resonanz des direkten Systems, dieselbe Resonanz er-

scheint aber für das indirekte System massiv verbreitert. Erneut kann dies aufgrund des tieferliegenden Ga(NAs)-Leitungsbandes für höhere Stickstoffkonzentrationen erklärt werden. Aufgrund der geringen Barrierendicke lassen sich beide Systeme als gekoppelte Doppelquantenfilme verstehen. Für das indirekte System sind alle Wellenfunktionen des Leitungsbandes durch die Barriere hindurch gekoppelt und erklären so die massive Verbreiterung der beiden sichtbaren Resonanzen des indirekten Systems. Für das direkte System verbleibt einzig der beobachtete hh1-c1-Übergang in der (GaIn)As-Schicht lokalisiert. Der nächsthöhere Zustand des direkten Systems umfasst dann ebenso durch die Barriere hindurch den c1-Zustand im Ga(NAs) – was auch erklärt warum der folgende Übergang energetisch leicht tiefer liegt als die ansonsten beobachteten hh2-c2-Übergänge. Eine weitere Analyse der Zustände wird durch die erhebliche Verbreiterung weitestgehend erschwert. Dennoch fällt auf, dass für die geringste Barrierdicke keine abgesetzte Absorption oberhalb von 1.4 eV zu sehen ist. Dieser Unterschied kann ebenso durch die verminderte Lokalisierung und des geringeren Überlapps des untersten Leitungsbandzustandes im Ga(NAs) erklärt werden. Insgesamt zeigt sich auch hier durch die geringere Lokalisierung der (GaIn)As-Leitungsband-Zustände des indirekten Systems eine leicht verminderte Absorptionsstärke gegenüber des direkten Systems.

Die Aufnahmen der zeitaufgelösten PL sind auf der rechten Seite in Abb. 5.6 für die direkten (dunkelrot) und die indirekten Systeme (hellrot) aufgetragen, parallel zur linearen Absorption mit zunehmender Barrierendicke von oben nach unten. Die Anregung wurde nicht-resonant mit hohen Photonendichten von etwa  $5 \cdot 10^{13}$  Photonen/cm<sup>2</sup> gewählt, um auf diese Weise nicht nur die energetisch niedrigsten sondern ebenso höhere Zustände zu erfassen. Diese werden durch die Relaxation der Ladungsträger mit Überschussenergie in den Barrieren zwischenzeitlich bevölkert. Dabei wurden die zeitaufgelösten PL-Messungen bis etwa 2 ns nach der Anregung summiert und jeweils bezüglich des Signalmaximums normiert. Grundsätzlich ist in allen Messungen ein geringes Signal bei Energien von etwa 1.52 eV sichtbar, was der strahlenden Rekombination der im GaAs erzeugten Ladungsträger entspricht. Für die Aufnahmen der indirekten Systeme der dünnen und mittleren Barriere wurde ein anderer Messbereich gewählt um eine größere Dynamik für die Signale zu niedrigeren Energien zu reservieren. Dies erklärt die Artefakte an den Randbereichen um 1.5 eV.

Beginnend bei der größten Barrierendicken in Abb. 5.6 (unten) lässt sich ähnlich zur entsprechenden Absorption eine große Übereinstimmung zwischen direktem und indirektem System feststellen. Die Emissionsenergie von etwa 1.25 eV weist nur eine Verschiebung von wenigen meV zur Energie des hh1-c1-Übergangs auf, was auf

die gute Qualität und die geringe inhomogene Verbreiterung dieser Schicht hinweist. Die Emission der indirekten Struktur weist unterhalb der Bandkante ein breites Signal auf, was in der direkten Struktur nicht zu erkennen ist. Dabei fällt die Intensität des Signals zu niedrigen Energien aufgrund der stark abnehmenden Sensitivität des Detektors ab 1.1 eV sehr schnell ab. Dennoch gibt dieses Signal einen Hinweis auf das tief liegende Leitungsband der Ga(NAs)-Schicht, was das globale Leitungsbandminimum dieser indirekten Struktur darstellt. Die strahlende Rekombination wäre beispielsweise mit benachbarten Löchern möglich, was im folgenden Kapitel genauer ausgeführt werden wird. Nur für die direkte Struktur erkennt man eine Emission bei einer Energie von 1.35 eV welche mit dem Übergang  $hh_2-c_2$  korreliert sein sollte. Zusammen mit der breiten höherenergetischen Emission sind dies beides Anzeichen der hohen Ladungsträgerdichte in der (GaIn)As-Schicht, welche im indirekten Fall durch einen Elektronentransfer durch die Barriere in die Ga(NAs)-Schicht entvölkert wird. In einer hier nicht gezeigten logarithmischen Darstellung lässt sich darüberhinaus für die Emission des direkten Systems eine leichte Schulter bei etwa 1.42 eV erkennen was im Zusammenhang mit dem ineffizient abstrahlenden Übergang der Ga(NAs)-Schicht steht.

Die mittleren Barrierendicken in Abb. 5.6 (mittig) zeigen einen deutlicheren Unterschied der Emissionscharakteristika. Zunächst lässt sich die PL des direkten Systems mit derjenigen der größeren Barrierendicke (unten) vergleichen. Prinzipiell zeigt sich eine ähnliche Form, es sind erneut hauptsächlich zwei Niveaus zu erkennen welchen wiederum den Übergängen  $hh_1-c_1$  und  $hh_2-c_2$  zuzuordnen sind. Dabei wirkt sich die erhöhte Linienbreite der Absorption ebenso auf die Breite der PL des höheren Zustandes aus. Für das indirekte System ist die maximale Signalintensität unterhalb der Bandkante der Absorption bei 1.12 eV zu finden. Aufgrund der hohen Intensität kann trotz der abnehmenden Sensitivität des Detektors ein PL-Signal um 1.12 eV detektiert werden. Eine deutliche Abnahme der Intensität findet man dagegen für den  $hh_1-c_1$ -Übergang, welcher aufgrund der geringeren Barrierendicke bezüglich der dortigen Elektronenverteilung schneller entvölkert werden kann (vgl. Transferzeiten in Kap. 5.5, Tab. 5.2).

Für den Fall der geringsten Barrierendicken in Abb. 5.6 (oben) erkennt man erneut den Unterschied zwischen direktem und indirektem System. Das direkte System weist die oben erwähnten Charakteristika auf, wobei die Emission des zweiten, höheren Übergangs bei leicht verminderten Emissionsenergien von 1.32 eV mit dem Übergang von  $hh_1-(\text{GaIn})\text{As}-c_1\text{-Ga}(\text{NAs})$  entsprechend der linearen Absorption verbunden ist. Das Signal des indirekten Systems zeigt sich erneut am intensivsten unterhalb der

Bandkante mit einer Zunahme der Emissionsbreite und einer verminderten Emissionsenergie bei 1.1 eV. Hier wird auch die Rekombination aus dem kombinierten  $hh1-(\text{GaIn})\text{As}-c1-(\text{GaIn})\text{As}+\text{Ga}(\text{NAs})$ -Übergang sichtbar. Das Verhältnis der Intensitäten der Rekombination an der Bandkante zur Rekombination energetisch unterhalb der Bandkante nimmt dabei mit der geringeren Barrierendicke ab. Dies ist ein erneuter Hinweis auf die noch schnellere Entvölkerung des genannten Zustandes.

Aufgrund der hohen Anregungsdichte der PL-Messungen ist einerseits die Emission aus den Übergängen der direkten Strukturen stark verbreitert zu höheren Energien. Ursachen hierfür sind die vermehrte Emission aus den Zuständen des Kontinuums und die bereits erwähnten möglichen Kopplungen mit den energetischen Niveaus der  $\text{Ga}(\text{NAs})$ -Schicht, welche ebenso besetzt werden. Zum anderen lässt sich insgesamt feststellen, dass die indirekten Übergänge energetisch höher liegen als die Bandstruktur es mit Energien um 0.9 eV erwarten ließe. Ein Vergleich mit PL Messungen unter nicht-resonanter Dauerstrichanregung welche von S. Gies durchgeführt wurden, ermöglicht Anregungssituationen in einem Quasi-Gleichgewicht. Für niedrigste Anregungsdichten zeigen sich tatsächlich Emissionsenergien der mittleren und dünnen Barriere bei Energien von 0.93 eV, welche für höhere Anregungsdichten zu Energien von über 1 eV verschoben werden [27]. Zum einen untermauert dies die energetischen Werte der Bandstruktur, zum anderen liefert dies erste Hinweise auf die deutlich erhöhten Anregungsdichten der zeitaufgelösten PL Messungen was im nachfolgenden Kapitel weiter diskutiert werden soll.

Insgesamt ergibt sich ein durchgehend konsistentes Bild der energetischen Struktur, wonach lineare Absorption und PL die erwarteten Bandstrukturen und den direkten und indirekten Charakter in Abhängigkeit der Stickstoffkonzentrationen bestätigen. Dabei kann mit zunehmender Kopplung aufgrund der abnehmenden Barrierendicke von mehreren ausgedehnten Leitungsband-Zuständen durch die Barriere hindurch ausgegangen werden, was sich sowohl auf Linienform und -stärke als auch auf die Intensitäts-Verhältnisse der strahlenden Rekombination der Zustände auswirkt.

## 5.4 Transfer in der zeitaufgelösten

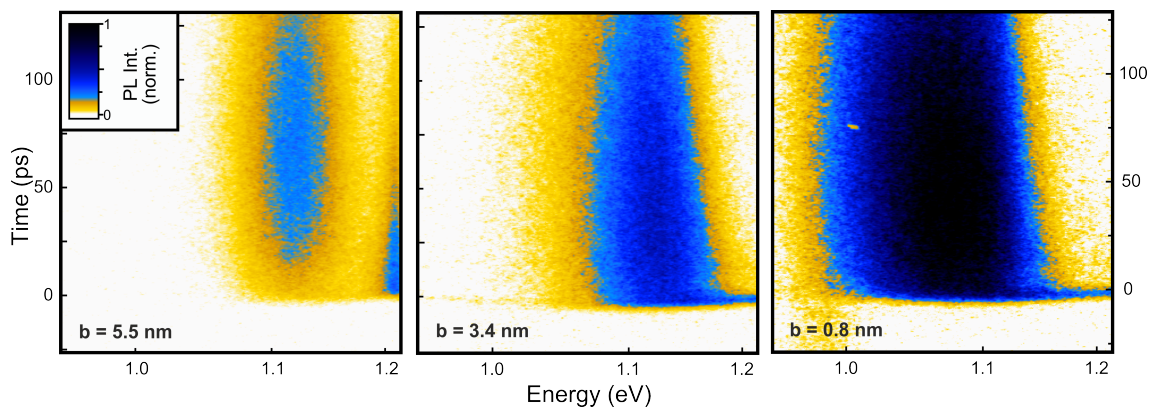
### Photolumineszenz

Ausgehend vom grundsätzlich bestätigten energetischen Verlauf der Bandstruktur werden in diesem Kapitel die Charakteristika der indirekten Strukturen aus der zeitaufgelösten PL in Abhängigkeit der Anregungsdichte diskutiert. Alle hier vorgestellten

Messungen wurden bei Temperaturen um  $T = 10\text{ K}$  unter quasi-resonanter Anregung durchgeführt. Nach der besprochenen linearen Absorption kann demnach davon ausgegangen werden, dass die Mehrzahl der Ladungsträger dabei in der (GaIn)As-Schicht erzeugt werden.

Nach der quasi-resonanten Anregung erwartet man einerseits eine Abstrahlung im Bereich des direkten Übergangs, während aufgrund des Minimums in der Bandstruktur ein Transfer von Elektronen in die Schicht des Ga(NAs)-Quantenfilms erwartet wird. Eine entsprechende strahlende Rekombination mit Elektronen dieser geringeren Energie sollte dann als indirekte PL unterhalb der Bandkante mit einer gewissen Zeitcharakteristik erscheinen.

Zunächst soll exemplarisch die Charakteristika der PL besprochen werden, wobei in Erweiterung zum vorangegangenen Kapitel hier auch die zeitliche Komponente unter quasi-resonanter Anregung studiert wird. Abb. 5.7 zeigt exemplarisch die Ergebnisse unter einer Anregungsdichte von  $3.8 \cdot 10^{13}$  Photonen/cm<sup>2</sup> als zweidimensionale Auftragung der Zeit gegen die Energie. Von links nach rechts nimmt dabei die Barrierendicke ab, wobei die Darstellung in einer gemeinsamen Farbskala der Normierung auf das gesamte Intensitätsmaximum folgt. Die Zeitnull wurde auf den Zeitpunkt des eintreffenden Laserpulses bei 1.37 eV festgelegt, das spektrale Fenster wurde derart verschoben, dass alle wesentlichen Merkmale gemeinsam sichtbar werden.



**Abb. 5.7:** Zweidimensionale Auftragung der zeitaufgelösten PL mit zunehmender Barrierendicke  $b$  von links nach rechts unter quasi-resonanter Anregung mit einer Photondichte von  $3.8 \cdot 10^{13}$  Photonen/cm<sup>2</sup>. Die Intensität der PL ist in Falschfarben kodiert unter Beibehaltung der Normierung auf das gemeinsame Maximum. Auf diese Weise lässt sich der Intensitätsverlauf, die Breite der abgestrahlten PL und deren energetische Position mit der Barrierendicke korrelieren. Für den Fall der größten Barrierendicke erkennt man oberhalb von 1.2 eV zusätzlich die abklingende PL des direkten Übergangs, welche instantan zur Zeitnull einsetzt, während die PL des indirekten Übergangs erst allmählich intensiver wird mit einem Maximum zu späteren Zeiten.

In Abb. 5.7 lässt sich allein für die größte Barrierendicke eine signifikante, zeit-

lich ausgedehnte Abstrahlung aus dem direkten Übergang oberhalb von 1.2 eV registrieren. Die Systeme für die mittlere und geringste Barrierendicke zeigen dagegen ein zeitlich sehr kurzes Signal auf der Größenordnung der zeitlichen Auflösung der Streak-Kamera. Das PL-Signal unterhalb der Bandkante aus indirekten Übergängen beginnt hier zeitgleich mit dem Eintreffen des Pulses ganz im Gegensatz zur Situation der größten Barrierendicke. Dort erkennt man ausgehend von einem niedrigeren Anfangswert (gelblich) ein allmähliches Ansteigen der PL des indirekten Übergangs (hellblau). Integrierte Transienten zu dieser Aufnahme finden sich in Abb. 5.9 für den direkten und indirekten Übergang und belegen dieses zeitliche Verhalten.

Auf der Grundlage der eingangs untersuchten energetischen Struktur können daher bereits folgende Schlüsse gezogen werden. Zum einen lässt sich eine obere Grenze für die Transferzeit der Elektronen durch die mittlere und geringste Barrierendicke angeben. Diese entspricht der Zeitauflösung des Messsystems von etwa 2 ps. Zum anderen wird deutlich, dass die Transferzeit für den Fall der größten Barrierendicke in der Größenordnung von wenigen ps liegen muss. Die gleichzeitige Beobachtung des Abfalls der PL aus den direkten Übergängen und des Anstiegs einer PL aus indirekten Übergängen liefert demnach Informationen über die Transferdynamik und konnte unseres Wissens nach mit den Methoden der PL erstmals zusammen registriert werden. Eine genauere quantitative Auswertung im Rahmen eines Ratenmodells findet sich in einem späteren Abschnitt dieses Kapitels.

Weiterhin wird klar, dass die Intensität der PL aus indirekten Übergängen mit zunehmender Barriendicke drastisch abnimmt. Dies ist verständlich, wenn die Wahrscheinlichkeiten des strahlenden Übergangs aus dem mit zunehmender Barriendicke abnehmenden Überlapp der räumlich indirekten Elektronen- und Lochwellenfunktionen berücksichtigt werden.

Die energetische Position der PL aus indirekten Übergängen ist für die geringste Barrierendicke am niedrigsten. Dies wird im Detail abhängig von der Anregungsdichte im folgenden Abschnitt besprochen.

Es lässt sich außerdem mit zunehmender Barrierendicke unter Vorbehalt eine Systematik der abnehmenden energetischen Breite der PL erkennen. Dieser Umstand kann erneut aufgrund des abnehmenden Überlapps der Wellenfunktionen verstanden werden. Gerade im Falle der dünneren Barrierendicken wird auch die strahlende Rekombination unter verschiedenen höheren Elektronen- und Lochzuständen wahrscheinlicher. Bezieht man zusätzlich die Feldeffekte der räumlich getrennten Population mit ein, werden vorhandene Übergangsregeln aufgeweicht. Auf diese Weise kann daher die energetische Breite der PL aufgrund der größeren Zahl von erlaubten und wahr-



scheinlicheren Übergängen zur strahlenden Rekombination zunehmen. Der Einfluss von Feldeffekten wird im folgenden Abschnitt weiter ausgeführt.

Schließlich wird für den Fall der geringsten Barrierendicke im Zeitbereich vor der Zeitnull ein schwaches Signal (gelblich) unterhalb von 1.0 eV sichtbar. Dies ist im Rahmen der TRPL-Methode mithilfe einer Streak-Kamera als sogenanntes „Back-Sweep“-Signal bekannt. Aufgrund einer sehr langlebigen strahlenden Rekombination im Bereich von mehreren ns wird beim Rücklauf der Ablenkspannung für die zeitliche Zuordnung des Elektronenstrahls ein residuales Signal dem Hauptsignal beim Hinlauf der Ablenkspannung überlagert. Für eine detaillierte Erklärung wird auf vorangegangene Arbeiten wie [11] verwiesen. Prinzipiell wäre auch eine mathematische Entfaltung des Signals möglich, was hier jedoch nicht sinnvoll anwendbar ist.

Aufgrund der räumlichen Trennung der Elektronen- und Lochpopulation erwartet man sehr lange Lebensdauern jenseits der Größenordnung von wenigen ns für typische direkte Übergänge. In GaAs/AlAs Strukturen sind energetisch relaxierte Elektronen- und Lochpopulationen sowohl räumlich als auch im k-Raum indirekt, was indirekte Lebensdauern im Bereich von  $\mu\text{s}$  zur Folge hat [7]. Im vorliegenden Fall muss entsprechend über die Dicke der Barriere argumentiert werden. Da keine Trennung im k-Raum vorliegt, kann für einen signifikanten Überlapp von Elektronen- und Loch-Wellenfunktionen für eine dünne Barrierendicke die strahlende Rekombination die Lebensdauer dominieren. Hier würde man daher Lebensdauern im Bereich von zehn oder hunderten von ns erwarten. Nimmt dieser Überlapp der Wellenfunktion dagegen mit steigender Barrierendicke ab, so kann die strahlende Rekombination der indirekten Populationen die Lebensdauern kaum beeinflussen. Hier sollten nichtstrahlende Prozesse eine zunehmende Rolle spielen durch die Rekombination an Defekten und tiefen Störstellen. Die daraus resultierenden Lebensdauern sind schwerlich ab initio abzuschätzen, da hier entsprechend die Materialqualität eine entscheidende Rolle spielt. Für GaAs/AlAs/GaAs-Strukturen mit einer 10 nm Barriere und sehr guter Materialqualität findet man beispielsweise Lebensdauern bis in die Größenordnung von einer Millisekunde [72].

Bezüglich des hier vorliegenden Materialsystems weiß man aus vorangegangenen Arbeiten [30], dass der Einbau von Stickstoff die Dichte nichtstrahlender Rekombinationszentren signifikant erhöht. Die wahrscheinliche Rekombinationszeit sollte daher nicht im Millisekunden-Bereich sondern eher zwischen vielen ns bis  $\mu\text{s}$  liegen.

Aufgrund der Wiederholrate des hier verwendeten Oszillators findet alle 12.5 ns eine erneute Anregung des Systems statt. Zusammen mit der vorangegangenen Diskussion der Lebensdauern wird daher klar, dass eine erhebliche Anhäufung von La-

ladungsträgern in den Quantenfilmsystemen stattfinden muss. Dies hat zur Folge, dass eine Aussage über die tatsächliche indirekte Rekombinationsdynamik innerhalb dieses Experiments nicht getätigt werden kann. Darüberhinaus muss im weiteren Verlauf berücksichtigt werden, dass die Anregungsdichten und die tatsächlich erzeugten Ladungsträgerdichten in diesem Experiment abhängig von der Lebensdauer der Systeme sind, was den direkten Vergleich der Dynamik in diesem Experiment erschwert.

In diesem Zusammenhang soll auch die Dynamik der PL vorgestellt werden, wie man sie aus sukzessiver zeitlicher Verschiebung der Ablenkspannung gegenüber dem Zeitpunkt der Anregung erhalten kann. Auf diese Weise lässt sich die Dynamik über einen Zeitbereich bis zu 6 ns erfassen. Die hier nicht gezeigten Transienten der PL aus indirekten Übergängen lassen sich durch einen bi-exponentiellen Verlauf mit einer kurzen und einer langen Lebensdauer im Bereich von wenigen ns anpassen. Dabei stellt man fest, dass die zweite, längere Lebensdauer des Verlaufs mit steigender Barrierendicke signifikant abnimmt. Dieser scheinbare Widerspruch zur eingangs diskutierten steigenden Ladungsträgerlebensdauer mit zunehmender Barrierendicke lässt sich dennoch im oben beschriebenen Zusammenhang verstehen.

Als Hauptgrund muss die stark erhöhte Ladungsträgerdichte mit steigender Barrierendicke angeführt werden, da wie bereits diskutiert, die erwarteten Lebensdauern der indirekten Population in einem engen Zusammenhang mit den Wahrscheinlichkeiten zur strahlenden Rekombination stehen. Auf diese Weise gelangt man bei nominell gleichen Anregungsdichten zu wesentlich höheren Ladungsträgerdichten bei der größten Barriendicke.

Eine stark erhöhte Ladungsträgerdichte kann zweierlei bewirken. Zum einen könnte nach und nach die begrenzte Zahl an gebundenen Lochzuständen im (GaIn)As-Quantenfilm für kleine  $k$  aufgefüllt werden. Gleichzeitig muss in der Bandstruktur der Einfluss des elektrischen Feldes nach der Poisson-Gleichung für die vorliegende Ladungsträgerverteilung berücksichtigt werden. Vereinfacht lässt sich die Veränderung der Bandstruktur durch Dreiecks-Potentiale annähern [74], deren Konsequenzen für die Energieniveaus im nächsten Abschnitt besprochen werden. Ein mögliches Szenario zur Erklärung der strahlenden Rekombination wäre daher die Ausbildung einer lokalisierten Lochverteilung angrenzend an den Ga(NAs)-Quantenfilm aufgrund der veränderten Bandstruktur und der gefüllten Lochzustände in der (GaIn)As-Schicht. Weiterhin spielen andere Effekte bei hohen Ladungsträgerdichten eine zunehmend wichtige Rolle wie die Auger-Rekombination. Bei diesem Drei-Teilchen-Prozess kommt es zur Rekombination eines Elektron-Loch-Paares, wobei die freiwerdende Energie an einen weiteren Ladungsträger abgegeben wird, dessen Energie sich entsprechend er-

höht. Nicht zuletzt beeinflusst die erhöhte Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung die Dynamik des Systems stark, so dass insgesamt von einer im k-Raum sehr ausgedehnten Nicht-Gleichgewichtsverteilung ausgegangen werden muss, welche aufgrund der großen Zahl an Ladungsträgern bis in den ns-Bereich bei einer hohen Temperatur verbleibt.

Zusammen mit der stark abnehmenden Signalstärke mit zunehmender Barrierendicke verschiebt sich daher der Charakter der PL von einer strahlenden Rekombination eines indirekten Übergangs hin zur strahlenden Rekombination innerhalb einer im Realraum und k-Raum hochangeregten Verteilung.

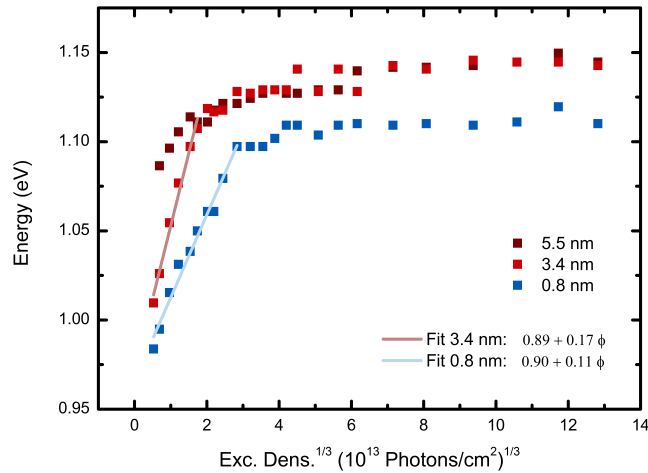
Dies klärt schließlich auch, warum ein deutlicher „Back-Sweep“ lediglich für den Fall der geringsten Barriendicke erscheint. Auch unabhängig von der geringeren Ladungsträgerdichte und -temperatur ist für die geringste Barriendicke die strahlende Rekombination aus den Elektronenzuständen im Ga(NAs) und den Lochzuständen im (GaIn)As als indirekter Übergang ein effizienter strahlender Rekombinationskanal. Dies wird nicht zuletzt auch durch den niedrigsten Wert der Emissionsenergie aller drei Systeme bekräftigt.

Für die Systeme mit größerer Barriendicke ist für diese Messanordnung das PL-Signal durch die Emission der hochangeregten Verteilung und großen Dichte an Ladungsträgern dominiert, so dass die Energie der Emission und die Abklingzeiten zunächst wenig Rückschlüsse auf die tatsächliche indirekte Rekombinationsdynamik zulassen.

### 5.4.1 Blauverschiebung

In diesem Abschnitt wird nun systematisch die Abhängigkeit von der Anregungsdichte untersucht. In Abb. 5.8 ist die Energie der PL der indirekten Übergänge für die größte (dunkelrot), mittlere (rot) und geringste (blau) Barriendicke dargestellt. Die Energien sind über die dritte Wurzel der Anregungsdichte aufgetragen wie es im weiteren Verlauf diskutiert wird.

Insgesamt ist für alle Systeme eine Blauverschiebung mit steigender Anregungsdichte festzustellen. Dies ist im Einklang mit vielen Untersuchungen zur Anregungsabhängigkeit der PL aus Typ-II Strukturen [69, 75, 13, 81, 38]. Zunächst muss der Ausdruck für die Anregungsdichte  $\phi$  und die Dichte der Ladungsträger  $n$  betrachtet werden. In einem stark vereinfachten Modell [69] kann im Gleichgewicht zwischen Erzeugung und strahlender Rekombination davon ausgegangen werden, dass mit einem bestimmten Proportionalitätsfaktor die Dichte der Ladungsträger und die eingestrah-



**Abb. 5.8:** Auftragung der Energie der PL des indirekten Übergangs für die größte (dunkelrot), mittlere (blau) und geringste (rot) Barrierendicke. Mit steigender Anregungsdichte  $\phi$ , welche als dritte Wurzel in Einheiten von  $10^{13}$  Photonen/cm $^2$  aufgetragen wurde, erkennt man eine Verschiebung zur höheren Energien. Diese Blauverschiebung folgt für die mittlere und geringste Barrierendicke einer linearen Funktion mit einem Achsenabschnitt von 0.89 eV (hellrot) und 0.90 eV (hellblau) respektive.

te Intensität  $I$  bzw. Anregungsdichte  $\phi$  nach  $n^2 \propto I \propto \phi$  zusammenhängt. Diese Annahme lässt sich zumindest teilweise durch den Anhäufungseffekt und das zeitintegrierte PL-Signal rechtfertigen.

Nach [74] lassen sich die Feldeffekte der räumlich getrennten Population als Dreieckspotential beschreiben, welches eine zusätzliche räumliche Einschränkung (engl. „confinement“) bedeutet. Die daraus resultierende Anhebung der Energie  $E_c$  weist letztlich eine Proportionalität zur Ladungsträgerdichte auf:  $E_c \propto n^{2/3}$  [81, 13]. Insgesamt lässt sich die Blauverschiebung aufgrund des Feldeffekts des indirekten Typ-II-Übergangs daher beschreiben durch

$$E_{PL}(\phi) = E_0 + \alpha \cdot \phi^{1/3} \quad (5.6)$$

mit einer Proportionalitätskonstanten  $\alpha$ .

Letztlich zeigen genauere Untersuchungen der Blauverschiebung [38] einen variierenden Exponenten zwischen  $m = 1/2 \dots 1/4$  für sehr geringe bzw. sehr hohe Ladungsträgerdichten. Innerhalb dieser Auswertung kann lediglich auf eine effektive Ladungsträgerdichte aufgrund des Anhäufungseffekts zurückgegriffen werden, weshalb hier vereinfacht eine  $m = 1/3$  Abhängigkeit angenommen wurde. Für ein verbessertes Modell müssten natürlich andere experimentelle Bedingungen geschaffen

werden, wonach die tatsächliche Ladungsträgerdichte bestimmt werden kann.

Man erkennt für die vorliegenden Systeme mit einer variablen Barrierendicke eine Sättigung der Verschiebung für höhere Anregungsdichten. Konsistent mit der vorangegangenen Diskussion erkennt man, dass für nominell gleiche Anregungsdichten die Sättigung der Blauverschiebung für die geringste Barriendicke später eintritt als für das System der mittleren Barrierendicke. Die größte Barriendicke ist dagegen zwar blauverschoben, jedoch scheint sich kein abgesetzter linearer Verlauf in dieser Auftragung herauszubilden. Konsistent ist jedoch, dass insbesondere im Bereich niedrigerer Anregungsdichten die Emissionsenergien zur nominell gleichen Anregungsdichte sich gestaffelt entsprechend der tatsächlichen zunehmenden Ladungsträgerdichte mit zunehmender Barriendicke verhält. Dies ist erneut vor dem Hintergrund der zunehmenden Lebensdauern aufgrund des Anhäufungseffekts zu verstehen.

Die Anpassung der entsprechenden Funktion ergibt einen linearen Verlauf für die mittlere (hellrot) und geringste Barrierendicke (hellblau). Als Energien der entsprechenden indirekten Übergänge durch die Barrieren hindurch lassen sich demnach ohne Feldeffekte 0.89 eV bzw. 0.90 eV angeben. Interessant ist hierbei, dass der größere Proportionalitätsfaktor der mittleren Barriere konsistent mit einem größeren Feldefekt aufgrund der größeren räumlichen Trennung zu sein scheint.

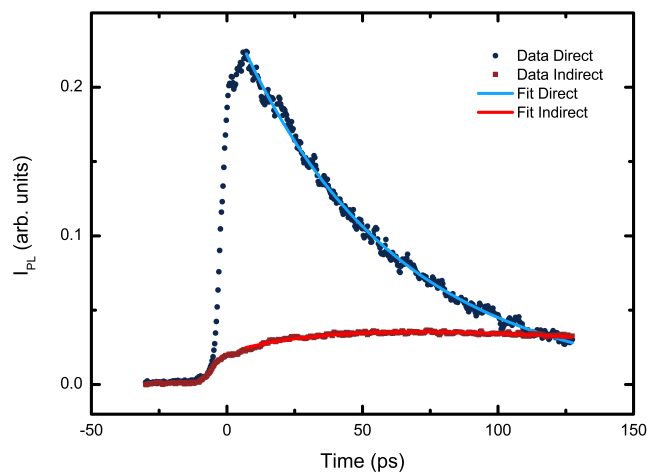
Die genannten Energien sind im Zusammenhang mit der Betrachtung der Bandstruktur in Abb. 5.5 für einen indirekten Übergang aus der (GaIn)As-Schicht zur Ga(NAs)-Schicht prinzipiell plausibel. Zusätzlich müsste jedoch die Energieanhebung aufgrund der räumlichen Einschränkung berücksichtigt werden. Zusammen mit den Ergebnissen der Dauerstrich-PL [27] oberhalb von 0.9 eV erscheinen die berechneten Energien dennoch grundsätzlich realistisch.

### 5.4.2 Ratenmodell

Aus den in Abb. 5.7 gezeigten TRPL Messungen konnte bereits der Schluss gezogen werden, dass im Falle der größten Barriendicke eine Transferzeit aus dem allmählichen Anstieg der indirekten PL sichtbar wird.

Der direkte Vergleich der Zeitabhängigkeit ist für das direkte (dunkelblau) und indirekte Signal (dunkelrot) in Abb. 5.9 gezeigt. Dabei wurden die Intensitäten des direkten und indirekten Übergangs über einen festgesetzten Bereich in der Energie integriert.

Insbesondere im Vergleich zur zeitaufgelösten PL der direkten Strukturen mit geringerer Stickstoffkonzentration ist hier ein deutlich schnellerer Abfall des Signals des



**Abb. 5.9:** Exemplarischer zeitlicher Verlauf der Intensität der Photolumineszenz der 5.5 nm breiten Barriere unter quasi-resonanter Anregung mit einer Photonendichte von  $3.8 \cdot 10^{13}$  Photonen/cm<sup>2</sup>. Die Messpunkte bilden Transienten zu den Energien des direkten (dunkelblau) und des indirekten Übergangs (dunkelrot). Zusätzlich ist die simultane Anpassung durch ein Ratenmodell für den direkten (blau) und den indirekten (rot) Übergang gezeigt.

direkten Übergangs festzustellen. Aufgrund der energetischen Struktur des Leitungsbandes für Elektronen kann dieser Abfall daher dem Transfer von Elektronen aus der (GaIn)As-Schicht in die Ga(NAs)-Schicht zugeordnet werden, bei der ein quantenmechanisches Tunneln durch eine endlich hohe Potentialbarriere stattfindet.

In vielen vorangegangenen Arbeiten [87, 8, 98, 88] wurde aus dem Abfall der direkten PL bereits eine Transferzeit abgeleitet, in anderen Arbeiten wie [18] wiederum diente der Anstieg der indirekten PL zur Ermittlung einer Transferzeit.

Durch das simultane Erfassen der Zeitverläufe sowohl des direkten als auch des indirekten Übergangs sollte das zeitliche Verhalten beider Signale durch eine einzige Transferzeit charakterisiert werden können, die den Zusammenhang beider Verläufe nachbildet.

Es wird daher ein Ratenmodell angesetzt, um die Signalverläufe beschreiben zu können. Dabei steht der Index 1 für den direkten Übergang in der (GaIn)As-Schicht während der Index 2 den indirekten Übergang in der Ga(NAs)-Schicht beschreibt.

In dieser stark vereinfachten Version wird nicht näher auf die genaue Dynamik des Elektronen- und Lochsystems eingegangen. Im Speziellen bleiben nichtstrahlende Prozesse und das teilweise kombinierte Lochsystem beider Übergänge unberücksichtigt. Hier wird lediglich die gemessene Intensität  $I$  in beliebigen Einheiten mit einer Zahl von strahlend rekombinierenden Elektron-Lochpaaren des direkten Übergangs

$n_1$  und des indirekten Übergangs  $n_2$  korreliert. Aufgrund der reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten für die indirekten Übergänge wird dort ein Skalierungsfaktor  $B$  für die Intensitäten eingeführt.

Für die strahlende Rekombination des direkten Übergangs wird die zeitliche Entwicklung der Zahl  $n_1$  mit der Rekombinationszeit des direkten Übergangs  $\tau_1$  verknüpft, ebenso reduziert sich die Zahl durch den besagten Transfer von Elektronen mit der Tunnelzeit  $\tau_{1\rightarrow 2}$ . Über diese Zeitkonstante wird die Zunahme der Zahl aus der Rekombination des indirekten Übergangs  $n_2$  modelliert. Weiterhin existiert auch hier eine Rekombinationszeit  $\tau_2$ , welche für ein langfristiges Abklingen verantwortlich ist. Wie bereits erwähnt wird hier mit dem Faktor  $B$  skaliert, so dass man letztlich die folgenden gekoppelten Differentialgleichungen erhält:

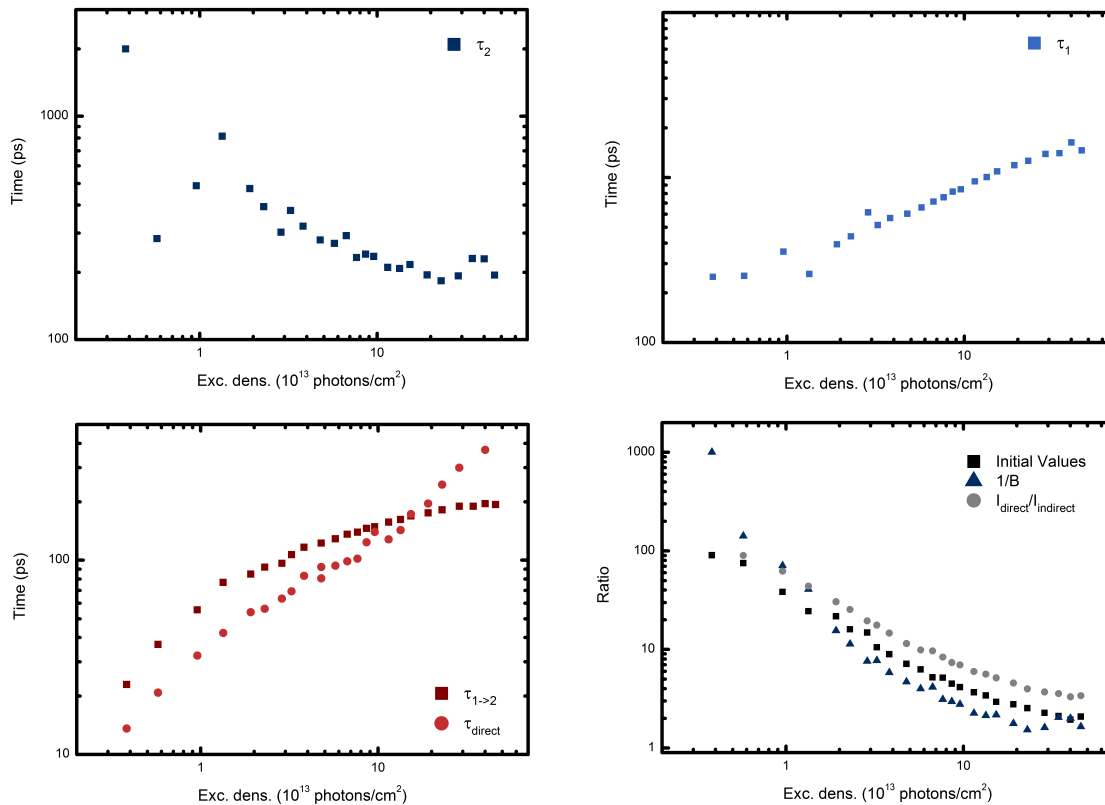
$$\frac{dn_1}{dt} = -\tau_1 n_1 - \tau_{1\rightarrow 2} n_1 \quad (5.7)$$

$$\frac{dn_2}{dt} = B \cdot (\tau_{1\rightarrow 2} n_1 - \tau_2 n_2) \quad (5.8)$$

Durch die Anpassung der Zeitkonstanten  $\tau$ , des Skalierungsfaktors  $B$  und der Anfangswerte für  $n_1$  und  $n_2$  können letztlich die Transienten simultan angepasst werden. Exemplarisch ist eine solche Anpassung in Abb. 5.9 für den direkten Übergang mit  $n_1$  (hellblau) und den indirekten Übergang mit  $n_2$  (rot) gezeigt, die den zeitlichen Verlauf der experimentellen Daten recht gut wiedergibt.

Im nächsten Schritt wurde die Anpassung dieser Parameter jeweils simultan an einem Datensatz von direkten/indirekten Transienten über einen weiten Bereich von Anregungsdichten von  $0.38 \dots 46 \cdot 10^{13}$  Photonen/cm<sup>2</sup> vorgenommen. Eine Übersicht über die erhaltenen Parameter findet sich in Abb. 5.10. Neben den Parametern aus der Anpassung des Ratenmodells wurden zusätzlich separat ermittelte Parameter eingezeichnet, so dass letztlich die Aussagekraft dieses Ratenmodells überprüft werden kann.

Zunächst werden in der Auftragung in Abb. 5.10 rechts unten drei intensitätsabhängige Parameter verglichen. Zum einen ist der reziproke Skalierungsfaktor  $1/B$  (blau) und das Verhältnis der Anfangswerte  $n_{1,initial}/n_{2,initial}$  (schwarz) gezeigt. Zum anderen sind zusätzlich die manuell ermittelten Intensitäten der PL des direkten und indirekten Übergangs eingezeichnet (grau). Es zeigt sich für alle drei Parameter eine sehr starke Abhängigkeit von der Anregungsdichte über zwei Größenordnungen. Dabei liegen die Anfangswerte des Ratenmodells (schwarz) systematisch leicht versetzt



**Abb. 5.10:** Übersicht über die Parameter des Ratenmodells für das System der 5.5 nm breiten Barriere doppelt-logarithmisch gegen die Anregungsdichte aufgetragen.

**Links oben:** Zeitkonstante  $\tau_2$  des indirekten Übergangs, welche den anschließenden Signalabfall zu späten Zeiten beschreibt.

**Rechts oben:** Zeitkonstante  $\tau_1$  des direkten Übergangs für den Signalabfall des direkten Übergangs ohne Transfer.

**Links unten:** Zeitkonstante des Transfers  $\tau_{1 \rightarrow 2}$  (dunkelrot) zusammen eingetragen mit der manuell bestimmten Abklingzeit  $\tau_{\text{direct}}$  (rot) des direkten Übergangs. Für geringe Leistungen wird demnach die Abklingzeit  $\tau_{\text{direct}}$  hauptsächlich vom Ladungsträgertransfer bestimmt bis für hohe Leistungen eine Sättigung der Transferzeit eintritt was die Abklingzeit  $\tau_{\text{direct}}$  unabhängig von  $\tau_{1 \rightarrow 2}$  weiter steigen lässt.

**Rechts unten:** Verhältnis der Anfangswerte des Ratenmodells (schwarz) sowie der Skalierungsfaktor des Ratenmodells  $1/B$  (blau) und das unabhängige experimentell ermittelte Verhältnis der Intensitäten des direkten und des indirekten Übergangs (grau).



unterhalb des Intensitätsverhältnis bis es zu einer beginnenden Sättigung für sehr geringe Anregungsdichten kommt. Im selben Bereich zu sehr niedrigen Anregungsdichten nimmt dagegen der reziproke Skalierungsfaktor (blau) sehr stark zu, nachdem er zu hohen Anregungsdichten die übrigen Parameter gekreuzt hat.

Insgesamt erscheint eine Sättigung des Verhältnis der Anfangswerte für geringe Anregungsdichten plausibel, da durch den geringeren Anhäufungseffekt eine stärkere Absorption des direkten Übergangs begünstigt wird.

Ebenso kann das starke Ansteigen des reziproken Skalierungsfaktors zu niedrigen Anregungsdichten über das mit dem Anhäufungseffekt verbundene abnehmende elektrische Feld verstanden werden, wodurch der Überlapp reduziert wird.

In der Auftragung in Abb. 5.10 oben links ist die Zeitkonstante  $\tau_2$  als Parameter des Ratenmodells gezeigt. Aufgrund des kurzen Zeitausschnitts bis etwa 150 ps nach der Anregung ist dieser Parameter kaum relevant. Ohnehin ist – wie bereits eingangs diskutiert – diese Zeitkonstante lediglich ein Hinweis auf das anfängliche zeitliche Verhalten des hochangeregten Systems und muss nicht mit der wirklichen Rekombinationszeit des indirekten Übergangs  $\text{hh1-(GaIn)As-c1-Ga(NAs)}$  zusammenhängen, die hier nicht erfassbar ist. Dennoch erscheint es prinzipiell plausibel, dass die Zeitkonstante  $\tau_2$  für das hochangeregte System mit verringerter Anregungsdichte größer wird. Aufgrund der geringen Relevanz soll die Diskussion dieser Größe nicht weiter ausgedehnt werden.

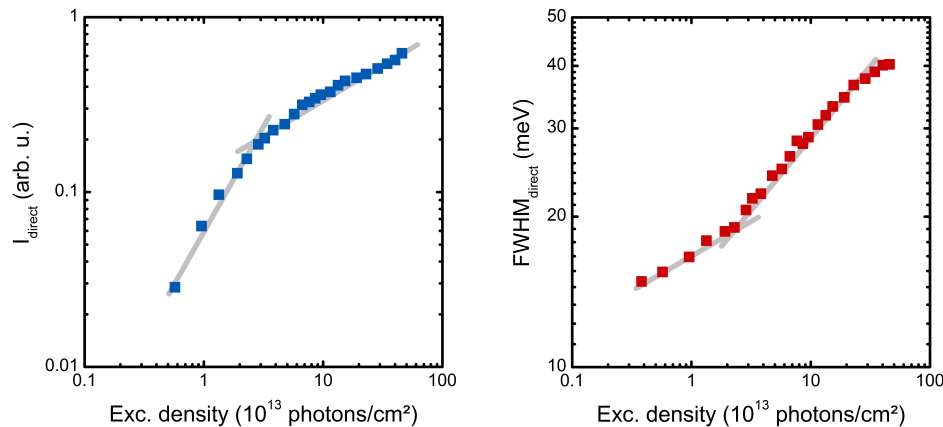
In Abb. 5.10 oben rechts findet sich die Zeitkonstante  $\tau_1$ . Für niedrige Anregungsdichten ist diese Größe für das Abklingverhalten der PL des direkten Übergangs nicht entscheidend, da sie stets mehr als 200 ps beträgt.

Kombiniert mit der Betrachtung der Tunnelzeit  $\tau_{1\rightarrow 2}$  in Abb. 5.10 unten links (dunkelrot), erkennt man, dass diese Größe die Dynamik der PL des direkten Übergangs dominiert, da sie stets einen geringeren Wert als  $\tau_1$  aufweist. Interessant ist es hierbei, die manuell ermittelten Abklingzeiten der PL des direkten Übergangs mit einzu- beziehen, welche in der Abb. unten links als  $\tau_{\text{direct}}$  (hellrot) dargestellt sind. Deutlich ist ab etwa  $10 \cdot 10^{13}$  Photonen/cm<sup>2</sup> ein weiteres Ansteigen der Zeitkonstante  $\tau_{\text{direct}}$  zu verzeichnen, während die Werte der Transferzeit  $\tau_{1\rightarrow 2}$  eine Art Sättigungsverhalten mit der Anregungsdichte bis etwa 200 ps aufweisen. Gleichzeitig zeigt sich ähnlich der Zeitkonstanten  $\tau_1$  ein in doppelt logarithmischer Auftragung ähnlich steigender Verlauf, so dass die weitere Zunahme der Zeitkonstanten  $\tau_{\text{direct}}$  aufgrund der Sättigung der Transferzeit durch die Zunahme von  $\tau_1$  erklärt werden kann.

Die Sättigung der Transferzeit im hochangeregten System lässt sich über die Abnahme der Zeitkonstanten  $\tau_2$  verstehen. Aufgrund der hohen Dichte von Ladungsträgern

nimmt die Zeitkonstante der PL des indirekten Übergangs  $\tau_2$  durch andere effektive nichtstrahlende Prozesse deutlich ab. Dadurch entstehen freie Zustände, die aus dem (GaIn)As-Quantenfilm besetzt werden können. Auf diese Weise bildet sich ein Gleichgewicht zwischen frei werdenden Zuständen im Ga(NAs)-Quantenfilm und des Transfers, so dass sich letztlich die Zeitkonstanten  $\tau_2$  und  $\tau_{1 \rightarrow 2}$  annähern, während die weitere Erhöhung der Ladungsträgerzahl die Abklingzeit des direkten Übergangs über  $\tau_1$  erhöht.

Bis zu einer Anregungsdichte um etwa  $1.3 \cdot 10^{13}$  Photonen/cm<sup>2</sup> lässt sich bezüglich der Transferzeit ein anderes Dynamik-Regime ausmachen als jenseits davon. Dies zeigt sich letztlich auch in den Kenngrößen der Halbwertsbreite der PL des direkten Übergangs welche in Abb. 5.11 gezeigt sind.



**Abb. 5.11:** Auswertung der Kenngrößen der PL des direkten Übergangs für den Fall der 5.5 nm breiten Barriere für die Intensität (links, blau) und der Halbwertsbreite (FWHM) (rechts, rot) der PL in willkürlichen Einheiten doppelt-logarithmisch gegen die Anregungsdichte aufgetragen. Es wird für beide Parameter ein Regime unterhalb von etwa  $2 \cdot 10^{13}$  Photonen/cm<sup>2</sup> und oberhalb davon sichtbar, welches im Zusammenhang mit den gewonnenen Parametern des Ratenmodells zwei unterschiedliche Bereiche der Dynamik aufgrund des Anhäufungseffekts aufzeigt.

Aus der Auftragung der Intensität gegenüber der Anregungsdichte in Abb. 5.11 (links) erkennt man in doppelt logarithmischer Auftragung ein Abflachen der Eingangs-Ausgangs-Charakteristik ab etwa  $2 \cdot 10^{13}$  Photonen/cm<sup>2</sup>. Dies lässt sich typischerweise über die Zunahme nichtstrahlender Rekombinationskanäle aufgrund der hohen Ladungsträgerdichte erklären.

Ebenso zeigt sich ein sprunghafter Anstieg der vollen Halbwertsbreite (FWHM) der PL des direkten Übergangs in Abb. 5.11 (rechts) um etwa  $2 \cdot 10^{13}$  Photonen/cm<sup>2</sup>, was konsistent ist mit einer höheren Ladungsträgerdichte und -temperatur, die sich

aufgrund des Anhäufungseffekt in einem neuen Gleichgewichts-Regime einstellt.

Insgesamt kann anhand separat ermittelter Parameter die Beschreibung des hochangeregten Ladungsträgersystems bestätigt werden und es zeigt sich ein konsistentes Bild. Damit lassen sich drei Bereiche unterscheiden.

Zum einen der Bereich niedriger Anregungsdichten bis etwa  $2 \cdot 10^{13}$  Photonen/cm<sup>2</sup>, welcher insbesondere durch stark sinkende Transferzeiten, rasches Ansteigen des reziproken Skalierungsfaktors  $1/B$  und einen anregungsunabhängigen Wert der anfänglichen  $n_{1,initial}$  und  $n_{2,initial}$  gekennzeichnet ist. Interessant wäre es, diesen Bereich weiterzuverfolgen, um letztlich die nahezu ungestörten Parameter des Transfers zu erhalten. Aufgrund der geringen Signalstärken ist dies in diesem Experiment jedoch nicht realisierbar.

Es folgt für mittlere Anregungsdichten eine Umstellung des Quasi-Gleichgewichts durch den Anhäufungseffekt, welcher durch vermehrte nichtstrahlende Prozesse charakterisiert ist, wie es insbesondere die Intensitätsabhängigkeit der PL des direkten Übergangs zeigt.

Schließlich kann aus den Parametern des Ratenmodells und der separat ermittelten Zeitkonstante des direkten Übergangs ein dritter Bereich ab etwa  $10 \cdot 10^{13}$  Photonen/cm<sup>2</sup> festgestellt werden. Hier gelangen die Abklingzeit des indirekten Übergangs  $\tau_2$  und die Transferzeit  $\tau_{1 \rightarrow 2}$  in Übereinstimmung, weil die möglichen Zustände des indirekten Übergangs gesättigt sind, so dass die Zeitkonstante  $\tau_1$  unabhängig von der Transferzeit mit der Anregungsdichte steigt.

Während die Beschreibung unterschiedlicher dynamischer Gleichgewichtszustände des Systems konsistent mit allen ermittelten Parametern vorgenommen wurde, bleibt die Dynamik des ungestörten Systems aufgrund der niedrigen Signalniveaus und des Anhäufungseffekts in diesem Experiment nicht zugänglich.

## 5.5 Transferzeiten

Aufgrund der niedrigen Wiederholraten der Anregung im Aufbau zur Anrege-Abfrage-Spektroskopie kann bei dieser Technik davon ausgegangen werden, dass sich nach 1 ms das System wieder im Grundzustand befindet. Explizit wird dieser Umstand bei der Diskussion der spektralen Signaturen später deutlich.

Wie in der Einleitung erwähnt wurde, ist diese Methode bereits ausführlich für den  $\Gamma$ -X-Transfer angewendet worden. Für die hier betrachteten Systeme wird die Absorption des direkten Übergangs durch die Besetzung der Elektronen in c1-(GaIn)As und der Löcher in hh1-(GaIn)As gemeinsam bestimmt. Daher sollte einerseits ein Transfer

von Elektronen aus dem (GaIn)As-Quantenfilm deutlich werden. Andererseits sollte es auch möglich werden, die Rekombinationszeit der indirekten, relaxierten Population durch die verbleibenden Löcher der hh1-(GaIn)As-Zustände näher einzuzugrenzen.

Zunächst soll ein vereinfachtes Modell des Tunnelns durch eine Potentialbarriere rekapituliert werden. Anschließend wird eine Analyse der Linienform aus der linearen Absorption der indirekten Proben vorgenommen, bevor schließlich auf die Transferdynamik der mittleren und größten Barrierendicke eingegangen wird. Abschließend werden die auf diese Weise gewonnen experimentellen Transferzeiten mit dem theoretischen Modell verglichen und diskutiert.

### 5.5.1 Modell zur Tunnelzeit

In einem stark vereinfachten Modell nach [87] wird von einem Quantenfilm ausgegangen, welcher durch eine endliche Potentialbarriere von einem energetisch niedrigeren Zustand getrennt ist. Die Barriere wird dabei durch die Dicke  $b$  und die energetische Höhe  $V$  bezüglich des niedrigsten Zustands gekennzeichnet. Ferner gehen die Energie der Elektronen im Quantenfilm  $E$  und das Verhältnis der effektiven Massen  $r$  der Elektronen im Quantenfilm und in der Barriere als  $r = m_B/m_Q$  ein.

Die Tunnelwahrscheinlichkeit  $T$  kann dann als analytischer Ausdruck angegeben werden [87, 66]:

$$T = \frac{4r(V-E)E}{[(r-1)E+V]^2 \cdot \sinh^2 \left[ \frac{b}{\hbar} \sqrt{2m_B(V-E)} \right] + 4r(V-E)E} \quad (5.9)$$

Zur Berechnung der Tunnelzeit  $\tau$  kann nun angenommen werden, dass ein Elektron mit einer Frequenz  $f$  mehrfach gegen die Potentialbarriere stößt. Die Frequenz  $f$  für ein einseitiges Tunneln erhält man über die Geschwindigkeit und Länge:

$$f = \frac{1}{2} \cdot \frac{1}{d_Q} \cdot v \quad (5.10)$$

Dabei ist  $d_Q$  die Breite des Quantenfilms, während die Elektronengeschwindigkeit  $v$  durch  $v = \sqrt{2E/m_W}$  gegeben ist.

Für eine  $1/e$  Wahrscheinlichkeit von Elektronen im Quantenfilm müssen nun  $n$  Stöße ausgeführt werden:  $(1-T)^n = 1/e$ .

Insgesamt ergibt sich dann die Tunnelzeit aus der Frequenz und Zahl der einseitigen Stöße zu  $\tau = n/f$ .

Mit den Werten  $r = 0.067/0.055$ ,  $V = 0.76$  eV und  $E = 0.62$  eV sowie  $d_Q = 10$  nm wurden die Tunnelzeiten für alle drei Barrierendicken  $b$  berechnet. Die Resultate sind

zusammen mit den experimentellen Daten in Tab. 5.2 gezeigt und werden am Ende dieses Abschnitts gemeinsam besprochen.

### 5.5.2 Analyse der Linienform

Man unterscheidet zwei Hauptbeiträge zur Verbreiterung einer Resonanz wie sie in der linearen Absorption sichtbar werden. Die inhomogene Verbreiterung kann im Bild eines Ensembles von Resonatoren als zufällige Verteilung verschiedener Resonanzfrequenzen verstanden werden, weshalb hier die Linienform durch eine Gauss-Funktion beschrieben wird. Für die Quantenfilmstrukturen ist dies einerseits durch Fluktuation der Breite innerhalb des Quantenfilms und der Quantenfilme zueinander verursacht. Andererseits sind durch die große räumliche Ausdehnung des Wannier-Exzitons stets Unterschiede in der lokalen ternären Komposition vorhanden was die dielektrische Umgebung und damit die Resonanzenergie beeinflusst.

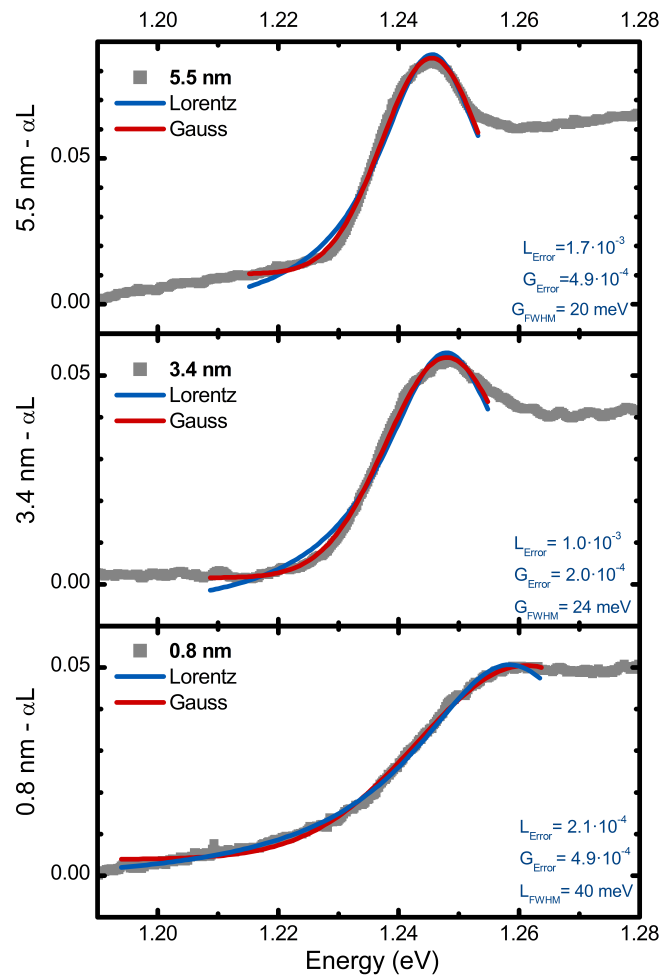
Zum anderen ist ein fundamentaler Beitrag durch die Lebensdauer selbst gegeben, welche über die Heisenbergsche Unschärferelation mit der Energie verknüpft ist. Bezüglich der linearen Absorption eines Halbleiters ist die Dephasierungszeit der Polarisation, welche die Resonanzen umfasst, für die sogenannte homogene Verbreiterung verantwortlich. Sie kann durch ein Lorentz-Profil angepasst werden.

Zur genauen Bestimmung der dominierenden Beiträge der indirekten Strukturen wurde eine erneute Messung der linearen Absorption mit höherer Auflösung durchgeführt. Die Ergebnisse für den  $hh1-c1-(GaIn)As$ -Übergang sind in Abb. 5.12 aufgetragen.

Mit von oben nach unten zunehmender Barrierendicke sind die Messdaten als Punkte (grau) gezeigt. Für jede Messung wurde sowohl die Anpassung einer Lorentz-Funktion (blau) als auch einer Gauss-Funktion (rot) vorgenommen. Die Summe der quadratischen Abweichungen zu den Daten ist als Fehler jeweils unten rechts als  $L_{Error}$  und  $G_{Error}$  bezüglich der Lorentz- und Gauss-Anpassung angegeben.

Für die größte Barriendicke ergibt sich eine gaussförmige Anpassung wie auch anhand des geringeren Fehlerquadrats gegenüber einer Lorentz-Funktion deutlich wird. Die volle Halbwertsbreite beträgt hier etwa 20 meV, während für die mittlere Barriendicke ebenfalls eine Gaussfunktion mit einer Halbwertsbreite von 24 meV die Linienform beschreibt. Auch hier ist ein deutlicher Unterschied in der Summe der quadratischen Fehler für die Anpassung einer Lorentz-Funktion zu sehen.

Vergleicht man dagegen die Fehlerquadrate für die Anpassungen im Fall der geringsten Barriendicke, so liegt dieser Wert im Falle der Lorentz-Funktion unterhalb



**Abb. 5.12:** Analyse der Verbreiterung der linearen Absorptionen mit von oben nach unten abnehmender Barrierendicke des hh1-c1-(GaIn)As-Übergangs der indirekten Strukturen. Die absoluten Werte der Energien wurden zu Abb. 5.14 angepasst. Neben der jeweiligen Auftragung der Anpassung einer Lorentz- (blau) und Gauss-Funktion (rot) sind für jedes System die volle Halbwertsbreite und die Summe der quadratischen Abweichungen für die Lorentz- und Gauss-Anpassung als  $L_{Error}$  und  $G_{Error}$  angegeben. Während für die mittlere und größte Barrierendicke die Resonanz am besten durch eine Gauss-Funktion beschrieben wird, findet man für die geringste Barrierendicke eine dominierende Lorentz-Verbreiterung.

dessen der Gauss-Funktion. Auch im Graphen selbst erkennt man insbesondere für die niederenergetischen Ausläufer eine deutlich bessere Beschreibung der experimentellen Daten durch ein Lorentzprofil. Dadurch, dass für diesen Fall die Linienform durch die Lebensdauer oder die Dephasierungszeit der  $hh1-c1$ -(GaIn)As-Polarisation beschränkt ist, kann umgekehrt von der energetischen Breite  $\Delta E = 40$  meV auf diese Zeit geschlossen werden. Nach [53] erhält man auf diese Weise die Zeitkonstante  $\tau$  zu  $\tau_{0.8nm} = \frac{2\hbar}{\Delta E} = 33$  fs.

Betrachtet man in diesem Zusammenhang die lineare Absorption für den Fall der geringsten Barriertdicke wie sie in Abb. 5.6 (unten) aufgetragen ist, so wird aus dem Vergleich der direkten und indirekten Struktur deutlich, dass die Ursache für die geringe Zeitkonstante  $\tau$  dieses Übergangs in dem niedrigeren elektronischen Zustand der Ga(NAs)-Schicht liegt. Aufgrund der geringen Barriertdicke kann daher ein effektiver Transfer der Elektronen aus dem gemeinsamen  $c1$ -Zustand der (GaIn)As- und Ga(NAs)-Schicht in den energetisch günstigeren Zustand lokalisiert in der Ga(NAs)-Schicht erfolgen. Daher kann diese Zeitkonstante aus der Lebensdauer verbreiterung als Transferzeit für das System der geringsten Barriertdicke verstanden werden.

### 5.5.3 Transfer in der Anrege-Abfrage-Spektroskopie

Wie bereits erwähnt, lassen sich in der Anrege-Abfrage-Spektroskopie die zeitlichen Entwicklungen der Elektronen- und Lochdichten nachvollziehen. Dies wurde für alle indirekten Systeme unter unterschiedlichen Anregungsdichten durchgeführt, wobei die Zeitschritte nicht-linear gewählt wurden.

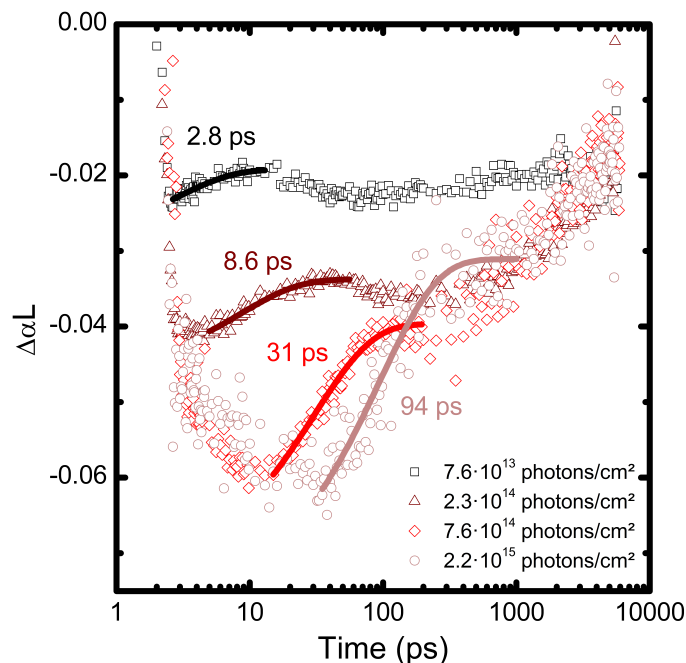
Zunächst soll die zeitliche Entwicklung besprochen werden, bevor im nächsten Kapitel intensiv die auftretenden spektralen Signaturen studiert werden. Zur Diskussion des zeitlichen Verhaltens der Systeme wird jeweils ein spektraler Bereich um die  $hh1-c1$ -(GaIn)As-Resonanz gemittelt, um das Signal-zu-Rausch-Verhältnis zu verbessern.

Exemplarisch werden in Abb. 5.13 die Transienten für den Fall der größten Barriertdicke gezeigt. Dabei wurde zur Verdeutlichung der wesentlichen Dynamikbereiche auf unterschiedlichen Zeitskalen die Verzögerungszeit logarithmisch dargestellt, wobei die Zeitnull leicht positiv verschoben wurde. Im Vergleich zu den bisherigen Messungen zur Photolumineszenz fällt die niedrigste Anregungsdichte von  $7.6 \cdot 10^{13}$  Photonen/cm<sup>2</sup> (schwarz) höher aus. Dies hat die geringere Repetitionsrate und die allgemein schwachen Absorptionssignale zur Ursache.

Man erkennt für diese und die nächstgrößere Anregungsdichte von  $2.3 \cdot 10^{14}$  Photonen/cm<sup>2</sup> (dunkelrot) zunächst einen starken Abfall der differentiellen Absorption  $\Delta\alpha L$

im Bereich von wenigen ps, bevor sich dieser bis auf einer Skala von 10 ps erholt. Anschließend stellt man erneut einen langsameren Abfall und eine sich anschließende Erholung des  $\Delta\alpha L$ -Signals auf der Skala von hunderten ps fest.

Für die nächsthöhere Anregungsdichte von  $7.6 \cdot 10^{14}$  Photonen/cm<sup>2</sup> (rot) und auch die höchste Anregungsdichte von  $2.2 \cdot 10^{15}$  Photonen/cm<sup>2</sup> (hellrot) stellt man den niedrigsten Wert der differentiellen Absorption leicht verzögert um 10 ps nach der Anregung fest. Im Vergleich mit der linearen Absorption aus Abb. 5.12 verzeichnet man ein fast vollständiges Ausbleichen der hh1-c1-(GaIn)As-Resonanz. Anschließend wird hier eine stufenförmige Erholung sichtbar ohne zwischenzeitliches Maximum wie für die geringeren Anregungsdichten.



**Abb. 5.13:** Zeitlicher Verlauf der differentiellen Absorption  $\Delta\alpha L$  an der Energie des hh1-c1-(GaIn)As-Übergangs für das System der größten Barrierendicke. Die Zeitachse ist in logarithmischer Auftragung mit einer positiv verschobenen Zeitnull gewählt. Beginnend bei niedrigen (schwarz) bis hin zu hohen Anregungsdichten (hellrot) wurde an den ersten Anstieg der differentiellen Absorption ein exponentieller Verlauf mit Zeitkonstanten zwischen 2.8 ps (schwarz) und 94 ps (hellrot) angepasst.

Die genauen Merkmale der Ladungsträgerdynamik, insbesondere der stark veränderte Verlauf bei höheren Anregungsdichten werden gemeinsam mit den spektralen Signaturen im nachfolgenden Kapitel besprochen. Anhand den Abschätzungen des semiklassischen Modells werden für die größte Barrierendicke Transferzeiten im Bereich von ps erwartet. Als Grund für die anfängliche Erholung des  $\Delta\alpha L$ -Signals lässt sich daher der Transfer von Elektronen aus den c1-(GaIn)As-Zuständen durch die Bar-



riere angeben. Die Anpassung einer Exponentialfunktion liefert Zeitkonstanten von  $\tau_{5.5nm} = 2.8$  ps (schwarz) bis zu 94 ps (hellrot) für sehr hohe Anregungsdichten.

Auf dieselbe Weise können Zeiten für die mittlere und geringste Barriertdicke gewonnen werden. Man findet auch hier einen Zusammenhang zwischen steigender Anregungsdichte und steigender Transferzeit. Im Einzelnen wurde für die mittlere Barriertdicke eine Transferzeit von  $\tau_{3.4nm} = 96$  fs bei einer Anregungsdichte von  $2.3 \cdot 10^{14}$  Photonen/cm<sup>2</sup> gefunden, für die höchsten Anregungsdichten von  $2.2 \cdot 10^{15}$  Photonen/cm<sup>2</sup> stieg die Transferzeit entsprechend auf 180 fs an. Für die geringste Barriertdicke wurde für die anfängliche sehr schnelle Erholung des Signals eine Zeit von etwa  $\tau_{0.8nm} = (37$  fs) bei einer Anregung mit  $2.3 \cdot 10^{14}$  Photonen/cm<sup>2</sup> ermittelt, ebenso stieg die Zeitkonstante auf (50 fs) für die höchsten Anregungsdichten von  $2.2 \cdot 10^{15}$  Photonen/cm<sup>2</sup>. Hierzu muss erwähnt werden, dass nach der zeitlichen Charakterisierung der anregenden Pulse nach Abb. 5.4 die Halbwertsbreite der Pulse etwa 50 fs beträgt, so dass die erwähnten Zeitkonstanten an der zeitlichen Auflösung des Systems liegen und daher nur in der Angabe der Größenordnung zu werten sind.

#### 5.5.4 Zwischenfazit

Die Ergebnisse der experimentellen Untersuchungen und die Berechnungen nach dem vereinfachten Modell sind in Tab. 5.2 zusammengefasst.

Für den Fall der geringsten Barriertdicke findet man eine gute Übereinstimmung der experimentellen Methoden untereinander – obwohl die gewonnenen Parameter aus den Anrege-Anfrage-Messungen die Grenze der Zeitauflösung des System darstellen. Hier liegt die berechnete Transferzeit aus dem Modell deutlich unterhalb der experimentellen Werte.

Grund dafür ist, dass im Modell die Relaxationszeit von Elektronen in niedrigere elektronische Zustände instantan erfolgt. Tatsächlich kann diese Relaxationszeit von Elektronen aus dem gekoppelten c1-(GaIn)As-Ga(NAs)-Zustand in den niedrigsten Ga(NAs)-Zustand als zeitlich limitierender Prozess verstanden werden. In der Literatur wird bezüglich GaAs dieser Prozess mit einer Zeitkonstanten von etwa 40 fs veranschlagt [1, 20]. Bezüglich einer Transferzeit, welche sich hauptsächlich auf die intraband Relaxationszeit der Elektronen statt einer Tunnelzeit bezieht, ergeben die gewonnen experimentellen Ergebnisse ein konsistentes Bild.

Für die mittlere Barriere wurde aus den Anrege-Abfrage-Messungen ein Wert von etwa 96 fs gewonnen. Hier liegt der Wert des Modells deutlich über dieser Transferzeit. Zum einen lässt sich der Unterschied verstehen, wenn man die hohe Temperatur der

	Modell	Anrege-Abfrage Messung	Linienform- Analyse	TR-PL Messung	lfd. Nr.
<b>0.8 nm</b>	7 fs	(37 fs)	33 fs	–	#25858
<b>3.4 nm</b>	130 fs	96 fs	–	–	#25859
<b>5.5 nm</b>	1.1 ps	2.8 ps	–	(23 ps)	#25857

**Tabelle 5.2:** Übersicht über die Transferzeiten der indirekten Strukturen mit zunehmender Barrierendicke  $b$ . Zunächst sind die Resultate eines vereinfachten semiklassischen Modells gezeigt, anschließend die Transferzeiten aus Anrege-Abfrage-Messungen für die kleinstmöglichen Anregungsdichten sowie ein Ergebnis aus der Linienform-Analyse und aus dem Abfall und Anstieg der zeitaufgelösten PL.

erzeugten Ladungsträger betrachtet. Nach Gl. (5.9) kann davon ausgegangen werden, dass die Transferzeit mit einer höheren mittleren Energie der Elektronen deutlich sinkt, was im Modell dagegen unberücksichtigt bleibt. Darüberhinaus ist im Modell nicht berücksichtigt, dass auch hier ein gekoppelter elektronischer c1-Zustand zwischen (GaIn)As und Ga(NAs) existiert. Damit kann wie bereits beschrieben auf einer Zeitskala von etwa 40 fs der gekoppelte c1-Zustand effektiv entvölkert werden. Allerdings unterscheidet sich das System der mittleren von der geringsten Barrierendicke durch eine höhere Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen in der (GaIn)As-Schicht, so dass die Transferzeit weit oberhalb der niedrigsten beobachteten Transferzeit von 33 fs bleibt. Insgesamt lässt sich daher diese Transferzeit als eine Kombination aus einer Tunnelzeit nach dem Modell – mit verringerter Barrierenhöhe – und einer elektronischen intraband-Relaxationszeit verstehen.

Die Ergebnisse für die größte Barrierendicke liegen schließlich bei insgesamt deutlich größeren Transferzeiten im Bereich von ps. Dabei ist dem Resultat aus TR-PL Messungen wie bereits argumentiert nur bedingt zu folgen, da hier der Anhäufungseffekt eine hauptverantwortliche Rolle spielt. Für dieses System gewinnt man aus dem semiklassischen Modell eine Tunnelzeit von 1.1 ps, welche deutlich unterhalb des Wertes der Anrege-Abfrage-Messung liegt. Für eine solch breite Barriere kann keine Kopplung der Zustände vorliegen, der Transferprozess muss daher mit der Tunnelzeit verknüpft sein. Der Unterschied zum Modell lässt sich hauptsächlich damit erklären, dass dort nicht der Einfluss eines sich ausbildenden elektrischen Feldes berücksichtigt wird, was entgegengesetzt zur Richtung des Transfers wirkt und damit die Zeit des Transfers erhöht. Da die Stärke des Feldes von der Zahl der Ladungsträger abhängig ist,

erklärt dies auch die für dieses System größte Abhängigkeit der Transferzeit von der Anregungsleistung von etwa einem Faktor zehn für eine zehnfach erhöhte Anregungsdichte.

Die gewonnenen experimentellen Ergebnisse erscheinen in sich stimmig, wobei die Voraussagen des Modells aufgrund der fehlenden Berücksichtigung der intraband-Relaxationszeit und des sich ausbildenden Gegenfeldes keine exakte Übereinstimmung liefern. Nicht zuletzt ist eine modellhafte Situation, in der die reine Transferzeit ohne Gegenfeld beobachtet werden kann, experimentell auch für geringe Ladungsträgerdichten nicht realisierbar. Festzustellen bleibt, dass sich die Ergebnisse insbesondere vor der Beschreibung als gekoppelte, semi-gekoppelte und nicht gekoppelte Doppelquantenfilme verstehen lassen.

## 5.6 Ladungsträgerdynamik

Bisher wurde lediglich auf die Transferzeit eingegangen wie sie unter anderem als anfängliche Erholung des  $\Delta\alpha L$ -Signals in der transienten Auftragung an der Energie des  $hh1-c1$ -Übergangs sichtbar wurde. Nun soll der weitere Verlauf der größten Barrierendicke wie er in Abb. 5.13 gezeigt ist diskutiert werden.

Zunächst muss die Ursache des erneuten Abfalls des  $\Delta\alpha L$ -Signals geklärt werden. Dieser findet auf der Zeitskala bis etwa 100 ps statt (schwarz, dunkelrot). Da die Änderung der Absorption durch die veränderte Besetzung von Elektron- und Lochzuständen verursacht wird, kann die Diskussion über den Transfer von Elektronen auf die Dynamik der Löcher erweitert werden. Tatsächlich entspricht die Zeitskala von hunderten von ps einer typischen Abkühlungsdynamik [94, 44] des anfangs heißen Lochsystems. Entsprechend wird die ausgedehnte Verteilung im  $k$ -Raum mit der Zeit Zustände mit niedrigen  $k$ -Werten besetzen, so dass letztlich eine effektive Abnahme der Absorption entsteht.

Wenn dagegen aufgrund von Feldeffekten bei hohen Anregungsdichten (Abb. 5.13 rot, hellrot) die Transferzeit stetig zunimmt, werden die Zeitskalen des Transferprozesses und der Abkühlung der Löcher vergleichbar. Das entgegengesetzte Vorzeichen beider Prozesse bewirkt somit die Ausbildung eines Minimums des  $\Delta\alpha L$ -Signals, welches zeitlich später einsetzt und sich entsprechend mit höherer Anregungsdichte weiter verschiebt. Entsprechend kann sich nachfolgend kein zweites, abgesetztes Minimum ausbilden, sondern das angeregte System durchläuft eine für hohe Anregungsdichten vergleichbare Relaxations- und Rekombinationsdynamik, die sich vom Niederdichte-Fall (schwarz) unterscheidet.

Tatsächlich lassen sich an die späte Erholung des  $\Delta\alpha L$ -Signals exponentielle Verläufe anpassen. Wie zu erwarten sinkt die Zeitkonstante mit höherer Anregungsdichte auf bis zu 4.7 ns, während die niedrigsten Anregungsdichten auf dem beobachteten Zeitfenster von etwa 6 ns kaum eine Änderung zeigen. Damit ergeben sich für den Fall der größten Barrierendicke tatsächlich sehr große Lebensdauern, wie sie auch für eine räumlich getrennte Population erwartet werden. Zur genauen Bestimmung dieser Zeitkonstanten wäre jedoch ein separater experimenteller Aufbau mit elektronischer Verzögerung im Bereich von  $\mu\text{s}$  nötig. Es muss noch erwähnt werden, dass die Zeitkonstanten bei sehr hohen Anregungsdichten nicht die tatsächlichen Lebensdauern wiedergeben, da aufgrund der hohen Ladungsträgertemperaturen sich das Regime der Abkühlung und Relaxation zeitlich sehr weit ausdehnt.

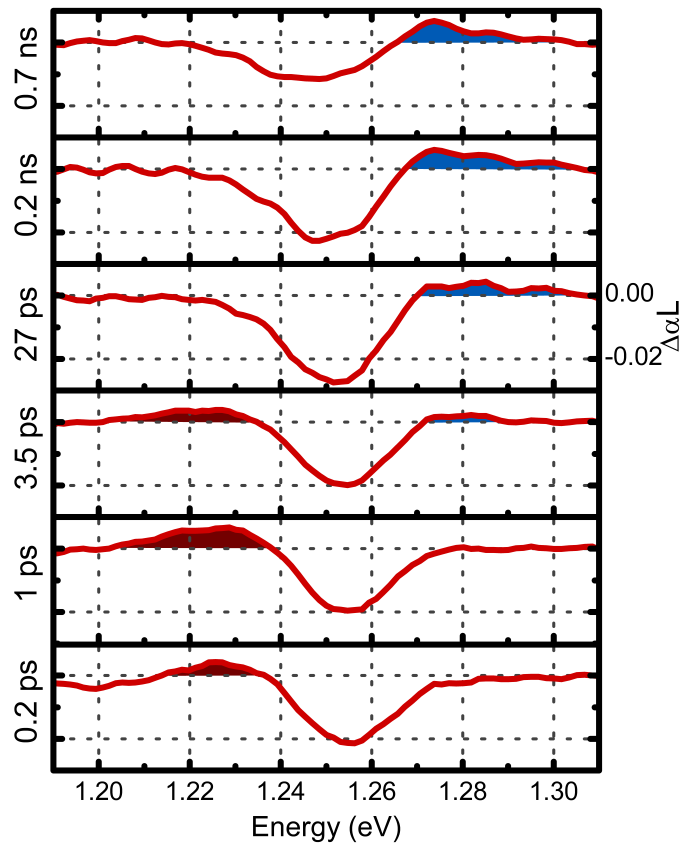
Im Einzelnen findet man für die mittlere Barrierendicke als größte Zeitkonstante etwa 10 ns. Auch hier gilt, dass diese Größe lediglich als untere Grenze für die Lebensdauer anzusetzen ist. Für die geringste Barrierendicke lässt sich die Dynamik im besagten Zeitfenster durch eine Zeitkonstante von 1.1 ns anpassen. Da hier jedoch nicht die vollständige Rekombination bis zur Abwesenheit sämtlicher  $\Delta\alpha L$ -Signale im Zeitfenster von 6 ns verfolgt werden kann, ist von dieser Zeitkonstanten auch hier nicht auf die Lebensdauer zu schließen.

Tatsächlich erkennt man insbesondere für das System der geringsten Barrierendicke eine Signatur, die im Bereich von ns kaum einer Änderung unterworfen ist. Diese Quasi-Gleichgewichts Signatur wird am Ende des Abschnitts diskutiert.

Anhand des Systems der geringsten Barrierendicke lassen sich nun die wesentlichen spektralen Signaturen erläutern. Dabei sei erwähnt, dass auch die übrigen Systeme eine sehr vergleichbare Systematik aufweisen, wobei die Zeitskalen sich leicht unterscheiden; ebenso ist das Auftreten einer speziellen Quasi-Gleichgewichts Signatur ausschließlich auf das System der geringsten Barriendicke beschränkt.

In Abb. 5.14 sind differenzielle Spektren in sechs verschiedenen Zeitbereichen über die Energie bei einer Anregungsdichte von  $7.6 \cdot 10^{14}$  Photonen/cm<sup>2</sup> aufgetragen. Zur verbesserten Darstellung entspricht ein gezeigtes Spektrum der Mittelung über 11 Zeitschritte aus drei Wiederholungen im jeweiligen Zeitbereich ähnlicher Signaturen.

Für positive Zeiten nach der Zeitnull erkennt man zunächst die dominante Signatur des Ausbleichens der hh1-c1-Resonanz bei einer Energie von 1.25 eV für dieses System der geringsten Barriendicke. Das Zeitverhalten der Signatur des Ausbleichens wurde für das System mit der größten Barriendicke bereits anhand von Abb. 5.13 diskutiert. Auch hier lässt sich der prinzipielle Verlauf anhand der Größe des Signals des Ausbleichens nachvollziehen. Beginnend bei einem  $\Delta\alpha L$  von etwa  $-0.02$  zu frühen



**Abb. 5.14:** Differentielle Spektren für ausgewählte Zeitschritte aus der Anrege-Abfrage-Spektroskopie aufgetragen als  $\Delta\alpha L$  gegen die Energie bei einer Anregungsdichte von  $7.6 \cdot 10^{14}$  Photonen/cm<sup>2</sup> für das System der geringsten Barriendicke. Beginnend bei Zeiten kurz nach der Anregung bis hin zu mehreren ps erkennt man neben dem Ausbleichen der hh1-c1-Resonanz eine leichte Rotverschiebung in entsprechender Markierung (dunkelrot). Diese geht auf der Skala von mehreren 10 ps in eine Blauverschiebung über (blau) welche bis in den Bereich von ns andauert.

Zeiten von einigen ps nach der Anregung verstärkt sich diese Signatur in der Größe zu etwa  $-0.03$  bei einigen 10 ps um anschließend im Bereich von mehreren 100 ps wieder abzuklingen.

Nun lässt sich gleichzeitig zur Signatur des Ausbleichens eine Rotverschiebung ausmachen, welche sich durch ein positives  $\Delta\alpha L$  unterhalb der Energie Resonanz ausweist (dunkelrot gekennzeichnet). Diese baut sich von wenigen 100 fs nach der Anregung bis zu einer maximalen Ausprägung bei einer Zeitverzögerung von 1 ps auf, um anschließend auf der Zeitskala der stärkeren Ausprägung des Ausbleichens der Resonanz zu verschwinden. Gleichzeitig mit diesem Vorgang erkennt man auf der höherenergetischen Seite eine Blauverschiebung als positives  $\Delta\alpha L$ -Signal (dunkelblau gekennzeichnet). Diese bildet sich beginnend bei einigen ps bis zu 100 ps allmählich aus, um dann in eine Gleichgewichts-Signatur überzugehen, welche in Abb. 5.15 diskutiert wird.

Für Strukturen mit einer indirekten Population ist eine Rotverschiebung zunächst nicht zu erwarten. Zwar gibt es Beispiele in der Literatur [2], welche von einer transienten Rotverschiebung in Typ-II-Systemen berichten. Aufgrund der Bandstruktur der dort untersuchten Systeme wird in [2] von einer Delokalisierung der Löcher ausgegangen, so dass unter anderem die Bandverbiegung als Mechanismus für die Rotverschiebung vorgeschlagen wird.

In dem hier vorliegenden Fall kann dieses Argument nicht gelten, da die Rotverschiebung keine Signatur im Quasi-Gleichgewicht bildet sondern lediglich wenige ps anhält. Da die Abnahme der Rotverschiebung zeitgleich mit der Zunahme des Ausbleichens auftritt, liegt es nahe, die gemeiname Ursache durch das Nicht-Gleichgewicht der Ladungsträger zu begründen.

Die theoretische Arbeit von R. Binder et al. [7] zu optischen Nicht-Linearitäten in Typ-I- und Typ-II-Strukturen am Beispiel des GaAs/AlAs Systems berechnet und diskutiert die verschiedenen Beiträge des Ausbleichens und Verschiebens der Resonanzen. Zwar ist in der dortigen Beispiel-Struktur zusätzlich zur räumlichen Trennung der Elektronen- und Loch-Population eine Trennung im k-Raum vorhanden. Aber nicht zuletzt aufgrund der geringen Barrierendicke kann der Einfluss der räumlichen Komponente verglichen werden.

Es zeigt sich, das zur Verschiebung der exzitonischen Resonanz einerseits eine Reduktion der Bindungsenergie des Exzitons durch die Renormalisierung der Rabi-Frequenz und andererseits die reduzierte Bandlücke durch die Renormalisierung der Energie beitragen, welche sich in einer gewöhnlichen Typ-I-Struktur gerade aufheben [46]. Hingegen kann bei einer Typ-II-Struktur ein nicht ausgeglichener Fall eintreten.

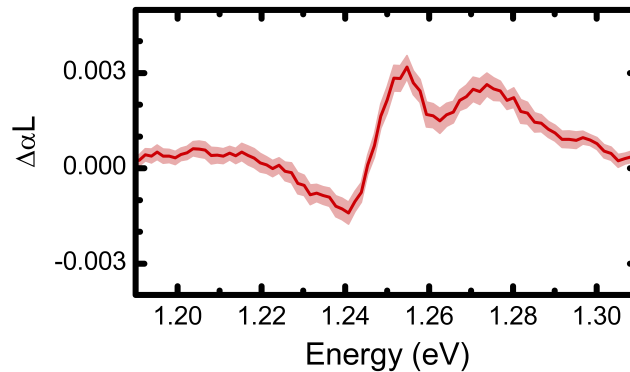
Im Speziellen wird eine Abhängigkeit von der Ladungsträgerdichte für die reduzierte Energie der Bandlücke von  $\propto n^{1/2}$  gefunden, während das chemische Potential linear mit  $n$  wird, so dass sich für bestimmte Konstellationen eine Blauverschiebung ergibt [7], welche in vorangegangener Literatur als „Burstein-Moss Shift“ bezeichnet wurde.

Eine weitere Situation wird in [7] für eine heiße Temperatur der Ladungsträger betrachtet. Es findet sich für diesen Fall eine effektive Rotverschiebung der Resonanz. Aufgrund der hohen Temperatur der Ladungsträger wird das Füllen des Phasenraums zu kleinen  $k$  geringer womit die Burstein-Moss-Verschiebung weniger stark ausfällt. Andererseits ist die Abschirmung und damit die Reduktion der Bandlücke nach wie vor effektiv.

Diese Erklärung kann demnach auch für das betrachtete System in Abb. 5.14 herangezogen werden. Zu Beginn liegt eine sehr hohe Temperatur der Ladungsträger vor, so dass der Phasenraum nicht maximal ausgefüllt ist. Dies ist auch sichtbar in der erst anschließenden Zunahme des Ausbleichens der Resonanz. Von Anfang an ist aber durch die Vielzahl an Ladungsträgern eine effektive Abschirmung möglich, so dass die Energie der Bandlücke reduziert werden kann. Dies resultiert in der beobachteten Rotverschiebung. Sobald die Temperatur der Ladungsträger beginnt, auf einer Zeitskala von mehreren ps effektiv abzunehmen, nimmt das Füllen des Phasenraums zu – sichtbar in der Ausprägung der minimalen Absorption in Abb. 5.14 zu  $T = 27$  ps. Gleichzeitig sind ab diesem Zeitpunkt die Beiträge zur Verschiebung der Bandkante durch das Füllen des Phasenraums größer als die Beiträge durch die Abschirmung, so dass effektiv eine Blauverschiebung dieses Übergangs hervortritt. Im weiteren Verlauf nimmt die Temperatur der Ladungsträgerverteilung weiter ab; gleichzeitig reduziert sich die Dichte der Ladungsträger unter anderem durch Rekombination, so dass die genaue Ausprägung der differentiellen Spektren sich weiter ändert.

Im Zeitbereich ab etwa 2 ns lassen sich jedoch keine signifikanten zeitlichen Änderungen der  $\Delta\alpha L$ -Signatur ausmachen, so dass vom Erreichen eines Quasi-Gleichgewichts gesprochen werden kann. Für die genaue Charakterisierung der spektralen Signatur in diesem Zustand des Systems wurden daher insgesamt 213 Messungen zwischen 2 ns und 5.5 ns gemittelt, wie sie in Abb. 5.15 als  $\Delta\alpha L$  gegenüber der Energie aufgetragen sind (rot). Zudem wurde die doppelte Standardabweichung vom Mittelwert als  $2\sigma$ -Umgebung dargestellt (hellrot).

Tatsächlich bestätigt sich auf diese Weise eine Doppelstruktur als  $\Delta\alpha L$ -Signatur. Aus der vorangegangenen Diskussion ist es darüberhinaus sinnvoll anzunehmen, dass weiterhin eine leichte Blauverschiebung vorliegt, was die grundlegende Form von negativen zu positiven Werten mit zunehmender Energie erklärt. Der steile Verlauf



**Abb. 5.15:** Gemittelte differentielle Spektren von 2 ns bis 5.5 ns aus der Anrege-Abfrage-Spektroskopie für das System der geringsten Barrierendicke für eine Anregungsdichte von  $7.6 \cdot 10^{14}$  Photonen/cm<sup>2</sup>. Zusätzlich ist die doppelte Standardabweichung vom Mittelwert als Hintergrund (hellrot) eingezeichnet. Aufgrund der Lebensdauer-dominierten Absorption lässt sich hier die vergrößerte Transferzeit aufgrund der vorhandenen Population als Signatur einer reduzierten Linienbreite direkt beobachten.

um das Maximum bei etwa 1.25 eV wird hier einer Einschnürung der Linienform zugeschrieben. Eine Abnahme der Linienbreite sollte als  $\Delta\alpha L$ -Signatur demnach unter und oberhalb der Resonanzenergie eine Abnahme und an der Resonanzenergie selbst eine Zunahme zeigen.

Diese Signatur wird daher als eine Kombination aus einer Blauverschiebung und einer verringerten Linienbreite interpretiert. Qualitativ kann verstanden werden, dass speziell bei dem System der geringsten Barriendicke diese Signatur auftritt, während die anderen beiden Systeme diese nicht aufweisen. Aus der Analyse der Linienform ist für das System der geringsten Barriendicke eine lorentzförmige Verbreiterung gefunden worden, woraus die Zeit des Elektronentransfers in den niedrigeren Zustand der Ga(NAs)-Schicht abgeschätzt wurde. Daher kann argumentiert werden, dass in der Gegenwart einer räumlich indirekten Population ein Gegenfeld entsteht, welches für den Transfer der Elektronen zusätzlich überwunden werden muss. Aus einer erhöhten Zeit für den Elektronentransfer folgt jedoch umgekehrt eine geringere Energieverbreiterung, so dass die Breite des Lorentzprofils sinkt.

Eine exakte Anpassung einer entsprechenden Funktion als Subtraktion zweier Linienformen erweist sich aufgrund der Beiträge im Kontinuum, wie sie sich auch in der linearen Absorption in Abb. 5.12 ab 1.26 eV zeigen, als nicht praktikabel. Die Anpassung einer unabhängigen Lorentz-Funktion an das gesamte, geänderte Spektrum  $\alpha L + \Delta\alpha L$  bestätigt jedoch grundsätzlich die um etwa 3 meV verringerte Linienbreite, was etwa einer um 2 fs vergrößerten Transferzeit entsprechen würde.



## 5.7 Zusammenfassung

Insgesamt konnten erste grundlegende Untersuchungen zu räumlich indirekten Strukturen im (GaIn)As/GaAs/Ga(NAs)-Materialsystem durchgeführt werden. Nach einer Charakterisierung durch lineare Absorption und PL Spektroskopie konnte die Diskussion der Bandstruktur bestätigt werden, wobei hier keine Hinweise für einen gebundenen Lochzustand in der Ga(NAs)-Schicht gefunden wurde. Die Proben zeigten je nach Stickstoffkonzentration ein entsprechend indirektes oder direktes Verhalten.

Im weiteren Verlauf wurde der Elektronentransfer des indirekten Probensatzes eingehend untersucht. Für das System mit der größten Barriendicke konnte ein Zusammenhang zwischen der Dynamik des Elektronentransfers und dem zeitlichen Anstieg des PL-Signals energetisch unterhalb der Bandkante gefunden werden. In einem Ratenmodell wurden die wesentlichen Parameter betrachtet, welche die Dynamik des Transfers wie er im Experiment sichtbar wird beeinflusst. Drei Regime unterschiedlicher Systemdynamik konnten hier in Abhängigkeit von der Anregungsleistung identifiziert werden. Für die Systeme der mittleren und dünnen Barriere wurde die Blauverschiebung des PL-Signals in Abhängigkeit von der Anregungsdichte analysiert, wie er aufgrund des Feldeffekts der räumlich indirekten Population zutage tritt.

In einer Zusammenstellung verschiedener experimenteller Methoden wurde im nächsten Schritt die Transferzeit der Elektronen durch die unterschiedlich breiten Barrieren untersucht und mit einem einfachen Modell des Tunnelns von Ladungsträgern durch eine Potentialbarriere verglichen. Abweichungen zu den Werten aus Anrege-Abfrage-Messungen und der Linienformanalyse sind hauptsächlich der unzureichenden Modellierung der realen Bedingungen geschuldet. Grundsätzlich erreichten die berechneten Werte aber ähnliche Größenordnungen der Transferzeiten, welche stark mit zunehmender Barriendicke von etwa 33 fs, 96 fs und 2.8 ps variierten.

Schließlich konnte die Dynamik des Transfers und die wesentlichen Regime der Relaxation und Thermalisierung anhand der Anrege-Abfrage-Spektroskopie verfolgt werden. Je nach Anregungsdichte konkurrierten dabei für den Fall der größten Barriendicke die Transfer- und Abkühlprozesse auf unterschiedlichen Zeitskalen von ps bis in den ns Bereich. Insbesondere konnte der Verlauf der Signatur einer anfänglichen Rotverschiebung aufgrund von überwiegenden Abschirmeffekten zum allmählichen Übergang in eine Blauverschiebung aufgrund von überwiegenden Beiträgen des Füllens des Phasenraums nachvollzogen werden. Argumentiert wurde anhand der vorangegangenen Theorie in [7]. Hier konnten sowohl Rot- als auch Blauverschiebung für das angeregte System durch die dynamische Veränderung der unterschiedlichen nichtli-

nearen Beiträge beobachtet werden. Im Abschluss konnte für den Fall der geringsten Barriendicke die vergrößerte Transferzeit von Elektronen aufgrund einer vorhandenen räumlich indirekten Population beobachtet werden. Durch eine Vergrößerung der Transferzeit konnte die verringerte Linienbreite zusammen mit einer Blauverschiebung als eine Quasi-Gleichgewichts-Signatur gefunden werden. Damit konnte die Dynamik dieser räumlich indirekten Systeme umfassend über den fs, ps und ns Bereich charakterisiert werden. Diese Untersuchungen bilden die Grundlage für weitere Experimente zur Kontrolle und gezielten Modifikation des Transfers durch Grenzflächen einerseits und zu vergleichenden Studien zum Einfluss der Grenzfläche und deren genauen Beschaffenheit auf den Transferprozess andererseits.

## 6 Schlussbetrachtung

Die Möglichkeiten der modernen Kurzeitspektroskopie erlaubten im Rahmen dieser Arbeit die Beobachtung fundamentaler Phänomene der Licht-Materie-Wechselwirkung an lange bekannten Halbleiterstrukturen. Dabei wurde zum einen der induzierte intra-exzitonische Transfer in der Zeitdomäne studiert und zum anderen der räumliche Transfer durch unterschiedliche Potentialbarrieren eines gekoppelten Doppelquantenfilms untersucht.

In den beiden Abschnitten 3 und 4 dieser Arbeit konnten zeitliche Aspekte der manipulierten exzitonischen Polarisation qualitativ bestätigt werden wie sie die vorhandene mikroskopische Theorie [21] vorhersagt.

Die erstmalige experimentelle Realisierung eines FWM-Experiments mit der Erzeugung starker THz-Felder führte zur Beobachtung unterschiedlicher Regime der kohärenten Manipulation. In dieser Kombination wurden unterschiedlichen Sequenzen entsprechend der Pulsfolge charakterisiert und im Modell der THz-Manipulation der mikroskopischen Polarisation und der Detektion der makroskopischen Polarisation interpretiert. Hier ließen sich weiterführende Experimente zur Untersuchung der mikroskopischen THz-Manipulation für Systeme mit ausgeprägtem Photonenecho anschließen.

Durch die Untersuchung der Feldabhängigkeit für unterschiedliche Regime konnte weiterhin in Übereinstimmung mit dem Bild der Feldionisation ein Schwellverhalten für größere Feldstärken bei höheren exzitonischen  $2s+H$ -Zuständen als bei  $1s$ -Zuständen gefunden werden. Hier könnte in Verbindung mit einem theoretischen Modell ein experimenteller Zugriff auf die dynamischen Ionisierungsschwellen unterschiedlicher exzitonischer Zustände erreicht werden.

Schließlich konnte explizit die Reversibilität für mittlere Feldstärken des THz-induzierten intra-exzitonischen Transfers aus dem  $1s$ -Zustand heraus beobachtet und das theoretische Modell qualitativ bestätigt werden. Mithilfe dieser experimentellen Kombination könnte über gezielte Anregung zukünftig quantitativ der Grad der Reversibilität verschiedener intra-exzitonischer Transferprozesse bestimmt werden.

Dies wäre insbesondere interessant im Zusammenhang mit der Kopplung der  $2s$ -

2p-Zustände, die unter Einstrahlung schmalbandiger THz-Pulse resonant zum 1s–2p-Übergang in der Photolumineszenz aus dem 2s-Zustand heraus sichtbar wurde [97]. Dort wurde eine diffusive Coulomb-Streuung als Mechanismus dieser Kopplung vorgeschlagen. Die Untersuchung in einem weiteren FWM-Experiment unter schmalbandiger THz-Strahlung könnte über den Mechanismus weiter Aufschluss geben.

Auch an höher angeregten Exzitonen-Zuständen mit  $n > 2$  in anderen Materialsystemen wie beispielsweise  $\text{Cu}_2\text{O}$  [45] wären weitere Untersuchungen zu einer Vielzahl möglicher intra-exzitonicer THz-induzierter Transfers auch in Propagationsexperimenten (Kap. 4.3.2, [24]) denkbar.

Zusätzlich bietet die hier vorgestellte Beobachtung von kohärenten Oszillationen durch einen THz-induzierten Polarisationsabbruch weiteren Einblick in den dynamischen Prozess der Ionisation. Aufgrund der spektralen Auflösung werden auf diese Weise kleinste zeitliche Änderungen des Polarisationsabbruchs sichtbar. Die genaue Abhängigkeit von der Form des THz-Feldes auf den Prozess der dynamischen Feldionisation könnte hier weiter studiert werden.

Zwar kann über eine exaktere Definition der experimentellen Bedingungen bezüglich Anregung, Abfrage und energetischen Verbreiterung der Modellsysteme die Aussagekraft dieser Methoden weiter erhöht werden. Jedoch bleibt für diese Abschnitte zu bemerken, dass erst der detaillierte Vergleich mit einer mikroskopischen Theorie gezielt Aufschluss über die notwendigen Annahmen zur Beschreibung des THz-induzierten Transfers in exzitonicen Systemen geben könnte.

Im letzten Teil konnten schließlich Modellsysteme basierend auf dem (GaIn)As/GaAs/Ga(NAs)-Materialsystem für das Studium einer räumlich indirekten Population einerseits und des Elektronen-Transfers durch Grenzflächen andererseits etabliert werden.

Hier wurde die elektronische Struktur über die Methoden der linearen Absorption, der zeitaufgelösten PL und der Anrege-Abfrage-Spektroskopie in einer vergleichenden Studie grundsätzlich geklärt. Verschiedene experimentelle Methoden zur Bestimmung der Transferzeit und ein einfaches theoretisches Modell wurden eingesetzt, um die erwartete starke Abhängigkeit der Transferzeit von der Barrierendicke zu evaluieren. An dieser Stelle sind bereits weitere Untersuchungen geplant, bei denen zunächst der Einfluss der Morphologie der Grenzfläche auf den Transferprozess studiert werden soll.

Durch die Möglichkeiten der Anrege-Abfrage-Spektroskopie konnte die Ladungsträgerdynamik in diesen Strukturen mit räumlich indirekter Population von einer Zeitskala von etwa 40 fs bis hin zu etwa 5 ns studiert werden. Je nach Barrierendicke und Anregungsdichte war der Transferprozess auf Zeitskalen von etwa 30 fs bis 100 ps zu

---

finden, während teilweise konkurrierende Abkühlungsprozesse auf der Zeitskala von mehreren 10 ps stattfinden. Ein Quasi-Gleichgewicht wird hier zumeist auf der Zeitskala von ns erreicht, wobei die Rekombinationodynamik und die tatsächlichen Lebensdauern der räumlich indirekten Population aufgrund der auf ns begrenzten Zeitverzögerung nicht vollständig erfasst werden konnten. Dies würde eine weitergehende Modifikation des experimentellen Aufbaus erfordern.

Spektrale Signaturen von einer anfänglichen Rot- bis zu einer Blauverschiebung gaben Aufschluss über die jeweils dominanten Beiträge der Abschirmung und des Füllen des Phasenraums. Aufgrund der dominierenden homogenen Verbreiterung für das System der geringsten Barrierendicke konnte schließlich eine erhöhte Transferzeit aufgrund einer vorhandenen indirekten Population explizit beobachtet werden.

Neben der Ausdehnung dieser Untersuchungen auf indirekte System im k- und Realraum und der Beobachtung indirekter intraexzitonischer Übergänge mittels der THz-Abfrage-Spektroskopie bieten sich bereits aus diesen Untersuchungen zukünftig zwei weitere Möglichkeiten.

Wie bereits angedeutet, ließe sich der Transferprozess als Indikator für den Einfluss der Grenzflächen heranziehen. Aber auch der Einfluss des genauen elektronischen Potentials der Grenzfläche kann möglicherweise im gesamten Bild aus der energetischen Lage der Niveaus zusammen mit einer veränderten Ladungsträgerdynamik studiert werden. Denkbar wäre insbesondere im System der homogenen Verbreiterung das Studium unterschiedlicher Grenzflächenzustände als lokale energetische Störung, die sich in der Transferdynamik aber auch in der speziellen Quasi-Gleichgewichtssignatur und der Lebensdauer niederschlagen könnten.

Zum zweiten könnten Schritte in Richtung des kürzlich vorgeschlagenen theoretischen Modells des gezielten THz-induzierten räumlichen Transfers von korrelierten und/oder unkorrelierten Ladungsträgern [104] anhand dieser Vorarbeiten realisiert werden. Denkbar wäre zunächst, für das homogen verbreiterte System eine relaxierte räumlich indirekte Population durch resonante Anregung und anschließender Zeitverzögerung im Bereich von einigen ns zu präparieren. In einem nächsten Schritt ließe sich dann senkrecht zur Wachstumsrichtung ein starkes THz-Feld einstrahlen. Abhängig von der Polarisierung und der Feldstärke könnte dann der Einfluss dieses zusätzlichen elektrischen Feldes auf die transiente Absorption untersucht werden. Da hier der energetische Unterschied zwischen Ga(NAs)- und (GaIn)As-Niveau um die 250 meV beträgt, ist der direkte Transfer durch Absorption von THz-Photonen hier nicht möglich. Um das in [104] vorgeschlagene System zu realisieren, müsste daher der Stickstoffgehalt genau angepasst werden. Dennoch ist dies eine erwähnenswerte

Situation, in der die ponderomotiven Beiträge den Haupteinfluss darstellen sollten. Auf diese Weise ließe sich von einer transienten Modifikation des elektrischen Feldes hin zum gezielten Transport durch Grenzflächen das in [104] vorgeschlagene Konzept schrittweise realisieren.

Insgesamt konnten wichtige Erkenntnisse zum intra-exzitonischen Transfer gewonnen und wesentliche Grundlagen für das ausführliche und umfassende Studium des Ladungsträgertransports durch Grenzflächen mit den Methoden der modernen Ultrakurzzeitspektroskopie gelegt werden. Trotz der Vielzahl an vorangegangenen Arbeiten an diesen klassischen Halbleitermodellsystemen verbleiben weiterhin unter anderem die oben aufgezeigten vielversprechenden Möglichkeiten der Analyse und der Kontrolle des Ladungsträger-Transfers.

# Literaturverzeichnis

- [1] A. Alexandrou, V. Berger, and D. Hulin. Direct observation of electron relaxation in intrinsic GaAs using femtosecond pump-probe spectroscopy. *Physical Review B*, 52(7):4654, 1995.
- [2] A. Alexandrou, M. K. Jackson, D. Hulin, N. Magnea, H. Mariette, and Y. Merle d'Aubigné. Hole delocalization in CdTe/Cd<sub>1-x</sub>Zn<sub>x</sub>Te quantum wells. *Physical Review B*, 50(4):2727, 1994.
- [3] A. E. Almand-Hunter, H. Li, S. T. Cundiff, M. Mootz, M. Kira, and S. W. Koch. Quantum droplets of electrons and holes. *Nature*, 506(7489):471, 2014.
- [4] A. P. Arndt, M. Gerhard, A. Quintilla, I. A. Howard, M. Koch, and U. Lemmer. Time-Resolved Charge-Transfer State Emission in Organic Solar Cells: Temperature and Blend Composition Dependences of Interfacial Traps. *The Journal of Physical Chemistry C*, 119(24):13516, June 2015.
- [5] M. Baranowski, M. Syperek, R. Kudrawiec, J. Misiewicz, J. a. Gupta, X. Wu, and R. Wang. Carrier dynamics in type-II GaAsSb/GaAs quantum wells. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 24(18):185801, May 2012.
- [6] C. Berger, C. Möller, P. Hens, C. Fuchs, W. Stolz, S. W. Koch, A. Ruiz Perez, J. Haeder, and J. V. Moloney. Novel type-II material system for laser applications in the near-infrared regime. *AIP Advances*, 5(4):047105, 2015.
- [7] R. Binder, I. Galbraith, and S. W. Koch. Theory of band-edge optical nonlinearities in type-I and type-II quantum-well structures. *Physical Review B*, 44(7):3031, 1991.
- [8] O. Buccafusca, J. L. A. Chilla, C. S. Menoni, J. J. Rocca, M. J. Hafich, L. M. Woods, and G. Y. Robinson. Nonresonant tunneling in InGaP/InAlP asymmetric double quantum wells. *Applied Physics Letters*, 62(4):399, 1993.

- [9] S. G. Carter, V. Birkedal, C. S. Wang, L. A. Coldren, A. V. Maslov, D. S. Citrin, and M. S. Sherwin. Quantum coherence in an optical modulator. *Science*, 310(5748):651, Oct. 2005.
- [10] D. S. Chemla and J. Shah. Many-body and correlation effects in semiconductors. *Nature*, 411(6837):549, 2001.
- [11] A. Chernikov. *Time-Resolved Photoluminescence Spectroscopy of Semiconductors for Optical Applications Beyond the Visible Spectral Range*. PhD thesis, Philipps-Universität Marburg, 2011.
- [12] A. Chernikov. pers. Komm. 2012.
- [13] Y. S. Chiu, M. H. Ya, W. S. Su, and Y. F. Chen. Properties of photoluminescence in type-II GaAsSb/GaAs multiple quantum wells. *Journal of Applied Physics*, 92(10):5810, 2002.
- [14] S. T. Cundiff. *Optical techniques for solid-state materials characterization*. CRC Press, 2011.
- [15] S. T. Cundiff, A. Knorr, J. Feldmann, S. Koch, E. O. Göbel, and H. Nickel. Rabi flopping in semiconductors. *Physical Review Letters*, 73(8):1178, 1994.
- [16] S. T. Cundiff, M. Koch, W. H. Knox, J. Shah, and W. Stolz. Optical Coherence in Semiconductors: Strong Emission Mediated by Nondegenerate Interactions. *Physical Review Letters*, 77(6):1107, Aug. 1996.
- [17] J. R. Danielson, Y.-S. Lee, J. P. Prineas, J. T. Steiner, M. Kira, and S. W. Koch. Interaction of Strong Single-Cycle Terahertz Pulses with Semiconductor Quantum Wells. *Physical Review Letters*, 99(23):237401, Dec. 2007.
- [18] L. V. Dao, M. Gal, H. Tan, and C. Jagadish. Carrier capture into InGaAs/GaAs quantum wells via impurity mediated resonant tunneling. *Applied Physics Letters*, 72(16):2008, 1998.
- [19] M. J. Drexler, R. Woscholski, S. Lippert, W. Stolz, A. Rahimi-Iman, and M. Koch. Disturbing the coherent dynamics of an excitonic polarization with strong terahertz fields. *Physical Review B*, 90(19):195304, 2014.
- [20] D. J. Erskine, A. J. Taylor, and C. L. Tang. Femtosecond studies of intraband relaxation in GaAs, AlGaAs, and GaAs/AlGaAs multiple quantum well structures. *Applied Physics Letters*, 45(1):54, 1984.



- 
- [21] B. Ewers, N. S. Köster, R. Woscholski, M. Koch, S. Chatterjee, G. Khitrova, H. M. Gibbs, A. C. Klettke, M. Kira, and S. W. Koch. Ionization of coherent excitons by strong terahertz fields. *Physical Review B*, 85(7):075307, Feb. 2012.
- [22] J. Feldmann, J. Nunnenkamp, G. Peter, E. Göbel, P. Dawson, and C. T. Foxon. Experimental study of the  $\Gamma$ -X electron transfer in type-II (Al, Ga) As/AlAs superlattices and multiple-quantum-well structures. *Physical Review B*, 42(9):5809, 1990.
- [23] J. Feldmann, R. Sattmann, E. O. Göbel, and J. Kuhl. Subpicosecond real-space charge transfer in type-II GaAs/AlAs superlattices. *Physical Review Letters*, 62(16):1892, 1989.
- [24] D. Frohlich, A. Kulik, B. Uebbing, A. Mysyrowicz, V. Langer, H. Stolz, and W. von der Osten. Coherent Propagation and Quantum Beats of Quadrupole Polaritons in  $\text{Cu}_2\text{O}$ . *Physical Review Letters*, 67(17):2343, 1991.
- [25] I. Galbraith, P. Dawson, and C. Foxon. Optical nonlinearities in mixed type I-type II GaAs/AlAs multiple quantum wells. *Physical Review B*, 45(23):13499, 1992.
- [26] A. K. Geim, K. S. Novoselov, Geim A. K., and Novoselov K. S. The rise of graphene. *Nature Materials*, 6:183, 2007.
- [27] S. Gies. pers. Komm. 2014.
- [28] D. Golde, M. Wagner, D. Stehr, H. Schneider, M. Helm, A. M. Andrews, T. Roch, G. Strasser, M. Kira, and S. W. Koch. Fano Signatures in the Intersubband Terahertz Response of Optically Excited Semiconductor Quantum Wells. *Physical Review Letters*, 102(12):127403, Mar. 2009.
- [29] R. N. Hall, G. E. Fenner, J. D. Kingsley, T. J. Soltys, and R. O. Carlson. Coherent light emission from GaAs junctions. *Physical Review Letters*, 9(9):366, 1962.
- [30] K. Hantke. *Einfluß von Stickstoff auf die Photolumineszenz von metastabilen III-V-Nitriden*. PhD thesis, Philipps-Universität Marburg, 2005.
- [31] H. Haug and S. W. Koch. *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors*. World Scientific, 4 edition, 2009.
- [32] P. Hens. pers. Komm. 2014.

- [33] H. Hirori, M. Nagai, and K. Tanaka. Excitonic interactions with intense terahertz pulses in ZnSe/ZnMgSSe multiple quantum wells. *Physical Review B*, 81(8):081305, Feb. 2010.
- [34] H. Hirori, K. Shinokita, M. Shirai, S. Tani, Y. Kadoya, and K. Tanaka. Extraordinary carrier multiplication gated by a picosecond electric field pulse. *Nature communications*, 2:594, Jan. 2011.
- [35] R. Huber, F. Tauser, A. Brodschelm, M. Bichler, G. Abstreiter, and A. Leitenstorfer. How many-particle interactions develop after ultrafast excitation of an electron-hole plasma. *Nature*, 414(6861):286, Nov. 2001.
- [36] F. Jahnke, M. Koch, T. Meier, J. Feldmann, W. Schäfer, P. Thomas, S. Koch, E. O. Göbel, and H. Nickel. Simultaneous influence of disorder and Coulomb interaction on photon echoes in semiconductors. *Physical Review B*, 50(11):8114, 1994.
- [37] P. Jepsen, D. Cooke, and M. Koch. Terahertz spectroscopy and imaging - Modern techniques and applications. *Laser & Photonics Reviews*, 5(1):124, Jan. 2011.
- [38] M. Jo, M. Sato, S. Miyamura, H. Sasakura, H. Kumano, and I. Suemune. Origin of the blueshift of photoluminescence in a type-II heterostructure. *Nanoscale Research Letters*, 7(1):654, Jan. 2012.
- [39] M. Joffre, D. Hulin, A. Migus, A. Antonetti, C. B. à la Guillaume, N. Peyghambarian, M. Lindberg, and S. W. Koch. Coherent effects in pump-probe spectroscopy of excitons. *Opt. Lett.*, 13(4):276, 1988.
- [40] J.S.Co. Tydex. THz Materials, Herstellerangaben.
- [41] F. Junginger, B. Mayer, C. Schmidt, O. Schubert, S. Mährlein, A. Leitenstorfer, R. Huber, and A. Pashkin. Nonperturbative Interband Response of a Bulk InSb Semiconductor Driven Off Resonantly by Terahertz Electromagnetic Few-Cycle Pulses. *Physical Review Letters*, 109(14):147403, Oct. 2012.
- [42] R. Kaindl, D. Hägele, M. Carnahan, and D. Chemla. Transient terahertz spectroscopy of excitons and unbound carriers in quasi-two-dimensional electron-hole gases. *Physical Review B*, 79(4):045320, Jan. 2009.
- [43] P. V. Kamat. Boosting the efficiency of quantum dot sensitized solar cells through modulation of interfacial charge transfer. *Accounts of Chemical Research*, 45(11):1906, 2012.

- [44] K. Kash and J. Shah. Carrier energy relaxation in  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$  determined from picosecond luminescence studies. *Applied Physics Letters*, 45(4):401, 1984.
- [45] T. Kazimierczuk, D. Fröhlich, S. Scheel, H. Stolz, and M. Bayer. Giant Rydberg excitons in the copper oxide  $\text{Cu}_2\text{O}$ . *Nature*, 514(7522):343, 2014.
- [46] G. Khitrova and H. M. Gibbs. Nonlinear optics of normal-mode-coupling semiconductor microcavities. *Reviews of Modern Physics*, 71(5):1591, 1999.
- [47] D.-S. Kim, J. Shah, T. C. Damen, W. Schäfer, F. Jahnke, S. Schmitt-Rink, and K. Köhler. Unusually slow temporal evolution of femtosecond four-wave-mixing signals in intrinsic GaAs quantum wells: Direct evidence for the dominance of interaction effects. *Physical Review Letters*, 69(18):2725, 1992.
- [48] M. Kira, F. Jahnke, W. Hoyer, and S. W. Koch. Quantum theory of spontaneous emission and coherent effects in semiconductor microstructures. *Progress in Quantum Electronics*, 23(6):189, 1999.
- [49] M. Kira and S. W. Koch. Many-body correlations and excitonic effects in semiconductor spectroscopy. *Progress in Quantum Electronics*, 30:155, 2006.
- [50] M. Kira and S. W. Koch. *Semiconductor Quantum Optics*. Cambridge University Press, 2011.
- [51] M. Kira, S. W. Koch, R. P. Smith, A. E. Hunter, and S. T. Cundiff. Quantum spectroscopy with Schrödinger-cat states. *Nature Physics*, 7(10):799, Sept. 2011.
- [52] A. C. Klettke. *Microscopic Theory of Terahertz Spectroscopy on Semiconductor Nanostructures*. PhD thesis, Philipps-Universität Marburg, 2013.
- [53] C. Klingshirn. *Semiconductor Optics*. Springer Berlin Heidelberg New York, 3rd edition, 2007.
- [54] M. Koch. *Quantenschwebungs-Spektroskopie an exzitonischen Übergängen in Halbleiter-Heterostrukturen*. PhD thesis, Philipps-Universität Marburg, 1995.
- [55] M. Koch, J. Feldmann, and G. V. Plessen. Quantum beats versus polarization interference: an experimental distinction. *Physical Review Letters*, 69(25):3631, 1992.
- [56] M. Koch, G. von Plessen, J. Feldmann, and E. O. Göbel. Excitonic quantum beats in semiconductor quantum-well structures. *Chemical Physics*, 210:367, 1996.

- [57] M. Koch, D. Weber, J. Feldmann, E. O. Göbel, T. Meier, A. Schulze, P. Thomas, S. Schmitt-Rink, and K. Ploog. Subpicosecond photon-echo spectroscopy on GaAs/AlAs short-period superlattices. *Physical Review B*, 47(3):1532, Jan. 1993.
- [58] S. Koch, N. Peyghambarian, and M. Lindberg. Transient and steady-state optical nonlinearities in semiconductors. *Journal of Physics C: Solid State Physics*, 21:5229, 1988.
- [59] S. W. Koch, M. Kira, G. Khitrova, and H. M. Gibbs. Semiconductor excitons in new light. *Nature materials*, 5(7):523, July 2006.
- [60] K. Kolata, T. Breuer, G. Witte, and S. Chatterjee. Molecular packing determines singlet exciton fission in organic semiconductors. *ACS Nano*, 8(7):7377, 2014.
- [61] K. Kolata, N. S. Köster, A. Chernikov, M. J. Drexler, E. Gatti, S. Cecchi, D. Chrastina, G. Isella, M. Guzzi, and S. Chatterjee. Dephasing in Ge/SiGe quantum wells measured by means of coherent oscillations. *Physical Review B*, 86(20):201303, Nov. 2012.
- [62] N. S. Köster. *Kohärente optische Prozesse und inkohärente Ladungsträgerdynamik in Germanium*. PhD thesis, Philipps-Universität Marburg, 2012.
- [63] N. S. Köster, A. C. Klettke, B. Ewers, R. Woscholski, S. Cecchi, D. Chrastina, G. Isella, M. Kira, S. W. Koch, and S. Chatterjee. Controlling the polarization dynamics by strong THz fields in photoexcited germanium quantum wells. *New Journal of Physics*, 15(7):075004, July 2013.
- [64] F. Koyama, S. Kinoshita, and K. Iga. Room-temperature continuous wave lasing characteristics of a GaAs vertical cavity surface-emitting laser. *Applied Physics Letters*, 55(3):221, 1989.
- [65] A. Kuzmich, W. P. Bowen, A. D. Boozer, A. Boca, C. W. Chou, L.-M. Duan, and H. J. Kimble. Generation of nonclassical photon pairs for scalable quantum communication with atomic ensembles. *Nature*, 423(6941):731, June 2003.
- [66] L. D. Landau and E. M. Lifschitz. *Quantum Mechanics Non-Relativistic Theory*. 1977.
- [67] Landolt-Börnstein. *Landolt-Börnstein - Group III Condensed Matter*. Springer Verlag, 1987.

- [68] W. Langbein, S. Hallstein, H. Kalt, H. P. Schönherr, R. Nötzel, and K. Ploog. Negative differential gap renormalization in type-II superlattices. *Physica Status Solidi (B)*, 188(1):571, 1995.
- [69] N. N. Ledentsov, J. Böhrer, M. Beer, F. Heinrichsdorff, Grundmann, D. Bimberg, S. V. Ivanov, B. Y. Meltser, S. V. Shaposhnikov, I. N. Yassievich, N. N. Faleev, P. S. Kop'ev, and Z. I. Alferov. Radiative states in type-II GaSb/GaAs quantum wells. *Phys. Rev. B*, 52(19):14058, 1995.
- [70] S. Leinß, T. Kampfrath, K. v. Volkmann, M. Wolf, J. Steiner, M. Kira, S. W. Koch, A. Leitenstorfer, and R. Huber. Terahertz Coherent Control of Optically Dark Paraexcitons in Cu<sub>2</sub>O. *Physical Review Letters*, 101(24):246401, Dec. 2008.
- [71] X. Li, T. Zhang, C. N. Borca, and S. T. Cundiff. Many-Body Interactions in Semiconductors Probed by Optical Two-Dimensional Fourier Transform Spectroscopy. *Physical Review Letters*, 96(5):057406, Feb. 2006.
- [72] I. H. Libon, S. Baumgärtner, M. Hempel, N. E. Hecker, J. Feldmann, M. Koch, and P. Dawson. An optically controllable terahertz filter. *Applied Physics Letters*, 76(20):2821, 2000.
- [73] M. Lindberg, R. Binder, and S. W. Koch. Theory of the semiconductor photon echo. *Physical Review A*, 45(3):1865, 1992.
- [74] W. W. Lui and M. Fukuma. Exact solution of the Schrodinger equation across an arbitrary one-dimensional piecewise-linear potential barrier. *Journal of Applied Physics*, 60(5):1555, 1986.
- [75] X. D. Luo, P. H. Tan, Z. Y. Xu, and W. K. Ge. Selectively excited photoluminescence of GaAs<sub>1-x</sub>N<sub>x</sub> single quantum wells. *Journal of Applied Physics*, 94(8):4863, 2003.
- [76] V. G. Lyssenko, J. Erland, I. Balslev, K. H. Pantke, B. S. Razbirin, and J. M. Hvam. Nature of nonlinear four-wave-mixing beats in semiconductors. *Physical Review B*, 48(8):5720, 1993.
- [77] C. Mack. The Multiple Lives of Moore's Law. *IEEE Spectrum*, 52(4):31, Apr. 2015.
- [78] T. Meier, P. Thomas, and S. W. Koch. *Coherent Semiconductor Optics*. Springer Berlin Heidelberg New York, 1 edition, 2007.

- [79] K. Meissner, B. Fluegel, R. Binder, S. W. Koch, G. Khitrova, and N. Peygambarian. Comparison of optical nonlinearities of type II and type I quantum wells. *Applied Physics Letters*, 59(3):259, 1991.
- [80] D. Miller, D. Chemla, T. Damen, A. Gossard, W. Wiegmann, T. Wood, and C. Burrus. Electric field dependence of optical absorption near the band gap of quantum-well structures. *Physical Review B*, 32(2):1043, 1985.
- [81] D. Mourad, J.-P. Richters, L. Gérard, R. André, J. Bleuse, and H. Mariette. Determination of valence-band offset at cubic CdSe/ZnTe type-II heterojunctions: A combined experimental and theoretical approach. *Physical Review B*, 86(19):195308, Nov. 2012.
- [82] O. D. Mücke, T. Tritschler, M. Wegener, U. Morgner, and F. X. Kärtner. Signatures of Carrier-Wave Rabi Flopping in GaAs. *Physical Review Letters*, 87(5):057401, July 2001.
- [83] J. Nägerl, B. Stabenau, G. Böhne, S. Dreher, R. Ulbrich, G. Manzke, and K. Henneberger. Polariton pulse propagation through GaAs: Excitation-dependent phase shifts. *Physical Review B*, 63(23):235202, May 2001.
- [84] S. Natarajan, M. Agostinelli, S. Akbar, M. Bost, A. Bowonder, V. Chikarmane, S. Chouksey, A. Dasgupta, K. Fischer, Q. Fu, T. Ghani, M. Giles, S. Govindaraju, R. Grover, W. Han, D. Hanken, E. Haralson, M. Haran, M. Heckscher, R. Heussner, P. Jain, R. James, R. Jhaveri, I. Jin, H. Kam, E. Karl, C. Kenyon, M. Liu, Y. Luo, R. Mehandru, S. Morarka, L. Neiberg, P. Packan, A. Paliwal, C. Parker, P. Patel, R. Patel, C. Pelto, L. Pipes, P. Plekhanov, M. Prince, S. Rajamani, J. Sandford, B. Sell, S. Sivakumar, P. Smith, B. Song, K. Tone, T. Troeger, J. Wiedemer, M. Yang, and K. Zhang. A 14nm Logic Technology Featuring 2<sup>nd</sup>-Generation FinFET Interconnects, Self-Aligned Double Patterning and a 0.0588  $\mu\text{m}^2$  SRAM cell size. *IEEE International Electron Devices Meeting (IEDM)*, page 3.7.1, 2014.
- [85] S. Niki, C. L. Lin, W. S. C. Chang, and H. H. Wieder. Band-edge discontinuities of strained-layer  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  heterojunctions and quantum wells. *Applied Physics Letters*, 55(13):1339, 1989.
- [86] K. B. Nordstrom, K. Johnsen, S. J. Allen, A. P. Jauho, B. Birnir, J. Kono, T. Noda, H. Akiyama, and H. Sakaki. Excitonic Dynamical Franz-Keldysh Effect. *Physical Review Letters*, 81(2):457, 1998.

- [87] T. B. Norris, X. J. Song, W. J. Schaff, L. F. Eastman, G. Wicks, and G. A. Mourou. Tunneling escape time of electrons from a quantum well under the influence of an electric field. *Applied Physics Letters*, 54(1):60, 1989.
- [88] D. Oberli, J. Shah, T. Damen, and C. Tu. Direct measurement of resonant and nonresonant tunneling times in asymmetric coupled quantum wells. *Physical Review B*, 40(5):3028, 1989.
- [89] J. L. O'Brien. Optical Quantum Computing. *Science*, 318(5856):1567, Dec. 2007.
- [90] G. Olbright, W. S. Fu, A. Owyong, J. F. Klem, R. Binder, I. Galbraith, and S. W. Koch. cw and Femtosecond Optical Nonlinearities of Type-II Quantum Wells. *Physical Review Letters*, 66(10):1358, 1991.
- [91] G. R. Olbright, W. S. Fu, J. F. Klem, H. M. Gibbs, G. Khitrova, R. Pon, B. Fluegel, K. Meissner, N. Peyghambarian, R. Binder, I. Galbraith, and S. W. Koch. Nonlinear optical properties of type-II quantum wells. *Physical Review B*, 44(7):3043, 1991.
- [92] E. P. O'Reilly. Valence band engineering in strained-layer structures. *Semiconductor Science and Technology*, 4(3):121, 1999.
- [93] C. Piermarocchi. Materials spectroscopy: What would Schrödinger's cat see? *Nature Physics*, 7(10):746, Sept. 2011.
- [94] H. Polland, W. Rühle, J. Kuhl, K. Ploog, K. Fujiwara, and T. Nakayama. Nonequilibrium cooling of thermalized electrons and holes in  $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$  quantum wells. *Physical Review B*, 35(15):8273, 1987.
- [95] I. Rabi. Space quantization in a gyrating magnetic field. *Physical Review*, 51(1931):652, 1937.
- [96] T. Rappen, G. Mohs, and M. Wegener. Coherent polariton dynamics in quantum wells. *Physica Status Solidi (b)*, 173:77, 1992.
- [97] W. D. Rice, J. Kono, S. Zybell, S. Winnerl, J. Bhattacharyya, H. Schneider, M. Helm, B. Ewers, A. Chernikov, M. Koch, S. Chatterjee, G. Khitrova, H. M. Gibbs, L. Schneebeli, B. Breddermann, M. Kira, and S. W. Koch. Observation of Forbidden Exciton Transitions Mediated by Coulomb Interactions in Photoexcited Semiconductor Quantum Wells. *Physical Review Letters*, 110(13):137404, Mar. 2013.

- [98] W. Rühle, A. P. Heberle, M. G. W. Alexander, and M. Nido. Time- Resolved Optical Investigation of Tunneling of Carriers Through Single  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  Barriers. *Physica Scripta*, 39:278, 1991.
- [99] W. Schäfer, F. Jahnke, and S. Schmitt-Rink. Many-particle effects on transient four-wave-mixing signals in semiconductors. *Physical Review B*, 47(3):1217, 1993.
- [100] A. Schülzgen, R. Binder, M. E. Donovan, M. Lindberg, K. Wundke, H. M. Gibbs, G. Khitrova, and N. Peyghambarian. Direct Observation of Excitonic Rabi Oscillations in Semiconductors. *Physical Review Letters*, 82(11):2346, Mar. 1999.
- [101] D. D. Sell. Resolved Free-Exciton Transitions in the Optical-Absorption Spectrum of GaAs. *Physical Review B*, 6(10):3750, 1972.
- [102] M. D. Sturge. Optical absorption of gallium arsenide between 0.6 and 2.75 eV. *Physical Review*, 127(3):768, 1962.
- [103] D. B. Turner and K. A. Nelson. Coherent measurements of high-order electronic correlations in quantum wells. *Nature*, 466(7310):1089, Aug. 2010.
- [104] O. Vänskä, I. Tittoonen, S. W. Koch, and M. Kira. Coherent Terahertz Control of Vertical Transport in Semiconductor Heterostructures. *Physical Review Letters*, 114(11):116802, 2015.
- [105] G. von Plessen, J. Feldmann, E. O. Göbel, K. W. Goossen, D. A. B. Miller, and J. E. Cunningham. Escape tunneling out of shallow multiple quantum wells studied by transient four-wave mixing. *Applied Physics Letters*, 63(17):2372, 1993.
- [106] G. von Plessen, T. Meier, M. Koch, J. Feldmann, P. Thomas, S. W. Koch, E. O. Göbel, K. W. Goossen, J. M. Kuo, and R. F. Kopf. Exciton ionization induced by an electric field in a strongly coupled  $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  superlattice. *Physical Review B*, 53(20):13688, May 1996.
- [107] I. Vurgaftman and J. R. Meyer. Band parameters for nitrogen-containing semiconductors. *Journal of Applied Physics*, 94(6):3675, 2003.
- [108] M. Wagner, H. Schneider, D. Stehr, S. Winnerl, A. M. Andrews, S. Schartner, G. Strasser, and M. Helm. Observation of the Intraexciton Autler-Townes Effect in GaAs/AlGaAs Semiconductor Quantum Wells. *Physical Review Letters*, 105(16):167401, Oct. 2010.



- [109] M. D. Webb, S. T. Cundiff, and D. G. Steel. Observation of time-resolved picosecond stimulated photon echoes and free polarization decay in GaAs/AlGaAs multiple quantum wells. *Physical Review Letters*, 66(7):934, 1991.
- [110] M. Wichmann. pers. Komm. 2012.
- [111] J. Wu, W. Shan, and W. Walukiewicz. Band anticrossing in highly mismatched III V semiconductor alloys. *Semiconductor Science and Technology*, 17(8):860, Aug. 2002.
- [112] G. Xing, N. Mathews, S. Sun, S. S. Lim, Y. M. Lam, M. Gratzel, S. Mhaisalkar, and T. C. Sum. Long-Range Balanced Electron- and Hole-Transport Lengths in Organic-Inorganic  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ . *Science*, 342(6156):344, Oct. 2013.
- [113] S. V. Zaitsev, D. R. Yakovlev, and A. Waag. Renormalization of the band gap in highly photoexcited type-II ZnSe/BeTe structures. *Semiconductors*, 43(2):212, 2009.
- [114] B. Zaks, R. B. Liu, and M. S. Sherwin. Experimental observation of electron-hole recollisions. *Nature*, 483(7391):580, 2012.



# Abbildungsverzeichnis

3.1	Intensitätsverteilung des THz-Pulses im Fokus . . . . .	16
3.2	Illustration des FWM-Experiments als transientes Gitters . . . . .	19
3.3	Aufbau zum Vier-Wellen-Mischen unter THz-Feldern . . . . .	22
3.4	Lineare Absorption der FWM-Probe und exemplarische FWM-Spektren. . .	26
3.5	Abhängigkeit der FWM-Transiente von der Verstimmung. . . . .	28
3.6	Abhängigkeit der ungestörten FWM-Transiente von der Photonendichte. .	29
3.7	Ungestörte gemittelte FWM- $\tau$ -Transiente . . . . .	31
3.8	Schema und 2d-Auftragung $T_{THz}$ gegen $\tau$ zur sequenziellen Manipulation.	34
3.9	FWM- $T_{THz}$ -Transienten zu bestimmten $\tau$ . . . . .	36
3.10	Skizze zur Illustration des Photonenechos. . . . .	39
3.11	Abhängigkeit verschiedener FWM-Signaturen von $E_{THz}$ . . . . .	41
3.12	Theorie und Experiment zum reversiblen und irreversiblen Transfer. . . .	45
3.13	Ungestörte FWM-Spektren aufgetragen gegen $\tau$ . . . . .	51
3.14	Spektrale kohärente Oszillationen und Quantenschwebungen . . . . .	53
3.15	THz-induzierte Änderung der FWM-Spektren aufgetragen gegen $\tau$ . . . . .	55
3.16	Spektrale $\Delta$ FWM-Signaturen . . . . .	57
4.1	Aufbau zur transienten Absorption. . . . .	63
4.2	GaAs-Volumenhalbleiter. Lineare Absorption und Probenstruktur. . . . .	64
4.3	Experimenteller Aufbau zur Aufkonversion. . . . .	66
4.4	Zeitlicher Polarisationsverlauf der GaAs-Probe. . . . .	67
4.5	Transiente Absorption von GaAs unter starken THz-Feldern als zeitlicher Verlauf . . . . .	69
4.6	Ausbleichen und Verschiebung der transiente Absorption von GaAs in Abhängigkeit der Feldstärke . . . . .	70
4.7	Schema zu kohärenten Oszillationen und THz-manipulierter Polarisation.	74
4.8	Abhängigkeit der kohärenten Oszillationen von der THz-Feldstärke. . . . .	76
5.1	Aufbau zur linearen Absorption . . . . .	82

5.2	Aufbau zur zeitaufgelösten Photolumineszenz . . . . .	83
5.3	Aufbau zur zeitaufgelösten Anrege-Abfrage-Spektroskopie . . . . .	85
5.4	FROG-Aufnahme des Anregepulses . . . . .	87
5.5	Schematische Auftragung der Bandstruktur der direkten und indirekten Strukturen. . . . .	91
5.6	Experimentelle Verifikation der direkten und indirekten Strukturen. . . . .	93
5.7	Zweidimensionale Auftragung der TRPL in Abhängigkeit der Barriendicke. . . . .	99
5.8	Energie des indirekten Übergangs in Abhängigkeit der Barriendicke. . . . .	104
5.9	Beispiel zur simultanen Anpassung des Ratenmodells. . . . .	106
5.10	Übersicht der Leistungsabhängigkeit der Parameter des Ratenmodells. . . . .	109
5.11	Charakteristika der PL des direkten Übergangs . . . . .	111
5.12	Analyse der Linienform der linearen Absorption. . . . .	115
5.13	Differentielle Transienten verschiedener Anregungsleistung für den Fall der größten Barriendicke. . . . .	117
5.14	Gemittelte differentielle Spektren aus der Anrege-Abfrage-Spektroskopie. . . . .	122
5.15	Statistische Auswertung der differentiellen Spektren für die Langzeit- dynamik. . . . .	125

# Tabellenverzeichnis

5.1 Übersicht über die Wachstumsparameter des direkten und indirekten Probensatzes. . . . .	90
5.2 Berechnete und experimentell ermittelte Transferzeiten. . . . .	119



# Verwendete Begriffe

CB	Leitungsband (conduction band)
CCD	Bildsensor (charged-coupled device)
CPA	Verstärkung gechirpter Laserpulse (chirped-pulse amplification)
EID	Dephasierung durch Anregung (excitation induced dephasing)
FROG	Frequenz aufgelöste Aufkonversion (frequency-resolved optical gating)
FWHM	Volle Halbwertsbreite bei der Hälfte des Maximums (full width at half-maximum)
FWM	Vier-Wellen-Mischen (four-wave mixing)
LED	Leuchtdiode (light-emitting diode)
meV	$10^{-3} \cdot (1.602 \dots \cdot 10^{-19} \text{ J})$
OPA	Optisch-parametrischer Verstärker (optical-parametric amplifier)
SHG	Erzeugung von Photonen mit doppelter Photonenenergie (second harmonic generation)
TEM	Transmissionselektronenmikroskopie
THz	$10^{12} \text{ Hz}$
Ti:Sa	Titan-Saphir ( $\text{T}^{3+} : \text{Al}_2\text{O}_3$ )
TRPL	Zeitaufgelöste Photolumineszenz (time-resolved photoluminescence)
VB	Valenzband (valence band)
VCSEL	Halbleiterscheibenlaser mit internem Resonator (vertical cavity surface-emitting laser)
XRD	Röntgenbeugung (X-ray diffraction)





# Wissenschaftliche Beiträge

## Veröffentlichungen

- [1] M. J. Drexler, A. Rahimi-Iman, and M. Koch „Modified coherent oscillations from THz field ionization of an excitonic polarization“, (2015) In preparation.
- [2] M. J. Drexler, M. Stein, P. Hens, K. Volz, W. Stolz, A. Rahimi-Iman, and M. Koch „Retarded transfer dynamics of optically excited semi-coupled quantum wells“, (2015) In preparation.
- [3] M. J. Drexler, R. Woscholski, S. Lippert, W. Stolz, A. Rahimi-Iman, and M. Koch „Disturbing the coherent dynamics of an excitonic polarization with strong terahertz fields“, Phys. Rev. B 90, 195304 (2014)
- [4] K. Kolata, N. S. Köster, A. Chernikov, M. J. Drexler, E. Gatti, S. Cecchi, D. Chrastina, G. Isella, M. Guzzi, and S. Chatterjee „Dephasing in Ge/SiGe quantum wells measured by means of coherent oscillations“, Phys. Rev. B 86, 201303(R) (2012)

## Vorträge

- [1] M. J. Drexler, R. Woscholski, S. Lippert, W. Stolz, A. Rahimi-Iman, and M. Koch „THz and Excitons“, SMMO2014 International Conference on Semiconductor Mid-IR Materials and Optics, Marburg (DE), Conference Talk (2014)
- [2] M. J. Drexler, M. Koch et al, „THz Research in Marburg“, Research Visit, Prof. Dr. János Hebling, Department of Experimental Physics, University of Pécs (HU), Invited Talk (2012)

## Posterbeiträge

- [ 1 ] M. J. Drexler, M. Stein, R. Woscholski, A. Rahimi-Iman, and M. Koch „Comparison of Carrier Dynamics in Direct and Indirect GaInAs/GaAs/GaNAs Quantum Wells“, International Summer School on Semiconductor Interfaces, San Sebastian (ESP), Conference Poster (2014)
  
- [ 2 ] R. Woscholski, M. J. Drexler, S. Lippert, W. Stolz, A. Rahimi-Iman, and M. Koch „THz-induced Disturbance of Coherent Polarization Dynamics in Semiconductor Quantum Wells“, NOEKS 12, Bremen (DE), Conference Poster (2014)
  
- [ 3 ] M. J. Drexler, R. Woscholski, S. Lippert, W. Stolz, A. Rahimi-Iman, and M. Koch „Disturbing the Dynamics of an Excitonic Wavepacket by a THz pulse“, FOPS Fundamentals of Optical Processes in Semiconductors, Kodiak (US), Conference Poster (2013)
  
- [ 4 ] M. J. Drexler, K. Kolata, N. S. Köster, A. Chernikov, E. Gatti, S. Cecchi, D. Chrastina, G. Isella, M. Guzzi, and S. Chatterjee „Coherent Oscillation Spectroscopy – A different approach to measure dephasing times“, COST School of photonics, Cortona (IT), Conference Poster (2013)