

Akusto-elektrisch getriebene Modulation der Ladungsträgerdynamik in GaAs-Nanodrähten

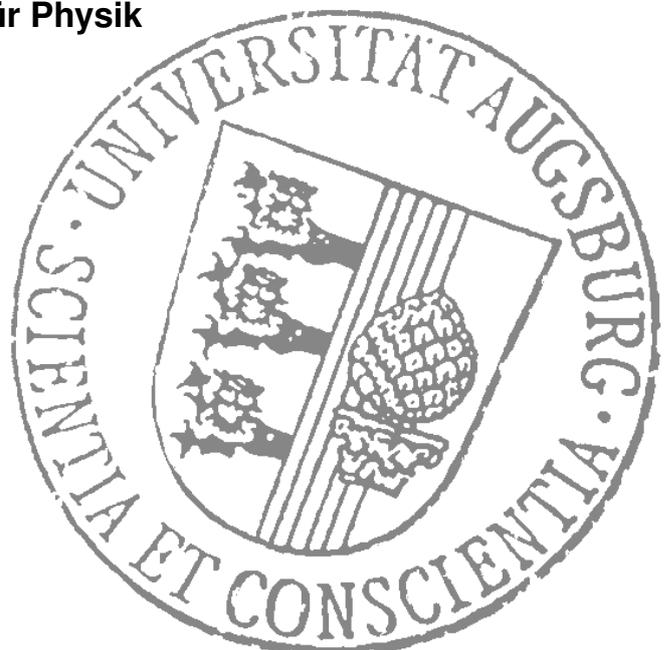
Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades eines
Doktor der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)
der mathematisch-naturwissenschaftlichen Fakultät
der Universität Augsburg

vorgelegt im September 2014 von

Jörg Benjamin Kinzel

Lehrstuhl für Experimentalphysik I
Universität Augsburg
Institut für Physik



Erstgutachter: Prof. Dr. Achim Wixforth

Zweitgutachter: Prof. Dr. Wolfgang Brütting

Tag der mündlichen Prüfung: 27. November 2014

Zwei Dinge sind zu unserer Arbeit nötig. Unermüdliche Ausdauer und die Bereitschaft, etwas, in das man viel Zeit und Arbeit gesteckt hat, wieder wegzuwerfen.

Albert Einstein

Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit behandelt die Beeinflussung der optischen Emission von III/V-Halbleiterstrukturen durch akustische Oberflächenwellen. Die mittels selbstorganisiertem Wachstum synthetisierten Galliumarsenid-Nanodrähte werden hierzu vom während der Synthese genutzten Si/SiO₂-Substrat entfernt und auf ein piezoelektrisches Lithiumniobat-Substrat (LiNbO₃) transferiert. Durch einen lithografischen Vorstrukturierungsprozess ist es möglich, an der Oberfläche des piezoelektrischen Substrates, eine akustische Oberflächenwelle (AOFW) zu erzeugen. Dies geschieht durch das Anlegen einer hochfrequenten (HF) Wechselspannung an die Elektroden eines Interdigitalwandlers.

Bei der folgenden Untersuchung der Nanodrähte mittels Photolumineszenz-Spektroskopie gelingt es, mit Hilfe der Hybridstruktur aus Nanodraht und piezoelektrischen Substrat, Rückschlüsse auf die im Inneren des Halbleiterkristall ablaufenden Prozesse zu ziehen. Bei der eingesetzten Analyse werden dabei durch Dauerstrich- oder gepulste optische Anregung Exzitonen erzeugt, welche anschließend durch das elektrische Feld der AOFW manipuliert werden. Dabei zeigt sich in der zeitintegrierten spektroskopischen Erfassung der Photolumineszenz (PL) eine Abhängigkeit von der angelegten HF-Leistung als auch von der Phasenlage der AOFW am Punkt der Anregung der Ladungsträger durch den Laser. Die dahinter stehende Dynamik der Elektron-Loch-Paare wird unter der Zuhilfenahme von zeitkorrelierter Einzelphotonenzählung beobachtet. Der bei hinreichender elektrischer Feldstärke einsetzende separierte Transport der Elektronen und Löcher in den stabilen Extrema der Typ-II Bandkantenmodulation, welche sich mit der Propagation der akustischen Oberflächenwelle ausbreiten, wird durch eine räumlich aufgelöste Detektion der Photolumineszenz des Nanodrahts nachgewiesen.

Nach der Beschreibung der aus diesen Messverfahren gewonnenen Erkenntnisse des Verhaltens der Ladungsträger, erfolgt zur Verifikation der ermittelten Dynamik die Lösung des zugrunde liegenden Ratenmodells für die Ladungsträger durch numerische Simulation, wobei die Modulation durch die AOFW und deren zeitliche Propagation berücksichtigt wird.

Im Detail handelt es bei den eingesetzten Oberflächenwellen um Rayleigh-Wellen, welche sich auf LiNbO_{3-x}-Substraten mit einem Kristallschnitt von 128° YX-rotiert oder YZ-orientiert durch das Anlegen einer hochfrequenten Wechselspannung an eine periodische Elektrodenstruktur an der Oberfläche des Substrats anregen lassen. Unter dem Einsatz der AOFW gelingt es, die PL-Emission von unpassivierten GaAs-Nanodrähten zu unterdrücken, sofern die AOFW sich parallel zur Längsachse des Nanodrahts ausbreitet. Zur Ermittlung der Ursache folgt im Anschluss die Analyse der Wechselwirkung des Ladungsträgersystems im Nanodraht mit dem elektrischen Feld der AOFW, wobei speziell auf die Richtungs- und Phasenabhängigkeit der Se-

paration der Elektron-Loch-Paare eingegangen wird, welche für die Unterdrückung der PL-Emission verantwortlich ist.

Im Hinblick auf die Analyse der hinter diesem Prozess stehenden Dynamik erschwert der dominante Verlust der zuvor angeregten Ladungsträgerpaare durch nichtstrahlende Rekombination die Erfassung des PL-Signals mittels zeitkorrelierter Einzelphotonenzählung. Erst mit der erfolgreichen Synthese von Kern/Mantel-Nanodrähten mit reduzierter Oberflächenrekombination und damit verlängerter strahlender Lebensdauer, ist es möglich, ein tieferes Verständnis für den Ablauf der Separation zu erlangen und die Zeitpunkte des Überlapps der Ladungsträgerpaare durch die einhergehende strahlende Rekombination zu erfassen.

Gleichzeitig zeigt sich bei der Untersuchung des zeitintegrierten Messsignals, dass die verlängerte Lebensdauer einen Transport der räumlich separierten Elektron-Loch-Paare über makroskopische Distanzen im Kern der Nanodrähte ermöglicht. Hierdurch stellt sich eine zusätzliche Modulation der PL-Intensität in Abhängigkeit der Phasenlage bei der Anregung der Exzitonen ein. Als direkter Nachweis des Transports der Ladungsträger kommt zusätzlich eine orts aufgelöste Detektion der Photolumineszenz zum Einsatz, welche den gesamten Nanodraht erfasst, sodass der Punkt der Anregung und Detektion räumlich getrennt werden.

Das Bild des GaAs-Kerns als idealer eindimensionaler Kanal für den Transport von Ladungsträger wird jedoch durch das vereinzelte Auftreten von Barrieren entlang der Achse des Nanodrahts gestört. Diese entspringen dem Wechsel der Kristallstruktur von GaAs zwischen Zinkblende und Wurtzit und bewirkt eine zusätzliche statische Typ-II Bandkantenmodulation, welche stufenförmig ausgeprägt ist. Im Zusammenspiel mit der Modulation durch die AOFW ergibt sich aus der Dynamik der Ladungsträger an der Potenzialstufe eine zyklisch pulsierende PL-Emission durch strahlende Rekombination der Elektron-Loch-Paare.

Zur Verifikation der bei der Interpretation der Messdaten gewonnenen Ergebnisse, erfolgt zu jedem Abschnitt ein Vergleich des Verhaltens im Experiment mit den Resultaten der numerischen Simulation des Ratenmodells für die beteiligten Ladungsträger. Hierzu wird unter realistischen Bedingungen ein eindimensionaler Kanal definiert, in welchen die Bewegungsgleichungen für Elektronen und Löcher unter dem Einfluss der AOFW gelöst werden. Hieraus ergibt sich ein vollständiger Überblick über die räumliche und zeitliche Abhängigkeit der Verteilung der Ladungsträger.

Weiter lässt sich die numerische Simulation, durch die Kalibrierung der elektrischen Feldstärke der akustischen Oberflächenwelle auf das im Experiment eingesetzte LiNbO_{3-x} -Substrat nutzen, durch Variation der GaAs spezifischen Materialparameter den Verlauf der numerisch simulierten PL-Emission an die Resultate des Experimente anzugleichen und damit die Werte für die Beweglichkeit der Elektronen beziehungsweise Löcher oder die Stufenhöhe der Transportbarriere im realen Nanodraht zu bestimmen.

Abstract

This thesis reports on the modulation of optical emission from individual GaAs-nanowires (NWs) by surface acoustic waves (SAW). An auto catalytic growth process on a Silicon host substrate is used to grow the Nanowires used for our experiments. After fabrication the nanowires are transferred on a piezoelectric Lithiumniobate substrate which allows us to launch a SAW. The excitation of a SAW is carried out by applying an alternating RF-voltage to lithographically predefined interdigital transducers.

This hybrid structure, consisting of a GaAs-nanowire lying on a piezoelectric substrate, enables us to investigate on the optical properties of GaAs-nanowires under the influence of an external dynamic electric field. After the generation of excitons by continuous wave (cw) or pulsed laser excitation we observe in time-integrated experiments a pronounced and characteristic suppression of the PL-intensity for increasing RF-power and likewise for tuning the SAW phase at the point of excitation by 180° . This effect arises from the dissociation and separation of electron-hole-pairs within the type-II band-edge modulation mediated by SAW. To resolve the dynamics of the photo generated excitons in addition we also perform stroboscopic time-correlated single photon counting (s-TCSPC) of the PL-emission from individual NWs. By increasing the RF-power this setup enables us to directly observe the modulation of the PL-emission via the onset of spatial separation and subsequent transport of electrons and holes along the axis of single GaAs/AlGaAs-core-shell nanowires.

After detailed analysis of the dynamics that leads to the observed behavior the results are verified by numerical calculations of the rate equations expanded by the alternating electric field of SAWs.

In a more detailed view, the SAWs used for the manipulation of the excited charge carrier are Rayleigh-type waves. They can be excited on the surface of a 128° YX-rotated or YZ-oriented LiNbO_{3-x} -crystal by applying a radio frequency on a matched interdigital electrode structure which fits the dispersion relation. For SAWs propagating parallel to the axis of the nanowire a clear suppression of the PL-emission from unpassivated NWs can be observed. To investigate on the origin of this effect we perform a detailed analysis of the dependency on the direction of interaction between the orientation of the nanowire axis and the propagation path as well as on the local phasing of the SAW at the moment of electron-hole-pair excitation.

Further analysis on the dynamics of exciton dissociation and separation is hindered by the fast non-radiative loss of charge carriers at surface states. This limitation can be overcome by progress in fabrication of core-shell nanowires. These exhibit an extended lifetime for radiative recombination up to nanoseconds measured by time-correlated single photon counting. Moreover, the enhanced lifetime enables us to gain insight into the mechanism of dissociation and separation of excitons in the electric field mediated by SAW. In addition the PL-transient shows clear evidence for

charge carrier transport along the propagating type-II band-edge modulation induced by SAW. The enhanced dynamics result in a time delayed emission peak due to the reflow of electrons to the point of excitation. There they recombine radiatively with the remaining holes.

In time-integrated experiments the effective transport of charge carriers gives rise to an additional phase dependency of the modulation of PL-intensity. Moreover the transport of separated charge carriers over macroscopic distances can be proofed by a space-resolved PL-detection that covers the emission from the whole nanowire at once. By the use of this setup we are able to spatially separate the point of excitation and detection and thus resolve shifted recombination of excitons.

The presented picture of an idealized one-dimensional channel for the GaAs-core is not valid for all investigated nanowires. Few of them exhibit intrinsic barriers for charge carrier transport that arise from polytypism of the GaAs-crystal phase between zinc-blend and wurtzite structure. This polytypism results in an additional static type-II band-edge modulation. Superimposed by the dynamic type-II band-edge modulation mediated by SAW this gives rise to a characteristic beating in the PL-transient, matching exactly the periodicity of the SAW.

To proof the experimentally acquired understanding of the dynamics of charge carrier separation and transport within GaAs-nanowires, numerical calculations are performed for every milestone regarding the PL-emission of core-shell NWs. To model the experimental parameters a one-dimensional channel is defined for which the rate equations are solved. Within this channel the behavior of the free excitons is enhanced by the propagating electric field of SAWs. This leads to a complete spatial and temporal description of the charge carrier distribution and thus to the expected PL-emission for ideal conditions. In addition we expand the numerical simulation to real conditions by calibrating the electric field that is used for numerical simulations to the one appearing during the measurements. This permits us to determine the mobility of electrons and holes by fine-tuning the material specific parameters for the best match between theory and experiment. Furthermore the introduction of transport barrier to the numerical simulations enables us to determine their height as well.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	1
Abstract	3
1 Einleitung	5
2 Physikalische Grundlagen	11
2.1 Eigenschaften von Galliumarsenid	11
2.2 Lumineszenz im Halbleiter	13
2.2.1 Bandstruktur von GaAs	13
2.2.2 Photolumineszenz	17
3 Akustische Oberflächenwellen	21
3.1 Akustische Anregungen im Festkörper	21
3.2 Akustische Oberflächenwellen auf Lithiumniobat-Substraten	26
3.3 Anregung akustischer Oberflächenwellen	28
3.4 Einheiten der Hochfrequenztechnik	30
4 Wechselwirkung zwischen Oberflächenwellen und Halbleiterstrukturen	33
4.1 Bewegung der Ladungsträger im Halbleiter	33
4.2 Manipulation niederdimensionaler Ladungsträgersysteme durch Oberflächenwellen	34
5 Akustische Oberflächenwellen in Hybridsystemen	39
5.1 Kontrolliertes Wachstum von GaAs-Nanodrähten	39
5.1.1 Vapor-Liquid-Solid-Wachstum	40
5.1.2 Arsen-reiche Wachstumsbedingungen	42
5.2 Präparation des piezoelektrischen LiNbO ₃ -Substrates	43
5.2.1 Prozessierung der LiNbO ₃ -Proben	43
5.3 Charakterisierung der verwendeten Verzögerungsstrecken	45
5.3.1 Parametrisierung der Kristallschnitte und Schallwandler	49
5.4 Erstellung des Hybridsystems	55
5.4.1 Übertragung der Nanodrähte aus Suspension	56
5.4.2 Übertragung der Nanodrähte mittels des Flip-Chip Prozesses	57
6 Experimentelle Techniken	61
6.1 Tieftemperatur-Photolumineszenz-Setup	61
6.2 Elektronische Synchronisierung der Komponenten	66

7	Optische Emission unpassivierter GaAs-Nanodrähte	71
7.1	Charakterisierung der Nanodraht Photolumineszenz	71
7.2	Photolumineszenz unter dem Einfluss akustischer Oberflächenwellen .	73
7.2.1	Richtungsabhängigkeit der Ladungsträgerseparation	74
7.2.2	Zeitaufgelöste Analyse der PL-Modulation	78
7.2.3	Abhängigkeit der Unterdrückung der Photolumineszenz von der lokalen Phasenlage	82
8	Optische Emission von GaAs/Al_{0,3}Ga_{0,7}As-Kern/Mantel-Nanodrähten	85
8.1	Charakterisierung Photolumineszenz der Kern/Mantel-Nanodrähte . .	85
8.2	Leistungs- und Phasenabhängigkeit der PL-Unterdrückung	87
8.3	Direkter Nachweis des Ladungsträgertransports entlang der Achse des Nanodrahts	97
9	Dynamik der Ladungsträger im elektrischen Feld der AOFW	105
9.1	Zeitaufgelöste Photolumineszenz von Kern/Mantel-Nanodrähten . . .	105
9.2	Simulation der Ladungsträgerdynamik durch numerische Lösung des Ratenmodells	117
9.3	Ermittlung der Beweglichkeit der Ladungsträger in Kern/Mantel- Nanodrähten anhand zeitaufgelöster numerischer Simulation	124
9.4	Bestimmung der Ladungsträgerbeweglichkeit anhand zeitintegrierter PL-Spektroskopie	131
10	Störstellen induzierte Limitierung der Ladungsträgerbewegung	141
10.1	Detektion lokaler Störungen der Bandstruktur durch zeitaufgelöste Spektroskopie	141
10.2	Simulation lokaler Störungen durch Variation der Bandstruktur	157
11	Zusammenfassung und Ausblick	175
11.1	Entwicklung der Charakteristika der Nanodrähte	175
11.2	Vergrößerung der Funktionalität der Nanodrähte durch radial mehrla- gigen Aufbau	182
	Parameter der Probenpräparation	189
	Zusammenfassung der eingesetzten Proben	191
	Parameter zur numerischen Simulation der Ladungsträgerdynamik	192
	Literaturverzeichnis	193
	Abbildungsverzeichnis	201
	Tabellenverzeichnis	205
	Danksagung	207

1 Einleitung

Die Antwort der Halbleitertechnologie auf die konstante Forderung nach steigender Rechenleistung ist bisher die Erhöhung der Integrationsdichte der Schaltkreise auf den einzelnen Bauelementen wie Prozessoren oder Speicherzellen. Die hierfür nötige Verkleinerung der Strukturgröße erfordert bei jedem Miniaturisierungsschritt eine Fortentwicklung des Strukturdesigns der Gate-Elektrode. Bei der in den Startlöchern stehenden Prozessorgeneration mit einer Gate-Länge von 14 nm via Fin-FET Technologie, ist die Grenze der bisher eingesetzten rein planaren Top-down-Strukturierung (engl. von oben nach unten) überschritten.

Bei diesem Herstellungsverfahren wird die gewünschten Strukturen des Bauelements durch die Bearbeitung eines Volumenkristalls hergestellt. Auf Grund der Strukturgrößen im Nanometerbereich kommen hier vor allem Lithografie-, Ätz-, Implantations- und Depositionsverfahren zum Einsatz. Bei immer stärkerer Miniaturisierung folgen die Ladungsträger jedoch nicht mehr den klassischen Erwartungen, sondern müssen mit Erreichen von Strukturgrößen im Bereich der de-Broglie-Wellenlänge quantenmechanisch als Welle betrachtet werden. Dieses Verhalten führt in der Bauform eines Feldeffekt-Transistors (FET) zu zusätzlichen Leckströmen durch das Dielektrikum am Gate-Anschluss. Hierdurch entsteht ein parasitärer Verlustkanal zwischen Source- und Gate-Kontakt, was die Charakteristika des FETs verschlechtert.

Neben den quantenmechanischen spielen auch materialspezifische Eigenschaften bei Strukturgrößen im Nanometerbereich eine Rolle. Da im Bereich der Strukturgröße von wenigen Nanometern nur noch wenige Atomlagen des Trägermaterials wie Silizium oder Galliumarsenid (GaAs) das Verhalten bestimmen, entsteht aus der unkontrollierten Diffusion von Fremdatomen, zum Beispiel aus der Dotierung oder Grenzschichten, eine Gefahr für die permanente Funktionalität des Bauteils.

Einen abweichenden Ansatz bei der Fabrikation von Strukturen im Nanometerbereich verfolgt das Bottom-up-Verfahren (engl. von unten nach oben). Bei dieser Technik macht man sich das selbstorganisierte Wachstum von Kristallen zunutze und fügt diese nach Fertigstellung der funktionellen Abschnitte im Halbleiter in einem anschließenden Prozessschritt zum eigentlichen Bauteil zusammen.

Ein in den letzten Jahren in den Fokus der Forschung gerücktes Beispiel für das Bottom-up-Wachstum stellen Nanodrähte dar. Dabei handelt es sich um Strukturen mit einem Durchmesser im Bereich bis mehreren hundert Nanometern und gleichzeitig einer Länge von mehreren Mikrometern. Entscheidend dabei ist das hohe Aspektverhältnis, welches gleichzeitig ein hohes Oberfläche-zu-Volumen-Verhältnis mit sich bringt. Dies macht den Nanodraht für materialspezifische Wechselwirkungen an der Oberfläche attraktiv.

Prinzipiell handelt es sich beim Wachstum von Nanodrähten um die fortgesetzte senkrechte Nukleation eines Quantenpunkts auf einem Wachstumssubstrat. Dieses gleicht dem Übergang von einem nulldimensionalen in ein eindimensionales System. Bei

der Nukleation kommt es am Nanodraht jedoch nicht zwangsläufig zu einem epitaktischen aufwachsen des Nukleationskeims an das Wirtssubstrat, wie im Falle der verspannungsinduzierten Ausbildung von Quantenpunkten [LKR93]. Das Wachstum der Nanodrähte findet stattdessen an der Grenzfläche zwischen dem Wirtssubstrat und einem flüssigen Nukleationskeim durch selbstorganisiertes Wachstum statt [CSF08]. Dies bietet während des Wachstums des Nanodrahts die Möglichkeit durch die Änderung des Verhältnisses der Nukleationspartner im Keim einen Übergang der Stöchiometrie zu induzieren und eine Funktionalisierung des Nanodrahts entlang der Achse des Wachstums zu erreichen. Durch Änderung der Dotierung während des Wachstums von GaAs-Nanodrähten gelang es bereits 1992 die erste Leuchtdiode (engl. light emitting diode, LED) mittels einem lateralen pn-Übergang zu realisieren [HKHO92]. Auf Grund des großen Oberfläche-zu-Volumen-Verhältnisses, bietet die Geometrie des Nanodrahts eine hohe Sensitivität gegenüber äußeren Einflüssen, welche die intrinsischen Eigenschaften verändern können. Dazu gehört zum Beispiel die Anlagerung von Gasen oder Molekülen mit funktionellen Gruppen, sodass der Nanodraht als Sensor dient [CWPL01]. Ebenso lassen sich durch die Oberfläche hindurch im Inneren des Nanodrahts photogenerierte Ladungsträger erzeugen, welche die Leitfähigkeit beeinflussen [XLL12] oder unter Aussendung eines Photons mit materialspezifischer Wellenlänge rekombinieren [DWL00].

Umgekehrt verhält es sich, wenn Oberflächenzustände störend auf die geplante Funktion wirken. Bei der Photolumineszenz der GaAs-Nanodrähte führen die ungesättigten Oberflächenzustände zu einem Verlustkanal für die erzeugten Ladungsträger durch nichtstrahlende Rekombination und verschlechtern somit die optischen Eigenschaften. Unter diesem Gesichtspunkt spielt die Terminierung der Zustände an der Oberfläche durch eine umlaufende Beschichtung des Nanodrahts mit einer Ummanntelung eine entscheidende Rolle [DHB10]. Für GaAs bildet $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ aufgrund der größeren Bandlücke eine Einschlussbarriere, welche die nichtstrahlende Rekombination verhindert und damit gleichzeitig die optische Emission um den Faktor 10^3 verbessert. Die Wahl dieses Mischkristalls aus der III/V-Gruppe bietet den Vorteil, dass es zu einem epitaktischen Aufwachsen des radialen Mantels an den Kern kommt und zum anderen der zugehörige Prozess aus der Fertigung der planaren GaAs-Technologie gut verstanden ist.

In der vorliegenden Arbeit wird das Verhalten der Ladungsträger in intrinsischen GaAs-Nanodrähten ohne zusätzliche Hülle sowie Kern/Mantel-Nanodrähten mit einer $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Mantelschicht durch optische Analyseverfahren untersucht. Dazu gehört die optische Anregung der Elektron-Loch-Paare sowie die Detektion des bei der Rekombination emittierten Lichts in Energie-, Zeit- und Ortsauflösung. Diese als Mikro-Photolumineszenz ($\mu\text{-PL}$) bezeichnete Verfahren stellt eine nicht-invasive Untersuchungsmethode dar, sodass das Ladungsträgersystem nicht durch äußere Einflüsse wie zusätzliche elektrische Kontakte gestört wird.

Eine dazu passende Methode der Manipulation der Ladungsträger ohne Störung der elektronischen Struktur, stellen akustische Oberflächenwellen dar. Bei diesem Wellentyp kommt es zur Ausbreitung der Auslenkung aus der Ruhelage an der Oberfläche des Mediums, wie es auch bei einem Erdbeben der Fall ist. Charakteristisch hierfür ist, dass aus der Superposition eines longitudinal zur Ausbreitungsrichtung schwingenden Anteils, mit einem transversalen Schwingungsanteils senkrecht zur Oberfläche, eine elliptische Auslenkung eines Volumenelements folgt. Nach dem Transit der

Verzerrung durch die AOFW, kehrt dieses wieder in seiner ursprünglichen Lage und Form zurück. Im Gegensatz hierzu kommt es bei dem zunächst vor Augen präsenten Wellenzug in Wasser zu einer Verlagerung von Material mit der sich ausbreitenden Welle, sodass diese keine AOFW darstellen.

Mit der mathematische Beschreibung der AOFW Ende des 19. Jahrhunderts durch Lord Rayleigh wurde der Grundstein für unsere heutige Form des drahtlosen Informationszeitalters gelegt [Ray85]. Die Anregung einer AOFW auf einem piezoelektrischen Kristall ist durch den Einsatz einer kammartig ineinandergreifenden Elektrodenstruktur unter Ausnutzung des inversen piezoelektrischen Effekts möglich, sofern die Frequenz des äußeren elektrischen Wechselfeldes die Dispersionsrelation aus Schallgeschwindigkeit im Medium und Periode der Elektrodenpaare erfüllt [WV65]. Bringt man nun eine weitere Elektrodenstruktur mit gleicher Periode in den Ausbreitungspfad, so lässt sich aus der periodischen Verformung des piezoelektrische Kristalls ein elektrisches Signal zurückgewinnen. Da die Anregung und Detektion nur bei der Frequenz möglich ist welche mit der Periode der interdigitalen Elektrodenstruktur bestimmt wird, bildet die Anregung und Detektion einer AOFW einen Bandpassfilter für hochfrequente Signale.

Die freie Propagation der AOFW an der Oberfläche des piezoelektrischen Mediums wird auf Grund der Verzerrung des Kristalls von einem alternierenden elektrischen Feld begleitet. Da sich die mechanische Deformation als auch die Ausdehnen des elektrischen Feldes auf den Bereich nahe der Oberfläche konzentriert, eignet sich die AOFW als Untersuchungsmethode für dünne Materialschichten. Insbesondere für elektronische Systeme bietet sich die kontaktlose Manipulation der Ladungsträger durch das elektrische Feld an, welche im Halbleiter eine Typ-II Bandkantenmodulation bewirkt. In der Kombination mit der optischen Spektroskopie könne so die intrinsischen Eigenschaften beobachtet werden, ohne das zu untersuchende System durch elektrische Kontakte zu beeinflussen.

Beispiele hierfür sind die Kopplung von zweidimensionalen Ladungsträgersystemen an das Feld der AOFW [RZW97] oder die Kontrolle über den Ladungszustand eines nulldimensionalen Quantenpunkts [VKS11].

Zwischen der Kontrolle der Ladungsträger in einem zweidimensionalen Elektronengas und der Modulation der Ladungszustände in einem Quantenpunkt, bietet die eindimensionale Struktur eines Nanodrahts die optimale Basis um das Verhalten von Elektronen und Löchern in der Typ-II Bandkantenmodulation zu untersuchen. Für einen GaAs-Nanodraht, welcher sich im Ausbreitungspfad der AOFW befindet, lässt sich mit dem eingesetzten akustooptischen Messverfahren die Dissoziation der Exzitonen im Feld der AOFW in ein freies Elektron und Loch durch räumliche Trennung steuern und selektiv mit der Schallgeschwindigkeit des Substrats transportieren [HMH82]. Ebenso geht aus dem Verhalten der strahlenden Rekombination der erzeugten Elektron-Loch-Paare in GaAs/Al_{0,3}Ga_{0,7}As-Kern/Mantel-Nanodrähten, ein Verständnis der Dynamik der Ladungsträger im Feld der AOFW hervor.

Die zur Analyse von GaAs-Nanodrähten mittels akusto-optischer Modulation sowie die zur numerischen Nachbildung des Verhaltens nötigen Grundlagen sind im Verlauf der vorliegenden Arbeit beschrieben. Diese gliedert sich in vier Teile.

Der erste Teil befasst sich mit der Einführung in die physikalischen Grundlagen. Dazu gibt Kapitel 2 einen Überblick über den kristallografischen Aufbau des verwendeten

Galliumarsenids und die zugehörigen Eigenschaften der Bandstruktur. Hieran gliedert sich eine Vorstellung der Grundzüge der Photolumineszenz-Spektroskopie mit Betrachtung der Anregung von Exzitonen und deren strahlende und nicht-strahlende Rekombination.

Im Anschluss erfolgt in Kapitel 3 die Erfassung der Kräfte bei der Deformation eines elastischen Festkörpers sowie der Rayleigh-Welle als Lösung der Bewegungsgleichung einer AOFW. Diese allgemeine Beschreibung wird im Anschluss anhand des verwendeten piezoelektrischen LiNbO_3 -Kristalls präzisiert und die Eigenschaften der verschiedenen Kristallschnitte aufgezeigt. Als nächstes wird die Anregung der AOFW im Experiment erläutert und wichtige Parameter der Hochfrequenztechnik vorgestellt.

Zum Abschluss des ersten Teils erfolgt in Kapitel 4 die Analyse der Bewegungsdynamik von Elektronen und Löchern im Halbleiter sowie die Wechselwirkung des elektrischen Felds der AOFW mit den optisch angeregten Ladungsträgern.

Im Fokus der zweiten Teils der Arbeit steht die Präparation des Probenmaterials sowie die Erläuterung die im Experiment herangezogenen Vorgehensweisen. Hierzu zählt in Kapitel 5 zum einen das selbstorganisierte Wachstum der Nanodrähte mittels Molekularstrahlepitaxie, zum anderen die Präparation der Verzögerungsstrecken auf dem piezoelektrischen LiNbO_3 -Wirtssubstrat. Zusätzlich erfolgt die Charakterisierung der Ausbreitung der AOFW für die verschiedenen Probengeometrien und Frequenzen.

Im Anschluss werden unterschiedliche Methoden der Übertragung der Nanodrähte auf das piezoelektrische Substrat gegenüber gestellt und die Vor- und Nachteile diskutiert. Zuletzt erfolgt die Vorstellung und Beschreibung der hergestellten Hybridprobe aus Nanodraht und Piezoelektrikum.

Kapitel 6 widmet sich der Erklärung der in dieser Arbeit eingesetzten Techniken zur Durchführung der Experimente. Dazu gehört die Beschreibung der Komponenten des μ -PL Aufbaus mit Anregung, Justage und Detektion gefolgt von der Synchronisierung der Komponenten untereinander.

Der dritte Teil beschäftigt sich mit den Resultaten der μ -PL-Spektroskopie. Dabei wird in Kapitel 7 die Abhängigkeit der PL-Emission von unpassivierten GaAs-Nanodrähten unter der Einwirkung der AOFW untersucht. Dies umfasst die Analyse der Abhängigkeit der Effizienz der PL-Unterdrückung von der Orientierung der Ausbreitungsrichtung der AOFW zur Achse des Nanodrahts als auch der Phasenlage der AOFW am Punkt der Anregung. Hieran schließt sich in Kapitel 8 die detaillierte Untersuchung der gesteigerten PL-Emission von GaAs/ $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Kern/Mantel-Nanodrähten an. Hierbei wird die Abhängigkeit von der Phasenlage bei verschiedenen Leistungen untersucht. Darüber hinaus erfolgt der Nachweis des Transports der Ladungsträger im Kern des Nanodrahts durch orts aufgelöste Erfassung des PL-Signals mittels einem CCD-Sensor.

Im anschließenden vierten Teil konzentriert sich die Analyse der Messdaten auf die Dynamik der Photolumineszenz. Hierzu werden in Kapitel 9 Messungen mittels zeitkorrelierter Einzelphotonenzählung bei unterschiedlichen Phasenlagen und HF-Leistungen zur Anregung der AOFW durchgeführt. Im Anschluss erfolgt ein Vergleich der experimentell gewonnenen Resultate mit dem aus numerischer Simulation erwartetem Verhalten. Die Variation der Parameter für die Beweglichkeit von Elektronen und Löchern ermöglicht es, die Ergebnisse der Simulation an die Schlüsselstellen

der Beobachtung im Experiment anzupassen. Im Umkehrschluss ergibt sich mittels der Kalibrierung der HF-Leistung zwischen Simulation und Experiment eine Abschätzung der Beweglichkeit der Ladungsträger im untersuchten GaAs/Al_{0,3}Ga_{0,7}As-Kern/Mantel-Nanodraht.

Aufbauend auf diese Methode zur Bestimmung der Beweglichkeit, werden anschließend die Charakteristika der Simulation bei zeitintegrierter Darstellung mit den Ergebnissen der Experimente verifiziert.

Das folgende Kapitel 10 beschäftigt sich mit dem abweichenden Verhalten einzelner Nanodrähte im Verlauf der Abklingkurve in zeitaufgelösten Messungen. Dazu gehört die Analyse der Leistungs- und Phasenabhängigkeit der beobachteten zyklisch pulsierenden Emission von der eingesetzten AOFW sowie die Auswirkung der Umkehrung der Ausbreitungsrichtung und Verkleinerung der Wellenlänge.

Dieses Verhalten lässt sich durch die Abkehr vom Bild des idealen eindimensionalen Kanals im Kern des Nanodrahts erklären, wobei eine stufenförmige Barriere als Störung der Bandstruktur entlang des Kanals und somit im Ausbreitungspfad dient.

Abschließend erfolgt eine Verifikation dieser Annahme durch die Erweiterung der numerischen Simulation um eine Potenzialbarriere. Durch Variation der Höhe der Barriere gelingt es das experimentelle Verhalten nachzubilden und somit den realen Wert der Potenzialbarriere einzugrenzen.

Den Abschluss bildet Kapitel 11 mit einer Zusammenfassung der Ergebnisse und dem Ausblick auf das zukünftige technologische Entwicklungspotenzial der Nanodrähte.

2 Physikalische Grundlagen

Die Miniaturisierung der Strukturgrößen von Halbleiterbauelementen in der Mikroelektronik, verlangt neue und verbesserte Ansätze zur Realisierung dieses Vorhabens. Moderne Präparationsmethoden, wie epitaktische Schichtabscheidung, Implantation, kontrollierte Oxidation und Ätzverfahren, erreichen bei planaren Strukturgrößen von wenigen Nanometern die Grenze der technologischen Machbarkeit. Eine neue Perspektive zur Realisierung aktiver Bauelemente bieten Halbleiter Nanodrähte. Deren selbstorganisiertes Wachstum ermöglicht bereits während des Herstellungsprozesses die Integration von funktionalisierten Bereichen. Diese können sowohl in axialer Richtung entlang der Wachstumsrichtung angeordnet werden, als auch in radialer Richtung durch Ummantelung des Kerns nach Abschluss des Längenwachstums. Die direkte Realisation dieser Abschnitte benötigt jedoch eine optimale Steuerung der Wachstumsbedingungen, so dass zum gewünschten Zeitpunkt an gewünschter Stelle ein bestimmter Strukturtyp kristallisiert.

Durch das große Verhältnis der Oberfläche zum Volumen im Nanodraht, zeigen sich die physikalischen Eigenschaften des synthetisierten Materials großflächig an der Oberfläche und können mit zerstörungsfreien Methoden, wie der Photolumineszenz-Spektroskopie charakterisiert werden.

Als im planaren Schichtsystem gut verstandener Element III/V-Halbleiter bietet Galliumarsenid, zusammen mit seinen ternären Verbindungen eine gute Plattform zur Untersuchung der Synthese und daraus resultierenden Eigenschaften von Nanodrähten, welche im Folgenden beschrieben werden.

2.1 Eigenschaften von Galliumarsenid

Galliumarsenid ist aus dem täglichen Gebrauch von Elektronik nicht mehr wegzudenken. Wie andere Vertreter der Verbindungshalbleiter der III. Hauptgruppe des Periodensystems (Al, Ga, In) und der V. Gruppe (P, As, Sb), kristallisiert dieses in der kubischen Zinkblende-Struktur (ZB). Lediglich ternäre Nitridverbindungen (III-N) kristallisieren in der hexagonalen Wurtzit-Struktur (WZ) [Sin03].

Durch die Herstellung von GaAs-Nanodrähten mittels Molekularstrahlepitaxie (engl. molecular beam epitaxy, MBE), ist es jedoch möglich, auch GaAs in der Wurtzit-Struktur stabil zu synthetisieren. Wie in Abbildung 2.1 zu sehen, sind in beiden Strukturen die Gallium-Atome (gelblich) tetraedrisch von Arsen-Atomen (hellblau) umgeben. Der Unterschied entsteht durch die Anordnung der benachbarten Gitterebene. Die Zinkblende-Struktur kann durch zwei kubisch-flächenzentrierte Gitter beschrieben werden, wobei eines der Gitter durch Gallium, das andere durch Arsen-Atome besetzt ist und diese gleichzeitig um $(1/4, 1/4, 1/4)$ der Einheitszelle entlang der Raumdiagonalen Richtung (a, b, c) ineinander verschoben sind. Hieraus ergibt sich

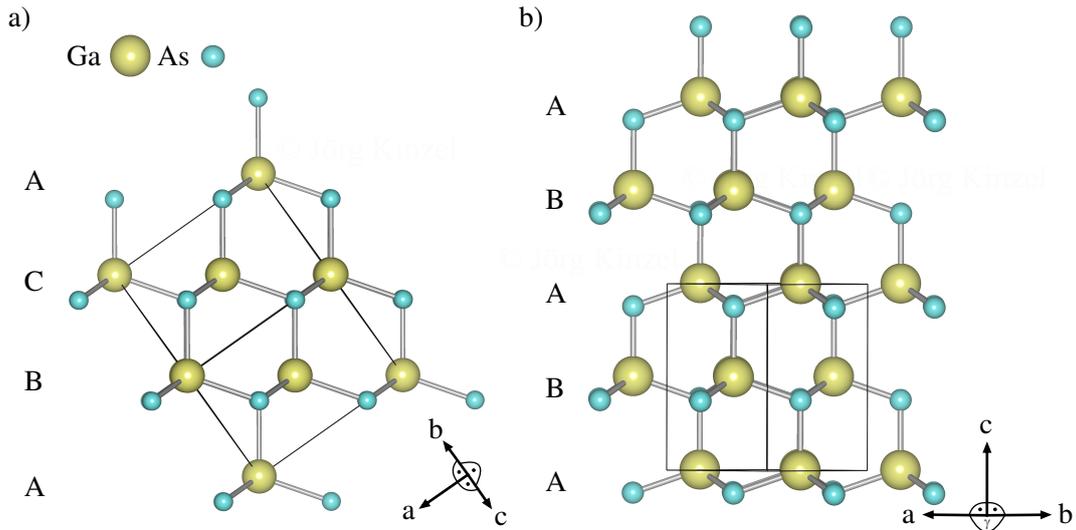


Abbildung 2.1: Mögliche Kristallstruktur von GaAs in Nanodrähten. Ockergelb Gallium-Atom, Hellblau Arsen-Atom a) Natürlich auftretende kubische Zinkblende-Struktur mit Stapelfolge ABCABC der Gitterebenen entlang der $[111]$ -Richtung in der Einheitszelle. b) Hexagonale Wurtzit-Struktur von GaAs mit Stapelfolge ABAB der Ebenen entlang der $[0001]$ -Richtung.

entlang der $[111]$ -Richtung die kubisch dichteste Kugelpackung mit der Stapelfolge ABCABC der Gitterebenen, wobei die Nomenklatur einer Gitterebene in der Stapelsequenz gleichzeitig einer Lage Gallium und einer Lage Arsen entspricht, wie in Abbildung 2.1 a) zu sehen.

Die Wurtzit-Modifikation lässt sich auf gleichem Wege durch zwei ineinander gesteckte hexagonale Bravais-Gitter zusammensetzen, bestehend aus den Atomen der verschiedenen Elemente. Die dichteste Kugelpackung findet sich hier in die $[0001]$ -Richtung mit der Stapelfolge ABAB, wie in Abbildung 2.1 b) abgebildet. Der Unterschied zwischen beiden Strukturen entsteht somit aus der Anordnung der übernächsten benachbarten Ebene. Liegt die dritte Ebene deckungsgleich zur ersten, handelt es sich um die Wurtzit-Struktur, liegt diese auf der versetzten Lücke so entsteht die Zinkblende-Struktur.

Hieraus ergibt sich, dass die Drehung einer Ebene um 180° oder 60° den Übergang zwischen den Strukturen auslöst. Folgt auf die erste Drehung eine erneute, wird die ursprüngliche Kristallstruktur, wenn auch gedreht, fortgesetzt. Bei diesem Übergang spricht man von einem Zwillingsdefekt [CDJ09]. Kommt es im Gegensatz zur Fortsetzung der Stapelreihenfolge, entspricht dies einem Stapelfehler und die Kristallstruktur wechselt. Inwieweit ein Strukturtyp während dem Wachstum von GaAs-Nanodrähten entlang der Achse präferiert wird oder ein Wechsel stattfindet und dabei Stapelfehlern oder Zwillingsdefekten in einem Segment entstehen, ist Gegenstand aktueller Untersuchungen. Speziell bei den mit Gallium als Nukleationskeim gewachsenen Nanodrähten, hat die Stöchiometrie der Partialdrücke von Gallium und Arsen während des Nukleationsprozesses einen entscheidenden Einfluss, da diese direkte Auswirkungen auf die Wachstumsgeschwindigkeit zeigt [CSF08]. Ebenso variiert mit dem Verhältnis beider die Arsen-Sättigung des Gallium-Tröpfchens, so dass sich

bei geringerem Arsen-Fluss eine Tendenz zur vermehrten Ausbildung von Wurtzit-Segmenten kommt [YPA12, RHB11]. Die Substrattemperatur besitzt in den Grenzen des MBE Wachstumsfensters für Nanodrähte dagegen einen geringeren Einfluss [CDS10].

Die Funktionsweise des Gallium-katalysierten Wachstums sowie die Parameter der im Rahmen dieser Arbeit eingesetzten Nanodrähte, sind in Kapitel 5.1 genauer erläutert.

Der Wechsel der Kristallstruktur entlang der Achse eines Nanodrahts bewirkt gleichzeitig eine Modulation der Bandstruktur, welche wiederum die optischen Eigenschaften beeinflusst. Dies ermöglicht es durch Ausnutzung der Polytypie Übergitter oder Quantenpunkte zu erzeugen [CBJ11], ohne dass Fremdatome als Dotierung eingebracht werden müssen. Die Auswirkungen auf die unterschiedlichen Ladungsträgerspezies sowie deren optische Anregung und Rekombination ist im nächsten Abschnitt erläutert.

2.2 Lumineszenz im Halbleiter

Betrachtet man die Elektronen eines einzelnen Atoms, so besitzen diese diskrete Energieniveaus. Im einfachsten Fall des Wasserstoff-Atoms ergeben sich hier die klassisch Übergangsniveaus nach Lyman, Balmer, Paschen und weitere. Im Ensemble des Kristallgitters mit seinen kovalenten Bindungen verschmelzen die Energieniveaus der Valenzelektronen der Atome und bilden Energiebänder aus, welche mit Elektronen aus dem gesamten Festkörper besetzt werden können. Im Bereich zwischen dem jeweiligen Energieband kann sich kein Elektronen aufhalten, da dessen Wellenfunktion in diesem Bereich keine Lösung für das periodische Gitterpotenzial im Kristall besitzt.

Analog dem Orbitalmodell für das einzelne Atom, welches durch das Pauli-Prinzip und die Hund'schen Regeln beschrieben wird, besetzen die Elektronen für den Grundzustand die energetisch günstigsten Bänder in der Bandstruktur zuerst. Das höchste, am absoluten Nullpunkt mit Elektronen komplett besetzte Band, wird als Valenzband bezeichnet, das erste unbesetzte als Leitungsband. Beides zusammen entspricht dem Charakteristikum des Halbleiters. Die Energiedifferenz zwischen diesen beiden ergibt die Bandlücke E_g . Will man ein Elektron aus dem Valenzband in einen freien Zustand des Leitungsbandes anheben, wo es sich frei bewegen kann und zur elektrischen Leitfähigkeit beiträgt, so muss mindestens diese Energie von außen zugeführt werden.

Entscheidend für die Größe der Bandlücke sowie deren elektrischen und optischen Eigenschaften ist die Kristallstruktur des betrachteten Festkörpers, welche im folgenden Abschnitt für Galliumarsenid betrachtet wird.

2.2.1 Bandstruktur von GaAs

Für die in Abbildung 2.1 a) gezeigte Zinkblende-Struktur von GaAs, welche aus einem kubisch flächenzentrierten Gitter basiert, lässt sich die Bandstruktur im reziproken Raum errechnen, wie in Abbildung 2.2 a) dargestellt [Fox10]. Ausgehend vom Γ -Punkt im Zentrum der Brillouin-Zone, entspricht der Verlauf zum L-Punkt

der diagonalen [111]-Richtung zur Zonengrenze bei $\vec{k} = \frac{\pi}{a}(1, 1, 1)$, wobei a der Kantenlänge des fcc-Gitters entspricht. Der Verlauf der Bandstruktur zum X-Punkt führt in [100]-Richtung zur Grenze der Brillouin-Zone bei $\vec{k} = \frac{\pi}{a}(1, 0, 0)$.

Unter diesen drei Punkten hoher Symmetrie in der Bandstruktur, spielt vor allem die Ausprägung der Bandstruktur am Γ -Punkt eine entscheidende Rolle für die optische Eigenschaft. Wie man der Abbildung 2.2 a) entnehmen kann, besitzt GaAs eine direkte Bandlücke, da das Minimum der Leitungsbandes und das Maximum des Valenzbandes am gleichen Punkt im k -Raum zusammenfallen. Somit ist es ausreichend einem Elektron die Energie $E_g = \hbar\omega$ zuzuführen (ω : Kreisfrequenz der elektromagnetischen Welle, hier im optischen Wellenlängenbereich), um es in das Leitungsband anzuheben. Im Falle eines indirekten Halbleiters ist zusätzlich ein Phonon nötig, welches einen Impulsübertrag \vec{q} im k -Raum liefert.

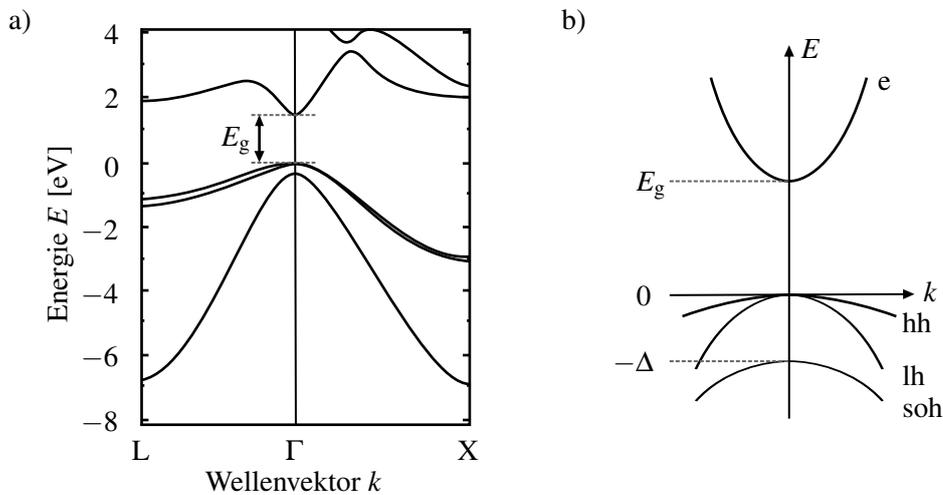


Abbildung 2.2: a) Reduzierte Bandstruktur von GaAs entlang der Punkte hoher Symmetrie (L, Γ , X) im k -Raum für GaAs. Direkte Bandlücke E_g am Γ -Punkt [CC76] b) Darstellung der Entartung am Γ -Punkt. e: Elektronenband, hh: Schwerlochband (heavy-hole), lh: Leichtlochband (light-hole), soh: abgespaltenes Lochband (spin-orbit split-off), Δ : Spin-Bahn-Kopplungsenergie [Fox10].

Durch den Ursprung der Bandstruktur nahe der Fermi-Kante aus der Verschmelzung der s - und $p_{x,y,z}$ -Orbitale des einzelnen Atoms, kommt es am Γ -Punkt zur Ausbildung eines s -artigen Leitungsbandes sowie drei p -artigen Valenzbändern, welche in Abbildung 2.2 b) zu sehen sind. Diese wären ohne äußere Einflüsse entartet. Durch die Spin-Bahn-Kopplung wird eines der Valenzbänder energetisch um Δ abgesenkt und bildet das abgespaltenes Lochband (engl. split-off band, soh). Die beiden übrigen Lochbänder bleiben am Γ -Punkt zwar entartet, besitzen allerdings eine unterschiedliche Krümmung, was sich in einer unterschiedlichen effektiven Masse m^* ausdrückt. Aus diesem Grund wird das schwächer gekrümmte Band als Schwerlochband (engl. heavy-hole, hh), das stärker gekrümmte als Leichtlochband (engl. light-hole, lh) bezeichnet.

Betrachtet man den Drehimpuls j von Elektronen und Löcher, wobei gilt $\vec{j} = \vec{l} + \vec{s}$ mit l Bahndrehimpuls, s Spin, so erhält man aus dem s -artigen Ursprung des Elektrons im Leitungsband mit $l = 0$ ein Drehimpuls von $j = s = \frac{1}{2}$. Die Projektion in die

z-Richtung liefert somit einen Wert von $m_{s,z} = \pm \frac{1}{2}$, mit m magnetischen Quantenzahl. Für die Lochbänder, mit ihrem p-artigen Charakter und somit $l = 1$, ergibt sich ein Gesamtdrehimpuls von $j = \frac{3}{2}$ beziehungsweise für die z-Projektion $m_{j,z} = \pm \frac{1}{2}, \pm \frac{3}{2}$. Dabei ist $m_{j,z} = \pm \frac{3}{2}$ dem Schwerlochband zugeordnet und $m_{j,z} = \pm \frac{1}{2}$ dem stärker gekrümmten Leichtlochband.

Da bei der Rekombination von einem Elektron-Loch-Paar, Energie- und Impulserhaltung gelten müssen und ein Photon den Drehimpuls \hbar besitzt, können nur Paare mit dem Gesamtdrehimpuls $m_{j,z} = \pm 1$ strahlend rekombinieren. Alle anderen Kombinationen mit $m_{j,z} = \pm 2$ sind optisch nicht aktiv.

Für die Energie der Ladungsträger im Bereich des Γ -Punkts, ergibt sich aus dem parabolischen Verlauf von Valenz- und Leitungsband

$$E_L(k) = E_g + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e^*} \quad (2.1)$$

$$E_V(k) = -\frac{\hbar^2 k^2}{2m_h^*}, \quad (2.2)$$

mit $m_{e,h}^*$ reduzierte Masse, wobei gilt:

$$m_{e,h}^* = \hbar^2 \left(\frac{\partial^2 E_{e,h}(k)}{\partial k^2} \right)^{-1} \quad (2.3)$$

Zusammen mit der reduzierten Masse μ für Elektronen und Löcher $\frac{1}{\mu} = \frac{1}{m_e^*} + \frac{1}{m_h^*}$, erhält man aus Gleichung 2.1 und 2.2 nach der Energieerhaltung für optische Interband-Anregung (Band-Band, BB) eines Elektron-Loch-Paars:

$$\hbar\omega = E_{g, BB} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e^*} + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_h^*} = E_g + \frac{\hbar^2 k^2}{2\mu} \quad (2.4)$$

Kombiniert man die allgemeine Form der Zustandsdichte $g(E)$ für ein parabolisches Potenzial

$$g(E) = \frac{1}{2\pi^2} \left(\frac{2m^*}{\hbar^2} \right)^{3/2} \sqrt{E}, \quad (2.5)$$

mit der Bandlücke von GaAs am Γ -Punkt, so ergibt sich aus Gleichung 2.4 und 2.5 die Zustandsdichte in Abhängig der Anregungsenergie $\hbar\omega$ zu:

$$g(\hbar\omega) = \frac{1}{2\pi^2} \left(\frac{2\mu}{\hbar^2} \right)^{3/2} \sqrt{\hbar\omega - E_g} \quad (2.6)$$

Somit finden sich für eine Anregung unterhalb der Bandlücke keine freien Zustände, erst bei der Überschreitung dieser Schwelle ist eine Anregung möglich [Fox10]. Die Größe der Bandlücke am Γ -Punkt und damit dem Einsatzpunkt der Anregung bleibt jedoch weiterhin von materialspezifischen Parametern abhängig.

Eine Möglichkeit zur Manipulation der Größe der Bandlücke ist die Herstellung von Mischkristallen. Substituiert man den ternären Partner Gallium in GaAs z.B. durch Aluminium, erhält man den Mischkristall $Al_xGa_{1-x}As$, dessen Eigenschaften zwi-

schen den der beiden Extremwerte x für den Aluminiumgehalt liegt. Für $x = 0$ ergibt sich eine Bandlücke für reines GaAs von $E_g = 1,424\text{eV}$ unter Normalbedingungen, für $x = 1$ ein Wert von $E_g = 2,16\text{eV}$ in AlAs, wobei diese Variation mit der Vergrößerung der Gitterkonstante a einhergeht. Gleichzeitig kommt es in der Mischreihe bei einem molaren Verhältnis von $x = 0,4$ zu einem Übergang von der direkten zur indirekten Bandlücke [Ada85].

Diese kontrollierte Variation der Energiedifferenz der Bandlücke, lässt sich mit gezielter epitaktischer Abscheidung von stöchiometrisch unterschiedlichen Schichten ausnutzen, um Überstrukturen zu erzeugen. Wie in Abbildung 2.3 a) zu sehen, entsteht an der Grenzfläche beider Materialien eine Typ-I Modulation der Bandkante. Die Energiedifferenz zwischen der Bandlücken von $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ und GaAs verteilt sich dabei im Verhältnis 2:1 bis 3:2 auf das Leitungs- und Valenzband [GT92]. Als Folge des Übergangs können sich zwar Ladungsträger vom $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ - in das GaAs-Segment bewegen, umgekehrt müssen diese die Energiedifferenz der Barriere überwinden.

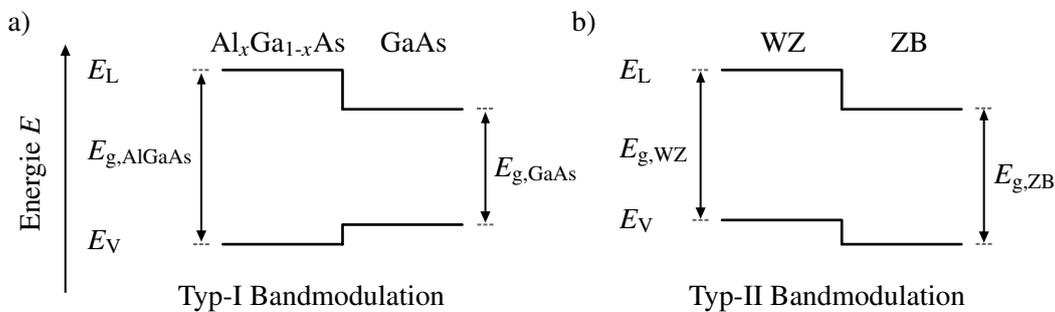


Abbildung 2.3: Versatz der Bandstruktur eines III-V Halbleiters durch einen epitaktischen Materialwechsel. a) Typ-I Modulation durch teilweise Substitution des ternären Partners mit Aluminium und resultierender vergrößerter Bandlücke $E_{g,\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}}$. b) Typ-II Modulation der Bandstruktur von GaAs durch Erhöhung der Bandlücke $E_{g,\text{WZ}}$ in der Wurtzit-Struktur [HMZ09].

Eine weitere Möglichkeit zur Variation der Bandlücke, ergibt sich aus der Polytypie der Kristallstruktur von GaAs im Nanodraht. Durch den Wechsel von der Zinkblende- zur Wurtzit-Struktur erhöht sich die ursprüngliche Bandlücke der Zinkblende-Modifikation von $E_{g,\text{ZB}} = 1,519\text{eV}$ bei einer Temperatur von $T = 5\text{K}$ um einen Wert von 33meV [SAG09], wobei in der Literatur Werte von 29meV [HMZ09] bis 55meV [JLP12] diskutiert werden. Daneben spielt auch die Dicke des Wurtzit-Segments in Wachstumsrichtung, als auch der Durchmesser des Drahts eine Rolle [CBJ11]. Wie man der Abbildung 2.3 b) entnehmen kann, handelt es sich bei diesem Übergang um eine Typ-II Modulation der Bandstruktur, sodass Valenz- und Leitungsband der Wurtzit-Struktur gegenüber der Zinkblende-Struktur energetisch angehoben werden. Dabei entfallen 117meV auf das Leitungsband sowie 84meV auf das Valenzband [SAG09].

Durch die Anordnung der Bänder kommt es bei dieser Modulation zu einer Akkumulation der Elektronen im Leitungsband der Zinkblende-Struktur und der Löcher im Valenzband der Wurtzit-Struktur. Diese Anordnung ermöglicht an der Stelle der

Modulation die Rekombination von Elektronen aus dem Zinkblende-Leitungsband mit Löcher aus dem Wurtzit-Valenzband. Entsprechend der Anordnung der Bänder besitzt dieser Rekombinationskanal eine geringer Energiedifferenz [SAG09].

Die bei der Anregung von Elektronen aus dem Valenz- in das Leitungsband ablaufenden Prozesse, welche innerhalb der Bandstruktur zur oben genannten Lokalisierung der Ladungsträger führen sowie die Möglichkeiten zur Rekombination und die dahinter stehende Dynamik, werden im nachfolgenden Abschnitt beleuchtet.

2.2.2 Photolumineszenz

Die Photolumineszenz-Spektroskopie untersucht die Charakteristik der Photonen aus strahlender Rekombination von Elektronen und Löchern, welche zuvor optisch angeregt wurden. Da die Anregungsenergie meist größer als die Bandlücke E_g des Halbleiters ist, besitzen die erzeugten Elektronen und Löcher einen Energieüberschuss, welcher sie auf energetische höhere Niveaus nahe dem Γ -Punkt anhebt. Die Aufteilung des Überschusses erfolgt dabei entsprechend dem Verhältnis der effektiven Massen. Aus diesem angeregten Zustand relaxieren beide Ladungsträger unter Aussendung einer Phonon-Kaskade in den Grundzustand am Γ -Punkt, wobei die Dispersionsrelation der Bandstruktur beim Energietransfer an das Gitter erfüllt sein muss. Eine direkte Rekombination der Ladungsträger aus dem angeregten Zustand findet nicht statt, da durch die starke Elektron-Phonon Kopplung im Halbleiter der Relaxationsprozess auf einer Zeitskala im Bereich von $\Delta t \sim 100$ fs stattfindet, wohingegen die strahlende Rekombination bis in den ns-Bereich benötigt.

Zusätzlich gilt es zwei Anregungsarten zu unterscheiden. Bei der Dauerstrich-Anregung (engl. continuous wave, cw) werden kontinuierlich Ladungsträgerpaare erzeugt, so dass zusammen mit der Rekombination zu einem Gleichgewichtszustand kommt. Bei der gepulsten Anregung hingegen entsteht ein Überschuss an Paaren, welcher in den Grundzustand relaxiert. Beiden gemeinsam ist jedoch, dass bei niedriger Ladungsträgerdichte die Besetzung der freien Zustände durch Elektronen und Löcher mit der Boltzmann-Verteilung beschreiben werden kann [Fox10].

Sind Elektronen und Löcher im Grundzustand an der Bandkante angekommen und das System thermalisiert, d.h. die erzeugten Ladungsträger und das Gitter haben die Umgebungstemperatur angenommen, so kann ein Ladungsträgerpaar strahlend oder nichtstrahlend rekombinieren oder als Zwischenzustand vor der endgültigen Rekombination ein sogenanntes Exziton bilden. Der einfachste Fall einer direkten Band-Band-Rekombination ist in Abbildung 2.4 a) dargestellt. Dabei rekombiniert ein Elektron aus dem besetzten Kontinuum des Leitungsbandes mit einem Loch im Valenzband. Da dies nicht ausschließlich von der Bandkante am Γ -Punkt erfolgt, ergibt sich deren Energieverteilung nach Gleichung 2.4. Da nicht alle angeregten Zustände gleichzeitig zerfallen, sondern es zu einer spontanen Emission kommt, gilt für die Besetzung der angeregten Zustände in einem Zwei-Niveau-System $N(t)$:

$$N(t) = N(0) \cdot e^{-At} = N(0) \cdot e^{-t/\tau_s} \quad (2.7)$$

Hierbei stellt A den Einstein-Koeffizienten dar, welcher je nach Material und Rekombinationspfad variiert beziehungsweise dessen Kehrwert $\tau_s = A^{-1}$ die Lebensdauer des angeregten Zustands der strahlenden Rekombination. Die Rekombinationsrate R

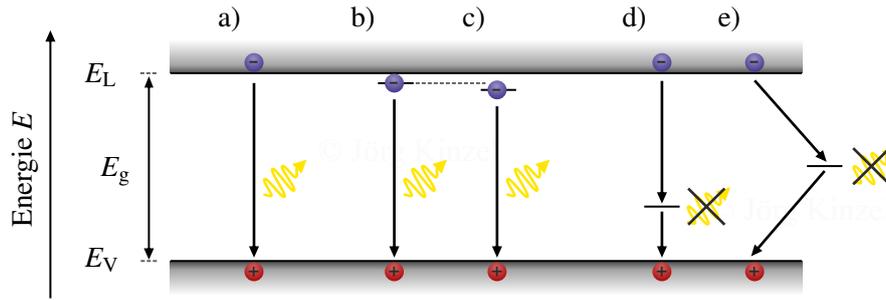


Abbildung 2.4: Rekombinationspfade von Elektronen und Löchern im Halbleiter a) Direkt Rekombination aus dem Leitungsband (E_L) in das Valenzband (E_V) b) Freies Exziton c) Lokalisiertes Exziton d) Nichtstrahlende Rekombination an einer Störstelle e) Oberflächenrekombination.

errechnet sich aus der zeitlich Änderung der besetzten Zustände und repräsentiert die Intensität der strahlenden Rekombination.

$$R_S(t) = -\frac{dN(t)}{dt} = \frac{N(0)}{\tau} \cdot e^{-t/\tau_s} = R_S(0) \cdot e^{-t/\tau_s} \quad (2.8)$$

Bei der Anregung eines Elektrons in das Leitungsband, kann es, nach der Relaxation zur Bandkante, auf Grund der Coulomb-Anziehung zu einer Bindung zwischen Elektron und zugehörigem Loch kommen, so dass sich diese nicht mehr unabhängig durch den Kristall bewegen können. Dieses als Exziton bezeichnete Quasiteilchen, kann sich bei schwacher Kopplung über mehrere Elementarzellen erstrecken und wird dabei als Wannier-Mott Exziton bezeichnet (engl. free exciton, FX). Durch die unterschiedliche effektive Massen von Elektron und Loch, lässt sich deren Bindungsenergie analog dem Wasserstoffmodell berechnen:

$$E_{FX} = -\frac{\mu}{m_0} \frac{1}{\epsilon_r^2} \frac{R_y}{n_H^2} \quad (2.9)$$

Mit der Rydberg-Energie $R_y = 13,6\text{eV}$, der reduzierten Masse $\mu = 0,05 m_0$, m_0 Ruhemasse des Elektrons sowie der Permittivität von GaAs $\epsilon = 12,8$, ergibt sich für GaAs eine Exziton Bindungsenergie von $E_{FX} = -4,2\text{meV}/n_H^2$, wobei n_H der Quantenzahl der Anregung entspricht. Hieraus folgt für die direkte Rekombination, als auch der Anregung eines Exzitons am Γ -Punkt der Bandstruktur, eine Erniedrigung der Übergangsenergie $E_G = E_g + E_{FX} = 1,515\text{eV}$, wie in Abbildung 2.4 b) dargestellt. Gleichzeitig zeigt sich auch, dass auf Grund der thermischen Anregung bei Raumtemperatur von etwa $k_B T \sim 1/40\text{eV}$, keine freien Exzitonen bei dieser Temperatur existieren können.

Anders verhält es sich bei gebundenen Exzitonen (bound excitons, BX), oder auch Frenkel-Exzitonen, welche an Unregelmäßigkeiten wie zum Beispiel Gitterfehler oder Störstellen gebunden sind. Durch die reduzierte Ausdehnung des Elektron-Loch-Paars kommt es zu einem Anstieg der Bindungsenergie auf $0,1 - 1\text{eV}$. Die zugehö-

rige energetische Absenkung in der Bandstruktur ist in Abbildung 2.4 c) ersichtlich [Fox10].

Ein bisher nicht betrachteter Rekombinationskanal für optisch erzeugte Elektron-Loch-Paare, stellt die nichtstrahlende Rekombination im Volumenmaterial dar. Im Gegensatz zur bisherigen Beschreibung der strahlenden Emission, kann das Elektron seinen Energieüberschuss als Phononen an das Gitter abgeben. Dabei wird dessen Energie in Wärme umgewandelt und trägt nicht zur Emission eines Photons mit charakteristischer Wellenlänge der Materials bei. Wie bereits in Abbildung 2.4 d) zu sehen, bilden Zwischenniveaus in der Bandstruktur nichtstrahlende Rekombinationszentren. Diese entstehen durch Fehlstellen im Kristallgitter oder Einlagerung von Fremdatomen, wie es z.B. bei der Herstellung von GaAs-Nanodrähten durch die Einlagerung von Kohlenstoff kommen kann [JLP12]. Daneben sind intrinsische Nanodrähte durch ihr großes Volumen-zu-Oberfläche-Verhältnis prädestiniert, erzeugte Ladungsträger durch Oberflächenrekombination zu verlieren. In diesen kommt zum einen durch die Grenzfläche zu einer Störung der Bandstruktur, wodurch aus ungesättigten Bindungen (engl. dangling bonds) weitere Zustände innerhalb der Bandlücke entstehen können, welche in Abbildung 2.4 e) gezeigt sind. Ebenso kann durch Oberflächenoxidation oder die Anlagerung von Fremdmolekülen die Oberflächenrekombination erhöht werden.

Fasst man den Einfluss von strahlender und nichtstrahlender Rekombination auf die Anzahl der besetzten Zustände zusammen, so ergibt sich

$$\frac{dN}{dt} = -\frac{N}{\tau_S} - \frac{N}{\tau_{NS}} = -N \left(\frac{1}{\tau_S} + \frac{1}{\tau_{NS}} \right) \quad (2.10)$$

Daraus lässt sich ableiten, dass der Rekombinationspfad mit der kürzeren Lebensdauer der dominierende Effekt ist.

Eine Möglichkeit die intrinsischen Eigenschaften eines Festkörpers zu manipulieren und sogar Kontrolle über die Rekombination optisch erzeugter Ladungsträger innerhalb der Bandstruktur zu erhalten, bieten akustische Oberflächenwellen. Deren Eigenschaften und Anregung werden im nächsten Kapitel beschrieben.

3 Akustische Oberflächenwellen

Akustische Oberflächenwellen bestehen aus einer periodischen Verzerrung des oberflächennahen Bereichs in einem Festkörper. Bei der Verwendung eines piezoelektrischen Kristalls findet sich neben der mechanischen Komponente ein begleitendes elektrisches Wechselfeld nahe der Oberfläche. Dieses kann als feiner Manipulator bzw. Detektor für elektrische Systeme benutzt werden, ohne das untersuchte Objekt zu beschädigen.

In diesem Kapitel sollen die Grundzüge akustischer Oberflächenwellen im Festkörper beschrieben werden sowie deren Anregung und Ausbreitung auf den verwendeten piezoelektrischen Substraten.

3.1 Akustische Anregungen im Festkörper

Die Ausbreitung einer elastischen mechanischen Auslenkung im Festkörper kann als longitudinale oder transversale Welle erfolgen. Bei diesen akustischen Volumenwellen (engl. bulk acoustic wave, BAW) kommt es bei erster zu einer Kompression bzw. Dehnung der Einheitszelle, wie in Abb. 3.1 a) dargestellt, bei zweiter zu einer Scherbewegung, wie in Abb. 3.1 b) zu sehen. Unter der Annahme, dass lediglich eine infini-

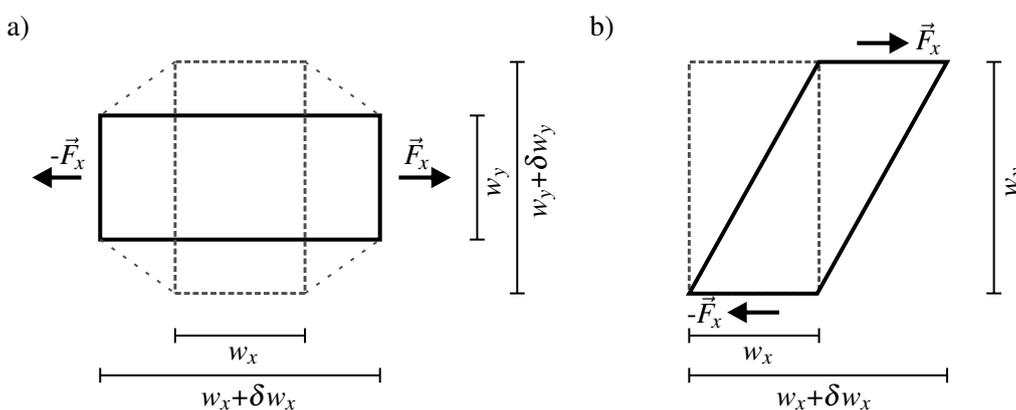


Abbildung 3.1: Elastische Deformation einer Einheitszelle im Kristall.

a) Kompression/Dehnung b) Scherung.

tesimal kleine Auslenkung ohne Flächenänderung auftritt, lässt sich die Deformation entlang der Achsen mit Hilfe des Deformationstensors $S'_{ij} = \delta w_i / w_j$ schreiben.

Die longitudinale oder transversale Anregungen der Einheitszelle in einem Festkörper sind immer mit einer Translation, Deformation und Rotation der Abstände im Kristallgitter verbunden. Betrachtet man die Auslenkung \vec{u} eines Punktes aus der Ru-

helage entlang der Richtung \vec{x} , kann der Deformationstensor auch geschrieben werden als

$$S'_{ij} = \frac{\partial u_i}{\partial x_j}. \quad (3.1)$$

Eine vollständige Beschreibung inklusive der Rotation des Punktes um die Ruhelage erweitert den Deformationstensor in die allgemeine Form

$$S_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right). \quad (3.2)$$

Für gleiche Indizes $i = j$ ergibt sich eine Kompression oder Dehnung entlang der Achse, für $i \neq j$ eine Scherdeformation. Weiter folgt aus Gleichung 3.2 im dreidimensionalen Gitter weiter $S_{ij} = S_{ji}$ und der Deformationstensor lässt sich vereinfacht schreiben als

$$\begin{pmatrix} S_{11} & 2S_{12} & 2S_{13} \\ 2S_{12} & S_{22} & 2S_{23} \\ 2S_{13} & 2S_{23} & S_{33} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} S_1 & S_6 & S_5 \\ S_6 & S_2 & S_4 \\ S_5 & S_4 & S_3 \end{pmatrix}. \quad (3.3)$$

In einem isotropen Medium kommt es zwischen den infinitesimalen Volumenelementen zu einem gegenseitigen Kraftübertrag. Deren Richtung sowie die angreifende Fläche, lässt sich durch den Spannungstensor T_{ij} beschreiben, wie in Abbildung 3.2 dargestellt.

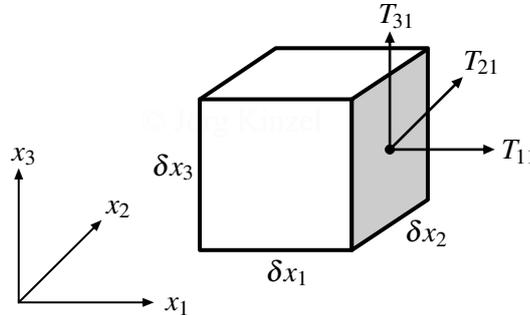


Abbildung 3.2: Angriff von Kräften auf das Zentrum einer Seite des infinitesimalen Volumenelements δV . T_{ij} beschreibt die Angriffsfläche und Richtung der einwirkenden Kraft

Für die Bewegungsgleichung für ein Volumenelement der Dichte ρ gilt, unter Verwendung einer Taylorentwicklung, für die Auslenkung aus der Ruhelage ∂x_i

$$\rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = \frac{\partial T_{ij}}{\partial x_j} \quad (3.4)$$

Da in der betrachteten Situation keine Rotationskräfte auf das Volumenelement in einem Festkörper einwirken, ist der Spannungstensor ebenso symmetrisch $T_{ij} = T_{ji}$

und lässt sich erneut zusammenfassen

$$\begin{pmatrix} T_{11} & T_{12} & T_{13} \\ T_{12} & T_{22} & T_{23} \\ T_{13} & T_{23} & T_{33} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} T_1 & T_6 & T_5 \\ T_6 & T_2 & T_4 \\ T_5 & T_4 & T_3 \end{pmatrix}. \quad (3.5)$$

Auf Grund der nicht plastischen kleinen Auslenkungen können beide Größen über das Hooksche-Gesetz miteinander verbunden werden.

$$T_{ij} = c_{ijkl} \cdot S_{kl} \quad (3.6)$$

Das Elastizitätsmodul c_{ijkl} beschreibt dabei als 6×6 Matrix alle elastischen Eigenschaften des Festkörpers. Durch die zuvor durchgeführten Symmetrieüberlegungen bleiben 21 unabhängige Einträge erhalten. Je nach Kristallklasse des verwendeten piezoelektrischen Substrats verringert sich die Anzahl der unabhängigen Komponenten weiter, wie in Abschnitt 3.2 für die Klasse $3m$ von LiNbO_3 angegeben.

Im piezoelektrischen Kristall erzeugt die zuvor beschriebene mechanische Auslenkung eine elektrische Flussdichte \vec{D} welche wiederum ein elektrisches Feld \vec{E} induziert. Beide Größen sind über die Permittivität ε mit $D_i = \varepsilon_{ij} \cdot E_j$ verbunden. Umgekehrt kann mit einem äußeren elektrischen Feld über den inversen piezoelektrischen Effekt eine mechanische Auslenkung sowie Verzerrung erreicht werden, welche über den piezoelektrische Spannungskoeffizienten e_{ijk} abhängig sind. Somit ergibt sich ein Paar gekoppelter Gleichungssysteme [Far77]

$$T_{ij} = c_{ijkl} S_{kl} - e_{kij} E_k \quad (3.7)$$

$$D_i = e_{ijk} S_{jk} + \varepsilon_{ij} E_j. \quad (3.8)$$

Für die Ausbreitung einer elastischen mechanischen Welle in einem Piezoelektrikum kommen folglich die Maxwell-Gleichungen zur Anwendung. Da die Schallgeschwindigkeit c des Substrats jedoch viel geringer als die der elektromagnetische Ausbreitung ist, kann die elektrodynamische Lösungen der Gleichungen vernachlässigt werden und der quasistatische Anteil als Feld \vec{E} durch den Gradienten eines skalaren Potentials φ genähert: $E_i = -\partial\varphi/\partial x_i$. Weiter vereinfacht sich das Gaußsche-Gesetz zu $\nabla \cdot \vec{D} = \rho \approx 0$, da die Ladungsverteilung im piezoelektrischen Kristall vernachlässigt werden kann [Has00]. Zusammen mit den Gleichungen (3.7), (3.8), dem Deformationstensor (3.2) und der Bewegungsgleichung (3.4), erhält man ein System von vier miteinander verknüpften Wellengleichungen für das elektrische Potenzial φ sowie die mechanische Auslenkungsrichtungen u_i .

$$\rho \frac{\partial^2 u_j}{\partial t^2} - c_{ijkl} \frac{\partial^2 u_k}{\partial x_i \partial x_l} - e_{kij} \frac{\partial^2 \varphi}{\partial x_i \partial x_k} = 0 \quad (3.9)$$

$$e_{ikl} \frac{\partial^2 u_k}{\partial x_i \partial x_l} - \varepsilon_{ik} \frac{\partial^2 \varphi}{\partial x_i \partial x_k} = 0 \quad (3.10)$$

Für die Ausbreitung einer akustischen Welle entlang einer Richtung im Kristall ergeben sich eine longitudinale und zwei zueinander senkrecht polarisierte transversale Ausbreitungsmoden. Vernachlässigt man die transversalen Scherwellen und betrachtet die longitudinale Volumenwelle welche sich z.B. entlang der x_3 -Richtung in einem

YZ-LiNbO₃-Kristall ausbreiten kann, lassen sich die Gleichungen (3.9) und (3.10) weiter reduzieren. Die Anteile $\partial/\partial x_1$ und $\partial/\partial x_2$ ergeben keinen Beitrag, da die Welle in die entsprechenden Richtungen konstant ist.

$$\rho \frac{\partial^2 u_3}{\partial t^2} = c_{33} \frac{\partial^2 u_3}{\partial x_3^2} + e_{33} \frac{\partial^2 \varphi}{\partial x_3^2} \quad (3.11)$$

$$0 = e_{33} \frac{\partial^2 u_3}{\partial x_3^2} - \epsilon_{33} \frac{\partial^2 \varphi}{\partial x_3^2} \quad (3.12)$$

Hieraus lässt sich die Abhängigkeit vom lokalen Potenzial φ entfernen und man erhält

$$c_{33} \left(1 + \frac{e_{33}^2}{\epsilon_{33} c_{33}} \right) \frac{\partial^2 u_3}{\partial x_3^2} = \rho \frac{\partial^2 u_3}{\partial t^2} . \quad (3.13)$$

In Kristallen ohne piezoelektrische Eigenschaften ist $e = 0$ und Gleichung (3.13) vereinfacht sich. Umgekehrt lässt sich im piezoelektrischen Fall die Elastizitätskonstante c_{33} durch eine effektive Elastizitätskonstante c_{33}^* ersetzen.

$$c_{33}^* = c_{33} \left(1 + \frac{e_{33}^2}{\epsilon_{33} c_{33}} \right) = c_{33} (1 + K^2) \quad (3.14)$$

K beschreibt hier die elektromechanische Kopplung im Kristall. Da $K^2 > 0$ ist, kommt es im piezoelektrischen Kristall zu einer zusätzlichen Versteifung des Materials. Die mechanisch rückstellenden Kräfte werden durch elektrisch rückstellenden verstärkt. Des weiteren kommt es durch die auftretende Versteifung zu einer Erhöhung der Schall- bzw. Ausbreitungsgeschwindigkeit v .

$$v^* = \sqrt{\frac{c_{33}^*}{\rho}} = \sqrt{\frac{c(1+K^2)}{\rho}} \approx v \left(1 + \frac{1}{2} K^2 \right) \quad (3.15)$$

Verlässt man nun das Bild des unendlich ausgedehnten Kristalls, so müssen die Bewegungsgleichungen (3.9) und (3.10) Randbedingungen erfüllen.

Zum einen müssen die Komponenten des Spannungstensors an der ungekoppelten freien Oberfläche verschwinden, zum anderen muss zur Ausbildung einer Oberflächenwelle die Auslenkung der Volumenelementen im Inneren des Kristalls nachlassen.

$$T_{32} = T_{33} = T_{31} = 0 \Big|_{x_3=0} \quad (3.16)$$

Daneben müssen die elektrischen Komponenten bei $x = 0$ die Anschlussbedingung der Oberfläche erfüllen und im Fernfeld verschwinden $\varphi = 0 \Big|_{x_3 \rightarrow \pm\infty}$. Dies lässt sich für eine ausbreitende Welle allgemein erreichen durch

$$\varphi(x, t) = \varphi(x_3) e^{-ik(x_1 - v_{\text{AOFW}} \cdot t)} \quad (3.17)$$

und außerhalb des Kristalls $x_3 \geq 0$ mit

$$\varphi(x, t) = \varphi(0) e^{-kx_3} e^{-ik(x_1 - v_{\text{AOFW}} \cdot t)} . \quad (3.18)$$

Eine Lösung für die Bewegungsgleichung der Oberfläche eines isotropen Festkörpers ist die Rayleigh-Welle k_R [Ray85]. Diese setzt sich zusammen aus einer Linearkombination von Partialwellen, die die Randbedingungen erfüllen. Auch die Rayleigh-Welle teilt sich in einen transversalen (t) und longitudinalen (l) Anteil auf, wobei gilt $v_R < v_t$. Für die Ausbreitung der langsameren Rayleigh-Welle entlang x_1 ergeben sich aus den unterschiedlichen Geschwindigkeiten der Komponenten $v_t/v_l \leq 0,7$, zwei verschieden große Auslenkungen in Ausbreitungsrichtung u_1 und hierzu senkrecht u_3 . Ferner sind diese phasenstarr für alle Werte von x_3 gekoppelt [Far77]. Wie in Abbildung 3.3 zu sehen, kommt es deshalb zu einer elliptischen Trajektorie für die Bewegung eines jeden Volumenelements in der Sagittalebene. Typische Auslenkungen der Oberfläche in x_3 -Richtungen reichen bis in den Nanometerbereich. Weiter

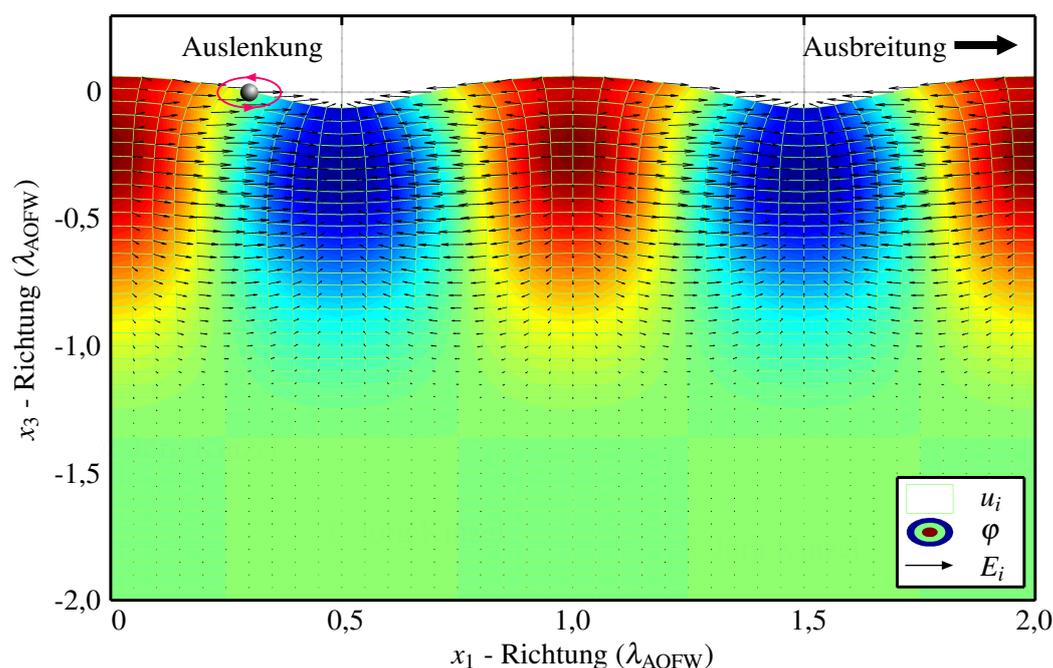


Abbildung 3.3: Verzerrung der Volumenelemente durch eine sich in x_1 ausbreitende Rayleigh-Welle in 128° YX-LiNbO₃. In Falschfarbendarstellung das lokal auftretende skalare Potenzial aus der piezoelektrischen Antwort sowie das daraus resultierende elektrische Feld.

klings die Auslenkung der Volumenelemente aus der Ruhelage entlang $-x_3$ innerhalb einer Wellenlänge λ_{AOFW} ab, so dass nach der Bedingung der Rayleigh-Welle die Energie nahe der Oberfläche des Substrats transportiert wird. Das aus der Verzerrung von 128° YX-LiNbO₃ entspringende skalare Potenzial φ ist in Falschfarbendarstellung abgebildet, ebenso das daraus resultierende elektrische Feld für die verschiedenen Positionen entlang der propagierenden Welle.

Die meisten piezoelektrischen Kristalle weisen allerdings einen anisotropen Aufbau auf. Unter der Benutzung eventuell vorhandener hochsymmetrischer Kristallschnitte lassen sich jedoch weiterhin Rayleigh-Wellen anregen, wenn auch die Ausbreitungsgeschwindigkeit nun von der Ausbreitungsrichtung abhängig ist. In Zusätzlich kann es zur Ausbildung einer Transversalkomponente kommen und die elliptische Auslenkung der Volumenelemente erfolgt nicht mehr in der Sagittalebene [Far77]. Im

nächsten Abschnitt soll deshalb das Auftreten solcher speziellen Eigenschaften des verwendeten 128° YX-LiNbO₃ und YZ-LiNbO₃ untersucht werden.

3.2 Akustische Oberflächenwellen auf Lithiumniobat-Substraten

Damit ein Kristall piezoelektrisches Verhalten zeigt, darf dieser nur eine vernachlässigbar kleine elektrische Leitfähigkeit besitzen. Weiter muss die Elementarzelle des zugrundeliegenden Gittertyps so aufgebaut sein, dass eine Deformation durch äußere Krafteinwirkung, den Ladungsschwerpunkt des positiven Zentralatoms nicht mehr mit dem der negativ geladenen Liganden übereinstimmt, wodurch ein elektrischer Dipol in der Elementarzelle entsteht. Sofern die benachbarten Elementarzellen keine spiegelsymmetrischen Ladungszentren besitzen, kommt es, bei identischer Verlagerung des Ladungsschwerpunkts, zur Ausbildung eines makroskopischen Dipols und der Kristall zeigt ein piezoelektrisches Verhalten [Mül06].

Als anisotroper Kristall mit einer Bandlücke von etwa 4 eV bietet Lithiumniobat optimale Voraussetzungen um akustische Oberflächenwellen anregen zu können [RB74]. Abweichend vom perfekten kubischen Perowskit-Gitter ABO₃, zeigt LiNbO₃ unter

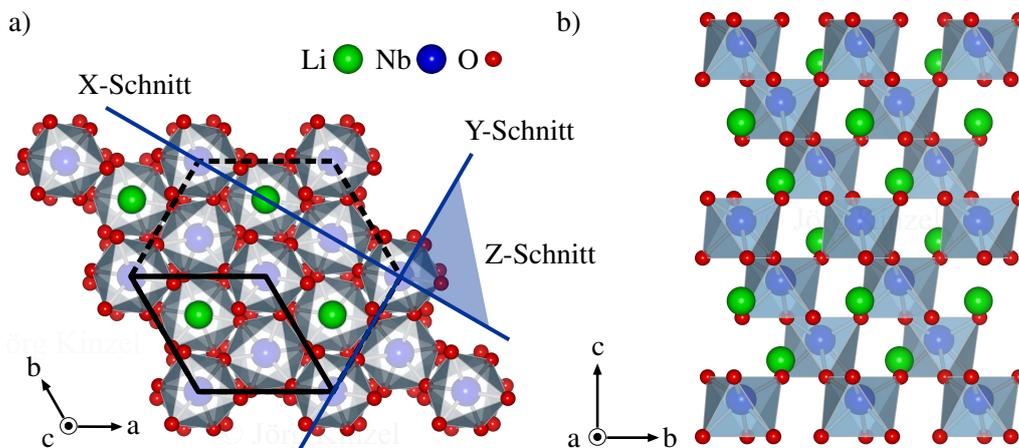


Abbildung 3.4: a) Trigonale Einheitszelle, Symmetrieachse und Orientierung der Kristallschnitte in LiNbO₃ b) Gestapelter Aufbau der Kristallstruktur, Verkippt entlang der (111)-Richtung der ursprünglichen Perowskit Struktur.

Normalbedingungen eine trigonale Einheitszelle der Kristallklasse $3m$, wie in Abbildung 3.4 a) als schwarze Raute dargestellt [Far77]. Das gestrichelte Hexaeder repräsentiert die symmetrische Anordnung entlang der c-Achse. In Abbildung 3.4 b) ist die Stapelfolge der hexagonalen Schichten entlang der {111}-Ebenen des ursprünglichen Perowskit-Gitters zu sehen [Wes99]. Dabei zeigt sich, dass die Lithium- und Niob-Atome abwechselnd entlang der c-Achse in der Einheitszelle angeordnet sind. Die gleichzeitige Verkipfung der eckverknüpften Sauerstoff-Oktaeder hat ihren Ursprung im Verhältnis der Ionenradien von Lithium und Niob.

Wie sich anhand der Abbildung auch erkennen lässt, zeigen die unterschiedlichen Kristallachsen eine unterschiedliche Symmetrie, so dass nur ausgezeichnete Richtungen im Kristall zur Anregung einer akustischen Oberflächenwelle geeignet sind. In Abbildung 3.4 a) sind in dunkelblau die Schnittkanten der X-, Y- bzw. semitransparent die Ebene des Z-Kristallschnitts (engl. cut) eingezeichnet [SS10]. Für elektronische Bauteile mit AOFW-Komponenten werden dabei häufig der Y-Schnitt mit Ausbreitung der Welle in Z-Richtung (YZ-Schnitt) und der um 128° um die X-Achse gedreht Y-Schnitt (128° YX-Schnitt) mit Ausbreitung in X-Richtung verwendet. So auch für die Experimente in dieser Arbeit. Da die Wahl des Kristallschnitts erhebliche Auswirkungen auf die physikalischen Eigenschaften und damit auch auf den Wellentyp hat, finden sich nachfolgend die wichtigsten Parameter zusammengefasst.

Elastizitätsmodul c_{ab} [10^{10} N/m ²]	$c_{ab} = \begin{pmatrix} 20,3 & 5,3 & 7,5 & 0,9 & . & . \\ 5,3 & 20,3 & 7,5 & -0,9 & . & . \\ 7,5 & 7,5 & 24,5 & . & . & . \\ 0,9 & -0,9 & . & 6,0 & . & . \\ . & . & . & . & 6,0 & 0,9 \\ . & . & . & . & 0,9 & 7,5 \end{pmatrix}$ mit $c_{66} = \frac{1}{2}(c_{11} - c_{12})$
Piezoelektrischer Spannungskoeffizient e_{ab} [C/m ²]	$e_{ab} = \begin{pmatrix} . & . & . & . & 3,7 & -2,5 \\ -2,5 & 2,5 & . & 3,7 & . & . \\ 0,2 & 0,2 & 1,3 & . & . & . \end{pmatrix}$
Dielektrische Permittivität ϵ_{ab} [ϵ_0]	$\epsilon_{ab} = \begin{pmatrix} 44,5 & . & . \\ . & 44,5 & . \\ . & . & 27,5 \end{pmatrix}$

Tabelle 3.1: Physikalische Eigenschaften von LiNbO₃ [Far77, LHZ03]

Ferner hat die Drehung des 128° YX-Schnitts Einfluss auf die physikalischen Parameter. Die Umrechnung erfolgt mittels Drehmatrizen [Str05] und es ergibt sich für die Permittivität bei einer Drehung von 128° um die X-Achse

$$\epsilon_{ab} = \begin{pmatrix} 44,5 & . & . \\ . & 38,1 & -8,2 \\ . & -8,2 & 33,9 \end{pmatrix}. \quad (3.19)$$

Wie man an den Einträgen $\epsilon_{23} = \epsilon_{32} \neq 0$ erkennen kann, ergibt sich bei einer Anregung senkrecht zur X-Achse in die 128° verkippte YZ-Richtung, ein zusätzlicher elektrischer Anteil aus der Ebene heraus, wodurch es nicht zu einer Anregung einer reinen Rayleigh-Welle kommt. Durch die Dominanz der Rayleigh-Mode kann dieser Anteil jedoch vernachlässigt werden, wie in Kapitel 7.2 zu sehen. Nachfolgend sind die physikalischen Eigenschaften der eingesetzten Kristallschnitte zusammengefasst.

Physikalische Größe	128° YX-LiNbO ₃ Kristallschnitt	
Ausbreitungsrichtung	X-Propagation	128° YZ-Propagation
Ausbreitungsgeschwindigkeit v_{AOFW} [m/s]	3980	3650
Permittivität ϵ [ϵ_0]	44,5	38,1
Kopplungskonstante K^2	0,053	0,02
	YZ-LiNbO ₃ -Kristallschnitt	
Ausbreitungsrichtung	X-Propagation	Z-Propagation
Ausbreitungsgeschwindigkeit v_{AOFW} [m/s]	3720	3488
Permittivität ϵ [ϵ_0]	44,5	27,5
Kopplungskonstante K^2	0,015	0,046

Tabelle 3.2: Physikalische Parameter des 128° YX- und YZ-Kristallschnitts auf LiNbO₃ unter Normalbedingungen [Far77, DR00]

Allen beschriebenen Kristallschnitten ist gemeinsam, dass sich Oberflächenwellen über verschiedenen Wege anregen lassen. Der wohl bekannteste Fall einer Welle an der Oberfläche ist die Welle auf der Wasseroberfläche. Die eigentliche AOFW, welche Rayleigh ursprünglich beschrieben hat, ist die Wellenausbreitung während eines Erdbebens mit elliptischer Trajektorie des Untergrunds. Moderne Methoden zur technischen Erzeugung einer AOFW nutzen eine optisch-thermische Anregung, mittels gepulster Laser-Applikation [HL10] oder den inversen piezoelektrischen Effekt, durch das Anlegen eines oszillierenden äußeren Potenzials. Die dazu nötigen Bedingungen sollen im nächsten Abschnitt erörtert werden.

3.3 Anregung akustischer Oberflächenwellen

Die elektrische Anregung und Detektion einer akustischen Oberflächenwelle auf einem piezoelektrischen Substrat wurde 1965 erstmals von White und Voltmer beschrieben. Dabei benutzen diese einen Interdigitalwandler (engl. Interdigital Transducer, IDT), wie in Abbildung 3.5 a) zu sehen [WV65]. Diese bestehen aus dünnen leitfähigen Metallstreifen auf der Oberfläche des Substrats, welche kammartig ineinander greifen. Legt man eine hochfrequente Wechselspannung an die gegenüberliegenden Elektroden an, so kommt es auf Grund des inversen piezoelektrischen Effekts zu einer Verzerrung des Kristalls, wie in Abschnitt 3.2 beschrieben. Erfüllt die Frequenz f_{HF} der Wechselspannung die Dispersionsrelation (3.20) kommt es zu einer konstruktiven Überlagerung der Verzerrung und eine Oberflächenwelle breitet sich senkrecht zu beiden Seiten des Schallwandlers mit der Geschwindigkeit v_{AOFW} aus.

$$\lambda_{\text{AOFW}} = 4 \cdot p = \frac{v_{\text{AOFW}}}{f_{\text{HF}}} \quad (3.20)$$

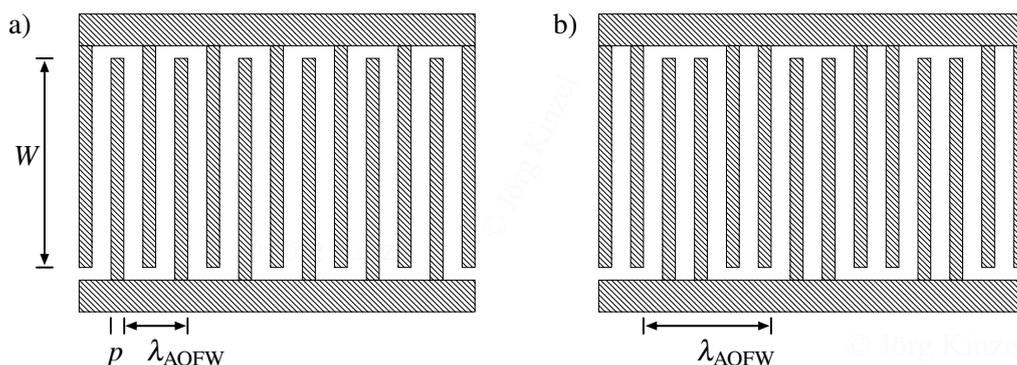


Abbildung 3.5: Interdigital Schallwandler mit der Fingerbreite p , Periodizität λ_{AOFW} sowie Apertur W der kammartigen Struktur. a) Mit Fingern aus einzelnen Elektroden b) mit Fingerpaaren.

Im Falle der paarweisen Anordnung der Finger, wie in Abbildung 3.5 b) zu sehen, verändert sich obige Gleichung zu $\lambda_{\text{AOFW}} = 8 \cdot p$. Allgemein erfordern Schallwandler mit paarweise oder mehrfach geteilten Elektrodenfingern zwar eine höhere Präzision bei der Herstellung der Strukturen, wie in Kapitel 5.2.1 beschrieben, ermöglichen jedoch eine effizientere Anregung von Oberflächenwellen mit Frequenzen höherer harmonischer Schwingungen. Im Falle der paarweisen Teilung der 3. Harmonischen, bei vierfach geteilten Fingern zusätzlich die 5. und 7. Harmonische. Geradzahlige Vielfache löschen sich mit den in Abbildung 3.5 gezeigten symmetrischen Schallwandler Geometrie grundsätzlich aus.

Weiter kommt es im Fall einer auf den Schallwandler einlaufenden Oberflächenwelle in der Grundmode zu einer deutlichen Reduktion der Reflexion der Welle, da der Abstand der einzelnen Finger nun nicht mehr der Bragg-Bedingung $\lambda_{\text{AOFW}} = 4 \cdot p$ entspricht [Has00]. Dieser, sich in der Ausbreitungsrichtung der Oberflächenwelle befindliche zweite Schallwandler, bildet zusammen mit dem Erreger eine Verzögerungsstrecke, wie in Abbildung 3.6 dargestellt. Die Namensgebung impliziert die Eigenschaft die Ausbreitung eines Signals im Vergleich zur Übertragung im Vakuum oder Koaxialleitung zu Verzögern, da sich die Oberflächenwelle mit der um den Faktor 10^3 geringeren, Geschwindigkeit von $v_{\text{AOFW}} = 3000$ bis 4000 m/s ausbreitet.

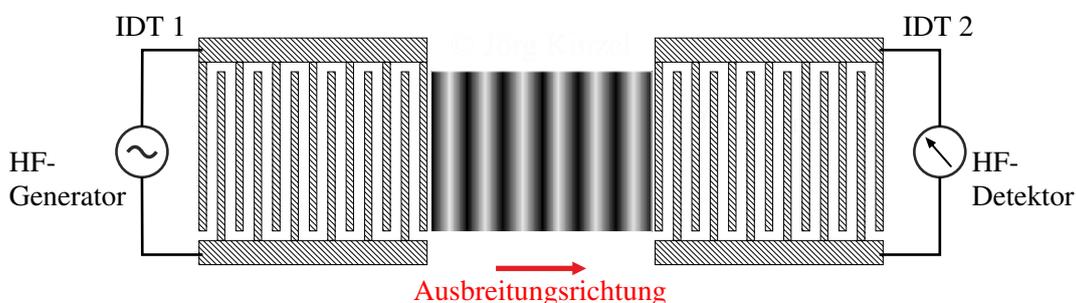


Abbildung 3.6: Akustische Verzögerungsstrecke bestehend aus symmetrischen Schallwandlern. IDT 1: Einkopplung des HF-Signals und Erregung der Oberflächenwelle. IDT 2: Rückwandlung der Welle in ein elektrisches Signal

Entscheidend für die in Kapitel 4 beschriebenen Wechselwirkungen auf andere Systeme, ist die mechanische Auslenkung beziehungsweise das mit der Oberflächenwelle propagierende elektrische Feld, wobei die Stärke beider Größen mit der in der Welle gespeicherten Energie verknüpft ist. Analog zur elektrischen Leistung ergibt sich für die Schalleistung im piezoelektrischen Substrat $P = \frac{1}{2} \varphi I$. Da es sich um ein elektrisches Wechselfeld handelt gilt für die Impedanz Z :

$$Z_0 = \frac{V}{I} = \frac{|\varphi|^2}{2P} \quad (3.21)$$

Zugleich hängt die Impedanz auch von der Geometrie der Verzögerungsstrecke ab, wobei $Z_0 = z_0 \cdot \lambda_{\text{AOFW}}/W$, mit z_0 charakteristische Impedanz. Dies trägt auch der Tatsache Tribut, dass bei gleicher Amplitude eine breitere Wellenfront mehr Leistung transportiert. Zusammen mit der Admittanz $Y_0 = Z_0^{-1}$, Gleichung (3.21) und dem elektrischen Feld der akustischen Oberflächenwelle $E_{\text{AOFW}} = k \cdot \varphi_0$, erhält man für das elektrische Feld an der Oberfläche [Dat86]:

$$E_0 = k \cdot \sqrt{2P_{\text{AOFW}}[\text{mW}] \cdot \frac{\lambda_{\text{AOFW}}}{W y_0}} \quad (3.22)$$

Die charakteristische Admittanz y_0 für LiNbO_3 ist unabhängig vom Kristallschnitt und beträgt $y_0 = 0,21 \cdot 10^{-3} \Omega^{-1}$.

Wichtig für die in der Oberflächenwelle transportierte Leistung ist eine effiziente Einkopplung der rein elektrischen Leistung aus dem Hochfrequenzgenerator, welche im nächsten Abschnitt betrachtet werden soll.

3.4 Einheiten der Hochfrequenztechnik

Wird elektrische Leistung in der Hochfrequenztechnik übertragen, ist es entscheidend, dass alle Komponenten den identischen Wellenwiderstand besitzen. Anderenfalls wird ein erheblicher Teil der Leistung am Punkt der Fehlanpassung der Impedanz zur Quelle zurück reflektiert oder über komplexe Anteile in Wärme umgesetzt. Das Ersatzschaltbild des Schallwandlers zeigt folgende Komponenten [DR00]. Dabei stellt $G_a(f)$ den elektrischen Leitwert, $B_a(f)$ den Blindleitwert, R_S parasitäre serielle Widerstände und C_T die statische Kapazität des Schallwandlers dar, wobei sich

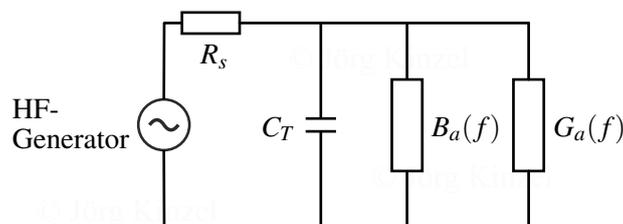


Abbildung 3.7: Ersatzschaltbild eines interdigitalen Schallwandlers. $G_a(f)$ elektrischer Leitwert, $B_a(f)$ Blindleitwert, R_S parasitäre serielle Widerstände, C_T statische Kapazität

letztere aus der Kapazität der einzelnen Fingerpaare zusammensetzt $C_T = C_S N W$, $C_S \approx 4,6 \text{ pF/cm}$, N Anzahl der Fingerpaare [Far77]. Für die Admittanz ergibt sich aus der Parallelschaltung der Anteile:

$$Y_0 = Z_0^{-1} = 2\pi i f C_T + i B_a(f) + G_a(f) \quad (3.23)$$

Zur mathematischen Beschreibung der Übertragungseigenschaft wird das Impulsmodell herangezogen. Dieses beschreibt die Antwort $h(t)$ des Schallwandlers auf einen angelegten Hochfrequenzimpuls bzw. deren Fourier-Transformierte $H(f)$. Für diese gilt:

$$H(f) = \mathcal{F}(h(t)) = \sqrt{4N^2 K^2 C_S f_0} \left(\frac{\sin \tilde{f}}{\tilde{f}} \right) \quad (3.24)$$

mit f_0 Resonanzfrequenz des Schallwandlers und

$$\tilde{f} = N\pi \frac{(f - f_0)}{f_0}. \quad (3.25)$$

Für den elektrischen Leitwert folgt damit [DR00]

$$G_a(f) = 2W |H(f)|^2 = 8K^2 C_T N f_0 \left(\frac{\sin \tilde{f}}{\tilde{f}} \right)^2. \quad (3.26)$$

Im Falle der Anregung mit der Resonanzfrequenz reduziert sich Gleichung (3.26) zu $G_0 = 8K^2 C_T N f_0$ und der den Blindleitwert verschwindet $B_a(f_0) = 0$.

Um die optimale Einkopplung der elektrischen Leistung in z.B. die Schallleistung P_{AOFW} der akustischen Oberflächenwelle zu gewährleisten, hat sich in der Hochfrequenztechnik eine einheitliche Impedanz von $Z_0 = 50 \Omega$ durchgesetzt. Das diesbezügliche Verhalten der Impedanz eines realen Bauteils wird im Smith-Diagramm veranschaulicht, wie es in Abbildung 3.8 zu sehen ist. Das Smith Diagramm bildet dabei das Verhältnis der Spannungsamplituden der einlaufenden elektrischen Welle U_{ein} und des reflektierten Anteils U_{ref} in der komplexen Ebene der Impedanz ab. Die eingezeichnete Impedanz Z steht hierbei für die Impedanz des untersuchten Bauteils, welches im vorliegenden Fall deutlich vom Idealwert von $Z_0 = 50 \Omega$ abweicht.

Mit Hilfe des Smith Diagramms ist es weiter möglich eine Anpassungsschaltung zu entwickeln, welche eine eventuelle Abweichung der Impedanz Z auf den optimalen Wert Z_0 korrigiert. Wie eingezeichnet, bewirkt eine Serienschaltung oder analog eine Parallelschaltung von Kapazitäten oder Induktivitäten bzw. realen Widerständen eine Verschiebung der Impedanz Z der Gesamtschaltung entlang der Koordinatenachsen. Im Fall der optimalen Anpassung der Impedanz an $Z_0 = 50 \Omega$ wird die elektrische Leistung vollständig umgewandelt und der Reflexionsfaktor reduziert sich nach Gleichung (3.27) zu $r = 0$.

$$r = \text{Re } r + i \text{Im } r = \frac{U_{\text{ref}}}{U_{\text{ein}}} = \frac{Z - Z_0}{Z + Z_0} \quad (3.27)$$

Umgekehrt lässt diese auch schreiben als:

$$Z = Z_0 \frac{1 + r}{1 - r} \quad (3.28)$$

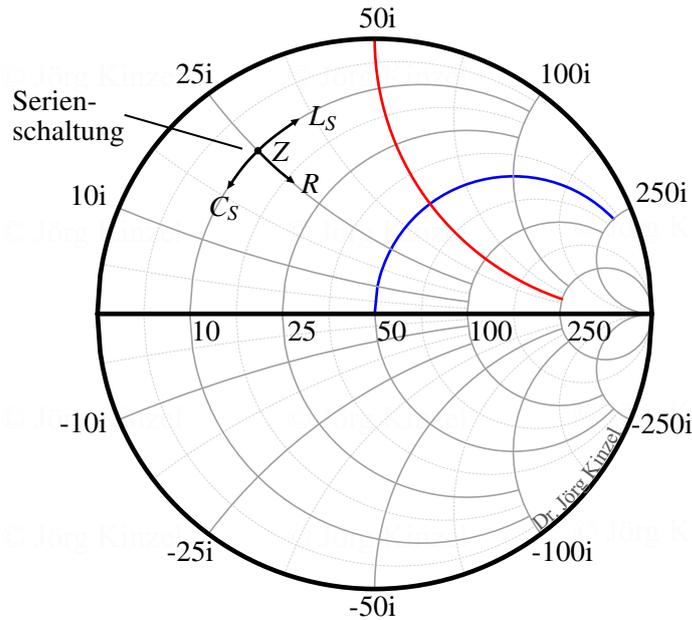


Abbildung 3.8: Smith-Diagramm der Leitfähigkeit. Auswirkung der Serienschaltung einer Kapazität C_S , Induktivität L_S oder eines Widerstands R zur Kompensation. Blaue Linie: Änderung mit konstantem Realteil. Rote Linie: Änderung mit konstantem Imaginärteil.

Für die eingekoppelte Leistung gilt analog:

$$r^2 = \frac{P_{\text{ref}}}{P_{\text{ein}}} \quad (3.29)$$

Der Reflexionsfaktor r lässt sich mit einem Netzwerkanalysator ermitteln, wie in Kapitel 5.3 beschrieben. Dabei gilt es jedoch zu beachten, dass der Reflexionsfaktor r das SI-System (franz. *Système international d'unités*) als Referenz hat. In der Hochfrequenztechnik ist hingegen das logarithmische Einheit Dezibel-Milliwatt dBm üblich, welches auf eine Leistung von 1 mW bezogen ist. Für deren Umrechnung gilt:

$$P[\text{dBm}] = 10 \cdot \log_{10} \frac{P[\text{mW}]}{1 \text{ mW}} \quad (3.30)$$

Weiter kann Gleichung (3.29) und (3.30) zusammengefasst werden und man erhält die sogenannte Einfügedämpfung (engl. *insertion loss, IL*). Diese beschreibt das direkte Verhältnis von am Eingang zur Verfügung gestellter Leistung P_{ein} und am Ausgang transmittierter P_{trans} eines Bauteils.

$$IL[\text{dB}] = -10 \cdot \log_{10} \frac{P_{\text{trans}}[\text{mW}]}{P_{\text{ein}}[\text{mW}]} = -10 \cdot \log_{10}(1 - |r|^2) \quad (3.31)$$

Da im Rahmen dieser Arbeit akustische Oberflächenwellen als universales Werkzeug zur Kontrolle von niederdimensionalen System benutzt werden, sind im folgenden Kapitel die Wechselwirkungen mit Ladungsträgern in einem Fremdsystem genauer erläutert, welches sich im Ausbreitungspfad befindet.

4 Wechselwirkung zwischen Oberflächenwellen und Halbleiterstrukturen

Nach der in Abschnitt 2.2 beschriebenen Anregung von Ladungsträgern innerhalb der Bandstruktur von GaAs, werden im folgenden Kapitel deren Ausbreitung im Kristall sowie die Manipulation durch akustische Oberflächenwellen erläutert. Den Abschluss bildet die Zusammenführung der Erzeugung der Ladungsträger, deren Manipulation und kontrollierter Rekombination zu einem dynamischen Ratenmodell.

4.1 Bewegung der Ladungsträger im Halbleiter

Die Bewegung von Ladungsträgern in einem Halbleiter wird durch Diffusion und Drift angetrieben. Der Drift der Ladungsträger entsteht durch die Beschleunigung von Elektronen und Löchern in einem äußeren elektrischen Feld \vec{E} . Analog zum Ohmschen Gesetz lässt sich die daraus resultierende Stromdichte $|\vec{j}| = I/A$ schreiben als

$$|\vec{j}| = \sigma |\vec{E}|, \quad (4.1)$$

mit σ der spezifischen Leitfähigkeit des Materials. Durch Streuprozesse an Störstellen und Gitterschwingungen können die Ladungsträger nicht beliebig hoch beschleunigt werden, sondern es stellt sich eine mittlere Driftgeschwindigkeit v_D ein. Betrachtet man die Konzentration von Elektronen n oder Löchern p welche im Zeitintervall dT die Fläche A mit der Geschwindigkeit v_D durchsetzen, so transportiert eine Sorte der Ladungsträger, beispielhaft die Löcher, die Ladung $dQ = edN = epAv_D dt$. Für die Stromdichte folgt hieraus:

$$j_h^{\text{Drift}} = \frac{1}{A} \frac{dQ}{dt} = epv_D^h \quad (4.2)$$

$$j_e^{\text{Drift}} = \frac{1}{A} \frac{dQ}{dt} = -env_D^e \quad (4.3)$$

Der Vorzeichenwechsel trägt der Tatsache Rechnung, dass sich Elektronen gegen die Feldrichtung bewegen. Vergleicht man dies mit Gleichung (4.1), so ergibt sich für die Beziehung zwischen der Driftgeschwindigkeit im elektrischen Feld und der Leitfähigkeit

$$v_D^h = \frac{\sigma_h}{ep} E \quad \text{bzw.} \quad v_D^e = -\frac{\sigma_e}{en} E. \quad (4.4)$$

Der Term σ/ep stellt dabei den Proportionalitätsfaktor zwischen dem elektrischen Feld und der Driftgeschwindigkeit her und wird als Beweglichkeit μ (engl. mobility) bezeichnet. Damit lassen sich die Gleichungen (4.2) und (4.3) auch schreiben als

$$j_h^{\text{Drift}} = e\mu_h p E \quad (4.5)$$

$$j_e^{\text{Drift}} = e\mu_e n E . \quad (4.6)$$

Einen zweiten Bewegungsmechanismus der Ladungsträger im Halbleitersystem bewirkt die Diffusion. Diese entsteht aus einem Konzentrationsunterschied der Ladungsträgerdichte $\Delta n(x)$ im Kristall und ist somit nicht vom elektrischen Feld abhängig. Die Bewegung der Ladungsträger im Gradienten der Teilchendichten wird mit dem Diffusionskonstante $D = l^2/\tau$ verknüpft, mit l Diffusionslänge und τ Lebensdauer, und man erhält für den Diffusionsstrom j^{Diff} :

$$j_e^{\text{Diff}} = eD_e \frac{dn(x)}{dx} \quad \text{bzw.} \quad j_h^{\text{Diff}} = -eD_h \frac{dp(x)}{dx} . \quad (4.7)$$

Die Kombination der Stromdichte aus Drift und Diffusion ergibt die Gesamtstromdichte für die unterschiedlichen Ladungsträgerarten.

$$j_h = e\mu_h p(x)E(x) - eD_h \frac{dp(x)}{dx} \quad (4.8)$$

$$j_e = e\mu_e n(x)E(x) + eD_e \frac{dn(x)}{dx} , \quad (4.9)$$

wobei beide Anteile über die Einstein-Smoluchowski-Beziehung miteinander verbunden sind:

$$D = \frac{\mu k_B T}{e} . \quad (4.10)$$

Da der Diffusionskoeffizienten ebenso wie die Beweglichkeit ein materialspezifischer Parameter ist und sich somit nur durch die Änderung der Materialeigenschaften ändern lässt, bietet hingegen das elektrische Feld einen direkten Angriffspunkt um die Ladungsträger im Band zu beeinflussen. Bekannte Beispiele für eine in einem homogenen Feld ablaufende Kontrolle, sind die Kanalabschnürung in einem Feldeffekt-Transistor oder die Trennung optisch erzeugter Elektron-Loch-Paaren in einer pin-Diode.

4.2 Manipulation niederdimensionaler Ladungsträgersysteme durch Oberflächenwellen

An diesem Punkt setzt auch die Kontrolle mittels akustischer Oberflächenwellen an. Die Feldvariation ermöglicht eine dynamische Modulation der Ladungsträgerdichte im Halbleiter, welche, bedingt durch die unterschiedlichen effektiven Massen $m_{e,h}^*$, zusätzlich selektiv auf das Vorzeichen Ladungsträger wirkt.

Bei dem in Abbildung 4.1 dargestellten Prozess kommt es durch das piezoelektrische Potenzial, welches aus der Deformation des Substrates entsteht, zu einer Typ-II Modulation der Bandkante. Erzeugt man in dieser Energielandschaft nun Elektron-

Loch-Paare, so werden diese, bei hinreichend großer Modulation, am Ort der Anregung separiert und die Elektronen wandern in das Minimum des Leitungsbandes sowie die Löcher in das Maximum des Valenzbandes. Die räumliche Trennung der Ladungsträger unterdrückt dabei die in Abschnitt 2.2.2 beschriebenen direkten Rekombinationspfade. Durch die propagierende Natur der akustischen Oberflächenwelle, mit den begleitenden lateralen und transversalen elektrischen Feldern, werden die Ladungsträger in der Bandmodulation mittransportiert, so dass diese an anderer Stelle rekombinieren können. Dies kann ein Quantenpunkt im Ausbreitungspfad sein [KVS12] oder eine einfache Metallisierung der Oberfläche, welche die elektrischen Felder kurzschließt [RZW97].

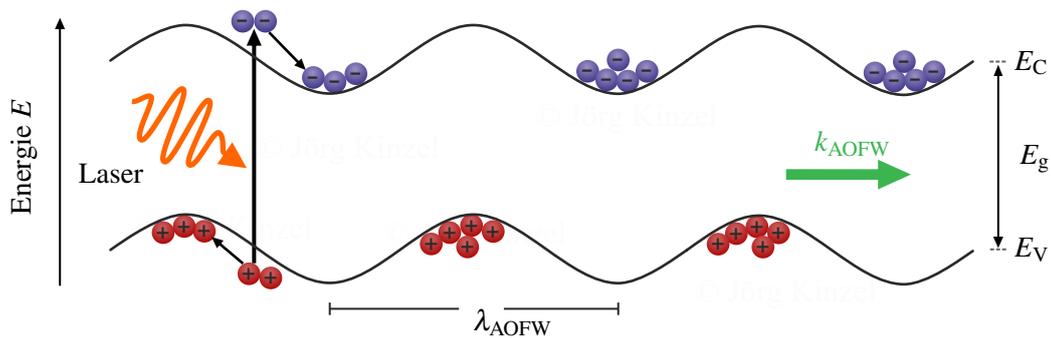


Abbildung 4.1: Dynamik der Anregung, Separation und Transport von Elektron-Loch-Paaren in einer Typ-II Bandmodulation im Halbleiter. Modulation der Bandkanten durch Aufprägung des periodischen Potentials einer akustischen Oberflächenwelle. Nach [RZW97]

Die der Separation und dem Transport der Ladungsträger zugrunde liegende Dynamik lässt sich durch die Erweiterung der Diffusionsgleichungen (4.8), (4.9) mit der Anregung G der Elektron-Loch-Paare, deren Rekombination R , der Tunnelrate T aus dem Zerfall von Exzitonen sowie dem sich ausbreitenden elektrischen Feld $E_{\text{AOFW}}(x, t)$ der akustischen Oberflächenwelle beschreiben. Dabei ergibt sich für die zeitliche Änderung der Ladungsträgerdichte $n(x, t)$ und $p(x, t)$ aus der Gesamtstromdichte j , unter gleichzeitiger Anwendung der Kontinuitätsgleichung $\partial j / \partial x = e \partial n / \partial t$ [GCCAS04]:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D_e \frac{\partial^2 n}{\partial x^2} + \mu_e \frac{\partial (E n)}{\partial x} + G - R + T \quad (4.11)$$

$$\frac{\partial p}{\partial t} = D_h \frac{\partial^2 p}{\partial x^2} - \mu_h \frac{\partial (E p)}{\partial x} + G - R + T \quad (4.12)$$

Das laterale elektrische Feld $E(x, t)$ als Hauptantrieb für den Transport der Ladungsträger setzt sich zusammen aus $E(x, t) = E_{\text{AOFW}}(x, t) + E_{\text{ind}}(x, t)$. $E_{\text{AOFW}}(x, t)$ wird dabei vom piezoelektrischen Potenzial der akustischen Oberflächenwelle hervorgerufen, so dass sich dieses schreiben lässt als

$$E_{\text{AOFW}}(x, t) = -\text{grad}(\phi_{\text{AOFW}}(x, t)) = -\text{grad}(\phi_0 \cdot \sin(k_{\text{AOFW}}x - \omega_{\text{AOFW}}t + \phi)) , \quad (4.13)$$

mit φ_0 maximales piezoelektrisches Potenzial, ϕ Phasenbeziehung zwischen der akustischen Oberflächenwelle und dem Laserpuls zur Anregung der Ladungsträger in der Bandmodulation. Die zweite Komponente E_{ind} entspringt der unterschiedlichen Ladungsverteilung von Elektronen und Löchern innerhalb des Einflussbereichs der akustischen Oberflächenwelle. Nach der Poisson-Gleichung errechnet sich dieser zu $\partial E_{\text{ind}}/\partial x = e(p - n)/\epsilon$. Durch die vergleichsweise geringe Anzahl der angeregten Ladungsträger und hohe Feldstärke durch die Oberflächenwelle spielt dieser jedoch eine untergeordnete Rolle.

Für die optischen Emission des Systems kommt es hingegen auf die Kombination der Ladungsträger zu Ladungsträgerpaaren beziehungsweise zu Exzitonen an. Dieser Abzug von Ladungsträgern aus dem Ensemble wird durch den Term $R = c np$ ausgedrückt, wobei c der Bildungswahrscheinlichkeit eines Exzitons entspricht. Die direkte Band-Band Rekombination c_{BB} wird aufgrund der schneller ablaufenden und damit dominierenden Exziton-Bildung nicht explizit ausgeführt [GCCAS04]. Somit ergibt sich die Konzentration der Exzitonen N zu:

$$\frac{\partial N}{\partial t} = D_X \frac{\partial^2 N}{\partial x^2} + c np - \frac{N}{\tau_S} - T \quad (4.14)$$

D_X ist hierbei die Diffusionskonstante des gebundenen Zustands. Die Intensität I_{PL} der strahlenden Rekombination entspricht dem Zerfallsgesetz $I_{\text{PL}}(x, t) = N(x, t)/\tau_S$, mit der zugehörigen Lebensdauer τ_S . Der zusätzliche Faktor T entspricht der Dissoziation der Exzitonen zurück in frei Ladungsträger, sodass diese wieder der Ladungsträgerdichte zur Verfügung stehen.

Die aus der Kopplung der Differentialgleichungen der Ladungsträgerdichten (4.11), (4.12) entstehende Dynamik zur Exziton-Bildung sowie die strahlende und nicht-strahlende Rekombination der Exzitonen aus Gleichung (4.14), lässt sich durch numerische Simulation lösen. Deren Ergebnisse finden sich im direkten Vergleich zu den experimentellen Ergebnissen in Abschnitt 9.2 und erweitert durch Kristalldefekte in Abschnitt 10.2.

Trotz des eindimensionalen Charakters des Modells, eignet sich dieses zur Beschreibung zweidimensionaler Systeme, da die Bewegung der Ladungsträger in Ausbreitungsrichtung der AOFW schneller abläuft, als die vergleichsweise langsamen Diffusion senkrechten dazu [RZW97, SPM12].

Eine vollständige Unterdrückung der Diffusion zu den Seiten kann durch die künstliche Reduktion eines zweidimensionalen Elektronengases erreicht werden, wie es zum Beispiel durch ein zusätzliches Einschlusspotenzial möglich ist [RKS06]. Dieser künstliche Quantendraht (engl. quantum wire, QW) bietet eine dem Modell identische Plattform, um die Auswirkungen einer akustischen Oberflächenwellen auf einen eindimensionalen Kanal zu untersuchen [ASS03].

In einem Hybridsystem aus piezoelektrischen Substrat und eindimensionalem Halbleitersystem, lässt sich durch das evaneszente elektrische Feld an der Oberfläche der akusto-elektrische Stromtransport in einem intrinsischen eindimensionalen System analysieren. Dies konnte in Form von elektrischem Stromtransport an Systemen wie Indiumarsenid-Nanodrähten [RSR10] oder mit Kohlenstoffnanoröhren [WERW07] gezeigt werden. Da es durch die elektrische Kontaktierung zu einer Beeinflussung der Ladungsträger im Bereich der Kontakte kommt, bietet es sich an, deren Verhalten

unter dem Einfluss einer akustische Oberflächenwelle mittels kontaktlosen Photolumineszenz-Experimenten direkt zu untersuchen.

Hierzu werden im folgenden Kapitel die Wachstumsmechanismen für die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten GaAs-Nanodrähte erörtert sowie die Präparation und Charakterisierung der piezoelektrischen LiNbO₃-Substrate zur Erzeugung des Hybridsystems diskutiert.

5 Akustische Oberflächenwellen in Hybridsystemen

Im folgenden Kapitel werden die für die Präparation eines Hybridsystems aus akustischen Oberflächenwellen und Nanodrähten nötigen Prozessschritte erläutert. Dazu gehören die Grundzüge der Nanodraht Synthese, die Präparation des piezoelektrischen LiNbO_3 -Substrats sowie die Analyse der mit den unterschiedlichen Kristallschnitten einhergehenden Charakteristika der Verzögerungsstrecken. Den Abschluss bildet die Beschreibung der unterschiedlichen Methoden zur Zusammenführung der Nanodrähten mit dem AOFW-Bauteil.

Das mit der mechanischen Auslenkung der akustischen Oberflächenwelle mitlaufenden elektrischen Feld wird mit Beständigkeit herangezogen, um neuartige Halbleitersysteme zu kontrollieren und zu analysieren, wie zum Beispiel seinerzeit bei der Entwicklung des CCD-Bildsensors (CCD, Charge-Coupled Device) [GSG76].

Erste Hybridsysteme aus LiNbO_3 und einer planaren GaAs-Heterostruktur zur Übertragung eines Spannungspulses, welcher sich mit der Schallgeschwindigkeit der Oberflächenwelle ausbreitet, wurden vor über 30 Jahren realisiert [HMH82]. Durch Steigerung der Messgenauigkeit konnte der daraus direkt resultierende akusto-elektrische Stromtransport in einem zweidimensionalen Elektronengas (2DEG) gezeigt werden [RWR98].

Die Umgehung von Einflüssen aus der elektrischen Kontaktierung, durch die Kombination des Hybridsystems mit der Photolumineszenz-Spektroskopie, ermöglicht zum einen die Auswirkungen der Oberflächenwelle auf das Ladungsträgersystem genauer zu analysieren [RZW97] und zum anderen gleichzeitig die zugrunde liegende Dynamik zu ermitteln [ASH01].

Durch Fortschritte im Aufbau und Steuerung der Molekularstrahlepitaxie (engl. molecular beam epitaxy, MBE) kann durch die Wahl geeigneter Prozessparameter, welche ein flüssiges Gallium-Tröpfchen erlauben, ein selbstorganisiertes Wachstum von GaAs-Nanodrähten initiiert werden. Dieser Mechanismus sowie die Herstellung von radialen Strukturen durch das Überwachsen der Seitenfacetten am Nanodraht werden im folgenden Abschnitt vorgestellt.

5.1 Kontrolliertes Wachstum von GaAs-Nanodrähten

Seit der ersten Realisierung von selbst organisiertem Wachstum eines Silizium Nanodrahts mit einem Durchmesser von 100nm mittels dem VLS-Verfahren (vapor liquid solid, Akronym - Dampf Flüssigkeit Feststoff) [WE64], gilt das Interesse an dieser Methode auch andere Materialien direkt aus dem atomaren Materialfluss von der Basis zur Spitze der Struktur (engl. bottom-up) zu synthetisieren. Der dabei eingesetz-

te Gold-Tropfen als Katalysator der Synthese erweist sich beim selbstorganisierten Wachstum von GaAs-Nanodrähten hingegen als Ursache von Verunreinigungen im Nanodraht, welche die elektronischen und somit auch optischen Eigenschaften degradieren [LOG11]. Eine weitere Möglichkeit dem Katalysator die Edukte zuzuführen ist die metallorganische Gasphasenepitaxie (engl. metal organic chemical vapor phase epitaxy, MOVPE). Bei diesem Verfahren führt der Einsatz von metallorganischen Reaktanden jedoch aufgrund der kohlenwasserstoffhaltigen Verbindungen zu einer Einlagerung von Kohlenstoff während der Synthese, welcher in GaAs energetisch erniedrigte Störstellen verursacht [JLP12]. Diese wirken als Fallen für Ladungsträger und beeinflussen als Akzeptor-Zwischenniveaus in der Bandstruktur die Rekombination.

Eine Umgehung dieser Problematik während des Wachstums von GaAs-Nanodrähten, bietet im VLS-Verfahren die direkte Verwendung von Gallium als Katalysator. Gleichzeitig wird durch die Synthese im Hochvakuum und der atomaren Bereitstellung der Synthesepartner eine Inkorporation von Störstellen verhindert. Die Schritte zur Umsetzung dieses Wachstumsmechanismus werden im nächsten Abschnitt erläutert.

5.1.1 Vapor-Liquid-Solid-Wachstum

Das kontrollierte Wachstum von GaAs-Nanodrähten im VLS-Verfahren, verknüpft die Präparation eines Wachstumssubstrates mit einer Oxid-Maske zur selektiven Nukleation von Nanodrähten, mit der gezielten Bereitstellung elementarer Materialflüsse durch Molekularstrahlepitaxie. Für die in dieser Arbeit verwendeten Nanodrähte wird zunächst ein Si(111)-Substrat mit einer thermisch erzeugten Siliziumdioxid-Schicht (SiO_2) mit einer Stärke von 20 nm überzogen. Diese wird im Anschluss durch gepufferte Flusssäure auf etwa 0,7–2,2 nm gedünnt, so dass sich darin Öffnung von 15–20 nm Durchmesser zum darunter liegenden Si-Substrat bilden. An diesen Nanoporen kommt es zu einer Anreicherung der Gallium-Atome aus der MBE-Quelle, da diese bei der Synthesetemperatur von 630 °C auf der Oberfläche diffundieren können, wie in Abbildung 5.1 a) zu sehen.

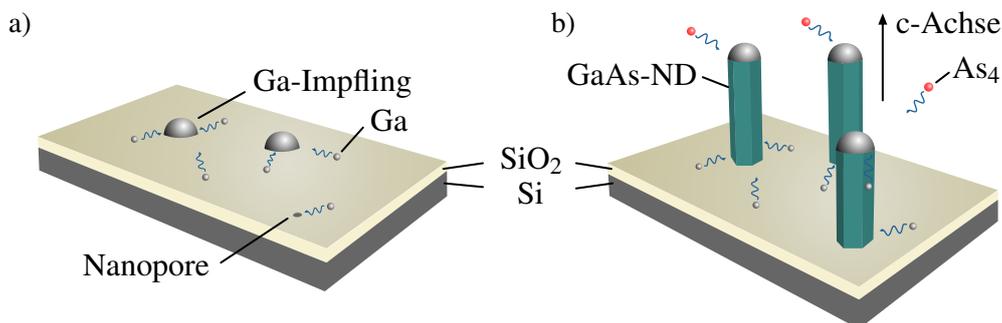


Abbildung 5.1: VLS-Wachstumsmechanismus von GaAs-Nanodrähten a) Ausbildung von Gallium-Tröpfchen, welche an Öffnung des nanoporösen SiO_2 haften. b) Absorption und Anreicherung von Arsen im Tröpfchen, welches an der flüssig-fest Grenzschicht an der Unterseite zur epitaktischen Abscheidung von kristallinen GaAs-Säulen führt. Nach [SAiM09]

Nach dem Öffnen der Arsen-Quelle, kommt es zu einer Anreicherung von Arsen im Gallium-Impfling. Sobald in diesem die Sättigungskonzentration erreicht ist, setzt epitaktisches Wachstum von freistehenden GaAs-Nanodrähten ein, wie in Abbildung 5.1 b) gezeigt [CSF08]. Dabei folgt die Wachstumsrichtung, welche im folgenden als c-Achse bezeichnet wird, der kristallografischen [111]-Richtung, so dass es sich um die Zinkblende-Struktur handelt, wie für GaAs erwartet [Sin03]. Die hexagonal angeordneten Facetten an der Seite nehmen ununterscheidbar die {110}-Orientierung ein.

Die exakten Wachstumstemperaturen und Materialflüsse für die in dieser Arbeit eingesetzten Nanodrähte finden sich im Probenverzeichnis im Anhang. Weiterführende Angaben zur Synthese sowie dem Einfluss der Parameter auf die Morphologie, finden sich in [RHB11] und [RFD13]. Es zeigt sich zusammenfassend, dass es bei höheren Wachstumsgeschwindigkeiten, im Bereich von $3\text{ }\mu\text{m/h}$, zur Nukleation von Nanodrähten in der Zinkblende-Struktur kommt. Dessen ungeachtet können diese Zwillingsdefekte enthalten. Eine Verschiebung des III/V-Verhältnisses im Materialfluss der Edukte hin zu Gallium, durch Reduzierung des Arsen-Flusses, führt zum Auftreten von Wurtzit-Segmenten im Nanodraht, bei gleichzeitiger Abnahme der Wachstumsgeschwindigkeit auf $0,3\text{ }\mu\text{m/h}$. Dieser Strukturtyp ist im Volumenmaterial von GaAs nicht anzutreffen [ZCBP09].

Einen weiteren Einfluss auf die laterale Wachstumsgeschwindigkeit und damit auf das Aspektverhältnis des Nanodrahts, hat der räumliche Abstand der Drähte auf dem Substrat. Somit bietet es sich an, die Anordnung der Nanoporen im Oxid durch lithografische Prozesse zu definieren, deren Grundzüge in Abschnitt 5.2.1 beschrieben sind. Durch die gezielte Positionierung der Drähte mit einem Abstand größer der Diffusionslänge von Gallium auf der SiO_2 -Oberfläche des Substrats werden Abschattungseffekte durch zu dichtes Wachstum unterdrückt [HRB10].

Unabhängig der Synthese purer GaAs-Nanodrähte ist es mit dem VLS-Mechanismus möglich, den ternären Partner während des Wachstums partiell zu substituieren. Durch das Hinzuziehen einer Quelle für ein weiteres atomares Gruppe-III Element, wie z.B. Indium, kommt es während der Synthese zu dessen Inkorporation in den Impfling und somit zum Wachstum eines $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Segments. Auf Grund der Diffusion auf der Substratoberfläche und der anschließenden Anreicherung der ternären Partner im Gallium-Tröpfchen, geschieht dieser Übergang nicht sprunghaft. Es kommt zu einer zeitverzögerten und ansteigenden Inkorporation nach dem Öffnen der Quelle bzw. Absinken nach dem Schließen, sodass ein Gradient der Zusammensetzung entlang der Achse des Drahts festzustellen ist [HGCB09]. Eine Steigerung des Indiumgehalts auf $x = 1$ führt zu einem Wachstum von Nanodrähten aus reinem Indiumarsenid. Bei diesem Prozess entfällt die bisher ausgenutzte Möglichkeit zur Anreicherung der Edukte im flüssigen Gallium-Impfling. Stattdessen tritt in diesem sogenannten Arsen-reichen Wachstumsregime eine direkte Nukleation des Drahts auf, ohne die Ausbildung eines Tröpfchens an der Nanopore im Substrat [HRB11].

Umgekehrt lässt sich während des Wachstums von GaAs-Nanodrähten die direkte Synthese von GaAs aus der Gasphase zum Feststoff herbeiführen, in dem das III/V-Verhältnis von Gallium- und Arsen-Fluss zu Gunsten des Arsens erhöht wird. Dies führt zu einer Auskristallisierung des Gallium-Wachstumskeims zu kristallinem GaAs und somit zu einer Unterbrechung des lateralen Wachstums [RFD13]. Durch

gezielte Kontrolle der Partialdrücke ist es in diesem Zustand möglich, ein weiteres radiales Wachstum einzuleiten, welches im folgenden Abschnitt erläutert wird.

5.1.2 Arsen-reiche Wachstumsbedingungen

Das epitaktische Aufwachsen einer Ummantelung um einen massiven GaAs-Nanodraht als Kern ermöglicht eine Funktionalisierung, die bisher nur in zweidimensionalen Schichtsystemen möglich erschien. So ist es durch die Inkorporation eines radialen pn-Übergangs gelungen Nanodrähte herzustellen, welche als Kandidaten für die Leistungssteigerung von Solarzellen fungieren [MSHH13]. Ebenso wurden radiale $\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x}$ -Kern/Mantel-Nanodrähte dazu benutzt, mit Hilfe von nachträglich appliziertem Hafniumoxid (HfO) als Dielektrikum, einen Feldeffekttransistor mit Ω -förmiger Steuerelektrode zu realisieren [NLS09].

Auch in den in dieser Arbeit eingesetzten GaAs/ $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}$ As-Kern/Mantel-Nanodrähten werden die Photolumineszenz-Eigenschaften durch die Ummantelung deutlich verbessert. Dies hat seine Hauptursache in der reduzierten nichtstrahlenden Rekombination der Ladungsträger an der Oberfläche des GaAs-Kerns. Um eine epitaktisches Aufwachsen des $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}$ As-Mantels zu erreichen, wird, nach der Beendigung des lateralen Wachstums durch den zuvor beschriebenen angehobenen Arsen-Fluss, die Substrattemperatur zunächst auf $T = 465 - 490^\circ\text{C}$ reduziert und anschließend der atomare Gallium- und Aluminiumfluss aus der Quelle simultan initiiert. Mit den im Probenverzeichnis im Anhang zusammengefassten eingesetzten Flussraten der Edukte, kommt es zu einem epitaktischen Aufwachsen von $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ an die Facetten in der $\{110\}$ -Orientierung. Analog zum VLS-Wachstum kommt es hier ebenso zu einem lateralen Überwachsen des Nanodrahts in $[111]$ -Richtung am freistehenden Ende mit $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$, so dass dieser weiter an Länge gewinnt. Im Gegensatz zum Wachstum des GaAs-Kerns gleicht sich das Aspektverhältnis der Nukleation von $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ an, so dass es zu einer gleichmäßig Abscheidung an den Seitenfacetten und dem freistehenden Drahtende kommt. Dies gilt sofern der Abstand der Nanodrähte auf dem Wachstumssubstrat größer ist als der Radius der Materialakquise zur Synthese. Andernfalls kommt es zur gegenseitigen Abschattung, welche das Verhältnis zu Gunsten des Längenwachstums verschiebt [RFD13].

Durch die Abwesenheit eines flüssigen Katalysators und der damit einhergehenden Umgehung eines Konzentrationsgradienten beim Wechsel der Stöchiometrie im synthetisierten Material ist es möglich, durch einen abrupten Wechsel der Inkorporation der ternären Reaktionspartner ein radiales Schichtsystem aufzubauen, wie es bisher nur von planaren GaAs-Strukturen bekannt war. Dies lässt sich ausnutzen um eine zusätzliche hexagonale Quantentopf-Struktur im Mantel zu erzeugen, welche das Potential zur Bildung von Emissionszentren entlang des Nanodrahts bietet [WKS14, HFG13]. Ebenso lassen sich durch schnelles Wechseln der Stöchiometrie mehrlagige Quantentopf-Strukturen mit unterschiedlichen Radien erstellen, so dass deren optische Eigenschaften variieren und sich damit einzeln adressieren lassen [SAiM09].

Allen GaAs-Strukturen mit Aluminium-Inkorporation ist gleich, dass als letzter Prozessschritt das Aufwachsen einer 10nm dünnen Schutzschicht aus intrinsischem GaAs erfolgt, um die Oxidation des Materials durch Sauerstoff zu verhindern.

Da die kontaktlose Manipulation des Ladungsträgersystems in den Nanodrähten und damit gleichzeitig der optischen Emission durch akustische Oberflächenwellen ein piezoelektrisches Substrat erfordert, wird in den folgenden Abschnitten auf die Präparation und Parametrisierung der untersuchten Hybridproben eingegangen.

5.2 Präparation des piezoelektrischen LiNbO₃-Substrates

Wie in Abschnitt 3.2 beschrieben, besitzt LiNbO₃ optimale Voraussetzungen zur Anregung von akustischen Oberflächenwellen. Die Herstellung von Schallwandlern und zusätzlichen Strukturen auf dem Substrat durch Elektronenstrahlithografie (ESL) sowie die anschließende Lokalisation von aufgetragenen Nanodrähten mittels Rasterelektronenmikroskopie (REM - engl. scanning electron microscope, SEM), erfordern eine minimale Leitfähigkeit im Substrat, sodass die durch den Elektronenstrahl entstehende Oberflächenladung abfließen kann.

In der Perowskit-Struktur des LiNbO₃-Wafers lässt sich dies erreichen, in dem dieser nach der Herstellung in reduzierendem wasserstoffhaltigen Formiergas unter Erwärmung auf $T = 350 - 750^\circ\text{C}$ getempert wird [BJS99]. Die hieraus entstehenden Fehlstellen in den Sauerstoffoktaedern hinterlassen zwei vakante Elektronen, welche im umliegenden Kristall ein Polaron erzeugen und gleichzeitig für die dunkelgraue Einfärbung des Lithiumniobat-Substrats (engl. black Lithiumniobate) verantwortlich sind [YPY13]. Entscheidend an diesem Schritt ist, dass der spezifische Widerstand um drei Größenordnungen auf $\rho_{\text{LiNbO}_3} = 2,40 \cdot 10^{11} \Omega \text{ cm}$ reduziert wird. Somit bildet sich eine schwache Elektronenleitfähigkeit aus, welche eine statische Aufladung und somit auch die Pyroelektrizität von nicht behandeltem LiNbO₃ unterdrückt [Bre13]. Für die Anregung von akustischen Oberflächenwellen besitzt diese reduzierte Version in weiten Bereichen die identischen Eigenschaften von LiNbO₃, wie in Kapitel 3.1 beschrieben und wird im folgenden als LiNbO_{3-x} bezeichnet [JB00].

Um die Beeinflussung von Nanodrähten durch akustische Oberflächenwellen untersuchen zu können, ist es notwendig, eine geeignete Probengeometrie auf LiNbO_{3-x} zu entwerfen. Deren Prozessierung ist im nächsten Abschnitt beschrieben.

5.2.1 Prozessierung der LiNbO₃-Proben

Die in dieser Arbeit genutzte Probengeometrie zur Beeinflussung der Nanodrähte durch akustische Oberflächenwellen besteht aus einer lithografisch hergestellten Verzögerungsstrecken bzw. einem Hochfrequenz-Bandpassfilter. Ein universales Werkzeug zur Erzeugung von verschiedenen Strukturen bietet die Elektronenstrahlithografie. Die hohe Flexibilität sowie die Präzision bei der Belichtung von Strukturen am verwendeten Elektronenstrahlithografen *Raith eLine*, wird lediglich durch den Durchmesser des fokussierten Elektronenstrahls von etwa $d_e = 20 \text{ nm}$ begrenzt. Die zur Herstellung genutzte Lithografie und Metallisierung wird im folgenden erläutert. Den Ausgangspunkt bildet das LiNbO_{3-x}-Substrat, welches zunächst mittels Lösungsmitteln im Ultraschallbad gereinigt wird. Detaillierte Angaben finden sich zusammen-

gefasst im Anhang unter Parameter der Probenpräparation. Nach der Aufbringung einer homogenen Lackstruktur mittels einer Lackschleuder, bei der überschüssiges Material durch die Zentrifugalkraft abgeschleudert wird und dem Ausheizen des Lösungsmittels auf einer Heizplatte, erfolgt die eigentliche Belichtung.

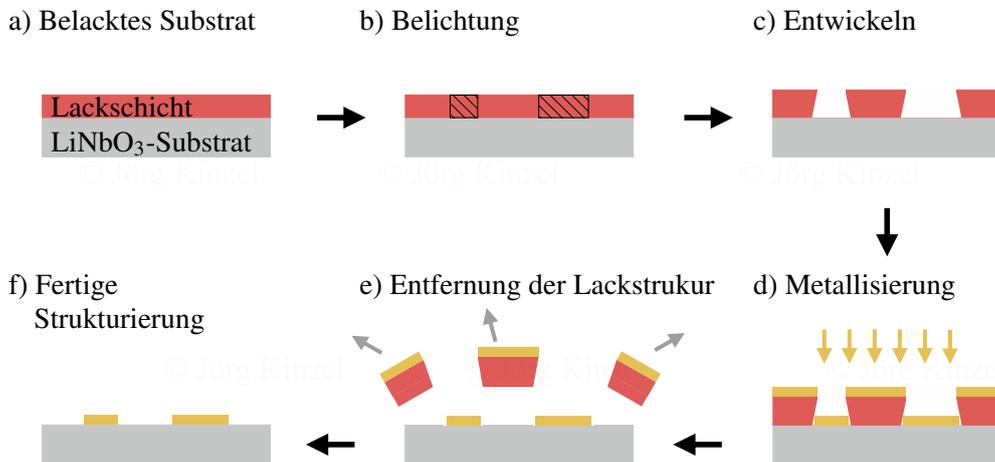


Abbildung 5.2: Prozessfluss der Mikrostrukturierung. a) Reinigung des Substrats und anschließendes Aufbringen der Lackschicht, b) & c) Belichtungs- und Entwicklungsschritt zur Öffnung der gewünschten Substrat-Areale im Lack, d) Abscheidung des Materials bei gleichzeitiger Kühlung des Substrats von der Rückseite, e) & f) Entfernung der Lackstruktur und Freilegung der Mikro- und Nanostruktur durch Lösemittel unterstützt durch Ultraschall Einwirkung

Wie in Abbildung 5.2 b) im Querschnitt angedeutet, kommt es durch die Einwirkung des Elektronenstrahls zu Kettenbrüchen im Polymer des Lacks, so dass beim darauffolgenden nasschemischen Entwicklungsschritt das belichtete Areal durch den Entwickler entfernt werden kann.

Wie in Abbildung 5.2 c) zu sehen, kommt es dabei durch die Rückstreuung von Elektronen am Substrat (engl. proximity effect) zur Ausbildung eines negativen Flankenwinkels [Was05]. Dieser verhindert während der Metallisierung der Probe, z.B. durch Elektronenstrahlverdampfen eines Metalls im Vakuum, eine feste Verbindung zwischen den gewünschten Strukturen auf dem Substrat und der Opferschicht aus Lack, wie in Abbildung d) veranschaulicht. Diese würde beim Entfernen der Lackstruktur durch ein unselektives Lösungsmittel, welche auch die langkettigen Moleküle des Fotolacks löst, wie in Abbildung 5.2 e) dargestellt, den Abtrag des überschüssigen Materials verhindern und zu einer zufälligen Redeposition führen. Nach erfolgreicher Ablösung der Opferschicht und überschüssigem Metall, erhält man die gewünschte Strukturierung des Substrats, welche in Abbildung 5.2 f) gezeigt ist.

Die mittels Lithografie hergestellten Schallwandler besitzen auf Grund der gewünschten unterschiedlichen Wellenlängen unterschiedliche Periodizitäten der hergestellten Strukturen. Die daraus folgenden Hochfrequenzeigenschaften haben entscheidenden Einfluss auf die Übertragungscharakteristik der Verzögerungsstrecke. Diese werden im nächsten Abschnitt genauer erläutert und untersucht.

5.3 Charakterisierung der verwendeten Verzögerungsstrecken

Die durch die Dispersionsrelation aus Gleichung (3.20) bestimmte Resonanzfrequenz eines interdigital Schallwandlers, weicht nach der Präparation der Verzögerungsstrecke von der erwarteten Resonanzbedingung des Idealfalls ab. Dies hat seine Ursache in der Temperaturabhängigkeit der Schallgeschwindigkeit im Substrat [Far77]. Gleichzeitig kommen jedoch auch Sekundäreffekte zum tragen. Dazu gehören Abweichungen in der Ausrichtung der Achse des Schallwandlers zur Kristallachse während der Fabrikation, was zu einer Beugung der Oberflächenwelle in die Vorzugsrichtung führt. Ebenso die gegenseitige Interferenz der einzelnen Finger des anregenden Schallwandlers, was zu einer gebeugten Abstrahlung führen kann. Zusätzlich hat die Geometrie und das Tastverhältnis der einzelnen Fingerelektroden einen Einfluss auf die Ladungsverteilung und die Kapazität des Wandlers, was sich auf deren Impedanzanpassung auswirkt [SR03].

Um die optimale Anregungsfrequenz der Schallwandler zu ermitteln, lässt sich deren Resonanzspektrum und Impedanz mittels eines Netzwerkanalysators ermitteln. Dieser besteht in Grundzügen aus den in Abbildung 5.3 dargestellten Komponenten.

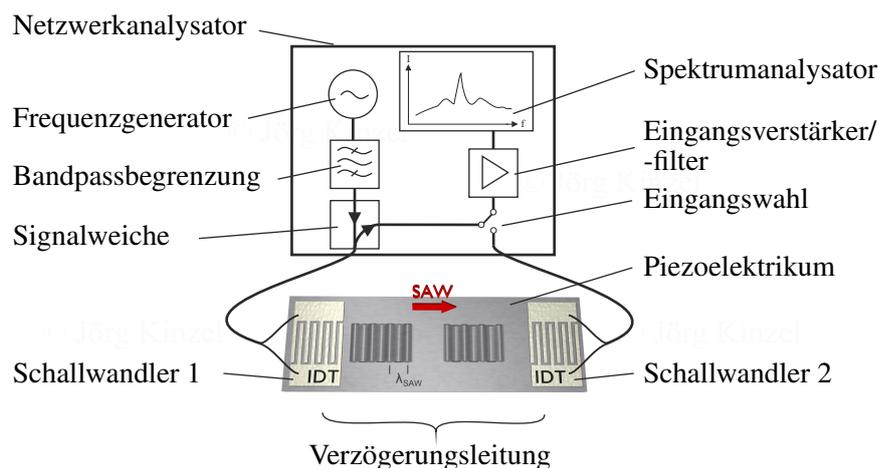


Abbildung 5.3: Schematischer Aufbau zur Bestimmung der Resonanzfrequenz eines Schallwandlers beziehungsweise der Übertragungsbandbreite einer Verzögerungsstrecke mittels eines Netzwerkanalysators

Eine der Hauptkomponenten des verwendeten Netzwerkanalysators ZVC von *Rhode & Schwarz* bildet ein Frequenzgenerator, mit dem durch eine Bandpassbegrenzung der gewünschte Frequenzspektrum durchfahren wird. Dieser Bereich orientiert sich an der erwarteten Resonanzfrequenz des Schallwandlers. Zur Charakterisierung der präparierten AOFW-Bauelemente stehen Reflexions- (S_{11}) als auch Transmissionsmessung (S_{12}) zur Verfügung. Bei der Reflexionsmessung wird das breitbandige Hochfrequenzsignal an einen der Schallwandler angelegt. Die an diesem zum Netzwerkanalysator elektrisch zurück reflektierten Signalanteile werden über die Signalweiche ausgekoppelt und dem Spektrumanalysator zugeführt. Aus dem Minimum des zurück reflektierten Signals ergibt sich die tatsächliche Resonanzfrequenz des Schall-

wandlers, da an diesem Punkt die angelegte elektrische Leistung in die Oberflächenwelle überführt wird. Somit entspricht der S_{11} Parameter den in Gleichung (3.29) beschriebenen Reflexionsfaktor r .

$$S_{11} = r = \frac{U_{\text{ref}}}{U_{\text{ein}}} = \frac{Z - Z_0}{Z + Z_0} \quad (5.1)$$

Hieraus lässt sich mit Gleichung (3.28) die frequenzabhängige Eingangsimpedanz errechnen. Beispielhaft sind die Verläufe beider Schallwandler in Abbildung 5.4 a) und b) für Probentyp-II mit Ausbreitung parallel der Z-Richtung für eine Probentemperatur von $T = 5\text{ K}$ dargestellt. Die Parameter der weiteren verwendeten Kristallschnitte und Richtungen finden sich in Tabelle 5.2, Einzelheiten zur Nomenklatur der verschiedenen untersuchten Proben, im Anhang unter Kristallschnitte und verwendete Nanodrähte.

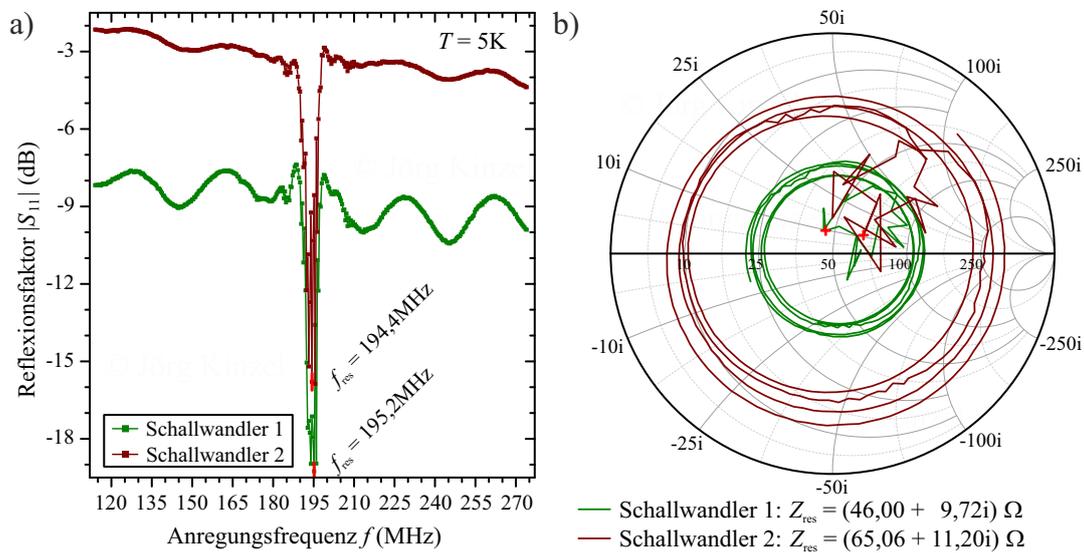


Abbildung 5.4: Charakterisierung eines Schallwandlers. a) Bestimmung der Resonanzfrequenz anhand des Reflexionsfaktors S_{11} . b) Verhalten der Eingangsimpedanz im untersuchten Frequenzbereich. Rote Markiert ist die Impedanz der einzelnen Schallwandler im Resonanzfall

Zur Erfassung der Transmission S_{12} wird der Eingang des Netzwerkanalysators mit Schallwandler 2 verbunden, so dass das eingekoppelte Signal vor der Detektion die Probe entlang dem Schallpfad durchläuft. Für den S_{12} -Parameter gilt somit:

$$|S_{12}|^2 = \frac{P_{\text{trans}}}{P_{\text{ein}}} \quad (5.2)$$

Da dies auf Grund der Bandpasswirkung selektiv für einen kleinen Bereich erfolgt, lässt sich ein Maximum der detektierten Signalstärke um die Resonanzfrequenz beobachten, wobei eine Bandbreite von wenigen MHz zur Verfügung steht. Wie in Abbildung 5.5 für die Z-Richtung des Probentyps-II dargestellt, reicht diese von $f_{\text{res}} = 192,2$ bis über $195,7\text{ MHz}$. Oberhalb bzw. unterhalb dieser Frequenzen fällt die Signalstärke um mehr als $\Delta S_{12} = 3\text{ dB}$ ab und damit um mehr als 50%. Der Be-

reich zwischen den Grenzfrequenzen kann somit Feineinstellung der im Experiment genutzten Anregungsfrequenz der AOFW benutzt werden. Zusätzlich finden sich Abbildung 5.5 die Nebenmaxima der Übertragungsfunktion in Form eines Fraunhofer Musters, wie durch Gleichung (3.24) beschrieben.

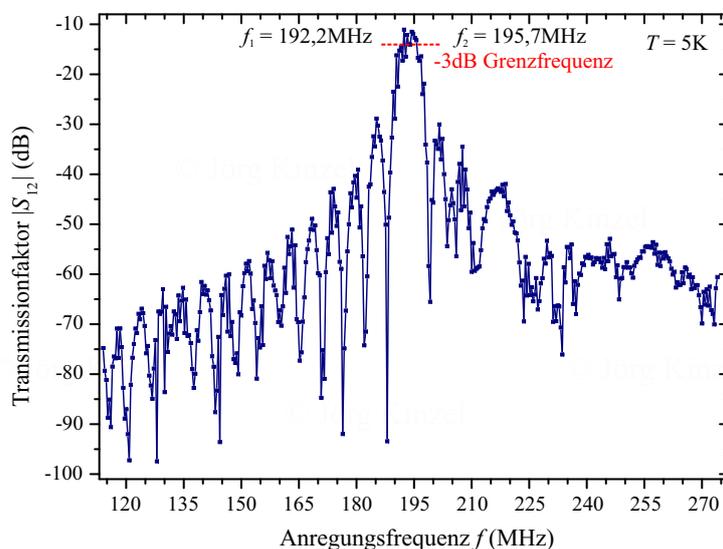


Abbildung 5.5: Transmissionssignal S_{12} einer Verzögerungsstrecke bestehend aus zwei Schallwandlern. Die Aufweitung der Mittenfrequenz führt zu einem Bandpass ähnlichen Verhalten. Die zugehörige Grenzfrequenz bei die Signalstärke um $\Delta P = 3\text{ dB}$ auf die Hälfte abgefallen ist, ist in rot eingezeichnet.

Bei Transmissionsmessungen mit dem Netzwerkanalysator kann jedoch nicht zwischen dem Signal der akustischen Oberflächenwelle und dynamischen Störfaktoren unterschieden werden. Hierzu zählen das direkte elektromagnetische Übersprechen von Schallwandler 1 auf Wandler 2 oder nicht abgeschirmte Teile der Anschlussleitungen, das Auftreten anderer Wellenformen mit unterschiedlichen Ausbreitungsgeschwindigkeiten, wie zum Beispiel der Volumenwelle. Ebenso stellt die Reflexion der gewünschten Oberflächenwelle an der Kante des Substrats und zwischen den Schallwandlern eine Fehlerquelle dar, wie in Abbildung 5.7 b) aufgelöst. Hierdurch wird der Absolutwert der übertragenen Leistung am Netzwerkanalysator verfälscht [Far77]. Eine Lösung für dieses Problem stellt die gepulste Anregung der AOFW bei gleichzeitig zeitlich aufgelöster Detektion dar, so dass die Dynamik der Ausbreitung aufgelöst wird. Der dazu nötige Aufbau ist in Abbildung 5.6 gezeigt.

Um Interferenzeffekte, wie z.B. stehende Wellen auf dem Substrat, zu verhindern, kommt eine gepulste Anregung der akustischen Oberflächenwelle zum Einsatz. Identisch zu den in den Experimenten zur Modulation der optischen Emission von GaAs-Nanodrähten eingesetzten Anregung der Oberflächenwelle, erfolgt dies mittels dem Frequenzgenerator *SME 03* von *Rhode & Schwarz* im Pulsbetrieb. Dessen Signalpegel wird durch den Verstärker *ZHL-2-SMA* von *Mini Circuits* um $\Delta P = 17\text{ dB}$ angehoben und zur Erregung einer AOFW an Schallwandler 1 geleitet.

Nach dem Passieren der Verzögerungsstrecke werden alle einlaufenden Signale durch den zweiten Schallwandler in ein elektrisches Signal zurückgewandelt und können durch ein Oszilloskop aufgelöst werden. Gleichzeitig wird durch eine Bypass Lei-

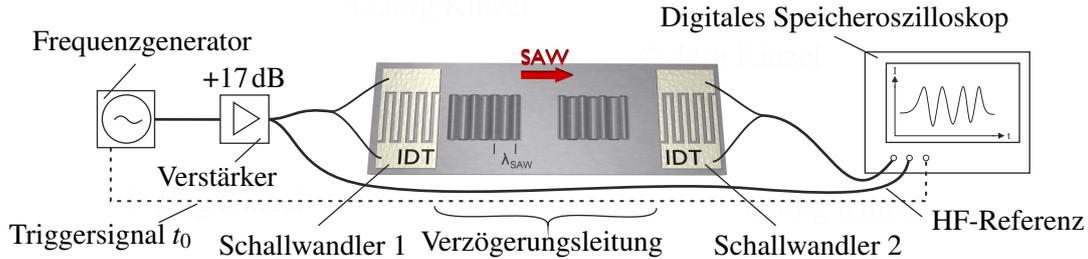


Abbildung 5.6: Aufbau zur Analyse der Dynamik der Ausbreitung einer akustischen Oberflächenwelle entlang einer Verzögerungsleitung. Gepulste Anregung und zeitaufgelöste Detektion der AOFW durch Oszilloskop sowie des Referenzsignals der Anregung.

tung das HF-Signal an das Oszilloskop geleitet, sodass dieses als Referenzmessung zur Verfügung steht. Um eine möglichst gute Auflösung des Verlaufs zu erreichen, dient ein *LeCroy WaveRunner 620Zi* Speicheroszilloskop mit einer Auflösung von 20 GS/s, welches eine direkte Abbildung der Wellenzüge erlaubt. Die Synchronisation zwischen Generator und Oszilloskop erfolgt dabei durch ein zusätzliches TTL-Triggersignal t_0 (Transistor-Transistor-Logik) aus dem Frequenzgenerator, welches den aktiven Zustand des HF-Ausgangs wiedergibt.

Die zeitliche Dynamik der Verzögerungsstrecke ist in Abbildung 5.7 a) gegenüber den Signalamplituden dargestellt. Der in grün abgebildete Anregungspuls besitzt eine Frequenz von $f_{\text{HF}} = 194 \text{ MHz}$, bei einer Länge von $\Delta t_{\text{HF}} = 900 \text{ ns}$ und wird mit einer Leistung von $P_{\text{HF}} = (19,57 \pm 0,01) \text{ dBm}$ angeregt. Die Wiederholrate des Anregungs-

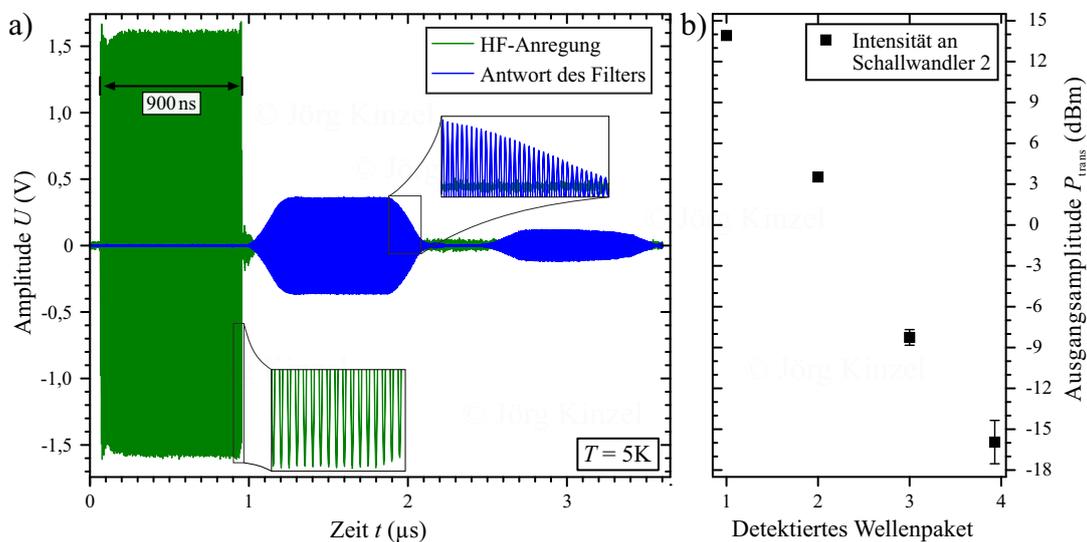


Abbildung 5.7: Dynamik der elektrischen Signale einer akustischen Oberflächenwelle beim Durchlaufen eines Bandpassfilters. a) Grün: Anregungspuls der Oberflächenwelle mit einer Frequenz von 194 MHz. Blau: Nach Durchlaufen des Bandpassfilters an Schallwandler 2 detektiertes Signal. Zusätzliche Vergrößerungen der periodischen Anteile. b) Amplitudenverhältnisse der verschiedenen an Schallwandler 2 einlaufenden Signale bei einer Anregungsleistung von $P_{\text{HF}} = 26 \text{ dBm}$

pulses liegt bei 20kHz, sodass sich eine Zykluszeit von $50\mu\text{s}$ ergibt um ein Aufheizen der Probe durch die eingekoppelte HF-Leistung der akustische Oberflächenwelle zu verhindern.

Im unteren Detailausschnitt sind gut die Umkehrpunkte der Minima der sinusförmigen Anregung zu erkennen. Nach einer Verzögerung von $\Delta t = (931 \pm 20)\text{ns}$ durch die Laufzeit auf dem Substrat, erreicht das in blau dargestellt Signal der akustischen Oberflächenwelle das Oszilloskop. Dies ist in guter Übereinstimmung mit dem erwarteten Ergebnis von $\Delta t = 917\text{ns}$ aus dem Abstand der Vorderkante der Schallwandler von $\Delta Z = 3200\mu\text{m}$ und der Ausbreitungsgeschwindigkeit für Probenotyp-II in Z-Richtung bei Raumtemperatur. Es zeigt sich jedoch, dass es im Falle der transmittierten Oberflächenwelle zu einem Einschwingvorgang sowie Ausschwingen der Amplitude kommt, dabei entspricht der Einsatzpunkt der Schwingung bis zum Beginn des Abfalls der Zeitspanne von $\Delta t = 900\text{ns}$ des Anregungspulses.

Das Auftreten des zweiten Wellenpakets im detektierten Signal nach einer Laufzeit von $\Delta t = 2,44\mu\text{s}$ ist der Reflexion des an Schallwandler 1 in die Gegenrichtung gestarteten Wellenpakets an der Probekante zuzuordnen. Dieses durchläuft von der Kante ausgehend die Verzögerungsleitung ebenso in Richtung des zweiten Schallwandlers und trifft nach einer Laufstrecke von insgesamt $\Delta Z = 8540\mu\text{m}$ auf Schallwandler 2. Eine einfache Lösung zur Unterdrückung dieses Effekts ist die Nutzung schräger Probekanten, so dass sich als Randlinie des Substrats ein Parallelogramm ergibt. Dies führt zu einer Streuung des Wellenpakets aus dem Aperturbereich. Wie aus Abbildung 5.7 b) ersichtlich, besitzt dieses zweite Wellenpaket zwar eine deutlich kleiner Amplitude, beeinflusst jedoch weiterhin die Messungen des absoluten Transmissionsfaktors.

Ferner lassen sich bei Erhöhung der Anregungsleistung auf $P_{\text{HF}} = 26\text{dBm}$ noch weitere Wellenzüge mit abnehmender Amplitude im zeitlichen Verlauf feststellen. Der dritte Wellenzug kann aufgrund der längeren Laufzeit dem dreifachen Transit der Oberflächenwelle zwischen den Schallwandlern zugeordnet werden. Eine detaillierte Analyse der Reflexionsbedingungen, welche zum mehrfachen Auftreten des Wellenpakets führt, kann die Variation der Abstände sowie der Position der Schallwandler auf dem Substrat liefern.

Entscheidend für den Einsatz der Oberflächenwelle als Manipulator, ist jedoch die in die Auslenkung der Oberflächen gewandelte Leistung und das damit einhergehende elektrische Feld des ersten Wellenzugs. Der Aufbau der in den Photolumineszenz-Experimenten eingesetzten Probengeometrien sowie die Analyse der verwendeten Verzögerungsleitungen auf den jeweiligen Probenotypen findet sich im nächsten Abschnitt.

5.3.1 Parametrisierung der Kristallschnitte und Schallwandler

Die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten eindimensionalen GaAs-Nanodrähte können durch akustische Oberflächenwellen aus zwei Richtungen manipuliert werden. Zum einen besteht die Möglichkeit, die Auswirkungen der Ausbreitungsrichtung der Oberflächenwellen parallel zu Wachstumsrichtung des Nanodrahts zu untersuchen, zum anderen die senkrechte Einwirkung zu analysieren. Hieraus lassen sich Rückschlüsse auf den zugrunde liegenden Mechanismus der Ladungsträgedynamik unter

dem Einfluss einer AOFW gewinnen. Um beides an einem Nanodraht durchführen zu können, kommt eine gekreuzte Geometrie von zwei Verzögerungsleitungen zum Einsatz, wie in Abbildung 5.8 als Rasterelektronenmikroskopische Aufnahme zu sehen. Die gegenüberliegende Anordnung von jeweils identischen Schallwandlern entspricht dabei einer separaten Verzögerungsleitung, sodass diese in horizontaler und senkrechter Richtung doppelt ausgeführt sind und unterschiedliche Frequenzen bzw. Wellen-

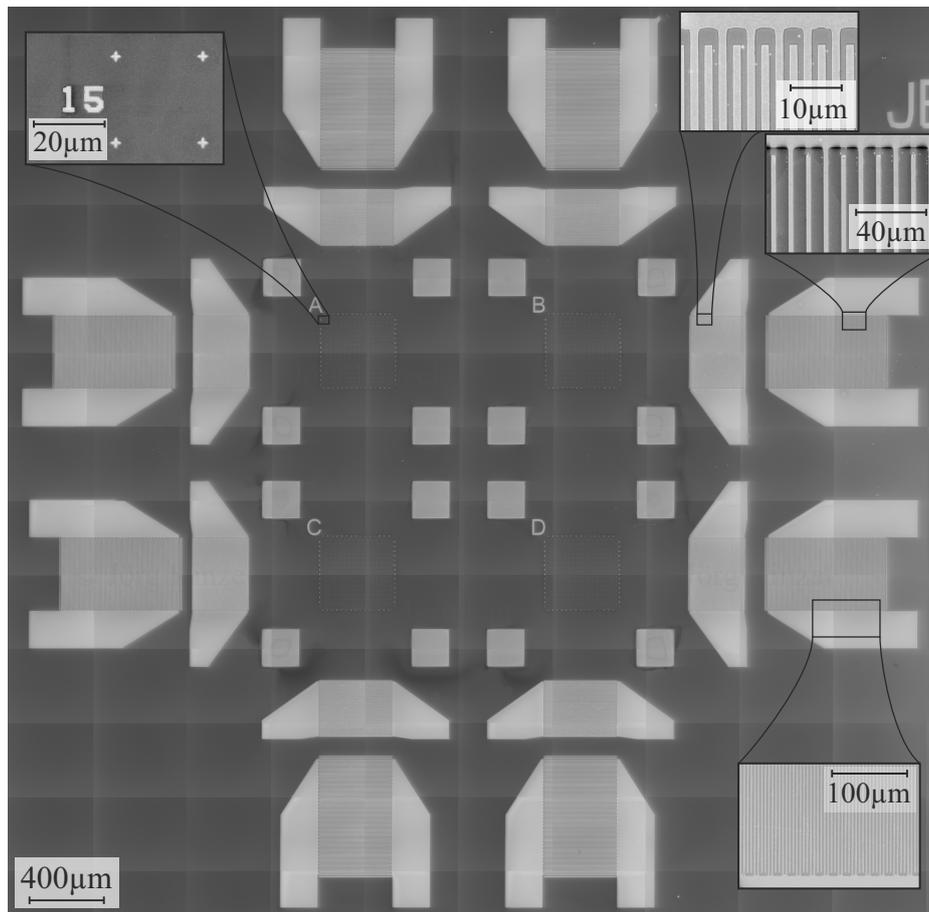


Abbildung 5.8: Aus REM-Aufnahmen zusammengesetzte Übersicht der eingesetzten Probengeometrie auf LiNbO_{3-x} . Die Ausbreitung entlang der horizontalen Verzögerungsstrecken entspricht für Probentyp-I der X-Richtung, für Typ-II und III der Z-Richtung. Bei Typ-I ist zur Anregung von AOFW unterschiedlicher Frequenz jeweils ein separater Schallwandler erforderlich, wie in den Vergrößerungen oben rechts zu sehen. Bei Probentyp-II & III kann diese durch die Verwendung von Fingerpaar-Elektroden vermieden werden, wie in der unteren Detailaufnahme abgebildet. Im Areal der Kreuzungspunkte der Verzögerungsstrecken sind zusätzlich Koordinaten-Markierungen angebracht, welche eine eindeutige Adressierung der Nanodrähte auf der Probe ermöglichen, wie in der Vergrößerung oben links dargestellt. Durch die eindeutige Ausrichtung zu den Hauptachsen werden diese gleichzeitig dazu benutzt, die Verkippung der Nanodrähte auf dem Substrat abzuschätzen.

längen zur Verfügung stellen. Die horizontale Ausbreitung der akustischen Oberflächenwelle entspricht bei Probenotyp-I auf 128° YX-rotiertem LiNbO_{3-x} der Ausbreitung in X-Richtung, die senkrechte Ausbreitung der 128° YZ-Richtung, wie in Abschnitt 3.2 beschrieben. Für Probenotyp-II & III kommt eine identische Probengeometrie zum Einsatz, wobei es durch die Verwendung von Schallwandler mit Fingerpaar Elektroden möglich ist, die entsprechenden Oberwellen anzuregen, sodass das zweite abgebildete, innere Wandlerpaar nicht mehr zum Einsatz kommt. Im YZ- LiNbO_{3-x} entspricht die horizontale Ausbreitung der Z-Richtung des Kristalls sowie senkrecht dazu, der X-Richtung. Die physikalischen Parameter der unterschiedlichen Kristallschnitte und Richtungen sind in Tabelle 3.2 zusammengefasst.

Für die Analyse der dynamischen Prozesse und dem damit einhergehenden Übertragungsverhaltens der eingesetzten Verzögerungsstrecken, wird deren Signalübertragung, analog dem vorherigen Abschnitt 5.3, zeitlich aufgelöst und die Amplitude des ersten HF-Pulses bestimmt. Um nichtlineare Einflüsse in der Übertragung ausschließen zu können, wird die angelegte HF-Leistung zusätzlich variiert. Die Auftragung der nominell angelegten HF-Leistung P_{HF} gegen die ermittelte Leistung des Eingangs- als auch des Ausgangssignals P_{eff} ist in Abbildung 5.9 zu sehen. Die Bestimmung der Datenpunkte aus der gemessenen Kurve am Oszilloskop, erfolgt dabei durch das Anpassen einer Sinusfunktion an die Schwingungen des Wellenpakets.

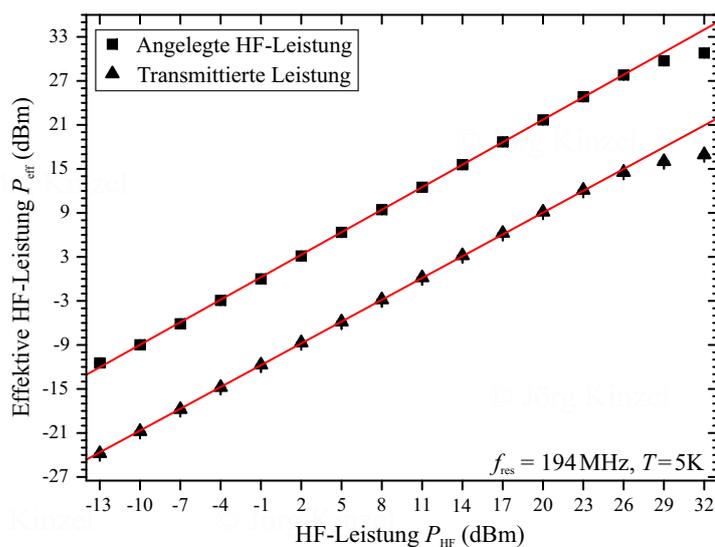


Abbildung 5.9: Analyse der Leistungsankopplung und -transmission gegenüber der von Generator und Verstärker erzeugten Leistung. Angetragen sind die aus den dynamischen Messungen ermittelte Signalamplituden in der Grundfrequenz der Schallwandler von Probenotyp-II & III für Ausbreitung in Z-Richtung.

Gut zu erkennen ist der mit der nominellen Anregungsleistung lineare Anstieg der am Schallwandler anliegenden Leistung und gleichzeitig der gleichmäßige Anstieg der durch die Verzögerungsstrecke transmittierten Leistung. Ab einer Leistung von $P_{\text{HF}} = 26$ dBm kommt es jedoch zu einem Absinken der generierten HF-Leistung, da hier die maximale Ausgangsleistung des Verstärkers erreicht wird. Dies kann durch

das Auftreten von ohmscher Verlusten aus der Fehlanpassung der Impedanz erklärt werden, wie sie zum Beispiel in den Zuleitungen auf der Probe zu erwarten sind, sodass ein Teil der Leistung in Wärme umgewandelt wird. Deshalb wird zur Bestimmung der Übertragungscharakteristik durch lineare Regression der Messwerte nur der Bereich bis einschließlich $P_{\text{HF}} = 26 \text{ dBm}$ bei allen Verzögerungsstrecken verwendet. Zusammengefasst ergeben sich aus dem Verlauf in Abbildung 5.9 die in Tabelle 5.1 angegebenen Werte.

	Steigung	Schnittpunkt $P_{\text{HF}} = 0 \text{ dBm}$
Angelegte Leistung [dBm]	$1,02 \pm 0,01$	$1,25 \pm 0,06$
Transmittierte Leistung [dBm]	$0,99 \pm 0,01$	$-10,77 \pm 0,05$

Tabelle 5.1: Parametrisierung der Übertragungscharakteristik von Proben-Typ-II anhand der linearen Regression der Signalpegel aus zeitaufgelösten Messungen

Wie man anhand der Steigungen der linearen Regression erkennen kann, ergibt sich aus deren parallelem Verlauf ein vergleichbares konstantes Verhalten der Umwandlung von elektrischer Energie in mechanische an Schallwandler 1 und vice versa die Rückwandlung an Schallwandler 2. Die vom Hochfrequenzgenerator und Verstärker erzeugte Amplitude P_{HF} ist für die Frequenz von $f_{\text{res}} = 194 \text{ MHz}$ nominell um $P = 1,25 \text{ dB}$ zu höherer Leistung verschoben, so dass zusammen mit der Sättigung der Ausgangsleistung von einem nicht exakt linearen Verhalten der Erzeugung und Verstärkung ausgegangen werden muss. Vergleicht man dies mit der übertragenen und an Schallwandler 2 ausgekoppelten Leistung, so ergibt sich ein Transmissionsverlust von

$$\Delta = \frac{P_{\text{trans}}}{P_{\text{ein}}} = (12,02 \pm 0,11) \text{ dB} , \quad (5.3)$$

was der Einfügedämpfung nach Gleichung (3.31) entspricht. Die Übertragung lässt sich auch schreiben als $P_{\text{trans}} = CC'T \cdot P_{\text{ein}}$ mit C , C' Wandlungsverlust an Schallwandler 1 bzw. 2 und T Dämpfung während der Ausbreitung auf dem Substrat. Zählt man diese zu den Wandlungsverlusten hinzu und geht von einer symmetrischen Transformation aus, erhält man $\Delta = C^2$ [dB]. Zusammen mit Gleichung (3.31) ergibt sich ein linearer Wandlungsverlust von

$$C = 10^{\left(\frac{\Delta}{20}\right)} . \quad (5.4)$$

Für den in 5.3 bestimmten Transmissionverlust erhält man einen Verlust für die Umwandlung von elektrischer Leistung in die entsprechende Amplitude der akustischen Oberflächenwelle von $P_{\text{AOFW}} = P_{\text{ein}} / (3,99 \pm 0,01)$ [mW], was einem Verlust von etwa 6 dB pro Schallwandler gleichkommt.

Dieser ergibt sich zum Teil aus der Aussendung der AOFW zu beiden Seiten des Wandlers, deren Auswirkung in Abbildung 5.7 aufgelöst ist, der Dämpfung der Oberflächenwelle auf dem Substrat durch Massenbelag, Streuung an Kristalldefekten oder der Transformation in andere Wellenformen wie Volumenwellen am Schallwandler [BL76]. Auch die akustoelektrische Rückwandlung am zweiten Schallwandler bildet

auf Grund der Abhängigkeit von der Impedanzanpassung an $Z = 50\Omega$ ein weiteres Glied in der Verlustkette. Bei einer Fehlanpassung kommt es nicht zur direkten Rückreflexion eines Teils der elektrischen Leistung zum Generator, sondern die Leistung einer einlaufende Oberflächenwelle wird nicht vollständig zurückgewandelt, was zu einer Mehrfachreflexion des Wellenzugs in der Verzögerungsstrecke führt [Dat86]. Für die in den Tieftemperaturexperimenten bei $T = 5\text{ K}$ eingesetzten Verzögerungsstrecken der unterschiedlichen Proben typen finden sich nachfolgend die wichtigsten Parameter zusammengefasst.

Die durch die identische Analyse von Proben typ-II & III ermittelten Werte für die Ausbreitung der AOFW in Z-Richtung, finden sich im oberen Teil von Tabelle 5.2 die Charakteristika für die hergestellten Verzögerungsstrecken im Bereich der Resonanzfrequenz von $f_{\text{res}} \sim 200\text{ MHz}$ zusammengefasst. Für alle Kristallschnitte, Wandlertypen und -perioden ergeben sich die aus der Dispersionsrelation 3.20 erwarteten Resonanzfrequenzen der Schallwandler. Kleine Abweichungen lassen sich durch die Temperaturabhängigkeit der piezoelektrischen Parameter von LiNbO_3 erklären [WG85]. Hieraus ergibt sich ein negativer Temperaturkoeffizient für die Ausbreitungsgeschwindigkeit, welcher bei einer Proben temperatur von $T = 5\text{ K}$ die Resonanzfrequenz erhöht [PW79].

Der Vergleich der Impedanzen zeigt, dass diese für die Vorzugsrichtungen parallel zu X auf dem 128° YX-Schnitt sowie parallel zu Z auf dem YZ-Schnitt nahe dem Idealwert von $Z = 50\Omega$ liegen. In den senkrechten Orientierungen kommt es vor allem bei Proben typ-I senkrecht zur X-Richtung zu einer deutlich Abweichung, welche sich als Folge in einem höheren Transmissionsverlust von $\Delta = (22,27 \pm 0,06)\text{ dB}$ beim Betrieb der entsprechenden Verzögerungsleitung niederschlägt.

Da sich die Geometrie der Wandler nach dem Einsatzzweck richtet und somit nur wenig Spielraum zulässt, wäre eine Lösung, die Verwendung einer LC-Glied Anpassungsschaltung, zur Ein- und Auskopplung des Signals, dessen Auswirkungen im Smith-Diagramm in Abbildung 3.8 eingezeichnet sind [Ste76]. Durch Einsatz eines Varaktors als zusätzliche steuerbare Kapazität zur Feinabstimmung der Anpassung, können sowohl Fertigungstoleranzen im Herstellungsprozess, als auch Einflüsse der Substrattemperatur für Temperatur abhängige PL-Experimente kompensiert werden. Für die Leistungsankopplung und -transmission ergibt sich für alle vier untersuchten Verzögerungsstrecken, im Rahmen der Messgenauigkeit, die gleiche Steigung der Signalpegel. Gleiches Verhalten der Signalpegel zeigt sich auch für die zweite hochfrequente Verzögerungsstrecke von Proben typ-I bzw. bei Proben typ-II & III bei Anregung der Schallwandler mit Fingerpaar-Elektroden mit der 3. Harmonischen Oberschwingung.

Die Differenz des zugehörigen Offsets der Signalpegel als Transmissionsverlust zeigt gegenüber den niederfrequenten Wandlern ein abweichendes Verhalten. Hier kommt es bei allen untersuchten Verzögerungsstrecken zu einem höheren Verlust. Auffallend ist dabei, dass sich für Proben typ-I das Verhältnis zwischen paralleler und senkrechter Ausbreitung umkehrt. Da es sich bei den hierbei untersuchten Verzögerungsstrecken um jeweils separate Schallwandlerpaare handelt, ist es möglich, dass diese eine gleichmäßigere Impedanzanpassung als das niederfrequente Paar besitzen und bereits kleine Abweichungen in der Geometrie für das Verhalten ausschlaggebend sind.

Ausbreitungs- richtung	Probentyp-I		Probentyp-II & III	
	X	⊥ X	Z	⊥ Z
Resonanz- frequenz [MHz]	1: 219,3 2: 218,9	1: 208,6 2: 206,4	1: 194,4 2: 195,2	1: 210,4 2: 208,4
Impedanz [Ω]	47,87+4,63 i 57,47+8,83 i	16,26+23,16 i 17,35+22,67 i	46,00+9,72 i 65,06+11,20 i	31,04+1,55 i 30,63+1,49 i
Anregungs- frequenz [MHz]	221,3	208,1	194,0	209,8
Steigung für angelegte Leistung [dBm]	1,02 ± 0,01	1,02 ± 0,01	1,02 ± 0,01	1,02 ± 0,01
Steigung für transmitierte Leistung [dBm]	0,99 ± 0,01	0,99 ± 0,01	0,99 ± 0,01	0,99 ± 0,01
Transmission- verlust [dB]	11,46 ± 0,21	22,27 ± 0,06	12,02 ± 0,11	11,74 ± 0,14
Umwandlungs- effizienz $P_{\text{ein}}/P_{\text{AOFW}}$	3,74 ± 0,09	12,99 ± 0,09	3,99 ± 0,05	3,86 ± 0,06
Resonanz- frequenz [MHz]	1: 734,2 2: 735,0	1: 680,4 2: 679,2	1: 591,4 2: 589,8	1: 627,6 2: 626,8
Impedanz [Ω]	52,23+16,16 i 75,29+6,37 i	72,89+9,47 i 56,20+10,45 i	40,62+11,80 i 43,05+5,20 i	58,10–38,38 i 88,03+12,73 i
Anregungs- frequenz [MHz]	725,0	679,0	585,4	626,6
Steigung für angelegte Leistung [dBm]	1,04 ± 0,01	1,04 ± 0,01	1,04 ± 0,01	1,05 ± 0,01
Steigung für transmitierte Leistung [dBm]	1,02 ± 0,01	1,03 ± 0,01	1,00 ± 0,01	1,05 ± 0,01
Transmission- verlust [dB]	21,26 ± 0,30	18,05 ± 0,21	19,47 ± 0,25	21,75 ± 0,23
Umwandlungs- effizienz $P_{\text{ein}}/P_{\text{AOFW}}$	11,56 ± 0,40	7,99 ± 0,19	9,41 ± 0,27	12,23 ± 0,32

Tabelle 5.2: Zusammenfassung der Übertragungsparameter der eingesetzten Verzögerungsstrecken bei $T = 5 \text{ K}$, wie zuvor für Probentyp-II parallel der Z-Richtung bestimmt. Im oberen Bereich befinden sich die Werte für die Anregungsfrequenzen um $f_{\text{res}} \sim 210 \text{ MHz}$, im unteren für die höhere Frequenzen von $f_{\text{res}} = 585$ bis 725 MHz .

Für Proben typ-II & III weicht die Impedanz im höheren Frequenzbereich vom niederfrequenten ab, was in diesem Fall zu einer Vergrößerung der Transmissionsverluste führt. Das unterschiedliche Verhalten der Transmission und damit der Umwandlungseffizienz von elektrischer Leistung in die Oberflächenwelle, spiegelt die Abhängigkeit von der Impedanzanpassung bei der Einkopplung als auch bei der Auskopplung des Signals wider. Vor allem im hochfrequenten Fall von Typ II & III zeigt sich, dass der Übertragungsverlust nicht direkt von der Richtung des Kristallschnitts bestimmt ist. Nach der Charakterisierung und Parametrisierung der verschiedenen Verzögerungsstrecken auf den unterschiedlichen Kristallschnitten des verwendeten Lithiumniobat-Wirtssubstrats sowie der Beschreibung des MBE gestützten Wachstums der GaAs-Nanodrähte in Abschnitt 5.1, erfolgt als letzter Schritt die Zusammenführung der Nanodrähte mit dem LiNbO_{3-x} -Substrat. Die dazu verwendeten Techniken finden sich im nächsten Abschnitt erläutert.

5.4 Erstellung des Hybridsystems

Das senkrecht stattfindende VLS-Wachstum der Nanodrähte auf dem Silizium-Wirtssubstrat ist es zur Analyse der Photolumineszenz entlang des Drahts nötig, diese horizontal auf das piezoelektrische LiNbO_{3-x} -Substrat zu übertragen. Wie in Abbildung 5.10 aus einem Betrachtungswinkel von 45° zu sehen, stehen die Nanodrähte nach dem Wachstum dicht auf dem Substrat. Da die Nukleationskeime der hier gezeigten Kern/Mantel-Nanodrähte durch zufällig entstehende Poren in der SiO_2 -Deck-

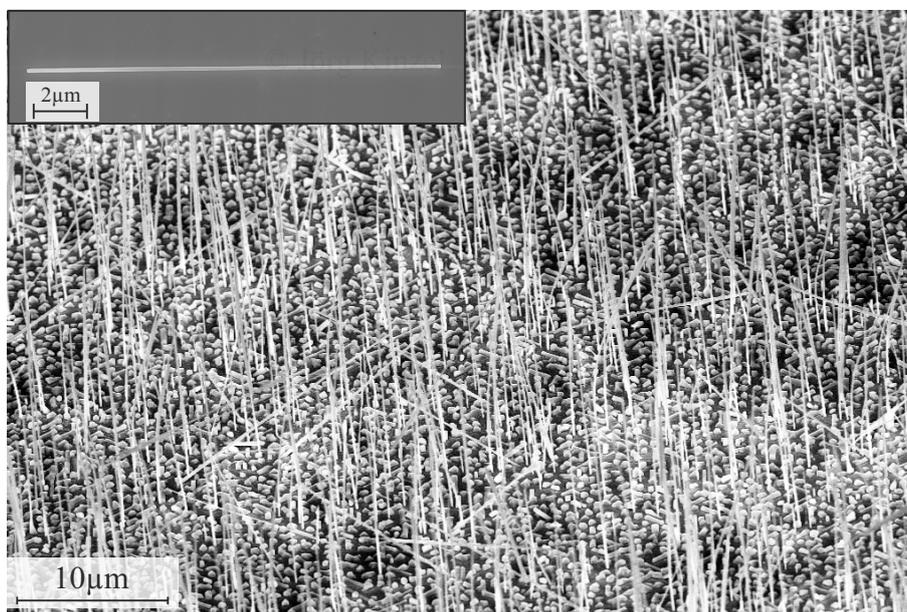


Abbildung 5.10: Elektronenmikroskopische Aufnahme der senkrecht gewachsenen Kern/Mantel Nanodrähte von Proben typ-II auf dem SiO_2/Si -Substrat unter einem Betrachtungswinkel von 45° . Im Bereich oben links findet sich eine Detailaufnahme eines Nanodrahts des Proben typs-II auf dem LiNbO_{3-x} -Wirtssubstrat horizontal liegend.

schicht definiert sind, kommt es zu einer ebenso zufälligen Anordnung der Drähte. Im Zwischenraum kommt es zur Entstehung von kristallinen GaAs-Volumenkristallen, welche den Substratboden bedecken.

Ziel der Übertragung der Nanodrähte auf das piezoelektrische Substrat ist es zum einen, die Drähte zerstörungsfrei zu transferieren ohne diese dabei mechanisch stark zu belasten. Zum anderen müssen diese individuell adressierbar sein, um einzelne Nanodrähte im Anschluss akusto-elektrisch zu manipulieren und in der Photolumineszenz zu untersuchen. Gleichzeitig kommt es auf eine parallele Orientierung der Drähte zu einer der Ausbreitungsrichtungen der gekreuzten Verzögerungsleitungen an, wie in der Detaildarstellung eines einzelnen Drahts im oberen Teil der Abbildung 5.10 zu sehen. Die in dieser Arbeit eingesetzten Verfahren zur Übertragung der Drähte, mittels der Erstellung einer Suspension oder direktem mechanischem Ablösen durch die Flip-Chip-Technik (deutsch, umgedrehter Chip), sind im folgenden erläutert.

5.4.1 Übertragung der Nanodrähte aus Suspension

Eine Methode zur Übertragung der Nanodrähte auf das piezoelektrische Wirtssubstrat stellt der Transfer mittels einer Suspension dar. Hierzu wird ein etwa 5 x 5 mm großes Stück des Si-Substrats in 250 μ l Isopropanol in einer kleinen Glasflasche gegeben und die Nanodrähte durch Abschaben des Substrats mit einer Glaspipette abgetrennt. Aus der so erzeugte Suspension werden mittels einer 10 μ l *Eppendorf* Pipette 0,5 μ l aufgenommen. Der an der Öffnung entstehende Tropfen wird durch direkten Kontakt an der gewünschten Stelle des Substrats von der Pipettenspitze gelöst und verteilt sich im Areal der sich kreuzenden Verzögerungsstrecken aus der Substratoberfläche. Um eine gleichmäßige Verteilung der Nanodrähte auf alle vier Kreuzungspunkte zu gewährleisten wird dieser Prozess viermal durchgeführt, wobei zwischen jedem Übertrag das vollständige Verdunsten des Lösungsmittels abgewartet wird. Als Folge kommt es zu einer zufälligen Anordnung der Nanodrähte im Kreuzungsbereich der Verzögerungsstrecken. Ein freies tropfenweises Pipettieren der Nanodraht Suspension tritt bei dieser geringen Flüssigkeitsmenge auf Grund der Oberflächenspannung nicht ein. Im Anschluss an diesen Präparationsschritt erfolgt die Lokalisierung einzelner Nanodrähte mittels einem Rasterelektronenmikroskop. Bei der Auswahl der Nanodrähte gilt es darauf zu achten, dass diese eine parallele Ausrichtung zu einer der Ausbreitungsrichtungen der akustischen Oberflächenwelle aufweisen. Ebenso, dass es sich um einen vereinzelt Nanodraht handelt und keine kristallinen GaAs-Stücke oder weitere Drähte im Umkreis von mehreren Mikrometern befinden. Andernfalls kommt es durch deren Photolumineszenz zu einer Verfälschung des Messsignals.

Beispielhaft ist die Ausrichtung der in Kapitel 7 untersuchten unpassivierten GaAs-Nanodrähte A und B des Probenotyps-I in Abbildung 5.11 dargestellt.

Sollten sich bei der Durchmusterung des LiNbO_{3-x} -Substrats keine ausreichende Menge an vereinzelt Drähten finden oder deren Winkel zu einer der Hauptachsen deutlich abweichen, so wird der zuvor beschriebene Auftrag aus der Suspension mittels Pipette wiederholt bis sich ausreichend Nanodrähte finden lassen. Somit bietet dieser Prozess eine hervorragende Kontrolle über die Menge als auch den Ort der Applikation der Nanodrähte auf dem piezoelektrischen Wirtssubstrat.

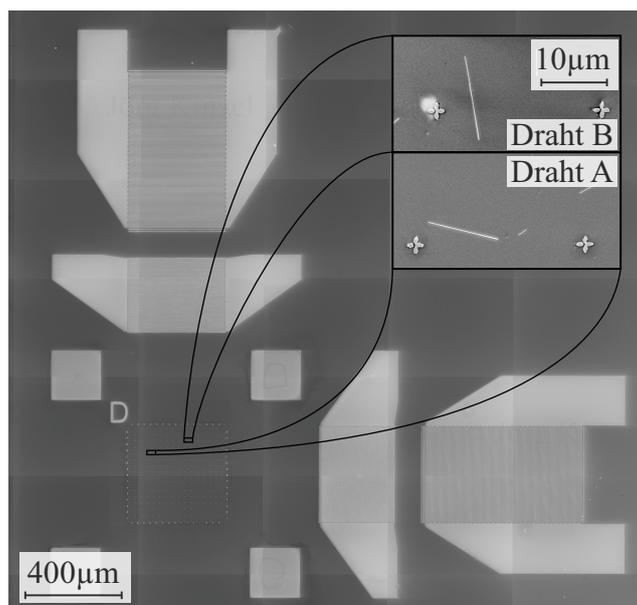


Abbildung 5.11: Elektronenmikroskopische Aufnahme eines der Kreuzungspunkte der Ausbreitungspfade von Proben typ-I. In der Ausschnittsvergrößerung ist die Lage von Nanodraht A parallel zu waagrechten Ausbreitung der AOFW in X-Richtung sowie von Nanodraht B senkrecht hierzu zu erkennen.

Eine weitere Möglichkeit zur Übertragung der Nanodrähte ohne die Verwendung eines Lösungsmittels stellt der Flip-Chip-Prozess dar, welcher im folgenden beschrieben ist.

5.4.2 Übertragung der Nanodrähte mittels des Flip-Chip Prozesses

Bei der Applizierung der Nanodrähte durch die Flip-Chip-Methode kommt es zu einem direkten Übertrag der Nanodrähte vom Wachstumssubstrat auf das piezoelektrische LiNbO_{3-x} -Wirtssubstrat. Hierfür wird das Silizium-Substrat mit den senkrecht stehenden Nanodrähten kopfüber auf das vorstrukturierte LiNbO_{3-x} -Waferstück gelegt. Dabei ist darauf zu achten, dass der Bereich in dem das Nanodrahtwachstum stattgefunden hat möglichst exakt auf den Kreuzungsbereichen der Schallpfade der Verzögerungsstrecken zum liegen kommt. Durch Hin- und Herschieben des Silizium-Substrats um 1 bis 2 mm unter leichtem Druck, lässt sich dabei der Übertrag durch das Abbrechen der Drähte initiieren, wobei gleichzeitig die Richtung der Bewegung die Vorzugsrichtung für die Orientierung der Drähte vorgibt. Im Anschluss wird das Wachstumssubstrat durch Anheben entfernt.

Der Vorteil dieses Verfahrens ist die schnelle und effiziente Übertragung, so dass kaum Nanodrähte verloren gehen. Hierin steckt zugleich der Nachteil. Da die Nanodrähte auf dem Wachstumssubstrat in einem definierten Areal nukleieren, kommt es zu einem lokalisierten Übertrag der Drähte auf das LiNbO_{3-x} -Wirtssubstrat. Da die Position der maximalen Wachstumsdichte durch das Wenden des Silizium-Substrats zur Applikation nur schwer abzuschätzen ist, ist auch die spätere Position der Drähte

auf dem LiNbO_{3-x} -Substrat nicht exakt kontrollierbar. Daneben spielt der Druck auf das Wachstumssubstrat während dem verschieben eine entscheidende Rolle. Erfolgt die Bewegung ohne Anpressdruck, so kommt es zu keinem nennenswerten Übertrag von Nanodrähten im Bereich der Ausbreitungspfade der AOFW. Bei zu starkem Druck entsteht ein dichter Belag aus Nanodrähten, wie in Abbildung 5.12 a) beispielhaft dargestellt.

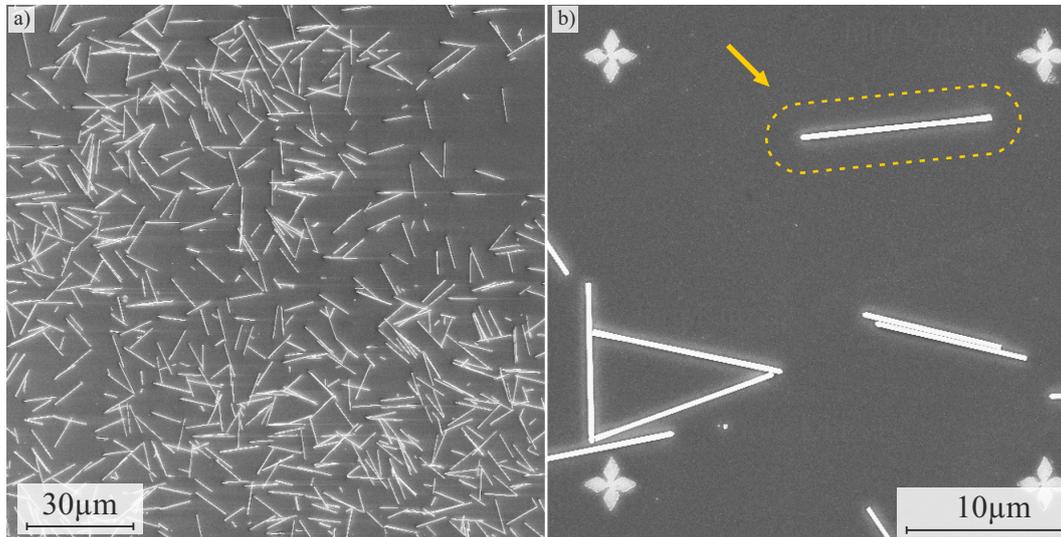


Abbildung 5.12: REM-Aufnahme der typischen Anordnung von Nanodrähten bei der Übertragung mittels Flip-Chip-Technik. a) Anhäufung von Nanodrähten durch zu starken Druck während dem Prozess mit abnehmender Dichte zur oberen rechten Bildecke. b) Vereinzelter Nanodraht mit genügend Abstand zu weiteren Partikeln bei gleichzeitiger Ausrichtung parallel zur Ausbreitungsrichtung der AOFW

Wie zu erkennen, finden sich darin Nanodrähte mit einer Ausrichtung parallel oder senkrecht zu den möglichen Ausbreitungsrichtungen der Oberflächenwelle. Durch die gedrängte Anordnung tragen in diesem Fall mehrere Drähte zum Photolumineszenz-Signal bei. Lediglich im Randbereich eines solchen Teppichs ist der Abstand ausreichend, wie in Abbildung 5.12 b) gezeigt. Des Weiteren besteht die Gefahr, dass die Elektrodenfinger der vorgefertigten Schallwandler durch die mechanische Einwirkung beschädigt werden und keine Oberflächenwelle mehr entsteht. Die gleiche Gefahr der mechanischen Zerstörung der Schallwandler verhindert die Ausdünnung des Teppichs durch Ablösen der Drähte in ein Lösungsmittel. Zur Überwindung der Anhaftung der Nanodrähte durch Van-der-Waals-Kräfte ist hierzu der Einsatz eines Ultraschallbades notwendig, welches bei höherer Schallleistung gleichzeitig die Fingerstruktur der Schallwandler vom Substrat ablöst.

Soll mit dem Flip-Chip-Verfahren eine weitere Probe für Anwendungen mit AOFW präpariert werden, so kommt es bei erneutem Einsatz des gleichen Wachstumssubstrats zu einer deutlichen Abnahme der übertragenen Drähte. Somit gehen durch den direkten Übertrag zwar wenige Nanodrähte verloren, allerdings sind diese lokal konzentriert und deren Anzahl nimmt mit jedem Übertrag sukzessive ab.

Können bei der Durchmusterung des LiNbO_{3-x} -Substrats mehrere Nanodrähte mit ei-

ner zu den Ausbreitungsrichtungen der AOFW parallelen Ausrichtung lokalisiert werden, so erfolgt im Anschluss die Montage des piezoelektrischen LiNbO_{3-x} -Substrats auf den Probenträger, wie in Abbildung 5.13 dargestellt.

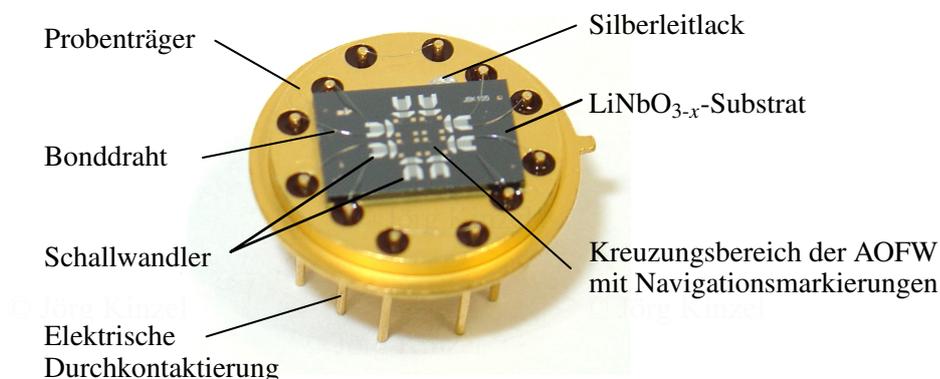


Abbildung 5.13: Probenträger mit aufgeklebtem piezoelektrischen LiNbO_{3-x} -Substrat. Je nach Einsatzzweck können die Schallwandler der unterschiedlichen Verzögerungsstrecken durch Bonddrähte aus Aluminium mit den Durchkontaktierungen verbunden werden, welche den elektrischen Kontakt zu den Hochfrequenzleitungen im Messaufbau herstellen.

Der Probenhalter bildet das Verbindungsglied zwischen den lithografisch hergestellten Strukturen im Mikro- bis Nanometerbereich und der Handhabung der Probe im Messaufbau mit dessen elektrischer und thermischer Kontaktierung. Um eine feste Fixierung des Substrats zu erreichen wird dieses flächig mit Silberleitlack auf dem Probenkleber verklebt. Hierdurch kann zum einen entstehende statische Aufladung vom Substrat abfließen, zum anderen ergibt sich eine gute thermische Ankopplung des Substrats an das flüssig-Helium Kühlsystem.

Die elektrische Kontaktierung der Schallwandler an den Hochfrequenzgenerator erfolgt durch Aluminium-Bonddrähte, welche über die elektrische Durchkontaktierung mit der HF-Verkabelung verbunden sind. Da auf dem piezoelektrischen Substrat mehr Verzögerungsstrecken vorhanden sind, als Anschlüsse auf dem Probenträger zur Verfügung stehen, werden je nach Ort und Orientierung der Nanodrähte im Kreuzungsbereich die zugehörigen Schallwandler kontaktiert.

An die Montage auf den Probenhalter gliedert sich die Vorabkontrolle der Verzögerungsstrecken mittels des Netzwerkanalysators. Zwar erfolgt bei der Identifizierung einzelner Nanodrähte im Rasterelektronenmikroskop eine Sichtkontrolle der Schallwandler, die hochfrequenten Eigenschaften lassen sich jedoch erst durch die Analyse der AOFW-Ausbreitungscharakteristik beurteilen.

Die nach der erfolgreichen Präparation der Probe zur Anregung und Detektion der Photolumineszenz im Tieftemperatur-Messaufbau verwendeten Komponenten sowie deren Synchronisierung mit der Ausbreitung der akustischen Oberflächewelle, sind im nachfolgenden Kapitel beschrieben.

6 Experimentelle Techniken

Der zur optischen Charakterisierung der einzelnen GaAs-Nanodrähte verwendete Messaufbau und dessen Komponenten werden in diesem Kapitel vorgestellt. In der vorhandenen Konfiguration ist der optische Messaufbau für Mikro-Photolumineszenz-Messungen (μ -PL) in Rückstrahlanordnung konzipiert, so dass sowohl das zur Anregung genutzte einfallende Licht, als auch die von den Nanodrähten emittierte Photolumineszenz durch das selbe Mikroskopobjektiv geleitet wird. Der modulare Aufbau der Komponenten stellt mittels verschiedener Anregungs- und Detektionsstrategien eine spektrale, räumliche, als auch zeitliche Auflösung der Photolumineszenz zur Verfügung. Diese kann weiter beginnend bei Raumtemperatur bis hinab zu tiefen Temperaturen analysiert werden. Die eingesetzten Komponenten sowie der zugehörige Strahlengang sind im folgenden erläutert.

6.1 Tieftemperatur-Photolumineszenz-Setup

Grundlage zur Durchführung der optischen Experimente an Nanostrukturen ist eine vibrations- und driftarme Montage der Komponenten. Dies wird durch den Einsatz eines luftgefederten Tisches *RS3000* von *Newport* erreicht, auf dem alle optischen Komponenten montiert sind. Weiter sind alle Teile der Helium Zu- und Abführung schwingungsgedämpft ausgeführt um Vibrationsbrücken zu vermeiden und zusätzlich am Tisch fixiert, um Driftbewegungen der Heliumversorgung des Kryostaten zu minimieren.

Die optischen Komponenten des Aufbaus lassen sich in drei funktionale Bereiche unterteilen. Dazu gehört zum einen die selektive Anregung der Photolumineszenz, wie in Abbildung 6.1 a) zu sehen, zum anderen die Positionierung sowie Fokussierung des Strahlengangs auf der Probe b) sowie im letzten Schritt die Aufnahme des Messsignals in Energie-, Zeit- und Ortsauflösung c) mittels verschiedener Detektoren.

Zur Anregung der Photolumineszenz stehen im Experiment drei Quellen zur Verfügung. Die einfachste Art stellt eine flächige Ausleuchtung der Probe mittels einer Leuchtdiode im roten Spektralbereich dar. Hierbei heben sich die Nanodrähte bei einer realen Abbildung der Probe auf einem Detektor durch ihre Photolumineszenz vom LiNbO_{3-x} -Substrat deutlich ab. Diese Eigenschaft ist in Abbildung 8.6 gezeigt und ermöglicht eine einfache Möglichkeit zur Positionierung des Nanodrahts im Sichtfeld der Kamera.

Für eine punktuelle und monochromatische Anregung von Elektron-Loch-Paaren in einem definierten Bereich entlang der Achse des Nanodrahts steht ein Helium-Neon-Laser mit Dauerstrich-Anregung und einer Wellenlänge von $\lambda_{\text{Laser}} = 632,8 \text{ nm}$ sowie ein gepulster Diodenlaser *LDH-P-660* von *Picoquant* mit einer Wellenlänge von $\lambda_{\text{Laser}} = 661 \text{ nm}$ zur Verfügung, wie in Abbildung 6.1 a) symbolisiert. Dieser erlaubt

mit seiner Pulsdauer $\Delta t_{\text{Laser}} < 90\text{ps}$ eine punktuelle Anregung und ermöglicht die Analyse der Dynamik der Ladungsträger durch Drift und Diffusion im Nanodraht, wie in Kapitel 9 untersucht [Pic13]. Trotz der Möglichkeit die Emissionsleistung des

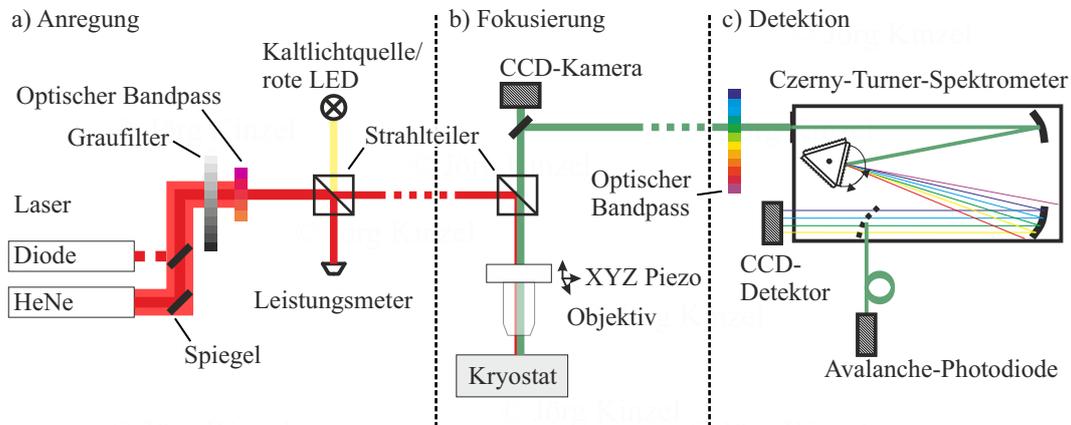


Abbildung 6.1: Komponenten und Strahlengang des verwendeten Mikro-Photolumineszenz-Aufbaus. a) Anregung der Photolumineszenz durch HeNe- oder Diodenlaser. b) Positionierung und Fokussierung des Strahlengangs zur Probe. c) Detektion des PL-Signals in Energie-, Zeit- und Ortsauflösung.

Diodenlasers über den Ausgang am Lasertreiber über den Diodenstrom zu steuern, wird die auf die Probe eingestrahlte Leistung mittels eines Neutralfilterrads für beide Laser justiert. Hierdurch lässt sich quantitativ die Anzahl der auftreffenden Photonen und damit der erzeugten Elektron-Loch Paare kontrollieren. Diese Steuerung bietet den Vorteil, dass die Pulsdauer des Lasers nicht durch die elektronische Variation der Ausgangsleistung beeinflusst wird [Pic13].

Entlang der Anregungslinie des Messaufbaus schließt sich an den Neutralfilter ein optischer Bandpass, welcher aus einem dichroitischen Farbfilter besteht und eine mittleren Transmissionswellenlänge von 660 nm besitzt. Dieser bewirkt eine Unterdrückung des breitbandigen und nicht kohärenten Untergrundleuchtens des Diodenlasers sowie den höherenergetischen Emissionslinien der Gasentladung des Helium-Neon Lasers. Diese Emissionslinien würde durch den energetisch höheren Spektralbereich zu einer Anregung von zusätzlichen Elektron-Loch Paaren in den $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Bereichen führen, welche das Messsignal durch die zusätzliche Rekombination verfälschen und somit den Einschlusseffekt der $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Potenzialbarriere auflösen würde.

Bevor das zur Anregung der Photolumineszenz genutzte Spektrum in das Mikroskop geleitet wird, trifft das Licht auf einen 50:50 Strahlteiler. Die eine Hälfte der Photonen passieren diesen ungehindert, die andere wird abgelenkt und trifft auf den Leistungsmesser *Thorlabs PM100A* in Kombination mit dem Sensorkopf *S120C*. Durch diese Geometrie kann die eingestrahlte Laserleistung simultan zum Messbetrieb überwacht werden. Andererseits eignet sich die gegenüberliegenden Seite des Strahlteilers zur Einkopplung der Leuchtdiode als Kaltlichtquelle zur flächigen Beleuchtung der Probe.

Nach der Ausrichtung des Strahls auf die optische Achse des Mikroskops mittels einem Spiegelpaar, trifft dieser im inneren auf einen weiteren Strahlteiler, wie in Ab-

bildung 6.1 b) skizziert. An diesem kommt es zunächst zu einer Ablenkung des von der Eintrittsöffnung stammenden Laserlichts in Richtung der Probe im Kryostaten zur Anregung der Photolumineszenz.

Das Herzstück des Tieftemperatur-Photolumineszenz-Aufbaus bildet der Helium-Durchfluss-Kryostat *Janis Research ST-500*. Dieser ist zur Positionierung der Probe unter dem Objektiv des Mikroskop auf einem Mikrometertisch befestigt. Durch Regelung der Durchflussmenge von flüssigem Helium durch den Wärmetauscher, auf dessen Kühlfinger die in Abbildung 5.13 gezeigte Probe aufgesteckt wird, lässt sich eine Proben temperatur von $T < 4,2\text{ K}$ bis hinab zum Lambdapunkt von Helium erreichen. Um eine Temperatur oberhalb des Siedepunkts zu erreichen, ist am Kühlfinger zusätzlich ein Heizer mit einer Leistung von $P_R = 50\text{ W}$ angebracht. Die Kontrolle der gewünschten Temperatur auf den im Rahmen dieser Arbeit eingesetzten Wert von konstant $T = 5\text{ K}$ erfolgt durch eine PID-Regelung der Heizleistung.

Die zur Einkopplung der HF-Leistung nötigen Koaxialleitungen befinden sich ebenso in thermischen Kontakt mit dem Wärmetauscher bzw. Kühlfinger, wodurch kein unerwünschter Wärmeeintrag über die Zuleitungen aus der Umgebung stattfindet.

Für die Ein- und Auskopplung des optischen Signals durch das Fenster des Kryostaten und an die einzelnen Nanodrähte dient ein *Olympus* Mikroskopobjektiv *LM PLAN IR*, mit 50x Vergrößerung sowie einer numerischen Apertur von 0,55. Hiermit lässt sich eine Fokussierung des Anregungslasers auf einen Durchmesser von $d_{\text{Laser}} = 1 - 2\text{ }\mu\text{m}$ erreichen. Das Objektiv ist an eine piezoelektrischen XYZ-Aktuator *Piezosystemjena TRITOR 101* montiert, sodass der Strahlfokus in Z-Richtung als auch die XY-Feinpositionierung des Anregungspunktes auf der Probe mit einer Genauigkeit kleiner $\Delta x, y = 100\text{ nm}$ möglich ist.

Durch die Ausrichtung der optischen Achse von Laser, Kryostat und Detektoren, ist der Ort der Anregung gleichzeitig der Ort der Detektion der Photolumineszenz. Das dabei von der Probenoberfläche reflektierte Laserlicht passiert, zusammen mit dem gesuchten Photolumineszenzsignal, das Objektiv in entgegengesetzter Richtung des Anregungslichts und trifft erneut auf den Strahlteiler im Mikroskop. An diesem kommt es zu einer differenzierten Transmission der einlaufenden Signale. Durch dichroitischen Verhalten mit einer Grenzwellenlänge von $\lambda_{\text{trans}} > 700\text{ nm}$ wird das Laserlicht zurück durch den ursprünglichen Eingang für den Anregungslaser reflektiert und verlässt somit die optische Achse der Detektion. Das Messsignal mit seiner größeren Wellenlänge wird dagegen durch den Strahlteiler transmittiert und gelangt weiter zu den verschiedenen Detektoren, welche im folgenden Abschnitt beschrieben sind.

Ein Bindeglied bei der Realisierung der Fokussierung und Detektion bildet die am Mikroskop befestigte CCD-Kamera. Durch die Verwendung eines im sichtbaren Bereich transparenten Strahlteilers im Mikroskop erhält man mit dieser ein reales Abbild der Proben geometrie, wie es einem normalen Gebrauch eines Mikroskops entspricht. Mit deren Hilfe lässt sich der Fokus des Anregungslasers auf die Oberfläche der Probe justieren, als auch den Anregungspunkt auf die gewünschte Stelle des Nanodrahts positionieren.

Durch das Ausblenden des Anregungslasers durch einen Langpassfilter im Strahlteiler und dem Einsatz einer CCD-Kamera mit Peltier gekühltem Detektor zur Unterdrückung des intrinsischen Rauschens, ist es möglich die Intensität der Photolumi-

neszenz entlang des Nanodrahts orts aufgelöst direkt zu beobachten, wie in Abschnitt 8.3 für die verwendete Kamera *ATIK 314L+* beschrieben.

Zur energie- und zeitaufgelösten Erfassung der Photolumineszenz dienen die in Abbildung 6.1 c) dargestellten Komponenten, zu welchen das Messsignal nach der Einstufung der Probe mittels einem Klappspiegel im Mikroskop umleitet wird. Um eine vollständiges Ausblenden des Anregungslichts zu gewährleisten, befindet sich ein weiterer dichroitischer Langpassfilter mit einer Grenzwellenlänge von $\lambda_{LP} > 750$ nm in den optischen Ausbreitungsweg. An diesen Filter schließt sich eine Sammellinse an, die das parallele Strahlenbündel des Messsignals aus dem Mikroskop auf den Eintrittsspalt des Spektrometers mit einer Weite von $150\ \mu\text{m}$ fokussiert. Das eingesetzte Czerny-Turner-Gitterspektrometer von *Acton Research* Typ *SpectraPro 2500i* mit einer Brennweite von $0,5$ m, bildet das Messsignal am Ausgangsspalt spektral aufgelöst ab. An diesen ist zur Detektion die CCD-Kamera *Princeton Instruments Spec-10:2KB* mit rückseitig beleuchtetem Silizium CCD-Detektor montiert, welche zur Unterdrückung des Detektorrauschens flüssig Stickstoff gekühlt wird. Die Selektion des abzubildenden Wellenlängenbereichs durch die spektrale Aufspaltung des Messsignals geschieht dabei an einem Gitter mit 1200 Strichen pro Millimeter. Alternativ steht das Gitterspektrometer *SpectraPro 2750i* von *Acton Research* zur Verfügung, welches mit seiner Brennweite von $0,75$ m eine höhere spektrale Auflösung bietet. Der zugehörige CCD-Detektor *Princeton Instruments Spec-10::100BR* bietet durch seinen Aufbau ein verbessertes Verhalten der Detektion im nahen Infrarot.

An Stelle der Erfassung mittels einem CCD-Sensor lässt sich ein schmaler Wellenlängenbereich des spektral aufgefächerten Signals über einen Klappspiegel im Spektrometer an eine Avalanche-Photodiode *SPCM-AQRH-14-FC* von *Perkin Elmer* leiten. Diese kann durch den Betrieb im Geigermodus einzelne Photonen nachweisen. In diesem Betriebsmodus wird durch das aus dem Photon entstehende Elektron-Loch-Paar eine Lawine aus Ladungsträger im Detektor durch Stoßionisation ausgelöst. Aus dem elektronisch gesteuerten Abklingen der Ladungsträgerlawine entsteht nach einem Zählereignis eine Totzeit des Detektors von 40 ns, welche die mögliche Zählrate auf 25 MHz begrenzt [Per07].

Neben der absoluten Zählrate zu einem festen Zeitpunkt spiegeln die Zählimpulse der Avalanche-Photodiode das zeitliche Abklingen der Photolumineszenz wieder. Hierzu wird die Zeitspanne zwischen der Aussendung des anregenden Laserpulses und dem Zählereignis eines Photons aus der damit korrelierten Photolumineszenz gemessen. Durch millionenfache Wiederholung der Messung und dem Aufsummieren der Ereignisse innerhalb des jeweiligen Zeitintervalls ergibt sich eine Zählstatistik in Form eines Histogramms, wie es in Abbildung 6.2 als blaue Kurve angetragen ist. Zur Realisierung dieses Messverfahrens dienen die Zeitkorrelationsmodule *TimeHarp 200* und *PicoHarp 300* von *PicoQuant*, mit einer genutzten Zeitauflösung für die Summation der Zählereignisse von $\Delta t = 32$ ps beziehungsweise $\Delta t = 16$ ps.

Aus dieser zeitkorrelierten Einzelphotonenzählung (engl. time-correlated single photon counting, TCSPC) mit exponentiellem Abfall der Intensität, lässt sich nach Gleichung (2.8) die Lebensdauer des strahlenden Übergangs bestimmen.

Experimentell wird das aufgenommene Histogramm durch die Dauer des Laserpulses sowie die Ansprech- und Totzeit des Detektors überlagert. Dies entspricht mathematisch einer Faltung des eigentlichen Photolumineszenzsignals mit der Antwortfunktio-

on des Experiments $H(t)$ (engl. Instrument Response Function, IRF). Gleichung (2.8) erweitert sich unter deren Beachtung zu:

$$R_S(t) = R_S(0) \cdot \int_0^t H(t-t') \cdot e^{-t'/\tau_S} dt \quad (6.1)$$

Um einen Rückschluss auf das zeitliche Verhalten der Photolumineszenz und damit der Rekombination der Ladungsträger ziehen zu können, wird die Antwortfunktion des Experiments in Form eines Histogramm mit der Wellenlänge des Laserpulses aufgenommen, wie in Abbildung 6.2 rot abgebildet.

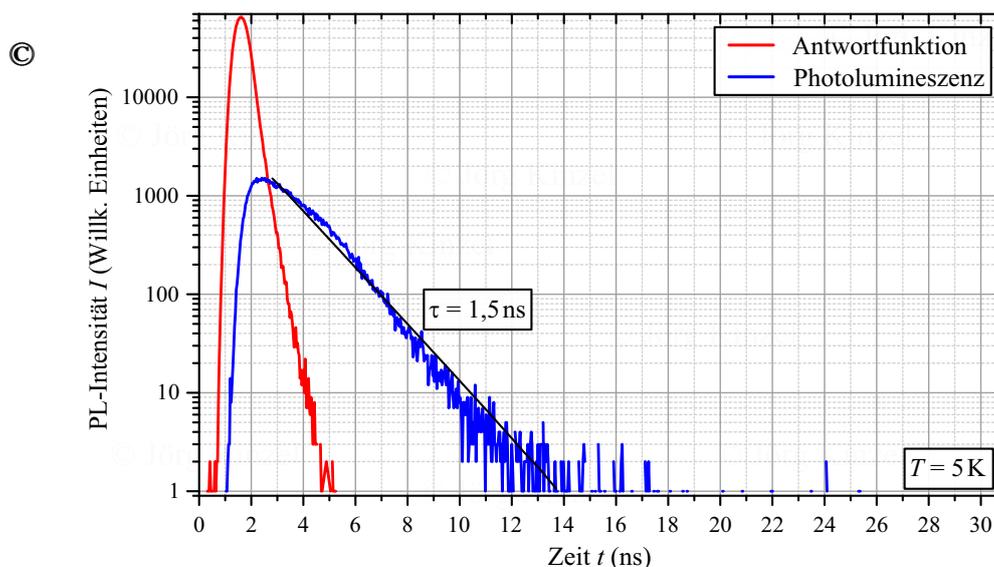


Abbildung 6.2: Histogramm der zeitlich aufgelösten Zählstatistik aus der Avalanche-Photodiode. Rot: Antwortfunktion zur Ermittlung der Charakteristika der Anregung und Detektion des Experiments unter der Wellenlänge des Anregungslasers von $\lambda_{\text{Laser}} = 661 \text{ nm}$. Blau: Abklingkurve des Photolumineszenzsignals des Kern/Mantel-Nanodrahts F bei einer Wellenlänge von $\lambda_{\text{PL}} = 814 \text{ nm}$ unter gepulster Anregung. Schwarz: Numerisch ermittelte Lebensdauer des strahlenden Zerfalls $\tau_S = 1,5 \text{ ns}$.

Aus den ermittelten Histogrammkurven lässt sich durch numerischer Simulation des exponentiellen Zerfalls die strahlende Lebensdauer τ_S ermitteln. Dies erfolgt unter Zuhilfenahme des Programms *FluoFit* von *PicoQuant* und ergibt für die strahlende Emission von Nanodraht F einen Wert von $\tau_S = (1,5 \pm 0,1) \text{ ns}$.

Durch das Auftreten solch kurzer Zeitintervalle während der Datenerhebung, ist für die Kombination der einzelnen Messsysteme eine präzise Kontrolle der Komponenten im Messaufbau nötig. Durch deren exaktes Zusammenspiel ist es möglich, die spektrale, räumliche und zeitliche Auflösung des Photolumineszenzsignals unter dem Einfluss des elektrischen Feldes der AOFW zu erfassen. Die Steuerung der Komponenten und deren Kombination mit der dynamischen Manipulation der Ladungsträgersystems durch akustische Oberflächenwellen wird im folgenden Abschnitt beschrieben.

6.2 Elektronische Synchronisierung der Komponenten

Durch die mannigfaltigen Messmethoden des μ -PL-Aufbaus entsteht zusammen mit den unterschiedlichen Geschwindigkeit der optischen, elektronischen und akustischen Signalausbreitung innerhalb eines Messdurchlaufs eine verzweigte Ansteuerung der Geräte. Deren Zusammenspiel und Synchronisierung ist im folgenden Abschnitt erläutert.

Wie in Abbildung 6.3 zu sehen, bildet der Frequenzgenerator *SME 03* die taktgebende Synchronisationsquelle. Wie bereits bei der Charakterisierung der Verzögerungstrecken in Abschnitt 5.3 eingesetzt, kommt der gepulste Hochfrequenzausgang zusammen mit einem nachgeschalteten Verstärker zum Einsatz, um die Anregungsleistung zur Erregung der akustischen Oberflächenwelle zu erzeugen (grüner Zweig). Der zuvor zur Synchronisierung der Oszilloskops verwendete TTL Triggerpuls t_0 , welcher zu Beginn eines jeden HF-Pulses entsandt wird, wird nun dazu genutzt dem Verzögerungsgenerator *Standford Research Systems DG 535* die Aussendung einer AOFW am Beginn eines Messzyklus zu signalisieren (blauer Zweig).

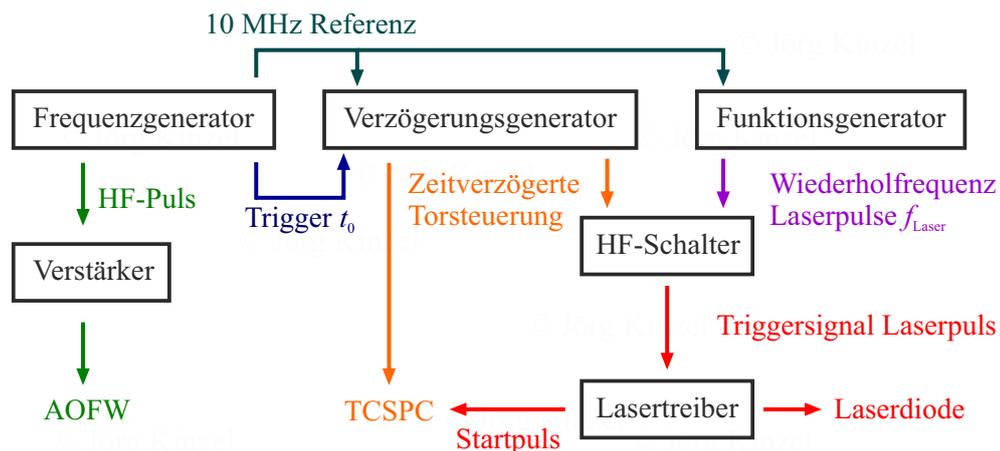


Abbildung 6.3: Steuerungsschema der Hochfrequenzkomponenten des verwendeten μ -PL Versuchsaufbaus. Grün: Erzeugung und Verstärkung des HF-Signals zu AOFW Anregung. Petrolfarben: 10MHz Referenzsignal zur Oszillator Synchronisation. Dunkelblau: Triggersignal zum Start eines Messzyklus. Orange: Zeitverzögerte Torsteuerung zur Synchronisation von optischer Anregung und Detektion auf die Ausbreitungsgeschwindigkeit der AOFW. Violett: Wiederholfrequenz der Pulse des Anregungslasers. Rot: Tor gesteuertes Triggersignal zur Kontrolle des Lasertreibers und der Einzelphotonenzählung

Der Verzögerungsgenerator hat die Aufgabe, das Wellenpaket der akustischen Oberflächenwelle mit den auftreffenden Laserpuls zu synchronisieren, welche zur Anregung der Photolumineszenz am gewünschten Ort auf dem Nanodraht dienen. Durch die unterschiedliche Ausbreitungsgeschwindigkeit zwischen der AOFW auf LiNbO_{3-x} mit $v_{\text{SAW}} = 3 - 4 \text{ km/s}$ und dem Licht des Anregungslasers, wird der Laser zeitverzö-

gert nach der Aussendung der Oberflächenwelle aktiviert. Die Verzögerung Δt errechnet sich aus dem Abstand Δx der Stelle auf dem Nanodraht zur Vorderkante des verwendeten Schallwandlers anhand der Bewegungsgleichung $\Delta t = \Delta x / v_{\text{SAW}}$. Die um den Faktor 10^6 schnellere Ausbreitung des Lichts wird vernachlässigt, lediglich die Ansprechzeit der Elektronik und der Einschwingvorgang der AOFW im Bereich von $\Delta t = 40 - 50 \text{ ns}$ wird zur errechneten Verzögerung addiert.

Neben der Verzögerung des Startsignals lässt sich auch die Dauer der Aktivierung des Ausgangs einstellen, so dass eine Torsteuerung mittels einem Rechtecksignal entsteht (oranger Zweig). Wie in Abbildung 6.3 zu sehen, kontrolliert ein Kanal der Torsteuerung die Aufnahmespanne der zeitkorrelierten Einzelphotonenzählung. Dies dient zur Unterdrückung der Aufsummierung von Zählereignissen aus Detektorrauschen oder Streulicht während der Ruhephase ohne propagierende Oberflächenwelle innerhalb des Messzyklus. Da dieser Fall 98% eines Messzyklus füllt, welcher $50 \mu\text{s}$ dauert, verschwindet durch die Torsteuerung das Untergrundrauschen im Histogramm vollständig und das Signal-Rausch-Verhältnis verbessert sich um eine Größenordnung.

Der zweite Kanal der Torsteuerung dient zur Aktivierung der Laserpulse während sich das Wellenpaket am Ort des Anregungspunkts befindet. Um das Einschwingen der Oberflächenwelle auf die maximale Amplitude und damit der maximalen Feldstärke am Ort des Zusammentreffens zu gewährleisten, ist die aktive Phase der Laserpulse mit einer Dauer von $\Delta t = 800 \text{ ns}$ gegenüber $\Delta t_{\text{AOFW}} = 900 \text{ ns}$ der AOFW verkürzt.

Die Wiederholfrequenz der Laserpulse bestimmt der Funktionsgenerator 33250A von Agilent (violetter Zweig). Da dieser über keine Möglichkeit zur gepulsten Aktivierung im μs -Bereich verfügt, wird dessen Signal über einen HF-Schalter mit dem Rechtecksignal der Torsteuerung moduliert und erzeugt so das Triggersignal zur Auslösung eines Laserpulses (roter Zweig) via dem Lasertreiber, der die eigentliche Laserdiode ansteuert. Der Lasertreiber stellt gleichzeitig mit jedem entsandtem Laserpuls ein elektronisches Startsignal zur Signalisierung des Zeitursprungs $t = 0$ für das Histogramm der Einzelphotonenzählung zur Verfügung.

Würden alle drei eingesetzten Generatoren mit der internen Frequenzbasis betrieben, so würden diese eine Schwebung aufweisen, welche aus thermischen Driftprozessen und abweichender Kalibrierung der internen Oszillatoren entsteht. Um dies zu verhindern wird das 10 MHz Referenzsignal von einem der Oszillatoren an die anderen Generatoren weiter geleitet und von diesen als Basis übernommen (petrolfarbener Zweig).

Erweitert man die Darstellung des Messzyklus aus der Charakterisierung der Verzögerungsstrecken in Abbildung 5.7 a) um die Steuersignale zur Modulation der Photolumineszenz, so ergibt sich ein Ablauf wie in Abbildung 6.4 dargestellt.

Bei der Auftragung der einzelnen Signalamplituden gegenüber der zeitlichen Dynamik des Messablaufs, ist der HF-Anregungspuls konsistent in grün dargestellt und der detektierte Wellenzug am gegenüberliegenden Schallwandler in blau. Zusätzlich ist die Torsteuerung zur Kontrolle des HF-Schalters in orange eingezeichnet. Deren Verzögerung ist mit $1,1 \mu\text{s}$ so eingestellt, dass das Zeitfenster der auftreffenden Laserpulse mit der Ankunft des Wellenpakets der akustischen Oberflächenwelle am zweiten Schallwandler zusammenfällt. Ferner ist die geringere Torlänge der Laserkontrolle gegenüber der AOFW zu sehen.

Das zugehörige modulierte Triggersignal des Funktionsgenerators zur Steuerung der Wiederholrate der Laserpulse ist in rot dargestellt. Der ursprünglich aus einem Recht-

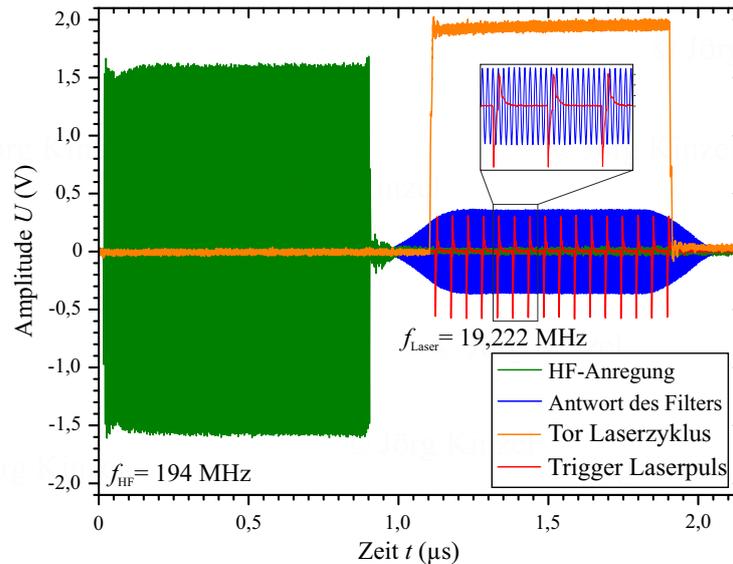


Abbildung 6.4: Dynamik der elektrischen Signale zur Anregung der AOFW und deren Detektion sowie die Synchronisierung des Anregungslasers auf das Wellenpaket. Grün: Anregungspuls der Oberflächenwelle mit einer Frequenz von $f_{\text{HF}} = 194 \text{ MHz}$. Blau: Nach Durchlaufen des Bandpassfilters an Schallwandler 2 detektiertes Signal. Orange: TTL-Torsignal zur Ansteuerung des HF-Schalters zur Modulation des Anregungslasers. Rot: Tor gesteuertes und differenziertes Signal zur Triggerung des Anregungslasers mit einer Frequenz von $f_{\text{Laser}} = 19,222 \text{ MHz}$

ecksignal bestehende Puls wird durch ein Differenzierglied geleitet. Hierdurch entsteht ein Signal mit hoher Flankensteilheit im negativen Bereich der Amplitude, wie in der Detailvergrößerung in Abbildung 6.4 zu sehen. Diese Signalform ist zur präzisen Auslösung eines Laserpulses am Lasertreibers notwendig. Am gleichen Ausschnitt ist ebenso erkennbar, dass das Triggersignal jeweils eine andere Phasenlage der Schwingung trifft, sofern die Frequenz der akustischen Oberflächenwelle f_{HF} und die des Lasers f_{Laser} kein geradzahliges vielfaches bilden.

Diese Situation ist in Abbildung 6.5 a) verdeutlicht. Durch die unterschiedliche Phasenbeziehung ϕ zwischen dem eintreffenden Laserpuls (rot) und der AOFW (blau) kommt es bei jeder Anregung durch einen Laserpuls zu einer ungerichtet ablaufenden Separation der erzeugten Ladungsträger innerhalb der Modulation der Bandkante. Die Bewegungsrichtung von Elektron und zugehörigem Loch in Ausbreitungsrichtung der Welle oder dieser entgegen, hängt nach Gleichung 4.13 von der Phasenlage am Ort der Anregung ab. Da für ein ausreichendes Signal-Rausch-Verhältnis (SRV) bei der Detektion des Messsignals via zeitkorrelierter Einzelphotonenzählung oder der Belichtung des CCD-Sensors über mehrere Laserpulse summiert wird, führt dieses bei der Detektion zu einer Mittelung des Messsignals über verschiedenen Phasenlagen. Um eine vollständige Mittelung zu erreichen gilt es darauf zu achten, dass die Wiederholfrequenz der Laserpulse kein Vielfaches der Zyklusfrequenz des Experiments von 20 kHz ist, welche dem Frequenzgenerator zur AOFW-Anregung entspringt. Ande-

renfalls kommt es zur Ausbildung von Vorzugslagen der Phase zwischen der AOFW und dem Laserpuls im Anregungsmoment.

Andererseits lässt sich dies ausnutzen, um die Anregung durch den Laser auf eine bestimmte Phasenlage zu koppeln, wie in Abbildung 6.5 b) dargestellt [VKS11].

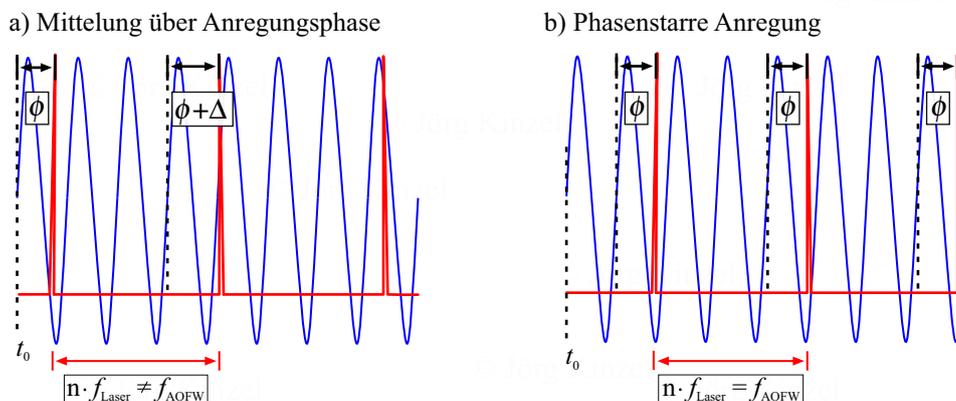


Abbildung 6.5: Synchronisationsmodi des Anregungslasers bezüglich der Frequenz der AOFW. a) Wiederholte Anregung der Ladungsträger zu beliebiger Phasenlage innerhalb des Wellenpakets. b) Phasenstarre stroboskopische Anregung durch Synchronisierung der Laserwiederholrate auf die Schwingungsdauer der AOFW

Um diese stroboskopartige Anregung bei einer definierten Phasenlage zu realisieren, wird die Wiederholrate des Lasers exakt auf einen ganzzahligen Bruchteil der Anregungsfrequenz der Oberflächenwelle getrimmt, so dass gilt:

$$n \cdot f_{\text{Laser}} = f_{\text{HF}} \quad (6.2)$$

Die Wahl der Phasenlage zwischen den beiden Komponenten erfolgt im vorliegenden Fall durch die Justage der relativen Phasen des Ausgangssignals von Frequenz- oder Funktionsgenerator bezüglich dem Triggersignal t_0 zu Beginn eines jeden Messzyklus.

Die beschriebenen Messtechniken zur räumlichen, energetischen als auch zeitlichen Auflösung der Photolumineszenz werden im folgenden Kapitel angewandt, um die optische Emission von einzelnen GaAs Nanodrähten zu untersuchen und die Dynamik der involvierten Ladungsträger zu analysieren.

7 Optische Emission unpassivierter GaAs-Nanodrähte

In diesem Kapitel sind die Ergebnisse der Tieftemperatur-Messungen an unpassivierter GaAs-Nanodrähte zusammengefasst. Das Ziel der durchgeführten Experimente ist die Untersuchung des Verhaltens des Photolumineszenzsignals unter dem Einfluss von akustischen Oberflächenwellen. Dies umfasst die Analyse der Auswirkung steigender HF-Leistung und damit einhergehend Schwingungsamplitude sowie elektrischer Feldstärke der AOFW. Zusätzlich wird die Abhängigkeit von der Richtung der einlaufenden Welle bezüglich der Wachstumsrichtung des Nanodrahts untersucht. Zeitaufgelöste PL-Messungen ermöglichen einen Einblick in die Dynamik der Ladungsträger im elektrischen Feld der AOFW. Die exakte Abbildung der Abhängigkeit der Unterdrückung der PL-Emission durch die Ladungsträgerseparation von der relativen Phasenlage am Ort der Anregung innerhalb der Typ-II Bandkantenmodulation wird im Anschluss durch stroboskopische Aufnahmen der PL-Emission unter phasenstarrer Kopplung aufgelöst.

7.1 Charakterisierung der Nanodraht Photolumineszenz

Zu Beginn der Untersuchungen der PL-Emission werden die verwendeten unpassivierten Nanodrähte aus intrinsischem GaAs spektroskopisch analysiert. Wie in der REM-Aufnahme der Schnittkante in Abbildung 7.1 a) dargestellt, handelt es bei den Typ-I Nanodrähten um senkrecht gewachsene und zunächst auf dem Si/SiO₂-Wachstumssubstrat freistehende Strukturen. Diese erreichen im VLS-Verfahren mit den im Anhang angegebenen Parametern für das Wachstum der Typ-I Nanodrähte eine Länge von $z_{ND} \approx (10 \pm 1) \mu\text{m}$. Gleichzeitig besitzen diese eine durchgehend hexagonale Struktur, wie in der schematischen Darstellung des Nanodrahts verdeutlicht.

Die Detailaufnahme eines einzelnen Nanodrahts in Abbildung 7.1 a) oben zeigt einen auf dem piezoelektrischen LiNbO_{3-x}-Wirtssubstrat vereinzelt liegenden Nanodraht, welcher mittels dem in Kapitel 5.4.1 beschriebenen Suspensions-Verfahren übertragen wurde. Dieser weist eine für die unpassivierten Nanodrähte typische Konizität vom Fußpunkt links zur Spitze rechts auf, wobei der Durchmesser sich dabei von $d_{ND} = 120 \text{ nm}$ am Fußpunkt zu 50 nm an der Spitze verjüngt. Diese Inhomogenität ist eine Folge der zufälligen Positionierung der Nanodrähte auf dem Wachstumssubstrat. Hierbei kommt es durch den unkontrollierten Abstand der Drähte zu Abschattungseffekten zwischen den einzelnen Drähten, was die Morphologie des Drahts vor allem nahe der Oberfläche des Si/SiO₂-Wachstumssubstrats und damit am Fußpunkt beeinflusst [HRB10].

In Abbildung 7.1 b) sind die aufgenommenen PL-Spektren der vereinzelt liegenden Nanodrähte A (blau) & B (weinrot) angetragen, welche in diesem Kapitel unter dem Einfluss der akustischen Oberflächenwelle weiter untersucht werden.

Zur Anregung der Photolumineszenz dient im vorliegenden Fall der gepulste Diodenlaser mit einer Wellenlänge von $\lambda_{\text{Laser}} = 661 \text{ nm}$ bei einer Leistung von $P_{\text{Laser}} = 1,4 \mu\text{W}$. Die angegebene Leistung ergibt sich als Mittelwert der auftreffenden Pulse und entspricht somit dem Äquivalent der Dauerstrich-Anregung. Die Aufnahme der Spektren erfolgt, wie bei allen weiter folgenden Experimenten, bei einer Temperatur von $T = 5 \text{ K}$ am Kühlfinger des Kryostaten.

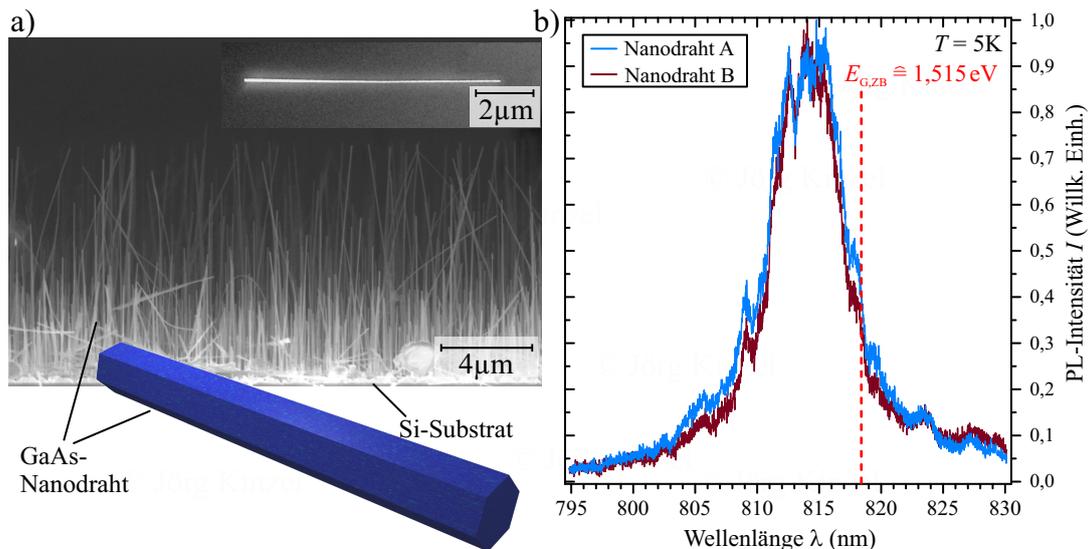


Abbildung 7.1: Charakterisierung der unpassivierten GaAs-Nanodrähte. a) Oben: Rasterelektronenmikroskopische Aufnahme der mittels dem VLS-Verfahren auf einem Si/SiO₂-Wirtssubstrat senkrecht gewachsenen GaAs-Nanodrähte. In der Vergrößerung ist ein einzelner Nanodraht mit typischer Konizität dargestellt. Unten: Skizze eines GaAs-Nanodrahts mit dessen hexagonalem Querschnitt. b) Vergleich der PL-Spektren von den vereinzelt liegenden Nanodrähten A & B bei einer gepulsten Anregung mit $P_{\text{Laser}} = 1,4 \mu\text{W}$.

Wie man anhand des Maximums der PL-Emission bei der Wellenlänge von $\lambda = (814 \pm 3) \text{ nm}$ erkennen kann, zeigen beide Nanodrähte eine identische Charakteristik des PL-Spektrums. Die Form des Messsignals in Abhängigkeit von der Wellenlänge wird dabei durch Etaloning im CCD-Sensor des 0,5 m-Spektrometers verursacht. Hierbei kommt es zur mehrfach Reflexion von einfallenden Photonen zwischen den Grenzflächen des Si-Detektors an Vorder- und Rückseite, wenn dieses nicht direkt beim ersten Durchlauf ein Ladungsträgerpaar im Sensor bildet. Dieser Effekt tritt besonders im Bereich des nahen Infrarot auf, da das im Sensor verwendete Siliziumsubstrat in diesem Energiebereich eine steigende Transparenz besitzt.

Die PL-Emission des Nanodrahts weist gegenüber der erwarteten Übergangsenergie des freien Exzitons in der Zinkblende-Struktur von $E_{G,ZB} = 1,515 \text{ eV} \hat{=} 818,4 \text{ nm}$ eine deutlich Abweichung des Maximums auf, welche auch unter Einbeziehung des Fehlers aus der Halbwertbreite nicht zur Deckung kommt [RHB11].

Dieses Verhalten lässt sich durch unterschiedliche Ausdehnungskoeffizienten von

GaAs und LiNbO_{3-x} während dem Abkühlen erklären, so dass die Kompression der GaAs-Kristallstruktur des Nanodrahts zu einer Vergrößerung der Bandlücke führt [VMRM01].

Das Verhalten der beobachteten PL-Emission von Nanodraht B unter dem Einfluss einer akustischen Oberflächenwelle wird im nächsten Abschnitt untersucht.

7.2 Photolumineszenz unter dem Einfluss akustischer Oberflächenwellen

Mit der zerstörungsfreien Übertragung der unpassivierten Nanodrähte und der Lokalisierung der parallel zu den Vorzugsachsen des piezoelektrischen LiNbO_{3-x} -Substrats ausgerichteten Nanodrähte A und B, ist es möglich, die optisch erzeugten Ladungsträger mit dem elektrischen Feld der AOFW zu manipulieren. Das hierzu genutzte Design der Hybridprobe ist in Abbildung 7.2 a) schematisch dargestellt.

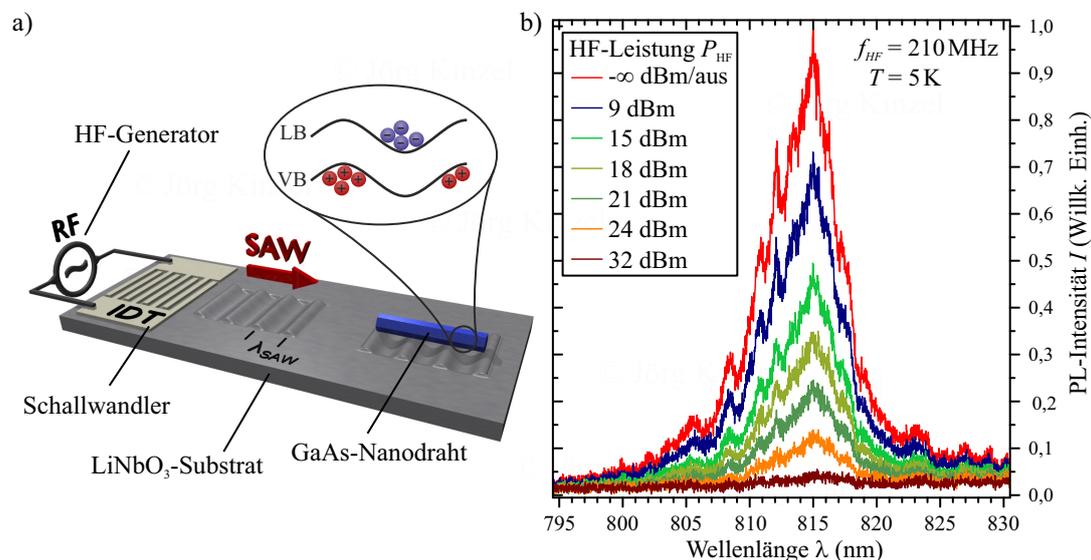


Abbildung 7.2: Verhalten der PL-Emission von Nanodraht B unter der Einwirkung der AOFW. a) Schematische Darstellung des Probenaufbaus zur Anregung einer AOFW, welche parallel zur c-Achse des Nanodrahts propagiert und dort eine Typ-II Bandkanten-Modulation bewirkt, wie in der Vergrößerung gezeigt. b) Unterdrückung der PL-Emission mit ansteigender HF-Leistung P_{HF} und damit Amplitude der AOFW von $-\infty$ dBm/aus (rot) bis 32 dBm (braun).

Durch das Aufprägen eines gepulsten HF-Signals mit einer Frequenz von $f_{\text{HF}} = 210$ MHz an den Schallwandler auf Probenotyp-I wird die Dispersionsrelation für die Ausbreitungsrichtung einer AOFW senkrecht zur X-Richtung erfüllt, sodass sich diese effektiv anregen lässt. Während der Propagation trifft das Wellenpaket der AOFW auf den im Ausbreitungspfad befindlichen Nanodraht B, welcher ebenso senkrecht zur X-Richtung orientiert ist, sodass sich die AOFW parallel zur Wachstumsrichtung und damit der c-Achse des Nanodrahts fortbewegt.

Regt man nun den Nanodraht mittels dem gepulsten Diodenlaser mit einer Leistung

von $P_{\text{Laser}} = 1,4 \mu\text{W}$ und ohne Kopplung der Phasenlage der Anregung zur Photolumineszenz an, so zeigt sich ohne die Einwirkung einer AOFW das in Abbildung 7.2 b) in rot dargestellte PL-Signal. Mit Steigerung der an den Schallwandler angelegten Leistung von $P_{\text{HF}} = 9 \text{ dBm}$ kommt es in der Photolumineszenz zu einem Rückgang der Intensität, wie anhand der dunkelblauen Messkurve zu erkennen. Dieses Verhalten setzt sich bei weiter steigender HF-Leistung sukzessive fort, bis das PL-Signal bei einer Leistung von $P_{\text{HF}} = 32 \text{ dBm}$ fast vollständig im Untergrundrauschen des Detektors verschwindet.

Die beobachtete Abnahme der PL-Emission entsteht aus der Separation der Ladungsträger am Anregungspunkt in Typ-II Bandkantenmodulation, wie in Abbildung 7.2 a) in der Vergrößerung gezeigt. Hierbei wandern die Elektronen in Richtung des stabilen Minimums des Leitungsbandes, die Löcher besetzen das stabile Maximum im Valenzband. Dabei bewirkt die räumliche Trennung der Ladungsträger entlang der Achse des Nanodraht einen reduzierten Überlapp der Wellenfunktionen und damit eine Unterdrückung der Rekombination [RZW97].

Dieser Effekt zeigt sich auch bei der Untersuchung planarer GaAs-Schichtstrukturen. Hierbei ist es unerheblich, aus welcher Richtung die AOFW auf der Oberfläche des Substrats auf die optisch aktive Struktur trifft und eine Separation der Exzitonen bewirkt [SSG11]. Der eindimensionale Charakter der Nanodrähte lässt im Zusammenspiel mit der hier eingesetzten Probengeometrie mit gekreuzten Verzögerungsstrecken, welche in Abbildung 5.11 für das LiNbO_{3-x} -Substrat dargestellt sind, eine Richtungsabhängigkeit der Ladungsträgerseparation erwarten. Diese wird im nächsten Abschnitt genauer untersucht.

7.2.1 Richtungsabhängigkeit der Ladungsträgerseparation

Die Ausrichtung von Nanodraht B, wie er in Abbildung 5.11 in der Detailvergrößerung oben zu sehen ist, ermöglicht es die Richtungsabhängigkeit der Ladungsträgerseparation im Nanodraht zu untersuchen. Hierbei entspricht die von oben nach unten verlaufende Verzögerungsstrecke der Ausbreitung der AOFW parallel zur c-Achse des Nanodrahts, wie bereits bei der Erfassung der Messwerte in Abbildung 7.2 b) genutzt. Die Verzögerungsstrecke mit horizontaler Ausbreitung in Abbildung 5.11 und somit in X-Richtung des LiNbO_{3-x} -Kristalls, entspricht am Ort der Koinzidenz von AOFW und dem Anregungslaser auf dem Nanodraht, der senkrechten Konfiguration, so dass die AOFW längsseits auf diesen trifft.

Zusätzlich lassen sich auf Probentyp-I akustische Oberflächenwellen mit zwei verschiedenen Wellenlängen anregen. Hierzu ist jede Verzögerungsstrecke mit einem separaten Paar Einzel-Elektroden Schallwandler präpariert, welche auf Grund abweichender Periode der Struktur der Fingerelektroden die Dispersionsrelation in Gleichung (3.20) bei unterschiedlichen Frequenzen erfüllen. Die Charakteristika der eingesetzten Verzögerungsstrecken sind in Tabelle 5.2 zusammengefasst.

Das Verhalten der PL-Emission bei steigender HF-Leistung, unterschiedlicher Einfallrichtung und Frequenz ist in Abbildung 7.3 als Falschfarbendarstellung zusammengefasst. Rot entspricht dabei maximaler, blau der minimalen PL-Intensität. Die Normierung erfolgte dabei auf das während einer Messreihe jeweils gemessene Maximum der PL-Intensität.

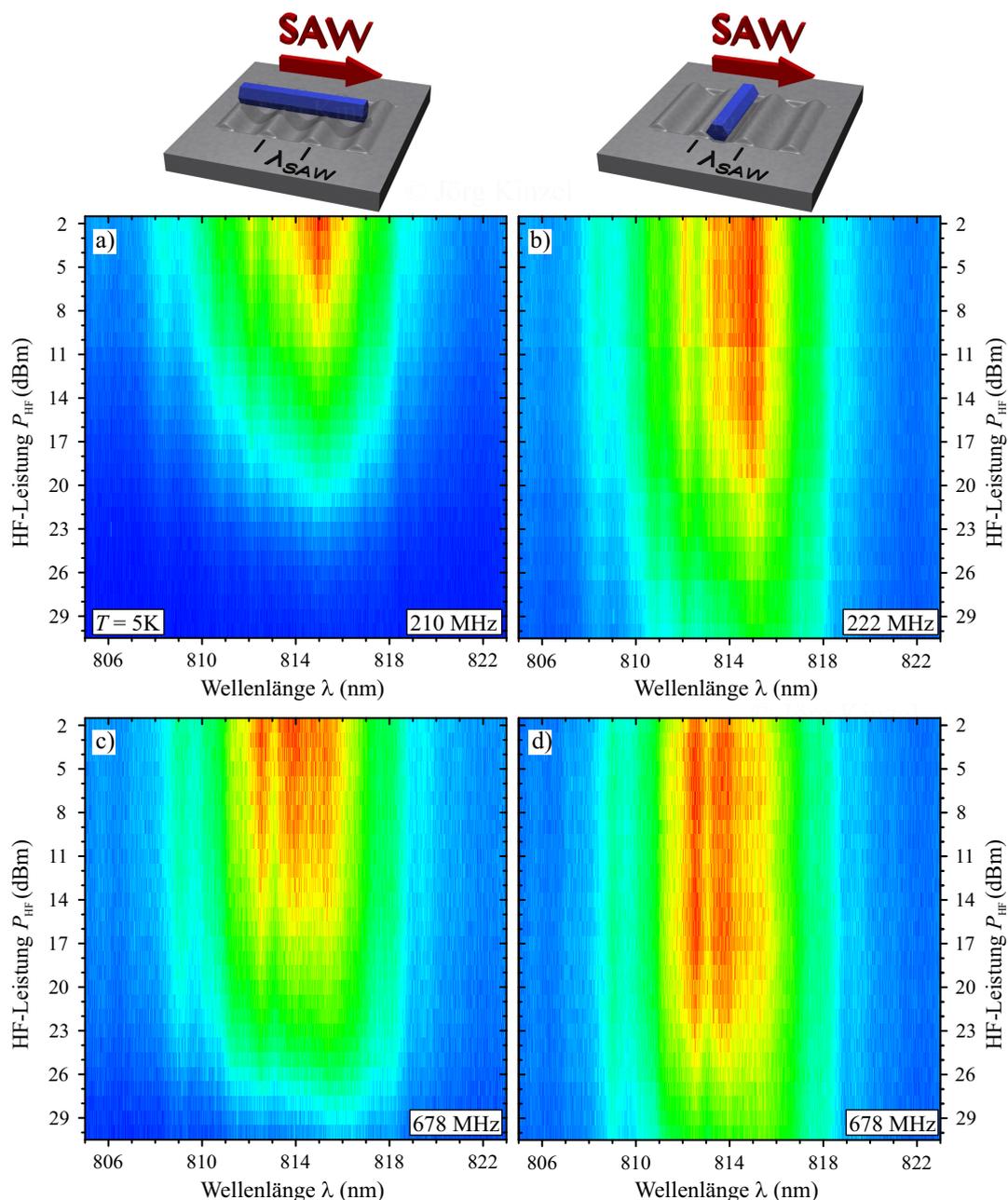


Abbildung 7.3: Abhängigkeit der Ladungsträgerseparation von der Einfallsrichtung der AOFW zur c-Achse von Nanodraht B. a) Falschfarbendarstellung der PL-Unterdrückung bei steigender HF-Leistung der AOFW mit einer Anregungsfrequenz von $f_{\text{res}} = 210\text{ MHz}$ bei paralleler Ausbreitung zur Achse des Nanodrahts. Rot entspricht hohe Intensität, blau niedriger. b) Modulation durch senkrechte Koinzidenz der AOFW am identischen Nanodraht durch die Verwendung der senkrecht angeordneten zweiten Verzögerungsstrecke mit vergleichbarer Frequenz. c) Unterdrückung des PL-Signals mit verkleinerter räumlicher Separation der Ladungsträger entlang der Achse des Nanodrahts durch Verdreifachung der Anregungsfrequenz der AOFW auf $f_{\text{res}} = 678\text{ MHz}$ bei parallelem Zusammentreffen. d) Auswirkung der AOFW mit etwa dreifacher Frequenz bei senkrecht zum Nanodraht wirkenden elektrischen Feld.

Die im vorangegangenen Abschnitt untersuchte Unterdrückung der PL-Emission von Nanodraht B unter paralleler Ausbreitung der AOFW aus Abbildung 7.2 b) ist in Abbildung 7.3 a) inklusive aller Zwischenwerte der HF-Leistung zu sehen. Dabei zeigt sich ab einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 3 \text{ dBm}$ das Einsetzen der Unterdrückung der PL-Emission, welche sich bei weiter steigender HF-Leistung kontinuierlich fortsetzt. Zur Analyse der Richtungsabhängigkeit der Ladungsträgerseparation, wird die akustische Oberflächenwelle nun senkrecht zur ersten Ausbreitungsrichtung angeregt. Hierdurch trifft diese senkrecht auf Nanodraht B, wie schematisch oberhalb der rechten Spalten in Abbildung 7.3 dargestellt. Die aus steigender HF-Leistung zu beobachtende Modulation der PL-Emission ist in Abbildung 7.3 b) angetragen.

Hierbei tritt ein Versatz des Einsatzpunkts der Unterdrückung von $\Delta P_{\text{HF}} = 12 \text{ dB}$ auf, was in etwa der 16-fachen HF-Leistung entspricht.

Eine identische Abhängigkeit zeigt sich auch beim Einsatz der Verzögerungsstrecken mit der um den Faktor drei höheren Resonanzfrequenz zur Anregung der AOFW. In der parallelen Orientierung, welche in Abbildung 7.3 c) zu sehen ist, ergibt sich ab einer Leistung von $P_{\text{HF}} = 11 \text{ dBm}$ ein konstantes Absinken der PL-Intensität mit steigender HF-Leistung. Beim senkrechten Auftreffen der AOFW auf den Nanodraht kommt es zu einer vergleichbaren Verzögerung der Unterdrückung, welche mit einem Versatz von $\Delta P_{\text{HF}} = 12 \text{ dB}$ im Falschfarbendiagramm zu beobachten ist.

Das beobachtete Verhalten lässt sich mit dem eindimensionalen Charakter der Nanodrahts erklären. Für eine sich parallel zur c-Achse des Nanodrahts ausbreitende akustische Oberflächenwelle, bietet dessen Geometrie mit einer Länge von $z_{\text{ND}} \sim 10 \mu\text{m}$ genügend Raum zur Separation der Ladungsträger im elektrischen Feld der akustischen Oberflächenwelle. Der Abstand der stabilen Punkte für die Elektronen bzw. Löcher in der Typ-II Bandkantenmodulation liegt selbst bei der Anregung der AOFW mit der geringeren Resonanzfrequenz maximal bei $\Delta z = \lambda_{\text{AOFW}}/2 = 8,75 \mu\text{m}$ und somit vollständig innerhalb der Länge des Nanodrahts.

Vergleicht man hierzu den Durchmesser des Nanodrahts d_{ND} so ist dieser mit 50 bis 120 nm deutlich kleiner als die Wellenlänge λ_{AOFW} , was eine effektive räumliche Trennung der Ladungsträger verhindert. [KRB11]

Die Differenz der Einsatzpunkte der PL-Unterdrückung zwischen den niedrigen AOFW-Frequenzen in Abbildung 7.3 oben und der hohen Frequenz in Abbildung 7.3 unten, entspringt zum einen der Abhängigkeit der elektrischen Feldstärke von der Wellenlänge der AOFW, wie in Gleichung (3.22) beschrieben. Hieraus ergibt sich für die Kompensation der kürzeren Wellenlänge ein Anstieg der HF-Leistung um 5,1 dB. Zum anderen spielt die Einkopplung der HF-Leistung über den Schallwandler in das piezoelektrische LiNbO_{3-x} -Substrat eine Rolle. Für die Schallwandler mit der höheren Resonanzfrequenz zeigt sich in den zusammengetragenen Charakteristika in Tabelle 5.2 vor allem beim Transmissionsverlust der senkrecht zum Nanodraht propagierenden Verzögerungsstrecken eine deutliche Abnahme der Umwandlungseffizienz. In den Verzögerungsstrecken mit paralleler Ausbreitung der AOFW zur c-Achse des Nanodrahts tritt gleichzeitig eine Abweichung in der Umwandlungseffizienz zwischen den Wellenlängen auf. Diese ist auf eine von $Z = 50 \Omega$ abweichende Impedanz der langwelligen Schallwandler zurückzuführen und erschwert eine qualitative Aussage über die Effizienz der Einkopplung der HF-Leistung.

Um das Auftreten des beobachteten Verhaltens auf Grund einer Anisotropie der Eigenschaften der AOFW auf dem genutzten $128^\circ \text{XY-LiNbO}_{3-x}$ auszuschließen, sind

nachfolgend die Messreihen von Nanodraht B mit dem dazu um 90° gedreht liegenden Nanodraht A verglichen. Da sich Nanodraht A & B im gleichen Quadranten der Probe befinden, kommen die identischen Verzögerungsstrecken zum Einsatz, lediglich bezüglich Nanodraht A & B um 90° rotiert.

Bei den in Abbildung 7.4 a) gegenüber der am Schallwandler angelegten HF-Leistung P_{HF} dargestellten PL-Intensitäten handelt es sich um die in der Falschfarbendarstellung in Abbildung 7.3 a) & b) gezeigten Messungen von Nanodraht B. Zur Ermittlung der Gesamtintensität des PL-Spektrums ist das PL-Spektrum über einen Wellenlängenbereich von $\lambda = 808 - 818 \text{ nm}$ integriert und auf den maximalen Gesamtwert der PL-Intensität normiert. Bei der Antragung der Messwerte in Abbildung 7.4 a) & b) stehen rote Symbole für eine parallele Ausbreitung der AOFW zur c-Achse des Nanodrahts, schwarze Symbole markieren ein senkrechtliches Auftreffen des Wellenzugs auf den Nanodraht.

Für die in Abbildung 7.4 a) gezeigte elektronenmikroskopischen Aufnahme des Nanodrahts B, entsprechen somit schwarze Symbole einer horizontalen Ausbreitung, rot für die hierzu senkrechte in vertikaler Richtung. Ausgefüllte Symbole spiegeln den Einsatz der AOFW mit einer Frequenz von $f_{\text{res}} = 210 \text{ MHz}$ bzw. 222 MHz wieder. Nicht gefüllte Symbole stehen für den Einsatz des zweiten Schallwandlerpaars mit mit höherer Resonanzfrequenz von $f_{\text{res}} = 678 \text{ MHz}$, welches in der Darstellung der Probengeometrie in Abbildung 5.11 innen liegend gefertigt ist.

Der direkte Vergleich der absoluten Intensitäten zeigt, dass es bei beiden Frequenzen

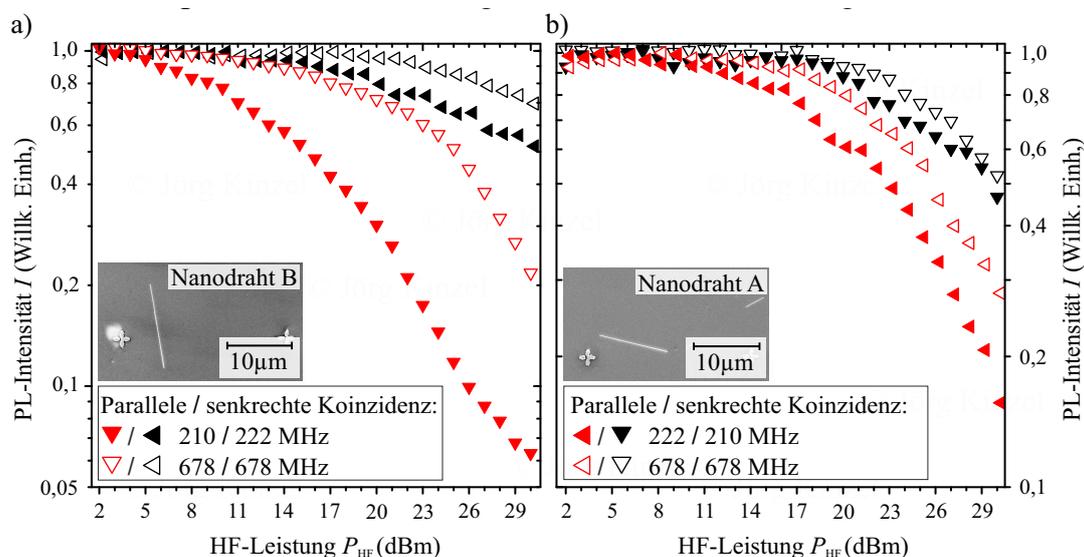


Abbildung 7.4: Vergleich der PL-Unterdrückung anhand der Gesamtintensität durch die Integration des Emissionsspektrums über den Wellenlängenbereich von $808 - 818 \text{ nm}$. a) Zusammenfassung der detektierten Intensitäten von Nanodraht B sowie b) von Nanodraht A, welcher zu B um 90° rotiert ist. Rot: Parallele Ausbreitung der AOFW zur c-Achse des Nanodrahts. Schwarz: Propagation und Koinzidenz der AOFW senkrecht zur c-Achse. Symbolik: Ausgefüllte Dreiecke stehen für den Einsatz der AOFW mit niedrigerer Resonanzfrequenz um $f_{\text{res}} = 220 \text{ MHz}$, nicht gefüllte Dreiecke für die Benutzung der Schallwandler mit höheren Resonanzfrequenz von $f_{\text{res}} = 678 \text{ MHz}$.

zu einer stärkeren Unterdrückung der Photolumineszenz in paralleler Richtung kommt, als bei senkrechter Koinzidenz. Unter Benutzung der identischen Kodierung der Symbole sind in Abbildung 7.4 b) die Ergebnisse der Messung an Nanodraht A zusammengefasst. Dieser ist gegenüber Nanodraht B um 90° gedreht, wie anhand der REM-Detailaufnahme verdeutlicht. Bei der nun ebenso um 90° gedrehten Wirkung der Schallwandlerpaare zeigt sich eine identische Abhängigkeit von der Einfallrichtung der AOFW gegenüber der c-Achse des Nanodrahts. Somit dominiert für beide Anregungsfrequenzen die parallele Ausbreitung des Wellenzugs die Unterdrückung der PL-Emission und die unterschiedliche Effizienz entsteht aus der Orientierung der c-Achse des Nanodrahts zur einlaufenden akustischen Oberflächenwelle. Anisotropien des piezoelektrischen Kristalls können hingegen als Ursache ausgeschlossen werden.

Die trotz senkrechtem Einfall der AOFW zur Nanodraht c-Achse auftretende Unterdrückung der PL-Intensität entsteht aus der nicht exakt senkrechten Ausrichtung der Nanodrähte zur Ausbreitungsrichtung der Welle. Wie in den Detailaufnahmen in Abbildung 7.4 a) & b) zu sehen, besitzen Nanodraht A & B eine Verkippung von etwa 10° zu den Vorzugsrichtungen des LiNbO_{3-x} -Kristalls, so dass eine schräge Ausbreitung und Separation der Ladungsträger im Kern durch das Potenzial der AOFW möglich ist [SSG11]. Die unterschiedlich starken Verkippung der einzelnen Nanodrähte verstärkt daneben die Variation im Unterdrückungsverhalten der Nanodrähte.

Das Auftreten eines remanenten PL-Signals bei höchster HF-Leistung in paralleler Geometrie lässt sich aus der Anregung der Ladungsträger bei wechselnder Phasenlage zwischen AOFW und Anregungspuls des Lasers erklären, wodurch die Grundintensität ansteigt. Diese Abhängigkeit ist in Abschnitt 7.2.3 genauer erläutert.

Zunächst gilt es jedoch die für die Dissoziation und räumliche Separation der freien Exzitonen im Feld der AOFW zu analysieren. Hierbei müssen die dazu führenden Prozesse auf einer Zeitskala schneller der kürzesten hier eingesetzten Schwingungsdauer der AOFW von $T_{\text{AOFW}} = 1,5 \text{ ns}$ ablaufen. Anderenfalls kommt es zu keiner effektiven Separation und damit Unterdrückung der PL-Emission.

7.2.2 Zeitaufgelöste Analyse der PL-Modulation

Um die Dynamik der Rekombination der Ladungsträger unter dem Einfluss der akustischen Oberflächenwelle beobachten zu können, findet im folgenden Abschnitt eine zeitaufgelöste Detektion des PL-Signals mittels einer Avalanche-Photodiode statt. Auf Grund der kurzen strahlenden Lebensdauer der Exzitonen lässt sich die Auswirkung des wellenförmigen Charakters der Typ-II Bandkantenmodulation auf die optische Emission nur durch eine kontinuierliche Anregung von Ladungsträger mittels einem HeNe-Laser im Dauerstrich-Betrieb sichtbar machen. Gleichzeitig steht durch die kontinuierliche Anregung kein Synchronisationssignal mehr zur Steuerung des Zeitkorrelationsmodul zur Verfügung. Deshalb erfolgt die Festlegung des Startzeitpunkts der Messung über das Triggersignal t_0 zu Beginn des HF-Pulses. Somit wird die in anhand Abbildung 6.3 beschriebene Torsteuerung des eigentlichen TCSPC-Messverfahrens zur Übertragung des Start-Pulses herangezogen. Aus der festen Beziehung zwischen t_0 und dem Einschwingvorgang der AOFW entsteht hieraus eine starre Kopplung der Phasenlage des AOFW-Zyklus ϕ_{AOFW} an die zeitaufgelös-

te Detektion. Die Wiederholrate des Anregungszyklus einer AOFW verbleibt bei der durch den HF-Generator bestimmten Rate von 20 kHz.

Bei einer Anregungsleistung des HeNe-Laser von $P_{\text{Laser}} = 100 \mu\text{W}$ im Dauerstrich-Betrieb, zeigt sich der in Abbildung 7.5 dargestellte periodische Verlauf. Dabei breitet sich die AOFW nach der Anregung mit einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 27 \text{ dBm}$ parallel zu c-Achse des Nanodraht A aus.

Betrachtet man zunächst die in Diagramm a) als Detailaufnahme unten rechts dargestellte zeitliche Entwicklung der gesamten PL-Intensität, so zeigt sich beim Eintreffen der AOFW am Anregungs- bzw. Detektionsbereich eine Abnahme der absoluten PL-Intensität. Diese Reduzierung dauert entsprechende der Länge des AOFW-Wellenpakets $\Delta t_{\text{AOFW}} = 600 \text{ ns}$ an. Die in diesem Zeitintervall ablaufende Modulation der PL-Emission ist in Abbildung 7.5 a) angetragen. Dabei zeigt sich als blaue Kurve ein periodisches Aufflammen der Intensität mit der Periode der AOFW von $T_{\text{AOFW}} = (4,45 \pm 0,32) \text{ ns}$. Dieses ist im Zeitbereich vor und nach der Einwirkung der AOFW nicht zu beobachten. Die Analyse der Frequenz der oszillierenden Emission mittels schneller Fourier-Transformation (engl. fast Fourier transform, kurz FFT), zeigt in Abbildung 7.5 b) ein dominantes Maximum bei der Resonanzfrequenz der AOFW von $f_{\text{FFT}} = 224,7 \text{ MHz}$.

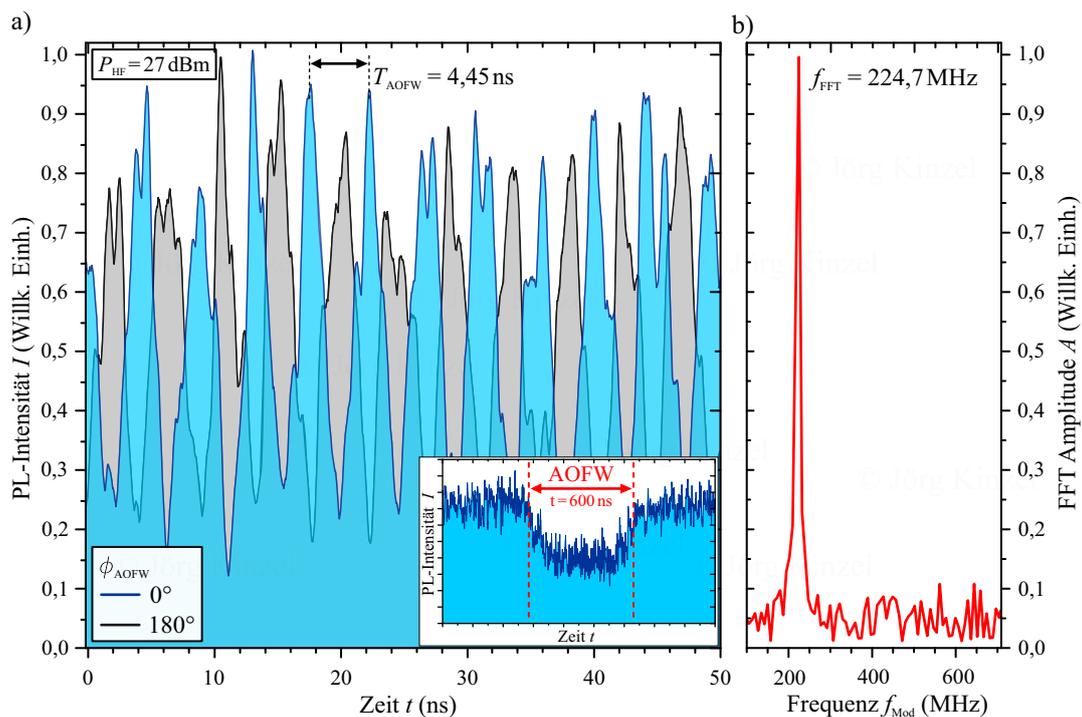


Abbildung 7.5: Zeitkorrelierte Einzelphotonenzählung der Photolumineszenz von Nanodraht A unter Dauerstrich-Anregung. a) Modulation der PL-Emission durch die Einwirkung einer AOFW mit einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 27 \text{ dBm}$. Die Drehung der Phasenlage der AOFW um $\Delta\phi = 180^\circ$ (blau/grau) führt zu einer Verschiebung der Modulation um $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/2$. Als Detailaufnahme ist die Absenkung der PL-Emission unter dem Einfluss der AOFW gezeigt. b) Fourier-Transformation des periodischen Messsignals zeigt eine Modulationsfrequenz von $f_{\text{FFT}} = 224,7 \text{ MHz}$.

Das Ausbleiben höherer harmonischer Schwingungsfrequenzen verdeutlicht die direkte Abhängigkeit der Ladungsträgertrennung vom elektrischen Feld der AOFW am Punkt der Anregung.

Bestätigt wird diese Verknüpfung durch die Verschiebung der Extrema der Intensität um die halbe Schwingungsdauer $T_{\text{AOFW}}/2$. Wie in Abbildung 7.5 a) in Grautönen dargestellt, ändert sich durch das Drehen der Startphase am HF-Generator um $\Delta\phi = 180^\circ$ auch die Position der Schwingungsmaxima im zeitlichen Verlauf.

Das Auftreten der zeitabhängigen Modulation der PL-Emission sowie die Verschiebung der Maxima bzw. Minima mit der relativen Phasenlage ϕ der akustischen Oberflächenwelle lässt sich anhand die Dynamik der Elektron-Loch-Paare im zugehörigen elektrischen Feld erklären. Dabei entscheidet die Phasenlage am Ort der Anregung der Exzitonen in der Typ-II Bandkantenmodulation über deren Verhalten. Aus dem sinusförmigen Verlauf der Potenziallandschaft der AOFW ergeben sich die in Abbildung 7.6 dargestellten Extremfälle der Verformung.

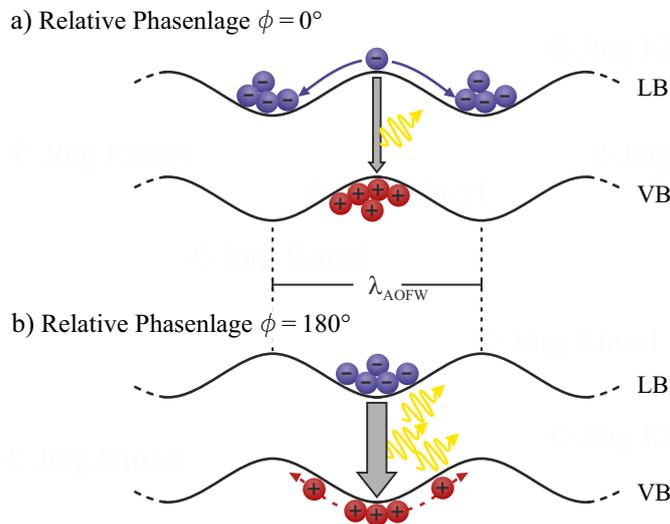


Abbildung 7.6: Schematische Darstellung des Verhaltens der Elektron-Loch-Paare innerhalb der Typ-II Bandkantenmodulation. Erzeugung der Ladungsträger bei der relativen Phasenlage von a) $\phi = 0^\circ$: Löcher besetzen das stabile Maximum im Valenzband, Elektronen entstehen am instabilen Punkt im Leitungsband. b) $\phi = 180^\circ$: Elektronen sitzen im stabilen Minimum im Leitungsband, Löcher im instabilen Punkt des Valenzbandes.

Bei einer relativen Phasenlage von $\phi = 0^\circ$ werden die Elektronen am instabilen Punkt im Leitungsband erzeugt, die Löcher besetzen das stabile Maximum im Valenzband. In der beschriebenen Konstellation werden bei genügend großer HF-Leistung die Elektronen vom Ort der Anregung weg beschleunigt und driften in Richtung der stabilen Minima zu beiden Seiten. Dies führt zu einer räumlichen Trennung der Ladungsträger entlang der c -Achse des Nanodrahts um $\Delta z_{\text{ND}} = \lambda_{\text{AOFW}}/2$, wodurch die strahlende Rekombination unterdrückt wird. Lediglich direkt nach der Anregung kommt es zu einer Rekombination eines Teils der Exzitonen, wodurch eine schwache PL-

Emission entsteht. Diese ist im Experiment für die Anhebung des Untergrundsignals des Detektors verantwortlich.

Bei dem in Abbildung 7.6 b) schematisch dargestellten Fall der relativen Phasenlage von $\phi = 180^\circ$ kommt es zur Umkehr der Anregungssituation, wobei die Elektronen nun den stabilen Punkt im Leitungsband besetzen. Auf Grund der geringeren Beweglichkeit μ_h der Löcher erzeugt die zu a) identische Feldstärke im Vergleich zur Dynamik der Elektronen geringere Beschleunigung der Löcher, sodass eine effektive Trennung verhindert wird und es zur ausgeprägten Photolumineszenz auch nach dem Moment der Anregung kommt.

Bei der beobachteten und beschriebenen zyklischen Modulation der PL-Emission handelt es sich somit um einen durch den Drift beziehungsweise die Diffusion der Löcher limitierten Effekt.

Aus der räumlichen Trennung der optisch angeregten freien Exzitonen im elektrischen Feld der akustischen Oberflächenwelle, entsteht ein zusätzlicher Verlustmechanismus welcher die Anzahl der Elektron-Loch-Paare in der Bandstruktur beeinflusst. Gleichung (2.10) erweitert sich durch diesen Mechanismus um den Anteil τ_{Diss} erweitern, welcher der Lebensdauer der Exzitonen vor deren Dissoziation in frei Ladungsträger beschreibt. Hieraus ergibt sich für die Zahl der Exzitonen im System:

$$\frac{dN}{dt} = -N \left(\frac{1}{\tau_S} + \frac{1}{\tau_{\text{NS}}} + \frac{1}{\tau_{\text{Diss}}} \right). \quad (7.1)$$

Im Fall der unpassivierten GaAs-Nanodrähte ist der nichtstrahlende Zerfall auf Grund der Lebensdauer von $\tau_{\text{NS}} < 30\text{ps}$ gegenüber dem 50-fach langsamer ablaufenden strahlenden Zerfall der dominierende Verlustkanal [DHB 10]. Damit ein Einfluss der AOFW auf die PL-Emission zu beobachten ist, muss der Trennungsmechanismus durch das elektrische Feld mindestens so schnell ablaufen wie die nichtstrahlende Rekombination. Anderenfalls würde es lediglich zu einer konstanten PL-Emission aus der strahlenden Rekombination der Ladungsträger aus dem Reservoir N kommen. Während dessen werden gleichzeitig Ladungsträger durch die nichtstrahlende Rekombination vernichtet. Aus dieser Überlegung ergibt sich:

$$\tau_{\text{Diss}} \leq \tau_{\text{NS}} < \tau_S \quad (7.2)$$

Nichtsdestotrotz werden die im Feld der AOFW dissoziierten und anschließend räumlich getrennten Elektronen und Löcher durch die nichtstrahlende Rekombination an ungesättigten Oberflächenzuständen weiterhin ausgelöscht. Dies verursacht zum einen die konstante Abnahme der Gesamtzahl der Ladungsträger im System, zum anderen verhindert der Verlust den Transport von Elektronen und Löchern entlang der Achse des Nanodrahts in den mit der AOFW propagierenden stabilen Punkten der Typ-II Bandkantenmodulation.

Eine Untersuchung der Charakteristika des strahlenden Zerfalls mittels zeitkorrelierter Einzelphotonenzählung unter gepulster Anregung liefert auf Grund des dominanten nicht strahlenden Verlustkanals keine aussagekräftigen Ergebnisse über die PL-Emission. Dennoch ist es möglich, die in Abbildung 7.6 sichtbare Phasenabhängigkeit der PL-Intensität durch stroboskopische Anregung unter konstanter Phasenlage aufzulösen. Auf dieses Messverfahren wird im nächsten Abschnitt weiter eingegangen.

7.2.3 Abhängigkeit der Unterdrückung der Photolumineszenz von der lokalen Phasenlage

Bei der Analyse der Abhängigkeit der PL-Intensität von der Phasenlage am Ort der Anregung kommt die in Kapitel 6.2 beschriebene starre Kopplung zwischen der Phasenlage der AOFW und dem anregendem Laserpuls zum Einsatz. Mit der geradzahli- gen Synchronisierung der Wiederholrate des Lasers gegenüber der Frequenz der AOFW nach Gleichung (6.2) ist es möglich, den Ort der Anregung der freien Exziton- en im Potenzial der Typ-II Bandkantenmodulation konstant zu halten und weiter durch Variation der Anregungsphase die relative Phasenlage ϕ zu ermitteln. Zusammen mit der Erfassung des Messsignals durch das Spektrometer, lässt sich eine zeit- integrierte Erfassung des stroboskopischen Messsignals realisieren, welche das Ver- halten der Ladungsträger im Moment der Anregung widerspiegelt.

Die mit diesem Verfahren aufgenommenen Spektren von Nanodraht B sind in Abbil- dung 7.7 zusammengefasst. Dabei kommt identisch zu Abbildung 7.3 eine Laserleist- ung von $P_{\text{Laser}} = 1,4 \mu\text{W}$ zum Einsatz. Die zur Modulation eingesetzte AOFW wird in allen vier dargestellten Fällen mit einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 27 \text{ dBm}$ angeregt. Wie schematisch dargestellt entsprechen die Falschfarbendarstellungen in der linken Spalte einer Ausbreitung der AOFW parallel zur c-Achse des Nanodrahts, die rechte Spalte entspricht dem senkrechten Auftreffen der AOFW auf den Nanodraht.

Wie man für die parallele Koinzidenz in Abbildung 7.7 a) & d) erkennen kann, weist das Spektrum der PL-Emission für beide eingesetzten Wellenlängen der AOFW eine Modulation der Intensität in Abhängigkeit der relativen Phasenlage auf. Dieses be- sitzt um die relative Phasenlage von $\phi = 180^\circ$ ein ausgeprägtes Maximum (rot) sowie ein Minimum bei $\phi = 0^\circ = 360^\circ$. Zwischen diesen Extrema kommt es, übereinstim- mend mit der zeitaufgelösten Messung in Abbildung 7.5, zu einem kontinuierlichen Absinken bzw. Ansteigen der PL-Intensität. Diese Variation spiegelt die direkte Ab- hängigkeit der Dynamik der Ladungsträgerseparation von der relativen Phasenlage am Ort der Anregung wieder, wie im vorhergehenden Abschnitt anhand der Modula- tion der zeitaufgelösten Messung beschrieben.

In Übereinstimmung mit dem Verhalten der PL-Intensität bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 27 \text{ dBm}$ in den nicht Phasen gekoppelten Messungen in Abbildung 7.3, zeigt sich im Fall der Phasenabhängigkeit bei senkrechten Koinzidenz in Abbil- dung 7.7 b) & e) eine deutlich schwächere Ausprägung der Modulation. Auch bei phasenstarrer Kopplung ist das Auftreten einer Änderung der PL-Intensität der leich- ten Verkipfung der Nanodrähte gegenüber der Ausbreitungsrichtung zuzuschreiben. Zur besseren Übersicht der Modulation bei der jeweiligen Wellenlänge und Rich- tung des Auftreffend der AOFW ist in Abbildung 7.7 c) & f) die Gesamtintensität der Spektren in einem Bereich von $\lambda = 808$ bis 818 nm angetragen. Rote Dreiecke entsprechen dabei der parallel zum Nanodraht verlaufenden Propagation der AOFW, schwarze Dreiecke der senkrechten. Die dabei auftretenden PL-Intensitäten in Ab- hängigkeit der relativen Phasenlage am Ort der Anregung lassen sich in guter Über- einstimmung durch eine Sinus-Funktion anpassen, welche gleichzeitig den Verlauf der Feldstärke in der Typ-II Bandkantenmodulation repräsentiert.

Ein Quantifizierung der Modulation der PL-Emission durch den Einfluss einer akusti- schen Oberflächenwelle lässt sich durch die Einführung eines relativen Verhältnisses der Unterdrückung der Photolumineszenz η erreichen.

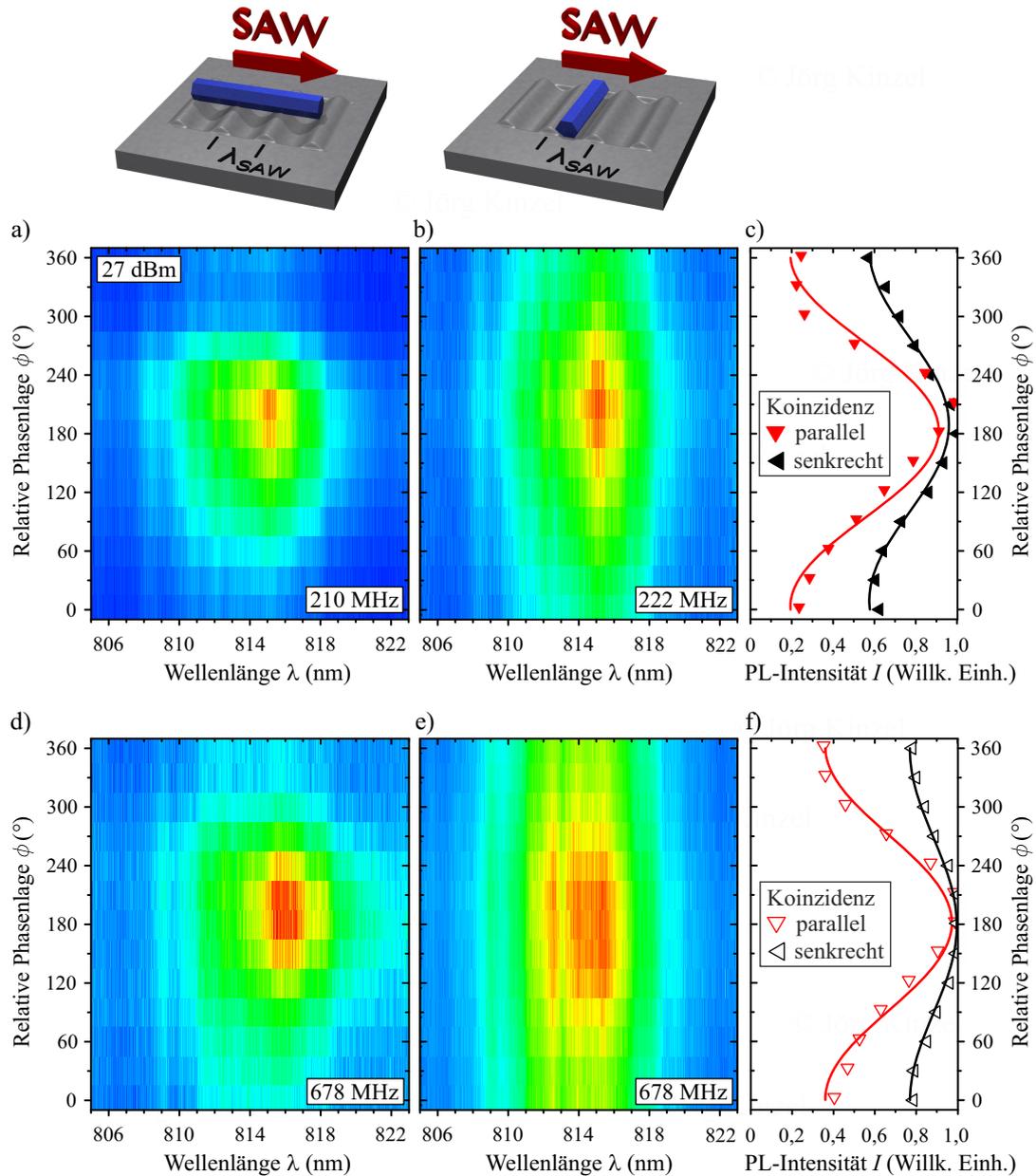


Abbildung 7.7: Falschfarbendarstellung der Phasen- und Richtungsabhängigkeit der PL-Intensität von der Koinzidenz der AOFW mit dem Laserpuls auf der Achse von Nanodraht B. Linke Spalte: Propagation der AOFW mit einer Leistung von $P_{\text{HF}} = 27 \text{ dBm}$ und einer Frequenz von a) $f_{\text{res}} = 210 \text{ MHz}$ beziehungsweise d) $f_{\text{res}} = 678 \text{ MHz}$ parallel Nanodrahtachse. Mitte: Senkrechte Koinzidenz bei einer Resonanzfrequenz von b) $f_{\text{res}} = 222 \text{ MHz}$ und e) $f_{\text{res}} = 678 \text{ MHz}$. Rechte Spalte: Zusammenfassung der PL-Intensität durch Integration des Spektrums der PL-Emission von $\lambda = 808 - 818 \text{ nm}$ in c) für die AOFW mit den Frequenzen um $f_{\text{res}} = 220 \text{ MHz}$ und e) für die Resonanzfrequenz des zweiten Schallwandlerpaars von $f_{\text{res}} = 678 \text{ MHz}$. Regression der PL-Intensität durch Sinus-Funktion.

Für dieses gilt:

$$\eta = \frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}}. \quad (7.3)$$

Dabei stellt $I_{\max/\min}$ das aus der Regression der PL-Intensität ermittelte Maximum bzw. Minimum der Emission in Abbildung 7.7 c) & f) dar. Die sich hieraus ergebenden Werte sind in Tabelle 7.1 zusammen mit dem Verhältnis der Modulation aus der zeitaufgelösten Messung in Abbildung 7.5 angetragen.

Untersuchter Nanodraht	Koinzidenz	Frequenz [MHz]	
Zeitintegrierte Messung:		210/222	678
B	parallel	$0,66 \pm 0,15$	$0,46 \pm 0,07$
B	senkrecht	$0,25 \pm 0,05$	$0,13 \pm 0,05$
Zeitaufgelöste Messung:		222	
A	parallel	$0,64 \pm 0,13$	

Tabelle 7.1: Zusammenfassung der ermittelten Verhältnisse der PL-Unterdrückung bei verschiedenen Einfallrichtungen der AOFW zur c-Achse des Nanodraht in zeitintegrierter sowie zeitaufgelöster Detektion

Bei den ermittelten Verhältnissen fällt zunächst die im Rahmen der Messgenauigkeit vergleichbare Effizienz der Unterdrückung der PL-Intensität für beide Anregungsfrequenzen in paralleler Geometrie auf. Im deutlichen Abfall der PL-Intensität für das Minimum der Emission zeigt sich für beide Anregungsfrequenzen eine effektive Trennung der Elektron-Loch-Paare im Falle Anregung bei der relativen Phasenlage von $\phi = 0^\circ$. Gleichzeitig werden die separierten Ladungsträger im weiteren zeitlichen Verlauf durch den dominanten nicht-strahlenden Zerfall ausgelöscht, wie anhand Gleichung (7.2) beschrieben.

Eine identische Effizienz der Modulation ergibt sich in der zeitaufgelösten Erfassung des PL-Signals in Abbildung 7.5 für die parallele Ausbreitung der AOFW zu Nanodraht A, bei identischer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 27 \text{ dBm}$.

Aus der sinusförmigen Modulation des PL-Signals lässt sich aus der stroboskopischen Messmethode ableiten, dass das Feld am Ort der Anregung der Ladungsträger auf Grund ihrer niedrigen Beweglichkeit und kurzen Lebensdauer als quasi-stationär angesehen werden kann. Dynamische Effekte wie die Ausbreitung der Elektronen oder Löcher mit der propagierenden AOFW lassen sich an den unpassivierten Nanodrähten nicht beobachten.

Eine Möglichkeit zur Abschnürung der dominierenden nicht-strahlenden Rekombination des GaAs-Nanodrahts ist die Abschirmung der Ladungsträger von der Oberfläche durch die Erzeugung eines Einschlusspotenzials. Dieses lässt sich durch die Ummantelung des GaAs-Nanodrahts mit einer $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Hülle erzielen. Die daraus folgende Variation der Ladungsträgerverteilung an der Grenzfläche auf die optische Emission [WS85] sowie die Auswirkung auf das Verhalten der Ladungsträger in der sich dynamisch ausbreitenden akustischen Oberflächenwelle ist im nächsten Kapitel erläutert.

8 Optische Emission von GaAs/Al_{0,3}Ga_{0,7}As-Kern/Mantel-Nanodrähten

Nach der Erfassung der grundlegenden Merkmale bei der Modulation der optischen Emission von unpassivierten GaAs-Nanodrähten, folgt in diesem Kapitel die Analyse der Auswirkungen eines Al_{0,3}Ga_{0,7}As-Mantels auf die Photolumineszenz des intrinsischen GaAs-Kerns im Nanodraht. Weiter wird das für die Photolumineszenz verantwortliche Verhalten der Ladungsträgerpaare im Kern der modifizierten Nanodrähte unter dem Einfluss des elektrischen Felds der akustischen Oberflächenwelle analysiert.

8.1 Charakterisierung Photolumineszenz der Kern/Mantel-Nanodrähte

Zur Vorstellung der in den folgenden Kapiteln 8, 9 und 10 eingesetzten Proben erfolgt zunächst eine Charakterisierung der GaAs/Al_{0,3}Ga_{0,7}As/GaAs-Kern/Mantel-Nanodrähte. Deren schematischer Aufbau und ein Vergleich der PL-Emissionsspektren der eingesetzten Nanodrähte sind in Abbildung 8.1 gezeigt.

Anhand der REM-Aufnahme eines typischen Kern/Mantel-Nanodrahts der Typ-II Probencharge in Abbildung 8.1 a) ergibt sich dessen Länge zu $z_{\text{ND}} = (15 \pm 1) \mu\text{m}$, ähnlich den unpassivierten Nanodrähten. Entlang der gesamten Länge weist dieser einen annähernd konstanten Durchmesser von $d_{\text{ND}} = (130 \pm 10) \text{nm}$ aufweist, wie in den Detailaufnahmen von Spitze (links) und Fußpunkt (rechts) zu sehen. Bei genauer Betrachtung des vergrößerten Nanodrahts fällt ferner auf, dass diese immer plan auf einer der ununterscheidbaren Seitenfacetten liegen.

Den zugehörige hexagonale Aufbau des Kern/Mantel-Nanodrahts ist unterhalb als schematisches Schnittbild, sowie perspektivisch, dargestellt. Hierbei bildet ein aus intrinsischen GaAs bestehender Kern (blau) mit einem Durchmesser von 60 bis 80 nm das optisch aktive Medium. Dieser wird von einem 24 nm starken Al_{0,3}Ga_{0,7}As-Mantel (rot) umgeben, welcher die unterminierten Zustände an der GaAs-Oberfläche des Kerns sättigt und durch die größere Bandlücke $E_{\text{g,AlGaAs}}$ ein Einschlusspotenzial durch eine Typ-I Bandkantenmodulation erzeugt, wie in Abschnitt 2.2.1 erläutert. Zum Schutz des im Mantel enthaltenen Aluminiumanteils gegen Oxidation, werden die Nanodrähte als letzter Schritt in der Herstellung mit einer 10 nm dicken GaAs-Hülle (blau) überzogen. In der Summe der Radien der einzelnen Komponenten ergibt sich der in der elektronenmikroskopischen Aufnahme ermittelte Durchmesser.

Die aus der so synthetisierten Kern/Mantel-Struktur resultierenden PL-Spektren der eingesetzten Nanodrähte C bis G sind in Abbildung 8.1 b) für eine cw-äquivalente Anregungsleistung des gepulsten Lasers von $P_{\text{Laser}} = (400 \pm 50) \text{ nW}$ angetragen. Dabei zeigt sich das Maximum der Emission aller untersuchten Nanodrähte bei einer Wellenlänge von $\lambda = (813 \pm 8) \text{ nm}$. Gegenüber den unpassivierten Nanodrähten in Abbildung 7.1 zeigt sich eine identische Verschiebung der Wellenlänge gegenüber der Übergangsenergie des freien Exzitons von $E_G = 1,515 \text{ eV} \hat{=} 818,4 \text{ nm}$ in der Zinkblende-Struktur von GaAs. Dies bestärkt die Annahme, dass die auf verschiedenen LiNbO_{3-x}-Proben systematisch auftretende Verschiebung der Wellenlänge der PL-Emission auf eine Verspannung des Nanodrahts während dem Abkühlvorgang zurückzuführen ist.

Die gemessene Intensität der Photolumineszenz zeigt hingegen einen Anstieg der Helligkeit um das 25-fache. Dies ist eine direkte Folge der unterdrückten nichtstrahlenden Rekombination der Elektron-Loch-Paare an der Oberfläche [DHB 10]. Hierdurch ergibt sich eine Verschiebung der Dominanz in dem durch Gleichung (7.1) beschriebenen Zerfallsprozess der freien Exzitonen und Ladungsträger auf die strahlende Rekombination.

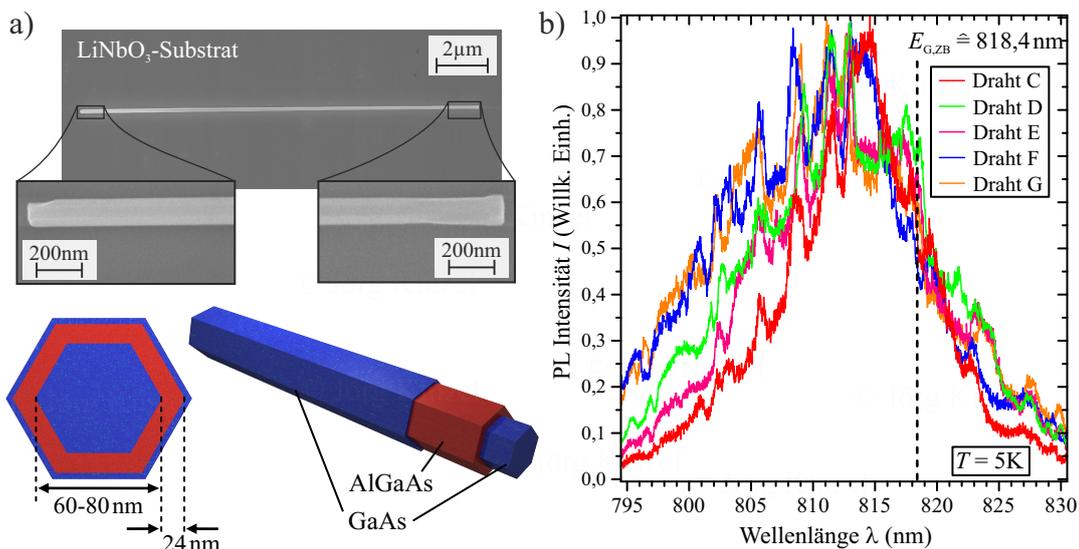


Abbildung 8.1: Eigenschaften der Kern/Mantel-Nanodrähte a) Oben: REM-Aufnahme eines transferierten Kern/Mantel-Nanodrahts mit Detailvergrößerungen des Kopf- und Fußbereichs. Unten: Schematischer Aufbau sowie Querschnitt des Nanodrahts. Blau: GaAs, rot: AlGaAs. b) Vergleich der ungestörten PL-Spektren der Nanodrähte C bis G im 0,5 m Gitterspektrometer bei gepulster Anregung.

Die Form des Emissionspeaks wird beim Vergleich der Nanodrähte weiterhin durch das Etaloning des CCD-Detektors überlagert. Dabei kommt es je nach eingestellter Mittenwellenlänge des Gitters im Spektrometer zu einer Veränderung der Geometrie der Mehrfachreflexion und somit der Form des Maximums, welche hier insgesamt deutlich stärker ausgeprägt sind. Unter Beachtung der Ablesegenauigkeit liegen jedoch alle Spektren im Fehlerbereich der ermittelten Wellenlänge.

Eine Beeinflussung des Ladungsträgersystems im Kern durch Ladungsträger aus dem

$\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Mantel ist ausgeschlossen, da die Anregungsenergie des gepulsten Diodenlasers mit $E_{\text{Laser}} = 1,88\text{eV}$ niedriger ist, als die Bandlücke des $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Mantels mit $E_{\text{g,AlGaAs}} = 1,937\text{eV}$ [VMRM01]. Ebenso ist ein Beitrag zur PL-Emission der äußeren Oxidationsbarriere aus intrinsischem GaAs auf Grund der unterminierten Oberflächenzustände zu vernachlässigen, da angeregte Ladungsträger in dieser dünnen GaAs-Schicht analog den unpassivierten Nanodrähten sofort nicht-strahlend rekombinieren.

Die sich aus der Verbesserung der Ladungsträgersystems im Kern der Kern/Mantel-Nanodrähte ergebenden Charakteristika der PL-Emission werden im Folgenden durch die Modulation im elektrischen Feld der AOFW untersucht.

8.2 Leistungs- und Phasenabhängigkeit der PL-Unterdrückung

Zu Beginn der Analyse der optischen Emission der Kern/Mantel-Nanodrähte unter dem Einfluss einer AOFW wird anhand der Abhängigkeit der PL-Intensität von der angelegten HF-Leistung der Durchgriff des elektrischen Felds auf die im Kern angeregten freien Exzitonen untersucht. Hierdurch können Abschirmungseffekt des umgebenden Mantels oder der Oxidationsbarriere ausgeschlossen werden.

Bei der in Abbildung 8.2 gezeigten Abnahme der PL-Intensität mit der Zunahme der am Schallwandler angelegten HF-Leistung zur Anregung einer AOFW, kommt an dieser Stelle und für alle weiteren Messungen in den Kapiteln 8 bis 10 die parallele Konfiguration zum Einsatz. Wie in Abbildung 8.2 b) schematisch dargestellt, breitet sich die AOFW dabei parallel zur c-Achse des Nanodrahts aus. Auf Grund der Selektion von Kern/Mantel-Nanodrähten mit horizontaler Ausrichtung auf dem piezoelektrischen Substrat während der Präparation, entspricht dies der Ausbreitung der AOFW in Z-Richtung des YZ-LiNbO_{3-x} -Kristalls.

Die in Abbildung 8.2 a) als Falschfarbendarstellung gezeigten PL-Spektren weisen bereits bei einer Anregungsleistung des Laser von $P_{\text{Laser}} = 390\text{nW}$ ein ausgeprägtes Maximum bei $\lambda = (813 \pm 5)\text{nm}$ auf. Die von Abbildung 8.1 abweichende Form des Spektrums entsteht aus dem hier eingesetzten $0,75\text{m}$ -Spektrometer in Verbindung mit einem für den nahen IR-Bereich optimierten CCD-Detektor. Dieser besitzen auf Grund des verwendeten Siliziums mit hohem Widerstand sowie hoher Dotierung und einhergehender starker Verarmungszone (engl. deep depletion) eine gesteigerte Quanteneffizienz für Photonen im untersuchten nahen IR-Spektralbereich.

Nach Aktivierung der akustischen Oberflächenwelle mit einer Anregungsfrequenz von $f_{\text{res}} = 194\text{MHz}$ und ohne starre Kopplung der Anregungsphase erkennt man einen linearer Abfall der PL-Intensität, sobald der Einsatzpunkt der Ladungsträgerseparation bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 3\text{dBm}$ überschritten ist. Dieser kontinuierliche Abfall setzt sich bis zum Erreichen der maximalen HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 32\text{dBm}$ fort.

In Übereinstimmung mit der in Abbildung 7.2 beobachteten Unterdrückung der PL-Emission an unpassivierten GaAs-Nanodrähten, führt die Typ-II Bandkantenmodulation in Kern/Mantel-Nanodrähten zu einer Dissoziation der optisch Angeregten Exzitonen in freie Ladungsträger. Diese sammeln sich auf Grund der Driftbewegung

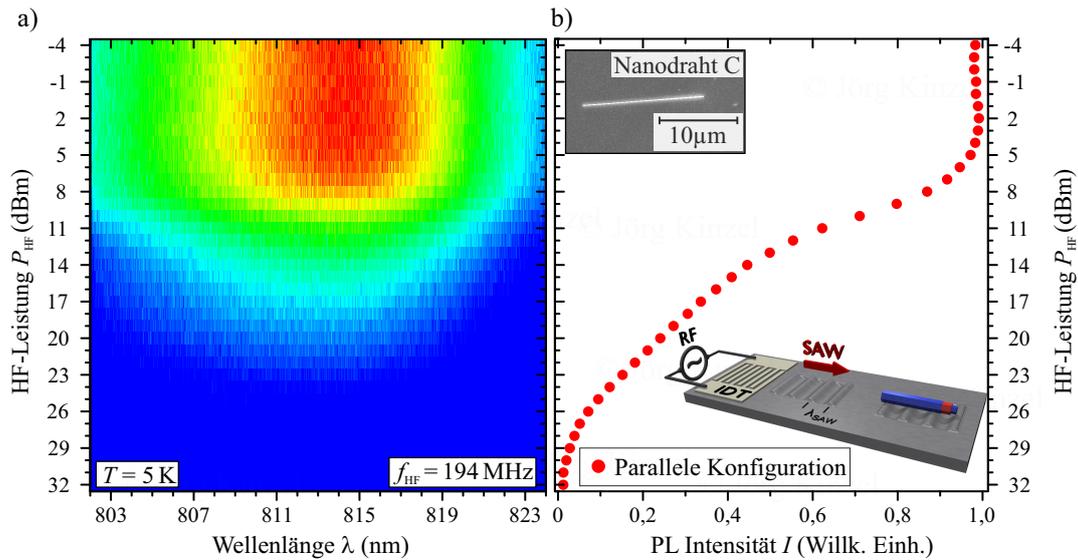


Abbildung 8.2: Photolumineszenz des Kern/Mantel-Nanodrahts C unter dem Einfluss der AOFW ohne starre Kopplung der Phase an den Anregungslaser. a) Unterdrückung der PL-Emission bei ansteigender HF-Leistung P_{HF} . b) Zusammenfassung der PL-Intensität bei paralleler Konfiguration durch Integration des Emissionsspektrums im Bereich von $\lambda = 808 - 818$ nm. Im Detailausschnitt: REM-Aufnahme des Nanodrahts sowie schematische Darstellung der Probengeometrie.

im elektrischen Feld und der verlängerten Lebensdauer im Kern/Mantel-Nanodraht in den energetischen Minima im Leitungs- und Valenzband. Die damit einhergehende räumlich Trennung der Ladungsträgertypen entspricht bei dem YZ-Kristallschnitt des eingesetzten LiNbO_{3-x} einem Abstand von $\Delta z = \lambda_{AOFW}/2 = 8,9 \mu\text{m}$.

Bei HF-Leistungen unterhalb des Einsatzpunkts der Ladungsträgerseparation ergibt sich im integrierten PL-Signal in Abbildung 8.2 b) im Leistungsbereich von $P_{HF} = -4$ dBm bis 2 dBm eine Senke der PL-Intensität. Bei dieser niedrigen HF-Anregung reicht die elektrische Feldstärke der AOFW nicht aus um die Elektron-Loch-Paare räumlich zu trennen, jedoch wirkt das Feld der AOFW der ungehinderten Diffusion der Exzitonen im Nanodraht entgegen. Hierbei führt vor allem die Komprimierung der Elektronen an den Ort der Anregung zu einem erhöhten Überlapp und damit zu einer Steigerung der PL-Intensität vor dem eigentlichen Einsatz der Unterdrückung. Aus dem beobachteten Absinken der PL-Intensität unter dem Einfluss der AOFW kann ein Abschirmungseffekt durch den Al_{0,3}Ga_{0,7}As-Mantel oder der GaAs-Oxidationsbarriere gegenüber dem Kern vernachlässigt werden. Dieser würde einen Durchgriff des elektrischen Feldes auf die Ladungsträger mit einhergehender Separation verhindern. Lediglich die im Kern optisch angeregten Ladungsträger erzeugen eine intrinsische Abschirmung gegenüber einem äußeren Feld auf, welche jedoch auf Grund der Feldstärke der AOFW auf dem eingesetzten LiNbO_{3-x} im kV/cm-Bereich keinen entscheidenden Einfluss besitzt [RYL09].

Nach der Überprüfung der Abhängigkeit der Ladungsträgerseparation im Kern/Mantel-Nanodraht von der elektrischen Feldstärke der akustischen Oberflächenwelle, wird im folgenden der Einfluss der relativen Phasenlage der AOFW am Ort der Anregung auf die PL-Emission untersucht. Zu diesem Zweck erfolgt analog der Analyse der

Phasenabhängigkeit der Photolumineszenz der unpassivierten GaAs-Nanodrähte in Kapitel 7.2.3, die Erfassung der Spektren bei stroboskopischer Anregung und starrer Kopplung der Phasenlage zwischen AOFW und Laserpuls am Anregungspunkt. Die bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 23 \text{ dBm}$ in Abhängigkeit der relativen Phasenlage ϕ ermittelten PL-Spektren sind in Abbildung 8.3 a) als Falschfarbendiagramm zusammengefasst. Hierbei zeigt sich neben dem erwarteten Maximum (rot) der PL-Emission bei einer relativen Phasenlage von $\phi = 180^\circ$ ein Nebenmaximum bei einer Phasenlage von $\phi = (330 \pm 30)^\circ$. Zusätzlich entsteht bei der Phasenlage von $\phi = (90 \pm 30)^\circ$ ein vollständiges Ausbleiben der PL-Emission sowie bei $\phi = (270 \pm 30)^\circ$ zur Andeutung eines zweiten Minimums. Das trotz des Einsatzes einer vergleichbaren HF-Leistung von den unpassivierten Nanodrähten abweichende Verhalten der PL-Emission, lässt sich mit der dynamischen Ausbreitung der Ladungsträger durch den Transport im Kern der Nanodrähte durch das elektrische Feld der AOFW beschreiben.

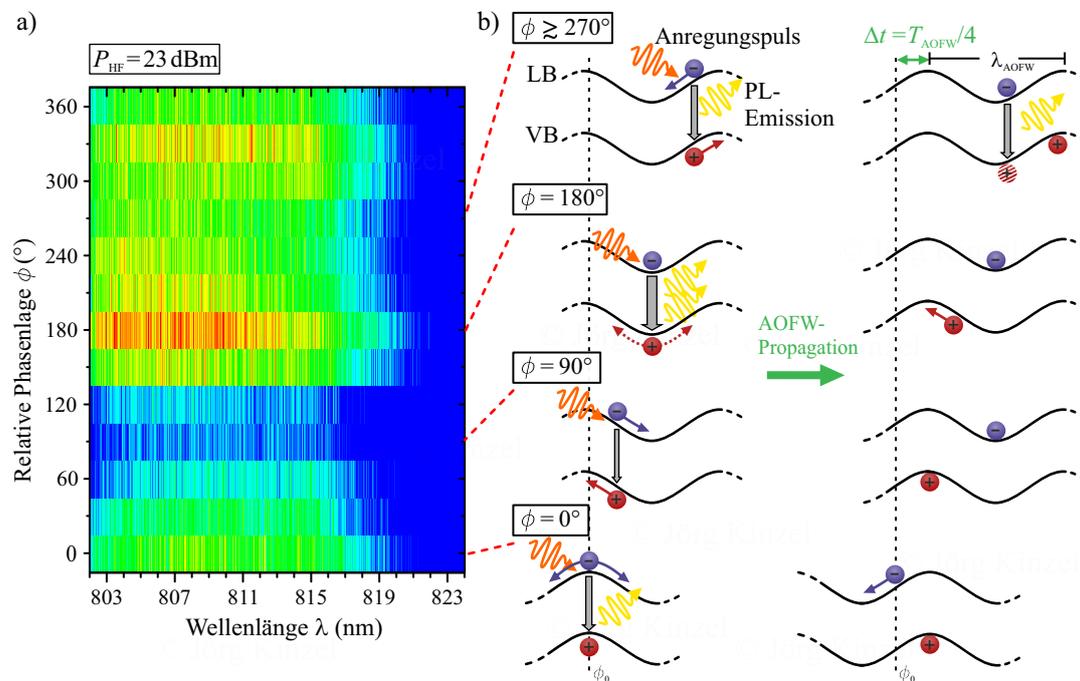


Abbildung 8.3: Analyse der PL-Emission des Kern/Mantel-Nanodrahts C unter phasenstarrer Kopplung der Anregung bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 23 \text{ dBm}$. a) Abhängigkeit der Intensität der PL-Spektren von der relativen Phasenlage. Rot dargestellt ist das Maximum des PL-Signals bei zeitintegrierter Detektion, blau das Minimum der Emission. b) Schematische Darstellung der Dynamik der Ladungsträger innerhalb der Typ-II Bandkantenmodulation. Die Breite der grauen Pfeile repräsentiert die Stärke der PL-Emission.

Wie in der schematischen Darstellung der Ladungsträgerdynamik in Abbildung 8.3 b) bei einer Phasenlage von $\phi = 0^\circ$ zu sehen, kommt es in dieser Situation, analog dem Verhalten für die unpassivierten Nanodrähte in Abbildung 7.6 a), zu einer Anregung der Elektronen im instabilen Maximum des Leitungsbandes, wohingegen Löcher das stabile Maximum im Valenzband besetzen. Vom Ort der Anregung am instabilen

Punkt werden die Elektronen auf Grund des elektrischen Felds aus dem vorherrschenden Potenzialgradienten zu beiden Seiten in Richtung der stabilen Minima beschleunigt und räumlich von den Löchern getrennt.

Betrachtet man die zeitliche Entwicklung des Aufenthaltsorts der Ladungsträger innerhalb der sich mit der AOFW ausbreitenden Typ-II Bandkantenmodulation, so ergibt sich für die angelegte HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 23 \text{ dBm}$ ein einsetzender Transport der Löcher im Maximum des Valenzbandes, wie in Abbildung 8.3 b) für $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/4$ unten rechts schematisch gezeigt. Die Elektronen werden hingegen zunächst entgegen der Propagationsrichtung in das Minimum beschleunigt. Somit verlassen die Löcher mit der Ausbreitung der AOFW den Ort der Anregung, während die Elektronen der abfallenden Flanke der Modulation folgen und es kommt lediglich bei der Erzeugung der Elektron-Loch-Paare zu einer direkten Rekombination und PL-Emission. Hieraus ergibt sich insgesamt eine verminderte PL-Intensität für die relative Phasenlage von $\phi = 0^\circ$.

Werden die Ladungsträgerpaare bei einer relativen Phasenlage von $\phi = 90^\circ$ angeregt, so entstehen diese am Punkt der größten Steigung im Potenzialgefälle und damit maximaler Beschleunigung im elektrischen Feld. Dies führt zur sofortigen räumlichen Trennung des Elektron-Loch-Paars in die entgegengesetzten Richtung der stabilen Punkte. Im vorliegenden Fall bedeutet dies eine Beschleunigung der Elektronen vom Ort der Anregung weggerichtet in die Ausbreitungsrichtung der AOFW nach rechts, die Löcher werden umgekehrt nach links beschleunigt. Da die Elektronen auf Grund der gegenüber den Löchern höheren Beweglichkeit bereits bei kleineren Feldstärken vollständig in das stabile Minimum transferiert werden, ergibt sich bei der angelegten HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 23 \text{ dBm}$ eine effiziente Separation.

Die Trennung bleibt auch in der sich mit der AOFW ausbreitenden Bandkantenmodulation erhalten. Da die Elektronen zum Zeitpunkt $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/4$ den Ort der Anregung vollständig verlassen, führt der Rücktransport der Löcher an diesen Punkt zu keinem erneuten Überlapp, wie in Abbildung 8.3 b) für $\phi = 90^\circ$ rechts gezeigt. Somit kommt es bei dieser Phasenlage zu keiner Zeit zu einer strahlenden Rekombination, welche das Untergrundrauschen des Detektors übersteigt.

Die bei der relativen Phasenlage von $\phi = 180^\circ$ auftretende höchste PL-Intensität rührt aus der direkten Rekombination der erzeugten Elektron-Loch-Paare am Ort der Anregung her. Wie in Abbildung 8.3 b) zu sehen, entsteht dieses Verhalten aus der Anregung der Elektronen im stabilen Punkt des Leitungsbandes. Trotz der Anregung der Löcher am instabilen Punkt im Valenzband führt dieses Arrangement auf Grund der niedrigeren Beweglichkeit der Löcher zur höchsten Rekombinationsrate und damit maximalen PL-Intensität. Verstärkt wird dieses remanente Verhalten der Löcher, da am Punkt der Anregung im Scheitel der Bandkantenmodulation zugleich die geringste Feldstärke zur Erzeugung der Driftbewegung herrscht. Somit unterscheidet sich die Dynamik bei dieser Phasenlage nicht vom Punkt der maximalen PL-Emission der unpassivierten Nanodrähte in Abschnitt 7.2.2.

Erst mit der Propagation der AOFW in Ausbreitungsrichtung gelangen die Löcher in den Bereich höherer Feldstärke und werden in Richtung des Maximums des Valenzbandes beschleunigt. Gleichzeitig haben die verbleibenden Elektronen den Ort der Anregung im Minimum des Leitungsbandes verlassen, sodass auf Grund der räumlichen Trennung keine Verstärkung der Intensität durch verzögerte Rekombination nach $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/4$ stattfindet.

Bei einer Phasenlage von $\phi \gtrsim 270^\circ$ kommt es abermals zur Erzeugung der Ladungsträger am Ort maximaler Feldstärke. Im Gegensatz zur Phasenlage von $\phi = 90^\circ$, werden im vorliegenden Fall die Elektronen entgegen der Ausbreitungsrichtung beschleunigt, die Löcher umgekehrt in Propagationsrichtung der AOFW, wie in Abbildung 8.3 b) verdeutlicht.

Durch die Ausbreitung der Bandkantenmodulation mit der akustischen Oberflächenwelle kommt es nach der Zeitspanne $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/4$ zu einem vollständigen Rückfluss der Elektronen an den Ort der Anregung, wo diese auf die Löcher treffen, welche auf Grund ihrer geringeren Beweglichkeit weniger effizient im Feld der AOFW beschleunigt werden. Der wiederhergestellte Überlapp zwischen den Elektronen und den schraffiert symbolisierten Löchern sorgt durch zusätzliche Ladungsträgerrekombination für eine Verstärkung der PL-Emission.

Mit zunehmender relativen Phasenlage und damit einem entlang der ansteigenden Flanke der Bandkantenmodulation wandernden Anregungspunkt nimmt die Effizienz der Separation auf Grund der fallenden elektrischen Feldstärke ab, sodass ein wachsender Teil der Exzitonen direkt bei der Anregung rekombiniert. Zusätzlich entsteht aus der dabei abnehmenden Feldstärke eine verringerte räumliche Trennung und damit durch die Propagation ein zügig wiederhergestellter Überlapp des zunächst separierten Anteils der Ladungsträger. Dieses Verhalten führt bei der Phasenlage von $\phi = (330 \pm 30)^\circ$ zur Ausbildung des Nebenmaximums in der Falschfarbendarstellung.

Mit Annäherung an die relative Phasenlage von $\phi = 360^\circ$ zeigen die Elektron-Loch-Paare im Verhalten einen fließenden Übergang zur Situation zu Beginn des Abschnitts bei der Phasenlage von $\phi = 0^\circ$. Die dabei durch die Driftbewegung im elektrischen Feld in Ausbreitungsrichtung beschleunigten Elektronen tragen nicht mehr zur Rekombination bei, sodass insgesamt ein Abfall der Intensität gegenüber dem Maximum bei $\phi = (330 \pm 30)^\circ$ zu beobachten ist.

Somit übt das je nach Phasenlage differenzierte Verhalten der erzeugten Ladungsträger einen entscheidenden Einfluss auf das Auftreten des Nebenmaximum in der PL-Emission aus.

Die durch die Gleichungen (4.5) und (4.6) beschriebene Abhängigkeit der Driftbewegung der Ladungsträger im elektrischen Feld von deren Beweglichkeit $\mu_{e,h}$, impliziert durch die unterschiedlichen Werte für Elektronen und Löcher eine abweichende Dynamik der Ladungsträgerspezies bei gleicher Feldstärke. Hierdurch lässt sich das Verhalten von Elektronen und Löchern in der Typ-II Bandkantenmodulation und damit deren Rekombination durch die Variation der HF-Leistung differenziert steuern. Die sich hieraus ergebende Variation der PL-Emission in Abhängigkeit der relativen Phasenlage ist in Abbildung 8.4 als Falschfarbendarstellung für sechs HF-Leistungen bei phasenstarrer Anregung zusammengetragen.

In Abbildung 8.4 a) zeigt sich für eine HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -4 \text{ dBm}$ eine minimale Modulation der PL-Emission. Diese weist analog der Phasenabhängigkeit von unpassivierten Nanodrähten in Abbildung 7.7 a) ein Intensitätsmaximum bei einer relativen Phasenlage von $\phi = (180 \pm 30)^\circ$ auf. Im Gegensatz zu diesem Verhalten lässt sich aus der Messung der PL-Intensität in Abbildung 8.2 bei identischer HF-Leistung keine Modulation erwarten.

Erst bei achtfacher Leistung mit $P_{\text{HF}} = 5 \text{ dBm}$ kommt es zum Einsatz einer effizienten Unterdrückung der PL-Intensität in der Messung ohne Phasenkopplung, was sich bei

starrer Kopplung der Phase in Abbildung 8.4 b) als voranschreitende Ausprägung des Maximums äußert. Dieses befindet sich weiterhin bei der relativen Phasenlage von $\phi = (180 \pm 30)^\circ$. In der entgegengesetzten Situation bei einer relativen Phase von $\phi = 0^\circ = 360^\circ$ führt die einsetzende Separation der Elektron-Loch-Paare am Ort der Anregung zu einer Abschwächung der PL-Intensität, was in der Falschfarbendarstellung durch den gelben Farbton repräsentiert ist.

Eine weitere Vervierfachung der Leistung auf $P_{\text{HF}} = 11$ dBm resultiert in dem deutlichen Heraustreten des Maximums der PL-Emission, wie in Abbildung 8.4 c) zu sehen.

Dies deckt sich mit dem Abfall der PL-Emission in Abbildung 8.2 b), in welcher die Intensität bei einer Leistung von $P_{\text{HF}} = 11$ dBm die Intensität auf einen Wert von 0,6 abgesunken ist. Die deutliche Abnahme der PL-Intensität bei der Phasenlage von $\phi = (0 \pm 30)^\circ$ auf ein Viertel des ursprünglichen Werts, zeugt von der effizienten Dissoziation der Exzitonen und Separation der Elektronen von den Löchern innerhalb der Typ-II Bandkantenmodulation. Die auffallend asymmetrische Form des Intensitätsmaximums entsteht hingegen nicht aus der Separation der Elektron-Loch-Paare, sondern aus dem einsetzenden Transport der Elektronen in Ausbreitungsrichtung der AOFW. Hierbei werden die Elektronen durch die maximale Feldstärke bei einer Phasenlage von $\phi = (60 \pm 30)^\circ$ am stärksten in Ausbreitungsrichtung beschleunigt, was einen erhöhten Abzug aus dem Gebiet der Detektion der strahlenden Rekombination bewirkt.

Die zunehmende Modulation der PL-Intensität, welche der Steigerung der HF-Leistung auf $P_{\text{HF}} = 17$ dBm entspringt, ist in Abbildung 8.4 d) zu sehen und verdeutlicht diesen Effekt. Dabei setzt bei der relativen Phasenlage von $\phi = (60 \pm 30)^\circ$ die Ausbildung eines absoluten Minimums der PL-Emission ein. Der durch die zunehmende Feldstärke effektive Transport der Elektronen in Ausbreitungsrichtung, als auch der einsetzende Drift der Löcher entgegen der Ausbreitungsrichtung sorgen bei dieser Phasenlage für eine sofortige räumlich Trennung der Ladungsträger und damit Unterdrückung der PL-Emission.

Die identische elektrische Feldstärke herrscht mit umgekehrten Vorzeichen bei einer Phasenlage von $\phi = (240 \pm 30)^\circ$. Hier bewirkt der einsetzende Drift der Löcher in Ausbreitungsrichtung sowie die effektive Beschleunigung der Elektronen entgegen der Propagation der AOFW eine Reduzierung des Überlapps zwischen den Ladungsträgerpaaren am Ort der Anregung. Die teilweise Separation der Ladungsträger bleibt ebenso während des dynamischen Rückflusses der Elektronen mit der sich ausbreitenden AOFW erhalten, so dass es insgesamt in der zeitintegrierten Messung zur Ausbildung eines zweiten Minimums kommt, welches gegenüber dem zuvor beschriebenen globalen Minimum eine geringere Intensität aufweist.

Bei der anschließenden relativen Phasenlage von $\phi = (300 \pm 30)^\circ$ werden die Löcher auf Grund der kleineren Feldstärke am Punkt der Anregung nicht mehr effektiv in Ausbreitungsrichtung beschleunigt und rekombinieren mit den im Feld der AOFW transportierten Elektronen im Rückfluss, was zu einem Anstieg der PL-Intensität führt.

Dessen ungeachtet kommt es bei der relativen Phasenlage von $\phi = (150 \pm 30)^\circ$ weiterhin zur direkten Rekombination der Elektron-Loch-Paare nach der Anregung.

Mit Erreichen der HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 23$ dBm und damit einer höheren Beschleu-

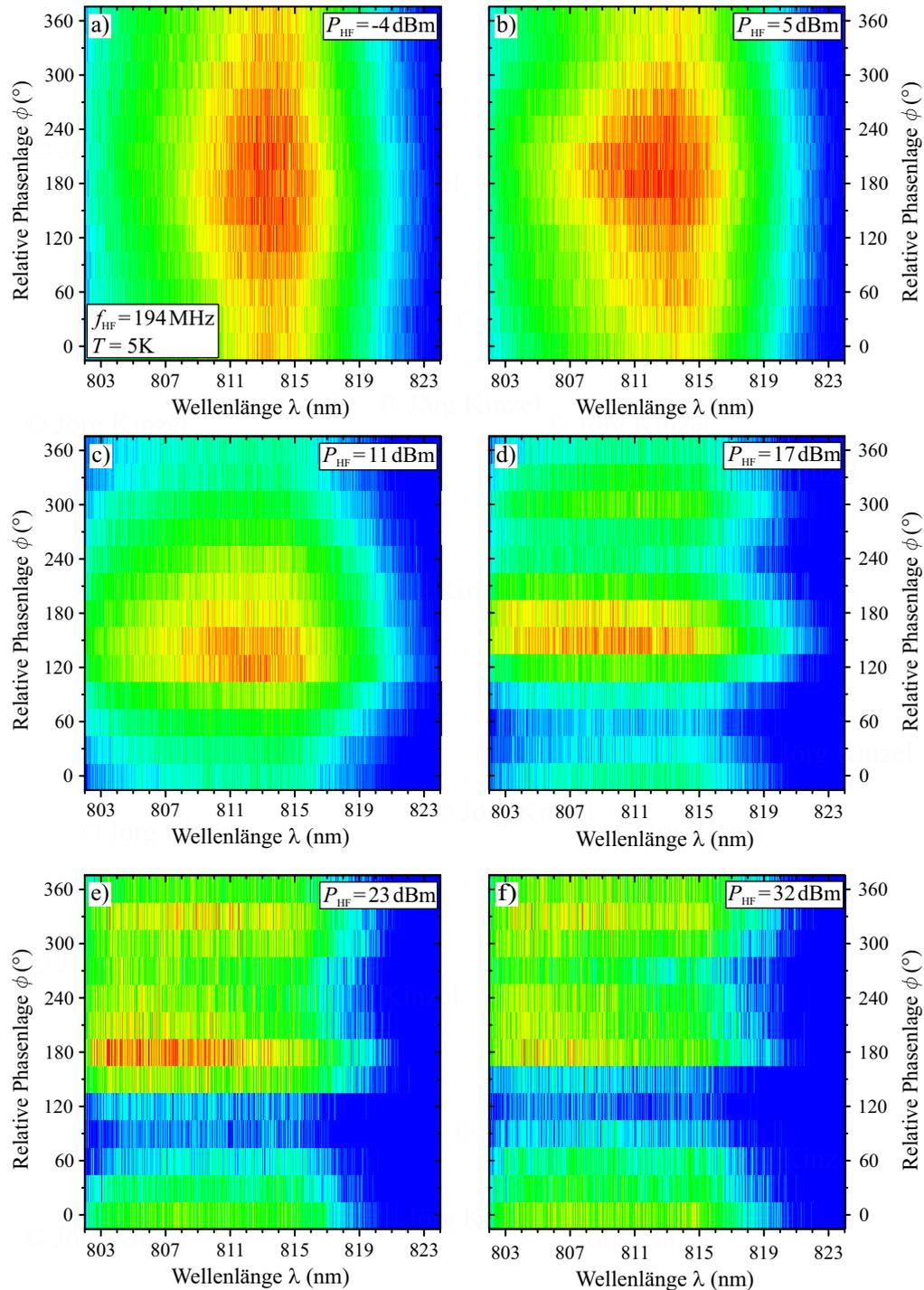


Abbildung 8.4: Abhängigkeit der PL-Emission von der relativen Phasenlage der Anregung von Nanodraht C unter phasenstarrer Kopplung bei ansteigenden HF-Leistungen von a) $P_{\text{HF}} = -4 \text{ dBm}$ mit schwacher Modulation bis auf $P_{\text{HF}} = 32 \text{ dBm}$ in Teilbild f) mit starker Unterdrückung und zweifacher Modulation des PL-Signals. Das rot dargestellt Maximum der PL-Intensität bezieht sich auf das während einer Messreihe gemessene Intensitätsmaximum.

nigung der Ladungsträger, konzentriert sich die PL-Emission weiter auf das Haupt- und Nebenmaximum, deren Ursache bereits anhand von Abbildung 8.3 erläutert ist. Bei der höchsten untersuchten Leistung von $P_{\text{HF}} = 32 \text{ dBm}$ in Abbildung 8.4 f), zeigt sich ein scharfes einsetzen des Hauptmaximums bei $\phi = 180^\circ$. Dies ist ein Indiz für die wirkungsvolle Beschleunigung der Löcher im elektrischen Feld bei der vorliegenden HF-Leistung, sodass auch die Löcher vom Anregungspunkt entfernt werden. Lediglich ein geringer Überlapp der Ladungsträger direkt nach der Anregung sorgt für eine initiale PL-Emission.

Ebenso zeigt das Nebenmaximum eine Verjüngung der PL-Emission auf $\phi = 330^\circ$. Bei dieser Phasenlage werden die Löcher bereits nahe dem für sie stabilen Maximum im Valenzband erzeugt. Die an diesem Punkt vorherrschende niedrigere Feldstärke reicht dabei nicht aus, diese vollständig in Ausbreitungsrichtung zu beschleunigen, sodass der Rückfluss der Elektronen mit der sich ausbreitenden AOFW den zur Rekombination nötigen Überlapp wiederherstellt.

Insgesamt unterliegt die Abnahme der mittleren PL-Intensität jedoch dem Abfall des PL-Signals, wie er in Abbildung 8.2 für steigende HF-Leistung ohne Kopplung der Anregungsphase gezeigt ist.

Die Darstellung der PL-Intensität der verschiedenen HF-Leistungen mit Normierung auf das globale Maximum der Messreihen, ist in Abbildung 8.5 a) in Abhängigkeit der relativen Phase der Anregung bei starrer Kopplung angetragen. In dieser Darstellung ist der Verlauf der PL-Intensität für ausgewählte HF-Leistungen von $P_{\text{HF}} = -4 \text{ dBm}$ in schwarz bis $P_{\text{HF}} = 32 \text{ dBm}$ dunkelblau dargestellt. Die Ermittlung der absoluten Werte für die einzelnen Datenpunkte der PL-Intensität erfolgt erneut durch Integration des gemessenen PL-Emissionsspektrums in einem Wellenlängenbereich von $\lambda = 808 - 818 \text{ nm}$.

Dabei zeigt sich bei kleinen HF-Leistungen im Bereich von $P_{\text{HF}} = 2 \text{ dBm}$ und 5 dBm eine Überhöhung der PL-Intensität gegenüber des Anfangswerts von $P_{\text{HF}} = -4 \text{ dBm}$, wie es auch bei der Analyse der PL-Emission ohne starre Kopplung der Phase in Abbildung 8.2 zu beobachten ist. Mit steigender HF-Leistung und dem Überschreiten des Einsatzpunkts der Ladungsträgerseparation, kommt es zum erwarteten kontinuierlich Abfall der PL-Intensität und zur Ausbildung der Haupt- und Nebenmaxima in Abhängigkeit der relativen Phasenlage.

Für eine exakte Erfassung der Variation der PL-Modulation wird mit Hilfe von Gleichung (8.1) der Verlauf der PL-Intensität durch die Addition zweier Sinusfunktionen nachgebildet. Die so gewonnenen Regression der Werte für die einzelnen HF-Leistungen sind in Abbildung 8.5 a) als durchgezogene Linien eingezeichnet. Hierfür gilt:

$$I = I_0 + \xi_1 \cdot \sin(\phi - \gamma_1) + \xi_2 \cdot \sin(2 \cdot (\phi - \gamma_2)) + \tilde{m} \cdot \phi, \quad (8.1)$$

mit I_0 Mittelwert der modulierten PL-Intensität, ξ_i Modulationstiefe der Intensitätsvariation, γ_i jeweilige Verschiebung des Nulldurchgangs der verwendeten Sinusfunktionen sowie ϕ als Variable der Beschreibung der relative Phasenlage der Anregung. Hieraus ergibt sich eine vierteilige Gliederung von Gleichung (8.1), welche die unterschiedlichen Beiträge repräsentiert, die zur Entstehung des beobachteten Intensitätsverlaufs führen.

Das erste Glied der Anpassungsfunktion I_0 repräsentiert den Durchschnittswert der gemessenen Intensität über alle Phasen einer Messung, auf welchen die Modulation aufgeprägt wird. Dieser Wert ist vergleichbar mit der in Abbildung 8.2 b) ermittelten

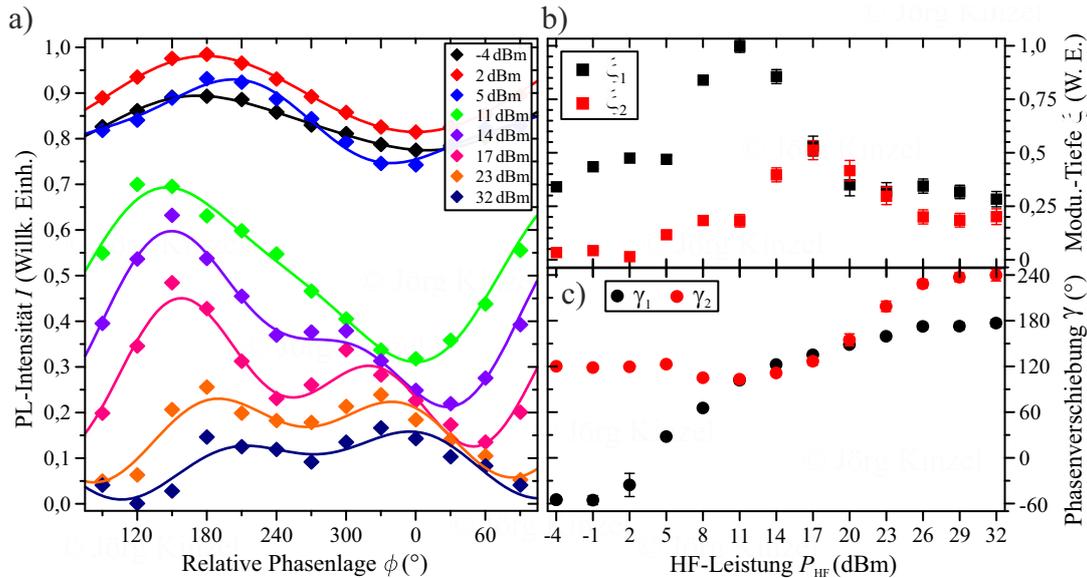


Abbildung 8.5: Verlauf der PL-Modulation von Nanodraht C bei steigender HF-Leistung unter phasenstarrer Anregung. a) Zusammenfassung der PL-Intensitätskurven aus Abbildung 8.4 in Abhängigkeit der relativen Phasenlage am Ort der Anregung. Steigende HF-Leistung von schwarz nach dunkelblau. Zugehörige Regression des Werteverlaufs durch Anpassung mit zweifacher Sinusfunktion nach Gleichung (8.1). b) Variation der Modulationstiefe des jeweiligen Anteils $\xi_{1,2}$ mit steigender HF-Leistung P_{HF} . Schwarz: 2π -periodischer Beitrag der Anpassungsfunktion, rot: π -periodisch. c) Leistungsabhängigkeit der Phasenverschiebung der beiden Anteile der Anpassungsfunktion. γ_1 schwarz, γ_2 rot.

PL-Intensität von Nanodraht C unter dem Einfluss der AOFW ohne Kopplung der Phase.

Der zweite Term $\xi_1 \cdot \sin(\phi - \gamma_1)$ zur Beschreibung des Verhaltens liefert eine periodische Modulation der PL-Intensität mit der Schwingungsperiode der Oberflächenwelle T_{AOFW} . Dieses Verhalten gleicht der Modulation der PL-Emission von unpassivierten Nanodrähten. Im Falle des Minimums der Photolumineszenz bei der lokalen Phasenlage von $\phi = 360^\circ = 0^\circ$ kommt es auf Grund des Drifts der Elektronen weg von der instabilen Position am Ort der Anregung zur Unterdrückung der PL-Emission. Bei ansteigender HF-Leistung entsteht aus der anwachsenden Feldstärke eine höhere Beschleunigung der Elektronen und damit effektivere Trennung, welche zum Abfall der Gesamtintensität führt. Somit bildet die Beweglichkeit der Elektronen bei dieser Phasenlage den limitierenden Faktor der Rekombination.

Für die um $\Delta\phi = 180^\circ$ versetzte maximale Emission gilt umgekehrt, dass die Löcher auf Grund ihrer niedrigeren Beweglichkeit und der instabilen Lage im Valenzband die Ursache für das Ausbleiben der effektiven Separation sind. Die resultierende Modulation der Intensität mit der Schwingungsperiode der akustischen Oberflächenwelle, ist in Abbildung 8.5 a) für den Leistungsbereich von -4 dBm bis 11 dBm zu sehen. Der Anpassungsparameter ξ_1 spiegelt dabei die mit der HF-Leistung ansteigende Amplitude der Modulation wieder, welche auf der Driftbewegung der Elektronen in die

Minima beruht. Wie in Abbildung 8.5 b) schwarz abgebildet erreicht die Modulationstiefe ξ_1 bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 11 \text{ dBm}$ das Maximum, welches mit dem Einsetzen des Transportregimes der Elektronen mit der sich ausbreitenden AOFW einhergeht.

Bei weiter ansteigender HF-Leistung kommt der dritte Anteil $\xi_2 \cdot \sin(2 \cdot (\phi - \gamma_2))$ zum Tragen, welcher eine Modulation der PL-Intensität mit der halben Periode der AOFW $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/2$ repräsentiert. Dieser Term berücksichtigt das zusätzliche Einsetzen des Transports der Löcher mit der sich ausbreitenden AOFW.

Wie bereits am Verhalten der PL-Emission in Abbildung 8.3 detailliert erläutert, führt die Separation der Exzitonen an der Flanke der Typ-II Bandkantenmodulation bei einer relativen Phasenlage von $\phi \gtrsim 270^\circ$ zu einer erhöhten PL-Emission. Diese entsteht aus dem Rückfluss der Elektronen zum Anregungspunkt, welcher die Rekombination mit den verbleibenden Löchern erhöht. In der umgekehrten Situation bei einer relativen Phasenlage von $\phi = 90^\circ$ kommt es im Gegensatz bei hinreichend hoher Feldstärke zwar zum Rückfluss der Löcher an den Anregungspunkt, die erzeugten Elektronen werden jedoch auf Grund ihrer höheren Beweglichkeit bereits effizient vom Anregungspunkt abtransportiert. Durch den ausbleibenden Überlapp der Ladungsträgerpaare tritt bei dieser relativen Phasenlage eine vollständige Unterdrückung der Photolumineszenz auf.

Durch Überlagerung der ursprünglichen Modulation aus dem Drift der Ladungsträger mit der zweiten Modulation aus dem Transport in der Potenziallandschaft der AOFW, entsteht je nach angelegter HF-Leistung eine unterschiedliche Dynamik und damit charakteristisches Verhalten der PL-Emission [SPM12].

Der Übergang von der Drift- in die Transportdomäne der Löcher lässt sich in Abbildung 8.5 b) durch den Anstieg der Modulationstiefe ξ_2 bei einer Leistung von $P_{\text{HF}} = 14 \text{ dBm}$ erkennen. Bei weiter steigender HF-Amplitude und dem einhergehenden effektiven Transport der Löcher, wird im Anschluss der Maximalwert der Modulationstiefe ξ_2 erreicht. Im vorliegenden Fall liegt dieser bei der HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 17 \text{ dBm}$. In der PL-Intensität in Abbildung 8.5 a) macht sich der effektive Transport als deutliche Unterdrückung bemerkbar. Hierbei führt die dauerhafte räumliche Trennung der Ladungsträger in den Extrema der Bandkantenmodulation zu einer Reduktion des Überlapps.

Die weitere Abnahme der PL-Intensität durch die effizientere Separation und den effektiven Transport der Elektronen und Löcher bei ansteigender HF-Leistung ist in Abbildung 8.5 a) durch die orange Kurve für $P_{\text{HF}} = 23 \text{ dBm}$ bzw. dunkelblau für $P_{\text{HF}} = 32 \text{ dBm}$ gut zu erkennen. Bei diesen HF-Leistungen kommt es in 8.5 b) gleichzeitig zu einem Sättigungsverhalten der Modulationstiefe.

Die Auswirkung der steigenden HF-Leistung auf den Nulldurchgang der sinusförmigen Fit-Funktion ist für beide Modulationsanteile in Abbildung 8.5 c) zusammengefasst. Hierbei zeigt sich mit der einsetzenden Separation der Ladungsträger durch den Drift der Elektronen ein Anstieg der Phasenverschiebung γ_1 bei einer Leistung von $P_{\text{HF}} = 5 \text{ dBm}$, wohingegen γ_2 noch keine Variation aufweist. Mit dem Einsetzen des Transports der Löcher bei einer Leistung von $P_{\text{HF}} = 17 \text{ dBm}$ stabilisiert sich die Position des absoluten Maximums und Minimums in der Modulation des PL-Signals und damit γ_1 . Gleichzeitig verschiebt das bei der HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 17 \text{ dBm}$ deutlich in Erscheinung tretende Nebenmaximum die Phasenlagen von γ_2 . Zu hohen HF-Leistungen hin zeigen beide Phasenverschiebungen ein Sättigungsverhalten, da

die Positionen der Maxima und Minima durch den Transport der Ladungsträgerarten festgelegt ist und sich nach dessen Einsatz nicht mehr ändert, wie für die Schlüsselstellen anhand von Abbildung 8.3 veranschaulicht.

Zusammenfassend lässt sich das in Abbildung 8.2, 8.3 und 8.4 beobachtete Verhalten der Ladungsträger im Kern/Mantel-Nanodraht unter der Einwirkung einer akustischen Oberflächenwelle durch die unterschiedliche Beweglichkeit von Elektronen und Löcher erklären. Bei niedriger HF-Leistung und damit schwacher Modulation verhalten sich diese, durch den Drift im elektrischen Feld der AOFW, wie die Ladungsträger in unpassivierten GaAs-Nanodrähten und zeigen ein um $\Delta\phi = 180^\circ$ versetztes Auftreten des Minimums und Maximums der PL-Emission.

Bei stärkerer Modulation entfaltet die vollständige Separation in der Typ-II Bandkantenmodulation ihre Dominanz und der damit einhergehende Transport der Ladungsträger entlang der Achse des Nanodrahts, bewirkt eine doppelte Modulation der PL-Emission in Abhängigkeit der Phasenlage. Dieses dynamische Verhalten ist möglich, da das Einschlusspotenzial des $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Mantels die nichtstrahlende Rekombination an der unterminierten Oberfläche unterdrückt.

Lediglich die Größe des Anregungs- bzw. Detektionspunkts erzeugt durch den Durchmesser von $d_{\text{Laser}} = 2\mu\text{m}$ eine Limitierung der Auflösung der Phasenlage auf $\Delta\phi = 40^\circ$ für die hier verwendete Geometrie des Proben-Typ-II. Eine Erhöhung der Auflösung durch Verkleinerung der Schrittweite bei der Erfassung des Messsignals würde folglich keine feinere Darstellung der phasenabhängigen Details liefern.

Daneben kann auch ein möglicher Drift der optischen Komponenten im Experiment zu einer Verfälschung des Verhaltens der Phasenverschiebung führen. Die dafür hauptsächlich verantwortlichen Ursachen wie die lineare Driftbewegung der Probe mit dem Kryostaten unter der Öffnung des Mikroskopobjektivs oder das langsame Absinken der Anregungsleistung des Laser lassen sich jedoch gut durch den vierten und abschließenden Term \tilde{m} von Gleichung (8.1) kompensieren. Da diese Korrektur gleichmäßig auf beide Phasenlagen der Nulldurchgänge wirkt, spiegelt deren Verhalten somit die unverfälschte Abhängigkeit von der Dynamik der Rekombination der Ladungsträger wieder.

Die bisher indirekt beobachtete Separation der Ladungsträger mit einhergehender räumlicher Trennung und effektivem Transport in den Extrema der Typ-II Bandkantenmodulation, wird im nächsten Abschnitt durch orts aufgelöste Detektion direkt untersucht.

8.3 Direkter Nachweis des Ladungsträgertransports entlang der Achse des Nanodrahts

Für den Nachweis des Transports von Elektronen und Löchern durch das elektrische Feld der akustischen Oberflächenwelle entlang der c-Achse des Nanodrahts ist es nötig, den Ort der Detektion der Photolumineszenz von deren Anregung räumlich zu trennen. Möglich ist dies durch den Einsatz einer rauscharmen Graustufen CCD-Kamera, welche ein orts aufgelöstes Bild der Probe liefert. Zur selektiven Anregung der PL-Emission dient weiterhin der bisher eingesetzte gepulster Diodenlaser beziehungsweise für eine flächige Anregung der Probe eine rote LED mit ausgewei-

temem Strahlengang und einer Mittenwellenlänge von $\lambda_{\text{LED}} = 625 \text{ nm}$. Gleichzeitig befindet sich vor der CCD-Kamera ein Langpassfilter mit einer Grenzwellenlänge von $\lambda_{\text{LP}} = 700 \text{ nm}$, welcher die Detektion des Anregungslichts des Lasers als auch der LED verhindert.

Das auf die CCD-Kamera abgebildete Bild von Nanodraht C bei großflächiger Beleuchtung der Substratoberfläche mittels der LED ist in Abbildung 8.6 zu sehen.

Hierbei zeigt sich eine PL-Emission des gesamten Nanodrahts, welche sich als heller Bereich deutlich vom Hintergrund abhebt. Dabei kommt es entlang der c-Achse zu einem Abfall der PL-Intensität vom Fußpunkt des Nanodrahts C links im Bild, zu dessen Spitze rechts. Ursache hierfür kann eine minimale Variation des Durchmesser des Nanodrahts im nm-Bereich sein, welche bei der Bestimmung des Durchmessers der Nanodrähte mittels der angefertigten REM-Aufnahmen, wie anhand Abbildung 8.1 zu $d_{\text{ND}} = (130 \pm 10) \text{ nm}$, im Rahmen der Ablesegenauigkeit nicht zu identifizieren sind. Unter vergleichbaren Wachstumsbedingungen hergestellte Nanodrähte zeigen besonders im Bereich des Durchmessers von $d_{\text{ND}} = 125 \text{ nm}$ bis 135 nm einen deutlichen Anstieg in der PL-Intensität mit dem Radius. Diese Schwankung entsteht aus dem variierenden Oberfläche-zu-Volumen-Verhältnis, welches die Zahl der Rekombinationszentren an Oberfläche bestimmt [DHB 10]. Des Weiteren beeinflusst die Anwesenheit von Zwillingdefekten und unterschiedlichen Kristallphasen des GaAs im Kern der Nanodrähte die PL-Intensität und deren Emissionswellenlänge [HCBR11]. Da die Emission der Zinkblende- als auch der Wurtzit-Struktur oberhalb der Grenzwellenlänge des Langpassfilter liegt, werden in der eingesetzten Detektion beide PL-Signale gleichzeitig erfasst.

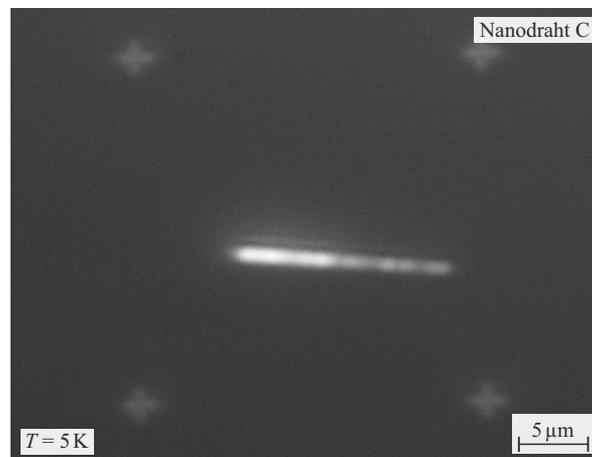


Abbildung 8.6: Photolumineszenz des Nanodrahts C bei einer Temperatur von $T = 5 \text{ K}$ unter großflächiger Beleuchtung der Probe mittels einer LED im rotem Spektralbereich ohne Modulation durch AOFW.

Zusätzlich kommt es durch das breitbandige Anregungsspektrum der roten Leuchtdiode zum einen zu einer direkten Detektion des Wellenlängenanteils größer $\lambda \geq 700 \text{ nm}$, welcher zum Beispiel durch Reflexion am Goldfilm der Koordinatenmarkierungen in Abbildung 8.6 sichtbar wird. Zum anderen ist es mit der Unterschreitung der Anregungswellenlänge von $\lambda_{\text{LED}} \leq 640 \text{ nm}$ möglich, Exzitonen im Al_{0,3}Ga_{0,7}As-Mantel anzuregen. Deren direkte Rekombination wird durch den Langpassfilter vor

dem CCD-Detektor zwar ausgeblendet, die Relaxation über die energetisch günstigere Zustände in der Bandstruktur des reinen GaAs-Kerns führt jedoch zu einer zusätzlichen PL-Emission aus dem Kern.

Um Störeinflüsse der Anregen durch die breitbandige LED zu verhindern und die Anregung von der Detektion räumlich zu trennen, wird im weiteren Verlauf der gepulste Diodenlaser als spektral und örtlich definierte Quelle eingesetzt. Durch dessen Einsatz ist es möglich, die PL-Anregung auf einen Punkt entlang der Achse des Nanodrahts zu fokussieren und somit räumlich von der Detektion zu trennen.

Die daraus resultierende Photolumineszenz an Nanodraht C bei einer Anregungsleistung von $P_{\text{Laser}} = 450 \text{ nW}$ ist in Abbildung 8.7 a) dargestellt. Nebst einer eingesetzten Belichtungszeit von 5 s wird in den folgenden Darstellungen zur Erhöhung der Sichtbarkeit der PL-Emission die Helligkeit invertiert. Somit zeigen dunkle Bereiche eine detektierte PL-Emission, helle Bereiche hingegen sind ohne Aktivität.

Bei der in Abbildung 8.7 gezeigten Konfiguration entspricht die horizontale Koordinatenachse der x -Position auf dem CCD-Sensor, die senkrechte Richtung der y -Position. Die freien Exzitonen werden im Bereich des rot markierten Anregungspunkts erzeugt, welcher einen Durchmesser von $d_{\text{Laser}} = 2 \mu\text{m}$ aufweist. Die in Abbildung 8.7 a) mit einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -1 \text{ dBm}$ ohne Phasenkopplung erzeugte AOFW, die sich entlang der x -Position und damit der c -Achse des Nanodrahts ausbreitet, zeigt keinen signifikanten Einfluss auf die Photolumineszenz und damit auf die im Kern vorhandenen Ladungsträger. Auf Grund des Gradienten in der Verteilung der Elektronen-Loch-Paare innerhalb des Drahts kommt es zur Diffusion der Ladungsträger, welcher vom Ort der Anregung weggerichtet ist [HMMB12]. Die durch Gleichung (4.7) beschriebene Diffusion, sorgt für eine Rekombination und damit PL-Emission entlang der c -Achse des Nanodrahts.

Aus dem Verlauf der Kurve für die PL-Intensität bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -1 \text{ dBm}$, ergibt sich eine Ausbreitung durch Diffusion zu $\Delta x_{\text{Diff}} = (\pm 6 \pm 1) \mu\text{m}$ zu beiden Seiten des Anregungspunktes, wie in Abbildung 8.7 d) rot dargestellt.

Die Auswirkung der Steigerung der HF-Leistung auf $P_{\text{HF}} = 17 \text{ dBm}$ auf die PL-Emission ist in Abbildung 8.7 b) dargestellt. Unter Beibehaltung des identischen Anregungspunkts auf der Achse des Nanodrahts zeigt sich die Kompression der Verteilung der Photolumineszenz um den Anregungspunkt, wie zum Vergleich in Abbildung 8.7 d) in blau zu sehen.

Auf diesen Emissionspeak folgt bei der x -Position von $x = 17,5 \mu\text{m}$ ein zweiter Emissionspeak, dessen Position gelb markiert ist. Die zuvor am Anregungspunkt in die Extrema der Typ-II Bandkantenmodulation separierten Ladungsträger, breiten sich zunächst mit der Propagation des Wellenzugs der AOFW entlang der c -Achse im GaAs-Nanodraht aus [MHMB12]. Wird die Kontinuität der Bandstruktur durch Fehler im Kristall gestört, wie sie zum Beispiel am Ende des Nanodrahts auftreten, verlieren die Ladungsträger ihre räumliche Separation und es kommt in der Folge des Überlapps zur strahlenden Rekombination.

Das mit dieser Konfiguration erzielbare Maximum der Transportstrecke der Ladungsträger ist in Abbildung 8.7 c) gezeigt. Hierbei ist der Anregungspunkt auf das linke Fußende des Nanodrahts gerichtet und bei identischer Amplitude der AOFW lässt sich weiterhin eine PL-Emission am gegenüberliegenden Kopfende erkennen. Dies entspricht einer Transportdistanz von $\Delta x = (13 \pm 1) \mu\text{m}$ wobei gleichzeitig eine $4 \mu\text{m}$ langen Segments zwischen der x -Position von $12 - 16 \mu\text{m}$ ohne jegliche PL-Emission

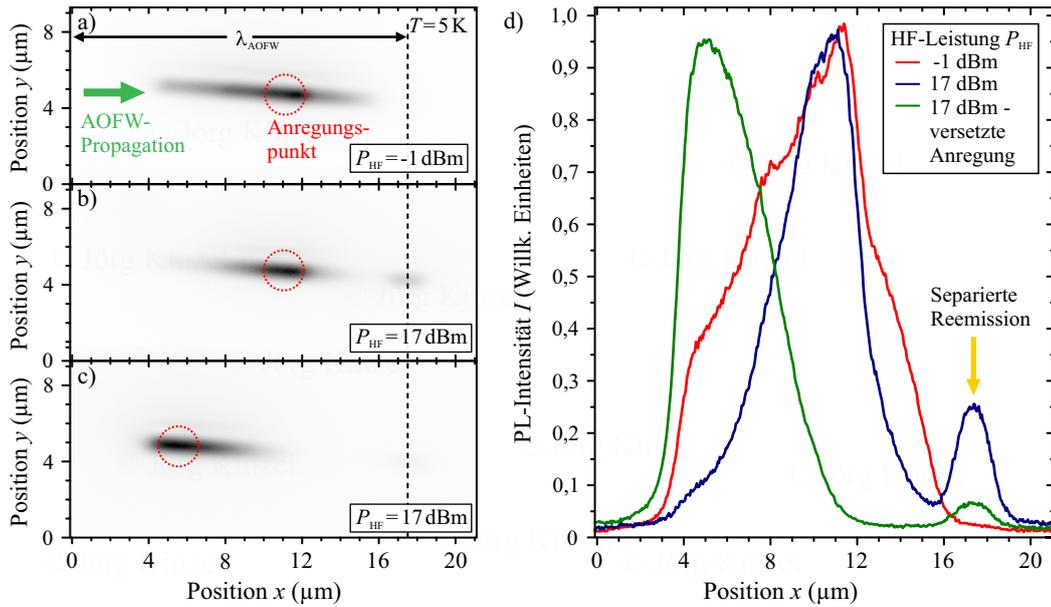


Abbildung 8.7: Reales Abbild der Photolumineszenz von Nanodraht C durch Signalerfassung mittels einem orts aufgelösten CCD-Sensor und invertierter Helligkeitskurve unter ungekoppelter gepulster Anregung. a) PL-Emission bei Anregung in der Mitte des Nanodrahts und HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -1 \text{ dBm}$. b) Steigerung der HF-Leistung auf 17 dBm . c) Verlagerung des Anregungspunkts an das untere Ende des Nanodrahts. d) Vergleich der PL-Verteilung entlang des Nanodrahts.

überbrückt wird. Das Ausbleiben der Photolumineszenz zugrundeliegenden Rekombination in diesem Bereich, ist ein Nachweis für den vollständig separierten und damit sequenziellen Transport von Elektronen und Löchern in den zugehörigen Extrema der Bandstruktur. Die vollständige Separation der Elektron-Loch-Paare bedingt jedoch eine Mindestlänge des Nanodrahts von $\lambda_{\text{AOFW}}/2$. Anderenfalls würde der partiellen Überlapp der Ladungsträger den Effekt der vollständig unterdrückten Rekombination entlang der c -Achse des Nanodrahts aufheben.

Die zwischen Anregungspunkt und Rekombinationszentrum am Ende des Nanodrahts zurückgelegte Transportstrecke entspricht bei der Ausbreitungsgeschwindigkeit der AOFW parallel der Z -Richtung des LiNbO_{3-x} von $v_{\text{AOFW}} = 3488 \text{ m/s}$ einer Einschusszeit von $t = (3,73 \pm 0,29) \text{ ns}$ und somit einer sechsfach höheren Lebensdauer der Ladungsträgerpaare als in Abschnitt 9.1 mittels zeitkorrelierter Einzelphotonenzählung für eine HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 17 \text{ dBm}$ erwartet.

Die vollständige Abhängigkeit der PL-Emission am Ende des Nanodrahts von der HF-Leistung der AOFW sowie von der Phasenlage bei phasenstarrer Anregung, ist in Abbildung 8.8 zusammengefasst. Wie darin zu sehen, kommt es mit steigender HF-Leistung zunächst zur Kompression der Photolumineszenz am Ort der Anregung bei $x = (11 \pm 1) \mu\text{m}$, da das elektrische Feld der AOFW der ungehinderten Diffusion entgegenwirkt. Gleichzeitig signalisiert die am Ende des Nanodrahts bei $x = (17,5 \pm 1,0) \mu\text{m}$ auftretende PL-Emission den Einsatzpunkt des effektiven Transport von Elektron-Loch-Paaren ab einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 8 \text{ dBm}$. Die

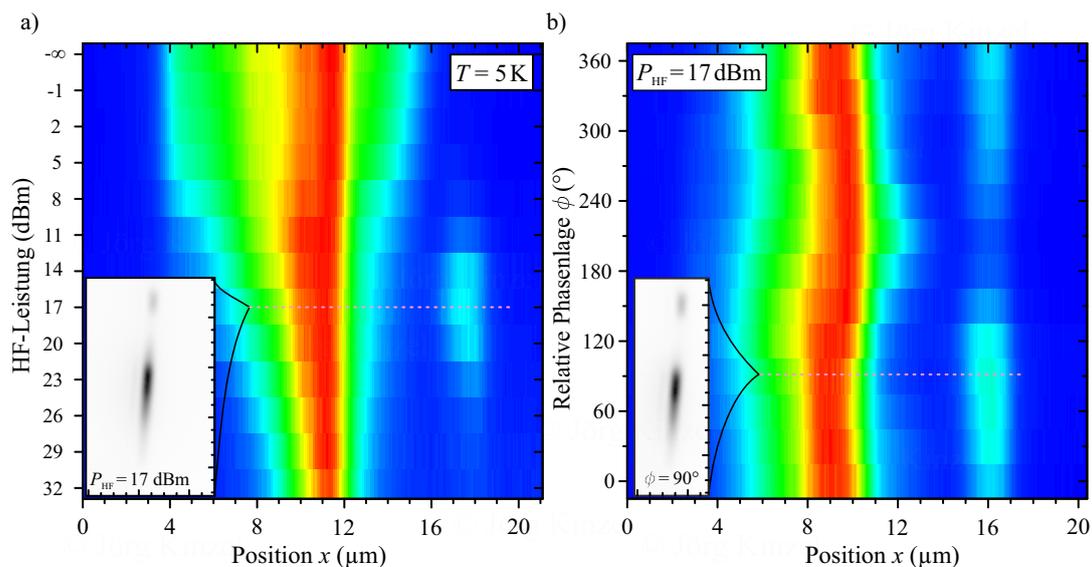


Abbildung 8.8: Falschfarbendarstellung der detektierten Photolumineszenz entlang der Achse von Nanodraht C bei gepulster Anregung mit einer Laserleistung von $P_{\text{Laser}} = 450 \text{ nW}$. Abhängigkeit des Orts der PL-Emission von: a) Der angelegten HF-Leistung bei ungekoppelter Koinzidenz, b) der relativen Phasenlage am Ort der Anregung bei phasenstarrer Kopplung mit einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 17 \text{ dBm}$.

PL-Emission am Ende des Nanodrahts steigt an bis sich das Maximum bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 17 \text{ dBm}$ erreicht ist. Dieser Fall entspricht der Detailaufnahme des CCD-Bildes der realen Darstellung in Abbildung 8.7 b). Bei weiter steigender HF-Leistung kommt es zunächst zu einer Verschiebung des Orts der Reemission der transportierten Ladungsträger gegen das Ende des Nanodrahts bei $x = 18 \mu\text{m}$, bis diese bei weiterer Steigerung vollständig im Untergrundrauschen des Detektors verschwindet. Durch das mit der HF-Leistung ansteigende Einschusspotenzial der Ladungsträger der Modulation der Bandstruktur ist es möglich, dass die Ladungsträger nicht mehr strahlend im kristallinen Bereich des Nanodrahts rekombinieren, sondern im zufällig geordneten Randbereich am Ende des Nanodrahts verloren gehen [SAG09]. Eine Möglichkeit die nichtstrahlende Rekombination über Zwischenstände an der Grenzfläche durch den Zusammenbruch der Bandstruktur oder ungesättigten Oberflächenzustände zu umgehen und zu kontrollieren, ist zum Beispiel die gezielte Aufbringung einer leitfähigen Gate-Elektrode an die Achse des Nanodrahts im Ausbreitungspfad. An deren Position kommt es durch die Aufhebung des elektrischen Felds zu einem Zusammenbruch der Bandkantenmodulation und in Folge zu einer strahlenden Rekombination der Exzitonen innerhalb der weiterhin ungestörten Bandstruktur des Halbleiters [RZW97].

Die Abhängigkeit der PL-Intensität am Ende des Nanodrahts von der relativen Phasenlage am Anregungspunkt ist in Abbildung 8.8 b) dargestellt. Mit der zuvor ermittelten HF-Leistung der maximalen PL-Emission am Ende des Nanodrahts von $P_{\text{HF}} = 17 \text{ dBm}$, zeigt sich unter phasenstarrer Anregung bei einer relativen Phasenlage von $\phi = (60 \pm 30)^\circ$ das Maximum der PL-Emission am Ende des Nanodrahts. Das zugehörige Realbild der CCD-Kamera findet sich mit invertierter Helligkeit als De-

tailansicht, wobei anzumerken ist, dass die Position der Probe gegenüber der Falschfarbendarstellung um 2 μm verlagert ist.

Mit Variation der relativen Phasenlage zwischen der AOFW und dem Anregungspuls des Lasers zeigt sich sowohl am Anregungspunkt als auch bei der Rekombination am Ende des Nanodrahts ein oszillierendes Verhalten. Dieses geht auf das dynamische Verhalten der Ladungsträger im elektrischen Feld am Ort der Anregung zurück.

Bei der relativen Phasenlage von $\phi = (210 \pm 30)^\circ$ entsteht ein ausgedehnter Bereich der PL-Emission in der Nähe des Anregungspunkts. Hierbei werden analog zur Phasenlage in Abbildung 7.6 b) für $\phi = 180^\circ$, die Elektronen stroboskopisch im Minimum des Leitungsbandes erzeugt, wo sie mit den Löchern rekombinieren, welche auf Grund ihrer geringeren Beweglichkeit weniger effizient vom Ort der Anregung weg in die stabilen Maxima des Valenzbandes beschleunigt werden. Aus der fehlenden Separation kommt es zu einer strahlenden Rekombination der Ladungsträger, so dass diese nicht mehr für einen Transport und spätere Rekombination zur Verfügung stehen.

Bei Änderung der relativen Phase zu $\phi = (300 \pm 30)^\circ$ kommt es nach dem Anregung zu der in Abbildung 8.3 beschriebenen Beschleunigung der Elektronen entgegen der Ausbreitungsrichtung der AOFW. Gleichzeitig entsteht aus der partiellen Beschleunigung der Löcher in Ausbreitungsrichtung, eine Verlagerung der maximalen Konzentration der Löcher in x -Richtung. Im Zusammenspiel mit dem zeitverzögerten Rückfluss der Elektronen entsteht hieraus eine Verschiebung des Überlapps zu den in x -Richtung verschobenen Löchern und damit des Orts der PL-Emission.

Der Transport der Löcher mit der sich ausbreitenden AOFW, was in Abbildung 8.5 b) durch das Überschreiten des Maximums der Modulationstiefe ξ_2 bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 17 \text{ dBm}$ zu erkennen ist, sorgt zusammen mit der effektiven Beschleunigung der Elektronen für einen räumlich separierten Transport entlang der c -Achse des Nanodrahts. Mit der Störung der Bandstruktur am Ende des Nanodrahts kommt es folglich zur strahlenden Rekombination, wobei die unterschiedlichen Ladungsträgerarten um $\lambda_{\text{AOFW}}/2$ separiert sequenziell zugeführt werden.

In Gegensatz zum ersten Fall mit der direkten Rekombination der Elektron-Loch-Paare bei der Phasenlage von $\phi = (210 \pm 30)^\circ$, werden bei $\phi = 360^\circ = 0^\circ$ die Elektronen am instabilen Punkt des Leitungsbandes erzeugt, sodass diese effektiv vom Ort der Anregung in die stabile Minima beschleunigt werden. Mit der einhergehenden Separation zu beiden Seiten des Anregungspunktes stellt dies den Grenzfall des Rückflusses der Elektronen dar. Somit folgt die Dynamik der Anregung der Ladungsträger und der Rekombination dem Ablauf der Phasenlage von $\phi = (300 \pm 30)^\circ$, jedoch ohne die Verlagerung der Konzentration der Löcher in x -Richtung. Dies zeigt sich in Abbildung 8.8 b) durch das Auftreten des Anregungspunkts an der ursprünglicher Stelle von $x = (9 \pm 1) \mu\text{m}$.

Umgekehrt verhält sich der Ablauf bei der Phasenlage von $\phi = (90 \pm 30)^\circ$. Hier dreht sich die Feldrichtung bei der Anregung auf der Flanke der Typ-II Bandkantenmodulation um und es kommt zum Rückfluss der Löcher. Durch die höhere Beweglichkeit der Elektronen und deren gleichzeitige Beschleunigung in Ausbreitungsrichtung, steht nur ein geringer Teil zur Rekombination mit den zurückfließenden Löchern am Anregungspunkt zur Verfügung, was sich in einer Verjüngung des Emissionspeak äußert. Gleichzeitig verlagert sich das Rekombinationszentrum durch die Beschleuni-

gung der Löcher entgegen der Ausbreitungsrichtung in $-x$ -Richtung. Diese Situation führt zur optimalen Separation der Elektron-Loch-Paare in der Typ-II Bandkantenmodulation, wobei sich der hier effiziente Transport im Feld der AOFW als Maximum der Photolumineszenz am Ende des Nanodrahts äußert.

Die in diesem Kapitel beschriebene Dynamik der Ladungsträger im elektrischen Feld der AOFW ist nur durch die hohe kristalline Qualität des Kerns der Kern/Mantel-Nanodrähte möglich. Anderenfalls würden Störungen wie ungesättigte Zustände oder Fremdatome als Rekombinationszentren dienen und eine kontinuierliche PL-Emission zwischen dem Anregungspunkt und der Rekombination am Ende des Nanodrahts durch Verlust aus dem separierten Transport verursachen.

Somit lässt sich anhand der orts aufgelösten CCD-Aufnahmen der Transport von Elektron-Loch-Paaren entlang der c -Achse im Kern des Nanodrahts direkt beobachten. Ein konkurrierender Transport der Ladungsträger in der GaAs-Oxidationsbarriere an der Oberfläche des Nanodrahts scheidet auf Grund der ungesättigten Zustände und einhergehender kurzlebiger nichtstrahlende Rekombination aus.

Insgesamt zeigt die zeitlich integrierte Erfassung der PL-Emission mittels eines CCD-Sensors lediglich einen Fingerabdruck der ablaufenden Prozesse. Die Kombination eines spektral- und intensitätsauflösenden CCD-Detektors am Spektrometer mit der räumlichen Auflösung der direkten Abbildung der Substratoberfläche erlaubt zwar Rückschlüsse auf den zugrunde liegenden Mechanismus zu ziehen, die exakte Dynamik welche zur Rekombination der Ladungsträgerpaare führt, lässt sich jedoch nur durch Erfassung der Photolumineszenz in der Zeitdomäne auflösen. Dies ist im nächsten Kapitel durch Detektion mittels zeitaufgelöster Einzelphotonenzählung durchgeführt.

9 Dynamik der Ladungsträger im elektrischen Feld der AOFW

Im folgenden Kapitel wird die bisher anhand zeitintegrierter PL-Spektroskopie empirisch ermittelte Dynamik von Elektronen und Löchern im Feld der akustischen Oberflächenwelle durch die Betrachtung der Zeitabhängigkeit der PL-Emission überprüft. Dabei ermöglicht der in Kapitel 6 beschriebene modulare Aufbau des Experiments eine nahtlose optische Integration der Avalanche-Photodiode in den Strahlengang, als auch die elektrische Signalverarbeitung durch das TCSPC-Modul. Die direkte Erfassung und Auflösung der Dynamik der PL-Emission von GaAs/Al_{0,3}Ga_{0,7}As-Kern/Mantel-Nanodrähten gelingt, da diese gegenüber den unpassivierten GaAs-Nanodrähten eine verlängerte Lebensdauer der strahlenden Rekombination aufweisen. Hierdurch ist die Erfassung des PL-Signals nicht mehr durch das Auflösungslimit des Versuchsaufbaus begrenzt [SAG09].

Die Analyse der Dynamik der PL-Emission in diesem Kapitel stellt zunächst eine Verknüpfung zwischen den bisher zeitintegriert untersuchten ausgezeichneten Phasenlage und dem Verhalten der Transienten aus zeitaufgelöster Erfassung her. Daran gliedert sich die Untersuchung der Leistungs- und Phasenabhängigkeit des Verlaufs der Histogrammkurven. Im Anschluss erfolgt die Verifikation des dynamischen Verhaltens der Ladungsträger durch die numerische Lösung des Ratenmodells aus Abschnitt 4.2 sowie die Anpassung der zeitaufgelösten Resultate der Simulation an das Experiment durch Optimierung der Parameter. Den Abschluss bildet die Modifikation der numerischen Simulation der Ladungsträgerdynamik zur Wiedergabe der zeitintegrierten PL-Modulation mit Phasen- und Leistungsabhängigkeit.

9.1 Zeitaufgelöste Photolumineszenz von Kern/Mantel-Nanodrähten

Bei der Erfassung der zeitaufgelösten Photolumineszenz von Nanodraht D erfolgt zu Beginn die Kalibrierung der relativen Phasenlage ϕ auf die ausgezeichneten Positionen anhand zeitintegrierter PL-Spektroskopie. Unter einer Anregungsleistung von $P_{\text{Laser}} = 430 \text{ nW}$ und phasenstarrer Kopplung des gepulsten Anregungslasers an die Phase der AOFW, ergibt sich für eine Anregungsfrequenz der AOFW von $f_{\text{res}} = 194 \text{ MHz}$ bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 32 \text{ dBm}$ der in Abbildung 9.1 a) gezeigte Verlauf der Modulation. Hierzu wird das ursprünglich spektral aufgelöste Signal über einen Wellenlängenbereich von $\lambda = 805 - 825 \text{ nm}$ integriert.

Betrachtet man den Verlauf der einzelnen Datenpunkte, so zeigt dieser durch das Auftreten von Haupt- und Nebenmaxima bzw. -minima das erwartete Verhalten.

Dazu gehört die Ausbildung des globalen Maximums bei einer relativen Phasenlage von $\phi = (180 \pm 30)^\circ$, welches, wie schematisch dargestellt, der direkten Rekombination der Elektron-Loch-Paare am Anregungspunkt entspricht. Mit der steigenden relativen Phase folgt auf diesen Emissionspeak das durch den Drift der Elektronen entgegen der Ausbreitungsrichtung und dem sukzessiven Rückfluss ausgelöste zweite Minimum. Bei Annäherung an die Phasenlage von $\phi = (0 \pm 30)^\circ$ kommt es auf Grund des Drifts der Elektronen vom instabilen Punkt weg in die Minima der Typ-II Bandkantenmodulation zur räumlichen Trennung und damit zum Abfall der PL-Emission, wie in der Schemazeichnung dargestellt. Auf Grund der effektiven Trennung an der Flanke der Typ-II Bandkantenmodulation bleibt die Unterdrückung der PL-Emission bei der relativen Phasen von $\phi = (90 \pm 30)^\circ$ erhalten und die Elektron-Loch-Paare werden sequenziell transportiert.

Das Ausbleiben der vollständigen Unterdrückung der PL-Emission bei $\phi = 90^\circ$ geht auf die Detektion mittels dem 0,5-m-Spektrometer zurück. Dabei reduziert das im Detektor auftretende Etaloning die Auflösung und beeinflusst die Intensität des aufintegrierten Spektrums. Aus der nicht vollständig aufgelösten Wiedergabe des Verlaufs entsteht die gezeigte Abweichung der Regression mittels der Sinusfunktionen aus Gleichung (8.1), welche im vorliegenden Fall nur minimal die Modulation mit der halben Schwingungsdauer zeigt. Für eine Steigerung der Differenzierung bei der Aufnahme der PL-Intensität zwischen den Datenpunkten in Abhängigkeit der relativen Phasenlage ist eine Verkleinerung des Anregungs- und Detektionspunkts auf der Probe erforderlich. Hierdurch wird neben der Anregung auch weniger Streulicht von benachbarten Bereichen des Nanodrahts detektiert, der unter dem Einfluss einer anderen relativen Phasenlage steht.

Durch den konstanten Abstand der Phasenlage der ausgezeichneten Punkte der elektrischen Felds der AOFW von $\Delta\phi = 180^\circ$ gelingt es in Abbildung 9.1 a) dennoch die markanten Punkte für die Anregung der Ladungsträger zu ermitteln und an diesen die zeitabhängige Dynamik der Separation zu analysieren.

Vor der Untersuchung des Verlaufs der PL-Transienten unter dem Einfluss der AOFW, erfolgt zunächst die Erfassung des Transienten bei ungestörtem Zerfall bei einer mittleren Wellenlänge der Detektion von $\lambda = 814\text{nm}$, wie in Abbildung 9.1 b) als rote Kurve dargestellt. Durch Anpassung der Rekombinationsrate der Elektron-Loch-Paare nach Gleichung (6.1) mittels numerischer Simulation, lässt sich aus der Histogrammkurve für den ungestörten Zerfall eine Lebensdauer von $\tau_S = (1,6 \pm 0,1)\text{ns}$ ermitteln. Diese deckt sich mit der in Abschnitt 6.1 exemplarisch ermittelten Lebensdauer für Nanodraht F und dem Literaturwert für identisch gewachsene Nanodrähte von $\tau_S = (1,4 \pm 0,2)\text{ns}$ [RSM13].

Mit der Anregung einer AOFW bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 3\text{dBm}$, welche phasenstarr zum Anregungspuls des Lasers gekoppelt ist, kommt es zur Modulation des Abfalls der Transienten, wie in grün und braun angetragen. Hierbei ist am Maximum der PL-Emission eine Abnahme der Gesamtintensität zu erkennen, welche bei der angelegten HF-Leistung aus der einsetzenden Trennung der Ladungsträger entsteht und damit die einsetzende Unterdrückung der Rekombination markiert. Gleichzeitig verändert sich die Scheitelform der zuvor monoexponentiell anfallenden PL-Intensität. Bei der relativen Phasenlage von $\phi = 0^\circ$, welche dem grün markierten Minimum der PL-Intensität entspricht kommt es zur Ausbildung eines breiten initialen Emissionspeaks. Bei der entgegengesetzten Phasenlage des weinrot markierten

Maximums von $\phi = 180^\circ$ verjüngt sich dieser zu einem schmalen Peak mit sofortigem Abfall, bis beim Zeitpunkt $t = (2,5 \pm 0,2)$ ns eine Stufe im Verlauf auftritt. Diese zeigt sich ebenso im Transienten der Phasenlage von $\phi = 0^\circ$, wobei hier der Abfall um $\Delta t = 2,6$ ns versetzt ist. Dieser Abstand entspricht exakt der Zeitspanne der halben Schwingungsperiode der AOFW mit $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/2 = 2,575$ ns, welche bei der Drehung der relativen Phasen um $\Delta\phi = 180^\circ$ für Probentyp-II entsteht. Somit ist die stufenförmige Ausprägung der Transienten eindeutig der dynamischen Modulation durch das elektrische Feld der AOFW zuzuordnen.

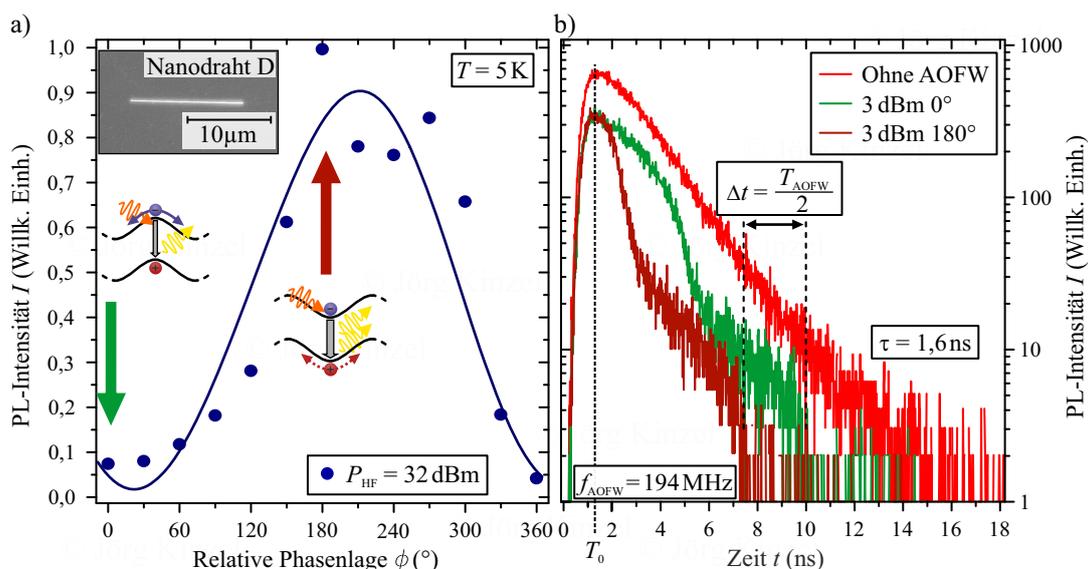


Abbildung 9.1: Verknüpfung der zeitintegrierten und zeitaufgelösten PL-Spektroskopie anhand der optischen Emission von Nanodraht D bei phasenstarrer Kopplung. a) Kalibrierung der relativen Phase am Anregungspunkt durch die Analyse des Verlaufs der PL-Intensität unter konstanter HF-Leistung und Variation der Phasenlage. Dunkelgrün markiert das untersuchte Minimum der PL-Emission, weinrot das Maximum. b) Histogrammkurven der Zählstatistik. Rot: Ungestörter PL-Zerfall. Identisch zu a) farbkodiert die Abklingkurve unter dem Einfluss der AOFW mit einer Leistung von $P_{\text{HF}} = 3\text{ dBm}$ und der relativen Phasenlage von $\phi = 0^\circ$ in dunkelgrün und $\phi = 180^\circ$ in weinrot.

Im Fall der in weinrot dargestellten Kurve für die Phasenlage von $\phi = 180^\circ$ kommt es nach dem Abklingen des Anregungspulses des Lasers bei $T_0 = (1,2 \pm 0,5)$ ns zu einer sofort einsetzenden Rekombination der Elektron-Loch-Paare. Wie in Abbildung 9.1 a) schematisch dargestellt, können die Löcher auf Grund der zu geringen vorherrschenden Feldstärke räumlich nicht effektiv von den Elektronen getrennt werden, sodass diese sich analog der zeitintegrierten Beschreibung in Abschnitt 8.2 verhalten. Erst mit der Verlagerung der Phasenlage der AOFW durch deren Propagation und damit ansteigender Feldstärke in der Typ-II Bandkantenmodulation gelingt es, die Elektronen räumlich von den am Anregungspunkt remanenten Löchern zu separieren. Hierdurch nimmt die Rekombinationsrate bei $t' = (2,5 \pm 0,5)$ ns ab, was auch zu einer Abnahme der Steigung des Transienten führt.

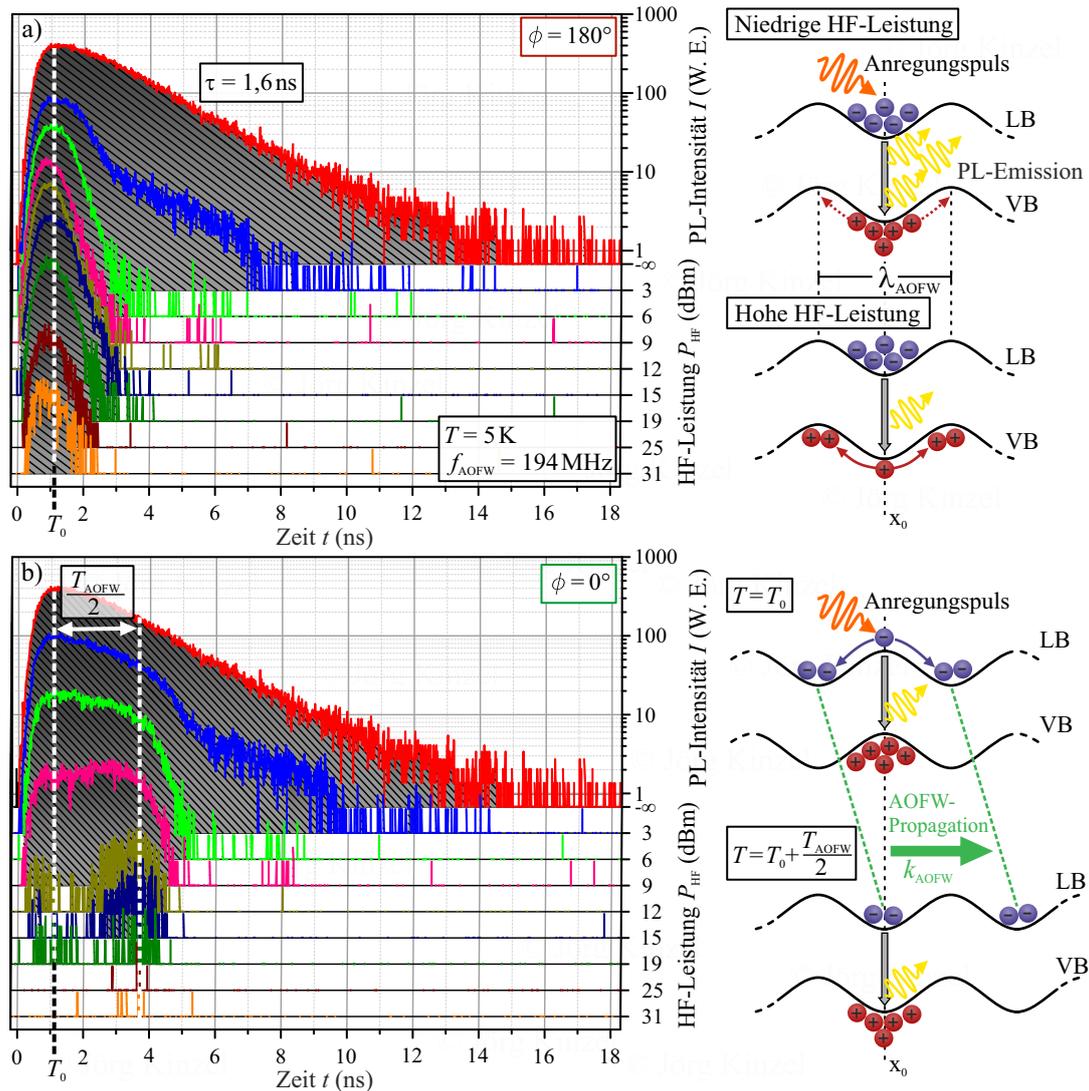


Abbildung 9.2: Modulation der Histogrammkurve von Nanodraht D bei Variation der HF-Leistung unter phasenstarrer Kopplung der Anregung der Elektron-Loch-Paare. Rot entspricht dem ungestörten Zerfall, anschließend folgt das Ansteigenden der HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 3 \text{ dBm}$ in blau bis 31 dBm in orange. a) Erzeugung der Elektron-Loch-Paare im Maximum der PL-Emission bei einer Phasenlage von $\phi = 180^\circ$. Diese entspricht der stabilen Lage der Elektronen im Minimum der Bandstruktur, wie schematisch dargestellt. Mit steigender HF-Leistung kommt es zur Abnahme der PL-Intensität zum Zeitpunkt T_0 . b) Anregung im Minimum der PL-Emission bei der Phasenlage von $\phi = 0^\circ$. Hierbei werden die Elektronen am instabilen Punkt im Leitungsband erzeugt. Aus der Dynamik der Ladungsträger und der Propagation der AOFW, entsteht im Histogramm eine zeitliche Aufspaltung des Abfalls der PL-Emission um $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/2$.

Hierbei gilt es zu beachten, dass das elektrische Feld der AOFW bei der angelegten HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 3 \text{ dBm}$ nicht ausreicht die Ladungsträger mit der sich ausbreitenden Welle zu transportieren, sondern sich weiterhin im Bereich des Anregungs- und Detektionspunkts befinden. Dies führt dazu, dass sich diese lediglich mit der propagierenden Typ-II Bandkantenmodulation auf und ab bewegen, sofern diese nicht durch partiellen Überlapp rekombinieren. Dieser Fall liegt vor allem bei der Phasenlage von $\phi = 180^\circ$ vor, wo deren Abfluss aus dem Reservoir in der Bandstruktur durch strahlende Rekombination zu einer raschen Abnahme der PL-Intensität führt. Für den weinroten Transienten tritt dieser Fall erneut nach einer kompletten Schwingungsperiode bei $t^* = t' + T_{\text{AOFW}} = (7,6 \pm 0,5) \text{ ns}$ auf, sodass hier die PL-Intensität durch die hohe Zerfallsrate schnell absinkt.

Für die Phasenlage von $\phi = 0^\circ$, welche durch den grünen Transienten repräsentiert wird, ist die Situation der Anregung der Ladungsträger umgekehrt, sodass die Elektronen am instabilen Punkt der Bandkantenmodulation erzeugt werden. Durch die einhergehende Separation am Ort der Anregung kommt es zunächst zu einem konstant flachen Verlauf des Transienten, da die Rekombination der Elektron-Loch-Paare in der Typ-II Bandkantenmodulation limitiert wird. Erst mit der Propagation der AOFW und dem damit wiederhergestellten direkten Überlapp der Elektronen und Löcher am Ort der Anregung, kommt es zu einer gesteigerten Rekombination und damit zu einem steilen Abfall des Transienten. Somit ergibt sich mit der Propagation der AOFW nach der Zeitspanne $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/2$ für $\phi = 0^\circ$ das identische Arrangement der Elektron-Loch-Paare wie zu Beginn der entgegengesetzten Phasenlage von $\phi = 180^\circ$ und damit gleichen Ausprägung einer Stufe im Abfall des Transienten, jedoch um $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/2$ versetzt.

Somit lässt sich anhand der Modulation der beiden aufgenommenen Transienten die Separation des Elektron-Loch-Paars auf Grund der Dynamik des Elektrons im elektrischen Feld zeitlich aufgelöst verfolgen. Dabei ergibt sich ein übereinstimmendes Verhalten zur Beschreibung der Beobachtungen aus den zeitintegrierten Messungen in Abschnitt 8.2. Zur Erfassung der Dynamik von Elektronen und Löchern am Ort der Anregung sowie dem Übergang in das Transportregime ist in Abbildung 9.2 die Abhängigkeit der Transienten von der applizierten HF-Leistung für beide extremalen Punkte der relativen Phasenlage abgebildet.

Sowohl in Diagramm 9.2 a) als auch in b) entsprechen die Transienten des ungestörten Zerfalls welche in rot dargestellt sind sowie die stufenförmige Modulation der Transienten bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 3 \text{ dBm}$ in blau, den in Abbildung 9.1 b) gezeigten Verhältnissen.

Für die relative Phasenlage von $\phi = 180^\circ$ resultiert aus der Steigerung der HF-Leistung auf $P_{\text{HF}} = 6 \text{ dBm}$ das Ausbleiben der verzögerten Stufe in der PL-Intensität bei $t = T_0 + T_{\text{AOFW}} = 6,4 \text{ ns}$. Lediglich die initiale direkte Rekombination erzeugt die Intensität der PL-Emission, wie in Abbildung 9.2 a) schematisch für niedrige HF-Leistungen dargestellt. Dieses Verhalten hat seine Ursache in dem mit der Verdopplung der HF-Leistung eintretenden effektiven Transport der Elektronen in der Typ-II Bandkantenmodulation der propagierenden akustischen Oberflächenwelle, sodass diese nicht mehr für eine zeitverzögerte Rekombination am Anregungspunkt z_0 zur Verfügung stehen. Diese Schwelle der HF-Leistung stimmt mit dem Einsatz der steigenden Modulationstiefe ξ_1 in Abbildung 8.5 aus den zeitintegrierten Messungen überein und steht in beiden Fällen für einen effektiven Transport

der Elektronen im elektrischen Feld der AOFW. Mit weiter steigender HF-Leistung und damit steigender Feldstärke nimmt die Tiefe der Bandkantenmodulation zu, wodurch es zu einem vollständigen Transport der Elektronen in Ausbreitungsrichtung kommt und die vereinzelt Zählimpulse innerhalb der Zeitspanne der Stufe bei $t = T + T_{\text{AOFW}} = (7,6 \pm 0,5) \text{ ns}$ verschwinden.

Mit Überschreiten der HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 15 \text{ dBm}$ ist der einsetzende Abfall der initialen PL-Intensität zu beobachten. Wie man anhand der schematischen Zeichnung für hohe HF-Leistungen erkennen kann, kommt es in der zugehörigen elektrischen Feldstärke zum Drift der Löcher in die stabilen Maxima des Valenzbandes, was die direkte Rekombination durch die räumlichen Trennung verhindert. Bei weiter steigender HF-Leistung verstärkt sich die sofortige Separation und es kommt auf Grund der wachsenden Feldstärke zum Übergang in den effizienten Transport der Löcher mit der sich ausbreitenden AOFW. Lediglich die sofortige Rekombination eines Teils der optisch angeregten Elektron-Loch-Paare lässt sich auch bei der maximalen HF-Leistung nicht verhindern und erzeugt bei T_0 eine remanente PL-Emission bis hinauf zu einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 31 \text{ dBm}$.

Bei der entgegengesetzten relative Phasenlage von $\phi = 0^\circ$ zeigt sich mit steigender HF-Leistung ein abweichendes Verhalten im Abfall der Transienten. Die aus dem Drift der Elektronen in die Minima des Leitungsbandes entspringende Separation der Ladungsträger führt zu einer reduzierten Rekombinationsrate und damit verringerten Verbrauch der angeregten Elektron-Loch-Paare. Wie in Abbildung 9.2 b) schematisch dargestellt, gelangt ein Teil der Elektronen durch die Propagation der AOFW zurück zum Ort der Anregung und sorgen an dieser Stelle durch den Rückfluss für eine zeitliche Verlängerung der initialen PL-Emission. Das Ausbleiben der in Abbildung 9.1 beschriebenen Stufe bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 6 \text{ dBm}$ geht auch hier zurück auf den einsetzenden effektiven Transport der Elektronen weg vom Punkt der Anregung.

Bei weiter steigender HF-Leistung kommt es zum Anregungszeitpunkt T_0 zu einer immer schärfer werdenden Trennung der Elektron-Loch-Paare, so dass die initiale Emission mit Erreichen der HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 12 \text{ dBm}$ verschwindet. Die um $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/2 = 2,575 \text{ ns}$ verzögerte PL-Emission bleibt jedoch bestehen. Diese Aufspaltung der Emission ist eine weitere Folge des Rückflusses der Elektronen an den Anregungspunkt z_0 mit der Propagation der AOFW, wie in Abbildung 9.2 b) in grün schematisch dargestellt. Die zu Beginn entgegen der Ausbreitungsrichtung der AOFW getrennten Elektronen erreichen mit einer Verzögerung von $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/2$ die am Anregungspunkt z_0 auf Grund ihrer geringeren Beweglichkeit lokalisierten Löcher und rekombinieren mit diesen. Elektronen welche bei der initialen Separation eine Beschleunigung in Ausbreitungsrichtung erfahren, verlassen im Minimum der Typ-II Bandkantenmodulation den Detektionspunkt und werden, wie in Abschnitt 8.3 gezeigt, entlang des Nanodrahts transportiert.

Mit der weiteren Erhöhung der HF-Leistung kommt es auch im Falle der relativen Phasenlage von $\phi = 0^\circ$ zum einsetzenden Transport der Löcher durch die dynamische Modulation der Bandkantenstruktur durch die akustische Oberflächenwelle. Hierdurch verlassen ebenso die Löcher den Ort der Anregung und beide Ladungsträgerarten werden in der Bandkantenmodulation der AOFW räumlich separiert transportiert. Als Folge kommt es zur Unterdrückung der zeitverzögerten PL-Emission, wie ab einer angelegten HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 25 \text{ dBm}$ zu beobachten.

Zur genauen Erfassung des Einsatzpunktes der räumlichen Trennung der Exzitonen im Feld der AOFW sowie dem Übergang in das Transportregime, sind in Abbildung 9.3 die PL-Intensitäten der charakteristischen Emissionsanteile der Transienten für die relative Phasenlage von $\phi = 0^\circ$ und 180° für einen erweiterten Bereich der HF-Leistung zusammengefasst.

Die initiale Rekombination zum Zeitpunkt $t = T_0$, welche in Abbildung 9.3 a) dargestellt ist, zeigt für die weinrot markierte Phasenlage von $\phi = 180^\circ$, bei HF-Leistungen von $P_{\text{HF}} \leq 0$ dBm einen minimalen Anstieg PL-Intensität. Dieser ist in Übereinstimmung mit den zeitintegrierten Messungen in Abbildung 8.5 a) auf eine Reduzierung der Diffusion der freien Exzitonen im elektrischen Feld der AOFW zurückzuführen. Mit ansteigender HF-Leistung auf $P_{\text{HF}} = 3$ dBm kommt es zu einem leichten Absinken der PL-Intensität. Dies ist auf die einsetzende Separation der Elektron-Loch-Paare im elektrischen Feld der AOFW durch den Drift der Elektronen zurückzuführen, wobei dieser gleichzeitig das stufenförmige Abklingen des Transienten erzeugt. Die Abnahme der PL-Intensität setzt sich mit dem Einsatz des effektiven Transports der Elektronen durch die mit der steigenden elektrischen Feldstärke schärfer werdende Trennung am Ort der Anregung fort. Mit dem einsetzenden Drift der Löcher weg vom Ort der Anregung bei z_0 bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 15$ dBm wird im Anschluss ein deutlicher Abfall der PL-Intensität ausgelöst. Die vollständige Unterdrückung der initialen PL-Emission ist auf Grund der partiellen Rekombination während der Anregung der Exzitonen jedoch nicht möglich.

Für die initiale PL-Emission der in grün dargestellten relativen Phasenlage von $\phi = 0^\circ$, zeigt sich nach der anfänglichen Kompression der Ladungsträger am Ort der Anregung ab einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 3$ dBm ein steiler Abfall der PL-Intensität.

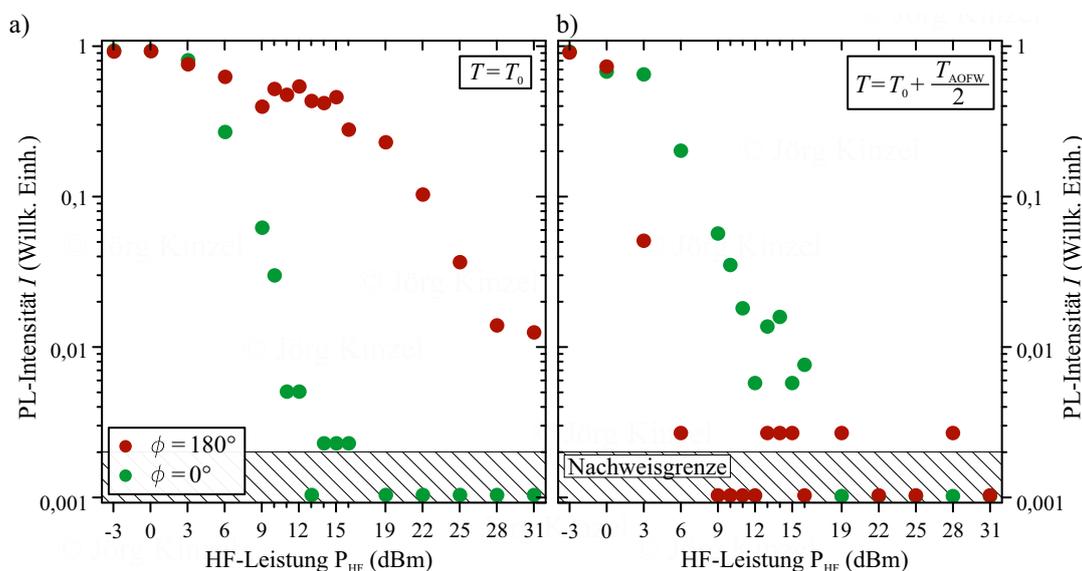


Abbildung 9.3: Zusammenfassung der in Abbildung 9.2 gezeigten Intensitätsmaxima der Histogrammkurven von Nanodraht D für verschiedenen HF-Leistungen. Vergleich der a) initialen PL-Intensität zum Zeitpunkt T_0 der relativen Phasenlagen $\phi = 0^\circ$ in dunkelgrün und $\phi = 180^\circ$ in weinrot, b) zeitverzögerten PL-Emission zum Zeitpunkt $t = T_0 + T_{\text{AOFW}}/2$.

Dieser geht auf eine effiziente Separation der Elektronen von den Löchern am Ort der Anregung z_0 durch Drift zurück und setzt sich mit steigender HF-Leistung konsequent fort. Bei einer Leistung von $P_{\text{HF}} = 16 \text{ dBm}$ kommt es durch den zusätzlich einsetzenden Transport der Löcher zur vollständigen Separation im elektrischen Feld der AOFW und damit zu keiner detektierbaren PL-Emission oberhalb der Nachweisgrenze des Sensors.

Bei der Betrachtung der PL-Intensität der verzögerten Rekombination zum Zeitpunkt $t = T_0 + T_{\text{AOFW}}/2$ in Abbildung 9.3 b) lässt sich für beide relativen Phasenlagen das Ausbleiben des Anstiegs der PL-Intensität aus der initialen Kompression bei kleinen HF-Leistungen feststellen, da diese verzögerte Rekombination allein auf die Dynamik der Ladungsträger in der propagierenden AOFW zurückzuführen ist. Stattdessen kommt es bei der Phasenlage von $\phi = 180^\circ$ bereits ab einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 3 \text{ dBm}$ zu einem steilen Abfall der PL-Intensität. Die Abnahme der PL-Emission für die HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 3 \text{ dBm}$ entspringt dabei der um $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/4$ verzögerten Trennung der Elektron-Loch-Paare an den Flanken der Typ-II Bandkantenmodulation, welche die Rekombinationsrate reduziert und das Auftreten der Stufe bei $t' = (2,4 \pm 0,5) \text{ ns}$ induziert. Eine Verdopplung der HF-Leistung auf $P_{\text{HF}} = 6 \text{ dBm}$ führt durch den Übergang in den effektiven Transport der Elektronen zur Unterdrückung der PL-Emission aus der zeitverzögerten Rekombination an den Bereich der Nachweisgrenze.

Mit Umkehrung der Phasenlage auf $\phi = 0^\circ$ kommt es zu einer Verzögerung des Einsatzpunktes der Abnahme der verzögerten PL-Emission, da die initiale Separation der Elektronen von den stationären Löchern und deren zeitverzögerter Rückfluss an den Anregungspunkt z_0 die Rekombination aufrecht erhält. Der bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 6 \text{ dBm}$ einsetzende effektive Transport der Elektronen mit der propagierenden AOFW, hat auf die zeitverzögerte PL-Emission keine reduzierende Auswirkung auf die Intensität. Erst der bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 15 \text{ dBm}$ kommt es zum vollständigen Abfall der PL-Emission, da der einsetzende Transport der Löcher in der Typ-II Bandkantenmodulation den Überlapp verhindert. Mit weiter steigender HF-Leistung erhöht sich die Effizienz des Lochtransports, sodass ein vollständig separierter Transport von Elektronen und Löchern stattfindet, welcher die PL-Emission am Ort der Anregung verhindert.

Zusammenfassend zeigt das zeitaufgelöste Verhalten der Rekombination der Elektron-Loch-Paare im elektrischen Feld der AOFW zum initialen Zeitpunkt $t = T_0$ ohne Einwirkung einer AOFW eine vollständige Abhängigkeit von der Diffusion der freien Exzitonen im GaAs-Kern des Nanodrahts um den Anregungspunkt, wie bereits in Kapitel 7 für die unpassivierten Nanodrähte identifiziert. Unter dem Einfluss der AOFW zeigt die um $\Delta t = T_0 + T_{\text{AOFW}}/2$ zeitverzögerte Rekombination für die relative Phasenlage von $\phi = 180^\circ$ eine alleinige Abhängigkeit vom direkten Transport der Elektronen mit der AOFW. Für die zeitverzögerte und remanente PL-Emission bei der Phasenlage von $\phi = 0^\circ$ zum Zeitpunkt $t = T_0 + T_{\text{AOFW}}/2$ ist im HF-Leistungsbereich von $P_{\text{HF}} = 3 \text{ dBm}$ bis 15 dBm der Rückfluss der Elektronen beziehungsweise deren Transport mit der Propagation der AOFW verantwortlich. Grundlage hierfür ist der unterdrückte nicht-strahlende Verlust der Elektron-Loch-Paare. Erst mit weiterer Steigerung der HF-Leistung kommt es in beiden Fällen zum Übergang in den vollständig separierten und sequenziellen Transport von Elektronen und Löchern in den Extrema der Typ-II Bandkantenmodulation, sodass der vollständige Abfall der zeitverzögerten

PL-Emission des untersuchten Kern/Mantel-Nanodrahts durch die Beweglichkeit der Löcher dominiert ist.

Sowohl die Limitierung der maximal möglichen Unterdrückung der PL-Intensität für die relative Phasenlage von $\phi = 180^\circ$ zum Zeitpunkt $t = T_0$ durch die Beweglichkeit der Löcher, als auch die verzögerte Emission bei der relative Phasenlage von $\phi = 0^\circ$ durch den Rückfluss der Elektronen stehen im Einklang mit den Beobachtungen des Verhaltens in den zeitintegrierten Experimenten in Kapitel 8. Ebenso zeigt die Leistungsabhängigkeit des Verhaltens der unterschiedlichen Ladungsträger die aus dem Verlauf der Modulationstiefe ξ_1 & ξ_2 in Abbildung 8.5 b) die erwartete Dynamik.

Zur vollständigen Erfassung der Abhängigkeit der Transienten von der relativen Phasenlage ist in Abbildung 9.4 das Abklingverhalten unter variabler relativer Phase bei konstanter HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 7 \text{ dBm}$ abgebildet. Dabei zeigt der hier analysierte Nanodraht E ohne die Modulation der Bandkante eine strahlende Lebensdauer von $\tau_S = (1,7 \pm 0,1) \text{ ns}$ des in rot eingetragenen Transienten und liegt damit im Bereich des für diese Kern/Mantel-Nanodrähte erwarteten Wert.

Mit Aktivierung der HF-Anregung zeigt sich für die in gelb dargestellte Phasenlage von $\phi = (0 \pm 45)^\circ$ die um $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/2$ verbreiterte initiale PL-Emission. Wie anhand Abbildung 9.2 b) detailliert erklärt, sorgt der zeitverzögerte Rückfluss der Elektronen, nach der anfänglichen Separation, für den zur Rekombination mit den remanenten Löchern benötigten Nachschub.

Mit der Steigerung der relativen Phasenlage auf $\phi = (90 \pm 45)^\circ$ verlagert sich der Anregungspunkt der Elektron-Loch-Paare in die abfallende Flanke der Typ-II Bandkantenmodulation, wie in Abbildung 9.4 b) schematisch illustriert. Die an diesem Punkt vorherrschende maximale elektrische Feldstärke sorgt für eine Trennung der Ladungsträgerpaars in Richtung der stabilen Extrema und damit für ein auf die initiale Anregung zum Zeitpunkt T_0 beschränktes scharfes Maximum des Transienten. Dieser ist im Histogramm braun dargestellt. Lediglich die eingesetzte HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 7 \text{ dBm}$ limitiert die Feldstärke, wodurch es zwar zur Separation kommt, jedoch analog der Ausbildung des stufenförmigen Abfalls in Abbildung 9.1 b) zu keinem effektiven Transport.

Eine weitere Drehung der relativen Phase auf $\phi = (180 \pm 45)^\circ$ überführt die Anregungssituation in den Fall der Anregung der Elektronen in der stabilen Position im Leitungsband. Dieses Arrangement hat die direkte Rekombination der Elektron-Loch-Paare mit maximaler PL-Intensität zur Folge. Erst mit der anhand Abbildung 9.2 a) beschriebenen Propagation der Bandkantenmodulation und damit verzögert ansteigender elektrischer Feldstärke sinkt die Rekombinationsrate bzw. die PL-Emission, was zum Abflachen des Transienten unter Ausbildung einer Stufe führt.

Das Voranschreiten der Phasenlage auf $\phi = (270 \pm 45)^\circ$ erzeugt eine zur Anregungssituation bei $\phi = 90^\circ$ umgekehrte Beschleunigung der Ladungsträger bei maximaler elektrischer Feldstärke. Hieraus folgt zwar eine identische Separation des Elektron-Loch-Paars, jedoch in umgekehrter Richtung. Im Zusammenspiel mit der Propagation der AOFW ergibt sich eine verlängerte Zeitspanne des direkten Überlapps am Ort der Anregung und damit eine Verlängerung der initialen Rekombination mit maximaler Intensität um $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/4 = 1,3 \text{ ns}$, wie in Abbildung 9.4 a) als ockergelber bzw. pinker Transient zu sehen.

Bei $\phi = (360 \pm 45)^\circ$ kommt es mit dem blauen Transienten zum Schulterschluss mit der Ausgangssituation für eine relative Phasenlage von $\phi = 0^\circ$.

Analog der Histogrammkurven in Abbildung 9.1 b) führt die hier eingesetzte HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 7 \text{ dBm}$ zur Modulation des Verlaufs des ursprünglichen Transienten für die ungestörte Rekombination, welcher in rot dargestellt ist. Dabei kommt es durch die elektrische Feldstärke der AOFW zur räumlichen Trennung der Ladungsträger am Ort der Anregung und Detektion, wie zuvor für die charakteristischen Phasenlagen beschrieben. Der effiziente Transport von Elektronen und Löchern bleibt hier jedoch aus, sodass die Ladungsträger in der sich ausbreitenden Typ-II Bandkantenmodulation lediglich am Anregungspunkt mit der Variation des Potentials auf und ab bewegen. Dies führt in Abhängigkeit der elektrischen Feldstärke und -richtung zu einer Modulation des Überlapps oder zur temporären Separation der Elektronen mit der Periode der AOFW. Experimentell äußert sich diese Modulation des Elektron-Loch-Abstands mit dem beobachteten stufenförmigen Absinken aller Transienten mit einer Periode von $T_{\text{AOFW}} = (5,15 \pm 0,50) \text{ ns}$ und steht damit in guter Übereinstimmung mit der theoretischen Beschreibung der Dynamik der Ladungsträger.

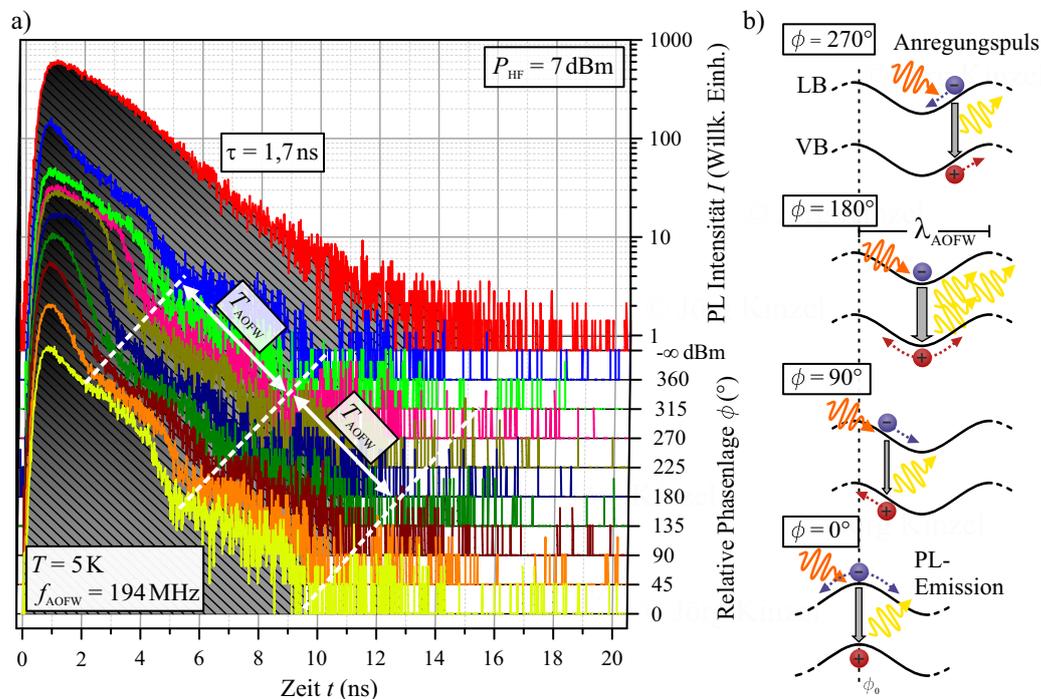


Abbildung 9.4: Modulation der Histogrammkurve von Nanodraht E bei Variation der relativen Phasenlage am Anregungspunkt. a) Anregung der PL-Emission mit einer Leistung von $P_{\text{Laser}} = 300 \text{ nW}$ und phasenstarrer Kopplung der AOFW. Der rote Transient entspricht der ungestörten Photolumineszenz. Von gelb nach blau Zunahme der relativen Phasenlage von $\phi = 0^\circ$ bis 360° unter konstanter HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 7 \text{ dBm}$. b) Schematische Darstellung der Punkte der Anregung der Ladungsträger innerhalb der Typ-II Bandkantenmodulation.

Da das initiale Verhalten der Elektron-Loch-Paare von der relativen Phasenlage der AOFW zum Zeitpunkt der Anregung abhängt und die Periode der Modulation konstant ist, ergibt sich mit der anwachsenden Phasenlage der einzelnen Transienten das Bild einer wellenförmigen Variation der PL-Intensität. Die zugehörigen Minima sind in Abbildung 9.4 a) durch die weiß gestrichelte Linie markiert.

Die Verlagerung der Position der Minima auf einen späteren Zeitpunkt durch die Erhöhung der relativen Phasenlage ϕ , lässt sich ausnutzen um zusätzlich die Drehrichtung der Anregungsphase des HF-Generator zu kalibrieren. Hierdurch stimmt der Anregungspunkt der Ladungsträger in der Typ-II Bandkantenmodulation im Experiment mit der schematischen Darstellung in dieser Arbeit überein.

Der Intensitätsverlauf der initialen PL-Emission bei Variation der relativen Phasenlage zeigt keine Zeichen der Existenz von Nebenmaxima und -minima, wie in den zeitintegrierten PL-Messungen in Abschnitt 8.2 beobachtet. Zur Ausbildung dieser Charakteristika ist der Transport der Elektronen sowie der Drift der Löcher notwendig, welcher bei der eingesetzten HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 7 \text{ dBm}$ noch nicht auftritt. Dennoch lassen sich in der Ausprägung der Maxima der initialen PL-Emission die Grundzüge des dafür verantwortlichen Verlaufs der Ladungsträgerseparation im elektrischen Feld der Typ-II Bandkantenmodulation erkennen.

Zum Abschluss der Betrachtung der zeitaufgelösten PL-Emission von Kern/Mantel-Nanodrähten erfolgt die Untersuchung der Auswirkung einer akustischen Oberflächenwelle ohne starre Kopplung der Anregungsphase auf den zeitlichen Verlauf der Transienten der PL-Intensität.

Für den herangezogenen Nanodraht F ist in Abbildung 9.5 a) der Transient des ungestörten Zerfalls in rot dargestellt. Das Ausbleiben einer AOFW zur Modulation ist dabei durch die HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -\infty \text{ dBm}$ markiert. Aus dem Verlauf des Transienten ergibt sich durch numerische Anpassung eine Lebensdauer für den strahlenden Zerfall von $\tau_{\text{K/M}} = (1,5 \pm 0,1) \text{ ns}$ und damit wiederum im Rahmen des Fehlerbereich des erwarteten Werts von $\tau_{\text{K/M}} = (1,4 \pm 0,2) \text{ ns}$ [RSM13].

Mit Steigerung der HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 7 \text{ dBm}$ in blau, identisch der phasenstarrten Anregung in Abbildung 9.4, zu $P_{\text{HF}} = 32 \text{ dBm}$ in braun ist ein kontinuierlich steiler werdender Abfall der Transienten zu beobachten.

Da die schraffierte Fläche unter dem Transienten der Gesamtintensität der PL-Emission bei zeitintegrierter Erfassung entspricht, ergibt sich durch die kontinuierliche Abnahme der Fläche ein übereinstimmendes Verhalten zeitintegrierter PL-Spektroskopie ohne Kopplung der relativen Phasenlage, welche zu Beginn von Kapitel 8 in Abbildung 8.2 gezeigt ist.

Die dem beschleunigten Absinken der Transienten entsprechenden Lebensdauern der strahlenden Zerfälle sind in Abbildung 9.5 b) zusammengefasst. Der Wertebereich sinkt dabei von $\tau_{\text{S}} = (1,2 \pm 0,1) \text{ ns}$ für eine HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 7 \text{ dBm}$ auf $\tau_{\text{S}} = (0,3 \pm 0,1) \text{ ns}$ für $P_{\text{HF}} = 32 \text{ dBm}$. Hierbei kommt es bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 11 \text{ dBm}$ zu einer abrupten Änderung der Steigung der linearen Regression des Verlaufs der Lebensdauer von $m_1 = (-0,107 \pm 0,012) \text{ ns / dBm}$ auf $m_2 = (-0,023 \pm 0,001) \text{ ns / dBm}$. Dieser Wechsel der Steigung markiert den Einsatzpunkt der Diffusion der Löcher weg vom Ort der Anregung. Bei kleineren HF-Leistungen dominiert die Dynamik der Elektronen die strahlende Rekombination durch die einhergehende Separation und Transport, bei weiter steigender HF-Leistung der Übergang in das Regime des separierten Transports der Ladungsträger in der sich mit der AOFW ausbreitenden Typ-II Bandkantenmodulation durch den zunehmenden Transport der Löcher.

Trotz der Mittelung über alle Phasenlagen der Anregung und damit über die Dynamik der Elektron-Loch-Paare, lässt sich mit dieser Messmethode aus der Änderung der Steigung der strahlenden Lebensdauer τ_{S} von der angelegten HF-Leistung der

Einsatzpunkt des effektiven Transports der Löcher bestimmen. Die Form des initialen Peaks der PL-Intensität gibt dagegen keinen direkten Aufschluss über die ablaufende Dynamik der Ladungsträgerseparation, da sich die Effekte der Separation und des Rückflusses von Elektronen oder Löchern auf die PL-Intensität bei der Detektion überlagern.

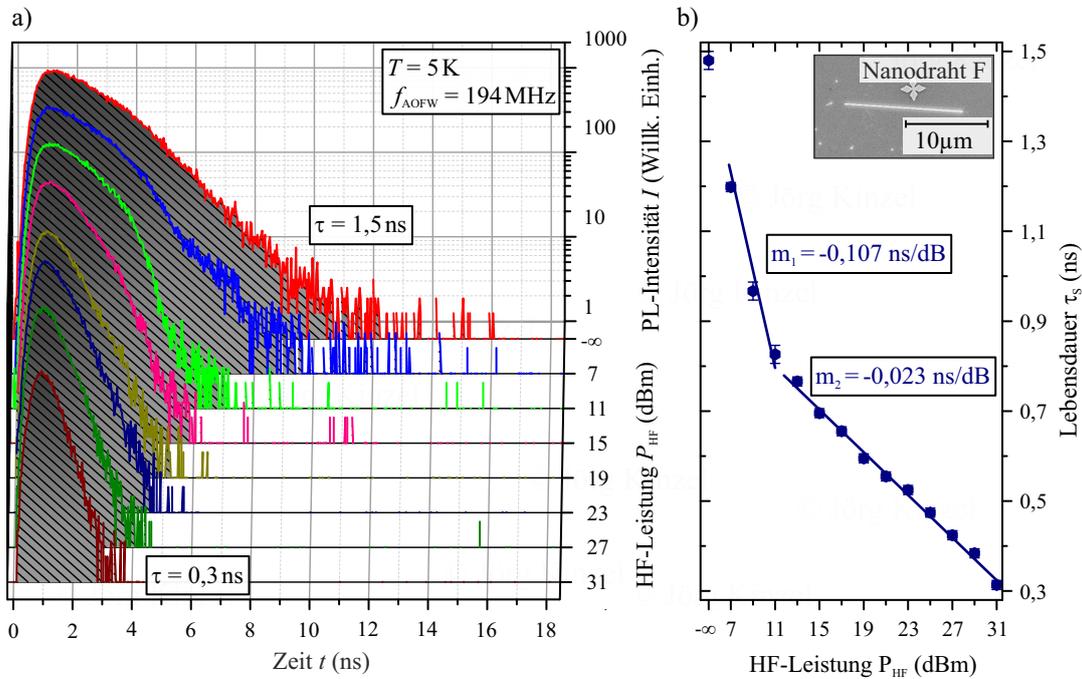


Abbildung 9.5: Abhängigkeit des Lebensdauer des strahlenden Übergangs von der angelegten HF-Leistung. a) Histogrammkurven der Photolumineszenz von Nanodraht F. Rot: Ungestörte Rekombination. Von blau nach braun Emission bei ansteigender HF-Leistung, ohne starre Kopplung der Phase. b) Anhand der Transienten ermittelte Lebensdauer τ_s

Insgesamt untermauert die zeitaufgelöste Analyse der Kern/Mantel-Nanodrähte das Bild der Dissoziation und Separation der optisch angeregten Exzitonen im elektrischen Feld der akustischen Oberflächenwelle in Abhängigkeit der HF-Leistung. Gegenüber der zeitintegrierten Detektion ist bei der zeitaufgelösten Analyse die direkte Manipulation der Rekombination durch die AOFW sichtbar und ermöglicht es die strahlende Lebensdauer zu verlängern [RZW97]. Die Analyse der Histogrammkurven für die hier untersuchten Kern/Mantel-Nanodrähte C bis F zeigt ohne Beeinflussung durch die AOFW eine Lebensdauer des freien Exzitons von im Mittel $\tau_{\text{K/M}} = (1,5 \pm 0,2)\text{ ns}$ auf, welche deutlich über der Lebensdauer von unpassivierten intrinsischen GaAs-Nanodrähten $\tau_{\text{intr}} \approx 30\text{ ps}$ [DHB 10]. Somit stellt die strahlende Rekombination in den Kern/Mantel-Nanodrähten den dominanten Verlustkanal der Ladungsträgerpaar dar und erzeugt zusammen mit der Unterdrückung der nichtstrahlenden Rekombination durch den $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Mantel des Nanodrahts einen deutlichen Anstieg in der Intensität der Photolumineszenz. Die Unterschiede in der beobachteten Lebensdauer zwischen den herangezogene Nanodrah-

ten lässt sich durch eine minimale Variation des Durchmessers der Nanodrähte erklären. Im Bereich des Durchmessers der hier untersuchten Nanodrähte von $d_{\text{ND}} = (130 \pm 10)$ nm führt bereits eine Verjüngung des Radius um $\Delta r = 3$ nm zu einem Anstieg der Lebensdauer um $\Delta \tau_{\text{K/M}} = 0,1$ ns [DHB 10]. Wie in Abschnitt 8.3 beschrieben hat dies seine Ursache in der Änderung der Zahl der Oberflächenzustände mit steigendem Radius. Zusätzlich entsteht aus der Präsenz von Zwillingdefekten oder kurzen Wurtzit-Segmenten innerhalb der Zinkblende-Struktur die Möglichkeit der Lokalisation von Elektron-Loch-Paaren an den Grenzflächen des Übergangs, was eine Verlängerung der Lebensdauer des strahlenden Zerfalls bewirkt [SAG09, RSM13]. Die in den vorangegangenen Kapiteln herangezogene Beschreibung der experimentellen Beobachtungen durch Drift und Diffusion der Ladungsträger innerhalb der mit der AOFW propagierenden Typ-II Bandkantenmodulation, wird im folgenden Abschnitt anhand numerischer Simulation der Dynamik der Ladungsträgerpaare im elektrischen Feld mit realistischen Werten der Parameter überprüft.

9.2 Simulation der Ladungsträgerdynamik durch numerische Lösung des Ratenmodells

Das in Kapitel 4.2 beschriebene Verhalten der Ladungsträger unter dem Einfluss des elektrischen Felds einer akustischen Oberflächenwelle, bildet die Grundlage für die numerische Simulation der Dynamik der Elektron-Loch-Paare. In der Simulation wird die zeitliche Entwicklung des Aufenthaltsorts von Elektronen und Löchern, welche durch die zugehörigen Ladungsträgerdichten $n(z, t)$ bzw. $p(z, t)$ repräsentiert sind, durch die gekoppelten Differentialgleichungen (4.11) und (4.12) beschrieben. Zusammen mit der Bildungsrate von freien Exzitonen und deren strahlenden Rekombination, welche beide durch Gleichung (4.14) repräsentiert sind, lässt sich die experimentell vorliegende Situation der Ladungsträger in einem eindimensionalen Kanal nachstellen und das resultierende Verhalten verifizieren.

In Abbildung 9.6 ist eine Zusammenfassung der in der numerischen Simulation auftretenden Schlüsselsituationen in der Beschreibung der Dynamik der Elektron-Loch-Paare dargestellt, welche sich entlang der Ausbreitungsrichtung der AOFW im eindimensionalen Kanal bewegen. Die absolute Phasenlage ϕ_{abs} der Anregung in der Simulation ist hier mit $\phi_{\text{abs}} = 90^\circ$ gewählt, was in der Simulation der Erzeugung der Elektron-Loch-Paare in der Typ-II Bandkantenmodulation an dem für die Elektronen stabilen Punkt im Leitungsband entspricht.

Die wichtigsten Eckpunkte zur Durchführung der Simulation sind im folgenden beschrieben. Eine detaillierte Auflistung aller gesetzten Variablen findet sich im Anhang unter Parameter zur numerischen Simulation der Ladungsträgerdynamik.

Der untersuchte eindimensionale Ausbreitungskanal entspricht einem Nanodraht, dessen Wachstumsachse parallel zur z_{ND} -Achse der Simulation verläuft. Die Ladungsträger entstehen im Kanal an der Position $z_0 = 0$ mittels gepulster Anregung und können vergleichbar mit einem Kern/Mantel-Nanodraht nicht an der Oberfläche durch nichtstrahlende Rekombination verloren gehen. Pro Laserpuls werden 10 Exzitonen in der Typ-II Bandkantenmodulation angeregt, welche die experimentell beobachtete Lebensdauer von $\tau_s = 1,4$ ns besitzen. Die erzeugten Elektron-Loch-

Paare erfahren hiernach die Modulation durch das propagierende elektrische Feld der AOFW, wobei das Verhalten über 10 Wellenzüge simuliert wird. Auf Grund der strahlenden Lebensdauer der Exzitonen ist die PL-Intensität hiernach völlig abgeklungen. Die Wellenfront der AOFW breitet sich in der Falschfarbendarstellung von oben nach unten in positive z -Richtung aus (grüner Pfeil). Nach einem Durchlauf der 10 Wellenzüge folgen im Anschluss vier weitere Zyklen der gepulsten Anregung von Ladungsträgern und der Modulation durch die AOFW, so dass insgesamt 50 Schwingungen mit einer Periode von $T_{\text{AOFW}} = 5 \text{ ns}$ numerisch simuliert werden. Somit treffen analog der Synchronisierung im Experiment fünf Laserpulse mit einer Wiederholfrequenz von $f_{\text{AOFW}} = 20 \text{ MHz}$ phasenstarr gekoppelt auf die Typ-II Bandkantenmodulation aus der AOFW, welche eine dem Proben-typ-II ähnliche Resonanzfrequenz von $f_{\text{AOFW}} = 200 \text{ MHz}$ besitzt. Diese mehrmalige Anregung berücksichtigt Akkumulationseffekte der Ladungsträger im Nanodraht am Anregungspunkt, falls diese auf Grund räumlicher Trennung in den Extrempunkten der Bandkantenmodulation nicht rekombinieren oder durch eine zu geringe elektrische Feldstärke noch nicht effektiv mit der sich Ausbreitenden akustischen Oberflächenwelle transportiert werden. Bei der Wiederholung des Zyklus der Simulation zeigt sich eine Sättigung der PL-Intensität aus der dynamischen Modulation mit dem fünften Laserpuls. Auf Grund der Stabilisierung der Resultate wird dieser Puls mit den darauf folgenden zehn Schwingungen der AOFW zur Darstellung des Verhaltens der Ladungsträger in allen Falschfarbendarstellungen sowie der daraus resultierenden Photolumineszenz herangezogen.

Ein weiterer entscheidender Parameter zur Beeinflussung der Dynamik der Ladungsträger in der numerischen Simulation ist deren Beweglichkeit $\mu_{e,h}$. In Anlehnung an den bisher in der Literatur ermittelten Wertebereich für die Beweglichkeit der Elektronen in intrinsischem GaAs-Nanodrähten, wird in der numerischen Simulation eine Beweglichkeit von $\mu_e = 500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ herangezogen. Dies liegt deutlich unter dem Wert des intrinsischen GaAs-Volumenkristalls von $\mu_e = 3500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ bei einer Temperatur von $T = 5 \text{ K}$ [PJG09, JDG13], [Sin03]. Für die Beweglichkeit der Löcher kommt ein festes Verhältnis von zunächst $\mu_e:\mu_h = 10:1$ zum Einsatz [SPM12]. Die unberührt vom elektrischen Feld der AOFW wirkende Diffusion D ist über die Einstein-Smoluchowski-Beziehung nach Gleichung (4.10) mit der Beweglichkeit μ verbunden, so dass das eingestellte Verhältnis zwischen Elektronen und Löcher von 10:1 auch für die Diffusionskonstante $D_{e,h}$ gilt.

Die sich aus diesen Randbedingungen ergebende Verteilung der Ladungsträgerdichte unter dem Einfluss einer akustischen Oberflächenwelle mit einer akustischen Leistung von $P_{\text{AOFW}} = -32 \text{ dBm}$ ist als Falschfarbendarstellung in Abbildung 9.6 dargestellt. Die blaue Tönung entspricht dabei der Konzentration der Ladungsträgerdichte der Elektronen $n(z,t)$, die orange der der Löcher $p(z,t)$. Hierbei zeigt sich nach er Anregung am Ort $z_{\text{ND}} = 0$ zum Zeitpunkt $t = 0$ mit der zeitlichen Entwicklung eine Diffusion der Ladungsträger sowohl in positive als auch in negative z -Richtung. Die ausgeprägtere Diffusion der Elektronen geht auf deren höhere Diffusionskonstante D_e zurück, welche eine größere Diffusionslänge bewirkt. Eine Modulation der Ladungsträgerdichte durch das elektrische Feld der AOFW E_{AOFW} ist nicht zu erkennen. Somit kommt es in diesem Fall zur ungestörten strahlenden Rekombination der Elektron-Loch-Paare $N(z,t)$, wie im zugehörigen Histogramm der PL-Intensität oberhalb der Falschfarbendarstellung zu sehen. Der in rot dargestellte

Transient zeigt dabei die definierte Lebensdauer von $\tau = 1,4\text{ns}$. Bei der Ermittlung der resultierenden PL-Intensität werden jedoch nicht alle strahlend rekombinierenden Ladungsträger im Nanodraht herangezogen. Lediglich die Rekombination im Bereich von $z_{\text{ND}} = \pm 4,4\mu\text{m}$ wird zur Gesamtintensität gezählt und bildet damit den Detektionsbereich für die PL-Emission im Experiment nach. Ebenso unterdrückt diese Beschränkung Störungen durch strahlende Rekombination aus dem Bereich benachbarter Phasenlagen sowie unkontrollierte Auslöschung an den Enden des Nanodrahts.

Erst mit der Erhöhung der Leistung der Oberflächenwelle um $\Delta P_{\text{AOFW}} = 20\text{dB}$ und damit entsprechend Gleichung (3.22) zunehmender elektrischer Feldstärke E_{AOFW} kommt es zur Modulation der Dichteverteilung der Ladungsträger, wie in Abbildung 9.6 b) zu sehen. Die Elektronen werden dabei durch die Anregung bei der absoluten Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 90^\circ$ im stabilen Minimum des Leitungsbandes an der Diffusion entgegen als auch in Ausbreitungsrichtung der AOFW auf Grund des Einschlusses im elektrischen Feld gehindert, wie schematisch dargestellt. Hierdurch kommt es zur räumlichen Kompression der Elektronen am Punkt der Anregung, wie die tiefblaue Färbung bei $z_{t=0} = 0$ zeigt. Erst mit der zeitlichen Entwicklung und damit Propagation der AOFW kommt es zur Bewegung der Elektronendichte mit dem Tal der Typ-II Bandkantenmodulation des Leitungsbandes, so dass sich eine partielle Separation von der Dichteverteilung der Löcher einstellt. Insgesamt reicht die Feldstärke der AOFW nicht aus, die Elektronen effektiv mit der Ausbreitung zu transportieren, sodass sich diese mit Umkehr der Feldrichtung bei der Phasenlage $\phi_{\text{abs}} > 270^\circ$ zurück zum Anregungspunkt beschleunigt werden. Erst im Verlauf mehrerer Wellenzüge der AOFW kommt es zu einer Nettobewegung in Ausbreitungsrichtung. Hierbei ist die Dauer der Beschleunigung entgegen der Ausbreitungsrichtung gegenüber der in Propagationsrichtung wirkenden auf Grund der sich fortbewegenden AOFW reduziert. Diese verkürzte Beschleunigung der Elektronen entgegen der Ausbreitungsrichtung der AOFW ist in der Darstellung in Abbildung 8.3 b) für die relative Phasenlagen von $\phi \gtrsim 270^\circ$ schematisch zu erkennen.

Bei der hier eingesetzten Leistung der AOFW von $P_{\text{AOFW}} = -12\text{dBm}$ zeigt sich die Notwendigkeit der Beachtung von mehreren Anregungszyklen. Da die in Ausbreitungsrichtung verzerrte Elektronendichte innerhalb der zehn Perioden der AOFW noch nicht das virtuelle Ende des Nanodrahts erreicht hat, wo die Ladungsträger im Experiment nichtstrahlend verloren gehen, kommt es zu einer Überlagerung mit den Elektron-Loch-Paaren aus dem nächsten Anregungspuls. Wie für den fünften Laserpuls abgebildet, ist deshalb bereits zu Beginn eine Verteilung der Elektronendichte in positiver z -Richtung vorzufinden.

Die Dichteverteilung der Löcher im Valenzband zeigt auf Grund der niedrigeren Beweglichkeit μ_h keine Reaktion auf das hier vorhandene Feld der AOFW. Stattdessen breitet sich die Verteilung auf Grund der Diffusion in beide Richtungen entlang der z -Achse des eindimensionalen Kanals aus und bildet bei dieser Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 90^\circ$ somit den limitierenden Faktor für die Separation der Elektronen- von der Lochverteilung.

Für den Transienten der PL-Emission ergibt sich der in Abbildung 9.6 b) im zugehörigen Histogramm in dunkelblau dargestellte Verlauf. Hierbei zeigt sich, gegenüber dem rot gestrichelten Verlauf aus der numerischen Simulation ohne Einfluss der AOFW aus Abbildung 9.6 a), eine Überhöhung der initialen PL-Emission mit der an-

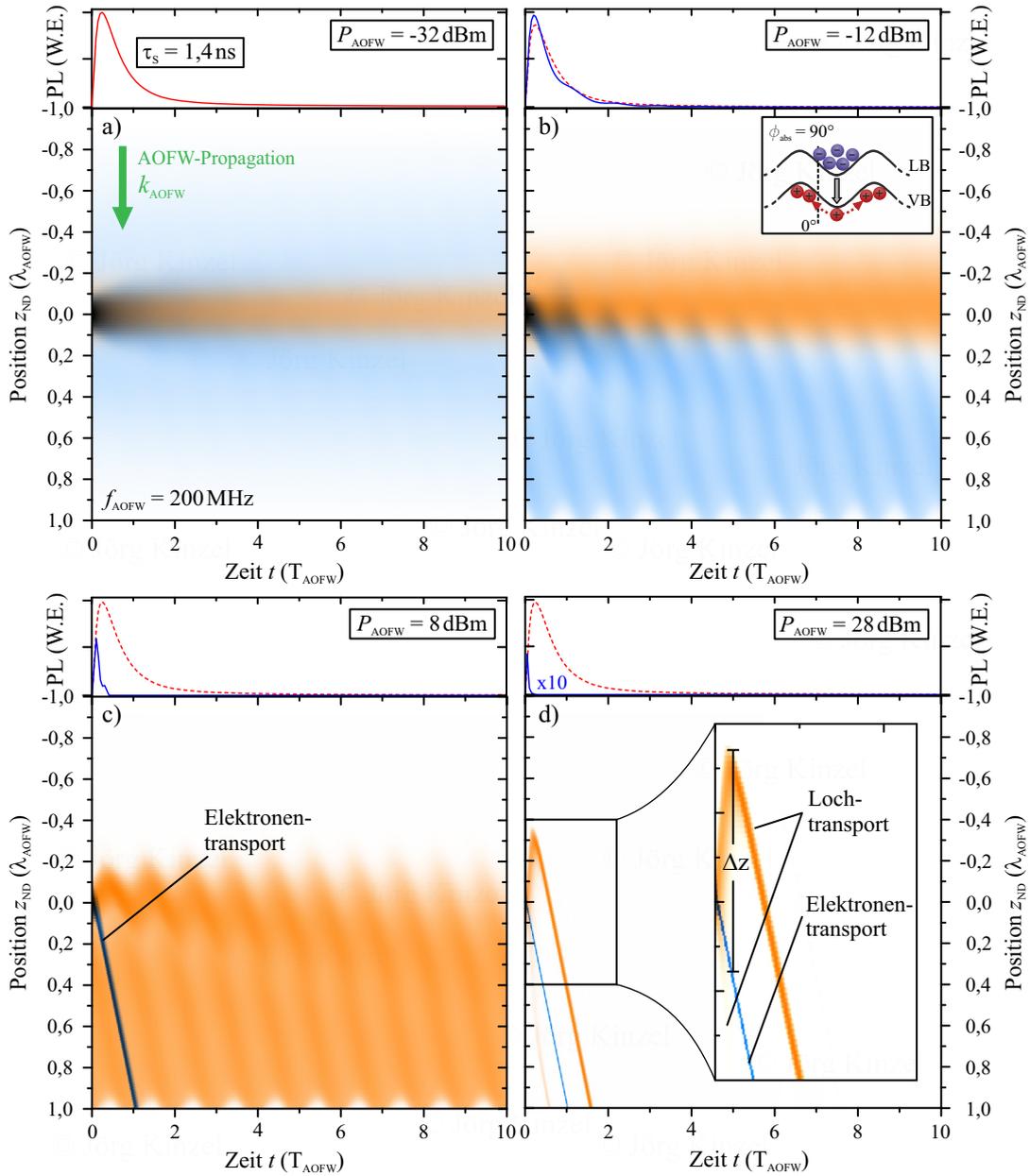


Abbildung 9.6: Falschfarbendarstellung der simulierten Ausbreitung der Dichteverteilung von Elektronen (blau) und Löchern (orange) unter dem Einfluss der AOFW bei phasenstarrer Kopplung der Anregung auf $\phi_{\text{abs}} = 90^\circ$. Der eindimensionale Kanal als Nanodraht liegt entlang der z_{ND} -Achse, mit mittlerer Anregung der Elektron-Loch-Paare bei z_0 . Zusätzlich sind die resultierenden PL-Histogrammkurve angetragen. a) Ausbreitung der Ladungsträger und strahlende Emission ohne Beeinflussung bei einer Leistung von $P_{\text{AOFW}} = -32 \text{ dBm}$. b) Einsetzende Kompression der Elektronen in Minimum des Wellenzugs bei einer Leistung von $P_{\text{AOFW}} = -12 \text{ dBm}$. c) Effizienter Transport der Elektronen und einsetzende Kompression der Löcher in den Extrema der Modulation bei einer AOFW Leistung $P_{\text{AOFW}} = 8 \text{ dBm}$. Einhergehender Abfall der PL-Emission. d) Effizienter Transport beider Ladungsträgerarten bei einer Leistung von $P_{\text{AOFW}} = 28 \text{ dBm}$.

schließenden Ausprägung einer Stufe im Abfall des Transienten. Die gesteigerte initiale PL-Intensität entsteht, in Übereinstimmung mit den experimentellen Beobachtungen in Abbildung 9.1 b), durch die gesteigerte Rekombination in Folge der Kompression der Elektronen am Anregungspunkt nach deren Erzeugung im stabilen Minimum des Leitungsbandes. Die Stufe im Abfall des Transienten bildet sich hingegen durch den reduzierten räumlichen Überlapp der Ladungsträgerdichten bei der hier auftretenden partiellen Separation der Elektron-Loch-Dichte bei $t = 3/4 \cdot T_{\text{AOFW}}$ sowie erneut um eine Schwingungsperiode verzögert.

Mit weiterer Steigerung der Leistung der AOFW auf $P_{\text{AOFW}} = 8 \text{ dBm}$ zeigt sich eine Steigerung in der Modulation der Ladungsträgerdichten für Elektronen und Löcher. Wie in Abbildung 9.6 c) zu sehen, kommt es bei dieser Leistung zum definierten Transport der Elektronen mit der sich ausbreitenden akustischen Oberflächenwelle. Das einhergehende elektrische Feld der Typ-II Bandkantenmodulation ist somit ausreichend, die Elektronen zum Startzeitpunkt $t = 0$ räumlich auf das Minimum des Leitungsbandes zu komprimieren und in Ausbreitungsrichtung zu beschleunigen, sodass deren Driftgeschwindigkeit der Elektronen v_{D}^e die Schallgeschwindigkeit der simulierten AOFW mit $v_{\text{AOFW}} = 3500 \text{ m/s}$ erreicht. Somit treffen diese scharf separiert nach einer Schwingungsperiode am das Ende des eindimensionalen Kanals bei $z = \lambda_{\text{AOFW}} = v_{\text{AOFW}} \cdot T$ auf, wie in Abbildung 9.6 c) anhand der linienartig komprimierten blauen Dichtverteilung zu erkennen.

Gleichzeitig reicht die Feldstärke im vorliegenden Fall aus, auch der Dichteverteilung der Löcher eine Modulation aufzuprägen, wie es in Abbildung 9.6 b) für die Elektronen der Fall ist. Dabei verdichten sich die Löcher allerdings im stabilen Maximum des Valenzbandes, was zu einem Phasenversatz von $\Delta\phi = 180^\circ$ zwischen den höchsten Konzentrationen der unterschiedlichen Ladungsträgern führt.

Für die PL-Emission bedeutet der effektive Transport der Elektronen und die einsetzende Separation der Löcher, dass diese nur direkt zum Anregungszeitpunkt überlappen und strahlend rekombinieren. Dies bewirkt im Transienten der zeitaufgelösten PL-Intensität einen Abfall der initialen Emission auf die Hälfte des Ausgangswerts, als auch eine Verkürzung der Lebensdauer der strahlenden Emission. Die verlängerte Emission am Fußpunkt des abfallenden Transienten entsteht aus der Rekombination der Elektronen mit Löchern aus einem vorherigen Laserpuls, welche noch im Feld der AOFW im den eindimensionalen Kanal hin und her bewegt werden und für die orange dargestellte Dichteverteilung sorgen.

Mit weiterer Erhöhung der Leistung der AOFW auf $P_{\text{AOFW}} = 28 \text{ dBm}$ setzt sich die Kompression der Ladungsträgerdichten auf das jeweils stabile Extremum in der Bandkantenmodulation fort. Wie in Abbildung 9.6 d) zu sehen, findet direkt bei der Anregung eine Separation der Elektron-Loch-Paare statt. Die Verteilung der Elektronen wird auf das Minimum des Leitungsbandes komprimiert, wohingegen die Löcher vom instabilen Punkt im Valenzband zu beiden Seiten in die stabilen Minima beschleunigt und dort ebenso komprimiert werden. Damit ergibt sich wiederum die Situation, dass die Verteilung der Elektronen analog Abbildung 9.6 c) direkt dem Minimum der Modulation folgen. Die eine Hälfte der Verteilung der Lochdichte wird hingegen zunächst entgegen der Ausbreitungsrichtung der AOFW beschleunigt und erst nach einer Verzögerung von $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/4$ durch die sich drehende Feldrichtung in die Ausbreitungsrichtung beschleunigt. Im Anschluss passieren diese mit einer Verzögerung von $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/2$ erneut den Anregungspunkt. Aus dieser Modulation entsteht

ein räumlich vollständig separierter Transport der Elektron-Loch-Verteilung mit einem Abstand von $\Delta z = \lambda_{\text{AOFW}}/2 = 7,75 \mu\text{m}$.

Der deutlich kleinere Teil der Lochdichte, welcher nach der Anregung von der instabilen Position im Valenzband in Ausbreitungsrichtung beschleunigt wird, erreicht ebenso das stabile Maximum der Modulation und läuft dem Elektronenpaket mit dem Abstand $\Delta z = \lambda_{\text{AOFW}}/2$ voraus.

Aus der sofortigen und vollständigen Trennung der Ladungsträgerdichten ist die Rekombination der Elektron-Loch-Paare auf den Moment der Anregung reduziert. Hierdurch wird die simulierte PL-Emission so stark unterdrückt, dass nur bei zehnfacher Überhöhung ein Transient im Histogramm zu erkennen ist. Zum Vergleich ist die Kurve des ungestörten Rekombination ohne Überhöhung angetragen.

Zusammenfassend ergibt sich für die vier diskutierten Leistungen aus der Betrachtung der Dichterverteilung von Elektronen und Löchern sowie deren strahlende Rekombination das in den zeitaufgelösten Experimenten beobachtet Verhalten. Die Anregung der Elektronen am stabilen Minimum in der Typ-II Bandkantenmodulation bei einer absoluten Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 90^\circ$ entspricht dabei der relativen Phasenlage von $\phi = 180^\circ$ im Experiment. Diese Differenz der Phasenlage entspringt der Berechnung des elektrischen Potentials ϕ_{AOFW} in der Simulation aus einer negativen Sinusfunktion, welche der Bandkante periodisch aufgeprägt wird. Im Experiment ist dieser empirisch gewonnen und muss in jeder Versuchsreihe neu kalibriert werden, weshalb eine Unterscheidung in der Nomenklatur eingehalten wird.

Bevor jedoch die Übereinstimmung der Histogrammkurven aus der Simulation für verschiedene Leistungen und Phasenlagen mit den in Abschnitt 9.1 durchgeführten zeitaufgelösten Experimenten verglichen werden kann, ist es nötig die in der Simulation eingesetzte Leistung der AOFW P_{AOFW} mit der im Experiment zugänglichen HF-Leistung des Hochfrequenzgenerators P_{HF} zu verbinden. Diese Verknüpfung erfolgt über das elektrische Feld des eindimensionalen Kanals in GaAs E_{GaAs} . Dessen Spitzenwert $E_{0,\text{GaAs}}$ errechnet sich in der Simulation nach Gleichung (3.22) aus dem festgelegten Wert für die Leistung der AOFW. Unter Einbeziehung der Parameter der virtuellen Verzögerungsstrecke mit einer Frequenz der AOFW von $f_{\text{AOFW}} = 200 \text{MHz}$ und der Materialeigenschaften für das simulierte GaAs, ergibt sich der in Abbildung 9.7 in schwarz gezeigte lineare Anstieg der Feldstärke $E_{0,\text{GaAs}}$ mit der Leistung der AOFW in der Simulation.

Umgekehrt lässt sich aus der Feldstärke $E_{0,\text{GaAs}}$ mit Hilfe des inversen piezoelektrischen Effekts errechnen, welche HF-Leistung nötig ist, die identische Feldstärke an der Oberfläche des piezoelektrischen LiNbO_{3-x} -Substrats zu erzeugen und damit den aufliegenden GaAs-Nanodraht vergleichbar zu manipulieren. Entscheidend für die Bestimmung der nötigen HF-Leistung ist der Umwandlungsverlust der elektrischen Leistung P_{HF} in die akustische Leistung der Oberflächenwelle P_{AOFW} bei der Einkopplung. Der in Abschnitt 5.3 aus der Einfügedämpfung ermittelte Verlustfaktor C für die im Experiment eingesetzte Anregung der AOFW für Proben Typ-II & III mit einer Propagation der AOFW entlang der Z-Richtung des LiNbO_{3-x} -Kristalls beträgt $C = 3,99 \text{ [mW]}$. Unter Beachtung der realen Geometrie der Verzögerungsstrecke ergibt sich die in Abbildung 9.7 oben angetragene Skala für die nötige HF-Leistung und damit eine direkte Verbindung zwischen Simulation und Experiment. Zur vereinfachten Vergleichbarkeit der Ergebnisse der Simulation mit den Resultaten der experimentellen Untersuchungen, sind die weiteren Abbildungen der simulierten

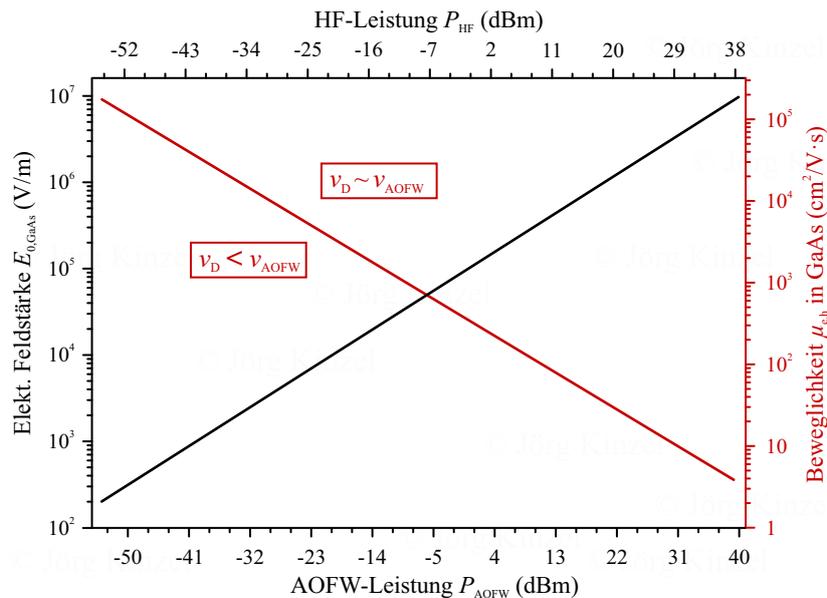


Abbildung 9.7: Kalibrierung der Leistung der AOFW P_{AOFW} in der Simulation auf die im Experiment zugängliche HF-Leistung P_{HF} des HF-Generators. Schwarz: Maximale elektrische Feldstärke $E_{0,\text{GaAs}}$ zur Beschleunigung der Ladungsträger. Dunkelrot: Untergrenze der Beweglichkeit $\mu_{e,h}$ der Ladungsträger um im vorliegenden elektrischen Feld der AOFW die Driftgeschwindigkeit $v_{\text{D}}^{\text{e,h}}$ zu erreichen, die der Ausbreitungsgeschwindigkeit v_{AOFW} des Wellenpakets entspricht.

Ergebnisse direkt mit der entsprechenden HF-Leistung P_{HF} aus der Kalibrierung angetragen.

Für alle anderen Ausbreitungsrichtungen und Wellenlängen der Verzögerungsstrecke auf dem piezoelektrischen Substrat muss bei der Berechnung die jeweilig zugehörige Einfügedämpfung Δ herangezogen werden, welche sich zusammengefasst in Tabelle 5.2 finden.

Für das in Kapitel 8 & 9 sowie in der numerischen Simulation im vorherigen Abschnitt beschriebene Verhalten der Ladungsträger, ist der Übergang von der Separation des Elektron-Loch-Paars zum Transport der unterschiedlichen Ladungsträgerspezies essenziell. Entscheidendes Kriterium hierfür ist, ob die maximale Feldstärke $E_{0,\text{GaAs}}$ der Bandkantenmodulation ausreicht, die Driftgeschwindigkeit der Ladungsträger $v_{\text{D}}^{\text{e,h}}$ innerhalb eines halben Wellenzugs auf die Ausbreitungsgeschwindigkeit der AOFW v_{AOFW} zu erhöhen. Anderenfalls kommt es zum remanenten Verhalten der Ladungsträger um den Punkt der Anregung ohne starke Modulation.

Dabei ist die Beweglichkeit $\mu_{e,h}$ der Ladungsträger der limitierende Faktor für die Beschleunigung im elektrischen Feld, so dass sich die Bedingung zum Einsatz des Transports schreiben lässt als

$$\mu_{e,h} \cdot E_{0,\text{GaAs}} = v_{\text{D}}^{\text{e,h}} > v_{\text{AOFW}} . \quad (9.1)$$

Die Abhängigkeit von der Beweglichkeit ist in Abbildung 9.7 als dunkelrote Trennlinie für eine Ausbreitungsgeschwindigkeit der AOFW von $v_{\text{AOFW}} = 3488 \text{ m/s}$ für Proben typ-II & III dargestellt. Oberhalb der Linie ist die Beschleunigung im Feld

ausreichend stark, die Ladungsträger bei gegebener Beweglichkeit $\mu_{e,h}$ auf die Ausbreitungsgeschwindigkeit der AOFW v_{AOFW} anzuheben, so dass diese der Propagation mit $v_{\text{D}}^{e,h}$ folgen. Unterhalb kommt zu einem remanenten Aufenthalt um den Anregungspunkt.

Im Umkehrschluss ist es möglich, durch die Erfassung der charakteristischen Modulation der Histogrammkurven im Experiment bei ansteigender HF-Leistung möglich, auf den Einsatzpunkt des Transports und damit auf die zugrunde liegende Beweglichkeit zurückzuschließen.

Ziel des nächsten Abschnitts ist es deshalb, durch kontrollierte Variation der in der Simulation eingesetzten Werte für die Beweglichkeit der Elektronen und Löcher, die resultierenden charakteristischen Züge zu ermitteln und damit die experimentellen Ergebnisse der Histogrammkurven aus Abbildung 9.2 nachzubilden.

9.3 Ermittlung der Beweglichkeit der Ladungsträger in Kern/Mantel-Nanodrähten anhand zeitaufgelöster numerischer Simulation

Die in diesem Abschnitt durchgeführte numerische Simulation hat zum einen die Aufgabe, die bisher phänomenologisch ermittelten Wirkung der akustischen Oberflächenwelle auf das dynamische Verhalten von Elektronen und Löchern im eindimensionalen Kanal des Nanodrahts zu verifizieren. Zum anderen gelingt es durch die systematische Variation der Simulationsparameter das in Abbildung 9.2 experimentell beobachtete Verhalten der Histogrammkurven nachzubilden und damit im Umkehrschluss die Beweglichkeit der Ladungsträger im untersuchten Kern/Mantel-Nanodraht zu bestimmen.

Unter Beibehaltung der in Abschnitt 9.2 benutzten realen Parametern und Bedingungen zur Durchführung der numerischen Simulation, ergeben sich, für eine Beweglichkeit der Elektronen von $\mu_e = 500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und einem Verhältnis zur Beweglichkeit der Löcher von $\mu_e:\mu_h = 10:1$, die in Abbildung 9.8 zusammengefassten Verläufe der Histogrammkurven. Analog zur Erfassung der Abklingkurven an den ausgeprägten Extremalstellen der relativen Phasenlage von $\phi = 0^\circ$ & 180° im Experiment, kommt es auch in der Simulation zur Unterscheidung zwischen diesen beiden Situationen der Anregung.

In Abbildung 9.8 a) ist die Anregung der Elektron-Loch-Paare bei einer absoluten Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 90^\circ$ angetragen. Dies entspricht dem stabilen Lage der Elektronen im Minimum der Typ-II Bandkantenmodulation des Leitungsbandes sowie der instabilen für Löcher im Valenzband, wie in der schematischen Detailvergrößerung mittels der negativen Sinusfunktion verdeutlicht. Diese Situation stimmt in den durchgeführten Experimenten mit der relativen Phasenlage von $\phi = 180^\circ$ überein.

Die Zusammenfassung der numerisch ermittelten Transienten der strahlenden Rekombination in Abhängigkeit von der HF-Leistung schließt dabei die in Abbildung 9.6 anhand der Falschfarbendarstellung beschriebene Dynamik mit ein. Dies umfasst die ungestörte Rekombination der Elektron-Loch-Paare bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -23,3 \text{ dBm}$, welche allein auf die Diffusion der Ladungsträger zurück geht. Im Anschluss führt bei steigender HF-Leistung die Kompression der Elektronen

durch das stärker werdende elektrische Feld der AOFW zu einer partiellen Trennung am Ort der Anregung, was sich durch eine einsetzende stufenförmige Modulation des Transienten mit der Periode der AOFW T_{AOFW} äußert.

Mit weiterer Erhöhung der HF-Leistung auf $P_{\text{HF}} = -9,3 \text{ dBm}$ steigert sich die Ausprägung der Stufe in der Modulation, wie im braun dargestellten Transienten zu erkennen. Ebenso ist zu beobachten, dass mit dem Überschreiten der HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -9,3 \text{ dBm}$, zum Zeitpunkt $t = 4 \cdot T_{\text{AOFW}}$ keine PL-Intensität mehr auftritt. Grund hierfür ist Nettobewegung der Elektronendichte mit der AOFW, so dass die Elektronen den Bereich der Erfassung der PL-Emission im Verlauf mehrerer Wellenzüge verlassen.

Der mit steigender HF-Leistung kontinuierliche Rückgang der benötigten Schwingungsperioden bis zum Verlöschen der Photolumineszenz der Transienten, ist ein Zeichen für eine schärfer werdende Trennung der Elektronen von den Löchern am Anregungspunkt und damit stärker werdende Nettobewegung. So kommt es bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -5,3 \text{ dBm}$ zum Übergang in den einsetzenden Transport der Elektronen, so dass diese nicht mehr in den Einfluss der Umkehrung der elektrischen Feldrichtung bei $\phi > 270^\circ$ geraten, welcher diese entgegen der Ausbreitungsrichtung zurück zu den Löchern beschleunigen würde. Der anhand der Histogrammkurven ermittelte Einsatzpunkt für den Transport der Elektronen stimmt im Rahmen der Ablesegenauigkeit mit der aus Diagramm 9.7 erwarteten HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = (-5,5 \pm 1,0) \text{ dBm}$ überein. Somit ist hier die elektrische Feldstärke ausreichend um die Elektronen ab einer Beweglichkeit von $\mu_e = 500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ auf die Driftgeschwindigkeit der AOFW zu beschleunigen, wie von Gleichung (9.1) gefordert.

Der direkte Abfall der PL-Emission bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 4,7 \text{ dBm}$ ist der einsetzenden Kompression und Nettobewegung der Löcher direkt nach der Anregung zuzuschreiben. Analog Abbildung 9.6 c) führt dies zu einer scharfen Separation der Verteilung der Ladungsträger mit effizientem und damit vollständigen Transport der Elektronenverteilung in Ausbreitungsrichtung. Somit trägt nur noch die direkte Rekombination nach der Anregung der Ladungsträger zur strahlenden Rekombination bei.

Mit weiterer Erhöhung der HF-Leistung kommt es, durch den effektiven Drift der Löcher in die stabilen Maxima des Valenzbandes zu beiden Seiten, zur effizienten Dissoziation der Elektron-Loch-Paare und in der Folge zum vollständig separierten Transport mit einem einhergehenden Absinken der initialen PL-Emission auf das Minimum der Intensität.

Mit Drehung der Phasenlage der AOFW auf $\phi_{\text{abs}} = 270^\circ$ kehrt sich die Anregungssituation der Elektron-Loch-Paare in der Typ-II Bandkantenmodulation der Simulation um. Wie in der schematischen Darstellung in Abbildung 9.8 b) zu erkennen, befinden sich im vorliegenden Fall die Elektronen nach der Anregung nun in der instabilen Position des Leitungsbandes, die Löcher besetzen das stabile Maximum im Valenzband. Ausgehend von der annähernd ungestörten Rekombination bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -23,3 \text{ dBm}$, kommt es beim Überschreiten der HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -15,3 \text{ dBm}$ zur Ausbildung der Modulation im Abfall der PL-Emission, wie anhand des dunkelblauen Transienten zu sehen. Dabei sorgt der einsetzende Drift der Elektronen zu beiden Seiten des instabilen Maximums im Leitungsband für eine teilweise Trennung nach der Anregung. Zusammen mit der Propagation der Typ-II Band-

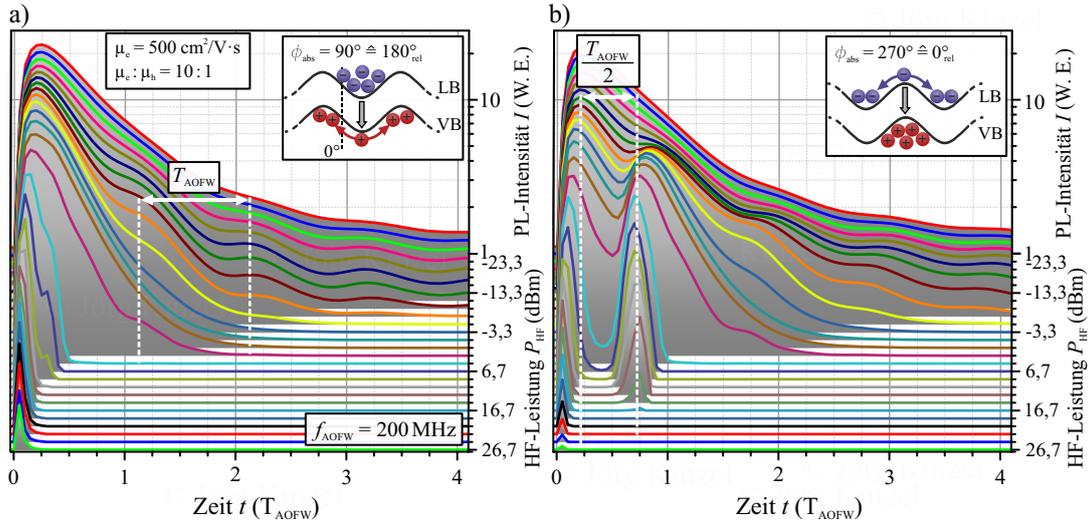


Abbildung 9.8: Zusammenfassung der mittels numerischen Simulation ermittelten Histogrammkurven für eine Beweglichkeit der Elektronen von $\mu_e = 500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ sowie der Löcher von $\mu_h = 50 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ in Abhängigkeit der HF-Leistung. a) Phasenstarre Anregung der PL bei einer absoluten Phase der AOFW von $\phi_{abs} = 90^\circ \cong 180^\circ_{rel}$. Mit ansteigender HF-Leistung zeigt sich eine Kompression und Modulation der Emission sowie deutlicher Abfall bei hohen HF-Leistungen. b) Anregung bei einer absoluten Phase der AOFW von $\phi_{abs} = 270^\circ \cong 0^\circ_{rel}$. Hierbei zeigt sich eine vergleichbare Modulation der Transienten bei kleinen HF-Leistungen, mit steigender Amplitude entsteht für $\phi_{abs} = 270^\circ$ ein zweites PL-Maximum welches um $T_{AOFW}/2$ zeitversetzt ist.

kantenmodulation ergibt sich durch den Rückfluss der Dichteverteilung der Elektronen zum Ort der Anregung eine Verlängerung des Überlapps der Ladungsträger um $\Delta t = T_{AOFW}/2$ wodurch sich die anfängliche PL-Emission entsprechend verlängert. Eine Steigerung der HF-Leistung auf $P_{HF} = -9,3 \text{ dBm}$ führt zu einer schärferen Kompression der Elektronenverteilung in den Minima des Leitungsbandes und damit zur einsetzenden Separation der Elektron-Loch-Paare am Punkt der Anregung. Dies führt zum Zeitpunkt $t = T_0 + T_{AOFW}/2$ mit dem Rückfluss der Elektronen zu einer Verteilung der Ladungsträger analog der initialen Situation bei der absoluten Phasenlage von $\phi_{abs} = 90^\circ$ und somit im weiteren Verlauf des Transienten zu einem identischen Verhalten. Die kürzer werdende Abklingzeit mit weiter steigender Leistung ist ebenso bei der Phasenlage von $\phi_{abs} = 270^\circ$ ein Zeichen für die ansteigende Nettobewegung der Dichteverteilung der Elektronen.

Mit weiter steigender HF-Leistung führt der Transport der Elektronen zu einer Trennung der unterschiedlichen Ladungsträgerverteilungen direkt nach der Anregung. Dies führt zu einem Abfall der Emissionsdauer des Transienten, wobei an der HF-Leistung von $P_{HF} = 6,7 \text{ dBm}$ ein sofortiges Abklingen der initialen PL-Emission auftritt. Der mit der Propagation der Typ-II Bandkantenmodulation einhergehende Rücktransport der Elektronen, welche zu Beginn entgegen der Ausbreitungsrichtung beschleunigt werden, führt auch in der numerischen Simulation zum Zeitpunkt $t = T_0 + T_{AOFW}/2$ zum temporären Überlapp der Elektronen mit den remanenten Löchern am Anregungsort z_0 und damit zum Wiederaufflammen der PL-Emission.

Erst die einsetzende Kompression und Nettobewegung der Löcher führt zur Unterdrückung der wiederaufflammenden PL-Emission, als auch zur Abnahme der initialen Rekombination. Wie in Abbildung 9.8 a) für die absolute Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 90^\circ$ ermittelt, tritt dieser Transport ab einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 4,7 \text{ dBm}$ ein und setzt sich mit steigender HF-Leistung bis zur völligen Unterdrückung der wiederaufflammenden PL-Emission fort. Dies entspricht dem vollständig separierten Transport der Elektronen und Löcher mit der propagierenden Typ-II Bandkantenmodulation.

Anhand der numerischen Simulation für die Rekombination der Exzitonen ergibt sich somit für beide extremalen Phasenlagen ein zum Experiment identisches Verhalten der Ladungsträgerverteilungen im eindimensionalen Kanal. Bei kleinen HF-Leistungen dominiert die Separation der Elektronen von den Löchern am Anregungspunkt die strahlende Rekombination. Mit steigender HF-Leistung führt die Nettobewegung und darauf folgend der Transport der Elektronen zur Modulation des Verlaufs der Transienten. Die Verteilung der Löcher bleibt auf Grund ihrer geringeren Beweglichkeit zunächst am Anregungsort lokalisiert und werden erst bei höheren HF-Leistungen transportiert. Dies führt durch die Separation der Ladungsträger zunächst zu einer Unterdrückung der PL-Emission und gleichzeitig bewirkt der gegenüber den Elektronen verzögert einsetzende Transport bei der absoluten Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 270^\circ$ das erwartete zeitverzögerte Wiederaufflammen der PL-Emission aus dem Rückfluss der Elektronen.

Im direkten Vergleich der numerischen Simulation zum Experiment zeigt sich mit dem Ansteigen der HF-Leistung ein Einsetzen des Transports der Elektronen als auch der Löcher bei niedrigeren HF-Leistungen. Da das Erreichen der Driftgeschwindigkeit nach Gleichung (9.1) proportional von der Beweglichkeit der Ladungsträger abhängt, bietet sich über diese in der Simulation einen Hebel um das Verhalten genauer an das Experiment anzupassen und damit die Beweglichkeit der Ladungsträger im Kern der Kern/Mantel-Nanodrähte genauer einzugrenzen.

Die aus der numerischen Simulation für die Beweglichkeit der Elektronen von $\mu_e = 250 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und $\mu_h = 25 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ resultierenden Transienten sind in Abbildung 9.9 zusammengefasst. Die Halbierung der Beweglichkeit gegenüber der vorangegangenen Simulation lässt anhand der Abhängigkeit in Abbildung 9.7 einen Anstieg in der HF-Leistung auf einen Wert von $P_{\text{HF}} = (2 \pm 1) \text{ dBm}$ erwarten. Um die Dynamik zwischen den Ladungsträgertypen im elektrischen Feld der akustischen Oberflächenwelle nicht zusätzlich zu beeinflussen wird das Verhältnis der Beweglichkeiten der Ladungsträgertypen von $\mu_e:\mu_h = 10:1$ beibehalten.

Beim direkten Vergleich der Einsatzpunkte des effektiven Transports der Elektronenverteilung zeigt sich eine Verschiebung der Charakteristika der Histogrammkurven zu höheren Leistungen. Sowohl der Beginn der Modulation des Transienten durch die partielle Trennung von Elektronen und Löchern ist um $\Delta P_{\text{HF}} = 6 \text{ dB}$ zu einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -15,3 \text{ dBm}$ (ockergelber Transient) verschoben, als auch der Einsatzpunkt des effektiven Transports der Elektronen ist auf die HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 0,7 \text{ dBm}$ erhöht. Der zugehörige braune Transient in Abbildung 9.9 a) & b) lässt hierbei einen Abfall der Ausprägung des stufenförmigen Abfalls des Transienten erkennen und gleichzeitig einen Rückgang der strahlenden Lebenszeit auf das Niveau des gelben Transienten für eine HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -5,3 \text{ dBm}$ in Abbildung 9.8, welcher dort eindeutig dem Einsatz des effektiven Transports der Elektronen zugeordnet werden kann. Somit entspricht der für eine Beweglichkeit der Elektronen von

$\mu_e = 250 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ ermittelte Einsatzpunkt des Transports von diesen dem aus der Kalibrierung im Rahmen der Ablesegenauigkeit erwarteten Schwellwerts.

Die einsetzende Kompression und Nettobewegung der Löcher bei der HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 6,7 \text{ dBm}$, mit einhergehendem Abfall der PL-Intensität durch Separation der Ladungsträger zeigt eine geringere Differenz von $\Delta P_{\text{HF}} = 2 \text{ dB}$. Hier wird die Rekombination weiterhin durch den bei dieser HF-Leistung erreichten vollständigen

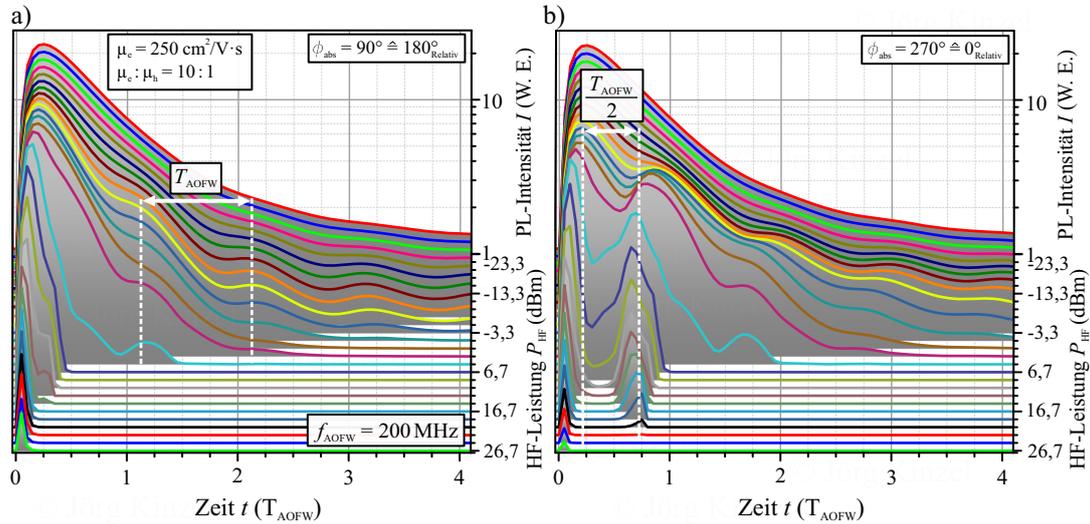


Abbildung 9.9: Zusammenfassung aus numerischen Simulation berechneten Histogrammkurven für eine Beweglichkeit der Elektronen von $\mu_e = 250 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ sowie der Löcher von $\mu_h = 25 \text{ cm}^2/\text{Vs}$. a) Phasenstarre Anregung der PL bei einer absoluten Phase der AOFW von $\phi_{\text{abs}} = 90^\circ$. Hier zeigt sich ein zu höheren HF-Leistungen verschobener Einsatz der Kompression und Modulation der PL-Emission, mit deutlichem Abfall bei hohen HF-Leistungen. b) Anregung bei einer absoluten Phase der AOFW von $\phi_{\text{abs}} = 270^\circ$. Vergleichbare Verschiebung der Modulation, mit zusätzlicher verstärkter Ausprägung des zweiten PL-Maximums bei hoher HF-Leistung.

Transport der Elektronen im Minimum der Bandkantenmodulation dominiert. Die Modulation der Lochdichte zeigt hier im Vergleich zur Variation bei einer Beweglichkeit von $\mu_h = 50 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ in Abbildung 9.8 auf Grund der gesteigerten Remanenz eine geringere Modulation der Dichteverteilung.

Erst mit weiter steigender HF-Leistung kommt es auch im vorliegenden Fall zur Separation der Verteilung von Elektronen und Löchern direkt nach der Anregung und damit zur Unterdrückung der initialen PL-Intensität als auch der um $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/2$ verzögerten PL-Emission in Abbildung 9.12 b). Das völlige Verschwinden der wiederaufflammenden Photolumineszenz zeigt weiter, gegenüber dem Verhalten in Abbildung 9.11 b), den erwarteten Versatz von $\Delta P_{\text{HF}} = 6 \text{ dB}$ und verifiziert hier den vollständig separierten Transport der Ladungsträger.

Beim Vergleich der numerisch ermittelten Histogrammkurven für eine Beweglichkeit der Elektronen von $\mu_e = 500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und $250 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ in Abbildung 9.8 & 9.9 mit dem experimentellen Verhalten in Abbildung 9.2 zeigt sich eine eindeutige Übereinstimmung der charakteristischen Züge. Durch die Reduktion der Beweglichkeit gelingt es

die Einsatzpunkte der Kompression und des Transports der Elektronen in der numerischen Simulation an die beobachteten Werte im Experiment anzugleichen. Lediglich die zeitverzögerte wiederaufflammende PL-Emission bei der absoluten Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 270^\circ$ ist in der numerischen Simulation im Vergleich zur Unterdrückung der initialen PL-Emission übermäßig ausgeprägt.

Eine Stellschraube zur Beeinflussung der zeitverzögerten Dynamik in der numerischen Simulation ist Variation des Verhältnisses der Beweglichkeiten zwischen den Ladungsträgerarten. Ausgehend vom bisher eingesetzten Verhältnis von $\mu_e:\mu_h = 10:1$, bei einer Beweglichkeit der Elektronen in der Dichteverteilung von $\mu_e = 500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$, sind in Abbildung 9.10 a) die Transienten für ein abweichendes Verhältnis der Beweglichkeiten der Löcher zusammengefasst. Die bei konstanter HF-Leistung von

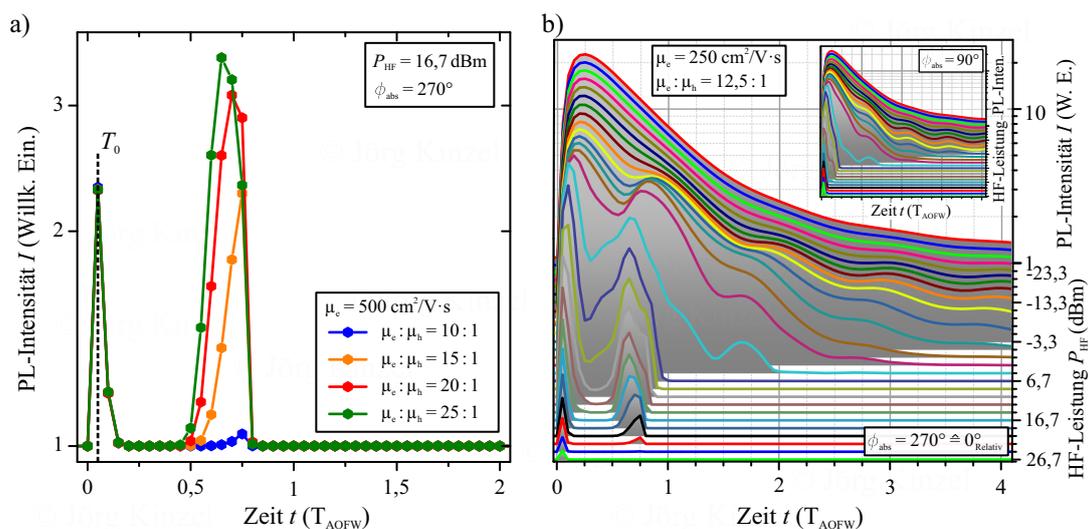


Abbildung 9.10: Feinabstimmung der Beweglichkeit der Ladungsträger im eindimensionalen Kanal der numerischen Simulation. a) Variation des Verhältnisses der Beweglichkeit zwischen Elektronen und Löchern von 10:1 (blau) bis 25:1 (grün) bei einem festgehaltenen Wert für die Elektronen von $500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und konstanter HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 16,7 \text{ dBm}$ sowie Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 270^\circ$. b) Histogrammkurven der Simulation bei einer Beweglichkeit der Elektronen von $250 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und der Löcher von $20 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ mit gesteigerter Ausprägung des Wiederaufflammens der zeitverzögerten Emission bei hohen Leistungen. Als Detailaufnahme sind die Histogrammkurven der Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 90^\circ$ mit identischem Einsatzpunkt der Kompression und Separation.

$P_{\text{HF}} = 16,7 \text{ dBm}$ simulierten Verläufe zeigen für die unterschiedlichen Beweglichkeiten keine Abhängigkeit der initialen PL-Emission zum Zeitpunkt T_0 von dem Verhältnis der Beweglichkeiten. Dem entgegen steht der scharfe Anstieg der Intensität des zweiten PL-Emissionspeaks, mit der Vergrößerung des Verhältnisses zwischen den Ladungsträgertypen. Hierfür ist die sinkende Beweglichkeit der Löcher μ_h verantwortlich, welche durch die Reduzierung des Drifts und der Diffusion für eine stärkere Lokalisierung am Ort der Anregung sorgt. Dies führt für die wiederaufflammende Emission zu einer Sättigung der PL-Intensität, da die strahlende Rekombination zum

Zeitpunkt des verzögerten Überlapps nun nicht mehr durch die Anzahl der Löcher in deren Verteilung am Anregungsort limitiert ist, sondern durch die Zeitspanne des Überlapps, welche dem Transit der Elektronen am Anregungsort entspringt. Ebenso verschiebt sich die Position des Emissionspeaks an den theoretisch erwarteten Wert von $t = T_0 + T_{\text{AOFW}}/2$. Die vorgezogene Rekombination hat ihre Ursache in der verminderten Nettobewegung der Löcher in Ausbreitungsrichtung der AOFW, sodass die Elektronen im Rückfluss bei der Ausbreitung entlang des eindimensionalen Kanals früher auf die Löcher treffen.

Die Auswirkungen der Modifikation des Verhältnisses der Beweglichkeit von Elektronen und Löchern sind in Abbildung 9.10 b) für eine Beweglichkeit von $\mu_e = 250 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und $\mu_h = 20 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ dargestellt. Dabei zeigt sich in dem vom Verhalten der Elektronen dominierten niedrigen und mittleren Bereich der HF-Leistung kein Unterschied zu den in Abbildung 9.9 für ein Verhältnis von 10:1 dargestellten Histogrammkurven.

Erst mit der einsetzenden dynamischen Modulation der Verteilung der Löcher im elektrischen Feld der AOFW wirkt sich die reduzierte Beweglichkeit ab einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 4,7 \text{ dBm}$ zunächst durch eine weiter verringerte Separation des initialen zum wiederaufflammenden Emissionspeaks aus, wie am hellblau dargestellten Transienten zu erkennen. Daneben zeigt sich das Aufflammen eines weiteren Emissionspeaks, welcher um eine zusätzliche Schwingungsperiode der AOFW verzögert ist. Dieser entsteht in Übereinstimmung mit den Beobachtungen im Experiment aus der verzögerten Rekombination von remanenten Ladungsträgern, die bei der applizierten HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 4,7 \text{ dBm}$ erst einer Nettobewegung unterliegen und somit ein zweites mal an den Ort der Anregung zurückfließen können. Mit der Erhöhung der HF-Leistung zeigt sich weiter eine Überhöhung der zeitverzögerten PL-Emission gegenüber der initialen, was im Einklang mit der experimentellen Beobachtung steht. Die weitere Steigerung der HF-Leistung auf $P_{\text{HF}} = 18,7 \text{ dBm}$ führt auch in der optimierten Simulation zu einem Versatz des Zeitpunkts der wiederaufflammenden PL-Emission, wobei dieser auf die Nettobewegung der Löcher entlang dem eindimensionalen Kanal zurückzuführen ist, sodass der Überlapp verzögert hergestellt wird.

Zusammenfassend lassen sich die Charakteristika der experimentell mittels s-TCSPC bestimmten zeitaufgelösten Charakteristika der PL-Emission durch Optimierung des Parameters für die Beweglichkeit der Ladungsträger in der numerischen Simulation nachbilden und ermöglichen im Umkehrschluss die Bestimmung der Beweglichkeit der Ladungsträger im Nanodraht. Durch die unterschiedliche Manifestation der Dynamik von Elektronen und Löcher in den Histogrammkurven erlaubt die Analyse der Leistungsabhängigkeit der Transienten gleichzeitig eine Unterscheidung den Auswirkungen einer Änderung der Beweglichkeit der Elektronen und der Löcher. Im vorliegenden Fall ergibt sich die beste Übereinstimmung für eine Beweglichkeit der Elektronen von $\mu_e = 250 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ sowie der Löcher von $\mu_h = 20 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und damit leicht unterhalb der bisher in der Literatur bestimmten Werte für GaAs-Kern/Mantel-Nanodrähte [PJG09, JDG13].

Einen anderen Ansatz zur Bestimmung der Beweglichkeit der Ladungsträger anhand von charakteristischen Merkmalen der PL-Emission ermöglicht der Vergleich des Verhaltens der zeitintegrierten PL-Spektroskopie zwischen Experiment und Simulation. Dies bietet den Vorteil, dass die langwierige Erfassung und Auswertung der Daten aus der zeitaufgelösten Spektroskopie umgangen wird und damit gleichzeitig möglich

Fehlerquellen wie eine Driftbewegung des optischen Aufbaus im Labor ausgeschaltet werden. Ebenso ermöglicht die zeitoptimierte Erfassung und Auswertung den Parameterraum im Experiment auf alle Phasenlagen der Anregung auszudehnen. Die bei der zeitintegrierten Darstellung der numerisch simulierten PL-Emission auftretenden Charakteristika sind im nächsten Abschnitt aufgeführt.

9.4 Bestimmung der Ladungsträgerbeweglichkeit anhand zeitintegrierter PL-Spektroskopie

Zum Vergleich des Verhaltens der PL-Intensität aus der zeitintegrierter Erfassung des Messsignals mit den Resultaten der numerischen Simulation sind die Ergebnisse aus den in Kapitel 8 durchgeführten Experimenten hier erneut in Abbildung 8.5 dargestellt. Die Antragung der PL-Intensität sowie der aus der Anpassung durch Gleichung (8.1) resultierende Verlauf gegenüber der relativen Phasenlage bei ansteigender HF-Leistung, geben dabei anhand der charakteristischen Züge der Modulation Auskunft über die im Nanodraht ablaufende Dynamik der beiden Ladungsträgerspezies. Hierzu zählt bei kleinen HF-Leistungen bis $P_{\text{HF}} = 5 \text{ dBm}$ zunächst die Überhöhung des PL-Signals bei gleichzeitiger Modulation der PL-Intensität mit der Periode der AOFW. Dieses Verhalten entsteht aus der Kompression und Separation der Elektronen von den Löchern im elektrischen Feld der AOFW am Ort der Anregung. Mit einsetzendem Transport der Elektronen kommt es zu einem Abfall der PL-Intensität, wie für $P_{\text{HF}} = 11 \text{ dBm}$ in hellgrün zu erkennen. Der bei dieser HF-Leistung von einer Sinusfunktion abweichende Verlauf ist eine Folge des Transports der Elektronen, wie anhand Abbildung 8.4 im vorhergehenden Kapitel erläutert.

Die Ausbildung des Nebenmaximums und -minimums bei einer Leistung von $P_{\text{HF}} = 17 \text{ dBm}$ geht auf die Dynamik der Ladungsträger nach der Dissoziation im elektrischen Feld der sich ausbreitenden AOFW zurück. Hierbei bewirkt der Übergang von der direkten Rekombination bei $\phi = (150 \pm 30)^\circ$, über das Nebenminimum bei $\phi = (240 \pm 30)^\circ$ aus der Nettobewegung der Löcher in Ausbreitungsrichtung und dem Drift der Elektronen entgegen dieser, bis zur verstärkten PL-Emission bei $\phi = (300 \pm 30)^\circ$ durch den Rückfluss der Elektronen zum Ort der Anregung, eine phasenabhängige Modulation der PL-Intensität mit der einfachen und halben Schwingungsperiode der AOFW.

Durch die bei weiter steigender HF-Leistung stärkere Beschleunigung der Ladungsträger kommt es zur Separation durch Kompression und sukzessivem Transport der Löcher. Dies konzentriert die PL-Emission auf die Phasenlage der beiden Maxima und zusätzlich bildet sich durch sofortige Dissoziation und Separation ein absolutes Minimum am Punkt der höchsten elektrischen Feldstärke bei $\phi = (90 \pm 30)^\circ$ mit Beschleunigung der Elektronen in Ausbreitungsrichtung aus. Gleichzeitig nimmt die Gesamtintensität der PL-Emission durch die Reduktion des Überlapps der Ladungsträger weiter ab.

Der Übergang von der durch den Drift des Elektrons getriebenen Separation in das Transportregime macht sich in der Anpassung des Werteverlaufs nach Gleichung (8.1) durch das Maximum der Modulationstiefe ξ_1 bemerkbar, wie in Abbildung 8.5 b) zu sehen. Gleiches zeigt sich mit dem Anstieg von ξ_2 für den aufkom-

menden effektiven Transport der Löcher in der Typ-II Bandkantenmodulation des Valenzbandes.

Die Phasenverschiebung des Nulldurchgangs der Sinusfunktionen der Regression $\gamma_{1,2}$ in Abbildung 8.5 c) entspricht der Änderung der Phasenlage der Maxima und Minima der PL-Intensität. Erst mit dem effektiven Transport der Ladungsträger in der Typ-II Bandkantenmodulation der AOFW stabilisieren sich die Phasenlagen der Rekombination und die Verschiebung verebbt.

Zum Vergleich des experimentell beobachteten Verhaltens mit der numerischen Simulation ist es zunächst notwendig, die einzelnen Transienten der zeitaufgelösten numerischen Simulation über die zehn Schwingungsperioden der AOFW zu integrieren. Dies entspricht analog der Erfassung im Experiment dem Abstand zwischen zwei Laserpulsen der Anregung, sodass hiermit die gesamte Dynamik eingeschlossen wird. Die aus einer Beweglichkeit der Elektronen von $\mu_e = 500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und der Löcher von $\mu_h = 50 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ resultierende Modulation der PL-Intensität ist in Abhängigkeit der zugehörigen absoluten Phasenlage in Abbildung 9.11 angetragen.

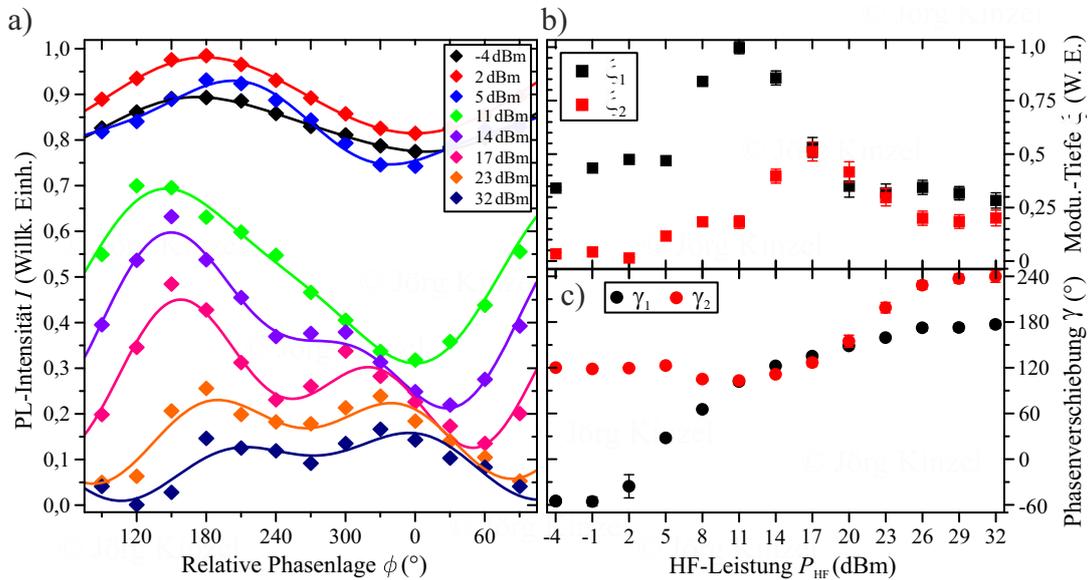


Abbildung 8.5: Erneute Darstellung des experimentell ermittelten Verlaufs der PL-Modulation von Nanodraht C unter steigender HF-Leistung und phasenstarrer Anregung. a) Zusammenfassung der PL-Intensitätskurven in Abhängigkeit der relativen Phasenlage mit zugehöriger Regression des Werteverlaufs durch die zweifache Sinusfunktion. b) Variation der Modulationstiefe des jeweiligen Anteils $\xi_{1,2}$ mit steigender HF-Leistung P_{HF} . Schwarz: 2π -periodischer Beitrag, rot: π -periodisch. c) Leistungsabhängigkeit der Phasenverschiebung der beiden Anteile der Anpassungsfunktion. γ_1 schwarz, γ_2 rot.

Dabei zeigt sich bei niedrigen HF-Leistungen die erwartete Modulation des Verlaufs mit einer 2π -periodischen Sinusfunktion. Die mit der HF-Leistung ansteigende Amplitude der Modulation macht sich in Abbildung 9.11 b) als Anstieg der Modulationstiefe ξ_1 bemerkbar und signalisiert an dessen Maximum bei $P_{\text{HF}} = -5,3 \text{ dBm}$ den Übergang in das Transportregime der Elektronen innerhalb der Simulation. Gleichzeitig lässt sich am Verhalten der Regression eine einsetzende Modulation mit halber

Periode erkennen, welche mit zunehmender HF-Leistung an Ausprägung gewinnt. Der für die Ausbildung des zweiten Minimums bei der absoluten Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = (144 \pm 36)^\circ$ verantwortliche Drift der Löcher in das stabile Maximum der Typ-II Bandkantenmodulation parallel zur Ausbreitungsrichtung der AOFW markiert den Einsatzpunkt für den partiellen Transport der Löcher. In Abbildung 9.11 a) äußert sich dieser als deutliche Modulation des Werteverlaufs ab einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 0,7 \text{ dBm}$ und zugleich als Anstieg der Modulationstiefe ξ_2 in Abbildung 9.11 b).

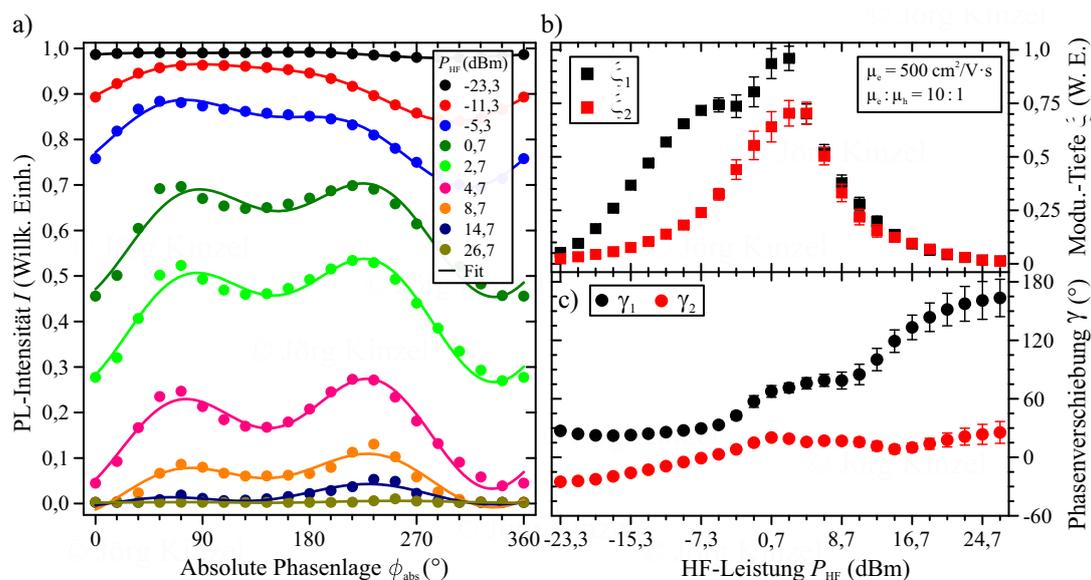


Abbildung 9.11: Zeitintegrierte Darstellung der PL-Emission aus numerischer Simulation für verschiedene HF-Leistungen bei einer Beweglichkeit der Ladungsträger von $\mu_e = 500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ für die Elektronen und $\mu_h = 50 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ für die Löcher. a) Abhängigkeit der PL-Intensität von der absoluten Phasenlage ϕ_{abs} bei steigender HF-Leistung von schwarz nach ockergelb. Regression des Werteverlaufs durch Anpassung mit zweifacher Sinusfunktion nach Gleichung (8.1). b) Änderung der Modulationstiefe des jeweiligen Anteils der Anpassungsfunktion $\xi_{1,2}$ mit steigender HF-Leistung. Schwarz: 2π -periodischer Beitrag, rot: π -periodisch. c) Leistungsabhängigkeit der absoluten Phasenlage der Nulldurchgänge in der Anpassungsfunktion. γ_1 schwarz, γ_2 rot.

Der steile Abfall der PL-Intensität in Abbildung 9.11 a) bei weiterer Erhöhung der HF-Leistung ist eine Folge des Übergangs in das Transportregime der Löcher, so dass nun beide Ladungsträgertypen voneinander räumlich separiert der Propagation der AOFW im eindimensionalen Kanal folgen. Hierbei zeigt sich mit dem Absinken der PL-Intensität auf ein Zehntel des Ausgangswerts eine Abnahme der Modulationstiefe beider Anteile. Das Überschreiten des Maximums von der Modulationstiefe ξ_2 bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 4,7 \text{ dBm}$ deckt sich dabei mit dem anhand zeitaufgelöster Simulation bestimmten Einsatzpunkt des Transports der Löcher in Abbildung 9.8. Ebenso kommt es im numerisch simulierten Verlauf der Modulation mit steigender HF-Leistung zu einer Verschiebung des Nulldurchgangs γ_1 der Regression nach Glei-

chung (8.1). Analog der experimentellen Beobachtung in Abbildung 8.5, führt die Ausbildung des Nebenminimums, durch den einsetzenden Drift und Rückfluss der Elektronen, zu einer Phasenverschiebung von γ_1 in positive Richtung. Mit dem Erreichen des vollständig separierten Transport der Dichtverteilungen von Elektronen und Löchern ab einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 10,7 \text{ dBm}$ stabilisiert sich die Phasenverschiebung γ_1 . Da γ_2 erst mit dem Einsetzen der π -periodischen Modulation an Gewichtung gewinnt und die zugehörige Phasenlage bereits beim Einsetzen der zusätzlichen Modulation festgelegt ist, variiert dieser Wert in der numerischen Simulation nur minimal mit weiterer Steigerung der HF-Leistung.

Somit zeigt auch die zeitintegrierte Darstellung des PL-Verlaufs aus der zeitaufgelösten numerischen Simulation die aus dem Experiment erwarteten und in Abbildung 8.5 dargestellten Charakteristika der Modulation der optischen Emission der Kern/Mantel-Nanodrähte. Dazu zählt das Auftreten der doppelten Modulation der PL-Emission in Abhängigkeit der absoluten Phasenlage bei der Anregung, als auch die Variation der Modulationstiefe sowie die Phasenverschiebung des Nulldurchgangs der Regression der Datenpunkte mit steigender HF-Leistung.

Durch die in der numerischen Simulation durchgeführte Anregung der Exzitonen in allen relevanten Phasenlagen der Typ-II Bandkantenmodulation, wird gleichzeitig das anhand Abbildung 8.3 beschriebene Modell für das dynamische Verhalten der Elektron-Loch-Paare im elektrischen Feld der propagierenden AOFW verifiziert. Trotz der allgemeinen Wiedergabe der Charakteristika der PL-Emission treten im Detail Abweichungen zwischen numerischer Simulation und Experiment auf. Dazu zählt in der Simulation die bereits bei niedrigeren HF-Leistungen einsetzende Unterdrückung der PL-Intensität, genauso wie die symmetrische Ausprägung des Haupt- und Nebenmaximums bei $\phi_{\text{abs}} = (72 \pm 18)^\circ$ und $\phi_{\text{abs}} = (234 \pm 18)^\circ$. Als Folge ist das Maximum der Modulationstiefe ξ_1 in Abbildung 9.11 b) nicht eindeutig ausgebildet und zu niedrigeren HF-Leistung verschoben.

Zur Optimierung des Verhaltens der numerischen Simulation bietet es sich analog der Anpassung der Charakteristika in den zeitaufgelösten Histogrammkurven in Abbildung 9.2 und 9.8 an, durch Variation der Beweglichkeit von Elektronen und Löchern eine Annäherung zu erreichen.

Zu diesem Zweck werden die anhand von Abbildung 9.10 optimierten Werte für die Beweglichkeit der Elektronen von $\mu_e = 250 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und der Löcher von $\mu_h = 20 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ herangezogen, um das simulierte Verhalten der von der Zeitkorrelation unabhängig erfassten zeitintegrierte PL-Intensität nachzubilden. Der sich für diese Werte abzeichnende Verlauf der PL-Intensität in der zeitintegrierten Darstellung der numerischen Simulation ist in Abbildung 9.12 dargestellt.

Die Reduzierung der Beweglichkeit der Ladungsträger zeigt bereits mit dem Einsatz der Modulation der PL-Emission bei der HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -11,3 \text{ dBm}$ eine Verbesserung in der Nachbildung der charakteristischen Züge. Hierbei kommt es in der Simulation durch die einsetzende Kompression der Elektronendichte am Ort der Anregung bei der absoluten Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = (72 \pm 18)^\circ$ zu einer Überhöhung der PL-Intensität gegenüber der HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -23,3 \text{ dBm}$. Gleichzeitig verbleibt die Verteilung der Löcher stärker am Ort der Anregung und ermöglicht damit eine Vergrößerung des Überlapps und damit der strahlenden Rekombination, wie auch in Abbildung 8.5 für das Verhalten im Experiment bei der HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 2 \text{ dBm}$ beobachtet.

Als weiteres Charakteristikum tritt bei steigender HF-Leistung eine unterschiedlich starke Ausprägung des Haupt- und Nebenmaximums auf. Mit hervortretender Modulation der in pink dargestellten PL-Emission bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 4,7 \text{ dBm}$, zeigt sich analog der Beobachtung im Experiment zunächst eine Dominanz des Hauptmaximums bei $\phi_{\text{abs}} = (72 \pm 18)^\circ$. Wie für die Abhängigkeit der PL-Intensität von der relativen Phasenlage anhand Abbildung 8.3 erklärt, entsteht dessen Dominanz aus der Anregung der Elektronen im stabilen Minimum des Leitungsbandes. Die zur strahlenden Rekombination nötigen Löcher verbleiben auf Grund ihrer niedrigeren Beweglichkeit und der zusätzlich minimalen Feldstärke am Ort der Anregung im instabilen Punkt des Valenzbandes, was zur maximalen Rekombinationsrate führt.

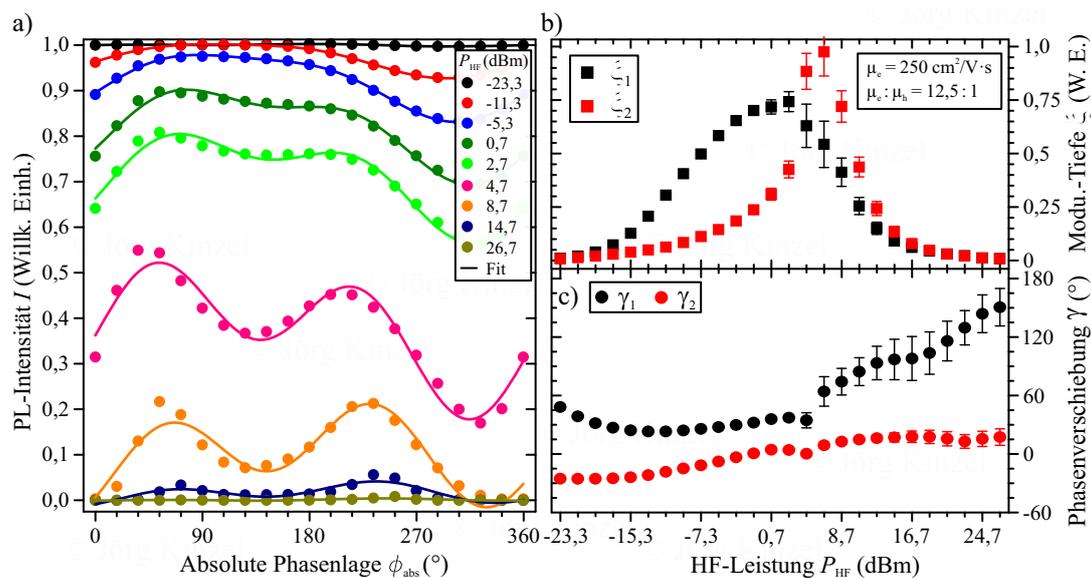


Abbildung 9.12: Zusammenfassung der Charakteristika der numerisch simulierten PL-Emission bei der Beweglichkeit der Ladungsträger auf $\mu_e = 250 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ für Elektronen bzw. $\mu_h = 20 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ für Löcher. a) Abhängigkeit der Modulation der PL-Intensität von der absoluten Phasenlage ϕ_{abs} bei steigender HF-Leistung. Regression des Werteverlaufs durch Anpassung nach Gleichung (8.1). b) Änderung der Modulationstiefe $\xi_{1,2}$ und c) Phasenverschiebung $\gamma_{1,2}$ bei steigender HF-Leistung.

Erst mit der Propagation der AOFW und ansteigender Feldstärke erfahren auch die Löcher eine ausreichende Beschleunigung. Im Nebenmaximum bei $\phi_{\text{abs}} = (234 \pm 18)^\circ$ führt die Anregung der Elektron-Loch-Paare nahe der umgekehrten extremalen Phasenlage an der Flanke der Typ-II Bandkantenmodulation zunächst zu einer Trennung der Elektron-Loch-Paare, wobei die Elektronen entgegen der Ausbreitungsrichtung beschleunigt werden. Im Anschluss bewirkt der Rückfluss der Elektronen mit der Propagation der AOFW bei gleichzeitiger nur mäßig ausgeprägter Beschleunigung der Löcher die Ausbildung des zweiten Maximums in der Zeitintegrierten Darstellung. Die dabei ablaufende Kompression der Verteilung der Elektronen auf das Tal der Modulation des Leitungsbandes sowie die Verdichtung der Löcher im Valenzband führen jedoch zu einem räumlich und zeitlich begrenzten Überlapp, welcher

nicht ausreicht die Gesamtintensität über das Niveau des Hauptmaximums zu steigern.

Mit Steigerung der HF-Leistung auf $P_{\text{HF}} = 8,7 \text{ dBm}$ kommt es zur Umkehr der Ausprägung der Maxima, wie in der orange abgebildeten Regression der PL-Intensität zu sehen. Die mit der einsetzende Nettobewegung der Verteilung der Löcher verknüpfte Drift entlang der z -Achse des eindimensionalen Kanals in die stabilen Maxima der Typ-II Bandkantenmodulation des Valenzbandes, sorgt bei $\phi_{\text{abs}} = (72 \pm 18)^\circ$ für eine Separation des Elektron-Loch-Paars nach der Anregung und damit für eine weitere Abnahme der PL-Intensität. Im umgekehrten Fall stabilisiert der Rückfluss der Elektronen die PL-Intensität bei einer Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = (234 \pm 18)^\circ$, so dass trotz stärkerer Separation und damit sinkender PL-Emission die Intensität des Nebenmaximums weniger abnimmt und das Maximum der PL-Emission übernimmt.

Diese Überhöhung des Maximums bei $\phi_{\text{abs}} = (234 \pm 18)^\circ$ bleibt auch bei weiter steigender HF-Leistung erhalten, so dass das aus der Beweglichkeit von $\mu_e = 250 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und $\mu_h = 20 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ resultierende Verhalten der PL-Intensität quantitativ die experimentellen Beobachtungen für die Modulation nachbildet.

Der Verlauf der numerisch ermittelten Modulationstiefe $\xi_{1,2}$ verschiebt sich im Vergleich zu Abbildung 9.11 b) wie erwartet zu höheren HF-Leistungen. Dies steht im Einklang mit der nach Gleichung (9.1) benötigten Feldstärke, um die Driftgeschwindigkeit $v_D^{e,h}$ der unterschiedlichen Ladungsträgerarten auf die Ausbreitungsgeschwindigkeit der AOFW zu erhöhen. Damit werden diese effektiv in der Typ-II Bandkantenmodulation transportiert und führen zur Modulation der PL-Emission. Wie bereits bei der Beschreibung der Dynamik der Ladungsträger in Abbildung 8.3 für den realen Nanodraht angeführt, steht das Maximum der Modulationstiefe für das Einsetzen des effektiven Transports der Ladungsträger. Dieser manifestiert sich für den Einsatzpunkt des Transports der Elektronen am Maximum von ξ_1 bzw. in der PL-Emission als deutliche Abnahme der Intensität in Abbildung 9.12 a). Für die Löcher am Maximum von ξ_2 und bei der Betrachtung der PL-Intensität als Wechsel der Dominanz zwischen dem Haupt- und Nebenmaximum der Photolumineszenz.

Die beide Maxima der Modulationstiefe besitzen im vorliegenden Fall einen Versatz der HF-Leistung von $\Delta P_{\text{HF}} = (4 \pm 2) \text{ dB}$ und zeigen im Rahmen der Fehlerbetrachtung eine Übereinstimmung mit der Beobachtung in Abbildung 8.3 b) von $\Delta P_{\text{HF}} = (6 \pm 3) \text{ dB}$.

Für die Einsatzpunkte des Anwachsens der Modulation der PL-Intensität zeigt sich für die in der numerischen Simulation eingesetzten Parameter eine Abweichung von der in Abbildung 8.3 experimentell für Nanodraht C im Experiment benötigten HF-Leistung. Im direkten Vergleich macht sich hier der verwendete unterschiedliche Kühlfinger des Tieftemperatur-Aufbaus im Zusammenspiel mit dem 0,75 m-Spektrometer bemerkbar. Dieser besitzt gegenüber dem zur Kalibrierung in Abschnitt 5.3 und in der zeitaufgelösten Untersuchung der Dynamik in Abschnitt 9.1 verwendeten Kühlfinger eine um $\Delta P = (7 \pm 1) \text{ dB}$ höhere Dämpfung. Unter Beachtung dieses zusätzlichen Abfalls der über den Schallwandler in die AOFW eingekoppelte HF-Leistung, zeigt sich eine gute Übereinstimmung mit dem Einsatzpunkt der Beschleunigung der Ladungsträger und dem Anstieg der Modulationstiefen $\xi_{1,2}$ in der numerischen Simulation in Abbildung 9.12 mit der experimentellen Beobachtung anhand von Nanodraht C.

Der im Unterschied zu Abbildung 9.11 auftretende Sprung in der Phasenverschie-

bung γ_1 entsteht durch den Wechsel des globalen PL-Intensitätsmaximums von $\phi_{\text{abs}} = 54^\circ$ auf $\phi_{\text{abs}} = 234^\circ$ in Abbildung 9.12 a) beim Übergang der HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 4,7 \text{ dBm}$ auf $8,7 \text{ dBm}$. Dieser ist im Experiment auf Grund des kontinuierlichen Übergangs weniger stark ausgeprägt. Mit dem Wechsel und der Stabilisierung des Maximums der PL-Intensität bei $\phi_{\text{abs}} = 234^\circ$ tritt, in Übereinstimmung mit Abbildung 8.3 c), eine Sättigung der Phasenverschiebung ein.

Die Modulation der PL-Intensität unter steigender HF-Leistung lässt somit auch in zeitintegrierter Erfassung des Messsignals eine Bestimmung der Ladungsträgerbeweglichkeit im Nanodraht zu. Der Vergleich der Charakteristika der PL-Modulation mit dem Verhalten aus numerischer Simulation erlaubt es dabei, durch Optimierung der Parameter eine genaue Wiedergabe der Phasenabhängigkeit, Modulationstiefe und Phasenverschiebung zu erreichen und damit im Umkehrschluss die Beweglichkeit zu ermitteln. Identisch zur Bestimmung der Beweglichkeit von Nanodraht D ergibt sich für Nanodraht C für eine Beweglichkeit von $\mu_e = 250 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und $\mu_h = 20 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ die beste Übereinstimmung beim Vergleich des beobachteten Verhaltens. Im Vergleich zur Modulation der PL-Intensität bei der Beweglichkeit von $\mu_e = 500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und einem Verhältnis zwischen Elektron und Loch von 10:1 zeigt sich eine klare Verschiebung des Einsatzpunkts zu höheren HF-Leistungen.

Gleichzeitig ist es anhand des Verlaufs der Modulationstiefe möglich, die Punkte der Kompression, des einsetzenden Drifts durch die Nettobewegung, als auch den effektiven Transport der Ladungsträger zu ermitteln und damit einen Überblick über die ablaufende Dynamik im Nanodraht bei spezifischer HF-Leistung zu erhalten.

Die Form der Modulation der PL-Intensität in Abhängigkeit von der absoluten Phasenlage bei der Anregung wird von der numerischen Simulation nur verschmiert reproduziert. Dies hat seine Ursache in der Betrachtung der Dichte der Ladungsträger, welche sich vor allem bei niedrigen HF-Leistungen gleichmäßiger verteilt vorliegt als diskrete Ladungsträger. Die zunächst diffuse Verteilung der Ladungsträgerdichte führt so zu einem breiten Maximum bei $\phi_{\text{abs}} = 54^\circ$ und ist ebenso für die glockenförmige Ausprägung der Modulationstiefe verantwortlich. Gleichzeitig überdeckt der herangezogene Erfassungsbereich der PL-Emission in der Simulation von $z_{\text{ND}} = \pm 4,4 \mu\text{m}$ einen Winkelbereich der Phasenlage von $\Delta\phi = 181^\circ$ und sorgt so zusätzlich für einen kontinuierlichen Übergang. Erst mit dem effektiven Transport der Ladungsträger, welcher als Grundlage die Komprimierung auf das entsprechende Extremum der Typ-II Bandkantenmodulation und damit definierte Rekombination besitzt, gleicht sich die Ausformung der Charakteristika vollständig an.

Ein großer Vorteil der akustischen Manipulation bei optischer Anregung und Detektion ist die ausschließliche Abhängigkeit der Ergebnisse von den intrinsischen Eigenschaften des Festkörpers. Dabei dient das in diesem Kapitel eingesetzte Verfahren die Dynamik der Elektronen und Löcher im propagierenden elektrischen Feld der AOFW zu beobachten und die Einsatzpunkte des Transports entlang der c-Achse des GaAs-Kern/Mantel-Nanodrahts zu bestimmen.

In zeitaufgelösten Messungen ist es aus der direkten Abbildung der PL-Emission bei ansteigender HF-Leistung und fester relativer Phasenlage möglich, anhand der charakteristischen Züge der Transienten, wie dem Abfall der Lebensdauer der strahlenden Rekombination oder der zeitverzögert wiederaufflammenden PL-Emission, auf die Vorgänge im inneren des Nanodrahts, wie dem selektiven Transport der Ladungsträger, zurück zu schließen. Mittels numerischer Lösung der Bewegungsgleichungen

für die Ladungsträger im elektrischen Feld der akustischen Oberflächenwelle, lässt sich die zu erwartende zeitabhängige PL-Emission anhand des Ratenmodells simulieren. Durch den Vergleich des Verhaltens und der Optimierung der Kongruenz durch die Variation der Simulationsparameter lässt sich im Umkehrschluss auf die Beweglichkeit der Ladungsträger im Nanodraht schließen.

Eine Optimierung der Effizienz des Verfahrens ergibt sich aus der Erweiterung der numerischen Simulation auf die zeitintegrierte Darstellung der Ergebnisse. Hierdurch fällt die langwierige und damit auf äußere Störungen empfindliche Aufnahme der Zerfallskurven weg. Gleichzeitig ist es möglich, die PL-Emission mit jedem klassischen μ -PL Versuchsaufbau mit HF-Einspeisung spektroskopisch zu untersuchen.

Dieses komparative Verfahren kann dabei auf ein universales Werkzeug ausgebaut werden. Durch das Vorhalten von Simulationsergebnissen mit unterschiedlichen Parametern für die Beweglichkeit und Lebensdauer, lässt sich aus dem Vergleich der Modulation der PL-Emission für jeden optisch aktiven Nanodraht die Beweglichkeiten von Elektronen und Löchern bestimmen. Limitierend ist bei dieser Analyse lediglich die mit der AOFW auf dem piezoelektrischen Substrat erreichbare Feldstärke, aus welcher eine untere Grenze der Beweglichkeit bewirkt bei der sich die Ladungsträger noch auf Driftgeschwindigkeit beschleunigen lassen.

Anderen Messkonzepte zur Ermittlung der Beweglichkeit der Ladungsträger an Nanodrähten, wie z.B. Hall-Messungen die bereits an Indiumphosphid-Nanodrähten (InP) oder Indiumarsenid-Nanodrähten (InAs) durchgeführt werden, erfassen dabei nur die Eigenschaften der exponierten Seitenfacette des Nanodrahts und benötigen dabei zur Erstellung der Kontaktstruktur eine deutlich aufwändigere Präparation der Probe [SHH12]. Gleichzeitig umgeht die rein optische Anregung und Detektion die Gefahr einer Beeinflussung des Elektronensystems des Nanodraht durch ohmsche oder Schottky-Kontakte aus der Aufbringung von Elektroden an der Oberfläche [TPS09]. Möglich Fehlerquellen bei der Untersuchung der akusto-elektrischen Modulation der Photolumineszenz begrenzen sich hauptsächlich auf Schwankungen der detektierten PL-Intensität durch Relativbewegung des Nanodrahts gegenüber dem Objektiv. Diese Bewegung führt senkrecht zur c-Achse des Nanodrahts zu einem Abfall der Detektionseffizienz, parallel zur Achse kommt es hingegen zu einer Variation der Anregungsphase welche die Phasenauflösung im Experiment verschlechtert. Durch eine rückgekoppelte Regelung der Piezoposition und damit der Anregung & Detektion lässt sich diese Problematik umgehen.

In diesem Zusammenhang gilt es auch die Temperaturabhängigkeit der Schallgeschwindigkeit der AOFW auf LiNbO_{3-x} zu beachten, welche bei Variation der Substrattemperatur eine Änderung der Phasenlage der Koinzidenz des Laserpulses mit der AOFW bewirkt [JB00]. Vor allem bei hohen HF-Leistungen ist deshalb die in Abschnitt 5.3 beschriebene gepulste Anregung der akustischen Oberflächenwelle unumgänglich. Hierdurch lässt sich ein unnötiger Leistungseintrag in den Kryostaten in der Zeit ohne Anregungspuls des Lasers zur Erzeugung der Exzitonen verhindern.

Trotz der guten Übereinstimmung zwischen experimenteller Beobachtungen und numerischer Simulation bleibt auf Grund der eingesetzten Schrittweite von $\Delta P_{\text{HF}} = 3 \text{ dB}$ bzw. 2 dB eine Unsicherheit bei der Bestimmung der Beweglichkeit. Durch die logarithmische Abhängigkeit kann dies eine Abweichung der ermittelten Beweglichkeit von bis zu 50% bedeuten, wie anhand der durchgeführten Kalibrierung in Abbildung 9.7 zu erkennen. Als einfache Lösung bietet es sich hier an, die Schrittweite der

HF-Leistung im Experiment zu reduzieren, als auch den untersuchten Wertebereich der HF-Leistung zu kleineren Werten zu erweitern, um das Einsetzen der Modulation vollständig zu erfassen.

Die in diesem Kapitel ermittelte Beweglichkeit der Ladungsträger $\mu_{e,h}$ im Kern/Mantel-Nanodraht besitzt als Grundlage den idealisierten homogenen Aufbau des eindimensionalen Transportkanals in der numerischen Simulation. Durch Störstellen im Nanodraht wie zum Beispiel Zwillingskorngrenzen oder den Übergang auf die in Nanodrähten erstmalig synthetisierte Wurtzit-Modifikation von GaAs kommt es zur Aufhebung des idealen Transports der Ladungsträger im Feld der sich ausbreitenden AOFW [SAG09].

Die aus der Beeinflussung der Ausbreitung der Ladungsträger entstehende Wirkung auf die strahlende Rekombination wird im nächsten Kapitel anhand selektierter Nanodrähte erläutert und durch Modifikation der numerischen Simulation verifiziert.

10 Störstellen induzierte Limitierung der Ladungsträgerbewegung

Bei der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten μ -PL Untersuchungen der optischen Emission der Typ-II Kern/Mantel-Nanodrähte zeigen nicht alle Nanodrähte das in Kapitel 9 beschriebene Verhalten. Bei der zeitaufgelöster Detektion des PL-Signals tritt an die Stelle der stufenförmigen Modulation des Abfalls der Transienten ein mit der Periode der akustischen Oberflächenwelle T_{AOFW} zyklisch wiederaufflammende PL-Emission. Die Anzahl der Pulse der Emission und deren Position im zeitlichen Verlauf lässt sich dabei durch die angelegte HF-Leistung sowie die Variation der Phasenlage am Punkt der Anregung der Elektron-Loch-Paare kontrollieren. Das Zurückhalten von Ladungsträger im Nanodraht innerhalb des Detektionsbereichs trotz propagierender und modulierender elektrischer Felder der AOFW lässt sich nur durch eine Störung der Bandstruktur entlang der c-Achse des Nanodrahts erklären.

Zur Analyse dieser Beobachtungen erfolgt in diesem Kapitel zunächst eine Charakterisierung der PL-Emission inklusive der Erfassung des zyklisch pulsierenden Anteils. Hieran gliedert sich die Diskussion des Modells welches die zugrunde liegenden dynamischen Prozesses zur Erzeugung der wiederkehrenden Rekombination beschreibt. Zur Verifizierung wird dieses im Anschluss in die numerische Simulation in Form einer Potenzialbarriere als Störung des Transports in Ausbreitungsrichtung integriert und eine Abschätzung der Höhe der Barriere durchgeführt.

10.1 Detektion lokaler Störungen der Bandstruktur durch zeitaufgelöste Spektroskopie

In Anlehnung an die leistungs- und phasenabhängige Beschreibung der Dynamik der Ladungsträger in den Kern/Mantel-Nanodrähten in Abschnitt 8.2, erfolgt für den in diesem Kapitel untersuchten Nanodraht G zunächst die Analyse des Verhaltens der PL-Emission bei ansteigender HF-Leistung. Die Länge des Nanodrahts von $z_{\text{ND}} = 12 \mu\text{m}$ und der Durchmesser von $d_{\text{ND}} = (130 \pm 10) \text{nm}$ liegen im typischen Bereich der Nanodrähte des Typs-II. Bei einer Anregungsleistung des Lasers von $P_{\text{Laser}} = (400 \pm 50) \text{nW}$ mit der Wiederholrate von $f_{\text{Laser}} = 19,222 \text{MHz}$ und damit ohne starre Kopplung der Phasenlage, ergibt sich die in Abbildung 10.1 a) gezeigte Abnahme der PL-Intensität. In der Zusammenfassung der einzelnen Spektren als Falschfarbendarstellung zeigen sich analog Abbildung 8.1 b) mehrere Emissionslinien. Diese sind auf das Etaloning des CCD-Sensors am 0,5 m-Spektrometer zurückzuführen.

Für eine quantitative Erfassung des Abfalls der Photolumineszenz ist in Abbildung 10.1 b) die integrierte Intensität für den Spektralbereich von $\lambda = 807$ bis 821nm

gegenüber der HF-Leistung angetragen. Dabei zeigt sich bereits bei einer angelegten Leistung von $P_{\text{HF}} = -2 \text{ dBm}$ ein Abfall der PL-Intensität. Dieser geht zurück auf die einsetzende Separation der Elektron-Loch-Paare. Die mit steigender HF-Leistung auftretenden Änderungen der Steigung des Verlaufs der PL-Intensität sind ein Indiz für die Übergangspunkte in das Transportregime der Elektronen und sukzessiv folgend der Löcher. Auf Grund der Anregung zu beliebig wechselnder Phasenlage sind diese Übergangspunkte jedoch verschmiert.

Die sich bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = (8 \pm 1) \text{ dBm}$ ändernde Rate der PL-Abnahme entspricht dem einsetzenden Transport der Elektronen, sodass die PL-Intensität durch die effektive Separation der Exzitonen bereits auf einen Wert von $I = 0,4$ abgenommen hat. Mit Erreichen der HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = (25 \pm 1) \text{ dBm}$ folgen weiter die Löcher der Ausbreitung der AOFW, da diese ebenso auf die zugehörige Schallgeschwindigkeit v_{AOFW} beschleunigt werden. Die weitere Abnahme der Intensität mit zunehmender HF-Leistung wird durch die schneller ablaufende Separation des Exzitons nach der Erzeugung durch das weiter ansteigende elektrische Feld der AOFW verursacht.

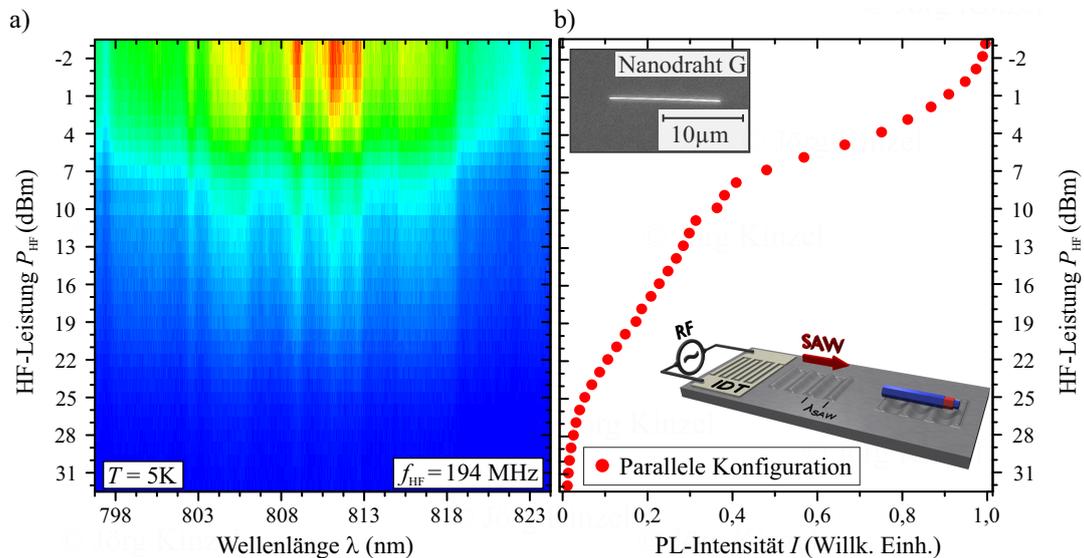


Abbildung 10.1: Photolumineszenz des Kern/Mantel-Nanodrahts G unter dem Einfluss einer AOFW in paralleler Konfiguration ohne Kopplung der Anregungsphase. a) Abnahme der PL-Emission bei ansteigender HF-Leistung P_{HF} . b) Quantifizierung des PL-Verlaufs durch Integration der PL-Spektren im Bereich von $\lambda = 807$ bis 821 nm . Als Detailausschnitt ist eine REM-Aufnahme der Orientierung des Nanodrahts zu sehen sowie die schematische Darstellung der vorliegenden Probengeometrie.

Die hier ermittelten Werte der Übergangspunkte in der Dynamik der Elektron-Loch-Paare sind in guter Übereinstimmung mit den anhand des Verhaltens der initialen Rekombination bei der zeitaufgelösten Erfassung von Nanodraht D in Abbildung 9.3 a) ermittelten Schwellwerte. Gegenüber der identisch durchgeführten zeitintegrierten Erfassung der Abnahme der PL-Intensität von Nanodraht C in Abbildung 8.2 zeigt sich deutlich ein Versatz der Einsatzpunkte zur Unterdrückung der PL-Emission und der Übergänge in das jeweilige Transportregime von $\Delta P_{\text{HF}} = (7 \pm 1) \text{ dB}$ zu niedrige-

ren HF-Leistungen. Dies ist auf den Einsatz des Kühlfingers mit niedrigerer Dämpfung der Einkopplung des HF-Signals zurückzuführen. Unter Beachtung dessen stimmen die ermittelten Übergangspunkte der Transportregime exakt mit den Ergebnissen von Abschnitt 8.2 überein.

Anhand der in Abbildung 10.1 dargestellten Messungen zeigt sich die Sensitivität der Erfassung des PL-Signals an Nanodrähten. Eine minimale Verschiebung der optischen Anregung und Detektion senkrecht zur Achse des Nanodrahts wirkt sich direkt auf das Messsignal aus, wie durch den un stetigen Sprung der PL-Intensität im Verlauf der Messwerte bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 10 \text{ dBm}$ zu erkennen.

Vor Beginn der zeitaufgelösten Erfassung des PL-Signals ist es analog zu Abschnitt 9.1 nötig, die relative Phasenlage ϕ am Punkt der Anregung bei phasenstarrer Kopplung der AOFW mit dem Anregungslaser zu bestimmen. Hierzu wird zunächst die Abhängigkeit der PL-Intensität von der relativen Phasenlage mittels zeitintegrierter Spektroskopie erfasst und analog der Quantifizierung der PL-Emission in Abbildung 10.1 b) im Wellenlängenbereich von $\lambda = 807$ bis 821 nm integriert. Die HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 17 \text{ dBm}$ ist dabei so gewählt, dass die Elektronen effektiv mit der propagierenden AOFW transportiert werden und hierdurch eine eindeutige Struktur der PL-Modulation erzeugen. Der sich dabei ergebende Intensitätsverlauf ist in Abbildung 10.2 a) dargestellt. Das durch Regression der einzelnen Datenpunkte nach Gleichung (8.1) ermittelte Maximum entspringt dabei der Anregung der Elektronen in dem für sie stabilen Minimum des Leitungsbandes aus der Typ-II Bandkantenmodulation und damit der in Abbildung 8.3 beschriebenen relativen Phasenlage von $\phi = (180 \pm 20)^\circ$. Weiter zeigt sich im Verlauf der Phasenabhängigkeit am untersuchten Kern/Mantel-Nanodraht der Ansatz der Ausprägung des erwarteten Nebenmaximums bei $\phi = (280 \pm 20)^\circ$. Gegenüber der Modulation der PL-Intensität für eine mittlere HF-Leistung in Abbildung 8.5 ist eine geringere Differenzierung der Maxima zu beobachten. Dies ist erneut auf die niedrigere IR-Empfindlichkeit des CCD-Detektors am 0,5 m-Spektrometer zurückzuführen.

Bei der Erfassung des dynamischen Verhaltens der PL-Emission von Nanodraht G mittels zeitaufgelöster Spektroskopie zeigt sich ein abweichender Verlauf der PL-Intensität der Transienten. Diese sind für die relativen Phasenlagen von $\phi = 180^\circ$ in Abhängigkeit von der angelegten HF-Leistung in Abbildung 10.2 b) zusammengefasst.

Im Fall des ungestörten Abklingens der initialen PL-Intensität ohne den Einfluss einer AOFW, ergibt sich für den strahlenden Übergang eine Lebensdauer von $\tau_s = (1,1 \pm 0,1) \text{ ns}$, welche dem Zerfall des freien Exzitons im Kern in vergleichbar synthetisierten Kern/Mantel-Nanodrähten zugeordnet werden kann. Gegenüber der Histogrammkurven in Abbildung 9.2 zeigt der zugehörige rote Transient eine zeitlich verlängerte PL-Emission nach dem zunächst steilen Abfall der dominanten initialen PL-Intensität mit einer Lebensdauer von $\tau_s = (8,4 \pm 6,1) \text{ ns}$. Dies ist nur möglich sofern weiterhin Exzitonen im Nanodraht am Punkt der Detektion vorhanden sind, welche zum Beispiel an Störstellen im Kristallgitter wie Zwillingdefekte gebunden werden [RSM13].

Mit dem Einsetzen der Modulation durch das elektrische Feld der AOFW kommt es bei der HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -13 \text{ dBm}$ zu einem kontinuierlichen Wiederaufflammen der PL-Emission. Dabei übersteigt die mit der Periode der AOFW pulsierende

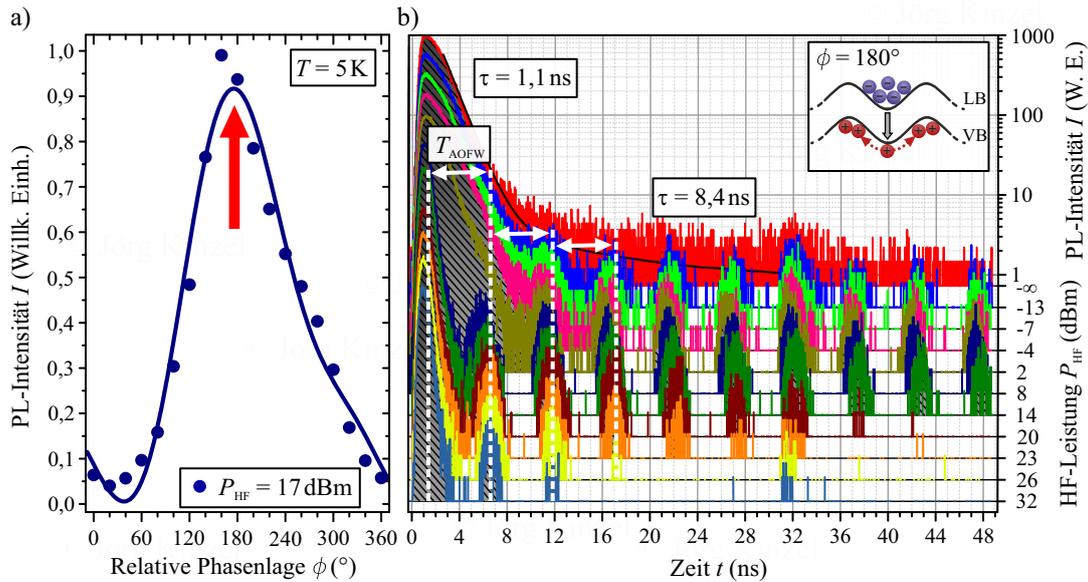


Abbildung 10.2: Analyse der PL-Emission von Kern/Mantel-Nanodraht G unter phasengekoppelter Anregung. a) Kalibrierung der relativen Phasenlage durch Modulation der Photolumineszenz bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 17\text{ dBm}$. Rot markiert: Maximum der Regression bei einer Phasenlage von $\phi = 180^\circ$. b) Abhängigkeit des Verlaufs der Histogrammkurve des strahlenden Zerfalls von der angelegten HF-Leistung. Rot: Transient des ungestörten PL-Zerfalls. Von blau nach hellblau ansteigende HF-Leistung, mit Ausbildung einer zyklisch pulsierenden PL-Emission mit der Periode der AOFW.

Emission im Maximum eines jeden Pulses die ursprüngliche PL-Intensität des ungestörten Zerfalls. Ebenso ist die beobachtete Anzahl der Pulse nur durch das Zeitfenster der Detektion von $\Delta t_{\text{max}} = 50\text{ ns}$ begrenzt, welches aus der Wiederholrate des Anregungslasers von $f_{\text{Laser}} = 19,4\text{ MHz}$ resultiert.

Mit steigender HF-Leistung tritt ab einem Wert von $P_{\text{HF}} = 8\text{ dBm}$ innerhalb des initialen PL-Zerfalls ein weiterer Emissionspuls hervor. Diese Änderung des Verlaufs des Transienten wirkt sich in der zeitintegrierte Erfassung der PL-Intensität als eine sich ändernde Rate der Abnahme PL-Intensität mit steigender HF-Leistung aus, wie in Abbildung 10.1 b) bei der HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 8\text{ dBm}$ zu erkennen. Ursächlich hierfür ist der Zusammenhang, dass die Fläche unter der jeweiligen Histogrammkurve in der zeitintegrierten Erfassung der resultierenden PL-Intensität entspricht. Der schnelle Abfall der initialen PL-Emission signalisiert dabei den Einsatzpunkt des effektiven Transports der Elektronen im Minimum des Leitungsbandes mit der sich ausbreitenden Typ-II Bandkantenmodulation und stimmt somit mit dem zeitaufgelösten Verhalten ohne zyklische Emission in Abbildung 9.2 a) überein. Zur Ausbildung des zusätzlichen Emissionspeaks an Nanodraht G mit einer Verzögerung von $T_{\text{AOFW}} = 5,15\text{ ns}$ gegenüber dem Anregungszeitpunkt ist es notwendig, dass zusätzlich zu den Löchern am Ort der Anregung weiterhin Elektronen vorhanden sind, welche im stabilisierend wirkenden Minimum des Leitungsbandes komprimiert werden. Andernfalls würde der effektive Transport der Elektronen bei der relativen Phasenlage von $\phi = 180^\circ$ zu einem Ausbleiben dieses ersten zeitverzögerten Emissionspulses

führen, wie in Abbildung 9.2 a) auf Grund der vollständigen Separation zu beobachten.

Mit weiter steigender HF-Leistung kommt es ab einer Leistung von $P_{\text{HF}} = 20 \text{ dBm}$ zur Abnahme der Anzahl der Pulse der zyklischen Emission. Dies hat seine Ursache im stärker werdenden Einschluss der Elektronen in das Minimum der Typ-II Bandkantenmodulation durch die ansteigende elektrische Feldstärke, wodurch der effektive Transport der Elektronen mit der propagierenden AOFW einsetzt.

Der rasche Abfall der Anzahl der Pulse beim Erreichen einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 26 \text{ dBm}$ ist auf den beginnenden Transport der Löcher zurückzuführen. Der damit verbundene räumlich um $\Delta z_{\text{ND}} = \lambda_{\text{AOFW}}/2$ separierte Transport beider Ladungsträgertypen entlang der Achse des Nanodrahts, sorgt für das Ausbleiben der weiteren PL-Pulse. Lediglich die initiale Rekombination als auch die ersten beiden Emissionspulse bei $\Delta t = T_{\text{AOFW}}$ sowie $2 \cdot T_{\text{AOFW}}$ lassen sich mit der verfügbaren HF-Leistung nicht unterdrücken, so dass hier weiterhin Elektron-Loch-Paare am Ort der Anregung vorhanden sind.

Zur weiteren Analyse des im Gegensatz zu den Beobachtungen an Nanodraht D stehenden Verhaltens von Nanodraht G, ist in Abbildung 10.3 die Abhängigkeit der zyklisch pulsierenden Emission von der relativen Phasenlage am Anregungspunkt angetragen. Diese Variation führt zur Anregung der Elektron-Loch-Paare in allen charakteristischen Situationen der Typ-II Bandkantenmodulation, so dass sich deren erwartetes Verhalten an der resultierenden Form der Transienten verifizieren lässt. Die konstante HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 7 \text{ dBm}$ erzeugt dabei bereits eine Differenzierung des initialen PL-Abfalls wie in Abbildung 10.2 b) beobachtet und sorgt somit bereits

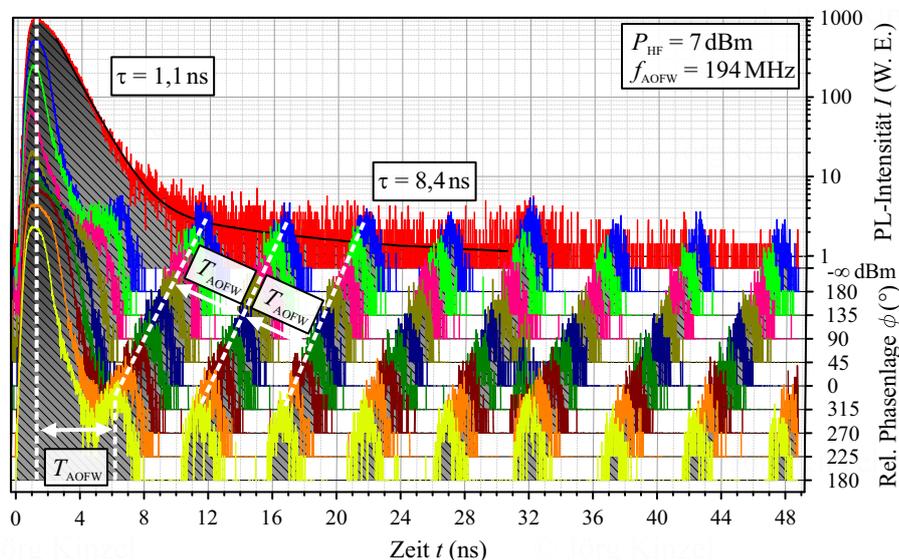


Abbildung 10.3: Zusammenfassung der Histogrammkurven der PL-Emission von Nanodraht G unter Variation der relativen Phasenlage unter phasenstarrer Anregung und konstanter HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 7 \text{ dBm}$. Hieraus ergibt sich eine Verschiebung der Position der PL-Pulse mit der Phasenlage der Anregung innerhalb der Typ-II Bandkantenmodulation von $\phi = -180^\circ$ als gelber Transient bis $\phi = 180^\circ$ in blau.

für die Kompression und für den einsetzenden Transport der Elektronen im Leitungsband.

Ausgehend vom ungestörten PL-Zerfall des roten Transienten, folgt in blau der Verlauf für die relative Phasenlage von $\phi = 180^\circ$, welche auch in Abbildung 10.2 verwendet ist. Mit Verschiebung der Phasenlage der Anregung zu niedrigeren Werten, verlagert sich ebenso der Zeitpunkt des ersten Pulses der zyklischen Emission zu früheren Zeitpunkten. Der Abstand der folgenden Emissionspulse bleibt dabei mit $\Delta t = T_{\text{AOFW}}$ konstant, so dass die Position der zyklischen Pulse direkt von der relativen Phasenlage der Anregung abhängt.

Mit Erreichen der Phasenlage von $\phi = 0^\circ$ zeigt sich im Bereich der initialen Rekombination das Verschmelzen mit dem ersten Puls und ein gleichzeitiges Anwachsen des initialen Maximums der PL-Intensität. Dieses Verhalten geht aus dem Rückfluss der Elektronen zum Punkt der Anregung hervor und gleicht damit der Ausprägung des Transienten in Abbildung 9.2 b) für eine HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 6 \text{ dBm}$. Die bei der Anregung am instabilen Punkt des Leitungsbandes zunächst entgegen der Ausbreitungsrichtung beschleunigten Elektronen, werden im zeitlichen Verlauf mit der Propagation der AOFW zu den remanenten Löchern am Anregungspunkt zurück transportiert und verlängern somit die Zeitspanne des initialen Überlapps. Im Anschluss kommt es durch den anhaltenden Transport zur räumlichen Trennung der nicht rekombinierten Elektronen, wodurch die PL-Emission deutlich unterdrückt wird.

Mit weiterer Verschiebung der relativen Phasenlage der Anregung verkürzt sich die Zeitspanne des Überlapps durch die in Abbildung 9.4 b) für die Phasenlage von $\phi = 270^\circ$ gezeigte Dynamik des Elektrons bei der Anregung des Elektron-Loch-Paars an der Flanke der Typ-II Bandkantenmodulation. Dies führt nach dem Durchlauf einer Periode der Schwingung bei der Phasenlage von $\phi = 180^\circ$ zur Wiederherstellung der Ausgangssituation, wie als gelber Transient dargestellt.

Auch nach dem Abklingen der initialen Rekombination legt die relative Phasenlage der Anregung den Zeitpunkt der zyklisch pulsierenden Rekombination fest. Dabei ist es für diese Emission entscheidend, wann die Elektronen im Minimum der Typ-II Bandkantenmodulation im Leitungsband mit den am Anregungsort remanenten Löchern überlappen und in der Folge strahlend rekombinieren. Da diese Beobachtung sich nicht allein durch die dynamische Modulation der Bandkanten mit dem durch die AOFW aufgeprägten Potenzial erklären lässt, muss der effektive Transport der Ladungsträger weg vom Punkt der Anregung und dem Bereich der Detektion durch eine Barriere verhindert werden. Anderenfalls kommt es zu keiner Abhängigkeit der zyklischen PL-Emission von der relativen Phasenlagen der Anregung und es ergibt sich das in Abbildung 9.4 a) bei identischer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 7 \text{ dBm}$ beobachtete Verhalten ohne die Ausbildung von zeitverzögerten äquidistanten Emissionspulsen.

Wie sich anhand der PL-Intensität der Pulse erkennen lässt, ist an der zyklischen Emission ein Anteil von einem Prozent der ursprünglichen Rekombinationsrate beteiligt. Für die Abnahme der initialen PL-Intensität lässt sich auch unter dem Einfluss einer phasenstarr gekoppelten AOFW die strahlende Lebensdauer τ_s bestimmen und damit, analog dem roten Transienten für den ungestörten Zerfall, die Abnahme der beteiligten Elektron-Loch-Paare quantifizieren. Die aus Abbildung 10.2 b) und 10.3 bestimmten Lebensdauern τ_s der einzelnen Transienten finden sich zusammengefasst in Abbildung 10.4.

Für die Lebensdauer des Abklingverhaltens der Transienten in Abhängigkeit der

HF-Leistung in Abbildung 10.4 a) zeigt sich zunächst ein Anstieg mit einem Maximum von $\tau_S = (1,2 \pm 0,1)$ ns bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -4$ dBm. Dies lässt sich durch die im elektrischen Feld der AOFW verminderte Diffusion der Elektron-Loch-Paare im Nanodraht erklären, so dass diese am Ort der Anregung verdichtet werden, wie bereits anhand Abbildung 8.2 b) für die Überhöhung der PL-Intensität beschrieben.

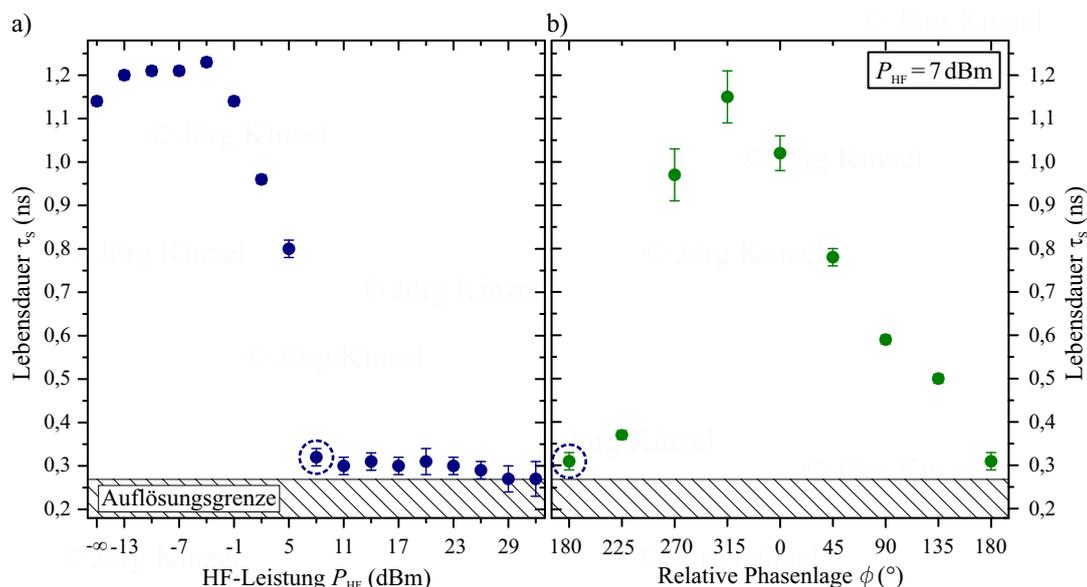


Abbildung 10.4: Zusammenfassung der aus den Histogrammkurven der PL-Emission von Nanodraht G ermittelten Lebensdauern unter phasenstarrer Anregung. a) Leistungsabhängigkeit der Lebensdauer bei konstanter relativer Phasenlage von $\phi = 180^\circ$. b) Abhängigkeit von der relativen Phase am Ort der Anregung bei einer Modulation der PL-Emission durch eine AOFW mit konstanter HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 7$ dBm. Blau markiert ist die in Diagramm a) eingesetzte relative Phasenlage der Anregung.

Mit weiter steigender HF-Leistung kommt es zu einem raschen Abfall der Lebensdauer bis bei der HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 8$ dBm ein Wert von $\tau_S = (0,3 \pm 0,1)$ ns erreicht ist. Sowohl der Einsatzzpunkt des rapiden Abfalls der Lebensdauer in Abhängigkeit der HF-Leistung, als auch deren Sättigung am Minimalwert bei weiter steigender HF-Leistung stimmen mit dem beobachteten Verhalten der integrierten PL-Intensität von Nanodraht G in Abbildung 10.1 überein. Hiermit zeigt sich erneut, dass die im mittleren Leistungsbereich bei einer relativen Phasenlage von $\phi = 180^\circ$ beobachtete Dynamik der PL-Unterdrückung durch den einsetzenden Transport der Elektronen mit einhergehender räumlicher Separation von den Löchern bestimmt wird.

Mit voranschreitender Erhöhung der HF-Leistung ergibt sich ein minimales Absinken des Lebensdauer. Dieses ist auf die größere Beschleunigung der Ladungsträger im ansteigenden elektrischen Feld der AOFW zurückzuführen. Hierdurch werden die Exzitonen nach der optischen Anregung mit steigender HF-Leistung schneller separiert und die initiale strahlende Rekombination unterdrückt. Die schneller ablaufende Dissoziation der Elektron-Loch-Paare zeigt ihren Einfluss ebenso in der zeitintegrierten Erfassung des PL-Signals durch das Absinken der PL-Intensität in Abbildung 10.1 b).

Erst mit dem Überschreiten des Einsatzpunkts des Transports der Löcher bei einer HF-Leistung $P_{\text{HF}} = 26 \text{ dBm}$ kommt es zur vollständigen Stagnation der Abnahme der Zerfallszeit da die Auflösungsgrenze des experimentellen Aufbaus erreicht ist, welche in Abbildung 10.4 durch den schraffierten Bereich gekennzeichnet ist. Diese ist durch die Lebensdauer der Antwortfunktion von $\tau_{\text{IRF}} = (270 \pm 20) \text{ ps}$ bestimmt und wird hauptsächlich durch die Pulsdauer des Anregungslasers bestimmt. Zusätzlich erzeugen Filter im Strahlengang durch Laufzeitunterschiede sowie die optische und elektronische Signalverarbeitung eine Reduzierung der Auflösung [Pic13].

Aus dem instantanen Abfall der PL-Intensität mit dem Abklingen des Laserpulses ergibt sich aus der Lebensdauer der Antwortfunktion gleichzeitig das zu erreichende Minimum der PL-Emission im verwendeten Aufbau des Experiments. Dieses ist in Abbildung 10.1 b) ab einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = (25 \pm 1) \text{ dBm}$ zu beobachten und liegt im Bereich des Untergrundrauschens des CCD-Detektors.

Bei der Bestimmung der Lebensdauer der Transienten in Abhängigkeit der relativen Phasenlage am Ort der Anregung gilt es zu beachten, dass der Rückfluss der Elektronen die Zeitspanne der initialen Rekombination zusätzlich verlängert. Für die Histogrammkurven in Abhängigkeit der Phasenlage der Anregung aus Abbildung 10.3 ergeben sich die in Abbildung 10.4 b) gegenüber den relativen Phasenlagen angelegten Lebensdauern des strahlenden Zerfalls. Ausgehend von der bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 7 \text{ dBm}$ und der relativen Phasenlage von $\phi = 180^\circ$ kurzen Lebensdauer von $\tau_{\text{S}} = (0,3 \pm 0,1) \text{ ns}$ folgt mit voranschreitender Phasenlage der Anregung ein steiler Anstieg, bis bei $\phi = 315^\circ$ die höchste Lebensdauer von $\tau = (1,2 \pm 0,1) \text{ ns}$ erreicht ist. Daran gliedert sich ein kontinuierlicher Abfall, welcher bei einer relativen Phasenlage von $\phi = 180^\circ$ erneut am Minimum von $\tau_{\text{S}} = (0,3 \pm 0,1) \text{ ns}$ und damit nahe der Auflösungsgrenze endet. Die blaue Markierung signalisiert die zur Bestimmung der Leistungsabhängigkeit in Diagramm a) herangezogene relative Phasenlage von $\phi = 180^\circ$ und stimmt exakt mit der dort ermittelten Lebensdauer für eine HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 7 \text{ dBm}$ überein.

Das zu- und abnehmende Verhalten der Lebensdauer findet sich auch in der Analyse der Abhängigkeit der PL-Intensität von der relativen Phase in der zeitintegrierten Erfassung in Abbildung 8.5 a) für eine Leistung von $P_{\text{HF}} = 14 \text{ dBm}$ wieder. Die Differenz der gewählten HF-Leistung resultiert aus der um $\Delta P = (7 \pm 1) \text{ dB}$ höhere Dämpfung des in Abschnitt 8.2 eingesetzten Kühlfingers.

Beginnend mit der kürzesten strahlenden Lebensdauer τ_{S} bei einer relativen Phasenlage von $\phi = 180^\circ$, zeigt sich in der zeitintegrierten Erfassung das Maximum der PL-Intensität. Dieses Verhalten geht zurück auf den direkten Überlapp der Elektron-Loch-Paare, wobei die Elektronen hier das für sie energetisch stabile Minimum in der Typ-II Bandkantenmodulation besetzen. Dies führt zu einer raschen Abnahme der erzeugten Exzitonen und damit zu einer kurzen Lebensdauer.

Durch die Erzeugung der Elektron-Loch-Paare an der ansteigenden Flanke der Bandkantenmodulation bei der Phasenlage von $\phi = 270^\circ$, wie in Abbildung 8.3 b) schematisch dargestellt, entsteht aus dem Rückfluss der Elektronen eine zeitlich verlängerte Rekombination mit den remanenten Löchern, wodurch die Lebensdauer stark ansteigt. In der zeitintegrierten Darstellung zeigt sich aus diesem Überlapp in Abbildung 8.5 a) nur ein leichter Abfall der PL-Intensität vom Maximalwert. Diese Abnahme entsteht durch die zunehmende Separation der Elektron-Loch-Paare aus dem einsetzenden Drift der Löcher weg vom Punkt der Anregung in Ausbreitungsrichtung,

wie auch für die Ausprägung des Nebenminimums in Abbildung 8.4 d) verantwortlich.

Die höchste Lebensdauer stellt sich mit weiterer Drehung der Phasenlage auf $\phi = 315^\circ$ ein. Hierbei bewirkt das abfallende elektrische Feld der Typ-II Bandkantenmodulation eine Optimierung der verlängerten Rekombination durch verlangsamte Separation und gleichzeitigem Rückfluss der Elektronen.

Erst mit der Anregung der Elektronen am instabilen Punkte des Leitungsbandes bei der relativen Phasenlage von $\phi = 0^\circ$ sinkt die strahlende Lebensdauer ab. Durch den Drift der Elektronen in die stabilen Minima zu beiden Seiten des Maximums entsteht zwar erneut eine Verteilung der Ladungsträger welche den Rückfluss der Elektronen ermöglicht, allerdings geht der Teil der Elektronen für die Rekombination verloren, welche nach der Anregung durch Drift in Ausbreitungsrichtung und den nachfolgenden Transport vom Anregungspunkt entfernt werden. Als Konsequenz sinkt in Abbildung 10.3 b) neben der Lebensdauer auch die PL-Intensität in Abbildung 8.5 a) bei dieser Phasenlage und der entsprechenden HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 14 \text{ dBm}$ ab.

Mit Verlagerung der Anregung auf ein Phasenlage ab $\phi = 30^\circ$ werden die Elektron-Loch-Paare an der Flanke der Bandkantenmodulation angeregt, welche im Vergleich zur Phasenlage von $\phi = 270^\circ$ die umgekehrte Feldrichtung besitzt. Hieraus ergibt sich ein vollständiger Drift der Elektronen in Ausbreitungsrichtung der AOFW, wodurch die PL-Intensität in zeitintegrierter Detektion lediglich aus der direkten Rekombination zum Zeitpunkt der Anregung entsteht. Dies führt zum einen zur Reduktion der strahlenden Lebensdauer, zum anderen zum Absinken der PL-Intensität durch die dauerhafte Dissoziation und Separation im elektrischen Feld der AOFW.

Mit zunehmender Phasenlage der Anregung kommt es zur weiteren Abnahme der Lebensdauer, wobei mit Annäherung an das Maximum der PL-Intensität bei $\phi = 180^\circ$ die strahlende Rekombination als Verlustkanal die Lebensdauer erneut dominiert.

Durch die Analyse der der initialen PL-Emission zu Grunde liegenden Rekombination gelingt es, die Dynamik der Elektron-Loch-Paare in der Typ-II Bandkantenmodulation zu beschreiben. Aus Korrelation der Beobachtungen aus zeitaufgelösten und -integrierten Messungen zeigt sich dabei, dass die auftretende Lebensdauer sowie PL-Intensität die maßgeblich vom Zeitpunkt und der Dauer des Überlapps der Elektronen-Loch-Paare abhängen. Als Folge ergibt sich in Abhängigkeit der Phasenlage sowohl in der zeitaufgelösten Darstellung als auch in der zeitintegrierten PL-Intensität eine charakteristische Ausprägung des Verlaufs der Messkurven.

In der retrospektiven Verknüpfung der zeitintegrierten Erfassung des Messsignals von Nanodraht C in Abbildung 8.3 mit der Analyse des zeitaufgelösten Messsignals aus Abbildung 10.3, lässt sich feststellen, dass auf Grund der erhöhten Dämpfung des Kühlfingers in Kapitel 8 von $\Delta P = (7 \pm 1) \text{ dB}$ lediglich der anwachsende Transport der Löcher beobachtet werden kann. Durch den Verlust von mehr als 75% der HF-Leistung gelingt es nicht, alle Löcher auf die Ausbreitungsgeschwindigkeit der AOFW zu beschleunigen, sodass diese weiterhin mit Elektronen aus dem Transportfluss strahlend rekombinieren können. Hierdurch bleibt eine deutlich Unterdrückung der PL-Emission des Nebenminimums bei der relativen Phasenlage von $\phi = 270^\circ$ aus, wie ebenso in der zeitintegrierten Erfassung in Abbildung 10.2 a) zu beobachten. Aus der detaillierten Analyse der initialen Rekombination folgt weiter, dass die Bedingungen während der Initialisierung des Ladungsträgersystems keinen direkten Einfluss auf das anschließende Auftreten der beobachteten zyklisch pulsierenden

Emission an Nanodraht G besitzen. Dabei zeigt weder die Intensität noch die Dauer der Pulse eine Abhängigkeit von der untersuchten Phasenlage der Anregung. Lediglich mit ansteigender HF-Leistung kommt es zu einer Verkürzung der Pulsdauer, wie in Abbildung 10.2 zu sehen. Diese ist zurückzuführen auf die ansteigende Feldstärke der AOFW, welche eine stärkere Kompression der Elektronen und Löcher in die jeweilig stabilen Punkte der Typ-II Bandkantenmodulation bewirkt.

Um die Ursache der Transportbarriere welche zur Herbeiführung des zyklischen Überlapps führt weiter einschränken zu können, erfolgt als letzter Schritt die Modifikation der Manipulation der PL-Emission durch Variation des zur Anregung der AOFW genutzten Schallwandlers. Das daraus resultierende Verhalten der Transienten ist in Abbildung 10.5 zusammengefasst.

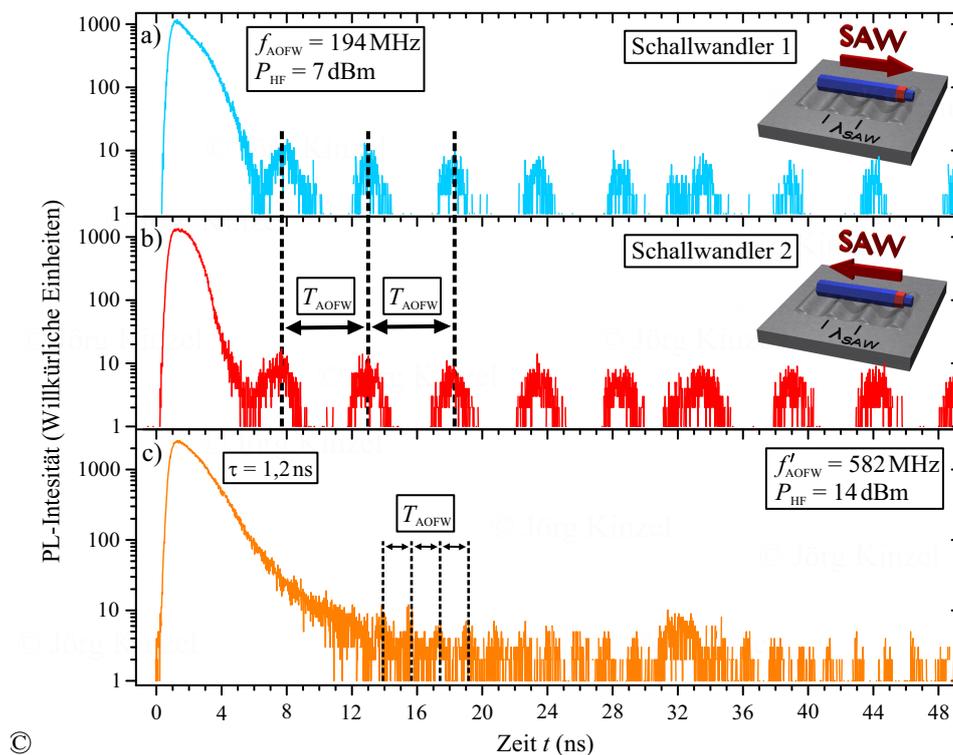


Abbildung 10.5: Verhalten der an Nanodraht G aufgenommenen Transienten bei variierender Konfiguration der AOFW. a) Pulsierende Modulation der PL-Emission bei Einsatz des Schallwandlers 1, links der Verzögerungsstrecke und einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 7 \text{ dBm}$. In der schematischen Darstellung ergibt sich eine von links auf den Nanodraht einlaufende AOFW. b) Modulation des Transienten mit der identischen Periode der AOFW bei Umkehrung der Ausbreitungsrichtung durch Einsatz des gegenüberliegenden Schallwandlers 2. Hieraus ergibt sich eine von rechts einlaufende AOFW, wie in der Schemazeichnung zu sehen. c) Erhöhung der Pulsfrequenz der PL-Emission durch die Manipulation der Ladungsträgerpaare mit der ersten harmonischen Oberschwingung bei einer Resonanzfrequenz der AOFW von $f'_{\text{res}} = 582 \text{ MHz}$.

Bei dem in Abbildung 10.5 a) dargestellten Transienten handelt es sich um die Konfiguration welche bisher in diesem Abschnitt eingesetzt ist. Dabei wird mit dem links

der Verzögerungsstrecke liegenden Schallwandler 1 eine akustische Oberflächenwelle erzeugt, welche in der Folge auf das linke Ende des Nanodrahts trifft und sich parallel zu dessen c-Achse weiter ausbreitet, wie schematisch skizziert. Die Anregung der AOFW mit einer Leistung von $P_{\text{HF}} = 7 \text{ dBm}$ und einer Frequenz von $f_{\text{res}} = 194 \text{ MHz}$ entspricht der zu Abbildung 10.3 identischen Situation, sodass es zur Ausbildung der zyklisch pulsierenden PL-Emission für den Transient kommt. Der Abstand der Maxima stimmt dabei mit $\Delta t = (5,2 \pm 0,1) \text{ ns}$ mit der Schwingungsperiode der AOFW überein.

Mit Umkehrung der Ausbreitungsrichtung der AOFW entlang der Verzögerungsstrecke durch die Anregung des Wellenpakets mit Schallwandler 2, ergibt sich die in Abbildung 10.5 b) schematisch skizzierte Situation. Die hier von rechts auf den Nanodraht G einlaufende AOFW erzeugt bei gleicher HF-Leistung eine identisch pulsierende Modulation des Transienten, wobei der Abstand erneut der Schwingungsdauer der AOFW von $\Delta t = T_{\text{AOFW}} = (5,2 \pm 0,1) \text{ ns}$ entspricht. Die unterschiedliche Ausprägung des Abfalls der initialen Rekombination entsteht aus der unterschiedlichen Phasenlage der Anregung zwischen Abbildung 10.5 a) & b). Um in beiden Transienten den Zeitpunkt der Pulse zur Deckung zu bringen, ist ein Differenz der Anregungsphase von $\Delta\phi = 135^\circ$ nötig. Durch die daraus resultierende unterschiedliche Dynamik der Elektron-Loch-Paare bei der Relaxation in die stabilen Punkte der Typ-II Bandkantenmodulation nach der Anregung, wird analog zu Abbildung 10.3 der Verlauf der initialen Rekombination bestimmt. Die Anpassung der Phasenlage ist nötig, da die Anregung der Ladungsträger zwar auf dem identischen Punkt auf dem Nanodraht erfolgt, jedoch der Draht an einer beliebigen Position in der jeweiligen Verzögerungsstrecke liegt. Hierdurch ergibt sich je nach Schallwandler eine unterschiedliche Laufzeit der AOFW zum Punkt der Koinzidenz mit dem Anregungslaser. Ferner erzeugen alle HF-Komponenten eine Verschiebung der absoluten Phase des HF-Signals ϕ_{HF} zur Anregung, sodass eine Änderung der HF-Zuführung eine Anpassung der Phase zur Synchronisierung der Pulse nötig macht.

Um die Entstehung der zyklischen Modulation weiter zu analysieren, ist zum Abschluss der Untersuchungen im Experiment in Abbildung 10.5 c) die Modulation des Transienten bei einer Frequenz der AOFW von $f'_{\text{res}} = 582 \text{ MHz}$ dargestellt. Hierbei kommt es durch die an Schallwandler 1 angelegte HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 14 \text{ dBm}$ ebenso zu einer periodischen Modulation des Transienten, wobei der zeitliche Abstand der Pulse mit $\Delta t = (1,7 \pm 0,1) \text{ ns}$ exakt mit der erwarteten Schwingungsperiode der Oberwelle der AOFW mit $f'_{\text{res}} = 3 \cdot f_{\text{res}}$ übereinstimmt. Die im Vergleich zur Grundschwingung ausbleibende Modulation der initialen Rekombination geht auf die mit der Wellenlänge λ_{AOFW} quadratisch sinkenden maximalen Feldstärke E_0 zurück, wie durch Gleichung (3.22) beschrieben. Die zur Kompensation eingesetzte Erhöhung der HF-Leistung um $\Delta P = 7 \text{ dB}$ reicht dabei nicht aus, den gleichzeitig stattfindenden Abfall der Umwandlungseffizienz auf ein Zehntel abzufangen. Der niedrigere Wirkungsgrad der Verzögerungsstrecke beim Einsatz der harmonischen Oberschwingung ist vor allem der vom Idealwert von $Z = 50 \Omega$ abweichenden Impedanz zuzuordnen, wie bei der Zusammenfassung der Charakterisierung der Parameter der Probenotypen in Tabelle 5.2 aufgeführt.

Unabhängig vom verzögerten Einsatz der zyklisch pulsierenden Emission nach der initialen Rekombination in Abbildung 10.5 c), zeigt der Transient beim Einsatz der Oberwelle das erwartete Verhalten einer zyklisch pulsierenden PL-Emission. Hier-

durch lässt sich deren Entstehung aus optischer Interferenz oder elektronischem Übersprechen auf die Detektion des Messsignals ausschließen. Dass diese Gefahr besteht, zeigt die in allen zeitaufgelösten Messungen präsente Überhöhung der PL-Intensität bei $T = 32$ ns. Diese entsteht aus dem zeitverzögerten Eintreffen eines abgeschwächten Teils des initialen Laserpulses, welcher sich auf die Aufspaltung des Strahls an einem der Strahlteiler und die anschließende Rückreflexion eines Anteils des Anregungspulses in den Strahlengang zurückführen lässt.

Die für beiden Ausbreitungsrichtungen der akustischen Oberflächenwelle auftretende identische zyklisch pulsierende Emission lässt als Rekombinationszentrum für die in der Typ-II Bandkantenmodulation separierten Ladungsträger nur eine symmetrische Barriere im Ausbreitungspfad der AOFW entlang der c -Achse des Nanodrahts zu. Solche eine Störung des ungehinderten Transports der Ladungsträger in der Bandstruktur entsteht beim Wechsel der Kristallstruktur zwischen der Zinkblende- und Wurtzit-Modifikation [SAG09]. Die einhergehende polytypische Typ-II Modulation der Bandstruktur wirkt dabei als intrinsische Barriere für den Transport der Ladungsträger im Nanodraht, so dass keine Inkorporation von Fremdatomen nötig ist [RSM13].

Im Zusammenspiel der stationären polytypischen Typ-II Bandkantenmodulation mit der dynamisch propagierenden Modulation durch die AOFW, ergibt sich das in Abbildung 10.6 dargestellte Verhalten der Elektron-Loch-Paare an einer stufenförmigen Barriere.

Bei der Überlagerung der sinusförmigen Typ-II Bandkantenmodulation der akustischen Oberflächenwelle mit der stufenförmigen polytypischen Bandkantenmodulation, ergibt sich die in Abbildung 10.6 a) veranschaulichte Ausgangssituation. Für die in Abschnitt 2.2.1 beschriebene Bandstruktur von GaAs entsteht beim Wechsel von der Zinkblende- in die Wurtzit-Struktur eine Stufenhöhe von $\Delta E_L = 117$ meV für das Leitungsband sowie $\Delta E_V = 84$ meV für das Valenzband. Somit kommt es zu einer effektiven Änderung der Bandlücke von $\Delta E_g = 33$ meV [SAG09].

Als Folge der Superposition beider Anteile stellt sich bei der Anregung der Ladungsträger bei der relativen Phasenlage von $\phi = 0^\circ$ die in Abbildung 10.6 mittig dargestellte Situation ein. Hierbei werden die Elektronen am instabilen Punkt der Bandkantenmodulation erzeugt und driften in das für sie stabile Minimum des Leitungsbandes. Die Löcher werden umgekehrt im stabilen Punkt des Valenzbandes erzeugt, wo die zusätzliche polytypische Modulation zu einer stärkeren Lokalisation der Löcher am Punkt z_0 führt.

Nach dem Abklingen der initialen PL-Emission bewirkt die Propagation der AOFW zum Zeitpunkt $T = T_{\text{AOFW}}/4$ eine Verteilung der zunächst räumlich getrennten Elektron-Loch-Paare, wie in Abbildung 10.6 b) gezeigt. Ausgehend von der Situation nach der Anregung der Ladungsträger bei einer relativen Phasenlage von $\phi = 0^\circ$, verlassen die Elektronen rechts von der Potenzialstufe den Ort der Anregung durch den Transport im Feld der AOFW und stehen nicht mehr zur Rekombination bei z_0 zur Verfügung. Elektronen die bei der Initialisierung in das Minimum links von der Barriere und somit entgegen der Ausbreitungsrichtung beschleunigt werden, folgen bei hinreichend großer HF-Leistung ebenso der Propagation der Typ-II Bandkantenmodulation, sodass diese zum Ort der Anregung zurück transportiert werden. Diese treffen dabei mit einer Verzögerung von $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/4$ im Minimum der Typ-II Bandkantenmodulation komprimiert auf die Barriere.

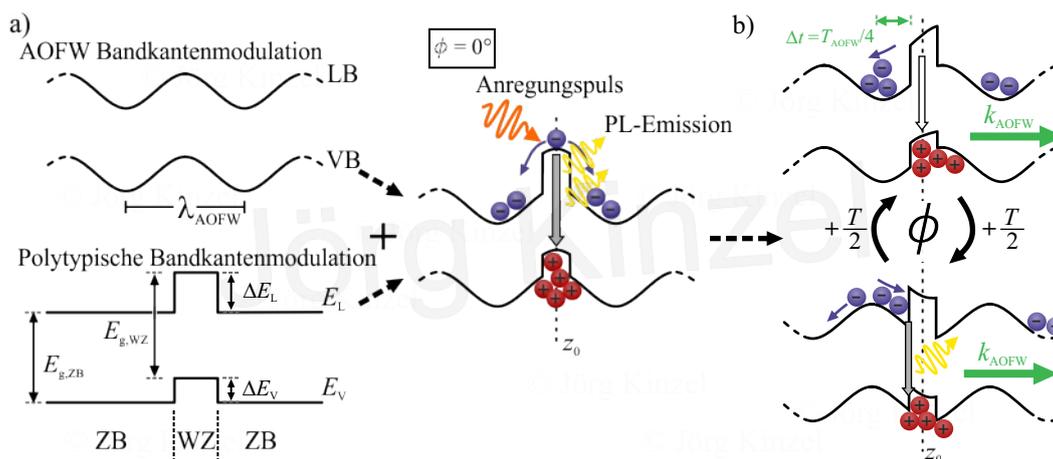


Abbildung 10.6: Schematische Darstellung der Entstehung einer zyklisch pulsierenden PL-Emission durch die Anwesenheit einer Potenzialbarriere entlang der Achse des Nanodrahts. a) Superposition der Typ-II Bandmodulationen der AOFW (oben) sowie dem Polytypismus von GaAs aus Zinkblende (ZB)- und Wurtzit (WZ)-Struktur (unten). Im Zusammenspiel ergibt sich die mittig dargestellte Variation der Bandstruktur. Für Elektronen im Leitungsband wirkt die zusätzliche Modulation wie eine Barriere an der Stelle x_0 im Ausbreitungspfad, für Löcher im Valenzband wie ein Potenzialtopf. b) Schematische Darstellung der Bewegung der Ladungsträger in der mit der Phase ϕ zyklischen Dynamik der AOFW.

Für die Dynamik der Löcher kommt es auf Grund der gegenüber der Elektronen geringeren Beweglichkeit zu einem remanenten Aufenthalt am Punkt der Anregung, wobei im vorliegenden Fall ein zusätzlich Lokalisierung durch die Präsenz der Barriere am Ort z_0 stattfindet.

Durch den sich mit der Propagation der AOFW wiederhergestellten partiellen Überlapp der Elektronen und Löcher, kommt es zu einem zeitverzögerten Wiederaufflammen der PL-Emission, wie in Abbildung 10.6 b) unten gezeigt. Im Gegensatz zum einmaligen Wiederaufflammen der PL-Emission durch den Rückfluss der Elektronen bei der relativen Phasenlage von $\phi = 0^\circ$ in Kapitel 9, wird im vorliegenden Fall deren ungehinderter weiterer Transport durch die Potenzialstufe der Barriere verhindert. Hierdurch werden die Elektronen aus dem Minimum der Typ-II Bandkantenmodulation an der Barriere abgestreift, so dass sich die Modulation ohne weitere Ladungsträger die Barriere durchquert. Gleichzeitig verhindert die Barriere den vollständigen Überlapp von Elektronen und Löchern und damit die sofortige Rekombination aller an der Barriere lokalisierten Ladungsträger. Deshalb ist es möglich, dass die verbleibenden Elektronen mit weiter voranschreitender Ausbreitung der AOFW und der einhergehenden Umkehr der Feldrichtung erneut von der Barriere hinfert beschleunigt werden. Hierdurch bewegen sich diese entgegen der Ausbreitungsrichtung der AOFW, bis es zur erneuten Komprimierung im Minimum des modulierten Leitungsbandes kommt. Mit weiterer zeitlicher Verzögerung von $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/2$ stellt sich somit die Ausgangssituation der Elektronen im stabilen Minimum des Leitungsbandes wieder ein, wie in Abbildung 10.6 b) oben zu sehen. Dies hat zur Folge, dass

sich mit fortschreitender Propagation der AOFW der Zyklus wiederholt wird, so dass eine pulsierende Emission mit der Periode T_{AOFW} der akustischen Oberflächenwelle entsteht.

Die Anzahl der Pulse ist im hier beschriebenen Transportregime der Elektronen lediglich durch die Anzahl der im Feld der AOFW bewegten Elektronen beschränkt, welche bei der Anregung zunächst entgegen der Ausbreitungsrichtung beschleunigt werden. Dabei kommt es mit jedem Durchlauf des Zyklus zu einem Verlust von Ladungsträgerpaaren, so dass ein intrinsischer Abfall der Maxima der PL-Intensität der Pulse zu erwarten ist. Auf Grund des Detektionsfensters des Messaufbaus von $t = 50\text{ ns}$ wird dieses Limit in den durchgeführten Experimenten nicht erreicht. Die in Abbildung 10.2 ab einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 20\text{ dBm}$ beobachtete Reduzierung der Anzahl der Pulse geht auf die steigende Amplitude der Typ-II Bandkantenmodulation zurück. Das bei dieser HF-Leistung auftretende elektrische Feld der AOFW ist dabei ausreichend um Elektronen über die Barriere zu transferieren und damit den weiteren Transport der Elektronen entlang des Nanodrahts zu gewährleisten. Dieser Effekt setzt sich bei weiter ansteigender HF-Leistung für den Transport der Löcher fort, sodass die Photolumineszenz durch den vollständig separierten Transport, auch unter der Anwesenheit einer Barriere in der Bandstruktur, unterdrückt wird.

Die anhand der extremalen relativen Phasenlage von $\phi = 0^\circ$ beschriebene Dynamik zur Ausbildung der zyklisch pulsierenden PL-Emission, lässt sich auf alle Phasenlagen der Anregung der Elektron-Loch-Paare erweitern. Auf Grund der im Vergleich zum Anregungspunkt des Laser von $d_{\text{Laser}} = 2\text{ }\mu\text{m}$ schmalen Barriere werden stets zu beiden Seiten Ladungsträger erzeugt, so dass ein Teil der Elektronen im Laufe des Zyklus entgegen der Ausbreitungsrichtung und damit weg von den remanenten Löchern beschleunigt werden kann. Die hierzu nötige begrenzte Ausdehnung der Wurtzit-Kristallstruktur als Barriere ergibt sich zum einen aus dem Ausbleiben der zugehörigen charakteristischen PL-Emission bei einer Übergangsenergie von $E_{\text{G,WZ}} = 1,548\text{ eV} \hat{=} 800,9\text{ nm}$ [JLP12]. Somit existiert kein Bereich entlang dem Nanodraht welcher größer als der Anregungspunkt des Lasers und ausschließlich aus der Wurtzit-Modifikation von GaAs besteht. Zum anderen ist der Verlauf der PL-Intensität während der zyklischen Emission unabhängig von der relativen Phasenlage der AOFW bei der Anregung. Hierzu ist es notwendig, dass es zu keiner zusätzlichen Modulation der Ladungsträgerverteilung im Bereich der Bandstruktur der Barriere kommt welche die Rekombination beeinflusst. Dies ist unterhalb einer Ausdehnung von $l_{\text{WZ}} \leq \lambda_{\text{AOFW}}/4$ nicht zu erwarten, so dass sich einer Wellenlänge von $\lambda_{\text{AOFW}} = 6\text{ }\mu\text{m}$ für die erste Oberschwingung als Obergrenze eine Ausdehnung des Wurtzit-Segments von $l_{\text{WZ}} \leq 1,5\text{ }\mu\text{m}$ ergibt und damit gleichzeitig kleiner ist als der Anregungspunkt des Lasers.

Da die zyklisch pulsierenden Emission nicht an eine spezifische Stelle von Nanodraht G gebunden ist, sondern, mit Ausnahme der Endstücke, entlang der gesamten c-Achse auftritt, deutet dies auf die Existenz mehrere dünner Barrieren entlang des Nanodrahts hin. Trotz ihrer mikroskopischen Ausdehnung besitzen die Wurtzit-Segmente einen Einfluss auf die Größe der Übergangsenergie E_{G} in der elektronischen Struktur. Dabei führt das als Stapelfehler inkorporierte Wurtzit-Segment zu einer indirekten Rekombination zwischen den Elektronen im Zinkblende-Segment mit den Löchern im Wurtzit-Segment. Somit bewirken bereits dünne alternierende Segmente mit einer Ausdehnung von $\Delta l = 6,5\text{ nm}$ eine Rotverschiebung für

das emittierte PL-Signal [HCBR11]. Dieser Effekt lässt sich auch an Nanodrähten beobachten, welche unter vergleichbaren Herstellungsbedingungen gewachsen sind, wie die in dieser Arbeit eingesetzte Kern/Mantel-Nanodrähte des Probenotyps-II. Hier bewirken bereits einzelne Zwillingsdefekte mit einer Ausdehnung von lediglich drei GaAs-Gitterebenen und damit von 1,7 nm eine Anreicherung von Löchern im Wurtzit-Bereich der Bandstruktur. Im Zusammenspiel mit der Lokalisierung der optisch angeregten Elektron-Loch-Paare an Störungen der Bandstruktur dieser Art, handelt es sich dabei um ein gebundenes Exziton, welches gegenüber dem freien Exziton eine Bindungsenergie von $\Delta E_{\text{BX}} = (4,8 \pm 0,3) \text{ meV}$ besitzt [RSM13]. Bei der sich aus der resultierenden Übergangsenergie ergebende Wellenlänge von $E_{\text{G,BX}} = (1,510 \pm 0,001) \text{ eV} \hat{=} (821,1 \pm 0,1) \text{ nm}$ lässt sich auf Grund des für GaAs-Nanodrähte typisch breiten Emissionsspektrum sowie dem Etaloning des eingesetzten CCD-Detektors kein zugehöriges Emissionsmaximum im Spektrum von Nanodraht G in Abbildung 10.1 a) identifizieren.

Der mögliche indirekte Übergang von Elektronen in der Zinkblende-Struktur mit Löchern aus der Wurtzit-Barriere kann als Rekombinationskanal nicht völlig ausgeschlossen werden. Auf Grund der vorherrschende Zinkblende-Modifikation im Nanodraht spielt diese für die PL-Emission eine untergeordnete Rolle und kann durch die Übergangsenergie von $E_{\text{G,WZZB}} = 1,431 \text{ eV} \hat{=} 866,4 \text{ nm}$ als Beitrag im Messsignal der zeitaufgelösten Erfassung bei einer Wellenlänge der Detektion von $\lambda = (814,0 \pm 0,2) \text{ nm}$ ausgeschlossen werden.

Die Lokalisierung der Exzitonen an den Zwillingsdefekten im Nanodraht bewirkt bei der beobachteten Wellenlänge stattdessen eine Verlängerung der Lebensdauer des strahlenden Zerfalls. Diese unterscheidet sich von den in Kapitel 9 erfassten Transienten durch den Übergang der monoexponentiell absinkenden Lebensdauer von $\tau_{\text{S}} = (1,1 \pm 0,1) \text{ ns}$ für die initialen Rekombination auf einen biexponentiellen Verlauf der Regression mit einer Lebensdauer von $\tau_{\text{S}} = (8,4 \pm 6,1) \text{ ns}$ nach dem Abklingen der initialen PL-Emission. Dieses ist für Nanodraht G in Abbildung 10.2 b) für den ungestörten Fall ohne Beeinflussung durch die AOFW in schwarz zusätzlich angetragen. Dieser deutlich langsamer ablaufende Prozess wird der strahlenden Rekombination der an den Zwillingsdefekten lokalisierten Exzitonen zugeschrieben und ermöglicht in Kombination mit der zusätzlichen Typ-II Bandkantenmodulation der AOFW die Dynamik der Ladungsträger wie in Abbildung 10.6 beschrieben [RSM13].

Andere Ursachen für die Lokalisierung von Ladungsträgern im Nanodraht lassen sich auf Grund des biexponentiellen Abfalls des Transienten ausschließen. Hierbei würden Störstellen wie Oberflächenzustände oder Verunreinigungen im Kristall für eine Reduzierung der Lebensdauer führen, wie sie bei den unpassivierten Nanodrähten auftritt [KRB11, NS78].

Die in diesem Abschnitt untersuchte zyklisch pulsierende Rekombination der optisch angeregten Elektron-Loch-Paare an der polytypischen Typ-II Bandkantenmodulation verdeutlicht die hohe Empfindlichkeit spektroskopisch und zeitaufgelöster Messungen in Verbindung mit der Modulation der Dynamik durch die AOFW. Mit Hilfe dieser Messverfahren ist es möglich die Wurtzit-Modifikation des GaAs als intrinsische Barriere entlang des Nanodrahts als Ursache zu identifizieren. Dabei zeigt sich, dass bereits einzelne Zwillingsdefekte in der sonst dominanten Zinkblende-Struktur entlang der Achse des Nanodrahts als Lokalisationszentren für Exzitonen ausreichen. Im Zusammenspiel mit der propagierenden Typ-II Bandkantenmodulation einer AOFW

ergibt sich nach dem Abklingen der initialen Rekombination an dieser Transportbarriere für die Ladungsträger eine zyklisch pulsierende PL-Emission. Diese Beobachtung ist auf den periodischen Überlapp von an der Barriere lokalisierten Elektron-Loch-Paare zurückzuführen, wobei die Elektronen mit dem Takt der AOFW auf die Barriere zu transportiert werden und durch Drift von dieser wieder weg beschleunigt. Die Löcher verbleiben auf Grund ihrer geringeren Beweglichkeit und der zusätzlichen Lokalisierung am Ort der Anregung.

Die Notwendigkeit eines Zwillingsdefekts im Nanodraht als Basis der zyklisch pulsierenden Emission erklärt gleichzeitig das von der Richtung der Ausbreitung der AOFW entlang der Verzögerungsstrecke und damit der Achse des Nanodrahts unabhängige Verhalten der Modulation. Durch den spiegelsymmetrischen Aufbau der Barriere ist es unerheblich, von welcher Seite die Elektronen zur Barriere transportiert werden. Auf Grund des Auftretens der zyklisch pulsierende Emission am gesamten Nanodraht, zeugt dies von einer gleichmäßigen Verteilung der Rekombinationszentren entlang der Achse. Umgekehrt zeigt ein Großteil der untersuchten Nanodrähte den in Kapitel 9 beschriebenen monoexponentiellen Abfall der PL-Intensität, welcher unter dem Einfluss der AOFW durch den Transport und den Rückfluss der Ladungsträger vollständig dominiert ist. Damit besitzen diese keine Störstellen, welche als zusätzliche Rekombinationszentren dienen.

Aufbauend auf die bisherigen Erkenntnisse lassen sich durch die vollständige Analyse des Spektrum durch eine multi-spektrale Erfassung des zeitaufgelösten PL-Signals tiefere Einblicke in den strukturellen Aufbau des Nanodrahts gewinnen sowie die zuvor beschriebenen strahlenden Rekombinationskanäle am Strukturübergang des GaAs simultan kontrollieren. Die Erweiterung des Messverfahrens mit der Modulation der Bandstruktur durch die AOFW hat dabei einen deutlichen Einfluss auf das Verhalten der PL-Emission aus Rekombinationszentren entlang der c-Achse des Nanodrahts. Somit lassen sich eventuelle Störungen der Bandstruktur effizient lokalisieren und aufwendige Analysen wie zum Beispiel durch Transmissionselektronenmikroskopie (kurz TEM) vermeiden. Somit entsteht aus der Manipulation der Ladungsträgersystems und damit der optischen Emission durch akustischen Oberflächenwellen eine Schlüsseltechnologie um die elektronischen beziehungsweise strukturellen Eigenschaften eines Halbleiters nahe dem ursprünglichen Gleichgewichtszustands zu ermitteln.

Die bisherige phänomenologische Beschreibung der Abläufe in Nanodraht G, welche zur beobachteten zyklischen PL-Emission führen, werden im folgenden anhand der numerischen Simulation der Dynamik der Ladungsträger verifiziert. Dies geschieht durch die Integration einer stufenförmigen Potenzialbarriere innerhalb des eindimensionalen Ausbreitungschanals und damit in die Bandkantenstruktur der Simulation. Gleichzeitig überprüft diese Erweiterung des numerischen Modells die Plausibilität der bisher erzielten Ergebnisse für das simulierte Verhalten der Ladungsträgerdichten unter dem Einfluss der AOFW.

10.2 Simulation lokaler Störungen durch Variation der Bandstruktur

Zur Integration einer Barriere in den bisher durch die intrinsischen Eigenschaften festgelegten Transport der Elektron-Loch-Paare im elektrischen Feld der AOFW, wird in der numerischen Simulation dem sinusförmigen Potenzialverlauf $\varphi(z,t)$ der Typ-II Bandkantenmodulation ein zusätzliches Potenzial $\varphi_{\text{Barriere}}$ aufgeprägt. Hierdurch erweitert sich das für die Beschleunigung der Ladungsträger verantwortliche elektrische Feld der AOFW $E_{\text{AOFW}}(z,t)$ aus Gleichung (4.13) um eine symmetrische Störung welche am Anregungspunkt z_0 lokalisiert ist. Die durch das Hinzufügen der Störung entstehende Verlauf der Energieniveaus der Bandstruktur der Simulation ist in Abbildung 10.7 dargestellt.

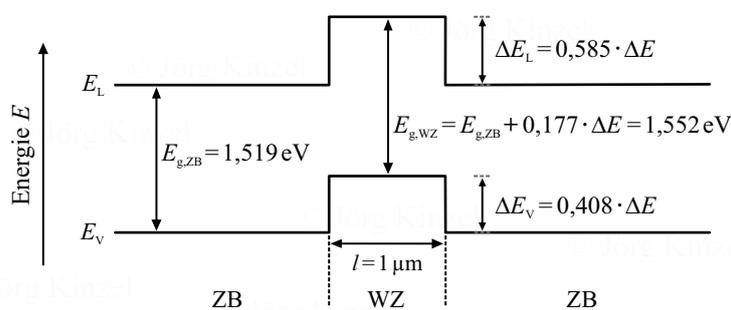


Abbildung 10.7: Schematische Darstellung der in der numerischen Simulation eingesetzten polytypischen Typ-II Bandkantenmodulation für GaAs. Im Bereich der Wurtzit-Modifikation der Breite $l = 1 \mu\text{m}$ erhöht sich die Bandlücke um den Faktor $0,177 \cdot \Delta E$. Diese Erhöhung verteilt sich zu $\Delta E_L = 0,585 \cdot \Delta E$ auf das Leitungsband und zu $\Delta E_V = 0,408 \cdot \Delta E$ auf das Valenzband.

Die Inkorporation eines Wurtzit-Segments zur Erzeugung der Typ-II Bandkantenmodulation aus dem Polytypismus von GaAs, erfolgt in der numerischen Simulation durch eine Stufenförmige Potenzialbarriere mit einer virtuellen Breite $l = 1 \mu\text{m}$. Dies trägt der Tatsache Rechnung, dass in der Simulation die PL-Emission aus dem Überlapp der Ladungsträgerdichte entsteht. Durch deren endliche Ausdehnung muss diese im elektrischen Feld der AOFW komprimiert und moduliert werden können, sodass eine geringe Ausdehnung der Barriere erforderlich ist. Im Experiment rekombinieren hingegen diskrete Ladungsträger, die bereits an dünnen Barrieren wie Zwillingdefekten lokalisiert und vom Feld der propagierenden AOFW vollständig manipuliert werden. Da sowohl die Ausdehnung der virtuellen Barriere als auch des realen Zwillingdefekts klein gegenüber der Wellenlänge der AOFW sind, kommt es in beiden Fällen zu einer Beschleunigung der lokalisierten Ladungsträger durch ein, im Bereich der Potenzialstufe der Barriere, homogen wirkendes elektrisches Feld der AOFW. Einen weiteren entscheidenden Einfluss auf den Transport der Ladungsträger mit der propagierenden AOFW hat ebenso die Höhe der Energiebarriere $\Delta E = -\nabla(\varphi_{\text{Barriere}})$. Ausgehend von einer makroskopischen Ausdehnung eines Wurtzit-Segments entlang der c-Achse des GaAs-Nanodrahts nimmt die Bandlücke in diesem Bereich die in Abschnitt 2.2.1 beschriebene Höhe von $E_{g,WZ} = 1,552 \text{ eV}$ an. Dabei setzt sich die

entstehende Energieerhöhung der Bandlücke von $\Delta E_g = 33 \text{ meV}$ aus einer Erhöhung des Energieniveaus des Leitungsbandes von $\Delta E_L = 0,585 \cdot \Delta E$ sowie des Valenzbandes von $\Delta E_V = 0,408 \cdot \Delta E$ zusammen, wie in Abbildung 10.7 verdeutlicht [SAG09]. Somit ergibt sich in Abhängigkeit des Simulationsparameters für die Gesamthöhe der Energiebarriere ΔE eine effektive Erhöhung der Bandlücke im Bereich des Wurtzit-Segments von $E_{g,WZ} = \Delta E_L - \Delta E_V = 0,177 \cdot \Delta E$. Dies entspricht für die Erhöhung der Übergangsenergie für die Wurtzit-Modifikation von $\Delta E_{G,ZBWZ} = 33 \text{ meV}$ einem Wert in der Simulation von $\Delta E = 186 \text{ meV}$. Die Annahme eines makroskopischen Wurtzit-Segments mit der Höhe der Potenzialstufe von $\Delta E = 186 \text{ meV}$ stellt in der numerischen Simulation gleichzeitig eine Obergrenze der Höhe der Barriere dar.

Betrachtet man stattdessen die Lokalisierung der Elektron-Loch-Paare am Übergang der Zinkblende- in die Wurtzit-Struktur, so ist zur Separation des gebundenen Exzitons in GaAs eine Energiebarriere von $\Delta E_{BX} = (4,8 \pm 0,3) \text{ meV}$ zu überwinden, welche auch dem freien Transport des Elektron-Loch-Paars im elektrischen Feld der AOFW im Nanodraht entgegen gerichtet ist. Da in der Simulation nur die Höhe der Transportbarriere gewichtet ist, kann auch die Lokalisierung als Ursprung der Barriere herangezogen werden. Unter Beibehaltung der Verteilung der Stufe auf das Leitungs- und Valenzband entspricht die Bindungsenergie des Exzitons ΔE_{BX} einer Erhöhung der Energiebarriere in der Simulation von $\Delta E = 27,1 \text{ meV}$.

Aus diesen beiden Betrachtungen der Stufenhöhe der Barriere ergibt sich für den zugehörigen Simulationsparameter mit $\Delta E = 186 \text{ meV}$ die maximal mögliche Obergrenze sowie mit $\Delta E = 27,1 \text{ meV}$ der aus dem Experiment zu erwarteten Wert.

Mit diesen Randbedingungen für die Höhe der Barriere wird im Folgenden das Verhalten der Ladungsträger in der numerischen Simulation untersucht. Die sich dabei aus der Integration einer Barriere in den Ausbreitungspfad der AOFW an der Stelle $z_{ND} = z_0$ ergebende Verteilung der Ladungsträger $n(z, t)$ sowie $p(z, t)$ für Elektronen (blau) und Löcher (orange) ist in Abbildung 10.8 dargestellt. In Übereinstimmung mit der Falschfarbendarstellung in Abbildung 9.6 bei der Beschreibung der Dynamik ohne Transportbarriere, kommt eine Beweglichkeit der Elektronen von $\mu_e = 500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und der Löcher von $\mu_h = 50 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ zum Einsatz. Dass sich ergebende Verhältnis der Beweglichkeiten von $\mu_e:\mu_h = 10:1$ wird im weiteren Verlauf dieses Abschnitts konstant gehalten. Als Ausgangswert für die Höhe der Energiebarriere wird ein Wert von $\Delta E = 30 \text{ meV}$ nahe dem aus der Bindungsenergie des Exzitons ΔE_{BX} herangezogen. Unter dem Einfluss einer AOFW mit der Resonanzfrequenz von $f_{AOFW} = 200 \text{ MHz}$ und phasenstarrer Anregung der Ladungsträger bei einer absoluten Phasenlage von $\phi_{abs} = 270^\circ$ zeigt sich die in Abbildung 10.8 a) dargestellte Verteilung der Elektronen (blau) und Löcher (orange). Abweichend vom Verhalten der ungehinderten Diffusion, welche in Abbildung 9.6 a) dargestellt ist, sorgt die Energiebarriere am Punkt z_0 für eine Lokalisierung der Löcher nach der Anregung an dieser Stelle, was sich in der zeitlichen Entwicklung als durchgehende orange Linie äußert. Die Elektronen verteilen sich nach der Anregung zu beiden Seiten der Barriere und diffundieren von dort in Richtung der Enden des Nanodrahts, wie schematisch verdeutlicht. Die im vorliegenden Fall angelegte Leistung der AOFW von $P_{AOFW} = -22 \text{ dBm}$ bewirkt lediglich eine leichte Modulation der Elektronendichte, was sich als wellenförmige Schattierung der Dichteverteilung äußert. Insgesamt entsteht hierdurch ein kontinuierlicher Überlapp an der Barriere, was zur ungestörten Rekombination der Elektron-Loch-Paare $N(z, t)$

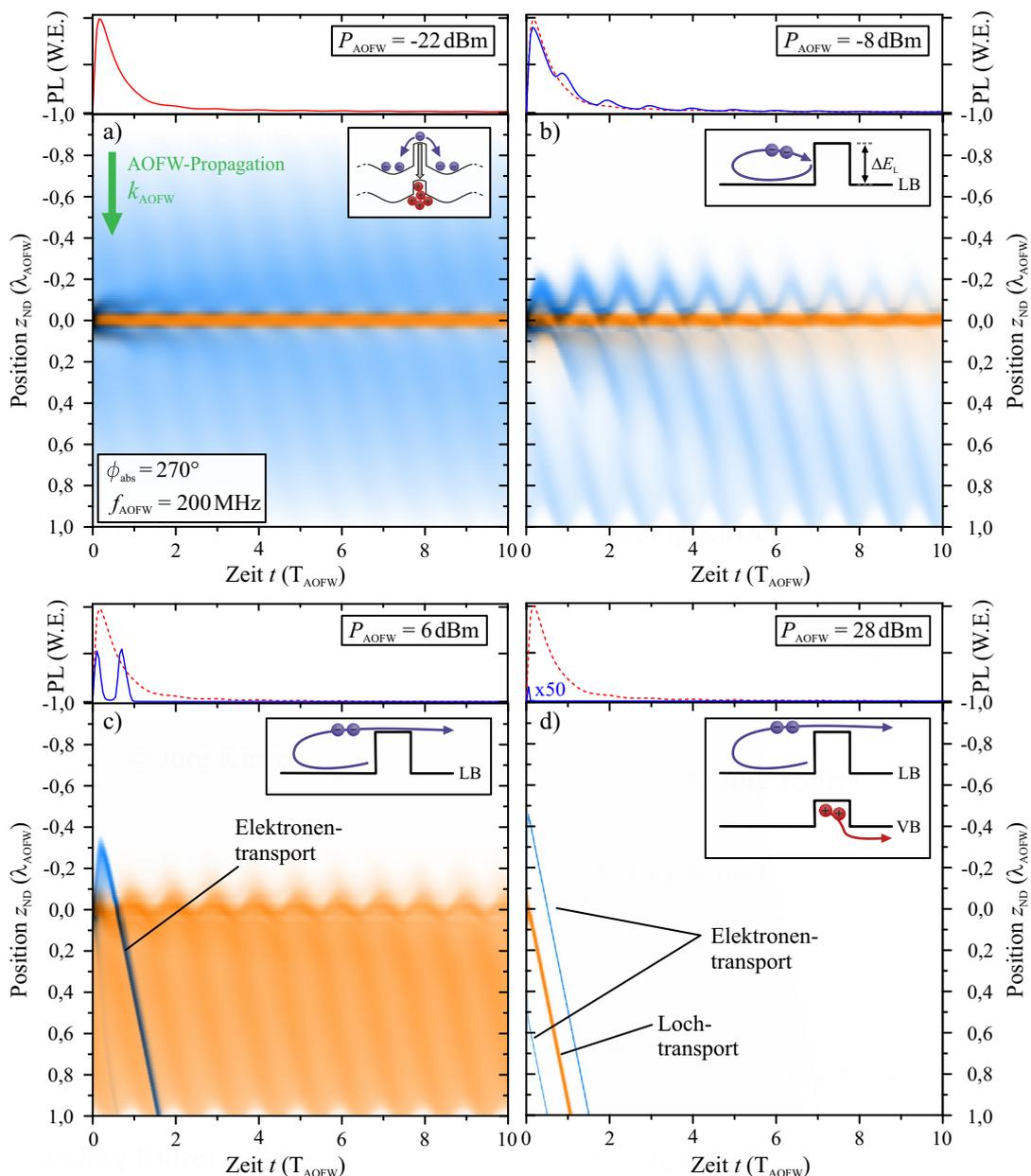


Abbildung 10.8: Falschfarbendarstellung der Dynamik der Elektron-Loch-Paare unter dem Einfluss des elektrischen Felds einer AOFW und der Existenz einer Transportbarriere mit der Höhe von $\Delta E = 30$ meV im eindimensionalen Kanal an der Position $z_0 = 0$. Die bei der absoluten Phasenlage von $\phi_{abs} = 270^\circ$ erzeugten Ladungsträger besitzen eine Beweglichkeit von $500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ bzw. $50 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ für Elektronen und Löcher. Die resultierende PL-Intensität ist jeweils als Histogrammkurve angetragen. a) Konzentration der Löcher auf den Bereich der Barriere, mit sonst ungestörter Diffusion der Elektronen bei einer Leistung von $P_{AOFW} = -22$ dBm. b) Zyklischer Vor- und Rücktransport der komprimierten Elektronen an der Barriere bei $P_{AOFW} = -8$ dBm. c) Effektiver Transport der Elektronen und einsetzende Auflösung der Lokalisierung der Löcher bei $P_{AOFW} = 6$ dBm. d) Effektiver und separierter Transport von Elektronen und Löchern ab initio bei $P_{AOFW} = 28$ dBm.

führt und damit zu einem ungestört abfallenden Transienten. Dieser ist oberhalb der Falschfarbendarstellung in rot abgebildet. Als Detektionsbereich für die PL-Emission entlang dem eindimensionalen Kanal zählt im Einklang zur Betrachtung der numerischen Simulation in Abschnitt 9.3 auch hier der Bereich von $z_{\text{ND}} = \pm 4,4 \mu\text{m}$ zur PL-Intensität.

Mit dem Anstieg der Leistung der AOFW auf $P_{\text{AOFW}} = -8 \text{ dBm}$ kommt es zur Kompression und Nettobewegung der Elektronen im elektrischen Feld, wie bereits in Abschnitt 9.2 beobachtet. Dabei folgt die Hälfte der Elektronen, welche die Barriere nach der Anregung in das stabile Minimum in positive z -Richtung verlassen, der sich ausbreitenden AOFW und wird über mehrere Wellenzüge von der Barriere und aus dem Detektionsbereich entfernt. Die Hälfte der Elektronen, welche zu Beginn in das gegenüberliegende Minimum bei negativer z_{ND} -Position des Kanals beschleunigt werden, folgen nach dem Erreichen der stabilen Lage im Minimum des Leitungsbandes der Propagation der Typ-II Bandkantenmodulation und es kommt analog der ungestörten Simulation zum Rückfluss der Elektronen zum Anregungspunkt. Im Unterschied bewirkt die Barriere nun zum Zeitpunkt $t = 3/4 \cdot T_{\text{AOFW}}$ in Abbildung 9.8 b) eine Unterbrechung des Ladungsträgertransports an der Potenzialstufe im Leitungsband. Ungehindert breitet sich hingegen die Modulation der Bandstruktur mit der AOFW weiter aus, sodass die Elektronen an der Barriere zurückbleiben und dort strahlend mit den Löchern rekombinieren, welche stationär auf den Bereich von $\Delta z = \pm 0,5 \mu\text{m}$ beschränkt sind. In der Falschfarbendarstellung äußert sich dieser Überlapp als Überlagerung des blauen und orangen Farbtons zu einer dunklen Tönung, wie zum Zeitpunkt $t = 3/4 \cdot T_{\text{AOFW}}$ im Bereich der Barriere bei $z_{\text{ND}} = 0$ zu erkennen. Der Überlapp von Elektronen und Löchern hält auch während der ansteigenden Flanke der Bandkantenmodulation nach dem Zeitpunkt $t = 3/4 \cdot T_{\text{AOFW}}$ an, wie in Abbildung 10.6 b) unten anhand des Verlaufs der Elektronendichte zu erkennen, bis sich die Richtung des elektrischen Feldes an der Barriere bei $t = T_{\text{AOFW}}$ umkehrt und die Elektronen erneut von der Barriere weg beschleunigt werden. Somit stellt sich nach einer Schwingungsperiode der AOFW die Ausgangssituation der Ladungsträgerverteilung wieder ein. Lediglich die Zahl der rekombinierenden Ladungsträger nimmt um mehr als die Hälfte des Werts der initialen PL-Emission ab, da zum einen nur die Elektronen bei negativen z -Werten in die Ausgangssituation zurückkehren, zum anderen kommt es zum Verlust durch strahlende Rekombination. Im Verlauf des Transienten zeigt sich, dass die Maxima der zyklisch pulsierenden PL-Emission oberhalb der erwarteten Intensität des ungestörten PL-Zerfalls liegen. Dies ist im Einklang mit der im Experiment erfassten pulsierenden Modulation der Histogrammkurven in Abbildung 10.2 und 10.3. Die Ursache dieses Effekts liegt in der Dissoziation der Exzitonen und der anschließend kontrollierten Rekombination an der Barriere, so dass es lediglich in der Zeitspanne des Überlapps am Rand der Barriere zur verstärkten Rekombination und damit PL-Emission kommt. In der übrigen Zeitspanne der Schwingungsperiode sind beider Ladungsträger durch die räumlich Separation vor Verlust durch strahlende Rekombination geschützt.

Mit dem Verbleib von dissoziierten Elektron-Loch-Paaren nach dem ersten Durchlauf eines Wellenzugs der Typ-II Bandkantenmodulation bei negativen z -Positionen, wiederholt sich dieser Zyklus mehrfach, wobei mit jedem Emissionspuls ein Teil der verbleibenden Ladungsträger verbraucht wird. Somit entspricht das Ergebnis der numerischen Simulation der in Abbildung 10.6 b) phänomenologisch beschriebenen

Dynamik. Mit dem in Abbildung 10.8 b) schematisch dargestellten Zyklus der Bewegung der Elektronen an der Barriere, zeigt sich in der Falschfarbendarstellung räumlich aufgelöst ein dreiecksförmiger Verlauf der Elektronendichte für negative z -Werte. Dabei nimmt die Dichte mit anwachsender Zahl der Pulse durch die strahlende Rekombination ab und geht im weiteren Verlauf in den ungestörten Fall ohne sichtbare Modulation der PL-Emission über.

Bei einer HF-Leistung von $P_{\text{AOFW}} = 6 \text{ dBm}$ zeigt sich in der numerischen Simulation die vollständige Kompression der Verteilung der Elektronen in das Minimum des Leitungsbandes und damit einhergehend den effektiven Transport der Elektronen direkt nach der Anregung. Dabei ist die Amplitude der Typ-II Bandkantenmodulation aus der AOFW ausreichend, die sich mit der Ausbreitungsgeschwindigkeit der AOFW bewegenden Elektronen $v_e = v_{\text{AOFW}}$ über die Stufe der Barriere zu heben, sodass es zu keiner Akkumulation an der Potenzialstufe kommt. Dies ist anhand der schematischen Darstellung für das Verhalten der Elektronen in Abbildung 10.8 c) verdeutlicht. Für die Löcher ergibt sich weiterhin eine Lokalisierung innerhalb der Barriere. Diese werden jedoch durch das elektrische Feld der AOFW zwischen den Flanken der Barriere im Inneren moduliert und partiell aus dieser heraus beschleunigt. Hierdurch kommt es zusätzlich zu einer Nettobewegung der Löcher entlang der Ausbreitungsrichtung der AOFW k_{AOFW} .

Der aus der in Abbildung 10.8 c) dargestellte Dichteverteilung der Ladungsträger resultierende Verlauf des Transient für die PL-Intensität gleicht damit dem in Abbildung 9.8 b), für den ungestörten Fall ohne die Existenz einer Barriere, gezeigten Verhalten der Transienten ab einer Leistung von $P_{\text{HF}} = 6,7 \text{ dBm}$. Dieser ist in beiden Fällen vollständig durch den um $\Delta t = T_0 + T_{\text{AOFW}}/2$ zeitverzögerten Rückfluss der Elektronen zu den stationären Löchern dominiert. Durch die identische Wahl der Beweglichkeit von Elektronen und Löchern von $\mu_e = 500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und $\mu_h = 50 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ ergibt sich dabei eine identisches Verhältnis der PL-Intensität zwischen der initialen und zeitverzögerten Emission. Somit vollführt hier die numerische Simulation des eindimensionalen Kanals mit Barriere im Ausbreitungspfad den Übergang in das Verhalten des Transienten aus dem ungestörten Transport ohne Barriere.

Mit weiterer Steigerung der Leistung der AOFW auf $P_{\text{AOFW}} = 28 \text{ dBm}$ weitet sich der vollständige Transport auf die Verteilung der Löcher aus. Analog der Falschfarbendarstellung für die Ausbreitung der Ladungsträger ohne Barriere in Abbildung 9.6 d), findet eine sofortige Dissoziation und Separation nach der Anregung statt, so dass beide Ladungsträgerspezies mit einem Abstand von $\Delta z = 7,75 \mu\text{m}$ voneinander getrennt transportiert werden. Als Folge kommt es zu einer völligen Unterdrückung der PL-Emission im zeitlichen Verlauf des Transienten. Lediglich direkt bei der Anregung kommt es zu einer initialen Rekombination, welche zur Erhöhung der Sichtbarkeit fünfzigfach überhöht dargestellt ist.

Durch die Anregung der Exzitonen bei der extremalen absoluten Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 270^\circ$ erreichen im vorliegenden Fall zuerst die Elektronen die Grenze des Simulationsgitters bei $z_{\text{ND}} = \lambda_{\text{AOFW}}$ zum Zeitpunkt $t = T_{\text{AOFW}}/2$, welche bei der Initialisierung in positive z -Richtung diffundieren und weiter in Ausbreitungsrichtung beschleunigt werden. Hierauf folgen die am stabilen Punkt des Valenzbandes initialisierten Löcher, welche bei einer Leistung von $P_{\text{AOFW}} = 28 \text{ dBm}$ direkt mit der AOFW propagieren und damit zum Zeitpunkt $t = T_{\text{AOFW}}$ den Rand erreichen. Zum Schluss erreichen die Elektronen aus dem Rückfluss mit einer weiteren Verzögerung

von $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/2$ das Ende des eindimensionalen Kanals und werden am Rand des Simulationsbereichs nichtstrahlend ausgelöscht.

Im Fall der umgekehrten extremalen absoluten Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 90^\circ$ kehrt sich die Reihenfolge des sequenziellen Transports um, wie in Abbildung 9.6 d) für eine Leistung von $P_{\text{AOFW}} = 28 \text{ dBm}$ dargestellt. Im Unterschied zur einfachen Umkehr der Reihenfolge des Transports beim Wechsel der Anregungsphase, zeigt sich im Fall der Stufenhöhe der Transportbarriere von $\Delta E = 30 \text{ meV}$ eine Abhängigkeit der Dynamik des einsetzenden Transports der Elektronen von der Phasenlage der Anregung, wie in Abbildung 10.9 dargestellt. Statt der erwarteten Verschiebung der zyklisch pulsierenden Emission um $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/2$ zeigt der blau dargestellte Transient in Abbildung 10.9 a) keine periodisch pulsierende Modulation der PL-Intensität im zeitlichen Verlauf.

An dessen Stelle kommt es bei der initialen Rekombination zu einer Überhöhung der PL-Intensität gegenüber dem Verlauf der Abklingkurve ohne Einfluss der AOFW (rot gestrichelt). Betrachtet man die Verteilung der Ladungsträgerdichten nach der Anregung am Ursprung bei z_0 für die Phasenlage der Anregung von $\phi_{\text{abs}} = 90^\circ$, so stellt sich für die Elektronen eine stabile Position im Minimum des Leitungsbandes ein, welches, wie schematisch verdeutlicht, mittig durch die Barriere getrennt wird. Die Löcher werden wie erwartet am instabilen Punkt der Typ-II Bandaktenmodulation der AOFW erzeugt, im Gegenzug jedoch durch die zusätzliche Stufe am Ort $z_{\text{ND}} = 0$ lokalisiert. Durch die Diffusion der Löcher kommt es dennoch zu einer partiellen Überwindung der Lokalisierung, sodass diese sich außerhalb der Barriere aufhalten, wie an der orangenen Tönung außerhalb des Einschlusspotenzials um $z_{\text{ND}} = 0$ in Abbildung 10.9 a) zu erkennen. Der damit einhergehende Überlapp mit den Elektronen sorgt für eine Anhebung der Rekombinationsrate und damit der initialen PL-Intensität. Im Bereich der positiven z_{ND} -Position sorgt die Nettobewegung der Elektronen für eine anwachsende räumliche Trennung mit der zeitlichen Entwicklung. Die Elektronen auf negativen z_{ND} -Position verbleiben zunächst für eine halbe Schwingungsperiode der AOFW im Bereich der Barriere. Erst mit einer Verzögerung von $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/2$ werden diese durch die sich umkehrende Feldrichtung, analog der Beschreibung des Verhaltens in Abbildung 10.8 b), entgegen der Ausbreitungsrichtung der AOFW beschleunigt. Die um die Zeitspanne $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/2$ verzögerte Beschleunigung entspricht im weiteren Verhalten exakt der Umkehrung in die zuvor beschriebene Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 270^\circ$ am Anregungspunkt. Im Zusammenspiel mit dem Aufenthalt eines Teils der Löcher neben der Barriere, resultiert aus dem um $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/2$ verlängerten Überlapp mit den Elektronen eine erhöhte strahlende Rekombination. Diese PL-Emission geht mit der entsprechenden Verringerung der Elektronendichte auf der negativen Seite der Barriere einher. Somit stehen im weiteren zeitlichen Verlauf weniger Elektronen zur zyklischen Rekombination an der Barriere zur Verfügung, was zum Ausbleiben der pulsierenden Überhöhung des Transienten nach dem Abklingen der initialen Rekombination führt.

Eine Möglichkeit zur Unterdrückung des Entweichens der Löcher aus der Barriere nach der Anregung, ist die Anhebung des Einschlusspotenzials und damit die Höhe der Barriere. Wie in Abbildung 10.9 b) zu sehen, erfolgt bei einer Stufenhöhe von $\Delta E = 130 \text{ meV}$ eine vollständige Lokalisation der Löcher am Ort der Anregung. Durch die Dissoziation und Separation der Exzitonen an der Stufe der Barriere nach der Anregung der Ladungsträger stehen somit auch bei der absoluten Phasen von

$\phi_{\text{abs}} = 90^\circ$ ausreichend Elektronen bei negativer z_{ND} -Position zur Verfügung, welche der alternierenden Beschleunigung im elektrischen Feld der AOFW folgen, bevor diese rekombinieren. Durch die Wechselwirkung mit der stufenförmigen Barriere im Ausbreitungspfad ergibt sich in der zeitlichen Entwicklung der numerischen Simulation auch bei der absoluten Phasenlage der Anregung von $\phi_{\text{abs}} = 90^\circ$ der erwartete dreiecksförmige Verlauf der Elektronendichte. Aus der damit verknüpften periodischen Rekombination an der Stufe der Barriere entsteht eine zyklisch pulsierende Modulation des exponentiellen Abfalls, wie bereits bei der Anregung der Ladungsträger in der absoluten Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 270^\circ$ in Abbildung 10.8 b) beobachtet. Ohne Auswirkung bleibt die Erhöhung der Barriere für die Hälfte der Elektronen, welche zu Beginn direkt in die Ausbreitungsrichtung der AOFW beschleunigt werden. Hier zeigt sich im Vergleich der Falschfarbendarstellung in Abbildung 10.9 bei der AOFW-Leistung von $P_{\text{AOFW}} = -8 \text{ dBm}$ für beide Höhen der Barriere von $\Delta E = 30 \text{ meV}$ und $\Delta E = 130 \text{ meV}$ eine identische Nettobewegung der Elektronen in Ausbreitungsrichtung mit mehreren Wellenzügen.

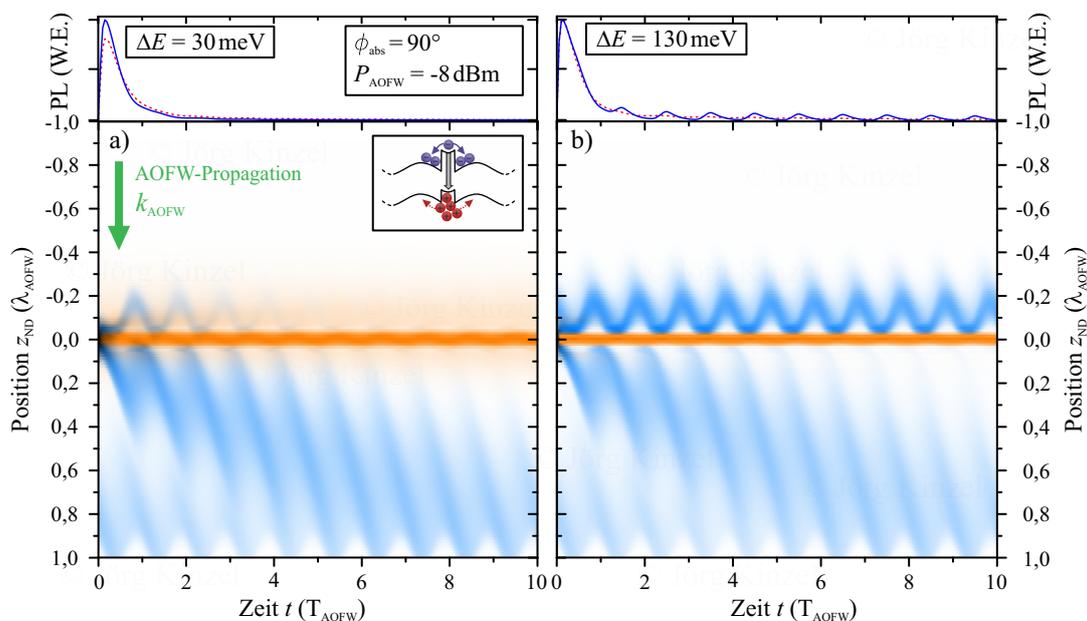


Abbildung 10.9: Auswirkungen der Höhe der Potenzialbarriere im Ausbreitungspfad auf die Dynamik der Elektron-Loch-Paare unter dem Einfluss einer AOFW mit einer Leistung von $P_{\text{AOFW}} = -8 \text{ dBm}$. Die bei der extremalen Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 90^\circ$ angeregten Ladungsträger besitzen eine Beweglichkeit von $\mu_e = 500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und $\mu_h = 50 \text{ cm}^2/\text{Vs}$. Oberhalb der Falschfarbendarstellung befindet sich die resultierende PL-Intensität als blauer Transient angetragen. a) Verhalten der Ladungsträgerdichte bei einer Potenzialstufe von $\Delta E = 30 \text{ meV}$. Überhöhung der initialen Rekombination und Ausbleiben der zyklisch pulsierenden Emission. b) Gesteigerte Kompression der Ladungsträger bei einer Höhe der Barriere von $\Delta E = 130 \text{ meV}$ und daraus resultierender zyklisch pulsierende Emission des Transienten im zeitlichen Verlauf.

Um das in Abbildung 10.2 und 10.3 zeitaufgelöst beobachtete Verhalten der zyklisch pulsierenden PL-Emission durch die Präsenz einer Barriere im realen Nanodraht mit dem Verhalten der Ladungsträgerdichten der numerischen Simulation quantitativ vergleichen zu können, sind in Abbildung 10.10 die sich aus der Simulation bei steigern Leistung der AOFW ergebenden Histogrammkurven für eine Höhe der Barriere von $\Delta E = 130 \text{ meV}$ zusammengefasst.

Der in Abbildung 10.10 a) dargestellte Fall der Anregung der Elektron-Loch-Paare bei einer absoluten Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 90^\circ = 180^\circ_{\text{rel}}$ entspricht der Anregung der Elektronen im stabilen Punkt der Typ-II Bandkantenmodulation. Dies ist durch die Festlegung der Phasenlage, sowohl in der numerischen Simulation gültig, als auch der dem Experiment entwachsenen Festlegung der relativen Phasenlage, sodass die numerischen Simulation in Abbildung 10.9 b) der relativen Phasenlage der Beobachtungen im Experiment in Abbildung 10.2 entspricht.

Unter Einbeziehung der Kalibrierung der HF-Leistung in der Simulation zeigt sich beginnend bei der Leistung von $P_{\text{HF}} = -23,3 \text{ dBm}$ bis zum pink dargestellten Transienten für eine HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -17,3 \text{ dBm}$ eine leichte Variation der PL-Intensität der Transienten mit der Periode der AOFW. Diese ist auf die Modulation der Dichteverteilung der Elektronen zurückzuführen, welche in diesem Leistungsbereich analog Abbildung 10.8 a) durch deren Diffusion bestimmt ist.

Ab einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -15,3 \text{ dBm}$ kommt es zum kontinuierlichen Übergang in die Kompression der Elektronen in die Minima der Typ-II Bandkantenmodulation mit einhergehender Nettobewegung. Dies führt zur Ausbildung des periodischen Überlapps an der Potenzialstufe der Barriere bei negativer z -Position und damit zur einsetzenden zyklischen PL-Emission.

Mit dem Erreichen der in rotbraun dargestellten HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -9,3 \text{ dBm}$ bildet sich entsprechend Abbildung 10.9 b) ein dreiecksförmiger Verlauf der Elektrodendichte bei negativer z_{ND} -Position aus und damit ein scharf definierter Überlapp am Rand der Barriere. Gleichzeitig sorgt die auf Grund des Vorzeichens gegenläufige Dichtemodulation der Löcher innerhalb der Barriere für eine zeitliche Verschiebung des maximalen Überlapps, so dass eine leicht asymmetrische Form des Maximums der zyklischen Emission entsteht.

Die Situation der zyklischen Rekombination an der Potenzialstufe setzt sich fort, bis die anwachsende elektrische Feldstärke der Typ-II Bandkantenmodulation bei dem in orange dargestellten Transienten der HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -7,3 \text{ dBm}$ zu einer Abnahme der Intensität der zyklisch pulsierenden PL-Emission führt. Dies geht auf den partiellen Transport der Elektronen über die Barriere zurück, so dass die periodische Wiederholung zu einem kontinuierlichen Verlust der Elektronen auf der negativen z_{ND} -Seite führt. Mit weiter steigender HF-Leistung gewinnt dieser Transport über die Barriere an Effizienz, sodass bei einer Leistung von $P_{\text{HF}} = 4,7 \text{ dBm}$ bereits nach der Anregung alle Elektronen von der negativen z_{ND} -Seite auf die positive transportiert werden und somit die Barriere ihren Einfluss auf die Elektronen verliert. Diese Situation ist in Abbildung 10.10 a) in der schematischen Darstellung für hohe HF-Leistungen verdeutlicht.

Zeitgleich kommt es mit weiterer Steigerung der HF-Leistung auf $P_{\text{HF}} = 6,7 \text{ dBm}$ zu einer Modulation der Dichteverteilung der Löcher innerhalb der Barriere, welche bei weiterer Erhöhung der HF-Leistung in den effektiven Transport der Löcher aus der

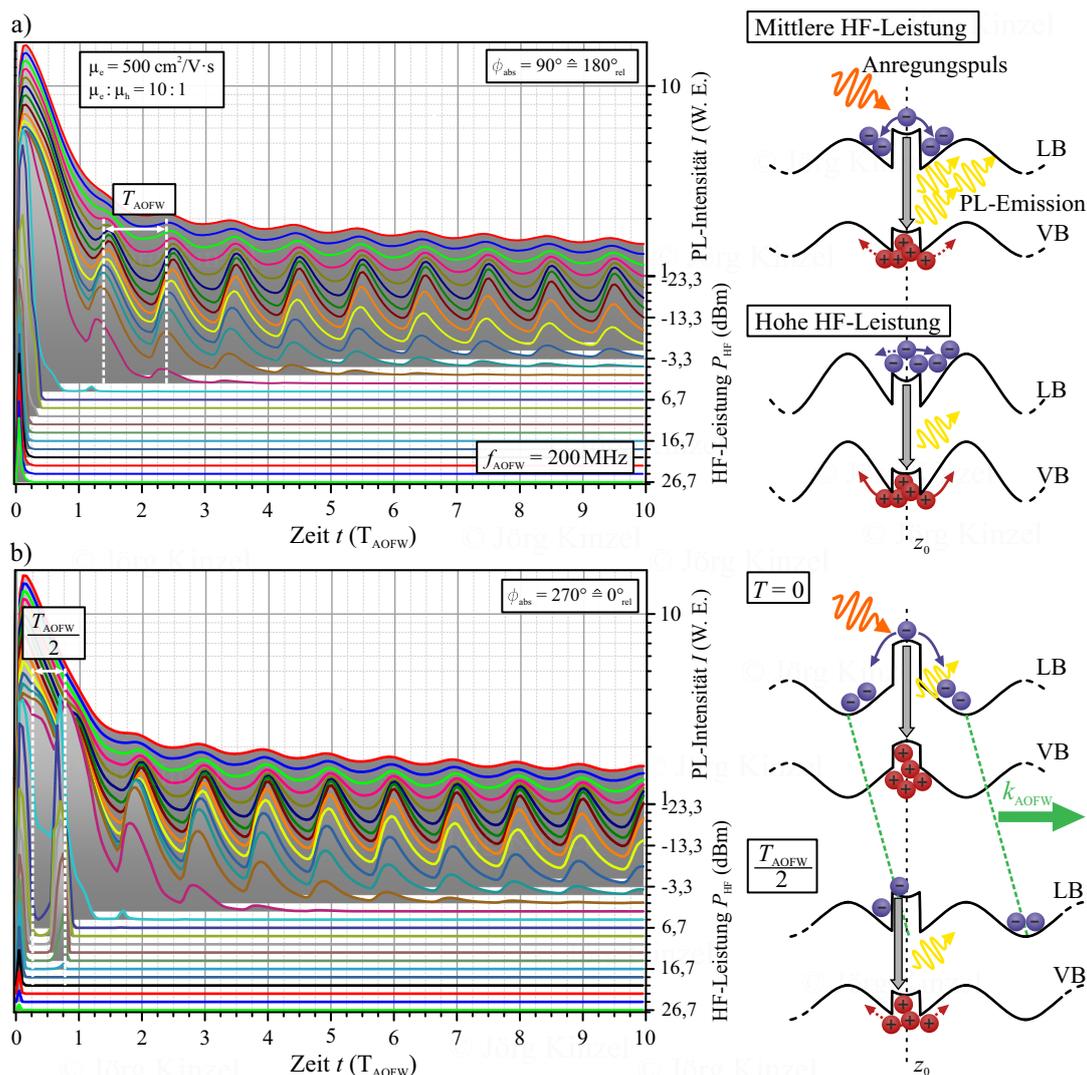


Abbildung 10.10: Zusammenfassung der Histogrammkurven aus numerischer Simulation der Ladungsträgerdynamik bei einer Beweglichkeit der Elektronen von $\mu_e = 500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ bzw. $\mu_h = 50 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ unter ansteigender HF-Leistung. Die Ausbreitung der Ladungsträger im eindimensionalen Kanal z_{ND} ist durch die Präsenz einer stufenförmigen Barriere mit einer Höhe von $\Delta E = 130 \text{ meV}$ um den Anregungspunkt $z = 0$ gestört. a) Anregung der Elektron-Loch-Paare bei einer Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 90^\circ$. Hierbei entstehen die Elektronen im stabilen Minimum der Potenzialmodulation durch die AOFW. Mit steigender HF-Leistung kommt es zum Einsatz der zyklisch pulsierenden Emission sowie bei hohen Leistungen zur Unterdrückung der PL-Emission durch die Dissoziation und den Transport der Ladungsträger. b) Anregung bei der absoluten Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 270^\circ$, entsprechend dem instabilen Punkt für Elektronen im Leitungsband. Mit einsetzender Separation der Elektronen am Anregungspunkt kommt es durch den Rückfluss zur erneuten Emission bei $T = T_0 + T_{\text{AOFW}}/2$, die im weiteren Verlauf zur zyklisch pulsierenden PL-Emission übergeht. Bei weiter steigender HF-Leistung folgt die vollständige Unterdrückung der PL-Emission.

Barriere und mit der propagierenden AOFW übergeht. Somit reduziert sich auch in diesem Fall die PL-Emission auf die direkte Rekombination im Moment der Anregung zum Zeitpunkt T_0 . In der Folge kommt es zum vollständig separierten Transport der Ladungsträger in der Typ-II Bandkantenmodulation und damit zum Übergang in das Verhalten des ungestörten Transports aus Abschnitt 9.2.

Durch die Drehung der Phasenlage der Anregung auf $\phi_{\text{abs}} = 270^\circ = 0^\circ_{\text{rel}}$ entsteht die anhand von Abbildung 10.8 beschriebene Anregungssituation, in der die Löcher im stabilen Maximum des Valenzbandes erzeugt werden, was die Lokalisierung am Anregungspunkt z_0 durch die Stufe der Barriere verstärkt. Die Elektronen werden hingegen zu beiden Seiten des instabilen Maximums hin zu den Minima des Leitungsbandes bei $\pm z_{\text{ND}}$ beschleunigt.

Durch die Propagation der AOFW und damit der Elektronen in der Typ-II Bandkantenmodulation des Leitungsbandes, ergibt sich in der zeitlichen Entwicklung die zu Abbildung 10.10 a) identische Abhängigkeit der Dynamik der Ladungsträger vom Anstieg der HF-Leistung. Lediglich durch den nötigen Rückfluss der Elektronen an den Ort der Anregung, kommt es zum Zeitversatz von $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/2$, bis der erste Emissionspuls der zyklischen Emission auftritt. Zusätzlich zeigt sich ab dem in orange dargestellten Transienten für eine HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -7,3 \text{ dBm}$ ein Anstieg des ersten wiederaufflammenden Emissionspeaks bei $t = T_0 + T_{\text{AOFW}}/2$. Dieser ist auf den einsetzenden Transport der Elektronen über die Barriere zurückzuführen, wobei der erhöhte Überlapp in diesem Moment zu einer Steigerung der Rekombinationsrate führt. Diese zeitverzögerte PL-Emission findet ihr Maximum im vollständigen Transport der Elektronen ab der HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 4,7 \text{ dBm}$. Dabei erzeugt der auf das Minimum der Typ-II Bandkantenmodulation komprimierten Transport der Elektronen zur und über die Barriere lediglich einen kurzzeitigen Überlapp mit den am Anregungspunkt z_0 lokalisierten Löchern, woraus ein scharfer Emissionspeak der wiederaufflammenden PL-Emission folgt.

Gleichzeitig führt der effektive Transport der Elektronen aus dem Detektionsbereich um z_0 zum Verschwinden der zyklisch pulsierenden Emission, wie bereits für die absolute Phasenlage der Anregung von $\phi_{\text{abs}} = 90^\circ$ beobachtet.

Mit dem bei weiterer Steigerung der HF-Leistung einsetzenden Transport der Löcher, kommt es ebenso bei der Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 270^\circ$ in Abbildung 10.10 b) zum Übergang in das Verhalten analog der Dynamik ohne stufenförmige Barriere im Ausbreitungspfad.

Somit zeigt sich im mittleren Bereich der HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -13,3$ bis $4,7 \text{ dBm}$ in beiden diskutierten Extremfällen der Anregung eine zyklisch pulsierende PL-Emission, deren Maxima der Intensität sich mit der Phasenlage der Anregung der Ladungsträger innerhalb der Typ-II Bandkantenmodulation verschieben. Bei niedrigen HF-Leistungen von $P_{\text{HF}} \leq -19,3 \text{ dBm}$ sowie für das vollständig separierte Transportregime ab $P_{\text{HF}} \geq 6,7 \text{ dBm}$ gleicht das Verhalten des Verlaufs der PL-Intensität dem in der numerischen Simulation ohne Potenzialstufe, wie in Abbildung 9.8 für die identische Beweglichkeit der Elektronen von $\mu_e = 500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und einem Verhältnis von $\mu_e:\mu_h = 10:1$ zu beobachten.

Beim Vergleich des Verhaltens der Transienten im Experiment zeigt die numerische Simulation eine gute Übereinstimmung mit den charakteristischen Zügen der PL-Emission. Dazu zählt die Abnahme der Dauer des initialen Emissionspeaks auf die direkte Rekombination bei der Anregung, was auf den effektiven Transport der

Elektronen im elektrischen Feld der AOFW zurückgeht. Der in Abbildung 10.4 aus der Zusammenfassung der Histogrammkurven für den Verlauf der Abklingkurven im Experiment ermittelte Wert von $P_{\text{HF}} = (5 \pm 3)$ dBm fällt dabei präzise mit der Aufspaltung des initialen Peaks bei $P_{\text{HF}} = (4,7 \pm 2,0)$ dBm in der numerischen Simulation in Abbildung 10.10 b) für die absolute Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 270^\circ$ zusammen. Zugleich ändert sich in beiden Fällen der Zeitpunkt des ersten PL-Pulses der zyklisch pulsierenden Emission mit der absoluten Phasenlage bei der Anregung der Elektron-Loch-Paare. Ebenso bleibt die zyklisch pulsierende Emission in der numerischen Simulation über einen Leistungsbereich von $\Delta P = 18$ dB bestehen.

Der vom Experiment zu niedrigeren HF-Leistungen abweichende Einsatzpunkt der Abnahme der Anzahl der Pulse während der Emission, lässt sich in der Simulation durch die Variation der Beweglichkeit der Ladungsträger beeinflussen, wie bei der Optimierung der Ausprägung der Histogrammkurven für den ungestörten Zerfall in Abschnitt 9.3 durchgeführt. Gleichzeitig bietet die Variation des Einschlusspotenzials die Möglichkeit, den Einsatzpunkt des Transports über bzw. aus der Barriere heraus, durch die Stärke der Lokalisierung zu steuern. Die daraus resultierenden Unterschiede in den charakteristischen Ausprägungen der zyklisch pulsierenden Emission sind in Abbildung 10.11 veranschaulicht.

In der hier dargestellten Zusammenfassung der Ergebnisse aus mehreren numerischen Simulationen mit variierenden Parametern sind die resultierenden Charakteristika der pulsierenden Emission in Abhängigkeit der Höhe der Barriere gegenüber der Beweglichkeit der Elektronen angetragen. Für letztere gilt bei allen untersuchten Werten ein konstantes Verhältnis zur Beweglichkeit der Löcher von $\mu_e:\mu_h = 10:1$.

Zu den charakteristischen Schlüsselstellen in der strahlenden Rekombination der im elektrischen Feld der AOFW beschleunigten Ladungsträger gehört zunächst das Auftreten des zyklisch pulsierende PL-Signals mit der Periode der AOFW. Dieser Fall ist im Diagramm in Abbildung 10.11 beim entsprechenden Parametertupel als grüner Kreis markiert. Der Durchmesser des Symbols gibt dabei den Leistungsbereich ΔP an, für welchen bei der absoluten Phasenlage der Anregung von $\phi_{\text{abs}} = 90^\circ$ bei $t = T_0 + T_{\text{AOFW}} = 1,2 \cdot T_{\text{AOFW}}$ die Ausbildung eines Pulses zu beobachten ist. Dabei entspringt die in Abbildung 10.10 gezeigte vollständige Nachbildung der Beobachtungen aus dem Experiment den Werten der Beweglichkeit von $\mu_e = 500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ sowie der Höhe der Barriere von $\Delta E = 130 \text{ meV}$ und ist Abbildung 10.11 als grüner Kreis markiert.

Ein weiteres Charakteristikum in der Dynamik der strahlenden Rekombination ist das Wiederaufflammen der PL-Emission bei der absoluten Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 270^\circ$ welches nach dem Abklingen der initialen PL-Emission mit einer Verzögerung $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/2$ bei gesteigerter HF-Leistung einen zeitverzögerten Emissionspeak erzeugt, wie in Abbildung 10.10 b) ab einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 4,7$ dBm zu beobachten. Das Ausbleiben dieses wiederaufflammenden Emissionspeaks bei sonst ungestörter zyklisch pulsierender PL-Emission geht auf das Einsetzen des effektiven Transports der Löcher zurück, so dass kein Überlapp durch den Rückfluss der Elektronen entsteht. Dieser tritt verstärkt ab der gesteigerten Beweglichkeit der Löcher von $\mu_h = 250 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ auf. In Abbildung 10.11 ist das Fehlen der wiederaufflammenden PL-Emission mit blauen Quadraten markiert. Deren Kantenlänge entspricht ebenso dem Leistungsbereich, in welchem die zyklisch pulsierende PL-Emission analog den grünen Kreisen beobachtet werden kann.

In beiden charakteristischen Fällen des Verhaltens der Transienten im Histogramm gibt die Füllung der Symbole Auskunft über die Abhängigkeit der Intensität der zyklisch pulsierenden PL-Emission von der Phasenlage der Anregung. Für ein vollständig ausgefülltes Symbol zeigt sich in der Analyse der Ergebnisse der numerischen Simulation kein Variation der PL-Intensität der Pulse mit der Phasenlage der Anregung. Halb ausgefüllte Symbole stehen für eine Abhängigkeit der Amplitude der zyklischen Pulse, wie sie zum Beispiel in Abbildung 10.9 a) für eine Beweglichkeit der Elektronen von $\mu_e = 500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und der Höhe der Barriere von $\Delta E = 30 \text{ meV}$ bei der absoluten Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 90^\circ$ zu erkennen ist. Dies hat seine Ursache in der beobachteten Überwindung des Einschusspotenzials durch die Diffusion der Löcher, so dass diese auf der negativen z_{ND} -Seite des eindimensionalen Kanals frühzeitig mit den Elektronen ohne Modulation strahlend rekombinieren.

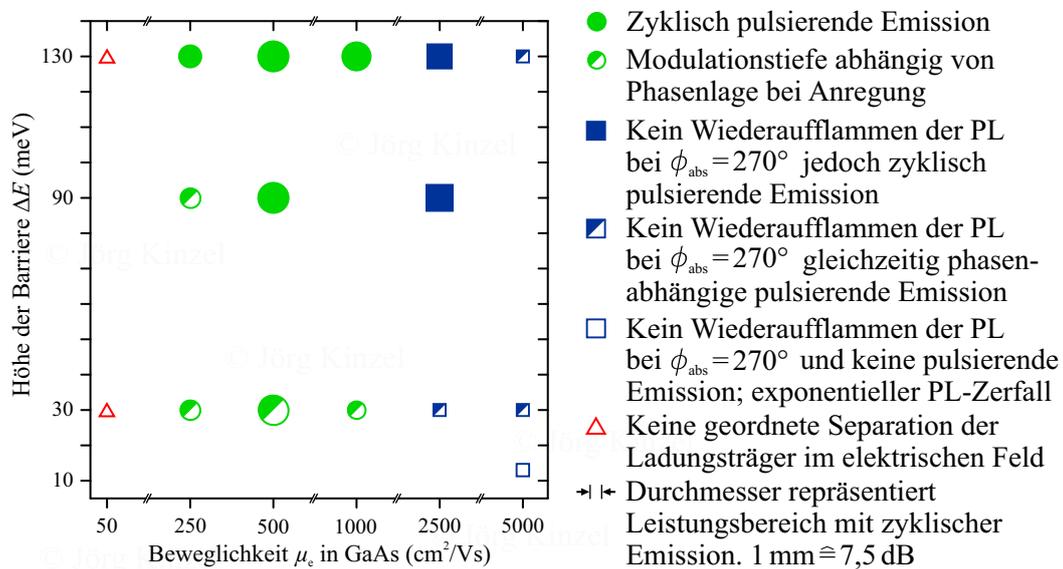


Abbildung 10.11: Zusammenfassung der aus der Variation der Höhe der Transportbarriere gegenüber der Beweglichkeit der Ladungsträger resultierende Charakteristika der numerischen Simulation für die absolute Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 90^\circ$. Die Form- und Farbkodierung repräsentiert das in den leistungsabhängigen Histogrammkurven beobachtete Verhalten der PL-Emission. Grüner gefüllter Kreis: Zyklisch pulsierende PL-Emission; halb gefüllt: Abhängigkeit der Intensität des Pulses von Phasenlage der Anregung. Quadrat gefüllt: Zyklisch pulsierende Emission, jedoch Unterdrückung des Wiederaufflammens der PL-Emission bei $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/2$ aus dem Rückfluss der Elektronen bei höheren HF-Leistungen; halb gefüllt: zusätzlich ist die Intensität des Pulses abhängig von der Phasenlage; leeres Symbol: Ungestörter PL-Zerfall. Rotes Dreieck: Zusammenbruch der Separation der Ladungsträger im elektrischen Feld der AOFW. Der verwendete Durchmesser der Symbole spiegelt den Leistungsbereich wieder, in welchem eine pulsierende PL-Emission im Histogramm zu beobachten ist.

Das nicht gefüllte Rechteck als Sonderfall symbolisiert das vollständige Ausbleiben der erwarteten wiederaufflammenden PL-Emission bei höheren HF-Leistungen, als auch der zyklisch pulsierenden Emission, sodass ein ungestörter PL-Zerfall zu beobachten ist. Diese Situation entspricht dem in Kapitel 9.3 diskutierten Fall ohne Transportbarriere im Ausbreitungspfad, wobei hier höhere Beweglichkeit der Löcher zusätzlich die verzögerte Rekombination mit den rückfließenden Elektronen verhindert. Somit beeinflusst allein die HF-Leistung die Lebensdauer des strahlenden Zerfalls für alle Phasenlagen der Anregung.

Den zweiten Sonderfall stellen die roten Dreiecke dar. Für eine Beweglichkeit von $\mu_e = 50 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und $\mu_h = 5 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ reicht die elektrische Feldstärke der AOFW nicht aus, um die Elektronen auf positiver z_{ND} -Seite der Barriere genügend zu beschleunigen, so dass diese die Ausbreitungsgeschwindigkeit der AOFW erreichen. Hierdurch kommt es lediglich zu einem Nettotransport welcher nicht ausreicht, die Verteilung der Elektronen innerhalb der numerisch untersuchten 10 Schwingungsperioden der AOFW von der Barriere effektiv zu separieren. Aus der resultierenden Vor- und Rückbewegung der Elektronen auf positiver z_{ND} -Seite ergibt sich mit der Überlagerung mit der PL-Emission von der negativen z_{ND} -Seite der Barriere, eine pulsierende Emission mit der halben Schwingungsperiode der AOFW von $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/2$. Hierdurch weicht das Verhalten der Simulation bei einer Beweglichkeit von $\mu_e = 50 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ für beide untersuchte Höhen der Potenzialstufe deutlich vom Verhalten im Experiment ab. Somit muss die Beweglichkeit der Ladungsträger im Nanodraht selbst unter der Anwesenheit einer Barriere oberhalb von $\mu_e = 50 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ für die Elektronen und $\mu_h = 5 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ für die Löcher liegen.

Betrachtet man die Verteilung der in der numerischen Simulation auftretenden Charakteristika der strahlenden Rekombination in Abbildung 10.11, so zeigt sich ein Zusammenhang für das Verhalten zwischen den eingesetzten Parametern für die Beweglichkeit und der Stufenhöhe der Barriere. Für die Höhe der Barriere im Bereich von $\Delta E = 30 \text{ meV}$ ergibt sich für alle Beweglichkeiten mit geordneter zyklisch pulsierender Rekombination eine Abhängigkeit der Intensität von der absoluten Phasenlage der Anregung der Elektron-Loch-Paare. Dies lässt sich erklären, in dem man das Verhalten der Löcher bei einer Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 90^\circ$ zum Zeitpunkt der Anregung in der für sie instabilen Position betrachtet. Hierbei kommt es trotz der Barriere zu einer Diffusion der Löcher in beide z_{ND} -Richtungen, wie in Abbildung 10.9 a) zu sehen. Die simulierte Höhe der Potenzialstufe im Valenzband mit $\Delta E_{\text{L}} = 12,2 \text{ meV}$ reicht nicht aus, alle erzeugten Ladungsträger innerhalb der Transportbarriere zu lokalisieren, sodass diese bei der Anregung und in der darauf folgenden zeitlichen Entwicklung partiell aus der Barriere gehoben werden, was zur herkömmlich strahlenden Rekombination auf der negativen z_{ND} -Seite der Barriere führt.

Beim Übergang zu höheren Beweglichkeiten der Ladungsträger geht ab der Beweglichkeit der Elektronen von $\mu_e = 2500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ das Charakteristikum der um $\Delta t = T_{\text{AOFW}}/2$ verzögerten wiederaufflammenden PL-Emission bei der absoluten Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 270^\circ$ verloren. Zwar lässt sich für diese gesteigerte Beweglichkeit die Abhängigkeit der PL-Intensität der zyklisch pulsierenden Emission von der Phasenlage bei der Anregung der Exzitonen durch Erhöhung der Barriere auf $\Delta E = 90 \text{ meV}$ beseitigen, die durch den vollständigen Transport der Löcher hervorgerufene Unterdrückung der wiederaufflammenden PL-Emission bleibt jedoch bestehen.

Eine Verdopplung der Beweglichkeit der Elektronen auf $\mu_e = 5000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und dementsprechend der Löcher auf $\mu_h = 500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ bewirkt umgekehrt eine erneute Abhängigkeit der zyklischen PL-Intensität von der Anregungsphase, wobei der Bereich der HF-Leistung für eine zyklisch pulsierende Emission auf $\Delta P = 12 \text{ dB}$ abnimmt. An diese Beweglichkeit nimmt der Einfluss der Transportbarriere mit sinkender Stufenhöhe weiter ab, so dass bei $\Delta E = 10 \text{ meV}$ die numerisch simulierten Histogrammkurven dem ungestörten monoexponentiellen Zerfall entsprechen.

Somit ergibt sich im untersuchten Parameterraum der numerischen Simulation eine stabile Insel für Wertetupel, bei denen die charakteristischen Züge der experimentellen Beobachtungen wiederzufinden sind. Der Bereich der zyklisch pulsierenden Emission ohne Abhängigkeit von der Phasenlage bei der Anregung findet sich bei einer Beweglichkeiten der Ladungsträger von $\mu_e = (500^{+500}_{-250}) \text{ cm}^2/\text{Vs}$ im Verhältnis von $\mu_e:\mu_h = 10:1$ und einer Höhe der Barriere von $\Delta E = 90$ bis 130 meV . Ebenso befindet sich für diesen Wertebereich der Einsatzpunkt zur Abnahme der Breite des initialen PL-Emissionspeaks, durch den vollständigen Transport der Elektronen, in guter Übereinstimmung mit der im Experiment ermittelten HF-Leistung.

Infolge des Verhaltens in der numerischen Simulation ist das Auftreten einer zyklisch pulsierenden PL-Emission von mehreren Faktoren abhängig. Dazu zählt zum einen die Kompression und der einsetzende Transport der Elektronen im propagierenden elektrischen Feld der akustischen Oberflächenwelle. Zum anderen muss eine Barriere im eindimensionalen Kanal vorhanden sein, welche zu einer Lokalisierung der Löcher an dieser führt und gleichzeitig den ungestörten Transport der Elektronen mit sich parallel ausbreitenden AOFW verhindert. Durch gezielte Variation der Beweglichkeit der Ladungsträger und der Stufenhöhe der Barriere als intrinsischer Parameter des GaAs-Systems, ist es möglich deren Ausprägung zu optimieren und damit das Verhalten der numerischen Simulation gegenüber dem Experiment vollständig zu verifizieren. Die unterschiedlichen Einsatzpunkt für die Abnahme der Anzahl der zyklischen PL-Pulse mit steigender HF-Leistung zwischen der numerischen Simulation ab einem Wert von $P_{\text{HF}} = -1,3 \text{ dBm}$ und im Experiment von $P_{\text{HF}} = 14 \text{ dBm}$ lässt sich auf mehrere Ursachen zurückführen.

Zum einen resultiert aus den in diesem Kapitel für alle durchgeführten Simulationen konstant gehalten Verhältnis der Beweglichkeit von Elektronen und Löchern von $\mu_e:\mu_h = 10:1$ eine Reduzierung des Bereichs mit stabiler zyklischer Emission in Abbildung 10.11. Betrachtet man die Auswirkungen der Feinabstimmung des Verhältnisses für die numerische Simulation ohne Störung der Bandstruktur durch eine Potenzialstufe in Abbildung 9.10, so lässt sich durch die Vergrößerung des Verhältnisses der Beweglichkeit eine Verringerung der Diffusion und des Drifts der Löcher erreichen. Hierdurch werden diese stärker an den Ort der Lokalisierung gebunden und stehen länger zur Rekombination mit den Elektronen an der Potenzialstufe zur Verfügung. Somit verschiebt sich der Bereich stabiler zyklisch pulsierenden PL-Emission ohne Abhängigkeit von der Phasenlage der Anregung zu kleineren Stufenhöhen und damit näher an der experimentell ermittelten Wert der Lokalisierung von $\Delta E_{\text{BX}} = (4,8 \pm 0,3) \text{ meV}$, was einer Energiebarriere in der numerischen Simulation von $\Delta E = 27,1 \text{ meV}$ entspricht.

Zusätzlich besteht die Möglichkeit den Verlauf der Histogrammkurven durch die Anpassung der Beweglichkeit der Elektronen zu modifizieren. Analog der Verschiebung des Einsatzpunktes der Unterdrückung der initialen PL-Emission in Kapitel 9.3

durch die Reduzierung der Beweglichkeit von $\mu_e = 500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ auf $250 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ um $\Delta P = 2 \text{ dB}$, ist in der numerischen Simulation mit Barriere im Ausbreitungspfad ein identisches Verhalten zu erwarten. Dies geht zum einen zurück auf die Abhängigkeit des Einsatzpunktes des effektiven Transports der Elektronen mit der Propagation der AOFW und damit der zyklisch pulsierenden PL-Emission von deren Beweglichkeit. Zum anderen bewirkt die gesteigerte Remanenz der Löcher eine Verschiebung der Abnahme des Transienten auf die initiale PL-Emission zu höheren HF-Leistungen, wie sie in Abbildung 9.8 und 10.10 bei $P_{\text{HF}} = 6,7 \text{ dBm}$ auftritt.

Weiter bietet die Variation der Stufenhöhe der Barriere die Möglichkeit die Lokalisierung der Ladungsträger zu Erhöhen und damit den Einsatzpunkt der Abnahme der Pulse aus zyklischer Rekombination zu verschieben. Zwar lässt sich durch die Erhöhung der Barriere von $\Delta E = 30 \text{ meV}$ auf 130 meV den Einsatzpunkt der Abnahme der Anzahl der Pulse von $P_{\text{HF}} = -9,3 \text{ dBm}$ auf die in Abbildung 10.10 abgebildeten $P_{\text{HF}} = -1,3 \text{ dBm}$ erhöhen, der maximal mögliche Wert der Barriere beim Übergang eines makroskopischen Bereichs der Zinkblende- in die Wurtzit-Modifikation von $\Delta E = 186 \text{ meV}$ reicht jedoch nicht aus, den experimentellen Wert von $P_{\text{HF}} = 14 \text{ dBm}$ zu erreichen.

Gleichzeitig bewirkt die Erhöhung der Barriere keine Verschiebung des Einsatzpunktes der Unterdrückung der initialen PL-Emission zu höheren HF-Leistungen, sodass sich die Charakteristika des Experiments durch die weitere Anhebung der Barriere nicht vollständig nachbilden lassen.

Beim Vergleich des Verhaltens ist die Tatsache nicht zu ignorieren, dass in der Simulation keine diskreten Teilchen betrachtet werden, sondern eine Dichteverteilung. Im realen Nanodraht bewirkt die geringe Anzahl von Exzitonen nach der initialen Rekombination eine abnehmende Wahrscheinlichkeit zur weiteren Rekombination an der Barriere, sodass diese über einen größeren Leistungsbereich erhalten bleiben. Da in der Simulation auch Bruchteile von Elektron-Loch-Paaren rekombinieren können, führt dies zu einem kontinuierlichen Verbrauch der Ladungsträger, bei gleichzeitiger Emission von zerstückelten Photonen.

Einen bisher ungeachteten Einfluss auf den strahlenden Verlust der Ladungsträger durch Rekombination besitzt dagegen deren Lebensdauer τ_S . Wie in Abschnitt 10.1 experimentell beobachtet, zeigen die Nanodrähte mit zyklisch pulsierender PL-Emission sowie vergleichbar gewachsene GaAs-Nanodrähte mit Wurtzit-Einschlüssen, einen biexponentiellen Zerfall der PL-Intensität. Dieser entstammt der Lokalisierung der Ladungsträgerpaare an der stufenförmige Typ-II Bandkantenmodulation, wie sie zum Beispiel an den vorgefundenen Zwillingdefekten im GaAs-Nanodraht auftritt [RSM13]. Da nach dem schnell ablaufenden initialen Zerfall der PL-Intensität die Abnahme der verbleibenden Ladungsträger durch den periodischen Überlapp an der Barriere dominiert wird, zeigt die vor allem die langsamer ablaufende strahlende Rekombination hier einen zusätzlichen Einfluss auf die Dynamik der pulsierenden Rekombination. In der numerischen Simulation ist zwar mit dem Einsatz des monoexponentiellen Abfalls der PL-Intensität das Verhalten der zyklisch pulsierenden Emission zu beobachten, die aus der langsamer ablaufenden Rekombination der lokalisierten Ladungsträger entstehende Dynamik bleibt bisher außen vor. Zusammen mit der Betrachtung von einzelnen diskreten Partikeln, wie sie nach dem Abklingen der initialen PL-Emission als Bruchteil der ursprünglichen angeregten Anzahl für die zyklisch pulsierende PL-Emission verantwortlich sind, bietet sich die Möglichkeit die

numerische Simulation weiter zu verfeinern und durch die verbesserte Nachbildung der Charakteristika den Ablauf der zyklisch pulsierenden PL-Emission auch bei hohen HF-Leistungen präzise beschreiben zu können.

Insgesamt lässt sich die in den zeitaufgelösten Experimenten beobachtete PL-Emission durch die Störung des Transports der dissoziierten und separierten Ladungsträger im elektrischen Feld der AOFW beschreiben.

Das Verhalten der initialen Abnahme der Histogrammkurven in Abbildung 10.2 und 10.3 nach der Anregung entspricht dabei der aus der Analyse der zeitaufgelösten Photolumineszenz in Abschnitt 9.1 bekannten Abhängigkeit von der Phasenlage der AOFW bei der Anregung der Exzitonen sowie von der am Schallwandler angelegte HF-Leistung. Der Abfall der PL-Intensität in zeitintegrierter Erfassung des PL-Signals in Abbildung 10.1, als auch der Abfall der strahlenden Lebensdauer für die initiale Rekombination in Abbildung 10.4 stimmen mit den in Kapitel 8.2 und 9.1 ermittelten Einsatzpunkten des Transports der Ladungsträger überein.

Das Auftreten der zyklisch pulsierenden PL-Emission mit der Schwingungsperiode der AOFW im weiteren zeitlichen Verlauf der Transienten erfordert eine Barriere im Ausbreitungspfad, welche gegen den ungehinderten Transport der Ladungsträger mit der propagierenden AOFW wirkt. Diese muss auf Grund der Unabhängigkeit von der Ausbreitungsrichtung der AOFW entlang der c -Achse des Nanodrahts symmetrisch aufgebaut sein und zu einer Lokalisierung der Löcher führen. Durch strukturelle Analysen an vergleichbar gewachsenen Nanodrähten mittels TEM-Analysen zeigen sich Zwillingsdefekte, welche entlang der c -Achse des Nanodrahts an zufälligen Positionen auftreten. Die mit dem Polytypismus von GaAs im Nanodraht einhergehende statische Typ-II Bandkantenmodulation ermöglicht es im Zusammenspiel mit der Dynamik der sinusförmigen Typ-II Bandkantenmodulation durch die AOFW einen periodischen Überlapp der Elektron-Loch-Paare zu erzeugen, wobei in jedem Zyklus ein Teil der Ladungsträger strahlend rekombiniert. Mit steigender HF-Leistung und damit elektrischer Feldstärke der Bandkantenmodulation durch die AOFW wird Modulation durch die AOFW zur dominierenden Komponente der Dynamik und es kommt zum Übergang in das Transportregime der Ladungsträger, wodurch die Anzahl der PL-Pulse abnimmt.

Für die Verifikation des Konzepts zur Beschreibung der Dynamik der zyklisch pulsierenden PL-Emission wird die in Kapitel 9.2 durchgeführte numerische Simulation durch eine stufenförmige Typ-II Bandkantenmodulation erweitert. Dies sorgt für die Ausbildung einer Potenzialstufe als Barriere in der sonst flachen Bandstruktur. Dabei ist die Barriere mit einer Länge von $1\ \mu\text{m}$ deutlich kleiner als die Wellenlänge der AOFW in der numerischen Simulation, sodass es zu keinem makroskopischen Verhalten des Wurtzit-Segments mit zugehöriger Rekombination kommt. Gleichzeitig sorgt die Störung der Bandstruktur, analog einem Zwillingsdefekt, für die Lokalisierung der Exzitonen nach der Anregung und nach deren Dissoziation zur Lokalisierung der Löcher.

Nach der anschließenden Diffusion oder dem Drift der Elektronen zu beiden Seiten der Barriere, sorgt die aus der Superposition der beiden Modulationen entstehende Dynamik des elektrischen Felds bei hinreichend großer HF-Leistung für einen Netto-transport der Elektronen mit der sich ausbreitenden AOFW. Dieser wird an der Barriere unterbrochen und erzeugt eine zeitlich verzögerte PL-Emission aus dem hergestellten Überlapp. Durch die mit der Periode der AOFW alternierende Richtung

des elektrischen Felds kommt es im weiteren Verlauf zu einer erneuten Separation durch den Drift der Elektronen entgegen der Ausbreitungsrichtung. Hierdurch wird die strahlende Rekombination an der Barriere temporär unterbrochen. Erst mit dem wiederholt einsetzenden Transport der Elektronen im stabilen Minimum der propagierenden Typ-II Bandkantenmodulation AOFW, erzeugt der erneute Überlapp an der Barriere für ein abermaliges Aufflammen der PL-Emission. Dabei gibt die Schwungsdauer der AOFW die Periode der pulsierenden PL-Emission vor.

Mit weiter steigender HF-Leistung vollzieht die Simulation den Übergang in das Verhalten der Transienten ohne Störung durch eine Barriere. Hierbei ist die elektrische Feldstärke ausreichend die Elektronen über die Barriere anzuheben und durch die weitere Propagation entlang der Achse des Nanodrahts zu transportieren. In gleicher Weise kommt es bei weiterer Erhöhung der Feldstärke zum Auslösen der Löcher aus der Potenzialstufe im Valenzband und in der Folge zum Verlöschen der PL-Emission durch den vollständig separierten Transport der dissoziierten Elektron-Loch-Paare.

Durch Variation der Simulationsparameter für die Beweglichkeit der Ladungsträger und die Höhe der Barriere ist es möglich, die Charakteristika der zyklisch pulsierenden PL-Emission an die Beobachtungen im Experiment weiter anzupassen. Hierbei zeigt sich ein stabiles Verhalten der numerischen Simulation für die Beweglichkeit der Elektronen von $\mu_e = (500_{-250}^{+500}) \text{ cm}^2/\text{Vs}$, bei einem Verhältnis zwischen den Ladungsträgern von $\mu_e:\mu_h = 10:1$ und einer Höhe der Barriere von $\Delta E = 90 - 130 \text{ meV}$. Analog zum Verhalten der Transienten im Experiment, lässt sich mit den ermittelten Werten der Parameter für die numerischen Simulation eine zyklisch pulsierende Emission über einen Leistungsbereich von $\Delta P = 18 \text{ dB}$ erreichen. Der gegenüber dem Experiment kleinere Bereich der HF-Leistung mit pulsierender PL-Emission ist auf die Vernachlässigung des biexponentiellen Zerfalls des ungestörten Transienten der Nanodrähte mit pulsierender PL-Emission im Experiment sowie der Betrachtung der Dichteverteilung statt diskreter lokalisierter Exzitonen zurückzuführen.

Größere Abweichungen von dem ermittelten Parameterbereich für die Beweglichkeit der Ladungsträger oder die Verringerung der Barriere unter $\Delta E < 30 \text{ meV}$ führt zum Ausbleiben der Charakteristika der PL-Emission oder dem Zusammenbruch der kontrollierten Separation der Ladungsträger.

Somit ist es durch Erweiterung der numerischen Simulation möglich, die experimentell beobachtete zyklisch pulsierende PL-Emission nachzubilden. Die dafür verantwortliche Transportbarriere lässt sich der Lokalisierung der Exzitonen an einem Zwillingdefekt im Nanodraht zuordnen, welcher dem kleinstmöglichen Wurtzit-Segment entspricht. Die dabei in der Simulation nötige Stufenhöhe der Barriere zur Erzeugung der zyklisch pulsierenden PL-Emission, ist dabei übereinstimmend mit der Bindungsenergie des Exzitons an einen Zwillingdefekt im GaAs-Nanodraht [RSM13]. Auch für eine Anhebung der Stufenhöhe in der Simulation, was der Annäherung an den Übergang bei einem makroskopischen Wurtzit-Segment im Nanodraht oder mehreren aufeinander folgenden Strukturübergänge entspricht, bleibt die Nachbildung erfolgreich.

Durch die Kombination der zeitaufgelösten μ -PL Spektroskopie mit der Modulation der Ladungsträger durch die AOFW gelingt es, die in einzelnen Nanodrähten entlang der c-Achse auftretenden Störstellen aufzuzeigen. Hierdurch bietet sich eine Alternative zur bisher aufwendigen Präparation der Nanodrähte zum kristallografischen Nachweise der Stapelfehler mittels TEM-Analyse [HCBR11].

Gleichzeitig ermöglicht das gezeigte Zusammenspiel aus selektivem und separiertem Transport der Elektron-Loch-Paare eine präzise Kontrolle über die mit der AOFW propagierenden Ladungsträger. Dies eröffnet im Zusammenspiel mit einer gesteigerten Funktionalisierung der Nanodrähte durch Quantenpunkte oder -töpfe im Ausbreitungspfad einen völlig neuen Ansatz zur Realisierung von Einzelphotonenquellen mit sequenzieller Emission. Nach der Zusammenfassung der Ergebnisse dieser Arbeit ist deshalb im nächsten Kapitel die Integration eines Quantentopfs als wichtiger Schritt zur Erhöhung der Funktionalität der Nanodrähte als Ausblick für zukünftige Konzepte gezeigt.

11 Zusammenfassung und Ausblick

In diesem abschließenden Kapitel werden die im Laufe der durchgeführten optischen Experimente sowie durch numerischen Simulationen gewonnen Erkenntnisse zusammengefasst. Dazu zählt die Analyse der PL-Emission von unpassivierten GaAs-Nanodrähten unter dem Einfluss von akustischen Oberflächenwellen und die Abhängigkeit der Modulation der PL-Emission von deren Einfallrichtung sowie der Phasenlage am Punkt der Anregung der Ladungsträger.

Hieran schließt sich die Untersuchung von Kern/Mantel-Nanodrähten an, welche durch ihren verbesserten Aufbau eine deutlich höhere PL-Intensität als auch strahlende Lebensdauer der angeregten Exzitonen besitzt. Dies ermöglicht, nebst der an unpassivierten GaAs-Nanodrähten durchgeführten zeitintegrierten Erfassung des Messsignals, den direkten Nachweis des Transports der dissoziierten Exzitonen mit der propagierenden AOFW durch die orts aufgelöste Detektion mittels einer CCD-Kamera. Weiter erlaubt die zeitkorrelierte Einzelphotonenzählung als Messmethode einen vertieften Einblick in die Dynamik des Rekombinationsprozesses. Die Verifikation des Verhaltens der Elektron-Loch-Paare durch numerische Simulationen runden die Beschreibung der Dynamik ab.

Zusätzlich lässt sich die an einzelnen Kern/Mantel-Nanodrähten im zeitlichen Verlauf der strahlenden Rekombination beobachtete zyklisch pulsierende PL-Emission auf die Existenz von Störstellen entlang der c -Achse des Nanodrahts zurückführen, die als Zentren zur Lokalisierung von Exzitonen dienen. Durch Erweiterung der numerischen Simulation mit einer stufenförmigen Potenzialbarriere im eindimensionalen Kanal gelingt es auch hier, die Ursache sowie das daraus resultierende Verhalten zu verifizieren.

11.1 Entwicklung der Charakteristika der Nanodrähte

Ausgehend von der Kombination der Photolumineszenz-Spektroskopie als Detektionsmechanismus und akustischen Oberflächenwellen als Manipulator für das Verhalten der Ladungsträger, ergibt sich ein universell einsetzbares Messkonzept zur Analyse aller optisch aktiven Materialien. Angewendet auf die in dieser Arbeit untersuchten GaAs-Nanodrähte, ergibt sich durch die vollständig optische Anregung und Detektion im Zusammenspiel mit der kontaktlosen Manipulation ein direkter Blick auf die Eigenschaften des intrinsischen Ladungsträgersystems ohne störende Beeinflussung der Messung durch die Ankopplung des Systems. Im Zusammenspiel mit der Charakterisierung und Kalibrierung der eingesetzten AOFW-Verzögerungsleitungen auf dem piezoelektrischen LiNbO_{3-x} -Substrat gelingt es, die Beweglichkeit der Ladungsträger sowie die aus einer polytypischen GaAs-Bandkantenmodulation resultierenden Stufenhöhe der Potenzialbarriere zu ermitteln.

Bei der zunächst durchgeführten Untersuchung von unpassivierten GaAs-Nanodrähten in Kapitel 7, zeigt sich eine PL-Emission bei einer Wellenlänge $\lambda = (814 \pm 3)$ nm, welche von der erwarteten Übergangsenergie des freien Exzitons in Galliumarsenid auf Grund der Verspannung des Nanodrahts auf dem Substrat durch das Abkühlen verschoben ist.

Mit Aktivierung der AOFW ohne starre Kopplung der Anregung der Elektron-Loch-Paare zur Phasenlage der AOFW ist mit steigender Leistung eine zunehmende Unterdrückung der PL-Emission zu beobachten. Diese ist auf die Dissoziation und Separation der freien Exzitonen im elektrischen Feld der Typ-II Bandkantenmodulation der AOFW zurückzuführen. Als direkte Folge zeigt die Unterdrückung der PL-Emission eine deutliche Anisotropie bezüglich der Orientierung der c-Achse des Nanodrahts zur Ausbreitungsrichtung der AOFW. Für eine Propagation entlang der c-Achse des Nanodrahts führt das unterschiedliche Vorzeichen der Ladung von Elektronen und Löchern zu einer entgegengesetzten Driftbewegung im elektrischen Feld. Die damit einhergehende räumliche Trennung führt zu einer Unterdrückung der strahlenden Rekombination. Bei senkrechter Koinzidenz der AOFW auf die c-Achse des Nanodrahts, verhindert der im Vergleich zur Wellenlänge der AOFW geringe Durchmesser des Nanodrahts eine effektive räumliche Trennung und es kommt bis in den Bereich hoher HF-Leistungen zu einer fortwährende PL-Emission.

Einen detaillierten Blick auf die Dynamik welche zur Separation der Elektron-Loch-Paare führt, liefert die starre Kopplung der Phasenlage der AOFW zum anregenden Laserpuls. In zeitaufgelöster Erfassung des PL-Signals bei Dauerstrich-Anregung durch den Laser, als auch in zeitintegrierten Erfassung mit stroboskopischer Anregung durch äquidistante Laserpulse, lässt sich für eine Propagation der AOFW parallel zur c-Achse des Nanodrahts eine deutliche Abhängigkeit der PL-Intensität von der relativen Phasenlage der AOFW am Ort der Koinzidenz nachweisen. Bei der Anregung der Elektron am für sie instabilen Maximum des Leitungsbandes der Typ-II Bandkantenmodulation und entsprechend der Löcher im stabilen Minimum im Valenzband, kommt es auf Grund der Driftbewegung der Elektronen zu einer räumlichen Trennung entlang der Achse des Nanodrahts, was eine Unterdrückung der strahlenden Rekombination bewirkt. Mit Drehung der relativen Phasenlage bei der Anregung kehrt sich die Situation der Ladungsträger um. Diese Anordnung führt, trotz der instabilen Position der Löcher im Valenzband, auf Grund der reduzierten Beweglichkeit der Löcher zu einem im Vergleich länger anhaltenden Überlapp der Elektron-Loch-Paare nach der Anregung und damit zu einer verstärkten Rekombination.

Auch im Fall der phasenstarken Kopplung führt die räumlichen Separation der Elektron-Loch-Paare als Ursache der Unterdrückung der PL-Emission zu einer identischen Abhängigkeit von der Orientierung der Ausbreitungsrichtung der AOFW bezüglich der Achse des Nanodrahts. Anisotropie Effekte aus den verwendeten Kristallschnitten des piezoelektrischen LiNbO_{3-x} -Substrats sind auf Grund der um 90° rotierten Kontrollexperimente an einem weiteren Nanodraht ausgeschlossen.

Effekte der Modulation der PL-Emission welche auf den Drift oder Transport der separierten Elektron-Loch-Paare über makroskopische Distanzen zurückgehen, können in den unpassivierten Nanodrähten auf Grund des dominierenden nichtstrahlenden Zerfalls nicht beobachtet werden. Zwar kommt es im elektrischen Feld der AOFW zur Dissoziation und Separation, die räumlich getrennten Ladungsträger gehen jedoch an ungesättigten Oberflächenzuständen weiterhin nicht-strahlend verloren.

Erst die Beseitigung dieser Zustände durch eine $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Hülle um den intrinsischen GaAs-Kern führt zu einer erheblichen Verlängerung der strahlenden Lebensdauer der freien Exzitonen und gleichzeitig zu einem Anstieg der PL-Intensität. Das Maximum der PL-Emission bei einer Wellenlänge von $\lambda = (813 \pm 8)$ nm entspricht dem Wert der unpassivierten Nanodrähte und liegt damit auf Grund der Verspannung des Nanodrahts gegenüber dem Substrat ebenso unterhalb der erwarteten Wellenlänge des freien Exzitons im GaAs-Volumenmaterial.

Unter dem Einfluss einer AOFW zeigt sich für die Kern/Mantel-Nanodrähte, bei paralleler Konfiguration der Ausbreitung der AOFW zur c -Achse des Nanodrahts und ohne Kopplung der Anregungsphase, eine identische Abhängigkeit der PL-Intensität von der applizierten HF-Leistung wie für die unpassivierten Nanodrähte. Hierdurch kann ein abschirmender Effekt des AlGaAs/GaAs-Mantels auf die Separation der Exzitonen im Kern ausgeschlossen werden. Die zum unpassivierten Fall identische Ausprägung der Modulation setzt sich unter phasenstarrer Kopplung bei niedrigen HF-Leistungen fort, wobei das um 180° versetzte Auftreten des Minimums und Maximums der PL-Intensität allein auf die unterschiedlich ausgeprägte Driftbewegung der Ladungsträger im elektrischen Feld der AOFW zurückzuführen ist.

Mit Erhöhung der HF-Leistung entfaltet der Transport der in der Typ-II Bandkantenmodulation separierten Ladungsträger mit der sich ausbreitenden AOFW seine Dominanz. Dieser bewirkt in Abhängigkeit von der Phasenlage der AOFW bei der Anregung der Exzitonen eine zweifache Modulation der PL-Emission. Das bei einer relativen Phasenlage von $\phi = 90^\circ$ hinzukommende globale Minimum, ist dabei auf die Separation der Elektron-Loch-Paare an der Flanke der sinusförmigen Bandkantenmodulation und den anschließenden selektiven Transport der Elektronen weg vom Ort der Anregung zurückzuführen. Die Aufspaltung des Intensitätsmaximums durch das Nebenminimum bei $\phi = 270^\circ$ entsteht aus der Trennung der Elektron-Loch-Paare nach der Anregung mit anschließendem Rückfluss der Elektronen an den Ort der Anregung, wo diese mit den remanenten Löchern erneut rekombinieren. Der bei weiterer Erhöhung der HF-Leistung einsetzende Transport der Löcher bewirkt im Zusammenspiel mit der verlängerten Lebensdauer einen vollständig separierten Transport der im elektrischen Feld dissoziierten Exzitonen und damit eine Reduzierung der PL-Intensität auf die Rekombination in Moment der Anregung durch den Laserpuls.

Die im Experiment beobachtete Dynamik der Elektron-Loch-Paare spiegelt sich auch in der numerischen Lösung des Ratenmodells für die Erzeugung und Manipulation von Elektron-Loch-Paaren durch das elektrische Feld der AOFW in einem eindimensionalen Kanal wieder. Dabei zeigt die aus der dynamischen $z_{\text{ND}}-t$ -Verteilung von Elektronen und Löchern durch strahlende Rekombination resultierende PL-Intensität bei zeitintegrierter Darstellung, zunächst eine phasenabhängige Modulation der PL-Intensität mit der Schwingungsperiode der AOFW. Diese entspringt, übereinstimmend mit der Beschreibung im Experiment, der Kompression und dem Drift der dissoziierten Ladungsträger. Mit steigender HF-Leistung führt der einsetzende Transport der Dichteverteilung der Elektronen in Ausbreitungsrichtung der AOFW zu einem Übergang der glockenförmigen Ausprägung der PL-Intensität in der Falschfarbendarstellung in die zweifache Modulation. Gleichzeitig kommt es durch die Separation und den sukzessiven räumlich getrennten Transport von Elektronen und Löchern auch in der numerischen Simulation zu einer deutlichen Abnahme der PL-Intensität. Aus der Optimierung der Simulationsparameter zur Wiedergabe der Charakteristika

aus dem Experiment wie die Abhängigkeit von der Phasenlage, die Phasenverschiebung des Nulldurchgangs und die nötige HF-Leistung zum Nachbilden der beobachteten Modulationstiefe, ergibt sich eine optimale Übereinstimmung zwischen numerischer Simulation und dem Verhalten im Experiment für eine Beweglichkeit der Elektronen von $\mu_e = 250 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und der Löcher von $\mu_h = 20 \text{ cm}^2/\text{Vs}$. Gleichzeitig wird die Gültigkeit des zur phänomenologischen Beschreibung der experimentellen Beobachtungen herangezogene Verhalten der Elektron-Loch-Paare im elektrischen Feld der AOFW durch numerische Lösung des Ratenmodells verifiziert.

Einen direkten Nachweis der dynamischen Vorgänge welche zur strahlenden Rekombination der Elektron-Loch-Paare im Nanodraht führen, ermöglicht die zeitaufgelöste Erfassung des PL-Signals mittels zeitkorrelierter Einzelphotonenzählung.

Der im ungestörten Fall exponentielle Abfall des Transienten der PL-Intensität erfährt unter dem Einfluss der AOFW bei niedriger HF-Leistung eine stufenförmige Modulation des Verlaufs. Hierfür verantwortlich ist die räumlichen Trennung der Ladungsträger am Ort der Anregung, welche in der zeitintegrierten Erfassung des PL-Signals für die Ausbildung des glockenförmigen Verlaufs der PL-Intensität in Abhängigkeit der Phasenlage bei der Anregung verantwortlich ist, wie in Abbildung 8.4 b) & c) für niedrige HF-Leistungen zu beobachten. Der bei dieser HF-Leistung dominierende Drift im elektrischen Feld verursacht im zeitlichen Verlauf je nach Phasenlage eine temporäre Separation der Elektronen oder den Überlapp der Ladungsträger und in der resultierenden Rekombination als Folge das stufenförmige Abklingen der strahlenden Rekombination mit der Periode der AOFW.

Mit dem Einsetzen des effektiven Transports der Elektronen mit der propagierenden AOFW bestätigt sich die aus den zeitintegrierten Messungen erwartete Dynamik der Ladungsträger. Während das beständige Maximum der initialen PL-Emission bei der relativen Anregungsphase von $\phi = 180^\circ$ auf der stabilen Anregung der Elektronen beruht und somit von deren Transport im elektrischen Feld der AOFW unabhängig ist, zeigt die bei der Phasenlage von $\phi = 0^\circ$ auftretende zeitverzögerte Emission im Leistungsbereich von $P_{\text{HF}} = 3 \text{ dBm}$ bis 15 dBm im Gegensatz eine vollständige Abhängigkeit vom Rückfluss der Elektronen. Erst der bei weiterer Steigerung der HF-Leistung einsetzende Transport der Löcher beendet die Dominanz der Ausprägung der Transienten durch die Dynamik der Elektronen. Der sequenzielle Transport führt dabei in der zeitaufgelösten Darstellung analog der zeitintegrierten Erfassung zur Unterdrückung der PL-Emission.

Beim Vergleich der experimentellen Beobachtungen mit der PL-Emission aus der numerischen Simulation zeigen sich auch in der zeitaufgelösten Darstellung für beide extremalen Phasenlagen die identischen charakteristischen Merkmale. Analog der Analyse bei der zeitintegrierten Betrachtung, gelingt es weiter, den Einsatzpunkt des Transports der Elektronen, wie auch der Löcher durch Optimierung der zugehörigen Beweglichkeiten an den Verlauf des Experiments anzupassen.

Somit ist es auch durch die Analyse der zeitaufgelösten PL-Emission am Ort der Anregung möglich, anhand des Verlaufs der Transienten auf den für das auftretende Verhalten entscheidenden Mechanismus bei der Manipulation der Ladungsträger, wie die Diffusion, den Drift oder den vollständigen Transport beider Ladungsträgerspezies, zu erschließen.

Mit der präzisen Ermittlung des jeweils dominierenden Effekts in der zeitaufgelösten Darstellung lässt sich über die Korrelation beider Messmethoden mittels der nume-

rische Simulation eine direkte Verknüpfung zur Abhängigkeit der Modulation der PL-Intensität in der zeitintegrierten Darstellung herstellen. Hierbei begünstigt der erheblich reduzierten Zeitaufwand bei der Erfassung des zeitintegrierten Messsignals im Experiment die Identifizierung der Schwellwerte der Dynamik der Ladungsträger, was die Effizienz bei der Bestimmung der intrinsischen Beweglichkeit von Elektronen und Löchern des Ladungsträgersystems steigert.

Für den direkten Nachweis des Transports der Ladungsträger ist die μ -PL Spektroskopie in der bisher eingesetzten Konfiguration nicht geeignet. Erst die Trennung des Orts der Anregung von dem der Detektion ermöglicht eine indirekte Beobachtung des separierten und in der Folge sequenziellen Transports der Elektron-Loch-Paare in der Typ-II Bandkantenmodulation der AOFW. Dies gelingt durch den Einsatz eines CCD-Sensors, welcher die Oberfläche der Probe räumlich auflöst und damit eine vollständige Erfassung des PL-Signals des Nanodrahts erlaubt.

Dabei zeigt sich anhand der Aufnahmen bei niedriger HF-Leistung der Übergang von der ungestörten Diffusion der Ladungsträger auf die Komprimierung am Ort der Anregung. Bei weiter steigender HF-Leistung kommt es am Endstück des Nanodrahts, welches in Ausbreitungsrichtung der AOFW liegt, zur optischen Emission aus der Rekombination von Elektron-Loch-Paaren. Diese werden am Punkt der Anregung im elektrischen Feld separiert und mit der Propagation in Ausbreitungsrichtung sequenziell transportiert. Am Ende des Nanodrahts erzeugen Defekte in der Kristallstruktur Rekombinationszentren. An dieser Störung der Bandstruktur werden die Ladungsträger zunächst bei mittlerer HF-Leistung zurückgehalten werden, wodurch diese überlappen und damit strahlend rekombinieren.

Eine weiterer Rekombinationskanal der Elektron-Loch-Paare findet sich an einem Teil der Nanodrähte auch entlang der c-Achse verteilt. Hierbei wirken Zwillingsdefekte der GaAs-Kristallstruktur als Störung der Bandstruktur. In der zeitaufgelösten Erfassung des PL-Signals machen sich diese Störungen bei einsetzendem Transport der Elektronen als zyklisch pulsierenden PL-Emission nach dem Abklingen der initialen Rekombination bemerkbar. Durch die Variation des Zeitpunkts des ersten zyklischen Emissionspulses und aller periodisch folgenden mit der Phasenlage bei der Anregung der Exzitonen, lässt sich dieses Verhalten auf eine Lokalisierung der Exzitonen an einer stufenförmigen und ortsfesten Barriere innerhalb der Bandstruktur zurückführen. Bei dem zugrundeliegenden Zwillingsdefekt handelt es sich um eine zweifache Drehung der Stapelreihenfolge von GaAs, was dem kurzzeitigen Wechsel in die Wurtzit-Struktur entspricht.

Auf Grund der größeren Bandlücke der Wurtzit-Modifikation von GaAs entsteht an der Störstelle der Kristallstruktur eine zusätzlich Typ-II Bandkantenmodulation, welche dem Transport der Ladungsträger im elektrischen Feld der AOFW entgegen wirkt. Durch die Superposition beider Bandkantenmodulationen kommt es im Transportregime der Elektronen beim Erreichen der Potenzialstufe der Barriere zu deren Zurückbleiben am Punkt der Stufe, während sich die Typ-II Bandkantenmodulation der AOFW weiter entlang der Achse des Nanodrahts ausbreitet. Aus der Rekombination mit den innerhalb der Barriere lokalisierten Löchern ergibt sich im Moment des Eintreffens der Elektronen ein Anstieg der PL-Intensität. Mit der Umkehr der Feldrichtung an der Stufe der Barriere durch die sich weiter ausbreitende AOFW werden die verbleibenden Elektronen erneut entgegen der Ausbreitungsrichtung der AOFW in das Minimum des Leitungsbandes beschleunigt und damit wieder von der Barriere

separiert. Somit ist die strahlende Rekombination an der Potenzialstufe lediglich temporär. Dies führt mit dem sich darauf wiederholenden Rücktransport der Elektronen mit der Propagation der AOFW zur Barriere zur Ausbildung einer pulsierenden PL-Emission, welche mit der Schwingungsperiode der AOFW auftritt. Die Beobachtung der zyklisch pulsierenden PL-Emission ist im verwendeten optischen Aufbau lediglich durch das Zeitfenster der Erfassung der PL-Emission limitiert und zeigt weiter eine Stabilität für das Auftreten der zyklisch pulsierenden Emission über einen weiten Bereich der angelegten HF-Leistung auf. Erst mit weiter anwachsender HF-Leistung führt der Anstieg der Höhe der Typ-II Bandkantenmodulation der AOFW zu einem sukzessiven Transport der Elektronen über die Barriere, so dass die Gesamtzahl der PL-Pulse abnimmt.

Das Auftreten der zyklischen Modulation der PL-Emission eröffnet erneut die Möglichkeit, die Gültigkeit der durchgeführten Überlegungen zur phänomenologischen Beschreibung der Beobachtung durch den Ausbau der numerischen Simulation zu verifizieren. Mit der Erweiterung der bisher flachen Bandstruktur in der numerischen Simulation durch eine stufenförmige Potenzialbarriere am Ort der Anregung, wird der Polytypie der Wurtzit-Struktur in der Zinkblende-Matrix des GaAs-Nanodrahts Rechnung getragen. Gleichzeitig stellt diese Erweiterung einen Test der numerischen Simulation dar, welche bisher nur die Dynamik des ungestörten Falls nachbildet.

Bei der Analyse des Verhalten der Elektron-Loch-Paare im eindimensionalen Kanal der numerischen Simulation, zeigt sich hierbei, für alle Phasenlagen der Anregung der Ladungsträger, die erwartete Lokalisierung der Dichteverteilung der Löcher im Bereich der Barriere. Ebenso verteilen sich die Elektronen mit Hilfe der Modulation durch das elektrische Feld der AOFW so um die Barriere, dass bei hinreichender HF-Leistung ein Transport an die Potenzialstufe einsetzt. In der zeitlichen Entwicklung kommt es auch in der numerischen Simulation an der Stufe zur strahlenden Rekombination und gleichzeitig zur Entkopplung der Elektronen vom Einschluss in der Typ-II Bandkantenmodulation der propagierenden AOFW. Dies hat übereinstimmend mit den Erwartungen aus dem Experiment zur Folge, dass die Elektronen mit der Umkehrung der Feldrichtung der AOFW durch Drift wieder von der Barriere separiert werden und die strahlende Rekombination unterbrochen wird, bis die Verteilung der Elektronen im elektrischen Feld der AOFW erneut an der Barriere akkumuliert.

Mit steigender HF-Leistung kommt es auch in der numerischen Simulation zum Transport der Elektronen über die Barriere, sodass die Zahl der aufeinander folgenden zyklischen Pulse abnimmt. Im Weiteren kommt es mit dem Einsatz des Auslösen der Löcher aus der stabilen Lage in der Barriere bei genügend großer Feldstärke zum Übergang in den separierten Transport der dissoziierten Elektron-Loch-Paare und damit zur Reduzierung der PL-Emission auf die initiale Rekombination.

Das Resultat der Überlagerung der einzelnen Komponenten in der numerischen Simulation hängt neben der HF-Leistung entscheidend von der Beweglichkeit der Ladungsträger als auch von der Höhe der Barriere ab. Ausgehend von den Werten für die Beweglichkeit aus der numerischen Simulation ohne Störung der Bandstruktur, ergibt sich auch im Fall der zyklisch pulsierenden PL-Emission ein stabiles Verhalten der Dynamik für eine Beweglichkeit der Elektronen von $\mu_e = (500_{-250}^{+500}) \text{ cm}^2/\text{Vs}$ sowie der Löcher im Verhältnis von $\mu_e:\mu_h = 10:1$. Somit besitzt das Auftreten des Wurtzit-Segments keinen entscheidenden Einfluss auf das makroskopische Verhalten der Ladungsträger. Lediglich ein geringer Prozentsatz der erzeugten Elektron-Loch-

Paare ist für die zyklisch pulsierende PL-Emission verantwortlich, der Großteil der Ladungsträger rekombiniert im initialen Emissionsmaximum. In der Folge wirkt sich die Höhe der Potenzialstufe an der Transportbarriere hauptsächlich auf die Merkmale des zyklischen Pulsierens aus. Ab einer Stufenhöhe von $\Delta E \geq 30 \text{ meV}$ lässt sich dabei eine rückhaltende Wirkung der Barriere beobachten, welche bis zur höchsten untersuchten Stufe von 130 meV erhalten bleibt. Die ermittelte untere Grenze der Barriere entspricht der Bindungsenergie des Exzitons an einen Zwillingsdefekt, wie sie anhand vergleichbar gewachsener Nanodrähte ermittelt wurde und zeigt damit eine perfekte Übereinstimmung. Größere Werte kommen dem Anwachsen des Zwillingsdefekts zu einem ausgedehnten Wurtzit-Segment mit sukzessiver Steigerung der Stufenhöhe auf $\Delta E = 186 \text{ meV}$ gleich. Somit können auch makroskopische Defekte als Transportbarrieren dienen und die Rekombination von im elektrischen Feld der AOFW zunächst räumlich getrennt transportierten Ladungsträgern auslösen. Dies lässt sich zum Beispiel bei der orts aufgelösten Untersuchung des Transports im elektrischen Feld der AOFW zum Ende des Nanodrahts beobachten, wo die dort ansteigende Defektdichte durch den zufälligen Wechsel der Kristallstruktur zur Rekombination führt [HCBR11].

Somit gelingt es, durch die Kombination der zeitintegrierten und zeitaufgelösten μ -PL Spektroskopie mit der kontaktlosen Manipulation der Ladungsträger, durch die akustische Oberflächenwelle eventuelle Störstellen entlang der Achse der untersuchten Nanodrähte aufzuspüren. Neben der erheblichen Zeitersparnis gegenüber des kristallografischen Nachweises der Existenz von Stapelfehlern mittels TEM-Analysen, liefert das hier eingesetzte Messverfahren gleichzeitig Informationen über den Einfluss auf die elektronischen Eigenschaften des Systems an der Störstelle. Ebenso handelt es sich um ein zerstörungsfreies Prüfverfahren, was einen weiteren Einsatz des Nanodrahts ermöglicht.

Bei der Verifikation des Verhaltens der Ladungsträger mittels numerischer Simulation der optischen Emission bei realistischen Bedingungen, lassen sich durch die Anpassung der Charakteristika der simulierten Ergebnisse an die Beobachtungen im Experiment die Werte für die Beweglichkeiten von Elektronen und Löchern nahe dem intrinsischen Gleichgewichtszustand für den Nanodraht bestimmen. Ebenso ist es möglich die Höhe der Barriere zu ermitteln, um eine zyklische Bewegung der Elektronen zu erreichen. Im Umkehrschluss erlauben diese Parameter einen Rückschluss auf die Art und die Ausdehnung der Störung der Kristallstruktur zu ermitteln.

Unabhängig von der Festlegung auf Galliumarsenid als Materialsystem, wie in dieser Arbeit, eignet sich das Verfahren zur Charakterisierung aller optisch aktiven eindimensionalen Systeme. Durch den Aufbau einer materialspezifischen Datenbank für die Ausprägung der charakteristischen Züge in der numerischen Simulation in Abhängigkeit der eingesetzten Wertetupel ist es möglich, direkt mit der Erfassung des Signalverlaufs im Experiment die Eigenschaften des Ladungsträgersystems zu bestimmen und eventuelle Störstellen im Material zu identifizieren. Lediglich die zur Verfügung stehende HF-Leistung zur Anregung der AOFW setzt eine untere Grenze für die Beweglichkeit des Ladungsträgersystems.

Mit der Analyse und Charakterisierung der Eigenschaften des Kerns der Kern/Mantel-Nanodrähte unter dem Einfluss der AOFW bei der Anwesenheit von Störstellen im eindimensionalen Kanal, ergibt sich ein schlüssiges Bild der Dynamik beim Transport der Ladungsträger im elektrischen Feld der AOFW. Durch den linearen Auf-

bau ermöglicht die Invertierung der strukturellen Zusammensetzung der Nanodrähte die Möglichkeit, gezielt GaAs-Quantenpunkte mit Zinkblende-Modifikation in die Wurtzit-Matrix des Kerns einzubetten [APL10]. Dies gelingt ebenso durch die Inkorporation von Fremdatomen wie Indium, wodurch sich so auch in Nanodrähten mit der Zinkblende-Modifikation des Kerns eine Absenkung der Bandkante erreichen lässt [HGCB09].

Durch die Optimierung der Synthese von Nanodrähten unter Arsen-reichen Wachstumsbedingungen ist es weiter möglich, auch in radialer Richtung eine Funktionalisierung während dem Wachstum zu erreichen. Als Demonstration der Flexibilität beim Einsatz von akustischen Oberflächenwellen bei der Analyse von komplexen Systemen, folgt als abschließender Abschnitt ein Ausblick auf aktuelle Untersuchungen von mehrlagigen GaAs-Nanodrähten inklusive der selektive Manipulation der PL-Emission.

11.2 Vergrößerung der Funktionalität der Nanodrähte durch radial mehrlagigen Aufbau

Mit der Erweiterung des radialen Schichtaufbaus der Nanodrähte durch die Inkorporation einer zusätzlichen dünnen GaAs-Schicht im $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Mantel, kommt es auf Grund der erzeugten Typ-I Bandkantenmodulation in radialer Richtung zur Bildung eines Quantentopfs der die Ausdehnung der GaAs-Schicht besitzt, wie in Abbildung 11.1 a) in grün dargestellt. Die Inkorporation dieser GaAs-Zwischenschicht lässt sich während dem radialen $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Wachstumsprozess erreichen, in dem die Nukleation unterbrochen und im Anschluss ohne Al-Zusatz im Fluss der Edukte fortgesetzt wird. Nach Erreichen der gewünschten epitaktisch aufgewachsenen Schichtstärke von GaAs wird erneut das Wachstum unterbrochen und es folgt das zweite Aufwachsen einer radialen $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Schicht, wie in Abbildung 11.1 a) zusammen mit den eingesetzten Schichtstärken dargestellt. Auf Grund des inkorporierten Aluminium als ternärer Partner des Arsenids, bildet eine abschließende Schicht aus GaAs eine Oxidationsbarriere, wie bereits in Kapitel 5.1 für Kern/Mantel-Nanodrähte eingesetzt.

Die aus der Integration eines Quantentopfs mit einer Dicke von 5, 3 und 2 nm resultierenden PL-Spektren sind in Abbildung 11.1 b) zusammengefasst.

In den PL-Spektren, welche bei gepulster Anregung mit einer Leistung des Lasers von $P_{\text{Laser}} = 200\text{nW}$ aufgenommenen sind, zeigt sich eine dominante PL-Emission bei der Übergangsenergie des freien Exzitons in GaAs von $E_{G,ZB} = 1,515\text{eV}$. Dieses Maximum der Emission bei $\lambda = 818,4\text{nm}$ ist bei alle drei untersuchten Chargen der Nanodrähte vorhanden und entspringt dem GaAs-Kern. Da die Energiedifferenz E_G exakt dem Übergang im Volumenkristall von GaAs in der Zinkblende-Struktur entspricht, lässt sich von einer niedrigen Rate von Zwillingdefekten oder Wurtzit-Segmenten im Kern ausgehen [HCBR11]. Der zweite Emissionspeak im Spektrum rührt aus der Photolumineszenz des Quantentopfs her und ist mit abnehmender Dicke des GaAs-Films zu kürzeren Wellenlängen verschoben. Gleichzeitig kommt es mit abnehmender Dicke zu einem Abfall der PL-Intensität. Dies hat zum einen

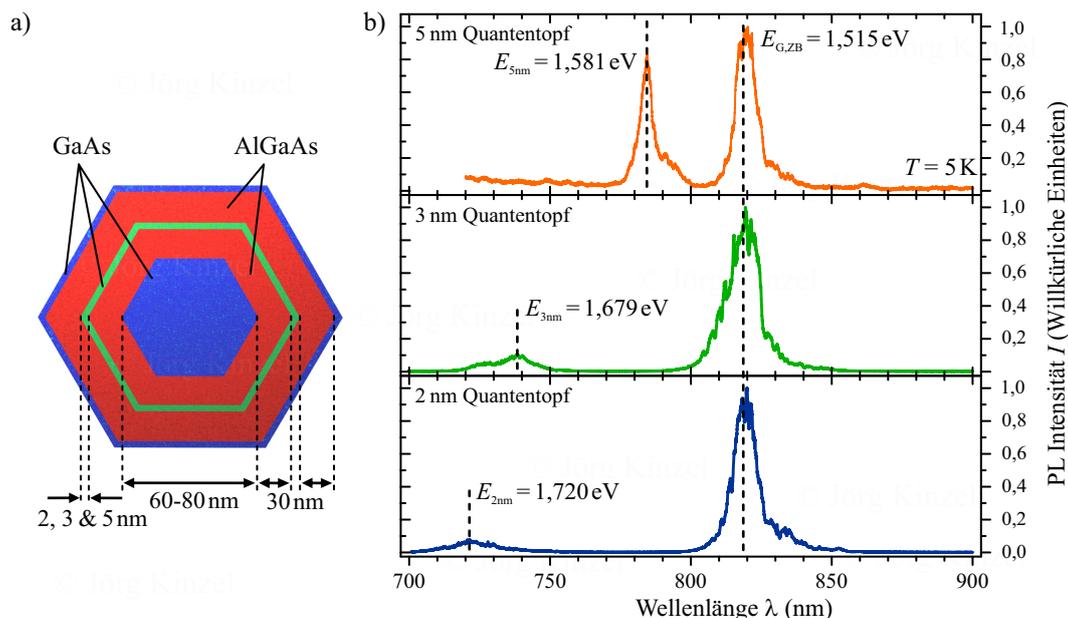


Abbildung 11.1: Charakteristika der Kern/Mantel-Nanodrähte mit radialem Quantentopf. a) Schematische Darstellung des radial heterogenen Aufbaus aus GaAs-Kern (blau) sowie $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}/\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Hülle mit eingebettetem GaAs-Quantentopf (grün). b) Typische Emissionsspektren der untersuchten Nanodrähte mit variierender Breite des Quantentopfs von oben nach unten 5 nm (Draht H), 3 nm (Draht I) sowie 2 nm (Draht J). Die zugehörige PL-Emission der unterschiedlich ausgedehnten Quantentöpfe zeigt sich zu kürzeren Wellenlängen verschoben und mit abnehmender Intensität.

seine Ursache im verringerten Volumen der GaAs-Schicht zur Absorption der Photonen aus dem Anregungspuls, was direkt die Reemission verringert. Zum anderen ergibt sich im endlichen Potenzialtopf auf Grund der geringeren effektiven Masse der Elektronen in $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ mit $m_{e,\text{AlGaAs}}^* = 0,0879 \cdot m_0$ gegenüber der der Löcher $m_{\text{hh},\text{AlGaAs}}^* = 0,585 \cdot m_0$ ein unterschiedlich starkes Eindringen der zugehörigen Wellenfunktionen in die Barriere des Potenzialtopfs [LRS99]. Dies führt mit abnehmender Breite des Potenzialtopfs zu einer Verlagerung der Wellenfunktion in die Barriere, wodurch der Überlapp im Quantentopf zur strahlenden Rekombination weiter reduziert wird.

Vergleicht man die ermittelten Übergangsenergien mit dem erwarteten Verhalten aus der numerischer Lösung des Potenzialtopfs mit endlich hoher Barriere, so ergibt sich der in Abbildung 11.2 in hellblau dargestellte Verlauf.

Dabei zeigt sich, dass sich die Größe der Bandlücke für eine steigende Breite des Potenzialtopfs der intrinsischen GaAs-Bandlücke mit $E_{\text{g,GaAs}} = 1,519 \text{ eV}$ annähert, wie in der schematischen Darstellung der Typ-I Bandkantenmodulation zu sehen.

Mit abnehmender Breite des Potenzialtopfs r_{QW} kommt es zu einem Anstieg der Bandlücke, welche sich an den Wert von $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ mit $E_{\text{g},\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}} = 1,937 \text{ eV}$ angleicht.

Die im Experiment beobachteten Bereiche der PL-Emission der Nanodrähte mit der Breite des Quantentopfs von 5, 3 und 2 nm sind in rot eingezeichnet. Dabei folgen die

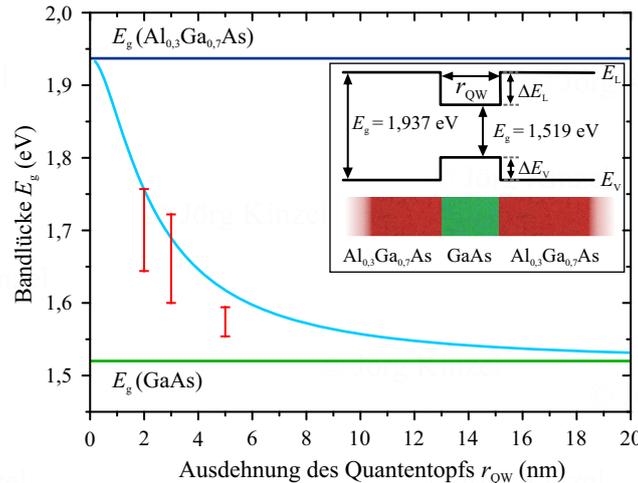


Abbildung 11.2: Durch Typ-I Bandkantenmodulation numerisch erwartete Bandlücke E_g (hellblau) eines endlichen GaAs-Potenzialtopfs der Breite r_{QW} in einer $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Barriere. Der experimentell beobachteten Emissionsbereiche der untersuchten Nanodrähte H-J mit 5, 3 und 2 nm dickem Potenzialtopf ist rot dargestellt.

Übergangsenergien dem numerisch erwarteten Trend, liegen jedoch insgesamt systematisch unter diesem.

Ein Verschiebung zu kleineren Werten im Bereich weniger meV lässt sich durch die in der numerischen Lösung nicht beachtete Exziton-Bindungsenergie erklären. Die beobachtete Abweichung von $\Delta E_g = 30$ bis 40 meV deutet jedoch auf eine durchgängige Vergrößerung des Radius der GaAs-Schicht hin, wodurch sich die Bandlücke E_g zu kleinere Werten verschiebt. Dies wird durch die Tatsache gestützt, dass der Gesamtradius der Nanodrähte dieses Typs größer ausfällt, als in der Summe der Einzelteile erwartet. Andererseits führt eine niedrigere Aluminium-Anteil $x \leq 0,3$ in der Barriere zu einer Verringerung der Bandlücke von $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ und somit zu einer Annäherung an die erfassten Messwerte [VMRM01].

Beide Möglichkeiten lassen sich durch zusätzliche materialwissenschaftliche Untersuchungen wie TEM-Analysen an Dünnschnitten des Querschnitts des Nanodrahts und energiedispersiver Röntgenanalyse zur Elementbestimmung weiter verfolgen. Da das Augenmerk dieser Arbeit jedoch auf der Kontrolle der für die PL-Emission verantwortlichen Elektron-Loch-Paare gerichtet ist, wird zum Abschluss das Verhalten der einzelnen Ladungsträgersysteme in einem einzigen Nanodraht unter dem Einfluss einer AOFW untersucht.

Exemplarisch ist in Abbildung 11.3 die PL-Intensität von Nanodraht K mit einem 5 nm Quantentopf in Abhängigkeit der angelegten HF-Leistung ohne Kopplung der Phasenlage der Anregung dargestellt.

Vergleicht man die in Abbildung 11.3 a) auftretenden Emissionsspektren in der Falschfarbendarstellung mit der Messung in Abbildung 11.1 b), so ist festzustellen, dass das aus dem Quantentopf stammende PL-Signal ein zusätzliches Emissionsmaximum bei $\lambda = (793 \pm 1)$ nm aufweist. Gleichzeitig zeigt sich auch bei der Untersuchung der mehrlagigen Nanodrähte das gesteigerte Auflösungsvermögen des 0,75 m-Spektrometers im nahen Infrarot Bereich.

Somit ergeben sich am untersuchten Nanodraht K drei Hauptkomponenten des detek-

tierten PL-Spektrums, deren Ursprünge in der schematischen Darstellung des mehrlagigen Nanodrahts in Abbildung 11.3 b) als farbige Punkte markiert sind. Dazu gehört die Emission bei $\lambda = (815 \pm 5)$ nm, welche dem GaAs-Kern zuzurechnen ist (rot). Weiter die bereits in Abbildung 11.1 b) beobachtete Emission bei $\lambda = (784 \pm 3)$ nm, welche dem radialen Quantentopf mit einer Breite von 5 nm zugeschrieben werden kann (grün). Der um 9 nm zu höheren Wellenlängen verschobene Zusatzpeak bei $\lambda = (793 \pm 2)$ nm hat seinen Ursprung in den Ecksegmenten des Quantenfilms (blau). Aus geometrischen Überlegung besitzen die Eckpunkte mit $r_{\text{QW}} = 5,8$ nm eine größere Ausdehnung in radialer Richtung, was zu einer Absenkung der Übergangsenergie in diesem Bereich führt. Dies deckt sich mit dem in Abbildung 11.2 angetragenen Verlauf der Bandlücke, welche für eine Energiedifferenz von $\Delta E_g = 19$ meV eine Ausdehnung des Quantentopfs von 6 nm erwarten lässt. Als Folge dieser Energieabsenkung bildet sich ein eindimensionales System entlang dem Nanodraht in den Ecksegmenten aus [FRZ13].

Die Reaktion der einzelnen Komponenten der PL-Emission auf eine AOFW mit steigender HF-Leistung in paralleler Konfiguration ist in der Falschfarbendarstellung in Abbildung 11.3 a) zu erkennen. Dabei zeigt sich sowohl für den Kern als auch für die Komponenten des Quantentopfs ein stetiger Abfall der PL-Emission bei ansteigender HF-Leistung. Ab einer Leistung von $P_{\text{HF}} = 22$ dBm ist von keiner Komponente eine Photolumineszenz über dem Untergrundrauschen der Detektion zu erkennen. Dies entspricht einer vollständigen Dissoziation und räumlichen Separation der Elektron-Loch-Paare in der Typ-II Bandkantenmodulation für alle drei Rekombinationskanäle.

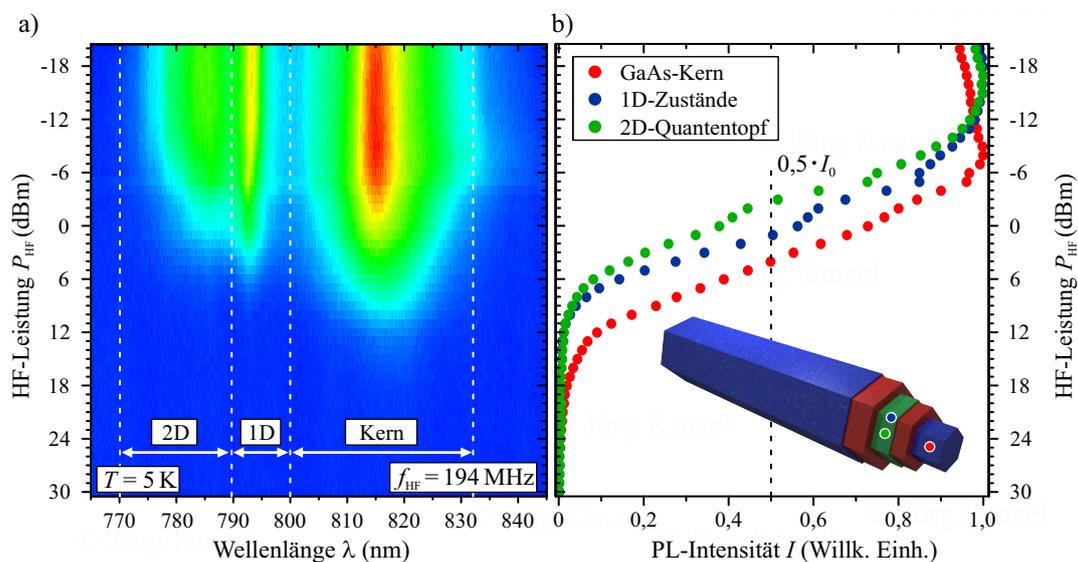


Abbildung 11.3: Leistungsabhängigkeit der Anteile der Photolumineszenz von Nanodraht K mit 5 nm Quantentopf unter dem Einfluss einer AOFW und ohne Phasenkopplung des Anregungslasers. a) Falschfarbendarstellung der Unterdrückung der PL-Emission im Spektrum bei ansteigender HF-Leistung P_{HF} am Schallwandler. b) Vergleich des Verhaltens der Unterdrückung der einzelnen Anteile vom GaAs-Kern (rot), 2D-Quantentopf (grün) und 1D-Zuständen der Eckkanäle (blau). Die Lokalisation der Emissionszentren am Nanodraht ist durch Punkte in der schematischen Darstellung markiert.

Um das Einsetzen und den Verlauf der Unterdrückung der Beiträge zu quantifizieren, ist in Abbildung 11.3 b) die integrierte und auf jeden Kanal separat normierte PL-Intensität dargestellt. Die Integrationsgrenzen entsprechen dabei den in der Falschfarbendarstellung eingezeichneten Bereichen.

Hierbei zeigt sich analog dem Verhalten der Kern/Mantel-Nanodrähte in Kapitel 8.2, bei kleinen HF-Leistungen unterhalb von -4 dBm ein Anstieg der PL-Intensität für den in rot dargestellten GaAs-Kern. Dieser beruht auf der Reduzierung der ungehinderten Diffusion durch Konzentration der Ladungsträger am Anregungspunkt, sodass der vergrößerte Überlapp der Elektron-Loch-Paare zu einer Erhöhung der Rekombinationsrate führt. Bei weiter steigender HF-Leistung kommt es durch die einsetzende Ladungsträgerseparation und dem sukzessiven Transport zu einer kontinuierlichen Abnahme der PL-Emission, bis die Emission des Kern bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 22$ dBm im Detektorrauschen verschwindet.

Für die Photolumineszenz aus dem in grün dargestellten radialen Quantentopf zeigt sich ein ähnliches Verhalten, wobei der Einsatzpunkt der Ladungsträgerseparation zu einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = -15$ dBm verschoben ist sowie die vollständige Unterdrückung dementsprechend zur niedrigeren HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 15$ dBm. Dazwischen ist mit der etwas größeren Steigung des Abfalls der PL-Emission des Quantentopfs eine leichte Aufspaltung des Verhaltens der Unterdrückung zu beobachten, welche sich bei niedrigerer PL-Intensität jedoch wieder angleicht.

Vergleicht man die HF-Leistungen bei welcher die PL-Intensität auf die Hälfte des Ausgangswerts abgefallen ist, so ist dies für den GaAs-Kern bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 4$ dBm der Fall. Hierauf folgen die eindimensionalen Zustände der Ecksegmente mit $P_{\text{HF}} = 1$ dBm und die des Quantentopfs bei $P_{\text{HF}} = -3$ dBm. Für den Abfall der PL-Intensität auf die Hälfte des maximalen Werts, ist aus der Analyse der Leistungs- und Phasenabhängigkeit der PL-Unterdrückung anhand der Kern/Mantel-Nanodrähte in Abbildung 8.2 und auch 10.1 bekannt, dass an diesem Punkt ein effektiver Transport der Elektronen in der sich ausbreitenden Typ-II Bandkantenmodulation der AOFW ursächlich ist. Zwar lässt sich anhand der Erfassung des PL-Signals in Abhängigkeit der HF-Leistung, ohne die dazugehörige phasengekoppelte Messreihe, keine absolute Bestimmung der Beweglichkeiten $\mu_{e,h}$ der Elektronen und Löcher anhand der Charakteristika aus der numerischen Simulation der Ladungsträgerdynamik für die jeweiligen Systeme durchführen, auf Grund der vergleichbaren Wachstumsparameter des Kerns und des ersten $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Mantels der mehrlagigen Nanodrähte mit denen der Kern/Mantel-Nanodrähte ist jedoch von einer vergleichbaren Beweglichkeit der Elektronen von $\mu_e = (500_{-250}^{+500}) \text{ cm}^2/\text{Vs}$ auszugehen.

Zusammen mit den zur Halbierung der PL-Intensität nötigen Differenzen der HF-Leistung, lässt sich anhand der Kalibrierung der elektrischen Feldstärke der AOFW für das YZ-LiNbO_{3-x} in Diagramm 9.7 eine Aussage der Beweglichkeit der Elektronen im Quantentopf treffen. Aus der Adaptierung ergibt sich bei einer der Differenz der HF-Leistung von $\Delta P_{\text{HF}} = 3$ dB zwischen Kern und eindimensionalen Zuständen ein Anstieg der zu erwarteten Beweglichkeit auf $\mu_{e,1D} = 700 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ für die eindimensionalen Zustände in den Ecksegmenten sowie $\mu_{e,2D} = 1000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ bei der weiteren Verringerung der nötigen HF-Leistung um $\Delta P_{\text{HF}} = 4$ dB für die Elektronen im Quantentopf.

Die sich aus der Kalibrierkurve ergebende Reihenfolge ist ebenso im Einklang mit Gleichung (9.1), welche den Übergangspunkt von dem am Anregungspunkt remanen-

ten Verhalten der Ladungsträger in das Transportregime in Abhängigkeit der Feldstärke mit $E_{\text{AOFW}} \propto P_{\text{HF}}^2$ beschreibt.

Bei dieser Abschätzung sind mögliche Abschirmungseffekte durch die erzeugten Ladungsträger im Mantel und im Kern auf die Manipulation durch das elektrische Feld der AOFW außer Acht gelassen [SRJ98]. Um analog Abschnitt 9.4 eine exakte Aussage über die Beweglichkeit von Elektronen und Löchern treffen zu können, ist es nötig, die Dynamik des einsetzenden Transport der unterschiedlichen Ladungsträgersysteme durch phasenaufgelöste Messungen bei starrer Kopplung der Anregungsphase zu erfassen und den eventuellen Abschirmungseffekt der Ladungsträger in der äußeren GaAs-Schicht durch eine identische Referenzcharge der Nanodrähte ohne Quantentopf zu quantifizieren.

Davon ungeachtet gelingt es die unterschiedlichen Ladungsträgersysteme von einander entkoppelt zu untersuchen und mit nur einer einzigen äußeren Kraft in Form des elektrischen Felds der AOFW zu kontrollieren. Durch eine Erweiterung der Anzahl der alternierenden Mantelschichten um den Kern ist es mit gleichzeitiger Variation der radialen Weite der Quantentöpfe r_{QW} möglich, die Übergangsenergie einzelner Schichten selektiv der Anforderung anzupassen [HAS09]. Eine gleichzeitige Untersuchung der unterschiedlichen Elektronensystemen durch selektive elektrische Kontaktierung ist auf Grund der geringen Ausdehnungen der Schichten nicht realisierbar. Durch die Inkorporation von Modulationsdotierungen ist es ferner in mehrlagigen Nanodrähten bereits gelungen, kontrolliert zwei- und eindimensionale Elektronengase zu erzeugen welche unabhängig vom GaAs-Kern ein Beweglichkeit von $\mu_e = 50000 \text{cm}^2/\text{Vs}$ aufweisen [FRZ13].

Diese rasche Entwicklung eines Baukastensystems für GaAs-Nanodrähte wird ergänzt durch das Auftreten von Quantenpunkt-artigen Emissionszentren in den Ecksegmenten des Nanodrahts [HFG13]. Deren Verhalten unter dem Einfluss einer akustischen Oberflächenwelle ist Gegenstand aktueller und zukünftiger Untersuchungen [WKS14, WSK14].

Somit bieten Nanodrähte mit ihrem zunächst eindimensional erscheinenden Charakter das Potenzial in einem System die Eigenschaften von zwei- und eindimensionalen Elektronengasen mit denen von nulldimensionalen Quantenpunkten zu kombinieren, was zuvor nur an planaren Strukturen mit entsprechendem Ressourcenverbrauch denkbar war.

Diese hohe technische Flexibilität ermöglicht die Realisation von Einzelphotonenquelle [HMMB12] oder eines optisch gepumpten IR-Lasers aus einem einzigen Nanodraht [MRS13]. Umgekehrt kann die, auf Grund des großen Oberflächen-zu-Volumen-Verhältnis, gesteigerte optische Absorption in Form von zu einer pin-Struktur kombinierten Nanodrähten genutzt werden, die Umwandlungseffizienz von Solarzellen durch den reduzierten Flächenverbrauch zu steigern und den Weg zu einer neuen Generation regenerativen Energiegewinnung zu ebnen [KJH13].

Anhang

Parameter der Probenpräparation

Prozessschritt	Parameter
Substratreinigung grob	Spülen mit Aceton aus Spritzflasche Ultraschallbad 100% ¹ Leistung, in Aceton 10 min Nachspülen mit Isopropanol aus Spritzflasche
Substratreinigung fein	Ultraschallbad 100% Leistung, in Aceton 10 min Nachspülen mit Isopropanol aus Spritzflasche Trockenblasen mit N ₂
Ausheizen	Heizplatte 180 °C 3 min, anschließendes Auskühlen
Belackern	500 U/min, 5 s, 3 Tropfen Lack aus Glaspipette 5000 U/min, 30 s, 3 Tropfen Lack zu Beginn
Ausheizen	Heizplatte 180 °C, 3 min
Elektronenstrahl- belichtung	Aperturblende 30 µm, ETH 30 kV, Schreibfeldlänge 400 µm, Schrittgröße 6,3 nm, Strahlgeschwindigkeit <8 mm/s
Entwickeln (Schwenken in Lösung)	n-Amylacetat:Methylisobutylketon 1:1, 60 s Methylisobutylketon 30 s Isopropanol 30 s, Trockenblasen N ₂ Sauerstoffplasma 200 W, 500 mTorr, 14 s
Metallisierung (wassergekühlt)	Titan (Haftvermittler): 10 nm, Rate ~0,05 nm/s Aluminium (Schallwandler): 60 nm, Rate ≤0,1 nm/s Gold (Markierungen): 50 nm, Rate ~0,07 nm/s
Ablösen der Opferschicht (senkrechter Probenhalter)	PG-Remover >4 h Ultraschallbad 20 – 30% Leistung, in PG-Remover 2 – 5 min Aceton Bad 30 s Abspülen mit Isopropanol, Trockenblasen mit N ₂

¹Ultraschallbad: Bandelin Digital Sonorex DK 102 P

Wachstumsparameter der Nanodraht Chargen

Untersuchte Probe	Typ I: Intrinsisch GaAs	Typ II: GaAs/AlGaAs Kern/Mantel	Typ III: GaAs/AlGaAs Kern/Mantel mit Quantentopf
Nanodraht Charge	02-26-09.1	12-10-10.2	02-07-13.2, 02-08-13.1 & 2
Radii der Schichten im Nanodraht [nm] ²	GaAs: 25-60	GaAs Kern: 30-40 AlGaAs Mantel: 24	GaAs Kern: 30-40 AlGaAs Mantel: 30 GaAs Quantentopf: 2, 3 & 5 AlGaAs Mantel: 30
Substrat	Si(111)	Si(111)	Si(111)
Nukleationsmaske	SiO ₂ gesputtert	SiO ₂ thermisch	SiO ₂ thermisch mit NIL ³
Substrat Temperatur Kernwachstum [°C]	640	630	610
Substrat Temperatur Mantelwachstum [°C]	-	465	490
As Partialdruck Kern [10 ⁻⁵ mBar]	0,218	0,5	0,19
As Partialdruck Mantel [10 ⁻⁵ mBar]	-	3,6	3,5
As Fluss Kern [A/s]	1,18	2,71	1,03
As Fluss Mantel [A/s]	-	19,5	19,0
Ga Fluss Kern [A/s]	0,22	0,25	0,25
Ga Fluss Mantel [A/s]	-	0,25	1,7
Al Fluss Mantel [A/s]	-	0,107	0,73

²Die Al_{0,3}Ga_{0,7}As-Schicht wird im Anschluss mit 10nm GaAs umhüllt, um eine Oxidation des Aluminium-Anteils zu unterdrücken [RFD13]

³Nano Imprint Lithography, Akronym - Nanoprägelithografie [HFV12]

Kristallschnitte und verwendete Nanodrähte

	Probentyp-I	Probentyp-II	Probentyp-III
Nanodraht Typ	GaAs intrinsisch	GaAs/AlGaAs Kern/Mantel	GaAs/AlGaAs mit Quantentopf
Nanodraht Charge	02-26-09.1	12-10-10.2	02-07-13.2 02-08-13.1 & 2
Proben Name	JBK140	JBK153, JBK154	JBK158 JBK159, JBK156
Übertragungsart	Lösung	Lösung	mechanisch
LiNbO ₃ - Kristallschnitt	128° YX	YZ	YZ
Schallwandler- typ	Einzel Elektroden	Fingerpaar Elektroden	Fingerpaar Elektroden
Schallwandler- periode [µm]	17,5/5,5 ⁴	17,8	17,8
Tasterhältnis (Finger:Spalt)	1:3,4/1:1,3 ⁴	1:1	1:1
Elektrodenpaare	35/40 ⁴	35	35

Zuordnung der untersuchten Nanodrähte

Nano- draht	Probe	Draht- typ	Position	Orientierung auf LiNbO ₃
A	JBK140	I	D12D	X
B	JBK140	I	D14J	⊥ X
C	JBK154	II	B06F	Z
D	JBK154	II	B09AA ⁵	Z
E	JBK153	II	C08J	Z
F	JBK153	II	A10C	Z
G	JBK153	II	B03X ⁶	Z
H	JBK156	III	B07K	Z
I	JBK159	III	A15K	Z
J	JBK158	III	C09O	Z
K	JBK156	III	D09AA ⁷	Z

Parameter zur numerischen Simulation der Ladungsträgerdynamik

AOFW-Wellenlänge λ_{AOFW} [μm]	17,5
Schallgeschwindigkeit c_{Substrat} [m/s]	3500
Permittivität GaAs $\epsilon_{\text{r, GaAs}}$	12,5
Laserpuls Wiederholrate	$10 \cdot T_{\text{AOFW}}$
Simulationszyklus	$50 \cdot T_{\text{AOFW}}$
Beweglichkeiten μ [cm^2/Vs]	
Elektron μ_{e}	5000, 500, 250, 50
Loch μ_{h}	500, 50, 25, 5
Temperatur [K]	20
Exziton Bildungsrate c	0,01
Direkte Rekombinationsrate c_{BB} [m^2/s]	$1 \cdot 10^{-6}$
Exziton Lebensdauer τ_{S} [ns]	1,4
Exziton Bindungsenergie E_{X} [meV]	10
Exziton laterale Ausdehnung a_{X} [m]	$1 \cdot 10^{-9}$
Exziton Diffusionskoeffizient D_{X} [m^2/s]	$2,2 \cdot 10^{-4}$
Breite der Barriere l [μm]	1
Höhe der Barriere ΔE [meV]	30 - 130

⁴Durch den Einsatz von Einzelelektroden Interdigital Schallwandlern ist zur Anregung einer Oberflächenwelle mit unterschiedlicher Frequenz jeweils ein eigener Schallwandler erforderlich.

⁵Nanodraht D befindet sich $100\mu\text{m}$ nach links aus dem Kreuzungsbereich der Schallwandler heraus verschoben, jedoch vollständig im Ausbreitungspfad der zur Z-Richtung parallel laufenden Oberflächenwelle.

⁶Nanodraht G befindet sich $60\mu\text{m}$ rechts außerhalb des Kreuzungsbereichs der Schallwandler, jedoch ebenso wie Nanodraht C vollständig im Ausbreitungspfad der zur Z-Richtung parallel laufenden Oberflächenwelle.

⁷Nanodraht K befindet sich $60\mu\text{m}$ links neben dem Kreuzungsbereich der Schallwandler, jedoch wie bei den vorherigen außerhalb liegenden Nanodrähten vollständig im Ausbreitungspfad der zur Z-Richtung parallel laufenden Oberflächenwelle.

Literaturverzeichnis

- [Ada85] ADACHI, S.: *GaAs, AlAs, and $Al_xGa_{1-x}As$: Material parameters for use in research and device applications*. Journal of Applied Physics, 58(3):R1–R29, 1985.
- [APL10] AKOPIAN, N., G. PATRIARCHE, L. LIU, J.-C. HARMAND und V. ZWILLER: *Crystal Phase Quantum Dots*. Nano Letters, 10:1198–1201, 2010.
- [ASH01] ALSINA, F., P. V. SANTOS, R. HEY, A. GARCÍA-CRISTÓBAL und A. CANTARERO: *Dynamic carrier distribution in quantum wells modulated by surface acoustic waves*. Phys. Rev. B, 64:041304, Jun 2001.
- [ASS03] ALSINA, F., P. V. SANTOS, H.-P. SCHÖNHERR, R. NÖTZEL und K. H. PLOOG: *Real-time dynamics of the acoustically induced carrier transport in GaAs quantum wires*. Phys. Rev. B, 67:161305, 2003.
- [BJS99] BORDUI, P. F., D. H. JUNDT, E. M. STANDIFER, R. G. NORWOOD, R. L. SAWIN und J. D. GALIPEAU: *Chemically reduced lithium niobate single crystals: Processing, properties and improved surface acoustic wave device fabrication and performance*. Journal of Applied Physics, 85(7):3766–3769, 1999.
- [BL76] BELL, D.L.T., JR. und R. C M LI: *Surface-acoustic-wave resonators*. Proceedings of the IEEE, 64:711–721, 1976.
- [Bre13] BRENDDEL, J. Private Email Kommunikation, 2013. Roditi International Corporation Ltd.
- [CBJ11] CAROFF, P., J. BOLINSSON und J. JOHANSSON: *Crystal Phases in III-V Nanowires: From Random Toward Engineered Polytypism*. Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of, 17(4):829–846, 2011.
- [CC76] CHELIKOWSKY, J. R. und M. L. COHEN: *Nonlocal pseudopotential calculations for the electronic structure of eleven diamond and zincblende semiconductors*. Phys. Rev. B, 14:556–582, 1976.
- [CDJ09] CAROFF, P., K. A. DICK, J. JOHANSSON, M. E. MESSING, K. DEPERT und L. SAMUELSON: *Controlled polytypic and twin-plane superlattices in iii-v nanowires*. Nat Nano, 4:50–55, 2009.
- [CDS10] CIRLIN, G.E., V.G. DUBROVSKII, Y.B. SAMSONENKO, A.D. BOURAVLEUV, K. DUROSE, Y.Y. PROSKURYAKOV, B. MENDES, L. BOWEN, M.A. KALITTEVSKI, R.A. ABRAM und D. ZEZE: *Self-catalyzed, pure zincblende GaAs nanowires grown on Si(111) by molecular beam epitaxy*. Physical review B., 82(3):035302, July 2010.

- [CSF08] COLOMBO, C., D. SPIRKOSKA, M. FRIMMER, G. ABSTREITER und A. FONTCUBERTA I MORRAL: *Ga-assisted catalyst-free growth mechanism of GaAs nanowires by molecular beam epitaxy*. Phys. Rev. B, 77:155326, 2008.
- [CWPL01] CUI, Y., Q. WEI, H. PARK und C. M. LIEBER: *Nanowire Nanosensors for Highly Sensitive and Selective Detection of Biological and Chemical Species*. Science, 293(5533):1289–1292, 2001.
- [Dat86] DATTA, SUPRIYO: *Surface Acoustic Wave Devices*. Prince-Hall, 1986.
- [DHB10] DEMICHEL, O., M. HEISS, J. BLEUSE, H. MARIETTE und A. FONTCUBERTA I MORRAL: *Impact of surfaces on the optical properties of GaAs nanowires*. Applied Physics Letters, 97:201907, 2010.
- [DR00] DIEULESAINT, E. und D. ROYER: *Elastic Waves in Solids*. Springer, 2000.
- [DWL00] DUAN, X., J. WANG und C. M. LIEBER: *Synthesis and optical properties of gallium arsenide nanowires*. Applied Physics Letters, 76(9):1116–1118, Feb 2000.
- [Far77] FARNELL, G. W.: *Surface wave filters: design, construction, and use*. A Wiley-Interscience publication, 1977.
- [Fox10] FOX, MARK: *Optical Properties of Solids*. Oxford University Press, 2010.
- [FRZ13] FUNK, S., M. ROYO, I. ZARDO, D. RUDOLPH, S. MORKÖTTER, B. MAYER, J. BECKER, A. BECHTOLD, S. MATICH, M. DÖBLINGER, M. BICHLER, G. KOBLMÜLLER, J. J. FINLEY, A. BERTONI, G. GOLDONI und G. ABSTREITER: *High Mobility One- and Two-Dimensional Electron Systems in Nanowire-Based Quantum Heterostructures*. Nano Letters, 13(12):6189–6196, 2013.
- [GCCAS04] GARCÍA-CRISTÓBAL, A., A. CANTARERO, F. ALSINA und P. V. SANTOS: *Spatiotemporal carrier dynamics in quantum wells under surface acoustic waves*. Phys. Rev. B, 69:205301, May 2004.
- [GSG76] GAALEMA, STEPHEN D., RICHARD J. SCHWARTZ und ROBERT L. GUNSHOR: *Acoustic surface wave interaction charge-coupled device*. Applied Physics Letters, 29(2):82–83, 1976.
- [GT92] GIUGNI, S und T L TANSLEY: *Comment on the compositional dependence of bandgap in AlGaAs and band-edge discontinuities in AlGaAs-GaAs heterostructures*. Semiconductor Science and Technology, 7:1113, 1992.
- [Has00] HASHIMOTO, K.Y.: *Surface Acoustic Wave Devices in Telecommunications: Modelling and Simulation*. Springer, 2000.
- [HAS09] HEIGOLDT, M., J. ARBIOL, D. SPIRKOSKA, J. M. REBLED, S. CONESA-BOJ, G. ABSTREITER, F. PEIRO, J. R. MORANTE und A. FONTCUBERTA I MORRAL: *Long range epitaxial growth of prismatic heterostructures on the facets of catalyst-free GaAs nanowires*. Journal of Materials Chemistry, 19:840–848, 2009.

- [HCBR11] HEISS, M., S. CONESA-BOJ, J. REN, H.-H. TSENG, A. GALI, A. RUDOLPH, E. UCCELLI, F. PEIRÓ, J. R. MORANTE, D. SCHUH, E. REIGER, E. KAXIRAS, J. ARBIOL und A. FONTCUBERTA I MORRAL: *Direct correlation of crystal structure and optical properties in wurtzite/zinc-blende GaAs nanowire heterostructures*. Phys. Rev. B, 83:045303, 2011.
- [HFG13] HEISS, M., Y. FONTANA, A. GUSTAFSSON, G. WÜST, C. MAGEN, D. D. O'REGAN, J. W. LUO, B. KETTERER, S. CONESA-BOJ, A. V. KUHLMANN, J. HOUEL, E. RUSSO-AVERCHI, J. R. MORANTE, M. CANTONI, N. MARZARI, J. ARBIOL, A. ZUNGER, R. J. WARBURTON und A. FONTCUBERTA I MORRAL: *Self-assembled quantum dots in a nanowire system for quantum photonics*. Nature Materials, 12:439–444, 2013.
- [HFV12] HERTENBERGER, S., S. FUNK, K. VIZBARAS, A. YADAV, D. RUDOLPH, J. BECKER, S. BOLTE, M. DÖBLINGER, M. BICHLER, G. SCARPA, P. LUGLI, I. ZARDO, J. J. FINLEY, M.-C. AMANN, G. ABSTREITER und G. KOBLMÜLLER: *High compositional homogeneity in In-rich InGaAs nanowire arrays on nanoimprinted SiO₂/Si (111)*. Applied Physics Letters, 101(4):043116, 2012.
- [HGCB09] HEISS, M., A. GUSTAFSSON, S. CONESA-BOJ, F. PEIRÓ, J. RAMON MORANTE, G. ABSTREITER, J. ARBIOL, L. SAMUELSON und A. FONTCUBERTA I MORRAL: *Catalyst-free nanowires with axial In_xGa_{1-x}As/GaAs heterostructures*. Nanotechnology, 20:075603, 2009.
- [HKHO92] HARAGUCHI, K., T. KATSUYAMA, K. HIRUMA und K. OGAWA: *GaAs p-n junction formed in quantum wire crystals*. Applied Physics Letters, 60(6):745–747, 1992.
- [HL10] HESS, P. und A. M. LOMONOSOV: *Solitary surface acoustic waves and bulk solitons in nanosecond and picosecond laser ultrasonics*. Ultrasonics, 50:167–171, 2010.
- [HMH82] HOSKINS, M. J., H. MORKOÇ und B. J. HUNSINGER: *Charge transport by surface acoustic waves in GaAs*. Applied Physics Letters, 41(4):332–334, 1982.
- [HMMB12] HERNÁNDEZ-MÍNGUEZ, A., M. MÖLLER, S. BREUER, C. PFÜLLER, C. SOMASCHINI, S. LAZIC, O. BRANDT, A. GARCÍA-CRISTÓBAL, M. M. DE LIMA, A. CANTARERO, L. GEELHAAR, H. RIECHERT und P. V. SANTOS: *Acoustically Driven Photon Antibunching in Nanowires*. Nano Letters, 12:252–258, 2012.
- [HMZ09] HOANG, T. B., A. F. MOSES, H. L. ZHOU, D. L. DHEERAJ, B. O. FIMLAND und H. WEMAN: *Observation of free exciton photoluminescence emission from single wurtzite GaAs nanowires*. Applied Physics Letters, 94:133105, 2009.
- [HRB10] HERTENBERGER, S., D. RUDOLPH, M. BICHLER, J. J. FINLEY, G. ABSTREITER und G. KOBLMÜLLER: *Growth kinetics in position-controlled and catalyst-free InAs nanowire arrays on Si(111) grown by*

- selective area molecular beam epitaxy*. Journal of Applied Physics, 108:114316, 2010.
- [HRB11] HERTENBERGER, S., D. RUDOLPH, S. BOLTE, M. DÖBLINGER, M. BICHLER, D. SPIRKOSKA, J. J. FINLEY, G. ABSTREITER und G. KOBLMÜLLER: *Absence of vapor-liquid-solid growth during molecular beam epitaxy of self-induced InAs nanowires on Si*. Applied Physics Letters, 98:123114, 2011.
- [JB00] JEN, S. und R. BOBKOWSKI: *Black lithium niobate SAW device fabrication and performance evaluation*. In: *Ultrasonics Symposium, 2000 IEEE*, Band 1, Seiten 269–273 vol.1, 2000.
- [JDG13] JOYCE, H. J., C. J. DOCHERTY, Q. GAO, H. H. TAN, C. JAGADISH, J. LLOYD-HUGHES, L. M. HERZ und M. B. JOHNSTON: *Electronic properties of GaAs, InAs and InP nanowires studied by terahertz spectroscopy*. Nanotechnology, 24(21):214006, 2013.
- [JLP12] JAHN, U., J. LÄHNEMANN, C. PFÜLLER, O. BRANDT, S. BREUER, B. JENICHEN, M. RAMSTEINER, L. GEELHAAR und H. RIECHERT: *Luminescence of GaAs nanowires consisting of wurtzite and zinc-blende segments*. Phys. Rev. B, 85:045323, Jan 2012.
- [KJH13] KROGSTRUP, P., H. I. JØRGENSEN, M. HEISS, O. DEMICHEL, J. V. HOLM, M. AAGESEN, J. NYGARD und A. FONTCUBERTA I MORRAL: *Single-nanowire solar cells beyond the Shockley-Queisser limit*. Nature Photonics, 7(4):306–310, 2013.
- [KRB11] KINZEL, J. B., D. RUDOLPH, M. BICHLER, G. ABSTREITER, G. KOBLMÜLLER, J. J. FINLEY, A. WIXFORTH und H. J. KRENNER: *Directional and dynamic modulation of the optical emission of an individual GaAs nanowire using surface acoustic waves*. Nano Letters, 11:1512–1517, 2011.
- [KVS12] KRENNER, H. J., S. VÖLK, F. J. R. SCHÜLEIN, F. KNALL, A. WIXFORTH, D. REUTER, A. D. WIECK, H. KIM, T. A. TRUONG und P. M. PETROFF: *Surface acoustic wave controlled carrier injection into self-assembled quantum dots and quantum posts*. physica status solidi (c), 9(2):407–410, 2012.
- [LHZ03] LIM, H. S., J. D. HUANG, V. L. ZHANG, M. H. KUOK und S. C. NG: *Evaluation of acoustic physical constants of LiNbO₃ at hypersonic frequencies*. Journal of Applied Physics, 93(12):9703–9708, 2003.
- [LKR93] LEONARD, D., M. KRISHNAMURTHY, C. M. REAVES, S. P. DENBAARS und P. M. PETROFF: *Direct formation of quantum sized dots from uniform coherent islands of InGaAs on GaAs surfaces*. Applied Physics Letters, 63(23):3203–3205, 1993.
- [LOG11] LYSOV, A., M. OFFER, C. GUTSCHE, I. REGOLIN, S. TOPALOGLU, M. GELLER, W. PROST und F.-J. TEGUDE: *Optical properties of heavily doped GaAs nanowires and electroluminescent nanowire structures*. Nanotechnology, 22:085702, 2011.

- [LRS99] LEVINSHTEIN, M., S. RUMYANTSEV und M. SHUR: *Handbook Series on Semiconductor Parameters*. World Scientific Publishing, 1999.
- [MHMB12] MÖLLER, M., A. HERNÁNDEZ-MÍNGUEZ, S. BREUER, C. PÜLLER, O. BRANDT, JR DE LIMA, M., A.S CANTARERO, L. GEELHAAR, H. RIECHERT und P. SANTOS: *Polarized recombination of acoustically transported carriers in GaAs nanowires*. *Nanoscale Research Letters*, 7(1):1–5, 2012.
- [Mül06] MÜLLER, ULRICH: *Anorganische Strukturchemie*. Teubner Verlag, 2006.
- [MRS13] MAYER, B., D. RUDOLPH, J. SCHNELL, S. MORKÖTTER, J. WINNERL, J. TREU, K. MÜLLER, G. BRACHER, G. ABSTREITER, G. KOBLMÜLLER und J. J. FINLEY: *Lasing from individual GaAs-AlGaAs core-shell nanowires up to room temperature*. *Nature Communications*, 4:–, 2013.
- [MSHH13] MARIANI, G., A. C. SCOFIELD, C.-H. HUNG und D. L. HUFFAKER: *GaAs nanopillar-array solar cells employing in situ surface passivation*. *Nat Commun*, 4:1497, 2013.
- [NLS09] NAH, J., E.-S. LIU, D. SHAHRJERDI, K. M. VARAHRAMYAN, S. K. BANERJEE und E. TUTUC: *Realization of dual-gated Ge-Si_xGe_{1-x} core-shell nanowire field effect transistors with highly doped source and drain*. *Applied Physics Letters*, 94(6):063117, 2009.
- [NS78] NELSON, R. J. und R. G. SOBERS: *Minority-carrier lifetimes and internal quantum efficiency of surface-free GaAs*. *Journal of Applied Physics*, 49(12):6103–6108, 1978.
- [Per07] PERKINELMER OPTOELECTRONICS, Wenzel-Jaksch-Str. 31, Wiesbaden: *SPCM-AQRH Single Photon Counting Module*, 2007.
- [Pic13] PICOQUANT, Rudower Chausee 29, Berlin: *LDH Series*, 07 2013.
- [PJG09] PARKINSON, P., H. J. JOYCE, Q. GAO, H. H. TAN, X. ZHANG, J. ZOU, C. JAGADISH, L. M. HERZ und M. B. JOHNSTON: *Carrier Lifetime and Mobility Enhancement in Nearly Defect-Free Core-Shell Nanowires Measured Using Time-Resolved Terahertz Spectroscopy*. *Nano Letters*, 9(9):3349–3353, 2009. PMID: 19736975.
- [PW79] PARKER, T.E. und H. WICHANSKY: *Temperature compensated surface acoustic wave devices with SiO₂ film overlays*. *Journal of Applied Physics*, 50(3):1360–1369, 1979.
- [Ray85] RAYLEIGH, J. W. S.: *On Waves Propagated along the Plane Surface of an Elastic Solid*. *Proceedings of the London Mathematical Society*, 17:4–11, 1885.
- [RB74] REDFIELD, D. und W. J. BURKE: *Optical absorption edge of LiNbO₃*. *Journal of Applied Physics*, 45(10):4566–4571, 1974.
- [RFD13] RUDOLPH, D., S. FUNK, M. DÖBLINGER, S. MORKÖTTER, S. HERTENBERGER, L. SCHWEICKERT, J. BECKER, S. MATICH, M. BICHLER, D. SPIRKOSKA, I. ZARDO, J. J. FINLEY, G. ABSTREITER und

- G. KOBLMÜLLER: *Spontaneous Alloy Composition Ordering in GaAs-AlGaAs Core-Shell Nanowires*. Nano Letters, 13:1522–1527, 2013.
- [RHB11] RUDOLPH, D., S. HERTENBERGER, S. BOLTE, W. PAOSANGTHONG, D. SPIRKOSKA, M. DÖBLINGER, M. BICHLER, J. J. FINLEY, G. ABSTREITER und G. KOBLMÜLLER: *Direct Observation of a Noncatalytic Growth Regime for GaAs Nanowires*. Nano Letters, 11:3848–3854, 2011.
- [RKS06] ROTH, S. F., H. J. KRENNER, D. SCHUH, M. BICHLER und M. GRAYSON: *Vertical quantum wire realized with double cleaved-edge overgrowth*. Applied Physics Letters, 89:032102, 2006.
- [RSM13] RUDOLPH, D., L. SCHWEICKERT, S. MORKÖTTER, L. HANSCHKE, S. HERTENBERGER, M. BICHLER, G. KOBLMÜLLER, G. ABSTREITER und J. J. FINLEY: *Probing the trapping and thermal activation dynamics of excitons at single twin defects in GaAs-AlGaAs core-shell nanowires*. New Journal of Physics, 15(11):113032, 2013.
- [RSR10] RODDARO, S., E. STRAMBINI, L. ROMEO, V. PIAZZA, K. NILSSON, L. SAMUELSON und F. BELTRAM: *Charge pumping in InAs nanowires by surface acoustic waves*. Semiconductor Science and Technology, 25(2):024013, 2010.
- [RWR98] ROTTER, M., A. WIXFORTH, W. RUILE, D. BERNKLAU und H. RIECHERT: *Giant acoustoelectric effect in GaAs/LiNbO₃ hybrids*. Applied Physics Letters, 73(15):2128–2130, 1998.
- [RYL09] RYOU, J.-H., P.D. YODER, J. LIU, Z. LOCHNER, HYUNSOO K., S. CHOI, H.-J. KIM und R. D. DUPUIS: *Control of Quantum-Confined Stark Effect in InGaN-Based Quantum Wells*. Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of, 15(4):1080–1091, July 2009.
- [RZW97] ROCKE, C., S. ZIMMERMANN, A. WIXFORTH, J. P. KOTTHAUS, G. BÖHM und G. WEIMANN: *Acoustically Driven Storage of Light in a Quantum Well*. Phys. Rev. Lett., 78:4099–4102, 1997.
- [SAG09] SPIRKOSKA, D., J. ARBIOL, A. GUSTAFSSON, S. CONESA-BOJ, F. GLAS, I. ZARDO, M. HEIGOLDT, M. H. GASS, A. L. BLELOCH, S. ESTRADE, M. KANIBER, J. ROSSLER, F. PEIRO, J. R. MORANTE, G. ABSTREITER, L. SAMUELSON und A. FONTCUBERTA I MORRAL: *Structural and optical properties of high quality zinc-blende/wurtzite GaAs nanowire heterostructures*. Phys. Rev. B, 80:245325, 2009.
- [SAiM09] SPIRKOSKA, D., G. ABSTREITER und A. FONTCUBERTA I MORRAL: *GaAs nanowires and related prismatic heterostructures*. Semiconductor Science and Technology, 24:113001, 2009.
- [SHH12] STORM, K., F. HALVARDSSON, M. HEURLIN, D. LINDGREN, A. GUSTAFSSON, P. M. WU, B. MONEMAR und L. SAMUELSON: *Spatially resolved Hall effect measurement in a single semiconductor nanowire*. Nat Nano, 7:718–722, 2012.
- [Sin03] SINGH, JASPRIT: *Electronic and Optoelectronic Properties of Semiconductor Structures*. Cambridge University Press, 2003.

- [SPM12] SCHÜLEIN, F. J. R., J. PUSTIOWSKI, K. MÜLLER, M. BICHLER, G. KOBLMÜLLER, J. J. FINLEY, A. WIXFORTH und H. J. KRENNER: *Surface acoustic wave controlled charge dynamics in a thin InGaAs quantum well*. JETP Letters, 95:653, 2012.
- [SR03] SEIFERT, F. und G. RIHA: *Evolution der akustischen Oberflächenwellen-Bauelemente*. e&i Elektrotechnik und Informationstechnik, 120(3):79–90, 2003.
- [SRJ98] SANTOS, P. V., M. RAMSTEINER und F. JUNGNICHEL: *Spatially-resolved photoluminescence in GaAs surface acoustic wave structures*. Applied Physics Letters, 72:2099, 1998.
- [SS10] SANNA, S. und W. G. SCHMIDT: *Lithium niobate X-cut, Y-cut, and Z-cut surfaces from ab initio theory*. Phys. Rev. B, 81:214116, 2010.
- [SSG11] SANADA, H., T. SOGAWA, H. GOTOH, K. ONOMITSU, M. KOHDA, J. NITTA und P. V. SANTOS: *Acoustically Induced Spin-Orbit Interactions Revealed by Two-Dimensional Imaging of Spin Transport in GaAs*. Phys. Rev. Lett., 106:216602, May 2011.
- [Ste76] STEGEMAN, G. I.: *Optical Probing of Surface Waves and Surface Wave Devices*. Sonics and Ultrasonics, IEEE Transactions on, 23(1):33–63, 1976.
- [Str05] STROBL, CHRISTOPH JOSEF: *Mikro- und Nanofluidik auf piezoelektrischen Substraten*. Doktorarbeit, Ludwig-Maximilians-Universität München, 2005.
- [TPS09] THUNICH, S., L. PRECHTEL, D. SPIRKOSKA, G. ABSTREITER, A. FONTCUBERTA I MORRAL und A. W. HOLLEITNER: *Photocurrent and photoconductance properties of a GaAs nanowire*. Applied Physics Letters, 95:083111, 2009.
- [VKS11] VÖLK, S., F. KNALL, F. J. R. SCHÜLEIN, T. A. TRUONG, H. KIM, P. M. PETROFF, A. WIXFORTH und H. J. KRENNER: *Direct observation of dynamic surface acoustic wave controlled carrier injection into single quantum posts using phase-resolved optical spectroscopy*. Applied Physics Letters, 98(2):–, 2011.
- [VMRM01] VURGAFTMAN, I., J. R. MEYER und L. R. RAM-MOHAN: *Band parameters for III-V compound semiconductors and their alloys*. Journal of Applied Physics, 89(11):5815–5875, 2001.
- [Was05] WASER, R.: *Nanoelectronics and Information Technology*. Wiley-VCH, 2005.
- [WE64] WAGNER, R. S. und W. C. ELLIS: *VAPOR-LIQUID-SOLID MECHANISM OF SINGLE CRYSTAL GROWTH*. Applied Physics Letters, 4:89–90, 1964.
- [WERW07] WÜRSTLE, C., J. EBBECKE, M. E. REGLER und A. WIXFORTH: *Quantized current in carbon nanotube quantum dots by surface acoustic waves*. New Journal of Physics, 9(3):73, 2007.

- [Wes99] WEST, ANTHONY R.: *Basic Solid State Chemistry*. John Wiley & Sons, 1999.
- [WG85] WEIS, R.S. und T.K. GAYLORD: *Lithium niobate: Summary of physical properties and crystal structure*. Applied Physics A, 37(4):191–203, 1985.
- [WKS14] WEISS, M., J. B. KINZEL, F. J. R. SCHÜLEIN, M. HEIGL, D. RUDOLPH, S. MORKÖTTER, M. DÖBLINGER, M. BICHLER, G. ABSTREITER, J. J. FINLEY, G. KOBLMÜLLER, A. WIXFORTH und H. J. KRENNER: *Dynamic Acoustic Control of Individual Optically Active Quantum Dot-like Emission Centers in Heterostructure Nanowires*. Nano Letters, 14(5):2256–2264, 2014.
- [WS85] WEIMANN, G. und W. SCHLAPP: *Carrier concentration in modulation-doped AlGaAs-GaAs heterostructures*. Applied Physics A, 37(3):139–143, 1985.
- [WSK14] WEISS, M., F. J. R. SCHÜLEIN, J. B. KINZEL, M. HEIGL, D. RUDOLPH, M. BICHLER, G. ABSTREITER, J. J. FINLEY, A. WIXFORTH, G. KOBLMÜLLER und H. J. KRENNER: *Radio frequency occupancy state control of a single nanowire quantum dot*. Journal of Physics D: Applied Physics, 47:accepted, 2014.
- [WV65] WHITE, R. M. und F. W. VOLTMER: *Direct Piezoelectric Coupling to Surface Elastic Waves*. Applied Physics Letters, 7:314–316, 1965.
- [XLL12] XIA, H., Z.-Y. LU, T.-X. LI, P. PARKINSON, Z.-M. LIAO, F.-H. LIU, W. LU, W.-D. HU, P.-P. CHEN, H.-Y. XU, J. ZOU und C. JAGADISH: *Distinct Photocurrent Response of Individual GaAs Nanowires Induced by n-Type Doping*. ACS Nano, 6(7):6005–6013, 2012.
- [YPA12] YAMAGUCHI, M., J.-H. PAEK und H. AMANO: *Probability of twin formation on self-catalyzed GaAs nanowires on Si substrate*. Nanoscale Research Letters, 7:558, 2012.
- [YPY13] YATSENKO, A. V., A.S. PRITULENKO, S.V. YEVDOKIMOV, D. Y. SUGAK und I.M. SOLSKII: *The Peculiarities of the Electrical Conductivity of LiNbO₃ Crystals, Reduced in Hydrogen*. Solid State Phenomena, 200:193–198, 2013.
- [ZCBP09] ZARDO, I., S. CONESA-BOJ, F. PEIRO, J. R. MORANTE, J. ARBIOL, E. UCCELLI, G. ABSTREITER und A. FONTCUBERTA I MORRAL: *Raman spectroscopy of wurtzite and zinc-blende GaAs nanowires: Polarization dependence, selection rules, and strain effects*. Phys. Rev. B, 80:245324, 2009.

Abbildungsverzeichnis

2.1	Kubische und hexagonale Kristallstruktur von GaAs	12
2.2	a) Reduzierte Bandstruktur von GaAs entlang der Punkte hoher Symmetrie im k -Raum b) Darstellung der Entartung am Γ -Punkt.	14
2.3	Typ-I und Typ-II Modulation der Bandstruktur eines III-V Halbleiters durch einen epitaktischen Materialwechsel	16
2.4	Rekombinationspfade von Elektronen und Löchern im Halbleiter	18
3.1	Elastische Deformation einer Einheitszelle im Kristall	21
3.2	Angriff von Kräften auf das Zentrum einer Seite des infinitesimalen Volumenelements	22
3.3	Verzerrung der Volumenelemente durch eine Rayleigh-Welle und piezoelektrische Antwort	25
3.4	a) Trigonale Einheitszelle, Symmetrieachse und Orientierung der Kristallschnitte in LiNbO_3 b) Gestapelter Aufbau der Kristallstruktur, Verkippt entlang der (111)-Richtung der ursprünglichen Perowskit Struktur	26
3.5	Interdigital Schallwandler mit der Fingerbreite p , Periodizität λ_{AOFW} sowie Apertur W der kammartigen Struktur	29
3.6	Akustische Verzögerungsstrecke bestehend aus symmetrischen Schallwandlern	29
3.7	Ersatzschaltbild eines interdigital Schallwandlers. $G_a(f)$ elektrischer Leitwert, $B_a(f)$ Blindleitwert, R_S parasitäre serielle Widerstände, C_T statische Kapazität	30
3.8	Smith-Diagramm der Leitfähigkeit. Blau Linie: Änderung mit konstantem Realteil. Rote Linie: Änderung mit konstantem Imaginärteil.	32
4.1	Dynamik der Anregung, Separation und Transport von Elektron-Loch-Paaren in einer Typ-II Bandmodulation im Halbleiter. Modulation der Bandkanten durch Aufprägung des periodischen Potentials einer akustischen Oberflächenwelle.	35
5.1	VLS-Wachstumsmechanismus von GaAs-Nanodrähten auf nanoporösen SiO_2 -Substraten	40
5.2	Prozessfluss der Mikrostrukturierung	44
5.3	Aufbau zur Bestimmung der Resonanzfrequenz mittels einem Netzwerkanalysator	45
5.4	Charakterisierung eines Schallwandlers	46
5.5	Transmissionssignal S_{12} einer Verzögerungsstrecke	47
5.6	Aufbau zur Analyse der Dynamik der Ausbreitung einer akustischen Oberflächenwelle entlang einer Verzögerungsleitung	48

5.7	Dynamik der elektrischen Signale einer akustischen Oberflächenwelle beim Durchlaufen eines Bandpassfilters	48
5.8	REM-Aufnahme der eingesetzten Probengeometrie auf LiNbO_{3-x}	50
5.9	Analyse der Leistungsankopplung und -transmission gegenüber der von Generator und Verstärker erzeugten Leistung	51
5.10	Elektronenmikroskopische Aufnahme der senkrecht gewachsenen Kern/Mantel Nanodrähte auf dem SiO_2/Si -Substrat	55
5.11	Elektronenmikroskopische Aufnahme eines der Kreuzungspunkte der Ausbreitungspfade von Probentyp-I mit Nanodraht A und B	57
5.12	REM-Aufnahme der typischen Anordnung von Nanodrähten des Typs III bei der Übertragung mittels Flip-Chip-Technik	58
5.13	Probenträger mit aufgeklebtem und kontaktierten piezoelektrischen LiNbO_{3-x} -Substrat	59
6.1	Komponenten und Strahlengang des verwendeten Mikro-Photolumineszenz-Aufbaus	62
6.2	Histogramm der zeitlich aufgelösten Zählstatistik für die Antwortfunktion des Experiments sowie die Photolumineszenz eines Kern/Mantel-Nanodrahts	65
6.3	Steuerungsschema der Hochfrequenzkomponenten des verwendeten $\mu\text{-PL}$ Versuchsaufbaus	66
6.4	Dynamik der elektrischen Signale zur Anregung der AOFW und deren Detektion sowie die Synchronisierung des Anregungslasers auf das Wellenpaket	68
6.5	Synchronisationsmodi des Anregungslasers bezüglich der Frequenz der AOFW	69
7.1	Charakterisierung der unpassivierten GaAs-Nanodrähte	72
7.2	Verhalten der PL-Emission von Nanodraht B unter der Einwirkung der AOFW	73
7.3	Abhängigkeit der Ladungsträgerseparation von der Einfallrichtung der AOFW zur c-Achse von Nanodrahts B	75
7.4	Vergleich der PL-Unterdrückung anhand der Gesamtintensität durch die Integration des Emissionsspektrums über den Wellenlängenbereich von 808–818 nm	77
7.5	Zeitkorrelierte Einzelphotonenzählung der Photolumineszenz von Nanodraht A unter Dauerstrichanregung	79
7.6	Schematische Darstellung des Verhaltens der Elektron-Loch-Paare innerhalb der Typ-II Bandkantenmodulation	80
7.7	Falschfarbendarstellung der Phasen- und Richtungsabhängigkeit der PL-Intensität von der Koinzidenz der AOFW mit dem Laserpuls auf der Achse von Nanodraht B	83
8.1	Eigenschaften der Kern/Mantel-Nanodrähte	86
8.2	Photolumineszenz des Kern/Mantel-Nanodrahts C unter der Einwirkung der AOFW ohne starre Kopplung der Phase an den Anregungslaser	88

8.3	Analyse der PL-Emission des Kern/Mantel-Nanodrahts C bei unterphasenstarrer Kopplung der Anregung bei einer HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 23 \text{ dBm}$	89
8.4	Abhängigkeit der PL-Emission von der relativen Phasenlage der Anregung von Nanodraht C unter phasenstarrer Kopplung bei ansteigender HF-Leistung	93
8.5	Verlauf der PL-Modulation von Nanodraht C bei steigender HF-Leistung unter phasenstarrer Anregung	95
8.6	Photolumineszenz des Nanodrahts C bei unter großflächiger Beleuchtung der Probe im roten Spektralbereich ohne Modulation durch AOFW	98
8.7	Reales Abbild der Photolumineszenz von Nanodraht C durch Signalerfassung mittels einem orts aufgelösten CCD-Sensor und invertierter Helligkeitskurve unter ungekoppelter gepulster Anregung	100
8.8	Falschfarbendarstellung der detektierten Photolumineszenz entlang der Achse von Nanodrahts C bei gepulster Anregung	101
9.1	Verknüpfung der zeitintegrierten und zeitaufgelösten PL-Spektroskopie anhand der optischen Emission von Nanodraht D bei phasenstarrer Kopplung	107
9.2	Modulation der Histogrammkurve von Nanodraht D bei Variation der HF-Leistung unter phasenstarrer Kopplung der Anregung der Elektron-Loch-Paare	108
9.3	Zusammenfassung der in Abbildung 9.2 gezeigten Intensitätsmaxima der Histogrammkurven für verschiedenen HF-Leistungen	111
9.4	Modulation der Histogrammkurven von Nanodraht E bei Variation der relativen Phasenlage am Anregungspunkt	114
9.5	Abhängigkeit der Lebensdauer des strahlenden Übergangs von der angelegten HF-Leistung	116
9.6	Falschfarbendarstellung der simulierten Ausbreitung von Elektronen (blau) und Löchern (orange) unter dem Einfluss der AOFW bei phasenstarrer Kopplung und unterschiedlicher AOFW-Leistung	120
9.7	Kalibrierung der Leistung der AOFW P_{AOFW} in der Simulation auf die im Experiment zugängliche HF-Leistung P_{HF} des HF-Generators .	123
9.8	Zusammenfassung der mittels numerischen Simulation ermittelten Histogrammkurven für eine Beweglichkeit der Elektronen von $500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und der Löcher von $50 \text{ cm}^2/\text{Vs}$	126
9.9	Zusammenfassung der aus numerischen Simulation berechneten Histogrammkurven für eine Beweglichkeit der Elektronen von $\mu_e = 250 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ sowie der Löcher von $\mu_h = 25 \text{ cm}^2/\text{Vs}$	128
9.10	Feinabstimmung der Beweglichkeit der Ladungsträger im eindimensionalen Kanal der numerischen Simulation	129
8.5	Erneute Darstellung des experimentell ermittelten Verlaufs der PL-Modulation von Nanodraht C unter steigender HF-Leistung und phasenstarrer Anregung	132
9.11	Zeitintegrierte Darstellung der PL-Emission aus numerischer Simulation für verschiedene HF-Leistungen bei einer Beweglichkeit der Ladungsträger von $\mu_e = 500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ bzw. $\mu_h = 50 \text{ cm}^2/\text{Vs}$	133

9.12	Zusammenfassung der Charakteristika der numerisch simulierten PL-Emission bei der Beweglichkeit der Ladungsträger auf $\mu_e = 250 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ bzw. $\mu_h = 20 \text{ cm}^2/\text{Vs}$	135
10.1	Photolumineszenz des Kern/Mantel-Nanodrahts G unter dem Einfluss einer AOFW in paralleler Konfiguration ohne Kopplung der Anregungsphase	142
10.2	Analyse der PL-Emission von Kern/Mantel-Nanodraht G unter phasengekoppelter Anregung	144
10.3	Zusammenfassung der Histogrammkurven der PL-Emission von Nanodraht G unter Variation der relativen Phasenlage unter phasenstarrer Anregung und konstanter HF-Leistung von $P_{\text{HF}} = 7 \text{ dBm}$	145
10.4	Zusammenfassung der aus den Histogrammkurven der PL-Emission von Nanodraht G ermittelten Lebensdauern unter phasenstarrer Anregung	147
10.5	Verhalten der an Nanodraht G aufgenommenen Transienten bei variierender Konfiguration der AOFW	150
10.6	Schematische Darstellung der Entstehung einer zyklisch pulsierenden PL-Emission durch die Anwesenheit einer Potenzialbarriere entlang der Achse des Nanodrahts	153
10.7	Schematische Darstellung der in der numerischen Simulation eingesetzten polytypischen Typ-II Bandkantenmodulation für GaAs	157
10.8	Falschfarbendarstellung der Dynamik der Elektron-Loch-Paare unter dem Einfluss des elektrischen Felds einer AOFW und der Existenz einer Transportbarriere entlang des eindimensionalen Kanals	159
10.9	Auswirkungen der Höhe der Potenzialbarriere im Ausbreitungspfad auf die Dynamik der Elektron-Loch-Paare unter dem Einfluss einer AOFW bei Anregung in der extremalen Phasenlage von $\phi_{\text{abs}} = 90^\circ$	163
10.10	Zusammenfassung der Histogrammkurven aus numerischer Simulation der Ladungsträgerdynamik unter ansteigender HF-Leistung	165
10.11	Zusammenfassung der aus der Variation der Höhe der Transportbarriere gegenüber der Beweglichkeit der Ladungsträger resultierende Charakteristika der numerischen Simulation	168
11.1	Charakteristika der Kern/Mantel-Nanodrähte mit radialem Quantentopf	183
11.2	Durch Typ-I Bandkantenmodulation numerisch erwartete Bandlücke E_g eines endlichen GaAs-Potenzialtopfs der Breite r_{QW} in einer $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Barriere	184
11.3	Leistungsabhängigkeit der Anteile der Photolumineszenz von Nanodraht K mit 5 nm Quantentopf unter dem Einfluss einer AOFW und ohne Phasenkopplung des Anregungslasers	185

Tabellenverzeichnis

3.1	Physikalische Eigenschaften von LiNbO_3	27
3.2	Physikalische Parameter des 128° YX- und YZ-Kristallschnitts auf LiNbO_3 unter Normalbedingungen	28
5.1	Parametrisierung der Übertragungscharakteristik von Proben typ-II anhand der linearen Regression der Signalpegel aus zeitaufgelösten Messungen	52
5.2	Zusammenfassung der Übertragungsparameter der eingesetzten Verzögerungsstrecken bei $T = 5 \text{ K}$	54
7.1	Zusammenfassung der ermittelten Verhältnisse der PL-Unterdrückung bei verschiedenen Einfallrichtungen der AOFW zur c-Achse des Nanodraht in zeitintegrierter sowie zeitaufgelöster Detektion	84
	Parameter der Probenpräparation	189
	Wachstumsparameter der Nanodraht Chargen	190
	Kristallschnitt und verwendete Nanodrähte	191
	Zuordnung der untersuchten Nanodrähte	191
	Parameter zur numerischen Simulation der Ladungsträgerdynamik	192

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich für die Unterstützung bei allen Personen bedanken, die zum Entstehen dieser Dissertation beigetragen haben und mir in Zeiten von Boom und Baisse zur Seite standen.

Dazu gehört an erster Stelle Prof. Dr. Achim Wixforth, der mir die Möglichkeit gegeben hat, diese Arbeit an seinem Lehrstuhl anzufertigen und mich stets bei der Teilnahme an Konferenzen oder Summer, wie Winter Schools unterstützt hat. Ebenso, dass er nie einen Zweifel an meinem Wirken hatte, was sich mit dem Wechsel des Materialsystems und der Quelle der Nanodrähte als goldrichtig erwiesen hat. Während dieser Zeit stand er mir jeder Zeit mit einem offenen Ohr zur Verfügung und bot in allen Belangen Anregungen und Ideen zur Lösung.

Ebenso gilt mein Dank Prof. Dr. Wolfgang Brütting der sich bereit erklärt hat das Zweitgutachten für diese Dissertation zu erstellen.

Meinen besonderen Dank möchte ich Prof. Dr. Hubert Krenner bekunden, welcher nach der Übernahme der Arbeitsgruppe für Halbleiteroptik und Nanostrukturen von Dr. Jens Ebbecke, seine Begeisterung für Nanodrähte entdeckt hat. Dank seines unglaublichen Wissensschatzes kam es zu einer motivierenden, inspirierenden und hervorragenden Betreuung dieser Arbeit. Seinem Handeln ist es zu verdanken, dass es zu einer Früchte tragenden Zusammenarbeit mit dem Walter-Schottky-Institut der TU München gekommen ist.

In diesem Zusammenhang möchte ich mich bei Dr. Daniel Rudolph bedanken, der während seiner Promotion Zeit gefunden hat, Nanodrähte nach Wunsch für mich herzustellen und auch gegen einen gelegentlichen geselligen Austausch nichts einzuwenden hatte. Bei dieser Kooperation darf auch ein großer Dank an Dr. Gregor Koblmüller, Prof. Dr. Jonathan Finley und Prof. Dr. Gerhard Abstreiter nicht fehlen, ohne deren Wohlwollen kein Photon aus einem GaAs-Nanodraht den Detektor in unserem Labor getroffen hätte.

Hier sei auch meinem Bürokollegen Dr. Florian Schüle in gedankt, welcher mich in die Geheimnisse des Optiklabors, sowie der numerischen Simulation eingeführt hat. Ebenso möchte ich mich bei meinen Mitstreitern am Lehrstuhl für Experimentalphysik I der ersten Stunden bedanken. Dazu gehören Dr. Markus Regler, Dr. Stefan Völk und Dr. Marcin Malecha. Bei letzterem möchte ich mich zusätzlich in die Einführung in Labview bedanken und für seine Geduld beim Korrekturlesen.

Für das Vorankommen bei der Verbesserung der Peripherie im Labor gehört Alexander Hupfer mein Dank. Dieser stand mir von Beginn an immer bei der Umsetzung meiner Ideen mit Rat und Tat zur Seite.

Nicht zu vergessen sind auch M.Sc. Ahmad Ahsan Nawaz, Dipl. Phys. Hans Moritz Mangold und M.Sc. Matthias Weiß, deren Abschlussarbeiten ich betreut habe

und ich wünsche euch drei etwas weniger nötiges Sitzfleisch bis sich der Erfolg bei eurer Promotion einstellt.

Zu diesem Teil meiner Arbeit am Lehrstuhl gehören auch die von mir betreuten Bachelor Studenten und Praktikanten, die mir den Tag versüßt haben.

Unvergesslich wird mir die angenehme und unvergleichliche Arbeitsatmosphäre am Lehrstuhl bleiben. Hier wurden aus Kollegen Freunde, welche sich auch im Leben fernab der Physik zu gemeinsamen Unternehmungen treffen. Nicht nur Reisen auf der Magistrale Budapest–Paris, sondern auch Besuche in Würzburg, Ulm, Maria Rain, Paderborn, Boston oder Santa Barbara bleiben unvergessen. Ebenso, dass ihr mir in den richtigen Momenten die Daumen gedrückt habt. Danke.

Unabhängig von den fachspezifischen Personen möchte ich mich herzlich bei meiner Mutter Hannelore bedanken, die mich auf meinem Lebensweg unterstützt hat und mir ein weitgehend sorgenfreies Heranwachsen und Studium ermöglicht hat. Ebenso bei meinem Vater Roland, den man zu seinem Glück gelegentlich zwingen musste.

Meiner Freundin Iris Höller möchte ich meinen tiefen Dank aussprechen, in der heißen Phase für mich da gewesen zu sein. Ich bin so unglaublich glücklich darüber, dass wir uns kennen und lieben gelernt haben.

Diese Arbeit wurde gefördert durch die Nanosystems Initiative Munich (NIM) als Cluster der Exzellenzinitiative in Deutschland, dem Emmy Noether Programm sowie dem Center for NanoScience (CeNS) und dem Sonderforschungsbereich (SFB) 631.

Publikationsliste

WEISS, M., F. J. R. SCHÜLEIN, **J. B. Kinzel**, M. HEIGL, D. RUDOLPH, M. BICHLER, G. ABSTREITER, J. J. FINLEY, A. WIXFORTH, G. KOBLMÜLLER UND H. J. KRENNER: *Radio frequency occupancy state control of a single nanowire quantum dot*. Journal of Physics D: Applied Physics, 47:accepted, 2014

WEISS, M., **J. B. Kinzel**, F. J. R. SCHÜLEIN, M. HEIGL, D. RUDOLPH, S. MORKÖTTER, M. DÖBLINGER, M. BICHLER, G. ABSTREITER, J. J. FINLEY, G. KOBLMÜLLER, A. WIXFORTH UND H. J. KRENNER: *Dynamic Acoustic Control of Individual Optically Active Quantum Dot-like Emission Centers in Heterostructure Nanowires*. Nano Letters, 14(5):2256–2264, 2014

RUPPERT, C., F. FÖRSTER, A. ZRENNER, **J. B. Kinzel**, A. WIXFORTH, H. J. KRENNER UND M. BETZ: *Radio Frequency Electromechanical Control over a Surface Plasmon Polariton Coupler*. ACS Photonics, 1(2):91–95, 2014

Kinzel, J. B., F. J. R. SCHÜLEIN, WEISS, M., D. RUDOLPH, G. KOBLMÜLLER, J. J. FINLEY, G. ABSTREITER, A. WIXFORTH UND H. J. KRENNER: *Surface Acoustic Wave-Driven Carrier Dynamics As A Contact-less Probe For Mobilities Of Photogenerated Carriers In Undoped Nanowires*. In: *2013 Conference on Lasers and Electro-Optics - International Quantum Electronics Conference*, CE-3.5, 2013

Kinzel, J. B., D. RUDOLPH, M. BICHLER, G. ABSTREITER, G. KOBLMÜLLER, J. J. FINLEY, A. WIXFORTH UND H. J. KRENNER: *Directional and dynamic modulation of the optical emission of an individual GaAs nanowire using surface acoustic waves*. Nano Letters, 11:1512–1517, 2011

FRISCHEISEN, J., Q. NIU, A. ABDELLAH, **J. B. Kinzel**, R. GEHLHAAR, G. SCARPA, C. ADACHI, P. LUGLI UND W. BRÜTTING: *Light extraction from surface plasmons and waveguide modes in an organic light-emitting layer by nanoimprinted gratings*. Opt. Express 19:A7–A19, 2011

RUPPERT, C., J. NEUMANN, **J. B. Kinzel**, H. J. KRENNER, A. WIXFORTH UND M. BETZ: *Surface acoustic wave mediated coupling of free-space radiation into surface plasmon polaritons on plain metal films*. Phys. Rev. B 82:081416(R), 2009