

Technische Universität München
Fakultät für Physik
Physik Department E11

**Propagationseffekte und
ultraschnelle kohärente Prozesse
in direkten Halbleitern**

Gernot Göger

Technische Universität München
Fakultät für Physik
Physik Department E11

Propagationseffekte und ultraschnelle kohärente Prozesse in direkten Halbleitern

Gernot Göger

Vollständiger Abdruck der von der
Fakultät für Physik der Technischen Universität München
zur Erlangung des akademischen Grades eines

Doktors der Naturwissenschaften

genehmigten Dissertation.

Vorsitzender: Univ.-Prof. Dr. Peter Vogl

Prüfer der Dissertation:

1. Univ.-Prof. Dr. Dr. h.c. Alfred Laubereau
2. Univ.-Prof. Dr. Gerhard Abstreiter

Die Dissertation wurde am 17.01.2001 bei der
Technischen Universität München eingereicht und durch die
Fakultät für Physik am 21.02.2001 angenommen.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	5
2	Materialeigenschaften von GaAs und CdTe	9
2.1	Kristallstruktur und elektronische Bandstruktur	9
2.2	Gitterdynamik: Optische und akustische Phononen	12
2.3	Optische Absorption	13
3	Der Zwei-Farben-Ti:Saphir-Laser	16
4	Experimentelle Verfahren	20
5	Ladungsträgerdynamik in Halbleitern	23
5.1	Ladungsträger-Relaxation	23
5.2	Theorie der kohärenten optischen Anregung	25
5.3	Signal bei Anrege-Abfrage-Experimenten	28
5.4	Vierwellenmischsignale	29
5.5	Wechselwirkungen freier Ladungsträger	33
5.5.1	Ladungsträger-Phonon-Streuung	33
5.5.2	Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung	39

6	Hochenergetische Exzitonen in GaAs	41
6.1	Gebundene Elektron-Loch-Paare	42
6.2	Spektroskopische Signaturen hochenergetischer Exzitonen	43
6.2.1	Kohärente Kopplung von Polarisation und Lichtfeld: Exziton-Polaritonen	46
6.3	Experimentelle Ergebnisse und theoretisches Modell	50
6.3.1	Exziton-Polaritonen mit großem Schwerpunkts- impuls in 500 nm und 200 nm dicken GaAs-Filmen	50
6.3.2	Transfermatrixformalismus für E- und B-Felder	52
6.3.3	Zusätzliche Randbedingungen und exzitonfreie Randschicht	54
6.3.4	Polariton-Phonon-Wechselwirkung	57
6.3.5	Diskussion der stationären Messungen	61
6.3.6	Bedingungen für die Sichtbarkeit der Polaritonszillationen	63
6.3.7	Zeitaufgelöste Polaritonpropagation	64
6.3.8	Experimente zur Polariton-Phonon-Streuung	72
6.4	Exziton-Phonon-Resonanz im Absorptionskontinuum von GaAs	73
7	Nichtentartetes Vierwellenmischen	89
7.1	Motivation	89
7.2	Vierwellenmischen nahe der Bandkante: Experiment und Theorie	91
7.3	Vierwellenmischen hoch im Absorptionskontinuum	96
7.4	Untersuchung der Populationsdynamik in GaAs und CdTe: Drei-Impuls-Vierwellenmischen	100
7.5	Experimentelles Prinzip	100

7.6	Spektral aufgelöstes Drei-Impuls-VWM an GaAs	102
7.7	LO-Phonon-Emissionszeiten von Leitungsbandelektronen in GaAs und CdTe	104
8	Zusammenfassung	107
	Literaturverzeichnis	112

Kapitel 1

Einleitung

Die anhaltende Miniaturisierung integrierter Schaltkreise nähert sich fundamentalen Grenzen. In Strukturen von der Größe der De-Broglie-Wellenlänge bzw. Phasenkohärenzlänge der Ladungsträger bestimmen Quanteneffekte die Funktionsweise mikroelektronischer Bauelemente der nächsten Generation (resonante Tunnel- oder Einelektronentransistoren) [And98]. Fortschritte in der Entwicklung solcher ultraschneller Schalter basieren auf der genauen Kenntnis der kohärenten und inkohärenten Wechselwirkung von Elektronen und Löchern mit elementaren Anregungen im Halbleiter. Diese Prozesse spielen sich auf einer mit konventionellen elektronischen Verfahren nicht mehr zugänglichen Sub-Pikosekunden-Zeitskala ab. Seit einigen Jahren stehen jedoch leistungsfähige Lasersysteme zur Verfügung, die Impulse von weniger als fünf Femtosekunden liefern [Nis97]. Mit ihrer Hilfe kann nicht nur die Phasenrelaxation der Ladungsträger zeitlich aufgelöst werden, sondern insbesondere erst die Kohärenz ins System eingeschrieben werden. Genauso kann in der Ultrakurzzeitspektroskopie die Energierelaxation gezielt erzeugter Ladungsträgerverteilungen fern vom thermischen Gleichgewicht, die im Hochfeldtransport über kleinste Gatedistanzen bei Feldeffekttransistoren immer mehr an Bedeutung gewinnen, detailliert studiert werden.

Die vorliegende Arbeit widmet sich den physikalisch und technologisch wichtigen Aspekten der kohärenten und inkohärenten Dynamik der niedrigsten elektronischen, optisch anregbaren Resonanz im Halbleiter, dem Exziton, und der von Zuständen im Interbandkontinuum von GaAs und CdTe. Das Exziton läßt sich als ein durch Coulombanziehung gebundenes Paar eines negativ geladenen Elektrons im Leitungsband und eines positiv geladenen Lochs im Valenzband veranschaulichen. Für optoelektronische Anwendungen (Glasfaserkommunikation, optische Computer) sind Exzitonen von herausragender Bedeutung. Ihre hohe Oszillatorstärke ermöglicht in Verbindung mit elektrisch-feldinduzierten Absorptionsänderungen den Bau effizienter Modulatoren in Quantenfilm- oder Übergitterstrukturen. In rein optischen Schaltern kann man mit Multi-Pulsprozessen die

Phasenstabilität des Exzitons zur kohärenten Kontrolle der Ladungsträgerdichte ausnutzen und mit über einem Terahertz (10^{12} s^{-1}) die derzeit höchsten Schaltraten realisieren [Cit97, Kan96].

Die starke Kopplung von Exziton und Lichtfeld führt darüberhinaus auf neue Eigenzustände des Systems, den Exziton-Polaritonen. Eine Aufspaltung der Exzitonresonanz und stark dispersive Laserimpulspropagation, die gerade in optisch dünnen Proben berücksichtigt werden muß, sind die Folge. Anwendungen können diese besonderen optischen Eigenschaften in kompakten interferometrischen Modulatoren oder Richtungskopplern finden [Kat94].

Einige der neuen Eigenzustände tragen fast ausschließlich exzitonischen Charakter. Sie optisch anzuregen und in der Folge als Sonde zur Untersuchung von phasenerstörenden, elementaren exzitonischen Streuprozessen einzusetzen, gelingt erstmals im Rahmen dieser Arbeit. Empfindliche energie- und zeitaufgelöste Anrege-Abfrage-Experimente an Exzitonen mit sehr schneller Schwerpunktsbewegung geben genauen Aufschluß über Exzitondispersionen, Reflexionseigenschaften von Oberflächen für kohärente Exzitonwellenpakete, über die Kopplungsstärke von Exzitonen an Gitterschwingungen und über die Dephasierung hochenergetischer Exzitonen durch Stöße an freien Ladungsträgern. Dabei wird deutlich, welche wichtige Rolle die innere Struktur des neutralen Exzitons für die Stärke der Wechselwirkung mit anderen (Quasi-)Teilchen spielt [Gög00].

Die Stabilität der Phase der exzitonischen Polarisation in hochreinen Proben ist nicht nur bei der Kopplung an das Lichtfeld ausschlaggebend für die Entstehung neuer Quasiteilchen, sondern auch bei der kohärenten Wechselwirkung von Exzitonen mit Gitterschwingungen: vor dem Hintergrund eines Kontinuums von Elektronen und Löchern können sich schwach gebundene, gemeinsam durch den Kristall propagierende Exziton-Phonon-Paare bilden, deren spektrale Charakteristik hier erstmals eingehend untersucht wird. Die leicht überhöhte Nichtlinearität der Exziton-Phonon-Resonanz äußert sich auch beim Vierwellenmischen. Mit dieser experimentellen Technik, die direkt auf die kohärente Polarisation im System zugreift, kann eine weitere kohärente exzitonische Wechselwirkung, nämlich die kohärente phononassistierte Streuung der Polarisation des Exzitons und der von Interbandübergängen, beobachtet werden [Ban95]. Bei diesem Prozeß geht entscheidend die Energie-Zeit-Unschärfe bei der Emission und Absorption der vermittelnden longitudinal-optischen Phononen ein. Hoch im Absorptionskontinuum – weit oberhalb der Exzitonresonanz – wird erstmals die Energieabhängigkeit der Phasenrelaxationszeit von Interbandübergängen im Limit niedriger Anregungsdichte nachgewiesen. Im Falle großer Anregungsdichte treten Vielteilcheneffekte wie z.B. anregungsinduziertes Dephasing in den Vordergrund. Der letzte Teil der Arbeit beschäftigt sich mit einer neu entwickelten Variante des Vierwellenmischen. Mit ihr können die Populationsdynamik von

Nichtgleichgewichts-Ladungsträgerverteilungen abgebildet und die Relaxationsraten von Leitungsbandelektronen bei der stärksten und schnellsten Wechselwirkung mit dem Gitter polarer Halbleiter – der Fröhlich-Wechselwirkung – präzise bestimmt werden.

Kapitel 2

Materialeigenschaften von GaAs und CdTe

Die Kristallstruktur, die elektronische Bandstruktur, die Gitterschwingungsmoden und die linearen optischen Eigenschaften von Galliumarsenid (GaAs) und Cadmiumtellurid (CdTe) werden in diesem Kapitel vorgestellt. Beide Materialsysteme besitzen eine ähnliche elektronische Bandstruktur, unterscheiden sich aber in der Stärke der Ladungsträger-Phonon-Kopplung. Soweit nicht anders angegeben sind die Materialparameter der Referenz [Mad96] entnommen.

2.1 Kristallstruktur und elektronische Bandstruktur

GaAs und CdTe gehören zur Klasse der III-V- bzw. II-VI-Verbindungshalbleiter. Sie kristallisieren in der Zinkblende-Struktur. Die zwei fcc-Untergitter bestehen aus den Elementen der III. (Ga) bzw. II. (Cd) Hauptgruppe des Periodensystems und den Atomen der V. (As) bzw. VI. (Te) Hauptgruppe. Bei Zimmertemperatur besitzen GaAs und CdTe Gitterkonstanten von 5.653 \AA und 6.482 \AA . Wegen der unterschiedlichen Elektronegativität der Gitterkonstituenten findet man in GaAs 30% ionischen Bindungsanteil, in CdTe 70%. Die Ladungstrennung innerhalb der Einheitszelle erzeugt ein erhebliches Dipolmoment, dem man eine effektive Ladung $e^* = 0.36 e_0$ für GaAs und $e^* = 0.42 e_0$ für CdTe zuordnen kann.

In Einelektronennäherung sind die Eigenzustände im translationsinvarianten Potential aus Atomrümpfen und restlichen Elektronen Blochwellenfunktionen mit den Quantenzahlen Bandindex und Kristallimpuls $\hbar\mathbf{k}$. Im reduzierten Zonen-

schema, dem Fourierraum zur Elektronenortsordinate, lassen sich die Energieeigenwerte übersichtlich als Bänder innerhalb der Brillouinzone darstellen.

Abb. 2.1 zeigt die Bandstruktur von GaAs und CdTe. Beide Materialien sind direkte Halbleiter, d.h. im Zentrum Γ der Brillouinzone stehen sich ein lokales Valenzbandmaximum und ein lokales Leitungsbandminimum gegenüber. Diese Eigenschaft ermöglicht direkte elektrische Dipolübergänge zwischen Valenz- und Leitungsbandkanten – ein für optoelektronische Anwendungen wichtiges Kriterium. Bei tiefen Temperaturen ($T < 10$ K) ist die Oberkante des voll besetzten Valenzbands durch eine Energielücke $E_G = 1.520$ eV in GaAs und $E_G = 1.606$ eV in CdTe von der Unterkante des Leitungsbands getrennt.

Im Γ -Tal nahe $k = 0$ sind die Leitungsbänder von GaAs und CdTe in guter Näherung sphärisch symmetrisch mit parabolischer Energiedispersion. Den zweifach spin-entarteten s-artigen Elektronenzuständen läßt sich aus der reziproken Band-

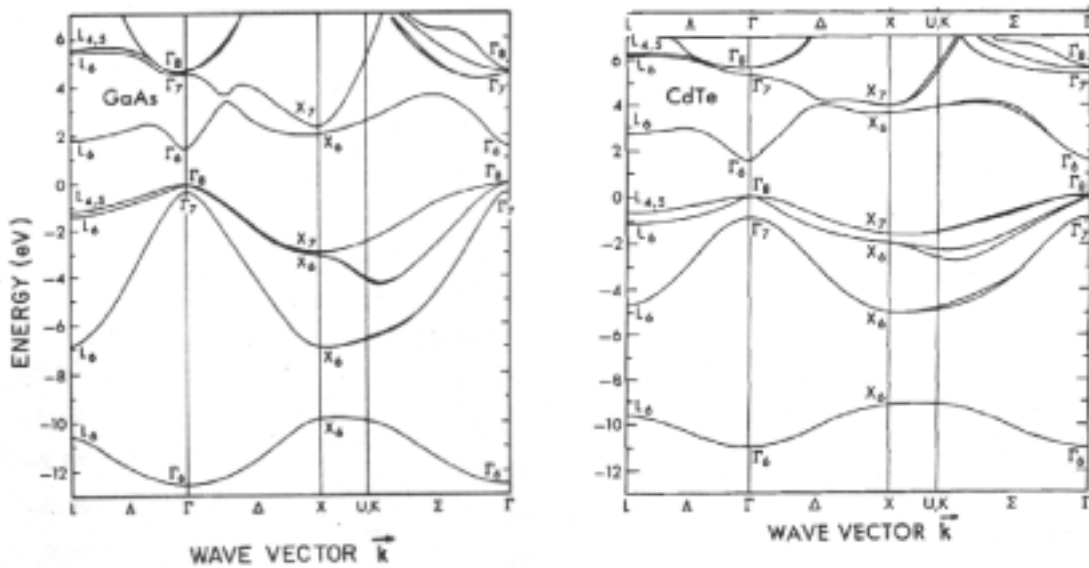


Abb. 2.1: Bandstrukturschemata von GaAs (links) und CdTe (rechts), berechnet nach der Pseudopotentialmethode [Che76].

krümmung eine effektive Masse von $0.067 m_0$ [Ada85] in GaAs und $0.090 m_0$ in CdTe [Mad96] zuordnen. Dabei bezeichnet m_0 die Ruhemasse des freien Elektrons im Vakuum. Die mit den geringen Massen verbundene hohe Beweglichkeit der Leitungsbändelektronen wird bei GaAs zum Bau von Hochfrequenzbauelementen, Halbleiterlasern und optoelektronischen Modulatoren ausgenutzt. CdTe findet wegen Schwierigkeiten bei der p-Dotierung bisher hauptsächlich in Strahlungsdetektoren Verwendung. Für größere Energien enthalten die Leitungsbänd-

zustände in GaAs zunehmend p-artige Komponenten, was zu Termen höherer als zweiter Ordnung in der Dispersion führt [Ruf90]: $E(k) = \hbar^2 k^2 / 2 m_e - \alpha_0 k^4$ mit $\alpha_0 \simeq 2400 \text{ eV } \text{Å}^4$. An den Rändern der Brillouinzone befinden sich weitere Leitungsbandminima (Seitentäler), die jedoch wegen ihres großen Abstandes von der Bandkante -0.3 eV (GaAs) und 0.95 eV (CdTe) – ohne Einfluß auf die in dieser Arbeit durchgeführten Messungen sind.

Das Valenzband ist an seiner Oberkante für verspannungsfreie, kristalline GaAs- und CdTe-Proben vierfach entartet. Es setzt sich aus je zweifach entarteten Schwerloch- (engl.: heavy-hole, hh) und Leichtlochbändern (engl.: light-hole, lh) zusammen, die aus atomaren 4p-Niveaus aufgebaut sind. Das Schwerlochband in GaAs besitzt eine stark von der Richtung im \mathbf{k} -Raum abhängige Masse: in $\langle 111 \rangle$ -Richtung ist die effektive Masse mit $m_{\text{hh}}^{(111)} = 0.8 m_0$ doppelt so groß wie in $\langle 100 \rangle$ -Richtung. Diese Anisotropie ist bei CdTe schwächer ausgeprägt; man findet $m_{\text{hh}}^{(111)} = 0.84 m_0$ und $m_{\text{hh}}^{(100)} = 0.72 m_0$. Bei der Interpretation von Experimenten werden meist die gemittelten Massen $m_{\text{hh}}^* = 0.5 m_0$ (GaAs) und $m_{\text{hh}}^* = 0.75 m_0$ (CdTe) herangezogen. Demgegenüber ist das Band der leichten Löcher annähernd sphärisch mit effektiven Massen von $m_{\text{lh}} = 0.088 m_0$ (GaAs) und $m_{\text{lh}} = 0.12 m_0$ (CdTe). Mit zunehmendem Kristallimpuls wird die energetische Entartung der beiden Bänder am Γ -Punkt aufgehoben. Durch die Spin-Bahn-Aufspaltung Δ zu tieferen Energien verschoben liegt das ebenfalls zweifach entartete Valenzband der abgespaltenen Löcher (engl.: split-off, so) mit einer effektiven Masse von $m_{\text{so}}^* = 0.145 m_0$ in GaAs. Experimentell ist nur die Wechselwirkung zwischen den Bändern der leichten und der abgespaltenen Löcher in GaAs relevant. Anders als bei CdTe ($\Delta = 0.8 \text{ eV}$) äußert sich wegen der vergleichsweise kleinen Aufspaltung $\Delta = 0.34 \text{ eV}$ in GaAs das *anticrossing* der lh- und so-Bänder schon bei niedri-

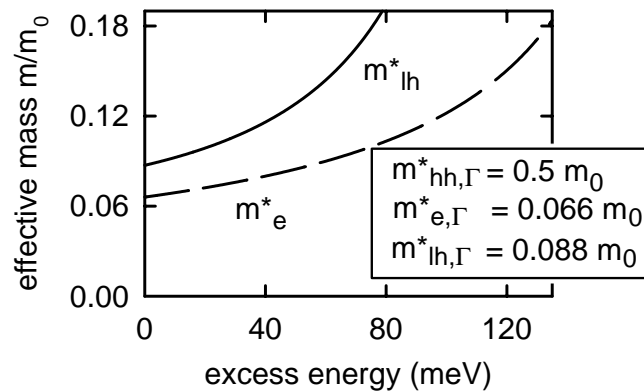


Abb. 2.2: Effektive Leichtloch- (m_{lh}^*) und Leitungsband-Elektronenmasse (m_{e}^*) in GaAs [Ruf90]. Die näherungsweise konstante Schwerlochmasse (m_{hh}^*) ist nicht eingezeichnet.

geren Energien: Der Dispersionszweig der leichten Löcher biegt zum Band der schweren Löcher hin ab. Dabei nimmt, wie in Bild 2.2 dargestellt, die effektive Leichtlochmasse zu.

2.2 Gitterdynamik: Optische und akustische Phononen

Wie bei der Herleitung der elektronischen Bandstruktur ergibt sich auch für die quantisierten Gitterschwingungen aus der Kristallperiodizität die Beschreibung in einem Bänderschema. Da GaAs und CdTe zwei Atome in der primitiven Einheitszelle besitzen, tritt zum akustischen Phononzweig noch ein optischer hinzu.

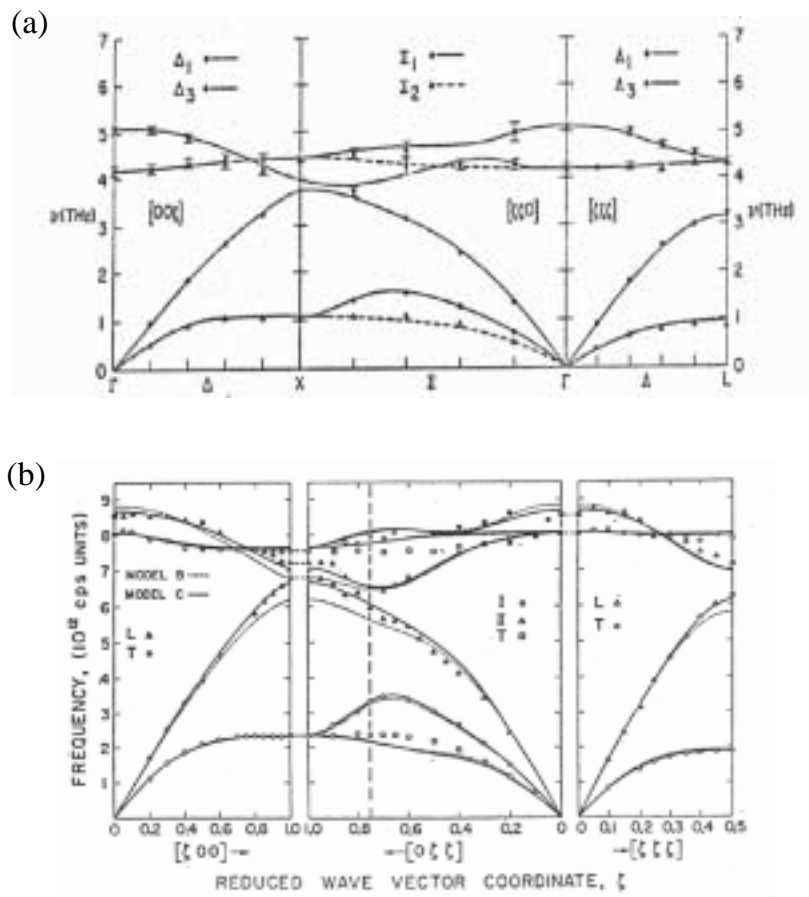


Abb. 2.3: Phonondispersionskurven (a) in CdTe [Row74] und (b) GaAs [Bla82]. Die Energie longitudinaler optischer Moden ist für kleine Impulswerte q nahezu konstant.

Beide Zweige bestehen wiederum aus einem longitudinalen (LO) und zwei transversalen (TO) Ästen (siehe Abb. 2.3), die bei $k=0$ wegen des polaren Kristallcharakters nach der Lyddane-Sachs-Teller-Relation $((E_{\text{LO}}/E_{\text{TO}})^2 = \varepsilon_{\text{st}}/\varepsilon_{\infty})$ aufgespalten sind. Nahe der Brillouinzone Mitte sind die Dispersionsrelationen der optischen Phononen flach mit wellenvektorunabhängigen LO-Phononenergien von $E_{\text{LO}} = 36.1$ meV in GaAs und $E_{\text{LO}} = 21.0$ meV in CdTe. Bei $k=0$ besteht auch ein einfacher linearer Zusammenhang zwischen der Frequenz akustischer Phononen und ihrem Wellenvektor mit der Schallgeschwindigkeit als Proportionalitätskonstante (GaAs: $\bar{v}_{\text{s}} = 3.86 \times 10^3$ m/s). Die statischen Dielektrizitätskonstanten ε_{st} , die die Polarisierbarkeit von Gitter und Elektronensystem enthalten, haben in GaAs und CdTe die Werte 12.5 und 10.2; die nur aus dem elektronischen Anteil bestehenden hochfrequenten Polarisierbarkeiten ε_{∞} betragen 10.9 und 7.1 [Mad96].

2.3 Optische Absorption

Für ein wechselwirkungsfreies Elektron-Loch-System erwartet man oberhalb der Bandlücke einen gemäß der kombinierten Zustandsdichte von Valenz- und Leitungsband wurzelförmig mit der Überschußenergie ansteigenden Absorptionskoeffizienten und unterhalb von E_{G} Transparenz für Photonen. Die attraktive Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern modifiziert dieses einfache Bild jedoch insbesondere im Bereich der Bandkante deutlich: Unterhalb E_{G} bilden sich analog zur Wasserstoffserie diskrete Zustände – Exzitonen – mit großem Dipolmatrixelement und resonanzartiger Absorptionserhöhung. In kristallinen Halbleiter-Proben sind sie wegen der Stoßverbreiterung durch thermisch angeregte Phononen nur bei sehr tiefen Gittertemperaturen $T_{\text{L}} \leq 50$ K spektral auflösbar. In Halbleitersystemen niedrigerer Dimension können sie wegen der größeren Bindungsenergie noch bei Raumtemperatur beobachtet werden [Wei85]. Abb. 2.4 zeigt links ein Absorptionsspektrum einer hochreinen GaAs-Probe nahe der Bandkante bei $T_{\text{L}} = 1.2$ K. Die ersten drei Linien der Exzitonserie sind deutlich sichtbar. Rechts ist die Energieabhängigkeit des Imaginärteils der Dielektrizitätskonstante in CdTe bei der Temperatur $T_{\text{L}} = 77$ K dargestellt. Neben der starken Linie des fundamentalen Exzitons tritt etwa im Abstand einer LO-Phononenergie über ihr im Kontinuum eine breite Struktur überhöhter Absorption auf, deren Form und Lage phononassistierte Übergänge allein nicht erklären können. Vielmehr ist die Konfigurationswechselwirkung zwischen freien Elektron-Loch- und Exziton-LO-Phonon-Zuständen für sie verantwortlich [Sak70]. In GaAs können diese kombinierten Exziton-Phonon-Quasiteilchen im linearen Absorptionsspektrum nicht beobachtet werden. Die Bindungsenergie der Exzitonen im 1s-

Zustand beträgt bei $T_L = 10$ K in GaAs 4.2 meV und in CdTe 11 meV. Unterhalb der 1s-Exzitonen erscheinen zusätzlich an Restverunreinigungen gebundene Exzitonenlinien. Zu noch niedrigeren Photonenenergien läuft das Absorptionsspektrum exponentiell aus (*Urbach-Ausläufer*). Auch oberhalb der Bandkante erhöht sich durch die Coulombkorrelation von Elektron und Loch das Übergangsmatrixelement (*Coulomb- bzw. Sommerfeldüberhöhung*, siehe Kap. 5.3), was einen nicht mehr wurzelförmigen, sondern linearen Verlauf des Absorptionskoeffizienten zur Folge hat.

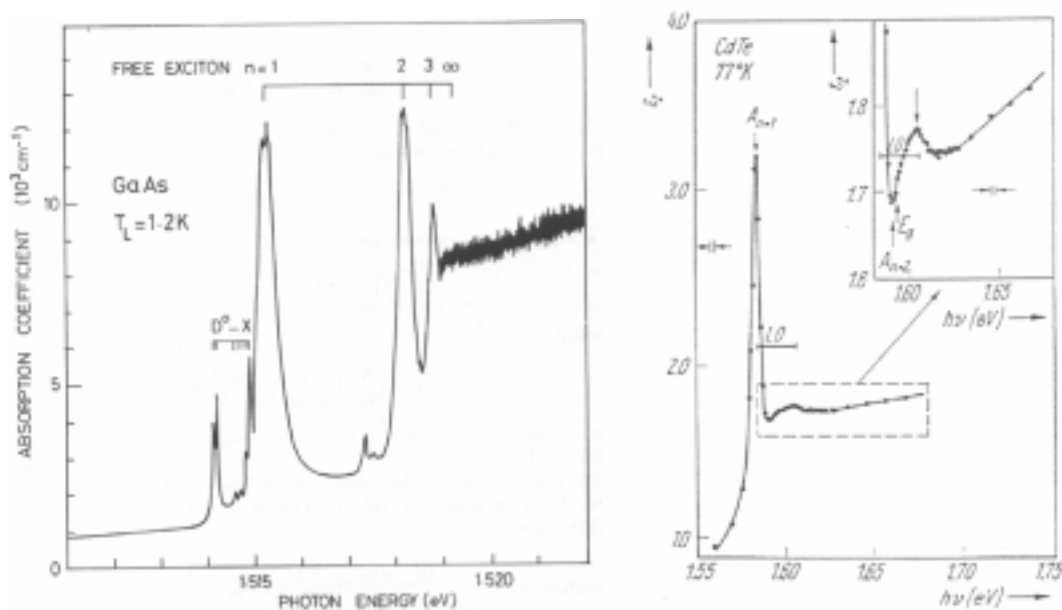


Abb. 2.4: Absorptionsspektren hochreiner GaAs- (links [Ul88]) und CdTe-Proben (rechts [Dil68]) nahe der Bandlückenenergie bei Gittertemperaturen von 1.2 K und 77 K. Die scharfen Maxima gehören zu Exzitonzuständen mit der Hauptquantenzahl n . Bei noch niedrigeren Energien findet man an Verunreinigungen gebundene Exzitonen (D_0X). In CdTe ist außerdem im Absorptionskontinuum eine verbreiterte Exziton-LO-Phonon-Resonanz zu sehen.

Die folgende Tabelle 2.1 faßt noch einmal alle wichtigen Materialparameter zusammen:

	a (Å)	ϵ^* (ϵ_0)	m_e (m_0)	m_{hh} (m_0)	m_{lh} (m_0)	m_{so} (m_0)
GaAs	5.653	0.36	0.067	0.4... 0.8	0.088	0.145
CdTe	6.482	0.42	0.090	0.72... 0.84	0.12	-

	ε_{st}	ε_{∞}	E_{B} (eV)	E_{LO} (meV)	\bar{v}_{S} (m/s)	E_{G} (eV)
GaAs	12.5	10.2	4.2	36	3860	1.520
CdTe	10.9	7.1	11	21	-	1.606

Tabelle 2.1: GaAs- und CdTe-Materialkonstanten: Gitterkonstante a , effektive Ladung in der Einheitszelle e^* , effektive Elektron- m_{e} , Schwerloch- m_{hh} und Leichtlochmasse m_{lh} , effektive Masse der abgespaltenen Löcher m_{so} , statische Dielektrizitätskonstante ε_{st} , Hochfrequenz-Dielektrizitätskonstante ε_{∞} , Bindungsenergie des 1s-Exzitons E_{B} , LO-Phonon-Energie E_{LO} , mittlere Schallgeschwindigkeit \bar{v}_{S} und Bandlücke E_{G} bei $T_{\text{L}} = 0$ K.

Kapitel 3

Der Zwei-Farben-Ti:Saphir-Laser

Der Zwei-Farben-Ti:Saphir-Laser ist die Quelle zweier fast perfekt synchronisierter fs-Lichtimpulse [Lei95], deren spektrale Eigenschaften ohne Beeinträchtigung des Kopplungsmechanismus der beiden Impulse zur Anpassung an experimentelle Bedürfnisse frei gewählt werden können [Für96]. Zudem bleibt die 76 MHz hohe Repetitionsrate erhalten, so daß bei einer Zeitauflösung von etwa 10 fs ultraschnelle dynamische Prozesse in kondensierter Materie mit hervorragender Statistik untersucht werden können.

Als aktives Medium wird mit Ti^{3+} -Ionen dotierter Saphir verwendet (Ti:Saphir) [Spe91]. Durch die Ankopplung des nichtabgeschirmten 3d-Elektrons von Ti^{3+} an das Phononbad des Wirtskristalls wird die Fluoreszenzbande so stark verbreitert, daß Lasertätigkeit im Spektralbereich von 700 nm bis 1000 nm möglich wird [Mou86]. In diesem Wellenlängenintervall liegen bei tiefen Temperaturen gerade die Bandlücken von vielen aus technologischer Sicht wichtigen und für die Grundlagenforschung interessanten Halbleitermaterialien, so z.B. von CdTe (770 nm), GaAs (820 nm) oder InP (860 nm). Der Zwei-Farben-Laser wird selbst wiederum effektiv in der Absorptionsbande von Ti:Saphir zwischen 400 nm und 600 nm [Agg88] mithilfe eines Argonionen- (bei 488 nm bzw. 514 nm) oder eines rauschärmeren frequenzverdoppelten Festkörperlasers (z.B. Nd:YVO₄, bei 532 nm) gepumpt. Er kann wegen der großen thermischen Leitfähigkeit (42 W/mK bei Raumtemperatur) und der hohen Zerstörschwelle von Saphir bei hoher Ausgangsleistung betrieben werden.

Wie man sich aus der Fouriertransformation eines im Zeitraum z.B. gaußförmigen Wellenpakets leicht klar macht, ist zur Erzeugung kurzer Impulse das Anschwingen vieler longitudinaler Resonatoreigenmoden mit fester Phasenbeziehung zueinander erforderlich (*Modenkopplung*). Zu diesem Zweck werden die resonatorinternen Verluste oder die Verstärkung synchron mit der Impulsumlaufzeit verändert [Kai88]. Beim Ti:Saphir-Laser erreicht man diese periodische Modulation ohne

aktive Elemente durch Ausnutzen der nichtlinearen Kristalleigenschaften, speziell der Intensitätsabhängigkeit des Brechungsindex (*Kerr-Effekt*): Da die zugrundeliegende nichtresonante elektronische Nichtlinearität keine Verzögerungseffekte einbringt, wird eine bestimmte momentane radiale Intensitätsverteilung der Lasermode in einen entsprechenden Brechungsindexgang umgesetzt. Für eine TEM_{00} -Mode wirkt dieser Prozeß wie eine Linse (*schwache Selbstfokussierung*). Die Resonatorgeometrie ist so gestaltet, daß bei den weiteren Umläufen die in-

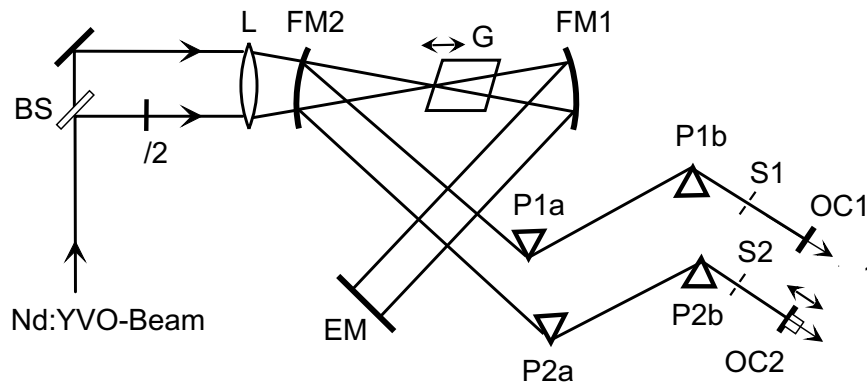


Abb. 3.1: Aufbau des Zwei-Farben-Ti:Saphir-Lasers: Die Abkürzungen bedeuten: BS: Strahlteiler; $\lambda/2$: Verzögerungsplatte zur Feinjustage der Pumpleistung; L: Linse ($f=10\text{ cm}$); FM1, FM2: Faltungsspiegel ($f=5\text{ cm}$); G: Laserkristall (Länge 6 mm); EM: flacher Endspiegel; P1a, P1b, P2a, P2b: Prismen aus synthetischem Quarzglas; S1, S2: Spalte; OC1, OC2: Auskoppelspiegel (plan, Transmission = 3%).

tensiven Impulsanteile besser mit dem gepumpten Kristallvolumen überlappen (*weiche Blende*) und eine höhere Verstärkung als die konkurrierende Dauerstrichmode erfahren. Die Grenze der Impulsverkürzung dieses durch Intensitätsfluktuationen selbst startenden Selektionsverfahrens (*passive Modenkopplung*) ist durch die Dispersion zweiter Ordnung im Resonator gesetzt [Spi94], die die o.g. feste Phasenbeziehung zerstört und ein Zerfließen des Wellenpakets bewirkt. Im Zweig mit der kürzeren Prismenstrecke (Abb. 3.1) wird die vom Saphir-Kristall eingebrachte positive Dispersion zweiter Ordnung nur schwach überkompensiert, was die Erzeugung sehr kurzer Lichtimpulse gestattet (Charakteristik in Abb. 3.2). Sie werden meist als Abtastimpulse zum Abfragen eines großen Spektralbereichs eingesetzt. Die Impulse des anderen Zweigs mit der stärker negativen Gruppengeschwindigkeitsdispersion sind spektral schärfer (Abb. 3.2) und dienen der definierten Anregung eines engeren Bereichs energetisch benachbarter Übergänge. Abb. 3.1 zeigt den in dieser Arbeit verwendeten Zwei-Farben-Ti:Saphir-Laser. Er besteht aus zwei astigmatisch kompensierten, longitudinal gepumpten Resonatoren, die die hochreflektierenden End- (EM) bzw. Faltungsspiegel (FM1, FM2)

und das Lasermedium (6 mm langer Ti:Saphir-Kristall) miteinander teilen. An den teildurchlässigen Spiegeln OC1/2, deren Transmissionscharakteristik die Zentralwellenlänge der Impulse festlegt, werden typischerweise 3% der umlaufenden Energie ausgekoppelt. Zusätzlich kann wegen der räumlichen Aufspaltung der Frequenzkomponenten nach den Prismen P1b und P2b die Wellenlänge durch die Spalte S1 und S2 eingestellt werden. Die Impulsdauern kontrolliert man über die totale Dispersion zweiter Ordnung im jeweiligen Zweig durch Variation des zu durchlaufenden Prismenmaterials, indem man P1b und P2b senkrecht zur Basis verschiebt.

Wesentlich für das Gelingen der Synchronisation der Impulse ist die Kopropagation entlang eines gemeinsamen Wechselwirkungsvolumens, das zur Vermeidung chaotischer Verstärkung nicht zu groß gewählt werden darf und im Kreuzungsbereich der Pumpstrahlen nur wenige Mikrometer beträgt. Sind die Resonatorlängen

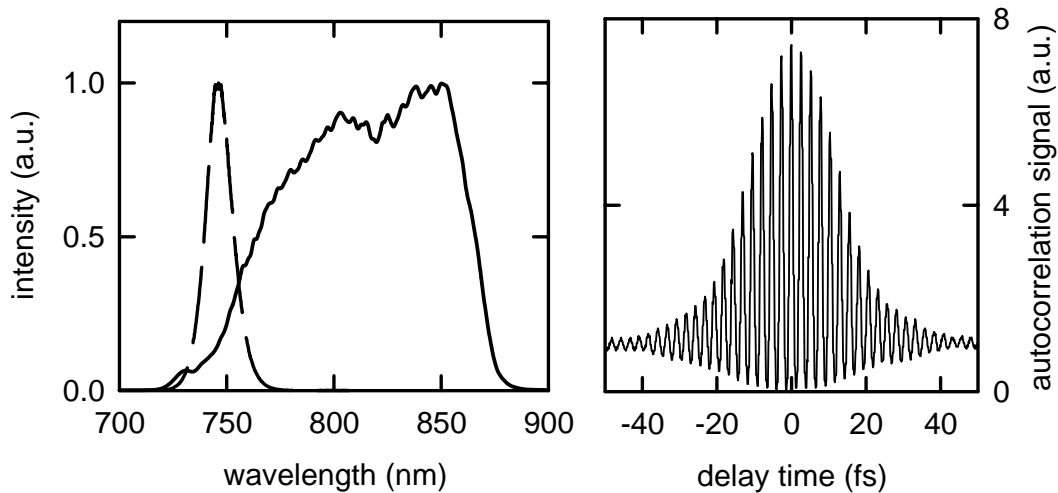


Abb. 3.2: Links: Typische Spektren der Impulse des Laserzweigs 1 (gestrichelt) mit 8 nm und des Zweigs 2 (durchgezogen) mit 100 nm Halbwertsbreite. Rechts: Autokorrelationsmessung der Impulse aus Zweig 2: $t_p = 16$ fs.

durch Piezo- und mechanische Zustellelemente von OC2 bis auf $\pm 1 \mu\text{m}$ angeglichen, setzt der effiziente Kopplungsmechanismus ein. Er beruht auf einem Zusammenspiel von negativer Gruppengeschwindigkeitsdispersion und Kreuzphasenmodulation [Für96]. Letztere bezeichnet die gegenseitige Phasenverschiebung in den Impulsen durch die Nichtlinearität des Brechungsindex. Wegen der Intensitätsverhältnisse wird nur die regelnde Wirkung der kürzeren Impulse aus Zweig 2 auf den Zweig 1 betrachtet. Angenommen der Impuls aus Zweig 1 trifft im gemeinsamen Kristallvolumen verzögert ein. Dann wird durch zur Zentralwellenlänge 1

asymmetrische Generation von Frequenzkomponenten bei der Kreuzphasenmodulation die Trägerfrequenz 1 leicht blauverschoben (typisch: Bruchteile eines Nanometers) [Bal88]. Wegen der negativen Gruppengeschwindigkeit impliziert dies eine kürzere Resonatorumlaufzeit. Der zeitliche Abstand zwischen den beiden Impulsen nimmt ab. Entsprechend verläuft die Argumentation im Falle eines früheren Eintreffens von Impuls 1 über die Rotverschiebung der Zentralwellenlänge 1.

Leistungsmerkmale des Lasers

Die wichtigsten Kennwerte des Zwei-Farben-Ti:Saphir-Lasers sind in folgender Tabelle noch einmal zusammengefaßt:

Impulsdauern:	15 - 150 fs
spektraler Abstimmbereich:	705 nm - 870 nm
typ. Ausgangsleistung pro Zweig:	80 - 400 mW
max. Impulsenergie:	7 nJ
Repetitionsrate:	76 MHz
gesamte Pumpleistung:	6 - 8 W
Jitter (Synchronisation):	< 2 fs

Tabelle 3.1: Kennwerte des Zwei-Farben-Ti:Saphir-Lasers. Die Impulsdauern sind die zeitlichen FWHM-Breiten.

Kapitel 4

Experimentelle Verfahren

Mit der Erzeugung von Femtosekunden-Lichtimpulsen konnte die Festkörperspektroskopie in den achtziger Jahren erstmals in den Zeitbereich vordringen, auf dem sich elementare elektronische Wechselwirkungen abspielen [Kai88]. Da die oft nur aus wenigen Lichtschwingungen bestehenden Impulse kürzer als die Energie- oder Phasenrelaxationszeit im Halbleiter sind, kann die Dynamik von injizierten Nichtgleichgewichts-Ladungsträgerverteilungen direkt verfolgt [Lei96a] und selbst die Energie-Zeit-Unschärfe bei Streuprozessen beobachtet werden [Für97a]. Auch die vom Laser den gebundenen [Leo90] oder freien [Jos97] Zuständen aufgeprägte Kohärenz, die die quantenmechanische *Phase* verschiedener Niveaus festlegt, äußert sich auf diesen Zeitskalen als hochfrequente Schwebung des Transmissionskoeffizienten (*Quanten-Beats*).

Daneben kann die Manipulation der Phase durch intensive Impulse auch zu stimulierter Erzeugung oder Rekombination von Elektronen und Löchern (*Rabi-Oszillationen*) [Schü99, Für97b] oder mit phasengekoppelten Impulsen sogar zum ultraschnellen Abschalten einer Anregung oder eines noch nicht abgeschlossenen Streuprozesses (*kohärente Kontrolle*) [Heb95, Weh98] eingesetzt werden.

Zwei der mächtigsten spektroskopischen Methoden zur Untersuchung vieler weiterer ultraschneller Effekte – die differentielle Transmissionsspektroskopie und das Vierwellenmischen – werden im folgenden vorgestellt.

Zeitlich und spektral aufgelöste Transmissionsspektroskopie

Zur differentiellen Transmissionsspektroskopie verwendet man ein Paar zeitlich korrelierter Lichtimpulse, von denen einer (*Pumpimpuls*) der Anregung elektronischer Zustände dient. Viele Aspekte der Relaxation werden bei energetisch relativ

scharfen Ladungsträgerverteilungen besser erkennbar, weshalb man den Pumpimpuls meist spektral schmal wählt. Die angeregte, schnell relaxierende Nichtgleichgewichtsverteilung ist mit einer ultraschnellen transienten Änderung der optischen Eigenschaften – z.B. des Transmissionskoeffizienten – verbunden, die ein zweiter schwächerer Impuls (*Probeimpuls*) mit einer mechanisch einstellbaren zeitlichen Verzögerung abfragt. Vorteilhaft sind kurze, spektral breite Abtastimpulse, die eine unwesentliche zeitliche Unschärfe einführen und gleichzeitig die Beobachtung eines weiten Energiebereichs gestatten. Um die gerade beschriebene Impulskonstellation zu erreichen, war man bisher darauf angewiesen, durch nichtlineare Prozesse wie Selbstphasenmodulation ein breitbandiges Probespektrum zu erzeugen. Wegen der dafür erforderlichen hohen Einzelimpulsenergien mußten die Laserimpulse nachverstärkt werden, was die Repetitionsraten auf einige kHz reduzierte. Die im Zwei-Farben-Ti:Saphir-Laser hingegen erhaltene hohe Repetitionsrate von 76 MHz erhöht die Empfindlichkeit der Messung um fast drei Größenordnungen [Lei96b].

Die Meßwerte werden als normierte Transmissionsänderungen $\Delta T/T_0 = (T - T_0)/T_0$ angegeben – als die durch den Pumpimpuls induzierte Änderung der Transmission dividiert durch die Transmission des Probeimpulses für den nichtangeregten Halbleiter. Bei Verzögerungen, die kürzer als die Phasenrelaxationszeit des Systems sind, müssen kohärente Signalbeiträge mit in Betracht gezogen werden (vgl. Einführung) [Flu87]. Die inkohärente Dynamik im Band-zu-Band-Kontinuum enthält wegen der reduzierten Absorption besetzter Zustände (Pauli-Verbot, Kap. 5.3) Informationen über die momentane Energieverteilung der Ladungsträger. Modifikationen durch Vielteilcheneffekte, die z.B. zu Veränderungen der Bandstruktur oder einer Verbreiterung der Niveaus führen, sind für freie Ladungsträger verglichen mit gebundenen Elektron-Loch-Paaren erst bei hohen Dichten von Bedeutung [Lei96a] (Kap. 5.3). In Abb. 4.1 ist der Aufbau des spektral und zeitlich aufgelösten Transmissionsexperiments dargestellt. Der Impulszug aus Zweig 1 des Zwei-Farben-Ti:Saphir-Lasers wird zur Anregung von Ladungsträgern in der auf einer Gittertemperatur von 20 K gehaltenen Halbleiterprobe verwendet. Aus Zweig 2 stammen die breitbandigen Abtastimpulse zum Abfragen der pumpinduzierten Transmissionsänderungen. Über die Länge der in $0.5\ \mu\text{m}$ -Schritten positionierbaren Verzögerungsstrecke (VD) kann der zeitliche Abstand der beiden Impulse eingestellt werden. Zur Untersuchung eines Bereichs möglichst homogener Anregungsdichte wird der Bündeldurchmesser des Probestrahls kleiner als der der Pumpimpulse gewählt. Das transmittierte Abtastlicht fällt nach spektraler Selektion im Doppelmonochromator (Spec) auf eine Siliziumphotodiode (P). Ein Lock-In-Verstärkersystem verarbeitet das aufgenommene Signal: Anregungs- und Abtastbündel sind durch Unterbrecherräder (C1/2, engl.: chopper) mit den Frequenzen 10 kHz und 12 Hz moduliert. Der Hochpaß-

filter (HP) mit einer Grenzfrequenz von 5 kHz trennt den großen Signalanteil ab, der von der Transmission des Probeimpulses durch den nichtangeregten Halbleiter stammt, so daß im zu C1 phasengekoppelten Lock-In-Verstärker I nur die durch Anregungsimpulse induzierten Signalkomponenten verstärkt werden. Lock-In II mißt phasengekoppelt zu C2 bei 12 Hz die Amplitude des Abtastsignals und dient zur Normierung des Signals in Lock-In I. Zuletzt filtert ein weiterer Lock-In-Verstärker III, der an C2 phasengekoppelt ist, das Quotientensignal bei 12 Hz heraus und unterdrückt damit in Richtung des Abtastbündel gestreutes Anregungslicht. Mit diesem Detektionsschema können kleinste Transmissionsänderungen an der Grenze des Schrotrauschens gemessen werden [Lei96b].

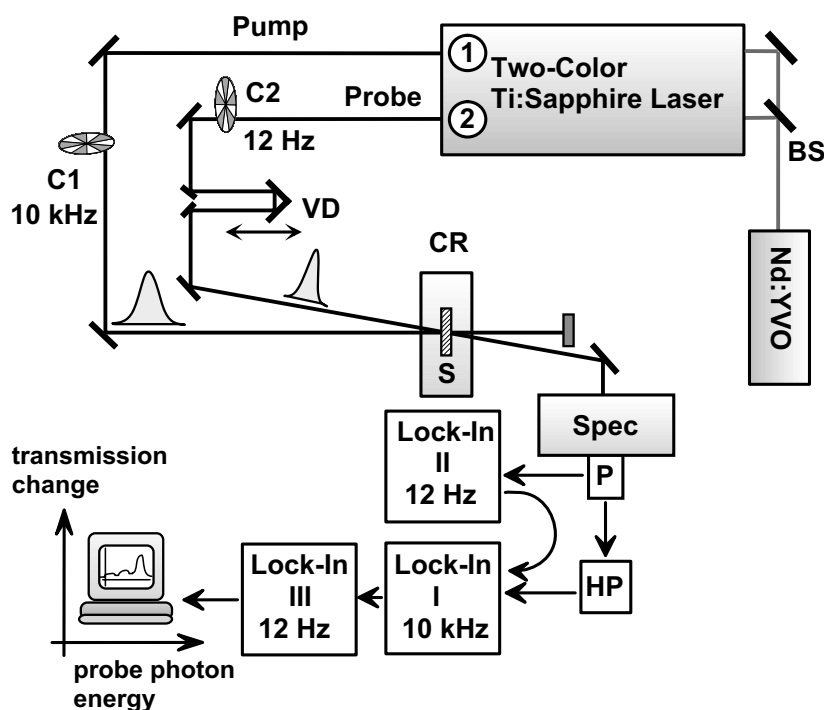


Abb. 4.1: Aufbau zur Messung zeitlich und spektral aufgelöster Transmissionsänderungen. Die Lichtimpulse für Anregung und Abtasten werden von Zweig 1 und 2 des Zweifarben-Ti:Saphir-Lasers bereitgestellt. Die Lock-In-Verstärker sind phasengekoppelt zu den Unterbrecherrädern der entsprechenden Modulationsfrequenz. Die Abkürzungen bedeuten: BS: Strahlteiler, C1/2: Unterbrecherräder, VD: Verzögerungsstrecke, S: Halbleiterprobe, CR: Helium-Kryostat, Spec: Doppelmonochromator, P: Siliziumphotodiode, HP: Hochpaßfilter.

Die Entstehung und der physikalische Gehalt von **Vierwellenmischungs-**Signalen wird in Kap. 5.4 erarbeitet. Entsprechenden Messungen in Kap. 7 ist jeweils der verwendete experimentelle Aufbau vorangestellt.

Kapitel 5

Ladungsträgerdynamik in Halbleitern

Dieses Kapitel beginnt mit einer phänomenologischen Übersicht über die Stadien der Relaxation von Polarisationen und Besetzungen eines optisch angeregten Halbleiters. Im Anschluß daran wird das theoretische Rüstzeug zur Behandlung der kohärenten und inkohärenten Ladungsträgerdynamik in Anwesenheit eines Lichtfelds hergeleitet. Ausgehend von den Halbleiter-Blochgleichungen wird die Signalentstehung bei Anrege-Abfrage- und Vierwellenmischungs-Experimenten erklärt. Beide Spektroskopiemethoden werden zur Untersuchung der im letzten Abschnitt besprochenen elementaren Wechselwirkungen von Ladungsträgern untereinander oder mit dem Kristallgitter eingesetzt.

5.1 Ladungsträger-Relaxation

Nach der Anregung durch einen ultrakurzen Lichtimpuls kehrt das System durch verschiedene Relaxationsprozesse wieder in den ursprünglichen thermodynamischen Gleichgewichtszustand zurück. Dieser Vorgang kann grob in vier charakteristische, teilweise überlappende Zeitabschnitte eingeteilt werden (Abb. 5.1), deren Dauer stark abhängig ist vom Subsystem (Ladungsträger, Phononen), von Materialparametern (effektive Massen, Polarizität des Kristalls) und von den Anregungsbedingungen (Gittertemperatur, Überschußenergie und Anregungsdichte der Ladungsträger).

Kohärentes Regime ($t_D \leq 200$ fs): Während der Wechselwirkung prägt der Laserimpuls dem System, insbesondere der Polarisation im Medium, eine wohldefinierte Phase auf. Diese Kohärenz geht nach der Anregung aber rasch über verschiedene Wechselwirkungsprozesse irreversibel verloren. Ein hochdichtes Elektron-Loch-Plasma mit $N \geq 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ führt zum Verlust der Phase der Interbandpolarisationen innerhalb einiger Femtosekunden [Bec88] und zerstört die wegen der Ladungsneutralität stabilere exzitonische Kohärenz binnen weniger als 100 fs [Schu86]. Bei niedrigeren Anregungsdichten gewinnt die langsamere Streuung mit Phononen an Bedeutung. Für sehr kleine Gittertemperaturen zerfällt die kohärente Interbandpolarisation hauptsächlich bei der Emission optischer Phononen durch Leitungsbandelektronen – ein Prozeß mit einer Zeitkonstante von 240 fs in GaAs [Lei96a].

Nichtthermisches Regime ($t_D \leq 2$ ps): Da phasenzerstörende Prozesse meist nur mit schwacher Energierelaxation verbunden sind, können die Verteilungsfunktionen von Elektronen und Löchern kurz nach der Anregung noch gut durch die spektrale Form des eingestrahnten Laserimpulses beschrieben werden. Stöße von freien Ladungsträgern oder Exzitonen führen für mittlere Dichten $N \geq 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ zu einer Thermalisierung der Nichtgleichgewichts-Verteilungen mit Zeitkonstanten von einigen 100 fs. Im Fall niedriger Anregungsdichte relaxieren freie Ladungsträger oder – in Systemen mit starker Elektron-Loch-Bindung – heiße Exzitonen durch Emission monoenergetischer LO-Phononen [Hie75]. Die Annäherung an thermische Verteilungen erfolgt dann über Streuung an akustischen Phononen.

Regime heißer Ladungsträger ($1 \text{ ps} \leq t_D \leq 100 \text{ ps}$): Die Subsysteme von Elektronen, Löchern, Exzitonen und Phononen werden nun durch i.a. unterschiedliche Temperaturen charakterisiert. Während Elektronen und Löcher über Coulombstreuung in wenigen Pikosekunden ins thermische Gleichgewicht kommen, dauert der Temperatenausgleich mit dem Gitter deutlich länger. In diesen Zeitabschnitt fällt auch die Bildung von Exzitonen aus Elektronen und Löchern mit geringem Kristallimpuls.

Isothermes Regime ($t_D \geq 100$ ps): Durch Rekombination der Ladungsträger wird schließlich wieder der Ausgangszustand erreicht. Verunreinigungen und freie Oberflächenzustände begünstigen schnelle, nichtstrahlende Prozesse.

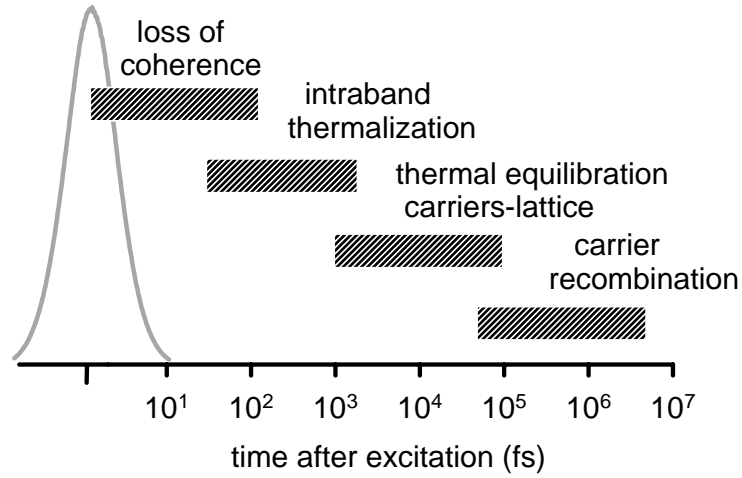


Abb. 5.1: Einteilung der Relaxation photogenerierter Ladungsträger in Halbleitern in vier teilweise überlappende Phasen (nach [Sha96]).

5.2 Theorie der kohärenten optischen Anregung

Grundsätzlich werden zwei verschiedene Ansätze verfolgt, um die Dynamik eines Vielteilchensystems in Wechselwirkung mit externen Feldern zu beschreiben. Der abstraktere Zugang geht von Nichtgleichgewichts-Greensfunktionen aus, die systematische störungstheoretische Entwicklungen zulassen. Die formale Lösung ihrer Bewegungsgleichungen führt jedoch auf ein kompliziertes Integral-Differentialgleichungssystem zweizeitiger Greensfunktionen und Propagatoren [Hau88, Zim88], die nur näherungsweise mithilfe des Kadanoff-Baym-Ansatzes zu einzeitigen Funktionen reduziert werden können [Kad62], aus denen sich die physikalischen Observablen einfacher berechnen lassen.

Unmittelbar mit einzeitigen Einteilchen-Erwartungswerten setzt der Dichtematrixformalismus an, der wegen seiner größeren Anschaulichkeit im folgenden verwendet wird. Die augenblicklichen Systemeigenschaften werden darin durch die reduzierten Dichtematrizen $\rho_{k,k'}^e(t) = \langle c_k^\dagger(t) c_{k'}(t) \rangle$, $\rho_{k,k'}^h(t) = \langle d_k^\dagger(t) d_{k'}(t) \rangle$ und $\rho_{q,q'}^{\text{ph}}(t) = \langle a_q^\dagger(t) a_{q'}(t) \rangle$, speziell die Elektron- (n^e) und Lochdichten (n^h) sowie die Interbandpolarisation (p), beschrieben:

$$n_k^e(t) = \langle c_k^\dagger(t) c_k(t) \rangle, \quad n_k^h(t) = \langle d_k^\dagger(t) d_k(t) \rangle, \quad p_k(t) = \langle c_k^\dagger(t) d_{-k}^\dagger(t) \rangle. \quad (5.1)$$

c_k^\dagger (d_k^\dagger) und c_k (d_k) sind Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren für Leitungsbandelektronen (Löcher im Valenzband) mit Wellenvektor k und Energie $\epsilon_k^{e(h)}$. a_q^\dagger erzeugt ein Phonon mit Impuls q und Frequenz ω_q . Die zeitliche Entwicklung der

Einteilchenkorrelationen wird vom Hamiltonoperator H_0 der ungestörten Teilsysteme der Elektronen, Löcher und Phononen und vom Hamiltonoperator H_I der Wechselwirkungen der Subsysteme bestimmt.

$$H_0 = \sum_k \epsilon_k^e c_k^\dagger c_k + \sum_k \epsilon_k^h d_k^\dagger d_k + \sum_{k \neq 0} \hbar \omega_k \left(a_k^\dagger a_k + \frac{1}{2} \right). \quad (5.2)$$

$$H_I = H_{c-c} + H_{c-ph} + H_I \quad (5.3)$$

Der Hamiltonoperator der Coulomb-Streuung von Ladungsträgern besteht aus Produkten von jeweils vier Operatoren, die Teilchen in den Zuständen k und k' vernichten und in $k + q$ und $k' - q$ erzeugen:

$$H_{c-c} = \sum_{k,k',q} V_q (c_{k+q}^\dagger c_{k'-q}^\dagger c_{k'} c_k + d_{k+q}^\dagger d_{k'-q}^\dagger d_{k'} d_k - 2 c_{k+q}^\dagger d_{k'-q}^\dagger d_{k'} c_k) \quad (5.4)$$

Die Stärke der Wechselwirkung ist durch V_q , die räumliche Fouriertransformierte des (abgeschirmten) Coulombpotentials, gegeben.

Schwingungen des Kristallgitters können die Einheitszelle deformieren und lokal die Bandstruktur verändern oder in nicht inversionssymmetrischen polaren Halbleitern über ein Polarisationsfeld mit Ladungsträgern wechselwirken. Phononabsorptions- oder -emissionsprozesse durch Elektronen bzw. Löcher beschreibt der Operator

$$H_{c-ph} = \sum_q M_q \left(a_q c_k^\dagger c_{k-q} + a_q d_k^\dagger d_{k-q} + cc \right). \quad (5.5)$$

Die Kopplungskonstante M_q hängt von der Art der Wechselwirkung, der beteiligten Phononmode und dem Bandindex ab (siehe Kap. 5.5.1).

Die Wechselwirkung von Ladungsträgern mit einem eingestrahlt Lichtfeld erfaßt der Hamiltonoperator

$$H_I = \sum_k E(t) \left(c_k^\dagger d_{-k}^\dagger d_{cv} + cc \right), \quad (5.6)$$

der das elektrische Feld $E(t)$ der Lichtwelle an den Dipoloperator $c_k^\dagger d_{-k}^\dagger$ mit der Stärke des Interband-Dipolmatrixelements d_{cv} koppelt.

Im Heisenbergbild entwickelt sich eine Observable $O = \text{Tr}(\rho O) = \langle O \rangle$ gemäß $\partial_t O = i/\hbar [H, O]_-$. Angewandt auf die experimentell interessanten Größen $n_k^e(t)$, $n_k^h(t)$ und $p_k(t)$ ergibt sich ein Gleichungssystem, das neben Besetzungs- und Polarisationsstermen auch Erwartungswerte von Produkten dreier Operatoren enthält.

Versuche, die Gleichungen durch die Lösung der Bewegungsgleichungen für diese Korrelationen zu schließen, scheitern wegen des Auftretens von Korrelationen der nächsthöheren Stufe. Bricht man in Hartree-Fock-Näherung nach Termen linear in den Kopplungskonstanten ab, gelangt man zu den **Halbleiter-Blochgleichungen**, die die durch kohärente Beiträge verbundene Dynamik von Besetzungen und Polarisierungen beschreiben und grundlegend für das Verständnis der Licht-Materie-Wechselwirkung im Halbleiter sind:

$$\begin{aligned} \partial_t p_k &= -i (e_k^e + e_k^h) p_k - i (n_k^e + n_k^h - 1) \omega_{R,k} + \partial_t p_k |_{\text{col}} \\ \partial_t n_k^e &= -2 \text{Im} (\omega_{R,k} p_k^*) + \partial_t n_k^e |_{\text{col}} \\ \partial_t n_k^h &= -2 \text{Im} (\omega_{R,k} p_k^*) + \partial_t n_k^h |_{\text{col}} \end{aligned} \quad (5.7)$$

Die Kollisionsterme (col) fassen Ladungsträger-Ladungsträger-, Ladungsträger-Phonon-Streuterme und Korrekturen zur oben vorgenommenen Näherung zusammen.

Entgegen dem ersten Anschein sind die Gleichungen nichtlinear in n und p . Vielteilcheneffekte erzeugen Austauschsterme höherer Ordnung und mischen Terme mit verschiedenen Wellenvektoren. Sie äußern sich in der Renormierung der Einzelchenenergien ϵ_k^i durch die Coulombwechselwirkung der Ladungsträger zu

$$e_k^i = \epsilon_k^i - \sum_q V_{|k-q|} n_q^i, \quad i = e, h. \quad (5.8)$$

Polarisationen und Besetzungen werden nicht vom äußeren Feld allein, sondern von einem effektiven lokalen Feld getrieben, das zusätzlich das Dipolfeld angeregter Elektron-Loch-Paare enthält. Die vom Lichtfeld induzierte Drehung des Blochvektors – eines aus Polarisation und Besetzungsdifferenz gebildeten Pseudovektors (siehe Kap. 5.4) – erfolgt deshalb mit der *verallgemeinerten Rabi-Frequenz*

$$\omega_{R,k} = \frac{1}{\hbar} \left[d_{cv} E + \sum_{q \neq k} V_{|k-q|} p_q \right]. \quad (5.9)$$

Im folgenden wird anhand der Halbleiter-Blochgleichungen erklärt, wie Pump-Probe- und Vierwellenmischungs-Signale entstehen und welche physikalisch interessanten Informationen in ihnen enthalten sind.

5.3 Signal bei Anrege-Abfrage-Experimenten

Bei Pump-Probe-Experimenten regt ein Pump-Impuls elektronische Zustände im Halbleiter an, deren Relaxation mit ultraschnellen Änderungen der optischen Eigenschaften des Materials verbunden ist. Ein nach einer Zeitverzögerung t_D durch die Probe transmittierter Impuls fragt die induzierte Transmissionsänderung ab (Kap. 4). Vernachlässigt man die nur kurze Zeit im System vorliegende kohärente Polarisation und setzt verglichen mit der Phasenrelaxationszeit langsam veränderliche Ladungsträgerverteilungen voraus, so kann man in erster Ordnung des Coulombpotentials für die nichtlineare Antwort des Systems – die Polarisation dritter Ordnung – aus den Halbleiter-Blochgleichungen drei für die spektrale Form des differentiellen Transmissionsignals maßgebliche Terme ableiten [EIS98]:

Phasenraumfüllung (engl.: phase space filling, PSF): Angeregte Elektronen und Löcher blockieren wegen des Paulischen Ausschlußprinzips für Fermionen optische Übergänge. Die pumpinduzierte Änderung der Absorption, die proportional zum Imaginärteil der Suszeptibilitätsänderung

$$\Delta\chi(\omega)|_{\text{PSF}} \sim -|d_{cv}|^2 \sum_k \frac{f_k}{\epsilon_k - \omega - i\gamma} \quad (5.10)$$

ist, folgt spektral genau der *Summe von Elektron- und Lochverteilungsfunktionen* $f_k = n_k^e + n_k^h$ (gestrichelte Linie in Abb. 5.2). ϵ_k bedeutet die Interbandübergangsenergie; γ ist eine phänomenologische Dämpfung.

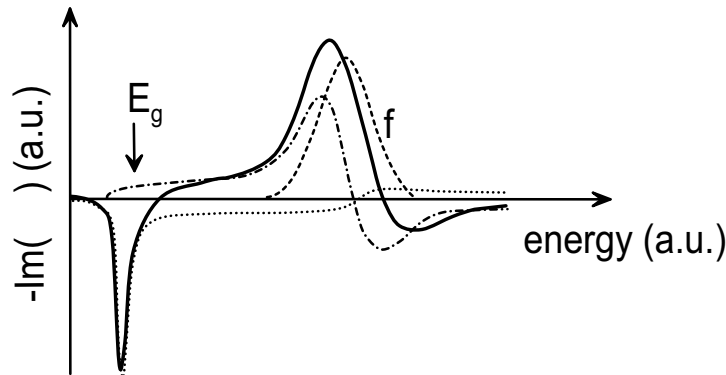


Abb. 5.2: Schematische Darstellung der verschiedenen Signalbeiträge in der differentiellen Transmissionspektroskopie nach Einbringen von Ladungsträgern der spektralen Verteilung f (gestrichelt): Phasenraumfüllung (wie f), Bandkantenrenormierung (gepunktet) und lokale Feldeffekte (strich-punktiert). Die Summe dieser Effekte ist durchgezogen eingezeichnet.

Bandkantenrenormierung (engl.: band gap renormalization, BGR): Die Renormierung der Einteilchendispersion ($\epsilon_k \rightarrow e_k$) durch das Coulombpotential pumpgenerierter Ladungsträger bewirkt im wesentlichen eine Verschiebung des gesamten Absorptionsspektrums zu niedrigeren Photonenenergien. Die Suszeptibilitätsänderung

$$\Delta\chi(\omega)|_{\text{BGR}} \sim |d_{cv}|^2 \sum_k \frac{\sum_{k'} V_{|k-k'|} f_{k'}}{(\epsilon_k - \omega - i\gamma)^2} \quad (5.11)$$

ergibt nahe der Bandkante eine starke Absorptionszunahme, während sie höher im Absorptionskontinuum nur einen geringen strukturlosen Untergrund beiträgt (gepunktete Linie in Abb. 5.2).

Lokale Feldeffekte (engl.: local field effects, LFE): Bei der Absorption von Photonen spielt auch die Korrelation der erzeugten Ladungsträger eine wichtige Rolle. Nahe der Bandkante wird das Übergangsmatrixelement durch die Coulombanziehung von Elektronen und Löchern stark überhöht verglichen mit dem Fall wechselwirkungsfreier Ladungen (vgl. Kap. 2 und 6.1). Ein Maß für die Stärke der Korrelation gibt der Sommerfeld-Überhöhungsfaktor, der Quotient der Absorptionskoeffizienten mit und ohne Coulomb-Wechselwirkung. Pumpinduzierte Ladungsträger modifizieren die Elektron-Loch-Korrelation gegenüber dem nichtangeregten Halbleiter und damit den Sommerfeld-Faktor. Die resultierende Transmissionsänderung berechnet sich aus dem Imaginärteil von

$$\Delta\chi(\omega)|_{\text{LFE}} \sim -|d_{cv}|^2 \sum_k \frac{f_k}{\epsilon_k - \omega - i\gamma} \sum_{k'} \frac{V_{|k-k'|}}{\epsilon_{k'} - \omega - i\gamma} \quad (5.12)$$

und verläuft spektral wie die Ableitung der Verteilungsfunktion nach der Übergangsenergie. Energetisch oberhalb des Maximums der Nichtgleichgewichts-Verteilung ergibt sich induzierte Absorption und unterhalb ein Ausbleichen.

Die Summe dieser Effekte für eine inkohärente Ladungsträgerverteilung $f = n^e + n^h$ ist in Abb. 5.2 dargestellt. Bei moderaten Coulombeffekten bzw. kleiner Exziton-Bindungsenergie gibt das differentielle Transmissionsspektrum mit leichter Rotverschiebung die Verteilungsfunktion f wieder.

5.4 Vierwellenmischsignale

Direkten Zugriff auf die nach der Anregung durch einen Laserimpuls im System verbleibende kohärente Polarisation ermöglicht die Vierwellenmischung. Um das Zustandekommen des Signals zu veranschaulichen, werden zunächst einige Vereinfachungen an den Halbleiter-Blochgleichungen vorgenommen:

Durch einen Relaxationsansatz für die in den Kollisionstermen enthaltenen Streuprozesse

$$\partial_t n_k^{e,h}|_{\text{col}} \rightarrow n_k^{e,h}/T_1, \quad \partial_t p_k|_{\text{col}} \rightarrow p_k/T_2 \quad (5.13)$$

werden dem Besetzungszerfall eine **longitudinale** Relaxationszeit T_1 und dem irreversiblen Abklingen der kohärenten Polarisation die **transversale** Relaxationszeit T_2 zugeordnet. Vorerst wird auch die Coulombwechselwirkung der Ladungsträger vernachlässigt, was zur Entkopplung von Termen unterschiedlicher Wellenvektoren in den Gleichungen und damit auf ein Ensemble nichtwechselwirkender Zwei-Niveau-Systeme führt. Betrachtet man nur zur Zentralfrequenz ω des anregenden Lichtfeldes nahresonante Anteile (*rotating wave approximation* [Hau94]) und definiert den Blochpseudovektor $\mathbf{U}_k(t)$ über Real- und Imaginärteil der Polarisation in den ersten beiden Komponenten und die Besetzungsdifferenz in der dritten Komponente

$$\mathbf{U}_k(t) = \begin{pmatrix} p_k(t) e^{i\omega t} + \text{cc} \\ i(p_k(t) e^{i\omega t} - \text{cc}) \\ n_k^e(t) + n_k^h(t) - 1 \end{pmatrix} \quad (5.14)$$

so ergibt sich folgende Bewegungsgleichung, die **optische Blochgleichung**:

$$\partial_t \mathbf{U}_k(t) = \Gamma (\mathbf{U}_k(t) + \hat{\mathbf{e}}_3) + \boldsymbol{\Omega}(t) \times \mathbf{U}_k(t) \quad (5.15)$$

$\nu_k = E_G + \epsilon_k^e + \epsilon_k^h - \omega$ ist dabei definiert als Verstimmung zwischen der Übergangsfrequenz und der Frequenz des treibenden Lichtfeldes. Γ ist die diagonale Dämpfungsmatrix, deren Komponenten longitudinale und transversale Relaxationsraten enthalten: $\Gamma_{11} = \Gamma_{22} = 1/T_2$, $\Gamma_{33} = 1/T_1$. Der Vektor der Rotationsfrequenz

$$\boldsymbol{\Omega}(t) = \omega_R(t) \hat{\mathbf{e}}_1 + \nu_k \hat{\mathbf{e}}_3 \quad (5.16)$$

beschreibt eine reine Drehung des Blochvektors \mathbf{U}_k . Die Lage von \mathbf{U}_k im Blochvektordiagramm nach Einstrahlung eines resonanten Impulses mit der Einhüllenden $E_0(t)$ ist durch den Winkel θ zur z-Achse – die *Impulsfläche* – gegeben:

$$\theta = \int_{-\infty}^{\infty} \omega_R dt = \int_{-\infty}^{\infty} E_0(t) d_{cv} / \hbar dt. \quad (5.17)$$

Beim **Zweistrahls-Vierwellenmischen** werden zwei Laserimpulse mit Wellenvektoren \mathbf{k}_1 und \mathbf{k}_2 gekreuzt auf die Halbleiterprobe eingestrahlt [Sha96]. Das abgebeugte Signal in Richtung $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ entsteht im Blochvektorbild für eine

einzelne, **homogen verbreiterte** Resonanz, z.B. eine Exzitonlinie, auf folgende Weise: Der erste, der Einfachheit halber senkrecht auftreffende Impuls regt das System aus dem Grundzustand (Blochvektor $-\hat{e}_3$) heraus an und erzeugt durch Drehung des Blochvektors um den Winkel θ_1 eine kohärente Polarisation (Projektion von \mathbf{U}_k auf die x-y-Ebene) und eine Besetzungsdifferenz (z-Komponente von \mathbf{U}_k). Nach einer bestimmten Zeitverzögerung t_{21} trifft unter dem Winkel ϕ ein

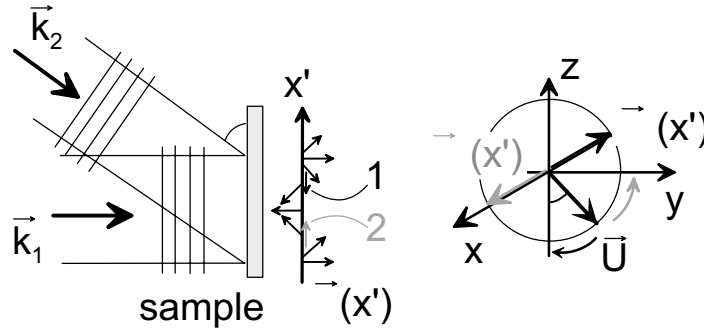


Abb. 5.3: Zur Entstehung des Vierwellenmischsignals bei einer isolierten, homogen verbreiterten Resonanz: Nach der Anregung einer kohärenten Polarisation durch Impuls 1 werden die ausgelenkten Blochvektoren \vec{U} durch den unter dem Winkel Φ einfallenden Impuls 2 je nach Ort auf der Probe zu verschiedenen Deklinationen gedreht. Die Phase des Rotationsvektors $\vec{\Omega}$ entlang der Schnittgerade der Probenebene und der Ebene der eingestrahlichten Impulse legt die weitere Operation an \vec{U} fest. Bei Position 1 wird der Blochvektor zu größeren, an Position 2 zu kleineren Besetzungsdifferenzen gedreht. Am entstandenen Besetzungsgitter wird der zweite Impuls abgebeugt.

zweiter Impuls ein, dem ein Rotationsvektor Ω mit der Phase $k_2 x' \cos \phi + \text{const.}$ zugeordnet ist. x' bezeichnet die Koordinate auf der Geraden, die beim Schnitt der von k_1 und k_2 aufgespannten Ebene mit der Probenebene entsteht. Je nach Position auf der Probe wird der Blochvektor zu größeren oder kleineren Deklinationen θ , d.h. Besetzungsdifferenzen gedreht. Es bildet sich ein Gitter mit modulierter Absorption, an dem Teile des zweiten Impulses in die erste Ordnung $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ abgebeugt werden. Die Abbeugeeffizienz ist abhängig vom Modulationshub, der wiederum bestimmt ist durch die nichtdephasierte, von Impuls 1 erzeugte Polarisation. Für die Intensität I_S des Vierwellenmisch-Signals als Funktion von t_{21} ergibt sich unter der Voraussetzung, daß die Dauer der Anregungsimpulse kürzer als die Phasenrelaxationszeit ist:

$$I_S(t_{21}) \sim e^{-2 t_{21}/T_2}. \quad (5.18)$$

Im **inhomogen verbreiterten** Ensemble treten nach der kohärenten Anregung, hier z.B. durch einen Impuls mit der Impulsfläche $\pi/2$, Unterschiede zur homogen verbreiterten Resonanz auf. Die zu niedrigeren Übergangsfrequenzen gehörenden

Blochvektoren mit negativer Verstimmung ν_k rotieren langsamer als die höherer Übergangsenergien (positives ν_k), was den raschen Zerfall der makroskopischen Polarisation innerhalb der inversen angeregten Frequenzbandbreite bedeu-

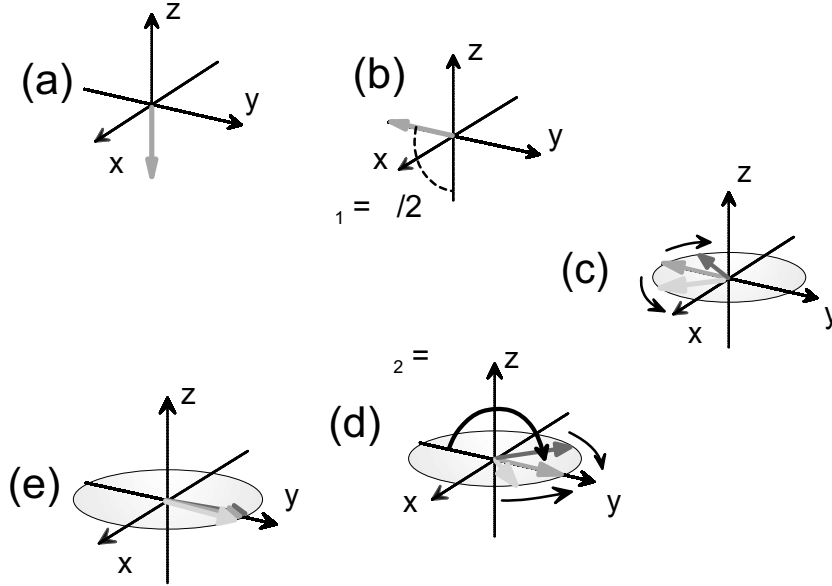


Abb. 5.4: Vierwellenmischen am inhomogen verbreiterten Ensemble: der erste Impuls regt bei $t=0$ im System, das sich für $t < 0$ im Grundzustand befunden hat (a), eine makroskopische Polarisation an (b), die wegen des breiten Spektrums beteiligter Übergänge rasch zerfällt (c). Die reversible natürliche Dephasierung wird durch den bei $t = t_{21}$ eingestrahlichten zweiten Impuls umgekehrt (d). Zum Zeitpunkt $t = 2 \times t_{21}$ sind sämtliche mikroskopischen Polarisationen und die Besetzungsuntergitter wieder in Phase (e): das Vierwellenmischsignal wird emittiert.

tet (Abb. 5.4(c)). Der zweite Impuls – im Beispiel mit der Impulsfläche π – dreht die Blochvektoren verschiedener Übergänge um \hat{e}_1 (Abb. 5.4 d) und erzeugt eine Verteilung phasenverschobener Populationsuntergitter. Da die Gesamtpopulation räumlich homogen ist, kann er nicht instantan abgebeugt werden. Vielmehr leitet er die Umkehr der natürlichen, reversiblen Dephasierung ein. Zum Zeitpunkt t_{21} nach dem zweiten Impuls sind die Polarisationen und die Untergeritter aller Übergänge aus dem inhomogenen Ensemble wieder in Phase, es wird eine makroskopische Polarisation in Richtung $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ abgebeugt (Abb. 5.4 e). Das ausgesandte Signal wird **Photonecho** genannt. Wegen der um t_{21} verzögerten Emission wirken irreversibel dephasierende Prozesse doppelt so lange wie bei einem homogen verbreiterten Ensemble, weshalb für die Signalintensität gilt:

$$I_S(t_{21}) \sim e^{-4t_{21}/T_2}. \quad (5.19)$$

5.5 Wechselwirkungen freier Ladungsträger

In undotierten Halbleitern mit vernachlässigbarer Störstellenkonzentration existieren zwei auf ultrakurzen Zeitskalen wirksame Streukanäle für freie Ladungsträger: die Streuung von Ladungsträgern an Gitterschwingungen und Stöße der Ladungsträger untereinander.

5.5.1 Ladungsträger-Phonon-Streuung

Die Basis der elektronischen Zustände wird aufgespannt von den Eigenfunktionen des zeitunabhängigen Hamiltonoperators des starren Kristallgitters – den Blochwellenfunktionen:

$$\psi_{s,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = u_{s,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} \quad (5.20)$$

$u_{s,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ besitzt die räumlichen Symmetrieeigenschaften des Gitters. Trägt man die Energieeigenwerte gegen den Kristallimpuls \mathbf{k} auf, so erhält man die mit dem Index s unterschiedenen Energiebänder. Schwingungen der Ionen des Kristallgitters stören die Translationsinvarianz und verursachen in einfachster Näherung eine zusätzliche, zeitlich harmonische Komponente H_{c-ph} im Hamiltonoperator. In niedrigster Ordnung hängt H_{c-ph} linear von der Auslenkung $\delta\mathbf{R}$ der Atome aus der Gleichgewichtslage oder der Differenz der Auslenkungen in benachbarten Elementarzellen ab. Ausgedrückt durch Phononerzeugungs- (a^\dagger) und -vernichtungsoperatoren (a) gilt

$$\delta\mathbf{R} = \sum_{\mathbf{q},b} \left(\frac{\hbar}{2N V \rho \omega_{\mathbf{q},b}} \right)^{1/2} \hat{\mathbf{e}}_{\mathbf{q},b} \left(a_{\mathbf{q},b}^\dagger e^{i(\mathbf{q}\mathbf{R} - \omega_{\mathbf{q},b} t)} + a_{\mathbf{q},b} e^{-i(\mathbf{q}\mathbf{R} - \omega_{\mathbf{q},b} t)} \right). \quad (5.21)$$

N ist die Zahl der Einheitszellen im Kristall, \mathbf{R} bezeichnet einen Gittervektor, b indiziert den Phononast, V und ρ sind Volumen und Dichte der primitiven Einheitszelle, $\hat{\mathbf{e}}_{\mathbf{q},b}$ und $\omega_{\mathbf{q},b}$ stellen Polarisation und Kreisfrequenz der Phononmode b dar. Für akustische Schwingungsmoden bedeutet $\delta\mathbf{R}$ die Verschiebung der Elementarzelle aus der ursprünglichen Gleichgewichtsposition \mathbf{R} . Bei optischen Phononen in Kristallen mit zwei Atomen in der Einheitszelle stellt $\delta\mathbf{R}$ die Verschiebung der beiden Atome gegeneinander dar. Im Fall schwacher Elektron-Phonon-Kopplung können die von H_{c-ph} induzierten Übergänge $|i\rangle \rightarrow |f\rangle$ zwischen elektronischen Eigenzuständen des ungestörten Systems nach Fermis Goldener Regel berechnet werden:

$$\Gamma_{if} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle f | H_{c-ph} | i \rangle|^2 \delta(E_f - E_i) \quad (5.22)$$

$|i\rangle$ und $|f\rangle$ sind dabei Produkte aus Einelektronen- und harmonischen Oszillatorwellenfunktionen. Die von der Diracschen Deltafunktion $\delta(E_f - E_i)$ erzwungene Energieerhaltung gilt streng nur auf einer Zeitskala, die lang gegenüber der Oszillationsperiode der ausgetauschten Quanten ist (Heisenbergsche Unschärferelation). Kurze Zeit nach Einschalten der Wechselwirkung ist die Energie nur für ein ganzes Ensemble von Teilchen erhalten; kann die Dauer einer Kollision mit dem Gitter, für die die Phononoszillationsperiode ein Maß darstellt, nicht mehr gegenüber der Streuzeit (Zeit zwischen aufeinanderfolgenden Stößen) vernachlässigt werden, so versagt die nur mit Amplituden bzw. Besetzungszahlen operierende Boltzmannkinetik. Die Ladungsträgerdynamik wird nun entscheidend von den Phasen der Wellenfunktionen bestimmt: in die Bewegungsgleichungen für die Polarisationen und Besetzungen geht zeitlich integral die Vorgeschichte des Systems bis zum Beobachtungszeitpunkt mit einer gedämpften Erinnerungsfunktion ein (*Phonon-Quantenkinetik* [Hau96, Für97a]).

Grundsätzlich kommt die Wechselwirkungsenergie durch zwei verschiedene Kopplungsmechanismen zwischen Ladungsträgern und Gitterschwingungen zustande: 1. Die bloße Deformation der Einheitszelle verändert die Bandstruktur und damit die Ladungsträgerenergie, 2. Die Auslenkung der Ionen in einem polaren Halbleiter erzeugt ein Dipolfeld und damit ein zusätzliches Coulombpotential für die Ladungsträger. Spaltet man den Wechselwirkungs-Hamiltonoperator in $H_{c-ph} = H_{q,b}(\mathbf{r}) e^{\pm i \mathbf{q} \mathbf{R}}$ auf, so erhält das Matrixelement in Gleichung 5.22 folgende Struktur:

$$\begin{aligned}
\langle f | H_{c-ph} | i \rangle &= C_{q,b}^{\text{ph}} C_{q,b}^{\text{c}} I(\mathbf{k}, \mathbf{k}') \sqrt{n_{q,b}^{\text{ph}} + \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2}} \delta_{\mathbf{k} \mp \mathbf{q} - \mathbf{k}', \mathbf{G}} \delta_{n', n \pm 1} \\
C_{q,b}^{\text{c}} &= \int_{\text{EZ}} \psi_{s', \mathbf{k}'}(\mathbf{r}) H_{q,b}(\mathbf{r}) \psi_{s, \mathbf{k}}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} / I(\mathbf{k}, \mathbf{k}') \\
I(\mathbf{k}, \mathbf{k}') &= \int_{\text{EZ}} \psi_{s', \mathbf{k}'}(\mathbf{r}) \psi_{s, \mathbf{k}}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \\
C_{q,b}^{\text{ph}} &= \sqrt{\frac{\hbar}{2 N V \rho \omega_{q,b}}} \\
C_{q,b} &= C_{q,b}^{\text{ph}} C_{q,b}^{\text{c}} \tag{5.23}
\end{aligned}$$

Die Impulserhaltung $\delta_{\mathbf{k} \pm \mathbf{q} - \mathbf{k}', \mathbf{G}}$ folgt aus der Integration der von \mathbf{R} abhängigen Anteile über den gesamten Kristall. Das obere (untere) Vorzeichen gilt für die Emission (Absorption) eines Phonons. Für die in dieser Arbeit untersuchten Ladungsträger nahe der Brillouinzone Mitte spielen Umklapp-Prozesse keine Rolle ($\mathbf{G} = 0$). Das Matrixelement läßt sich also als Produkt aus einem Überlappfaktor $I(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$ der Anfangs- und Endzustände der Ladungsträger und einem von der speziellen Wechselwirkung und dem Phononwellenvektor abhängigen Kopplungs-

parameter $C_{\mathbf{q},b}$ schreiben. $I^2(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$ ist für das im Γ -Tal sphärisch-parabolische Leitungsband gleich eins [Wil71], während innerhalb der Leicht- und Schwerlochbänder $I^2(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = (1 + 3 \cos^2 \theta_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'})/4$ gilt. $\theta_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}$ bezeichnet dabei den Winkel zwischen den Wellenvektoren des Loch-Anfangs- und -Endzustands. Die Gesamtstreurate eines Ladungsträgers ergibt sich aus der Integration über alle möglichen Endzustände im Phasenraum:

$$\Gamma_s(k) = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_{s', \mathbf{q}, b, \pm} |C_{\mathbf{q},b}^s|^2 \left(n_{\mathbf{q},b} + \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2} \right) \delta(e_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{s'} - e_{\mathbf{k}}^s \pm \hbar\omega_{\mathbf{q},b}) \quad (5.24)$$

$s = e, h$. Für stimulierte Prozesse typisch ist das Auftreten der Phononbesetzungszahl $n_{\mathbf{q},b}$, das den bosonischen Charakter der Gitterschwingungen widerspiegelt.

Polar-optische Streuung

Optische Phononen sind Moden mit gegenläufigen Bewegungen der Atome in der Elementarzelle. Liegt ein Kristallgitter mit zwei unterschiedlich geladenen Atomen in der primitiven Einheitszelle vor, so erzeugt eine langwellige longitudinale optische Mode ein makroskopisches, oszillierendes elektrisches Dipolfeld, an das die Ladung der Elektronen koppeln kann. Diese Art der Wechselwirkung von Elektronen mit optischen Phononen wird polar-optische oder **Fröhlich-Wechselwirkung** [Frö37] genannt. Während der Mechanismus in Elementhalbleitern wie Si oder Ge wegen des fehlenden polaren Bindungscharakters nicht auftritt, stellt er in III-V- und II-VI-Verbindungshalbleitern den wichtigsten und schnellsten Kanal für den Austausch von Energie und Impuls zwischen Elektronensystem und Kristallgitter dar [Con68]. Die Wechselwirkungsenergie zwischen der Raumladungsdichte der Elektronen und dem von der Gitterpolarisation erzeugten elektrischen Potential beschreibt der Fröhlich-Störoperator:

$$\begin{aligned} H_{\text{Fr}} &= \int \rho(\mathbf{R}) \Phi(\mathbf{R}) d\mathbf{R} = -\frac{1}{\varepsilon_0} \int \mathbf{D}(\mathbf{R}) \mathbf{P}(\mathbf{R}) d\mathbf{R} = \\ &= \frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \int \nabla \left(\frac{e}{|\mathbf{r} - \mathbf{R}|} e^{-q_0|\mathbf{r} - \mathbf{R}|} \right) \frac{e^* \delta \mathbf{R}}{V} d\mathbf{R}. \end{aligned} \quad (5.25)$$

e^* ist die effektive Ladung der beiden Atome, V das Einheitszellenvolumen und q_0 der Wellenvektor der Abschirmung des Coulombpotentials durch andere Ladungsträger. Aus H_{Fr} kann man mit Gleichung 5.23 die Kopplungskonstante berechnen:

$$C_q^2 = \frac{\hbar e^2 \omega_{\text{LO}}}{2 \varepsilon_0 V} \left(\frac{1}{\varepsilon_\infty} - \frac{1}{\varepsilon_{\text{st}}} \right) \frac{q^2}{(q^2 + q_0^2)^2} \quad (5.26)$$

ε_∞ und ε_{st} sind der hochfrequente bzw. statische Grenzwert der Dielektrizitätskonstante, ω_{LO} die Frequenz des optischen Phonons. Vernachlässigt man die Abschirmung, so ergibt sich eine umgekehrte Proportionalität des Kopplungsparameters zum Wellenvektor: Je langwelliger die optischen Phononen, desto größer ist die Reichweite des Polarisationsfelds und desto stärker die Wechselwirkung. Je nach Differenz der Elektronegativität der Atome in der Einheitszelle können die Intradbandstreuzeiten nur zehn bis hundert Femtosekunden betragen. Noch kürzere Streuzeiten sind für polar-optische Übergänge von leichten Löchern ins Schwerlochband möglich, da hier – anders als bei der Intradbandstreuung – mit sehr kleinem Wellenvektorübertrag erreichbare Endzustände vorhanden sind. Die zugehörigen Zeitkonstanten für diesen Prozeß liegen bereits im schwach polaren GaAs unter 50 fs [Scho95].

Für tiefe Temperaturen und ein parabolisches Band ergibt sich die LO-Phonon-Emissionsrate zu:

$$\Gamma_{\text{Fr}} = 2 \alpha \omega_{\text{LO}} \sqrt{\frac{\hbar \omega_{\text{LO}}}{E^s}} \operatorname{arsinh} \sqrt{\frac{E^s}{\hbar \omega_{\text{LO}}} - 1} \quad (5.27)$$

$$\alpha = \frac{4 \pi e^2}{\hbar \varepsilon_0} \sqrt{\frac{m^*}{2 \hbar \omega_{\text{LO}}}} \left(\frac{1}{\varepsilon_\infty} - \frac{1}{\varepsilon_{\text{st}}} \right) \quad (5.28)$$

E^s : kinetische Energie, m^* : effektive Masse der Ladungsträger. Die Polaronkopplungskonstante α ist als das Verhältnis von doppelter Polaronenergie und

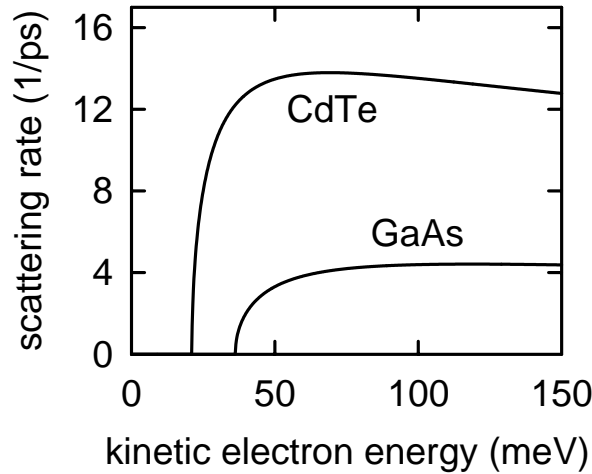


Abb. 5.5: Nach Gl. 5.27 berechnete LO-Phonon-Emissionsraten von Leitungsbandelektronen in CdTe und GaAs bei $T_L = 0$ K mit Materialparametern aus Kap. 2. Oberhalb der Schwellenenergie nimmt die Streurrate rasch zu und bleibt für größere kinetische Energien nahezu konstant.

LO-Phononenergie definiert. Sie dient als ein Maß für die Kopplungsstärke der Ladungsträger an das polare Kristallgitter. In Abb. 5.5 sind die LO-Phonon-Emissionsraten von Elektronen im Leitungsband von GaAs und CdTe bei $T_L = 0$ K dargestellt, die wegen des Fehlens von Endzuständen erst oberhalb der LO-Phononenergie einsetzen. Die stärkere Polarität von CdTe ($\alpha_{e,\text{CdTe}} = 0.33$) schlägt sich in einer fast viermal größeren Streurrate nieder verglichen mit GaAs ($\alpha_{e,\text{GaAs}} = 0.06$).

Deformationspotential-Streuung

Wie erwähnt ist eine Energieverschiebung elektronischer Zustände auch durch die bloße Deformation der Elementarzelle möglich. Der lokalen Veränderung der Bandstruktur durch akustische Phononen trägt der Wechselwirkungsoperator

$$H_{\text{ak. Def.}} = D_{s,\mathbf{k}} (\mathbf{q} \delta \mathbf{R}) \quad (5.29)$$

Rechnung. $D_{s,\mathbf{k}}$ ist das akustische Deformationspotential, dessen \mathbf{k} -Abhängigkeit gewöhnlich vernachlässigt wird. Aus Symmetriegründen findet die Wechselwirkung am Γ -Punkt nur mit longitudinalen Phononmoden statt. Wie aus dem durch $\mathbf{q} \delta \mathbf{R}$ beschriebenen Verzerrungsterm hervorgeht, ist die Wechselwirkung nicht von der Auslenkung der Atome, sondern von der differentiellen Verschiebung benachbarter Atome abhängig. Da eine langwellige akustische Mode nur einer Translation des Kristalls entspricht, muß für sie die Wechselwirkungsenergie gegen Null streben. Als Kopplungsparameter der akustischen Deformationspotentialstreuung erhält man

$$C_q^2 = \frac{\hbar}{2 \rho v_S V} D_s^2 q. \quad (5.30)$$

v_S ist die Schallgeschwindigkeit der akustischen Mode. Für GaAs haben die über alle Raumrichtungen gemittelten Deformationspotentiale die Werte $D_h = 5.6$ eV und $D_e = -3.4$ eV [Bru90]. Wegen der linearen Abhängigkeit der Kopplung vom Wellenvektor q spielt die Deformationspotentialstreuung hauptsächlich bei der Impulsrelaxation und der Seitentalstreuung eine Rolle.

Neben den akustischen Phononen können genauso optische Phononen über das Deformationspotential mit Elektronen stoßen. Anders als bei LA-Moden erzeugt jedoch auch eine langwellige LO-Schwingung eine Kristallverzerrung. Im Wechselwirkungs-Hamiltonoperator

$$H_{\text{opt. Def.}} = D_{s,\mathbf{k}} \frac{|\delta \mathbf{R}|}{a_0} \quad (5.31)$$

treten nur die Verschiebung innerhalb der Einheitszelle $\delta\mathbf{R}$, das optische Deformationspotential $D_{s,\mathbf{k}}$ und die Gitterkonstante a_0 auf. Der Kopplungsparameter

$$C_q^2 = \frac{\hbar}{2\rho V \omega_{\text{LO}} a_0^2} D_s^2 \quad (5.32)$$

ist unabhängig vom Impulsübertrag q . Während in GaAs das von optischen Phononen induzierte Deformationspotential für Elektronen im Γ -Tal aus Symmetriegründen verschwindet, können leichte Löcher über diesen Kanal innerhalb von 300 fs ins Schwerlochband relaxieren ($D_h = 29$ eV [Plö81]).

Piezoelektrische Streuung

In polaren nicht-inversionssymmetrischen Kristallen wie GaAs oder CdTe entsteht nicht nur bei longitudinal optischen Schwingungen ein Polarisationsfeld. Auch langwellige akustische Moden können durch eine Verspannung des Kristallgitters ein elektrisches Feld hervorrufen (*Piezoelektrischer Effekt*), an das die Elektronen über ihre Ladung koppeln. Das induzierte Feld ist proportional zum Produkt von elektromechanischem Tensor \mathbf{e}_{em} und mechanischer Spannung $\mathbf{q} \delta\mathbf{R}$. Die Wechselwirkungsenergie

$$H_{\text{piezo}} = -e \Phi = \frac{e}{q^2 \varepsilon_{\text{st}} \varepsilon_0} \mathbf{q} \mathbf{e}_{\text{em}} (\mathbf{q} \otimes \delta\mathbf{R}) \quad (5.33)$$

zeigt eine komplizierte Richtungsabhängigkeit. Phononmoden entlang der Kristallhauptachsen werden nicht von einer oszillierenden Polarisation begleitet; sie koppeln nicht über die piezoelektrische Wechselwirkung an die Ladungsträger. Meist begnügt man sich mit einer richtungsgemittelten Beschreibung ohne Abschirmeffekte durch den Kopplungsparameter [Rid88]

$$C_q^2 = \frac{\hbar}{\rho v_s V} a \left(\frac{e e_{14}}{\varepsilon_{\text{st}} \varepsilon_0} \right)^2 \frac{1}{q}. \quad (5.34)$$

Für longitudinale Moden ist $a = 6/35$ zu setzen, für transversale $a = 8/35$. In Materialien mit Zinkblendestruktur besitzt der elektromechanische Tensor nur eine unabhängige Komponente, die in GaAs den Wert $e_{14} = 0.16$ C/m² hat [Arl68].

Die piezoelektrische Streuung ist i.a. schwach. Bei niedrigen Temperaturen, wenn hauptsächlich Phononen mit kleinem Wellenvektor q angeregt sind, kann sie jedoch insbesondere für Löcher mit Energien unter der LO-Schwelle wegen der $1/q$ -Abhängigkeit der Kopplungskonstante zu schnellerer Relaxation als die Deformationspotentialstreuung führen [Lei96b].

5.5.2 Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung

Im Vakuum wechselwirken zwei Teilchen an den Orten \mathbf{r}_1 und \mathbf{r}_2 über das nackte elektrostatische Potential

$$V_{\text{vac}}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|}, \quad V_q = \frac{q_1 q_2}{\epsilon_0} \frac{1}{q}. \quad (5.35)$$

In einem System vieler Elektronen und Löcher treten jedoch Abschirmeffekte auf: die Ladungsträger arrangieren sich als Reaktion auf eine eingebrachte Störung neu; die räumlich veränderliche Ladungsdichte begrenzt die Reichweite des Zusatzpotentials. Als sehr schwierig stellt sich die Berechnung der zeitlichen Entwicklung der Vielteilchenwellenfunktion unter dem Einfluß der Coulombwechselwirkung heraus. Ihre exakte Behandlung führt auf einen zeitlich nicht-lokalen Formalismus mit zwei Zeitargumenten [Hau96, Els94b]. Zur Reduktion auf eine gewohntere einzeitige Form muß man für jeden Streuprozeß strenge Energieerhaltung fordern. Bei der meist gegebenen Forminvarianz der Gleichungen unter einer Translation der Zeit- und Ortsargumente kann man Vielteilcheneffekte durch ein effektives Zweiteilchenpotential nähern:

$$V_q^{\text{eff}} = \frac{q_1 q_2}{\epsilon_0 \epsilon(q, \omega)} \frac{1}{q} \quad (5.36)$$

Die Impuls- und Frequenzabhängigkeit der dielektrischen Funktion $\epsilon(q, \omega)$ berücksichtigt räumliche und zeitliche Aspekte bei der oben beschriebenen dynamischen Abschirmung. Unter bestimmten Voraussetzungen [Lin54] läßt sich $\epsilon(q, \omega)$ aus den Besetzungszahlen angeregter Ladungsträger, der Dispersion der Bänder und der Polarisierbarkeit des Gitters bestimmen. Im statischen Fall ist

$$\epsilon(q, 0) = \epsilon_{\text{st}} \left(1 + \frac{q_0^2}{q^2} \right). \quad (5.37)$$

In ϵ_{st} ist auch die Polarisierbarkeit des Gitters enthalten. Die statische Abschirmung beschränkt die Wirkung des Coulombpotentials auf die Entfernung $1/q_0$, wie man aus der Fourierrücktransformation von Gleichung 5.36 sieht:

$$V_q^{\text{eff}}(r) = \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 \epsilon_{\text{st}}} \frac{e^{-q_0 r}}{r}. \quad (5.38)$$

Bei der Simulation ultraschneller Relaxationsprozesse überschätzt man mit dem statischen Ansatz die Abschirmung deutlich [Col93]. Auf kurzen Zeitskalen ist deshalb die Berechnung der dynamischen Abschirmung oder bei Ladungsträgerdichten größer als 10^{17} cm^{-3} die Auswertung des komplexen zweizeitigen Keldyshformalismus nötig [Els94b, Hau96]. Für die Elektron-Elektron-Streurat

seien zur Orientierung die Obergrenzen nach [Col93] angegeben, die in GaAs von 10 ps^{-1} bei einer Ladungsträgerdichte von $N = 4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ auf 1 ps^{-1} bei $N = 2.5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ abnehmen.

Die Coulombstreuung von Elektronen und Löchern hat zwei wichtige Konsequenzen: Zum Einen geht bei den Stößen die Phasenbeziehung der Ladungsträger verloren; die von korrelierten Elektron-Lochpaaren getragene Polarisation wird gedämpft. Zum Anderen führt die Energieumverteilung bei der Coulombstreuung zur Thermalisierung der Ladungsträger.

Kapitel 6

Hochenergetische Exzitonen in GaAs

Mit den in diesem Kapitel vorgestellten Messungen ist es erstmals gelungen, Exzitonen mit kinetischen Energien von mehreren 100 meV in dünnen GaAs-Schichten spektroskopisch zu untersuchen. In empfindlichen Anrege-Abfrage-Experimenten werden ihre Signaturen im Spektrum des Probeimpulses durch die Dämpfung der exzitonischen Polarisation bei Stößen mit pumpinjizierten Ladungsträgern sichtbar gemacht. Die detaillierte Analyse der Spektren ermöglicht nicht nur die Bestimmung präziser Exzitondispersionen, sondern läßt auch Aussagen zu über die Reflexionseigenschaften der Oberfläche für exzitonische Polarisationswellen, die eng mit dem Problem der *zusätzlichen Randbedingungen* (*additional boundary conditions*, ABC) zusammenhängen. Zum ersten Mal können hochenergetische Leichtloch- von den dominanten Schwerloch-Exzitonen klar getrennt und ihre teilweise stark reduzierte polar-optische Wechselwirkung mit dem Kristallgitter beobachtet werden - ein erstaunlicher Effekt, der nur bei annähernd gleichen Elektron- und Lochmassen auftritt. Aus temperaturabhängigen Messungen werden Raten für die Dissoziation von Schwerloch-Exzitonen durch Streuung an Phononen abgeleitet. Auch die Dephasierungszeiten hochenergetischer Schwerloch-Exzitonen bei Streuprozessen mit freien Ladungsträgern werden gemessen.

Die nächsten beiden Abschnitte befassen sich zunächst allgemein mit Exzitonen und mit spektroskopischen Methoden zur Untersuchung von Exzitonen mit großem Schwerpunktsimpuls.

6.1 Gebundene Elektron-Loch-Paare

Schon um 1930 sind erste theoretische Arbeiten zu Exzitonen von Frenkel, Peierls und Wannier erschienen, die durch Besonderheiten bandkantennaher Absorptionsspektren motiviert wurden (Kap. 2, Abb. 2.3). Im intrinsischen Halbleiter entstehen gebundene Elektron-Loch-Paare bei der Anregung eines Elektrons ins Leitungsband durch Coulombwechselwirkung mit dem im Valenzband verbleibenden Loch. In seltenen Fällen wie in manchen Isolatoren (z.B. NaCl) oder organischen Kristallen (z.B. Anthrazen) kann die Bindung so stark werden, daß Elektron- und Lochwellenfunktionen in einer einzigen Elementarzelle lokalisiert sind (*Frenkel-Exzitonen*). In den meisten direkten Halbleitern beträgt der Bindungsradius einige Gitterkonstanten: Die *Wannier-Exzitonen* ähneln dann den Bindungszuständen des Positroniums. Ihre Wellenfunktion setzt sich aus Elektronen- und Loch-Blochfunktionen mit k -Vektoren aus einem Intervall von der Breite des inversen Bohrradius zusammen. Analog zur Wasserstoffserie lassen sich aus den effektiven Elektron- und Lochmassen m_e und m_h und der statischen Dielektrizitätskonstante des Mediums ε_{st} die Bindungsenergie $E_{B,n}$ des n -ten diskreten Zustands und der exzitonische Bohrradius a_n berechnen:

$$E_{B,n} = E_0 \frac{1}{n^2} = \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_{st}\varepsilon_0 a_B} \frac{1}{n^2} = \frac{\mu e^4}{32\pi^2 \hbar^2 \varepsilon_0^2 \varepsilon_{st}^2} \frac{1}{n^2} \quad (6.1)$$

$$a_n = n a_B = n \frac{4\pi\varepsilon_{st}\varepsilon_0 \hbar^2}{\mu e^2}, \quad \text{mit } \frac{1}{\mu} = \frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_h} \quad (6.2)$$

Für GaAs ergibt sich $E_{B,1} = 4.4 \text{ meV}$ [Bal71]. Die Oszillatorstärken f_n der Exzitonen fallen proportional $1/n^3$ ab. Unterhalb der Bandkante E_G entsteht eine Serie scharfer exzitonischer Linien nachlassender Stärke und abnehmenden Abstands:

$$\varepsilon_i = \frac{8\pi\hbar |d_{cv}|^2 \mu^3}{3E^2 \varepsilon_0^2} \sum_0^\infty \frac{1}{n^3} \delta(E - E_G + E_{B,n}) \quad (6.3)$$

Sie mündet stetig in die ebenfalls Coulomb-modifizierte Absorption der Kontinuumszustände (*Sommerfeldüberhöhung*, Kap. 5.3) [Ell57]:

$$\varepsilon_i = \sqrt{E - E_G} \frac{2\hbar^{3/2} |d_{cv}|^2 (2\mu)^{3/2} \tau e^\tau}{3E^2 \sinh(\tau)}, \quad \tau = \pi \left| \frac{E_{B,1}}{E - E_G} \right|^{1/2} \quad (6.4)$$

In quasi-zweidimensionalen, wenige Nanometer dicken Schichten überlappen Elektronen- und Lochwellenfunktionen besser, die Bindungsenergie nimmt zu. Die obigen Formeln bleiben gültig, wenn man n durch $n - 1/2$ ersetzt.

Zusätzlich zur Relativbewegung kann der Schwerpunkt des Elektron-Loch-Paars eine Translation durch den Kristall ausführen. Die beiden Bewegungen können

separiert werden, wenn Valenz- und Leitungsband in guter Näherung parabolisch sind. Dann beträgt die Gesamtenergie des Exziton-Zustands mit Schwerpunktswellenvektor K :

$$E_n = E_G - E_{B,n} + \frac{\hbar^2 K^2}{2M}, \quad M = m_e + m_h. \quad (6.5)$$

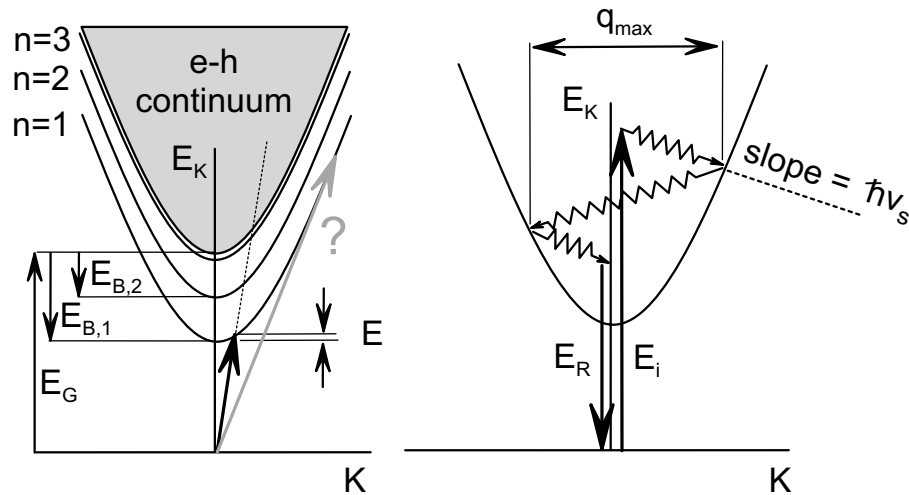


Abb. 6.1: Links: Schematische Darstellung der Exzitonendispersion im Zweiteilchenbild. Der Ursprung markiert den Grundzustand des Systems. Der Schnittpunkt der Dispersion des Lichts (gestrichelt, mit unnatürlich schwacher Steigung eingezeichnet) und der Exzitonen gibt erlaubte Interbandübergänge an. Rechts: Ramanstreuung mit Exziton als resonantem Zwischenzustand. Nur der Übergang mit dem größten Ramanquerschnitt, d.h. mit dem maximalen Impulsübertrag (Rückwärtsstreuung) auf LA-Phononen, ist eingezeichnet.

6.2 Spektroskopische Signaturen hochenergetischer Exzitonen

Im kristallinen translationsinvarianten Halbleiter ist der Impuls eine Erhaltungsgröße. Interbandübergänge erfolgen daher wegen der großen Steigung der Dispersion des Lichts fast senkrecht im Zweiteilchenbild (schwarzer Pfeil in Abb.6.1 links), wobei nur ein energetisch schmales Exzitonensemble erzeugt werden kann ($\Delta E \simeq 100 \mu\text{eV}$).

Während die Wechselwirkungen solcher niederenergetischer Exzitonen seit vielen Jahren mit verschiedensten spektroskopischen Methoden sehr genau untersucht

werden konnten [Sha96] (siehe auch Kap. 7.1), hielt man Exzitonen mit großen Wellenvektoren ($\geq 10^6 \text{ cm}^{-1}$) bislang für experimentell schwer zugänglich. Fragen nach der Form der exzitonischen Dispersion in Gebieten, in denen Leitungs- und Valenzband nicht parabolisch verlaufen (Kap. 2.1), blieben genauso unbeantwortet wie die nach der Kopplungsstärke hochenergetischer Exzitonen an Phononen, nach ihrer Streuung untereinander und mit freien Ladungsträgern oder nach ihrer Reflexion an Grenzflächen.

Heiße Exzitonen, die in geringem Maße bei Prozessen höherer Ordnung in II-VI-Halbleitern mit starker Elektron-Loch- und großer Polaron-Kopplung erzeugt werden können [Hen93], sind meist nicht von mitangeregten isoenergetischen Kontinuumszuständen zu trennen. Im inversionssymmetrischen Cu_2O , in dem Übergänge vom Valenz- ins Leitungsband aus Paritätsgründen dipolverboten sind, kann man jedoch ausschließlich die inkohärente Dynamik hochenergetischer Exzitonen studieren. Es dominieren von 14 meV-Phononen assistierte Übergänge zum stark gebundenen 1s-Exziton ($E_B = 133 \text{ meV}$). Die restliche Photonenergie wird in kinetische Energie umgewandelt. Ist die Rekombinationsrate nur schwach von der Überschußenergie abhängig, so kann man in der *zeitaufgelösten Lumineszenz* direkt die exzitonischen Verteilungsfunktionen beobachten [Sno91].

Nahe der Bandlücke ist auch die *resonante Ramanstreuung* ein geeignetes Mittel zur Bestimmung der Exzitonendispersion. Je stärker die Exziton-Phonon-Kopplung und je geringer die homogene Linienbreite des Exzitons desto größer wird der Ramanstreuquerschnitt und desto höherenergetische Bereiche können untersucht werden. Wegen der Bevorzugung hoher Impulsüberträge bei der Deformationspotentialstreuung (vgl. Kap. 5.5.1) treten Intensitätsmaxima bei der Ramanstreuung dann auf, wenn longitudinal akustische Gitterschwingungen den größtmöglichen Impuls abführen (siehe Abb. 6.1). Aus der spektralen Verschiebung der Ramanlinie kann man die Dispersion leicht berechnen. Die Grenze dieses Kaskadenverfahrens ist bei kinetischen Schwerpunktsenergien jenseits der Exzitonbindungsenergie erreicht, da die einsetzende Dissoziation der Exzitonen ins Kontinuum die Ramanverstärkung dämpft.

Beide Methoden haben jedoch entscheidende Nachteile: Die zeitaufgelöste Lumineszenz gibt nur in wenigen Systemen direkt die exzitonische Verteilungsfunktion wieder. Noch weniger dynamische Informationen gewinnt man aus der auf ein Energieintervall der Breite E_B beschränkten resonanten Ramanstreuung. Außerdem wird die Auswertung der Spektren durch komplizierte Auswahlregeln für partizipierende Phononmoden erschwert.

Überraschenderweise kann man aber auf direktem Weg (grauer Pfeil in Abb. 6.1 links) kohärente Exzitonen mit kinetischen Energien bis zu einigen 100 meV anregen, wenn man hochreine Halbleiterproben mit (nahezu) perfekten Grenzflächen und einen hochempfindlichen Aufbau für differentielle Transmissionsspektrosko-

pie zur Verfügung hat [Gög00]. Wie in energie- und zeitaufgelösten nichtlinearen Pump-Probe-Experimenten verschiedenste Aspekte der Exzitonodynamik sichtbar gemacht werden können, ist Inhalt der folgenden Abschnitte. Wesentlich für die Herausfilterung des exzitonischen Signals sind dabei drei Punkte:

(1) Erzeugung: Der **Bruch der Translationssymmetrie** an der Halbleiteroberfläche hebt die im Volumenhalbleiter streng gültige Wellenvektorerhaltung auf und erlaubt die schwache Anregung kohärenter Exzitonen mit $K \gg k_{\text{Photon}}$. Die Oberflächenrauigkeit über den Bündeldurchmesser des Anreglichtes darf nur wenige Monolagen betragen ($K\Delta d \ll 1$).

(2) Propagation: Durch die Kopplung der exzitonischen Polarisation ans Lichtfeld bilden sich Mischzustände aus exzitonischen und photonischen Wellenfunktionen, die im nächsten Abschnitt genauer besprochenen **Exziton-Polaritonen**. Im Dreiband-Halbleiter besteht ihre Dispersion aus einer fast photonischen (P), einer dem Schwerloch-Exziton (X_{hh}) und einer dem Leichtloch-Exziton (X_{lh}) zugeordneten Mode (Abb. 6.2 links). Nach der Propagation durch den Halbleiter und der partiellen Umwandlung in Photonen am Probenende interferieren die Moden gleicher Frequenz, aber unterschiedlicher Phasengeschwindigkeiten. Dem transmittierten Spektrum wird eine kleine Modulation aufgeprägt, deren spektrale Periode wurzelförmig mit der kinetischen Energie der Exzitonen zunimmt.

(3) Detektion: Die geringe Modulationstiefe ($\leq 10^{-4}$) für Photonenergien im Band-zu-Band-Kontinuum konnte in linearer Spektroskopie bisher nicht nachgewiesen werden. Mit **hochempfindlicher differentieller Transmissionspektroskopie** gelingt es aber, durch die Injektion freier Ladungsträger (Abb. 6.2 rechts) die stark wechselwirkende exzitonische Polarisation auszudämpfen und den großen Untergrund der transmittierten photonischen Komponente abzutrennen. Im Pump-Probe-Spektrum tritt dann das Interferenzmuster deutlich hervor.

Bevor differentielle Transmissionsspektren an GaAs-Schichten unterschiedlicher Dicke präsentiert und unter verschiedensten Gesichtspunkten analysiert werden, sollen zunächst wegen ihrer zentralen Bedeutung die gekoppelten Exziton-Photon-Zustände eingehender behandelt werden.

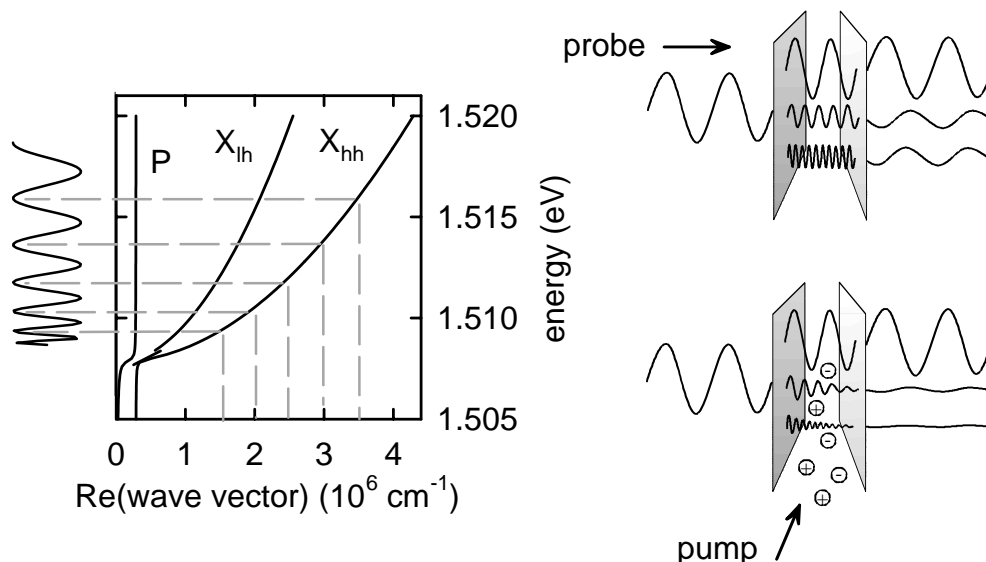


Abb. 6.2: Links: Polaritondispersionen in GaAs: die drei Zweige sind mit P (**photonar-tig**), X_{lh} (**leichtlohexzitonartig**) und X_{hh} (**schwerlohexzitonartig**) bezeichnet. Für Überschußenergien von wenigen meV wird die Periode der spektralen Oszillationen nur von der parabolischen Dispersion der exzitonartigen Moden bestimmt. Rechts: Der intensive Pumpimpuls zerstört die Phase der exzitonischen Polarisierung. Die Differenz der transmittierten Spektren (oben und unten) ergibt die überlagerten Signale von X_{lh} und X_{hh} .

6.2.1 Kohärente Kopplung von Polarisierung und Lichtfeld: Exziton-Polaritonen

Gewöhnlich berechnet man die Absorption im Halbleiter nach Fermis Goldener Regel aus den Übergangsmatrixelementen der beteiligten Zustände unter der Voraussetzung, daß die Energie des angeregten Zustandes sehr schnell dissipiert wird und seine Polarisierung schnell zerfällt [Ell57]. In Kap. 7.2 werden wir sehen, daß diese Annahme für Kontinuumszustände mit Dephasingzeiten von wenigen 100 fs gerechtfertigt ist. Eine ganz andere Situation liegt für schwach gedämpfte, gebundene Elektron-Loch-Paare vor, bei denen die kohärente Wechselwirkung der langlebigen oszillierenden Exziton-Polarisation (i.d.R. einige ps) mit dem Strahlungsfeld berücksichtigt werden muß. Den Kopplungszustand von elektromagnetischen und Polarisationswellen, die in unserem Fall mit den elektrischen Dipolmomenten der Exzitonen verknüpft sind, bezeichnet der Terminus **Polariton**. Da die Oszillatorstärken höherer gebundener Zustände schnell sehr klein werden, genügt hier die Behandlung des Mischzustands aus Photonen und 1s-Exzitonen [Com91]. In

diesem Bild wird ein auf eine Halbleiterschicht einfallendes elektromagnetisches Feld in eine Polaritonwelle umgewandelt, die sich bei Vernachlässigung anderer Wechselwirkungen ungedämpft bis zur anderen Grenzfläche hin ausbreitet. Dort wird ein Teil der Polaritonen ins Medium zurückreflektiert, während der andere in Photonen umgesetzt wird und die Probe verläßt. Absorption ist nur möglich, wenn Polaritonen unelastisch, z.B. an Phononen, gestreut werden.

Die neuen Eigenzustände P_K des mit der zum Übergangsmatrixelement proportionalen Konstante g_K gekoppelten Exziton-Photon-Systems ergeben sich aus der Diagonalisierung von

$$H = \sum_K (E_K B_K^\dagger B_K + \hbar \omega_K p_K^\dagger p_K - i \hbar g_K (B_K^\dagger p_K - cc)). \quad (6.6)$$

Die nur für Zweiband-Halbleiter angeschriebene Gleichung 6.6 läßt sich leicht auf mehrere Bänder erweitern. B_K^\dagger (B_K) sind annähernd bosonische Exzitonen-, p_K^\dagger (p_K) Photonerzeuger (-vernichter). Die Quasiteilchenzustände haben die Form

$$P_K = u_K B_K - v_K p_K, \text{ mit } |u_K|^2 + |v_K|^2 = 1. \quad (6.7)$$

Die **Exziton-** bzw. **Photonartigkeit** u_K und v_K entscheidet darüber, ob und in welchem Maß Polaritonen an bestimmten Streuprozessen teilnehmen (Abb. 6.3). Die zwei Lösungen der Diagonalisierung gehen durch Vertauschen von u und v ineinander über. Aus der Säkular determinante ergeben sich die Energieeigenwerte

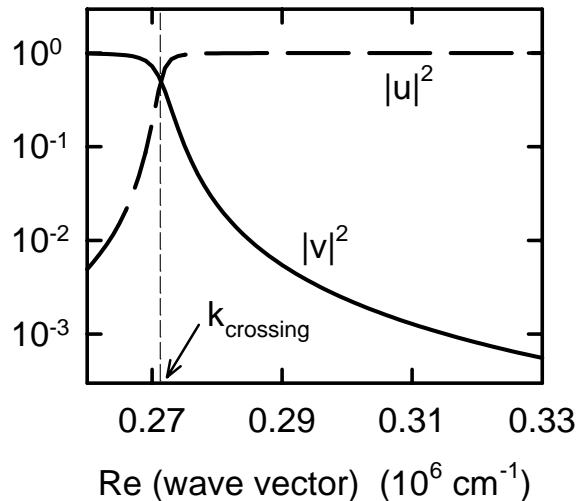


Abb. 6.3: Nach [Mat84] berechnete exzitonische (u) und photonische (v) Beimischungen der Schwerlohexziton-Polaritonwellenfunktion.

implizit in K zu:

$$\begin{aligned} \hbar^2 c^2 K^2 / E^2 = \varepsilon(E, K) = \\ = \varepsilon_{\text{st}} \left(1 - \frac{E_{\text{LT,h}}}{E - E_{\text{h}} - \hbar^2 K^2 / 2M_{\text{h}} + i\Gamma_{\text{h}}} - \frac{E_{\text{LT,l}}}{E - E_{\text{l}} - \hbar^2 K^2 / 2M_{\text{l}} + i\Gamma_{\text{l}}} \right) \end{aligned} \quad (6.8)$$

Die Dispersionsrelation 6.8 ergibt sich auch nach dem klassischen Lorentzischen Modell gekoppelter harmonischer Oszillatoren. Dabei sind die zweiten und dritten Terme in der Klammer die Polarisierbarkeiten, $M_j = m_j + m_e$ die Massen, Γ_j die Dämpfungsbreiten und E_j die energetischen Positionen der Schwer- bzw. Leichtlohexzitonen ($j = \text{h}, \text{l}$).¹ Zwischen Γ und den Exziton-Streuratens γ oder -Dephasingzeiten T_2 besteht der Zusammenhang: $\Gamma_j = \hbar\gamma_j/2 = \hbar/T_{2,j}$. Die energetische Aufspaltung zwischen der Frequenz der longitudinalen Schwingungsmode ($\varepsilon(\omega_{\text{L}}) = 0$) und der Exziton-Grundzustandsenergie $E_{\text{LT},j} = \hbar\omega_{\text{L}} - E_j$ ist proportional zur Oszillatorstärke des Exzitonübergangs und damit zum Betragsquadrat von Dipolmatrixelement und Exzitonwellenfunktion am Ursprung. In GaAs gilt wegen des größeren Übergangsmatrixelements für Schwerlohexzitonen [Fis77]:

$$E_{\text{LT,h}} = 0.08 \text{ meV} = 3 E_{\text{LT,l}} \quad (6.9)$$

Abb. 6.4 zeigt die mit GaAs-Parametern berechnete hhX-Polariton-Dispersion.

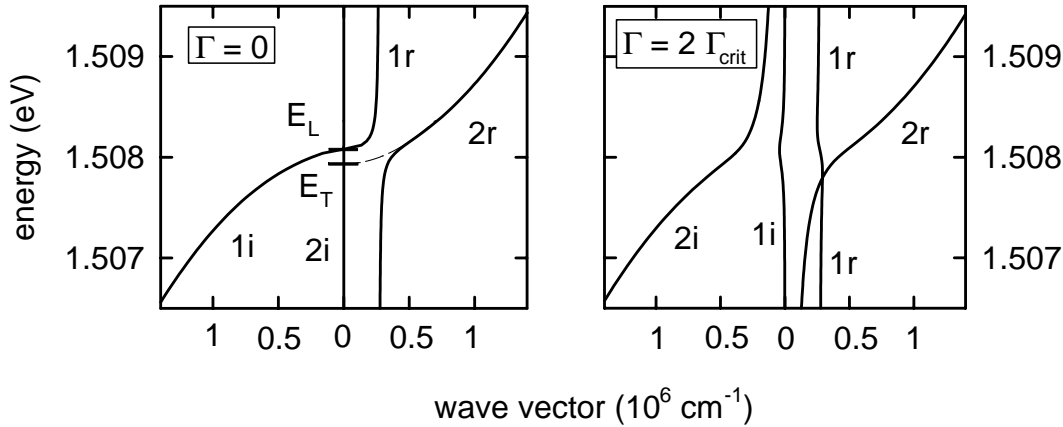


Abb. 6.4: Mit Materialparametern von GaAs berechnete hhX-Polaritondispersion ($E_{\text{h}} = 1.5078 \text{ eV}$) ohne Dämpfung (links) und mit doppelter kritischer Dämpfung (rechts). Vom Ursprung aus nach rechts ist jeweils der Realteil des Wellenvektors aufgetragen, nach links sein Imaginärteil.

¹Im folgenden werden die Begriffe Schwer- und Leichtlohexzitonen mit **hhX** bzw. **lhX** abgekürzt.

Vom Ursprung aus nach links ist der Imaginärteil des Wellenvektors aufgetragen, nach rechts sein Realteil. Für verschwindende Dämpfung setzt oberhalb $\hbar\omega_L = E_L$ ein Zweig (1r) an, der mit zunehmender Energie immer mehr photonartigen Charakter annimmt und asymptotisch in die Lichtgerade übergeht. Unterhalb E_L hat er keine propagierende Komponente mehr; er wird stark gedämpft (1i). Polaritonen des zweiten Astes (2r) können sich hingegen über den gesamten Energiebereich ungeschwächt ausbreiten. Weit unterhalb des Exzitonübergangs $E_h = E_T$ dominiert die photonartige Komponente. Nahe E_T schlägt das Verhalten um und der Zweig nähert sich der parabolischen Exzitondispersion, wie die für wenige meV Überschußenergie geringe Photonbeimischung (Abb. 6.3) erwarten läßt. Typisch für das *anticrossing* zweier schwach koppelnder, sich kreuzender Niveaus spalten die beiden Äste (1r und 2r) bei E_T um E_{LT} auf. Oberhalb E_L existieren zwei ungedämpfte Moden mit unterschiedlichem Brechungsindex. Schräg einfallendes Licht wird, je nachdem welcher Polaritonast angeregt wird, in verschiedene Richtungen gebrochen. Dieses nicht mit der Doppelbrechung zu verwechselnde Phänomen wird *räumliche Dispersion* genannt und beruht auf der nichtlokalen, d.h. wellenvektorabhängigen Antwort des Mediums. Bei der **kritischen Dämpfung** [Mat84]

$$\Gamma_{\text{crit},j} = \left(\frac{8 E_{LT,j} E_j^2 \varepsilon_{\text{st}}}{M_j c^2} \right)^{1/2}, \quad (6.10)$$

die für hhX- und lhX-Polaritonen nahezu den gleichen Wert $\Gamma_{\text{crit}} = 0.26$ meV besitzt, berühren sich die beiden Dispersionsäste. Für $\Gamma \geq \Gamma_{\text{crit}}$ (Abb. 6.4 rechts) verschwindet das anticrossing, Ast 1 ist über den gesamten Energiebereich photonisch und erfährt auch unterhalb E_T nur geringe Absorption.

Interessant ist auch die Abhängigkeit der Absorptionseigenschaften des fundamentalen Exzitons von der Dephasierungsrate [Akh81]: Solange $\Gamma \leq \Gamma_{\text{crit}}$ nehmen mit steigender Dissipation sowohl die integrale Absorption über die Exzitonlinie als auch die maximale spektrale Absorption zu, während sich die Linie verschmälert. Oberhalb der kritischen Dämpfung bleibt die integrierte Absorption der sich verbreiternden, mehr und mehr lorentzförmigen Linie mit abnehmendem Maximum konstant [Schä97].

6.3 Experimentelle Ergebnisse und theoretisches Modell

6.3.1 Exziton-Polaritonen mit großem Schwerpunktsimpuls in 500 nm und 200 nm dicken GaAs-Filmen

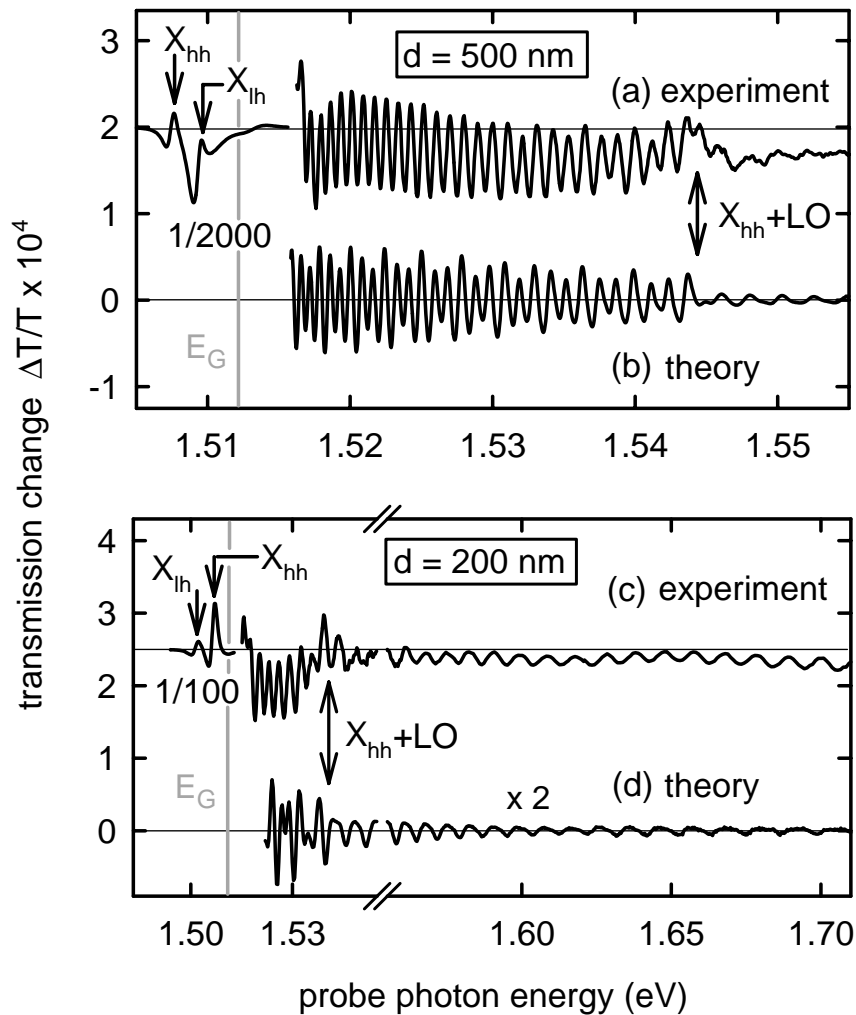


Abb. 6.5: Spektral aufgelöste Transmissionsänderungen zur Verzögerungszeit $t_D = 10$ ps nach der Injektion heißer Ladungsträger in GaAs-Filme der Dicke 500 nm (a) und 200 nm (c) ($T_L = 20$ K). Die Dichten der freien Ladungsträger sind $N_{\text{pump}} = 3 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ (a) und $N_{\text{pump}} = 5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ (c). In (b) und (d) sind theoretische differentielle Transmissionspektren dargestellt (Parameter siehe Text).

In Abb. 6.5 (a) sind die pumpinduzierten Transmissionsänderungen in der 500 nm Probe bei einer Gittertemperatur von $T_L = 20$ K gegen die Energie der Abtastphotonen aufgetragen. Sie wurden aufgenommen zur Verzögerungszeit $t_D = 10$ ps nach der Anregung einer Elektron-Loch-Dichte von $3 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ durch einen intensiven, 80 fs kurzen Pumpimpuls bei 1.7 eV. Zum Abtasten wurde ein 17 fs-Impuls von 10-mal geringerer Intensität nach dem Durchgang durch die $\langle 100 \rangle$ -GaAs-Schicht in einem Doppelmonochromator mit 0.6 meV Auflösung analysiert.

Unterhalb der Bandkante ist um den Faktor 2000 verkleinert das stark nichtlineare Signal der Schwer- und Leichtlohexzitonen mit $K = 0$ bei 1.508 eV und 1.510 eV zu sehen. Eine leichte Verspannung der Probe hebt die Entartung der Exzitonlinien auf. Im nichtangeregten hochreinen Halbleiter ist die Dämpfung unterkritisch. Nach Injektion von Ladungsträgern wird $\Gamma > \Gamma_{\text{crit}}$ und die Absorption im Zentrum der Exzitonlinie sinkt unter das bei Γ_{crit} angenommene Maximum (vgl. voriger Abschnitt). Die simultane Zunahme der Linienbreite und der integralen Absorption ergibt das beobachtete Ausbleichsignal mit lokalem Maximum in der Linienmitte [Schä97].

Im Absorptionskontinuum sind in den Polaritonoszillationen, deren Periode ΔE der parabolischen Dispersion gemäß proportional zur Wurzel der kinetischen Energie E_{kin} ansteigt,

$$\Delta E = h \sqrt{2 E_{\text{kin}} / M_X} / l \quad (6.11)$$

(M_X : Exzitonmasse, l : Schichtdicke) deutlich zwei Komponenten zu unterscheiden: Eine hochfrequente, dem 1s-hhX-Polariton zugeordnete Mode, deren Amplitude oberhalb der Energie $E_{\text{Xh}} + E_{\text{LO}}$ innerhalb weniger meV verschwindet; und eine überlagerte zweite, langsamer oszillierende Komponente, die von 1s-lhX-Polaritonen stammt und *keinen* stufenförmigen Verlauf aufweist. Das gleiche auffällige Schwellenverhalten ist im differentiellen Transmissionsspektrum der 200 nm Probe zu beobachten, das durch Injektion von 5×10^{15} freien Ladungsträgerpaaren je cm^3 gewonnen wurde. Hier kann aus den Polaritoninterferenzen die lhX-Dispersion sogar bis an die Durchstimbarkeitsgrenze des Lasers bei 1.8 eV verfolgt werden.

Schon in den zu fester Verzögerungszeit aufgenommenen differentiellen Transmissionsspektren ist eine Fülle von Informationen über Schwer- und Leichtlohexzitonen enthalten: Die Exzitonmassen legen die Oszillationsperioden fest, die Dephasierung der exzitonischen Polarisierung durch Stöße an Phononen und freien Ladungsträgern entscheidet über die Amplitude der Oszillationen und die Reflektivität der Oberfläche für Exzitonen nimmt Einfluß auf die Form und Schärfe der Strukturen. Im folgenden wird eine Theorie entwickelt, die die oben genannten Parameter aus den Messungen zu bestimmen gestattet.

6.3.2 Transfermatrixformalismus für E- und B-Felder

Da die untersuchten GaAs-Schichten immer in weitere dünne Halbleiter- und dielektrische Schichten eingebettet sind (siehe Anhang A), berechnet man die optischen Eigenschaften am besten über Transfermatrizen M . Sie verknüpfen E - und B -Felder an vorderen ($-l/2$) und hinteren ($l/2$) Schichtoberflächen miteinander

$$\begin{pmatrix} E(l/2) \\ B(l/2) \end{pmatrix} = M^{-1} \begin{pmatrix} E(-l/2) \\ B(-l/2) \end{pmatrix} \quad (6.12)$$

und sind für ein System aus n Schichten multiplikativ: $M = \prod_{i=1..n} m_i$. In der allgemeinen Geometrie von Abb. 6.6 erhält man für den Transmissions- (t) bzw. Reflexionskoeffizienten (r):

$$t = \frac{E_t}{E_i} = \frac{2 n_1}{M_{11}n_1 + M_{12}n_1n_2 + M_{21} + M_{22}n_2} \quad (6.13)$$

$$r = \frac{E_r}{E_i} = \frac{M_{11}n_1 + M_{12}n_1n_2 - M_{21} - M_{22}n_2}{M_{11}n_1 + M_{12}n_1n_2 + M_{21} + M_{22}n_2} \quad (6.14)$$

Die Transfermatrix m eines nichtabsorbierenden Mediums der Dicke l mit Brechungsindex n ist:

$$m = \begin{pmatrix} \cos\phi & -\frac{i}{n}\sin\phi \\ -i n \sin\phi & \cos\phi \end{pmatrix}, \quad \phi = \frac{\omega}{c} n l \quad (6.15)$$

In einem Medium wie GaAs, in dem räumliche Dispersion zur Ausbildung dreier Moden bei der gleichen Frequenz führt, setzt sich das elektromagnetische Feld aus photonartigen (p), lhX-artigen (l) und hhX-artigen (h) Beiträgen zusammen:

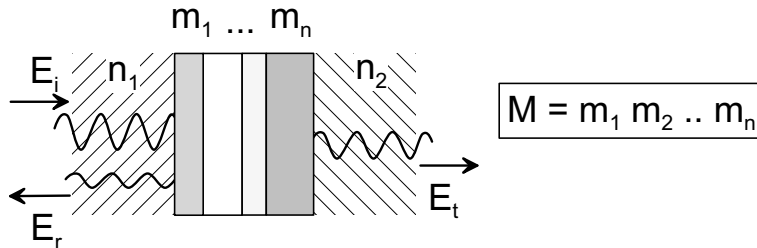


Abb. 6.6: Aus der Transferfunktion M des Gesamtsystems, die sich als Produkt der Transfermatrizen m_i der einzelnen Schichten schreiben läßt, berechnet man mit den Maxwell'schen Anschlußbedingungen an den beiden Grenzflächen die Reflexions- und Transmissionskoeffizienten.

$$E(z) = \sum_{j=p,h,l} (E_j^+ e^{ik_j z} + E_j^- e^{-ik_j z}), \quad B(z) = \sum_{j=p,h,l} n_j (E_j^+ e^{ik_j z} - E_j^- e^{-ik_j z})$$

An Grenzflächen stößt man mit dieser im Volumenmaterial abgeleiteten Beschreibung jedoch auf das **Problem der zusätzlichen Randbedingungen** (siehe nächster Abschnitt): Die Maxwell'schen Stetigkeitsbedingungen für das elektrische Feld und seine erste räumliche Ableitung liefern nur zwei Beziehungen für die vier Unbekannten E_j ($j = p, h, l, r$). Mit r ist die reflektierte Komponente indiziert. Es fehlen Bestimmungsgleichungen, die die Aufteilung der Anregung auf die drei Polaritonenzweige beschreiben, weshalb man auf weitere, mikroskopisch begründbare Randbedingungen (Gl. 6.25) angewiesen ist, die meist für die exzitonische Polarisation formuliert werden

$$P_i(z) = \sum_{j=p,h,l} \chi_j (E_j^+ e^{ik_j z} + E_j^- e^{-ik_j z}), \quad i = h, l, \quad \chi_j = \frac{c^2}{\omega^2} k_j^2 - \varepsilon_{st}. \quad (6.16)$$

Vernachlässigt man bei Berechnung der Eigenzustände des gekoppelten Exziton-Photon-Systems Bandmischungseffekte, d.h. betrachtet man die exzitonartigen Polaritonen als Mischung von photonischen Wellenfunktionen und nur jeweils einer Exzitonspezies, was für Überschussenergien von wenigen meV gerechtfertigt ist, kann man die zusätzlichen Randbedingungen getrennt auf die lhX- und hhX-Polarisationen an den Oberflächen $-l/2$ und $l/2$ anwenden. Man erhält eine Beziehung der Form:

$$\begin{pmatrix} E_i^+ \\ E_i^- \end{pmatrix} = Q_i \begin{pmatrix} E_p^+ \\ E_p^- \end{pmatrix}, \quad i = h, l. \quad (6.17)$$

Q_i ergibt sich aus den zusätzlichen Randbedingungen 6.25 zu

$$Q_i = -\frac{\chi_p}{\chi_i} C_i^{-1} D_i \quad (6.18)$$

$$C_i = \begin{pmatrix} \lambda_i^- ((1-u)k_i^+ + (1+u)k_i) & \lambda_i^+ ((1-u)k_i^+ - (1+u)k_i) \\ \lambda_i^+ ((1-u)k_i^+ - (1+u)k_i) & \lambda_i^- ((1-u)k_i^+ + (1+u)k_i) \end{pmatrix} \quad (6.19)$$

$$D_i = \begin{pmatrix} \lambda_p^- ((1-u)k_i^+ + (1+u)k_p) & \lambda_p^+ ((1-u)k_i^+ - (1+u)k_p) \\ \lambda_p^+ ((1-u)k_i^+ - (1+u)k_p) & \lambda_p^- ((1-u)k_i^+ + (1+u)k_p) \end{pmatrix} \quad (6.20)$$

$$\lambda_i^\pm = e^{\pm i k_i l/2}, \quad k_i^+ = \sqrt{2 M_i (E - E_i + i \Gamma_i) / \hbar}. \quad (6.21)$$

Mit den oben eingeführten Abkürzungen lautet die Transfermatrix für ein Medium mit drei Polaritonästen:

$$A_j^\pm = \begin{pmatrix} \lambda_j^\mp & \lambda_j^\pm \\ n_j \lambda_j^\mp & -n_j \lambda_j^\pm \end{pmatrix} \quad (6.22)$$

$$M = (A_p^+ + A_h^+ Q_h + A_l^+ Q_l) (A_p^- + A_h^- Q_h + A_l^- Q_l)^{-1} \quad (6.23)$$

6.3.3 Zusätzliche Randbedingungen und exzitonfreie Randschicht

Räumlich dispersive Medien besitzen bei der **gleichen Frequenz und Polarisation** erstaunlicherweise **mehrere anregbare Moden**. Bei Einstrahlung von Licht auf die Halbleiteroberfläche kann die Frage nach der Aufteilung der Energie auf die einzelnen Zweige jedoch nicht mit den Maxwell'schen Stetigkeitsforderungen an die transversalen Komponenten von E und H allein beantwortet werden [Pek58a]. Zur Festlegung der vier Verhältnisse E_r/E_i , E_p/E_i , E_h/E_i und E_l/E_i an der Grenzfläche sind zwei weitere Randbedingungen erforderlich.

Dieses Dilemma tritt nicht auf bei einer konsequenten quantenmechanischen Behandlung. Dazu müssen Schrödinger- und Maxwellgleichung in Halbraumgeometrie selbstkonsistent gelöst werden, ohne daß wie im unendlichen Kristall eine Reduktion der Berechnung auf eine Einheitszelle möglich wird. Wegen des großen Rechenaufwands gibt es bislang eine strenge Lösung nur im Gebiet diskreter Zustände [Tig00]. Im Kontinuum führt derzeit der einzige Weg zur Berechnung des Aufteilungsverhältnisses über zusätzliche Randbedingungen, die seit Ende der fünfziger Jahre bis heute kontrovers diskutiert werden [Pek58b, Gin58, Bir75, Tin75, Hal82, Hal84, Hen98]. Aus einem einfachen Modell für die Reflexion von Exzitonen an einer Grenzfläche, dessen physikalischer Gehalt von späteren detaillierteren Theorien bestätigt wird, leiten Zeyher et al. folgende Form für die Suszeptibilität $\chi(z, z')$ ab ([Bir79] und dortige Referenzen):

$$\chi(z, z') = \chi_0 \delta(z - z') + \chi_1(z - z') + u \chi_1(z + z'), \quad \chi_1(z) \sim \frac{e^{ik_j^+|z|}}{(k_j^+)^2}. \quad (6.24)$$

Der erste Term auf der rechten Seite ist die lokale Antwort des Mediums, während die nächsten beiden Terme die nichtlokale Suszeptibilität des unendlich ausgedehnten Mediums und die nichtlokale Suszeptibilität eines mit der Amplitude u an der Grenzfläche reflektierten Exzitons darstellen. Für die kohärente Reflexion des Exzitons müssen Elektron und Loch ihre Relativbewegung beibehalten, indem sie „starr“ mit dem induzierten „Bild-Exziton“ jenseits der Oberfläche wechselwirken. Dieser Prozeß ist bevorzugt eng gebundenen Elektron-Loch-Paaren – Frenkel-Exzitonen – möglich, für die sich ein Knoten der Eigenfunktion der Schwerpunktsbewegung an der Grenzfläche und Totalreflexion mit $u = -1$ ergeben [Pek58b].

Mit der Berechnung der Wellenfunktion eines Wannier-Exzitons vor einer unendlich hohen Potentialschwelle setzen Ting et al. an [Tin75]. Im Unterschied zu den Frenkel-Exzitonen verschwindet die Schwerpunktsbewegung hier nicht an der Oberfläche, wohl aber durch evaneszente Oberflächenterme die Gesamtwellenfunktion. Benutzt man diese zur Bestimmung der Suszeptibilität im Kristall,

so wird man wieder auf die Form von Gleichung 6.24 geführt mit einem Reflexionskoeffizienten $u = +1$. $u = -1$ (Pekar) bzw. $u = +1$ (Ting) bedeuten das Verschwinden der exzitonischen Polarisation bzw. des Flusses der exzitonischen Polarisationswellen an der Oberfläche. Unabhängig vom Wert von u bleibt die Polaritondispersion 6.8 gültig.

Es liegt nahe, Grenzflächen realistischer durch Verallgemeinerung von u auf das Gebiet innerhalb des komplexen Einheitskreises zu beschreiben [Hal84], also eine beliebige Phasenänderung bei der Reflexion zuzulassen und Dissipation an der Oberfläche einzuführen. Aus der allgemeinen Form der Suszeptibilität in Gl. 6.24 kann man mit einer Integralgleichungsmethode, die eine Beziehung zwischen einfallendem Feld und erzeugter nichtlokaler Polarisation im endlichen Medium herstellt [Bir79], folgende zusätzlichen Bedingungen an den Rändern der Halbleiterschicht bei $z = -l/2$ und $z = l/2$ ableiten [Hal84]:

$$\begin{aligned} i k_j^+ (1 - u) P_j|_{-l/2} + (1 + u) \partial_z P_j|_{-l/2} &= 0 \\ i k_j^+ (1 - u) P_j|_{l/2} - (1 + u) \partial_z P_j|_{l/2} &= 0 \end{aligned} \quad (6.25)$$

$$j = 1, \text{ h}$$

Bei neutraler Oberfläche können elektromagnetischer und mechanischer Energiefluß ohne Dämpfung im Medium nur für $u = \pm 1$ erhalten werden [Sol88]. Für eine verlustbehaftete Oberfläche schafft die Energieerhaltung einen Zusammenhang zwischen Betrag und Phase des Reflexionskoeffizienten und erzwingt $|u| \rightarrow 1$ für Photonenergien weit größer als E_L . Diese Beschränkung wird aufgehoben mit der Konstruktion einer diffusen Oberfläche durch Einführung von charakteristischen, induzierten magnetischen Dipoldichten und Oberflächenströmen [Mon80]. Der Reflexionskoeffizient u wird in diesem energieerhaltenden Modell durch die Oberflächendipoldichte festgelegt und umgekehrt.

Die Theorie ist in der Lage, das lange ungeklärte Maximum bei E_L in Polariton-Reflexionsspektren von GaAs zu reproduzieren [Mon80], wobei zusätzlich zur dissipativen Oberfläche eine **exzitonfreie Randschicht** berücksichtigt werden muß. Damit trägt man der im semiklassischen Bild vernachlässigten Tatsache Rechnung, daß im Abstand von einem Bohrradius und weniger von der Grenzfläche die exzitonische Wellenfunktion und Polarisation stark abfallen sollte. Die Dicke der Schicht ist gegeben durch die Länge, auf der das exzitonische Oberflächen- und Bildladungspotential unter die Aufspaltung $E_L - E_T$ abfällt [Bals81]. Je geringer die Oszillatorstärke oder je kleiner die Exzitonmasse, desto ausgedehnter wird die sogenannte **dead layer**. Meist kann sie durch den Bohrradius selbst angenähert werden. Nach Rechnungen, die eine adiabatische Änderung des oberflächennahen Potentials voraussetzen und auf den Bereich $E_{\text{kin}} \leq E_B$ beschränkt sind, ist

eine Abnahme der Randschichtdicke mit steigender kinetischer Energie der Exzitonen zu erwarten [Bals81, Bas93]. Dieser Effekt wird besonders in Proben von nur wenigen Bohrradien Dicke wichtig (siehe Kap.6.3.7). Um einen Eindruck zu vermitteln, wie sich die durch u beschriebene Qualität der Oberfläche in den Polaritoninterferenzspektren äußert, wurde in Abb.6.7 die differentielle Transmission ausschließlich für Schwerlohexzitonen in einer 190 nm dicken GaAs-Probe mit verschiedenen Reflexionskoeffizienten berechnet. Als Dämpfung wurde in Anwesenheit des Pumpimpulses $\Gamma = 5 \text{ meV}$ und in seiner Abwesenheit $\Gamma = 0.15 \text{ meV}$ verwendet. Während die **Birman Randbedingungen** $u = 0$ [Bir75] ein glattes Muster ergeben (c), besitzen die nach den **Pekarschen Randbedingungen** $u = -1$ [Pek58b] gewonnenen Polaritonoszillationen größere Amplituden und eine Unterstruktur (a). Bei Reflexion ohne Phasensprung ($u = +1$, **Ting Randbedingungen**) nimmt die Oszillationsamplitude stark ab (e). Je mehr die Exzitonen kohärent an den Halbleiteroberflächen gestreut werden, desto deutlicher treten in den Polaritonspektren die unterliegenden Strukturen zutage, deren spektraler Verlauf von Probendicke und Wellenlänge der einfallenden Photonen abhängt (vgl. Kap.6.3.7).

Der Reflexionskoeffizient hat - wie gesehen - auch Einfluß auf die Amplitude der Oszillationen, weist aber keinen Frequenzgang auf: Der kontinuierliche Abfall des

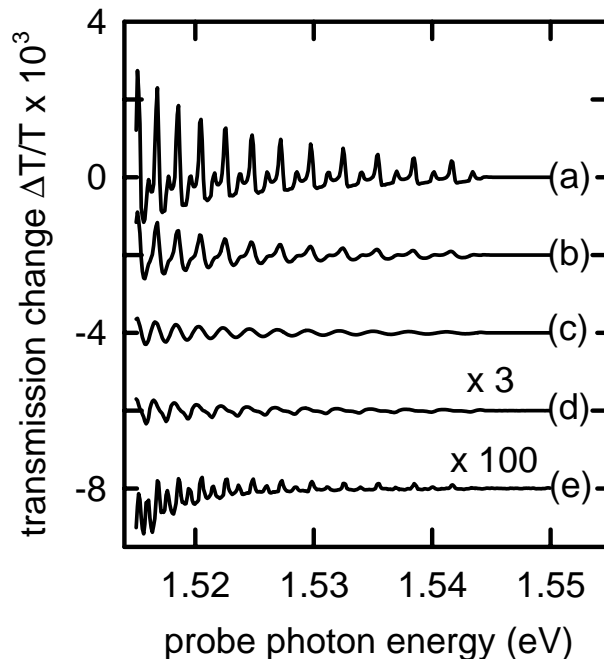


Abb. 6.7: Mit verschiedenen Reflexionskoeffizienten u berechnete hhX-Polaritoninterferenzspektren: Pekarsche ABC $u = -1$ (a), $u = -0.5$ (b), Birman ABC $u = 0$ (c), $u = 0.5$ (d) und Ting ABC $u = 1$ (e).

Signals in Abb. 6.7 zu höheren Energien hin ist vielmehr eine Folge des abnehmenden Photongehalts (vgl. Abb. 6.3) und der schwächeren Anregung des exzitonartigen Zweigs, da selbst beliebig scharfe Grenzflächen für die Wellenvektoranpassung in immer geringerem Maße räumlich hochfrequente Fourierkomponenten zur Verfügung stellen. Die Diskontinuität der Oszillationen in den Spektren (a) und (c) der Abb. 6.5 muß also durch die Wechselwirkung der Exzitonen im Volumenmaterial zu erklären sein, wofür wegen der niedrigen Störstellenkonzentration nur die im folgenden behandelten Streuprozesse mit Phononen in Frage kommen.

6.3.4 Polariton-Phonon-Wechselwirkung

Die hier betrachteten Polaritonen streuen über ihre exzitonischen Komponenten an Phononen. Der Wechselwirkungs-Hamiltonoperator

$$H_{X-ph} = \sum_{\mathbf{q}, \mathbf{K}, n, n'} I_{n, \mathbf{K}}^{n', \mathbf{K}+\mathbf{q}}(\mathbf{q}) B_{n', \mathbf{K}+\mathbf{q}}^\dagger B_{n, \mathbf{K}} a_{\mathbf{q}} + cc \quad (6.26)$$

beschreibt Übergänge von Exzitonen der Hauptquantenzahl n in das Band n' unter Absorption bzw. Emission von Phononen mit Wellenvektor \mathbf{q} . Der Summationsindex aller möglichen Phononmoden ist in Gl. 6.26 nicht mit angeschrieben. Nach Transformation der Exziton-Operatoren B auf Polariton-Operatoren P [Mat84] erhält man

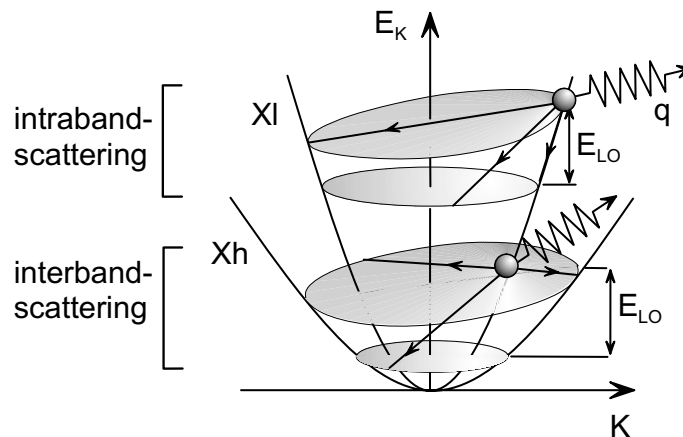


Abb. 6.8: Schematische Darstellung der phononassistierten Intra- und Interbandstreuung von Leicht- (Xl) und Schwerlohexzitonen (Xh). Die schwach geneigten (horizontalen) Schnittflächen geben die Emission akustischer (optischer) Phononen wieder.

$$H_{\text{P-ph}} = \sum_{\mathbf{q}, \mathbf{K}, n, n'} L_{n, \mathbf{K}}^{n', \mathbf{K}+\mathbf{q}} I_{n, \mathbf{K}}^{n', \mathbf{K}+\mathbf{q}}(\mathbf{q}) P_{n', \mathbf{K}+\mathbf{q}}^\dagger P_{n, \mathbf{K}} a_{\mathbf{q}} + \text{cc} \quad (6.27)$$

$$L_{n, \mathbf{K}}^{n', \mathbf{K}+\mathbf{q}} = \frac{1}{2} u_{\mathbf{K}+\mathbf{q}} u_{\mathbf{K}} \left(1 + \frac{E_{X, n}(\mathbf{K}) E_{X, n'}(\mathbf{K} + \mathbf{q})}{E_n(\mathbf{K}) E_{n'}(\mathbf{K} + \mathbf{q})} \right) \quad (6.28)$$

enthält neben einem Term mit dem Verhältnis von Exziton- und Polariton-Dispersion das intuitiv erwartete Produkt der Exzitonartigkeit von Anfangs- und Endzustand. Bereits wenige meV oberhalb E_L kann L jedoch in guter Näherung gleich eins gesetzt werden (vgl. Abb. 6.3).

Mit den Elektron- und Lochkoordinaten \mathbf{r}_e bzw. \mathbf{r}_h , den wechselwirkungsspezifischen Kopplungskonstanten $C_{\mathbf{q}, e(h)}$ aus Kap. 5.5.1 und den Exziton-Wellenfunktionen Ψ berechnet man für das Matrixelement

$$I_{n, \mathbf{K}}^{n', \mathbf{K}+\mathbf{q}}(\mathbf{q}) = \int d\mathbf{r}_e d\mathbf{r}_h \Psi_{n', \mathbf{K}+\mathbf{q}}^* (e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}_e} C_{\mathbf{q}, e} - e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}_h} C_{\mathbf{q}, h}) \Psi_{n, \mathbf{K}}. \quad (6.29)$$

Für Streuung zwischen Zuständen der gleichen Exzitonspezies kann das Matrixelement als mit den Formfaktoren S gewichtete Summe von Elektron- und Lochbeiträgen geschrieben werden:

$$I_{n, \mathbf{K}}^{n', \mathbf{K}+\mathbf{q}}(\mathbf{q}) = C_{\mathbf{q}, e} S_n^{n'}(p_e \mathbf{q}) - C_{\mathbf{q}, h} S_n^{n'}(-p_h \mathbf{q}) \quad (6.30)$$

$$S_n^{n'}(\mathbf{q}) = \int d\mathbf{r} \Phi_{n'}^*(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} \Phi_n(\mathbf{r}) \quad (6.31)$$

$$p_{e(h)} = \frac{m_{h(e)}}{m_h + m_e} \quad (6.32)$$

$\Phi_n(\mathbf{r})$ ist dabei der von den Relativkoordinaten abhängige Anteil von Ψ , also $\Phi_1(\mathbf{r}) = 1/\sqrt{\pi a_1^3} e^{-r/a_1}$ usw. Die Fouriertransformierte $S_n^m(p_{e(h)} \mathbf{q})$ der Ladungsträgerverteilung des Elektrons (Lochs) bei der inneren Bewegung um den Schwerpunkt bestimmt die Effektivität der Kopplung an Phononen mit Wellenvektor \mathbf{q} . Für 1s-Intrabandstreuung erhält man das wichtige Ergebnis

$$S_{1s}^{1s}(\mathbf{q}) = \frac{1}{(1 + (q a_1/2)^2)^2}. \quad (6.33)$$

Weitere Formfaktoren für Übergänge aus dem 1s-Niveau in 2s- und 2p-Bänder des gleichen Typs und in Kontinuumszustände sowie für die Streuung zwischen Leicht- und Schwerloch-Exzitonbändern sind im Anhang B zusammengestellt. Aus der Struktur der Formfaktoren kann man erkennen, daß bei der Wechselwirkung Phononen mit Wellenvektoren von der Größe des inversen exzitonischen Bohrradius bevorzugt werden und Streuprozesse in höhere gebundene Zustände immer bedeutungsloser werden. Oberhalb der Energie $E_X + E_{LO}$ ist - wie im Fall freier Ladungsträger - der schnellste Relaxationsmechanismus für Exzitonen die von der polar-optischen Wechselwirkung vermittelte Emission von LO-Phononen. Im Bild 6.9 (a) sind die bei $T_L = 20$ K berechneten 1s-hhX-Streuratzen

in Zustände der gleichen Serie ($1s_{hh}$, $2s_{hh}$, $2p_{hh}$ und Kontinuum) und ins $1s$ -lhX-Band ($1s_{lh}$) dargestellt. Mit 5 ps^{-1} ist die $1s$ -hhX-Intrabandstreuung etwa so schnell wie die polar-optische LO-Emission von Leitungsbandelektronen in GaAs (vgl. Kap. 5.5.1). Die LO-Emission wird hauptsächlich vom Loch getragen. Der Effekt der größeren Zahl der Endzustände ($M_{Xh} > m_e$) wird durch den

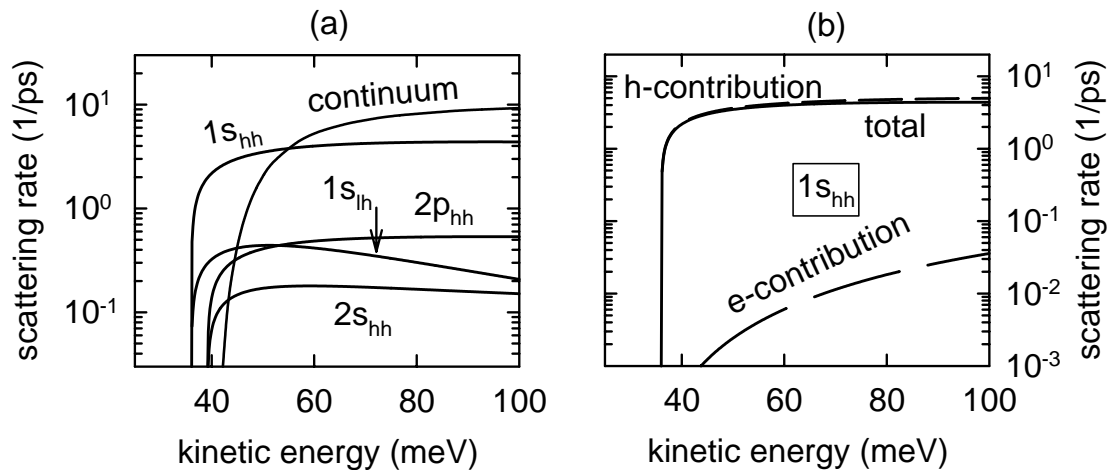


Abb. 6.9: (a) Polar-optische Streuung von $1s$ -Schwerlochexzitonen der Masse $M_{hh} = 0.51 m_0$ in die Zustände $1s_{hh}$, $2s_{hh}$, $2p_{hh}$, in Kontinuumszustände und in $1s$ -Leichtloch-Exzitonzustände ($1s_{lh}$), berechnet für eine Gittertemperatur von $T_L = 20\text{ K}$ und die lhX-Masse $M_{lh} = 0.19 m_0$. (b) Elektron- und Lochbeiträge für einen der schnellsten Relaxationskanäle, der $1s$ -hhX-Intrabandstreuung: Die Streurrate wird überwiegend vom Lochterm im Matrixelement 6.30 bestimmt.

Formfaktor wieder kompensiert. Wegen der gleichen Kopplungskonstante von Elektron und Loch an das LO-Polarisationsfeld zeigt das Matrixelement der Fröhlich-Wechselwirkung von Exzitonen ein bemerkenswertes Verhalten: es verschwindet beim Wellenvektor $q = 0$. In diesem Fall ist das makroskopische elektrische Feld der LO-Phononen räumlich konstant; die Wechselwirkungsenergie mit dem neutralen Exziton muß verschwinden. Für große q wechselt das LO-Phonon-Feld über den Bohrradius mehrfach das Vorzeichen, während die Ladungsverteilung von Elektron oder Loch nahezu unverändert bleibt. Auch hier geht das Wechselwirkungs-Matrixelement gegen Null. Bei einer nahe beim Bohrradius gelegenen Phonon-Wellenlänge ist die Wechselwirkung am stärksten. Im Vergleich mit der vom Lochanteil dominierten Fröhlich-Wechselwirkung von Schwerlochexzitonen bietet sich für Leichtlochexzitonen ein ganz anderes Bild: Wegen $m_e \simeq m_{lh}$ und der von der Art der Ladungsträger unabhängigen Fröhlich-Kopplungskonstante treten im Matrixelement 6.30 deutliche Interferenzen zwischen Elektron- und

Lochbeiträgen auf (Abb. 6.10 (b) und (c)). Der physikalische Hintergrund hiervon ist die Reduktion der polar-optischen Wechselwirkungsenergie der lhX mit LO-Phononen vom Wellenvektor q aufgrund der annähernd gleichen Ladungsverteilung von Elektron und Loch um den gemeinsamen Schwerpunkt. Während freie

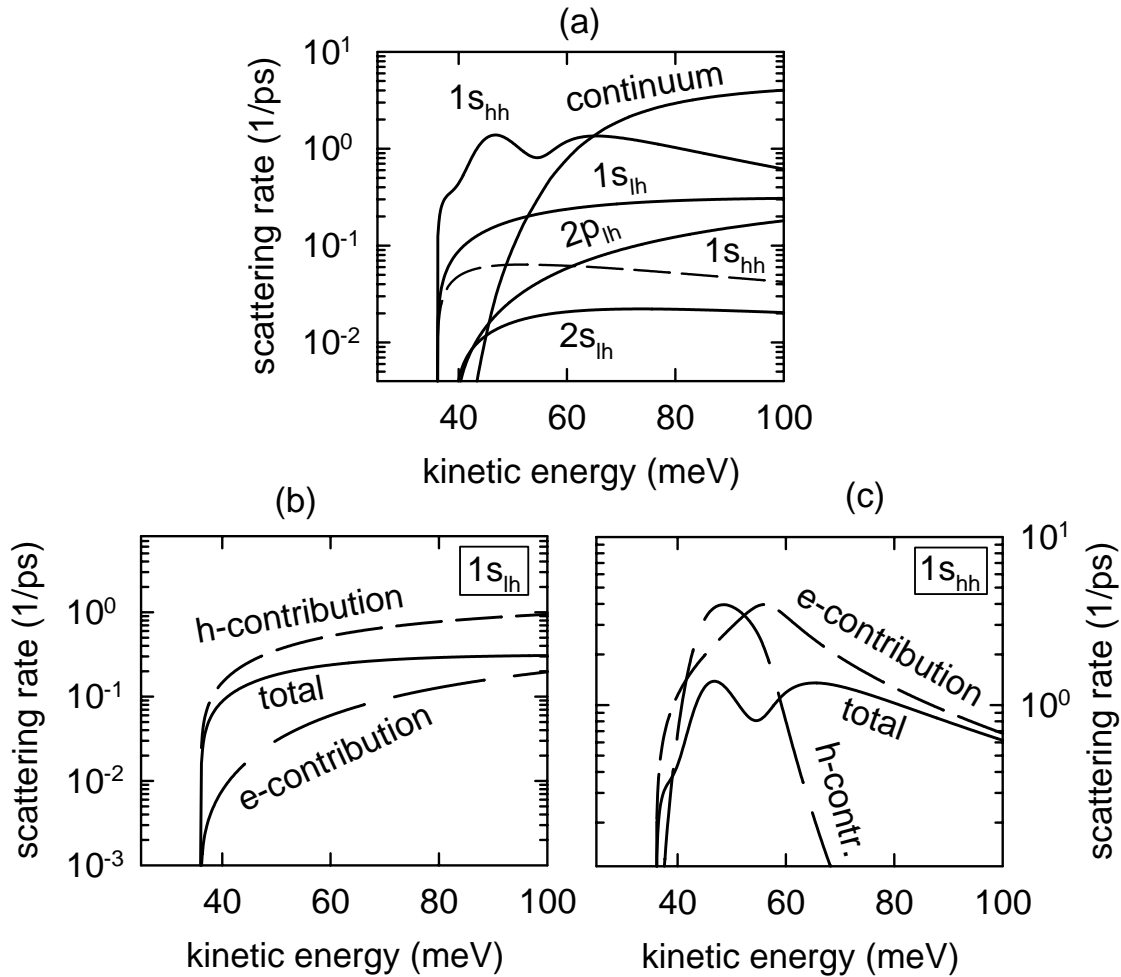


Abb. 6.10: (a) Polar-optische Streuung von $1s$ -Leichtlohexzitonen der Masse $M_{lh} = 0.19 m_0$ in die Zustände $1s_{lh}$, $2s_{lh}$, $2p_{lh}$, in Kontinuumszustände und in $1s$ -Schwerloch-Exzitonenzustände ($1s_{hh}$), berechnet für eine Gittertemperatur von $T_L = 20 \text{ K}$ und eine hhX-Masse $M_{hh} = 0.51 m_0$. Gestrichelt ist die optische Deformationspotential-Streuung des $1s$ -lhX ins $1s$ -hhX-Band eingezeichnet. (b) und (c): Elektron- und Lochbeiträge bei der polar-optischen $1s$ -lhX-Intraband- bzw. -Interbandstreuung in $1s$ -hhX-Zustände: Die Interferenz im Matrixelement 6.30 führt zur Reduktion der Intraband-LO-Streureate auf weniger als 0.3 ps^{-1} und der Interbandrelaxationsrate auf 1.5 ps^{-1} .

leichte Löcher ultraschnell durch polar-optische Wechselwirkung mit dem Gitter relaxieren, verlangsamt sich dieser Prozeß stark für Leichtlohexzitonen: Die minimale Streuzeit von lhX ins hhX-Band liegt mit 700 fs fast zwanzigmal höher als die Interbandstreuzeit leichter Löcher [Scho95]. Obwohl Übergänge mit sehr kleinem Impulsübertrag möglich sind, kompensieren Formfaktor und Überlapp-Integrale viel stärker als bei freien leichten Löchern die Divergenz des Kopplungskoeffizienten (Gl. 5.26). Auch die lhX-Intrabandstreuzeit von 3 ps ist um den Faktor 20 größer als die polar-optische Leichtloch-Intrabandrelaxationszeit.

6.3.5 Diskussion der stationären Messungen

Vor diesem Hintergrund ist die Interpretation des bei der LO-Emissionsschwelle un stetigen Verlaufs der hhX-Polaritonoszillationen klar: Die freie Weglänge für Schwerlohexzitonen mit zur Emission von LO-Phononen ausreichender Energie beträgt nur 20 bis 30 nm und ist damit viel kleiner als die Propagationslängen in den Proben (a) und (b) (Anhang A): die hhX-Komponente verliert ihre Phase vollständig und erreicht die zweite Grenzfläche nicht. Im Gegensatz dazu liegt die Streulänge der lhX wegen ihrer abgeschwächten Polaronkopplung und höheren Phasengeschwindigkeit mit über 100 nm im Bereich der Schichtdicken: lhX-Polaritonen bleiben auch oberhalb von $E_X + E_{LO}$ beobachtbar.

In Abb. 6.5 (b) und (d) sind differentielle Transmissionsspektren nach dem in den vorigen Abschnitten entwickelten Modell berechnet. Polaritonzustände des Exziton-Kontinuums bewirken im nichtlinearen Spektrum zwar keine oszillatorischen Signale, jedoch ein Ausbleichen, das die anregungsinduzierte Absorptionzunahme im photonartigen Zweig gerade kompensiert [Mul00]. Dieser Effekt wird durch eine konstant gehaltene Dämpfung im photonartigen Zweig berücksichtigt. Auch im nichtangeregten Halbleiter werden 1s-Exzitonen gestreut, nämlich an Störstellen und an vom Probeimpuls selbst erzeugten freien Ladungsträgern. In der 500 nm dicken Schicht wird diese Hintergrunddämpfung, die die maximal er-

Parameter					
GaAs-Schicht	Reflexionskoeffizient	hhX-Masse (m_0)	lhX-Masse (m_0)	hhX-c-Streurate (meV)	lhX-c-Streurate (meV)
500 nm	-0.5	0.52	0.19	0.6	0.5
200 nm	-0.4	0.51	0.20	0.7	1.0

Tabelle 6.1: An die differentielle Transmissionsspektren aus Abb. 6.5 angepaßte Theorieparameter.

reichbare Oszillationsamplitude festlegt, für hhX gleich 0.2 meV und für lhX auf 0.6 meV gesetzt; in der 200 nm Probe wird für beide Exzitonen ein Wert von 0.6 meV gewählt. In Tabelle 6.1 sind die aus den Messungen gewonnenen Werte für die Reflexionskoeffizienten, die hhX- bzw. lhX-Massen und die Streuraten der Exzitonen mit dem pumpinjizierten Elektron-Loch-Plasma zusammengefaßt.

Da die Polaritonsoszillationen über viele Perioden beobachtbar sind, können insbesondere die Exzitonmassen sehr genau bestimmt werden. Die für die beiden Probendicken 200 nm und 500 nm ermittelten hhX-Massen von $0.51 m_0$ bzw. $0.52 m_0$ weichen kaum von der aus der Literatur bekannten Summe ($0.47 m_0$) der Elektron- und Lochmassen in $\langle 100 \rangle$ -Richtung ab [Sko76] – ein Anzeichen dafür, daß Schwerloch- und hhX-Bänder im betrachteten Energieintervall in guter Näherung parabolisch verlaufen. Für die lhX-Massen ergibt sich $M_1 = 0.19 m_0$ bzw. $M_1 = 0.20 m_0$. Da bei genügend großen Schwerpunktswellenvektoren die Valenzbandmischung vernachlässigt werden kann [Kan75] und die Exzitonmassen als Summe der effektiven Elektron- und Lochmassen darstellbar sind, legen die vorigen Messungen im Bereich kinetischer Energien von 10 . . . 100 meV eine effektive Leichtlochmasse von $m_{\text{lh}}^{(100)} = 0.125 m_0$ nahe, entsprechend den Luttingerparametern $\gamma_1 = 5.10$ und $\gamma_2 = 1.45$. Diese Leichtlochmasse paßt gut zu Photostromexperimenten an GaAs/AlGaAs-Vielfachquantentrögen [Yam75] und zu Pseudopotentialrechnungen für Zinkblendestrukturen [Bow69], die beide $m_{\text{lh}} = 0.12 m_0$ ergeben. Sie ist jedoch deutlich größer als die mittels Zyklotronresonanz bestimmte Leichtlochmasse $m_{\text{lh}} = 0.082 m_0$ [Sko76]. Bei Probe-Photonenenergien über 1.70 eV verlangsamt sich der Anstieg der Oszillationsperiode in den Polariton-Interferenzspektren. Dies ist ein deutlicher Hinweis auf die Nichtparabolizität des lh-Bands (vgl. Abb. 2.2).

Aus der Form der Oszillationen wird in der 500 nm-Probe der Reflexionskoeffizient u zu -0.5 bestimmt. Dissipation und teilweise inkohärente Reflexion an den Grenzflächen sind in der stärker verspannten 200 nm-GaAs-Schicht, in der hhX und lhX um etwa 5 meV getrennt liegen, offenbar noch ausgeprägter. Die größere Rauigkeit spiegelt sich in dem geringeren Reflexionskoeffizienten $u = -0.4$ und in einer größeren inhomogenen Verbreiterung (1.5 meV) wider – Werte, mit denen bis auf die etwas zu kleine Amplitude recht gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment erzielt wird.

In der letzten Spalte der Tabelle sind die pumpinduzierten Dämpfungsbreiten eingetragen. Ihre Werte zwischen 0.4 . . . 1 meV orientieren sich an den experimentellen Daten aus Kap. 6.3.7. Danach streuen hochenergetische Exzitonen an freien Ladungsträgern bei $N = 5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ innerhalb von etwa einer Pikosekunde. In Abb. 6.5 (b) und (d) wurde eine scharfe Schwelle für die LO-Emission der Polaritonen verwendet. Genaugenommen setzt die polar-optische Streuung aber wegen der abnehmenden Exziton-Artigkeit der unteren Polaritonzweige nicht ab-

rupt ein, sondern nähert sich erst 1 meV oberhalb $E_X + E_{LO}$ den in Abbn. 6.9 und 6.10 berechneten Werten. Die Berücksichtigung dieses Details erklärt die unterschätzte hhX-Amplitude bei 1.545 eV in Abb. 6.5 (b).

6.3.6 Bedingungen für die Sichtbarkeit der Polaritonszillationen

Um die Interferenzen zwischen den verschiedenen Polaritonmoden nachweisen zu können, müssen folgende von Kiselev [Kis75] zuerst formulierten Bedingungen an die Oberfläche und an das Volumenmaterial erfüllt sein: Zum Einen müssen die zusätzlichen Randbedingungen eine ausreichende Anregung der exzitonartigen Zweige erlauben. Daneben darf die intrinsische Streuung die kritische Dämpfung nicht übersteigen. Selbst wenn in der Halbleiterschicht Störstellen- und Phononstreuung vernachlässigbar sind, wechselwirken die Polaritonen immer untereinander über ihre exzitonischen Komponenten. Da die Exziton-Exziton-Streuung langsam ist im Vergleich zur Streuung von Exzitonen an freien Ladungsträgern [Schu86], wurde in Kurzzeitexperimenten unterhalb der Bandkante zur Untersuchung der Polaritonpropagation nur ein schwacher Einfluß der Impuls-

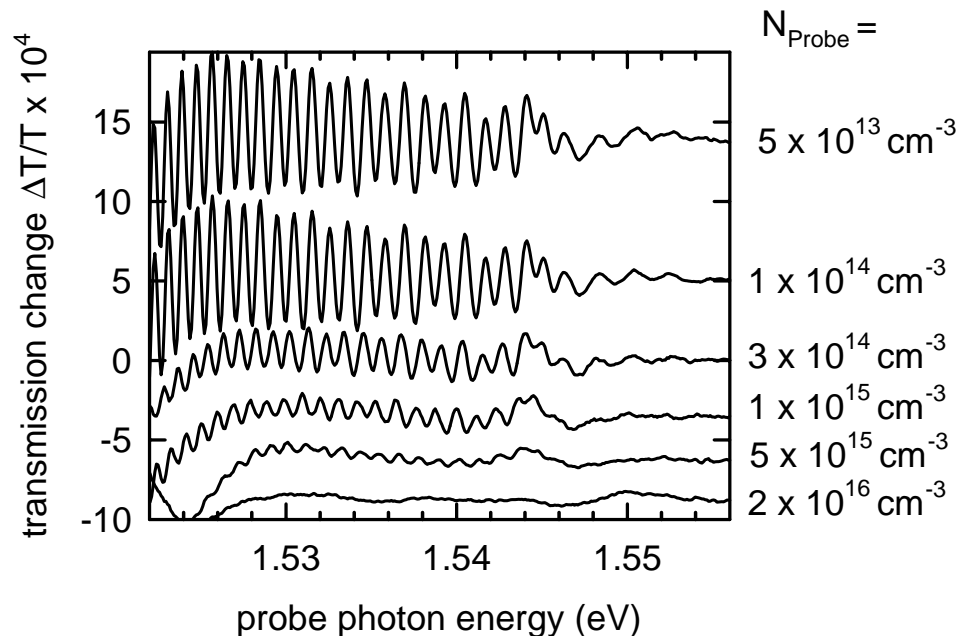


Abb. 6.11: Differentielle Transmissionsspektren der 500 nm-GaAs-Schicht für verschiedene probegenerierte Elektron-Loch-Dichten N zur Verzögerungszeit $t_D = 10$ ps. Übrige Parameter wie in Abb. 6.5 (a).

intensität auf die Dephasingszeit festgestellt [Nüs97, Frö91]. Oberhalb von E_G jedoch kann man zur Beobachtung der Polaritondynamik nur Probeimpulse von geringer Intensität benutzen, um die Selbstdämpfung der exzitonartigen Komponenten durch probegenerierte freie Ladungsträger zu vermeiden. Abb. 6.11 zeigt, wie in der 500 nm-Probe die Polaritoninterferenzen bei verschiedenen Dichten N des probeinjizierten Elektron-Loch-Plasmas ausgeprägt sind. Für $N \leq 1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ wird das selbstinduzierte Dephasing bedeutungslos; dann bestimmen nur die Hintergrunddämpfung und die Oberflächeneigenschaften die maximale Oszillationsamplitude. Mit steigender Ladungsträgerdichte nimmt die Amplitude ab, bis sie schließlich bei überkritischer Dämpfung ($N \geq 1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$) verschwindet.

6.3.7 Zeitaufgelöste Polaritonpropagation

Die Zuordnung des Interferenzmusters der 500 nm-Probe aus Abb. 6.5 zu drei Moden wird bestätigt durch eine Untersuchung der Dynamik des angeregten Wellenpakets zu verschiedenen negativen Verzögerungszeiten t_D , d.h. wenn der Probeimpuls vor dem Pumpimpuls an der vorderen Grenzfläche eintrifft (Abb. 6.12). Für $t_D \geq 0$ erfahren sowohl lhX- als auch hhX-Polaritonen eine effiziente Dämpfung, da beide mit geringerer Gruppengeschwindigkeit v_G als die photonartige Komponente des Pumpimpulses propagieren und über die gesamte Schichtdicke an pumpgenerierten freien Elektron-Loch-Paaren gestreut werden. Unterhalb von $E_X + E_{LO}$ tritt deshalb eine spektrale Schwebung zwischen den lhX- und hhX-Komponenten auf. Wird der Probeimpuls 1.75 ps vor der Injektion von Streupartnern auf die Probe eingestrahlt, so ist in der gleichmäßigen, an der LO-Emissionsschwelle endenden Oszillationsstruktur nur noch die hhX-Komponente enthalten. Die lhX-artige Mode mit $v_G > 500 \text{ nm} / 1.75 \text{ ps} = 2.9 \times 10^7 \text{ cm/s} = 1 \times 10^{-3} c$ verläßt die Probe noch vor der Generation freier Ladungen durch den Pumpimpuls. Bei $t_D \simeq -3.5 \text{ ps}$ werden die Schwerlohexziton-Polaritonen erst am Ende ihrer Propagation durch den Film gedämpft und die differentielle Transmission geht gegen Null. In den zu drei frühen Verzögerungszeiten aufgenommenen differentiellen Transmissionsspektren nahe der Bandkante (Diagramm links oben in Bild 6.12) kann man die dephasierende Wirkung eines pumpinjizierten Elektron-Loch-Plasmas auf die Polarisation des fundamentalen hhX schön erkennen. Nach der Anregung durch Probephotonen emittiert die weiteroszillierende hhX-Polarisation ein elektromagnetisches Feld (*freier Induktionszerfall* [Jof88, Hau96]). Dieser je nach Reinheit der Probe mehrere Pikosekunden dauernde, kohärente Prozeß wird durch Streuung an injizierten Ladungsträgern stark gedämpft. Das Fourierspektrum des im Zeitraum abgeschnittenen, exponentiell abfallenden Signals oszilliert um die Energie E_{Xh} mit einer zu frühen Verzögerungszeiten kleinen Periode, die für $t \rightarrow 0$

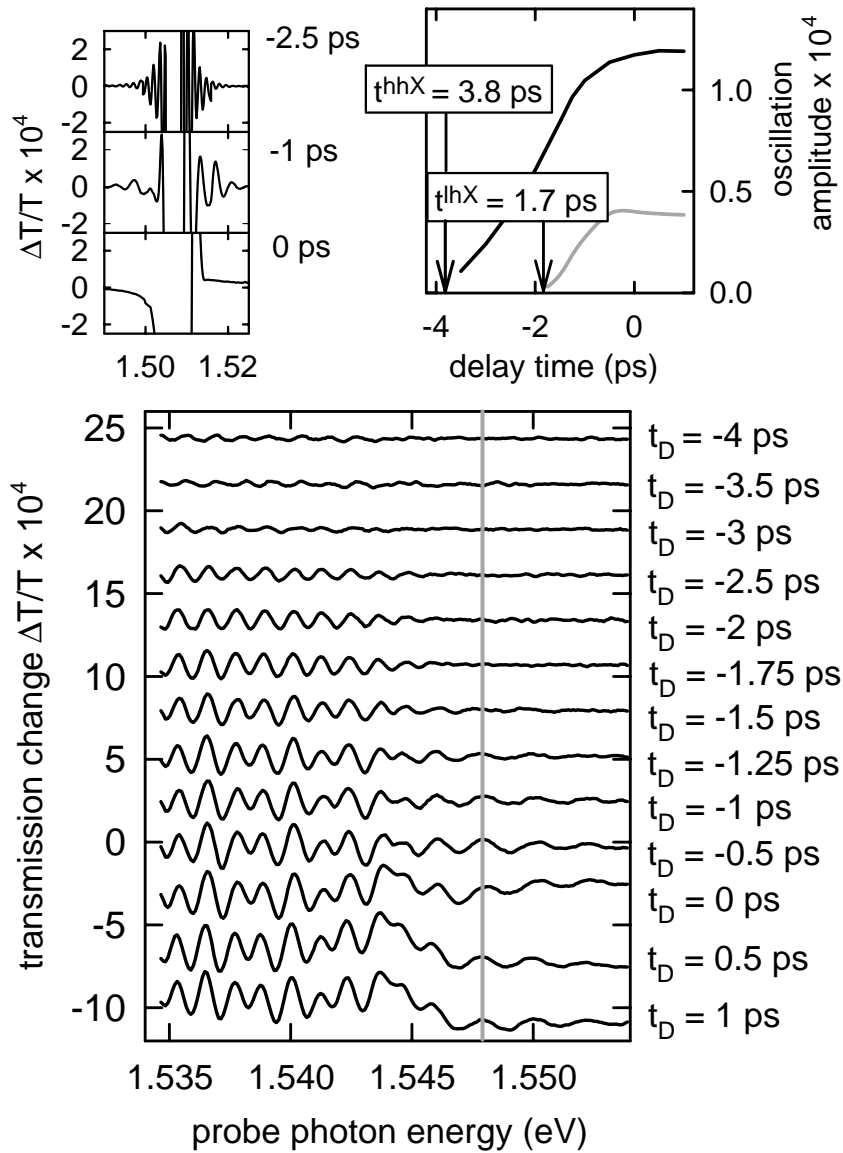


Abb. 6.12: Für verschiedene Verzögerungszeiten t_D aufgenommene differentielle Transmissionsspektren der 500 nm-GaAs-Probe im Energiebereich nahe $E_X + E_{LO}$. Pump- und Probeintensitäten wie in Abb. 6.5. Aus dem Vergleich der Spektren zu $t_D = 0$ und $t_D = -1.75$ ps kann man zwei unterschiedlich schnell propagierende Exzitonmoden erkennen. Das differentielle Signal am Exziton (Inset links oben) zeigt den für die Dämpfung der exzitonischen Polarisation ($t_D < 0$) typischen gestörten freien Induktionszerfall. Aus dem zeitlichen Verlauf der Oszillationsamplitude bei 1.533 eV und 1.548 eV (grau markierte Energieposition) kann man die Durchgangszeit von hhX und lhX durch die GaAs-Schicht ermitteln (rechtes Inset).

gegen ∞ geht. Aus der Auftragung der Oszillationsamplitude gegen die Verzögerungszeit für eine bestimmte Probe-Photonenergie kann man aus dem Abszissenabschnitt die Propagationszeit der jeweiligen Exzitonmode durch die Halbleiterschicht ablesen (Inset rechts oben). Oberhalb von $E_{\text{Xh}} + E_{\text{LO}}$ bei 1.548 eV leitet man aus der 1.7 ps kurzen Transitzeit eine Exzitonmasse von $0.19 m_0$ ab – konsistent mit der lhX-Masse aus Abschnitt 6.3.5. Genauso stimmt die effektive Masse der sich langsamer ausbreitenden Komponente, für deren Gruppengeschwindigkeit bei 1.533 eV $v_{\text{G}} = 1.3 \times 10^7 \text{ cm/s} = 4.4 \times 10^{-4} c$ gemessen wird, mit der hhX-Masse $0.52 m_0$ überein. Neben dem einfach zu interpretierenden Achsenabschnitt kann man aus zeitabhängigen Messungen weitere wertvolle Informationen zur Exzitudynamik gewinnen:

Streuung hochenergetischer Exzitonen an einem Elektron-Loch-Plasma

Wegen der kurzen Transitzeit photonartiger Polaritonen durch die 500 nm-Probe erfolgt die Ladungsträgerinjektion in der gesamten Schicht innerhalb der Dauer des Pumpimpulses, die deutlich kleiner als die Durchgangszeit für die exzitonartigen Moden ist. Durch Variation der Verzögerungszeit t_{D} kann man deshalb einstellen, auf welcher Strecke die langsameren exzitonartigen Moden des Abtastimpulses zusätzlich zur Hintergrundstreuung durch das injizierte Elektron-Loch-Plasma gedämpft werden. Die von t_{D} abhängige Oszillationsamplitude spiegelt direkt die Dephasierung der exzitonischen Polarisation wider. In Abb. 6.13 ist die zeitliche Entwicklung der Oszillationsamplitude der hhX-Polaritonen bei der Probe-Photonenergie 1.533 eV für verschiedene Dichten N der pumpgenerierten freien Ladungsträger dargestellt. Allen Transienten ist der Achsenabschnitt bei 3.8 ps gemeinsam. Das pumpinduzierte Dephasing führt bei geringen Plasmadichten $N = 6 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3} \dots 2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ((a) und (b)) zu einer annähernd linearen Abnahme der kohärenten hhX-Polarisation mit t_{D} . Ab $t_{\text{D}} = 0$ müssen die X-Polaritonen ein auf der gesamten Länge gepumptes Halbleitervolumen durchlaufen; die Dämpfung und die Oszillationsamplitude in den differentiellen Spektren bleiben konstant. Erhöht man die Pumpdichte bis auf $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ((c) und (d)), so überschreitet wie im Fall der Selbstdämpfung (Abschnitt 6.3.6) die Probendicke die mittlere freie Weglänge der Exziton-Ladungsträger-Streuung. Schon für kleine Wechselwirkungslängen, d.h. frühe Verzögerungszeiten werden die exzitonartigen Polaritonen stark geschwächt und die Oszillationsamplitude sättigt. Aus der Steigung der Transienten kann man die Zeitkonstanten für die Exziton-Ladungsträger-Streuung ableiten. Anpassungen für einen exponentiellen Polarisationszerfall sind in Abb. 6.13 als durchgezogene Linien eingetragen. Die zugehörigen Dämpfraten im angehängten Diagramm steigen im betrachteten Dichtebereich in guter Näherung linear von 0.3 ps^{-1} bei $N = 6 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ auf

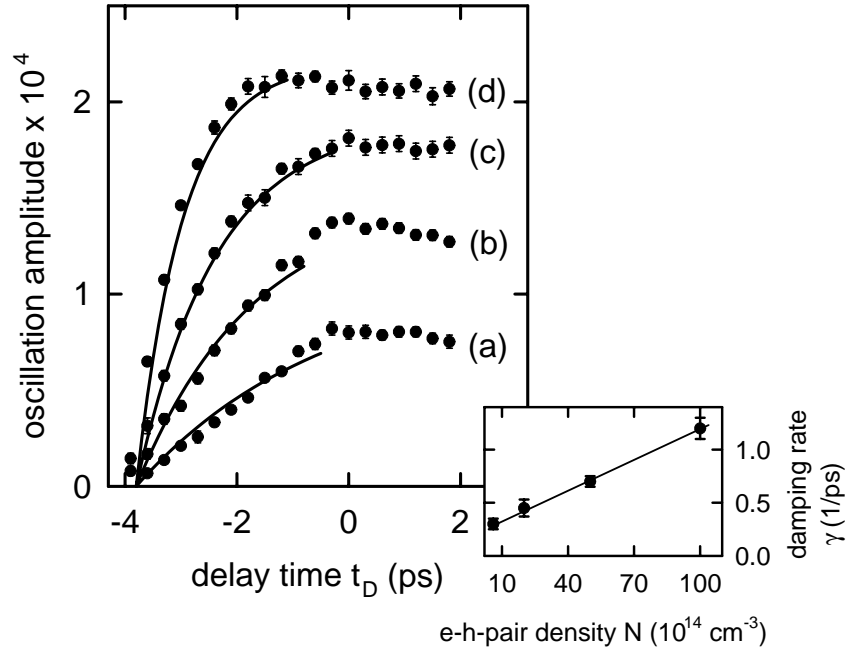


Abb. 6.13: Amplitude der spektralen Oszillationen bei der Photonenergie 1.533 eV in Abhängigkeit der Verzögerungszeit t_D für verschiedene pumpinduzierte freie Ladungsträgerdichten N : $6 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ (a), $2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ (b), $5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ (c) und $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ (d). Restliche experimentelle Parameter wie in Abb. 6.5. Kleines Diagramm: von der pumpgenerierten Ladungsträgerdichte N abhängige Dämpfungsrate der hhX-artigen Polaritonen bei 1.533 eV.

1.2 ps^{-1} bei $N = 1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$. Mit den vorliegenden Messungen ist es erstmals gelungen, die Dephasierung von Exzitonen mit großem Wellenvektor durch Stöße an freien Ladungsträgern zu untersuchen. Den Anschluß im Bereich sehr niedriger kinetischer Exzitonenergien ($K \simeq 0$) bilden Vierwellenmischexperimente von Schultheis et al. [Schu86], bei denen die Streurrate des fundamentalen Exzitons in Abhängigkeit der Dichte N eines 20 ps zuvor injizierten, thermalisierten Plasmas untersucht wurde. In der linearen Näherung der Streurrate $\gamma = \gamma_0 + \rho N$ fanden sie mit $\rho = 1.6 \times 10^{-3} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ einen fast zwanzigmal größeren Koeffizienten als er sich hier für Exzitonen mit 25 meV Überschußenergie ergibt ($\rho = 9.5 \times 10^{-5} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$). Die Abnahme des Streuquerschnitts mit steigender kinetischer Energie ist auf den geringeren von Exzitonen und freien Ladungsträgern geteilten Phasenraum und schwächere Austauscheffekte zurückzuführen [Schm85]. Eine theoretische Behandlung der elastischen wie inelastischen Exziton-Streuung an einer nichtthermischen Ladungsträgerverteilung, die für die folgenden dünneren Proben sehr interessant wäre, steht noch aus.

Polaritonpropagation im 200 nm GaAs-Film

Anhand der Serie zu verschiedenen Verzögerungszeiten aufgenommener, differentieller Transmissionsspektren (Abb. 6.14) an der 200-nm-GaAs-Schicht können wieder zwei exzitonische Polaritonkomponenten unterschieden werden. Wegen des großen vom Probeimpuls überdeckten Spektralbereichs ist auch das leicht rotverschobene Ausbleichsignal der Kontinuumszustände nahe der Pumpenergie 1.645 eV bei $t_D = 0$ fs zu sehen [Lei96a]. Es wandert mit den relaxierenden Leitungsbandlektronen innerhalb weniger Pikosekunden zur Bandkante. Trotz der geringeren Propagationslänge werden keine hhX-artigen Polaritonen mit Energien

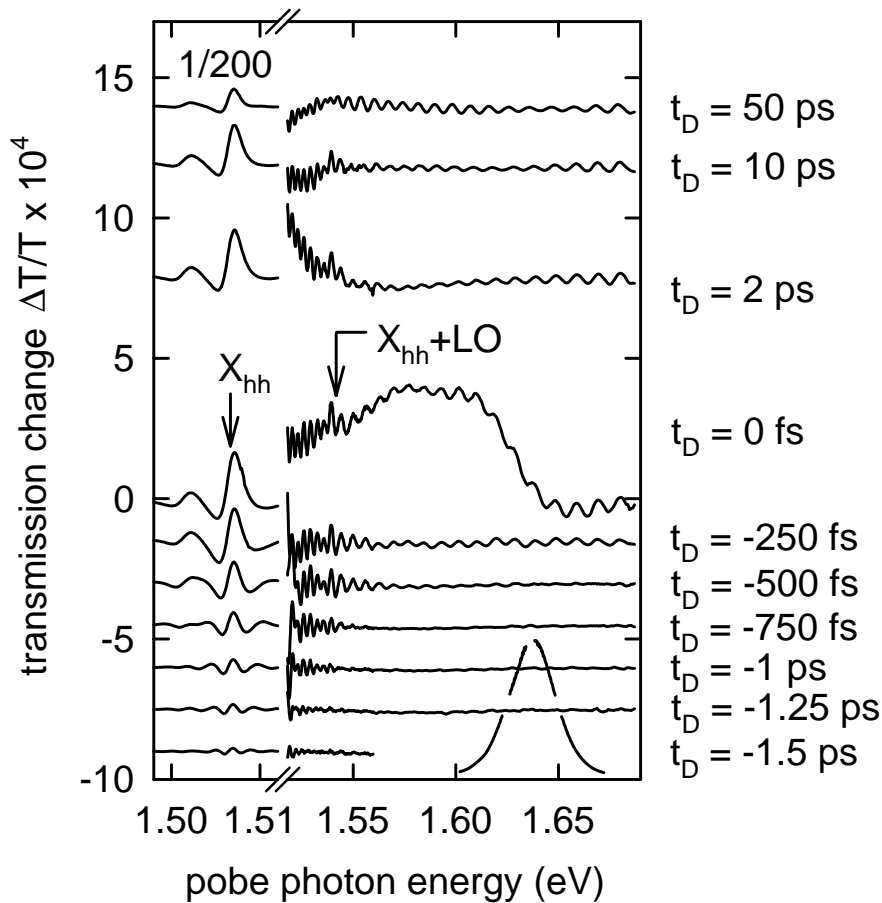


Abb. 6.14: Für verschiedene Verzögerungszeiten t_D aufgenommene differentielle Transmissionsspektren der 200 nm-GaAs-Probe bei $T_L = 20$ K. Das Signal am Exziton ist um den Faktor 200 verkleinert dargestellt. Die vom Pumpimpuls (gestrichelt) mit zentraler Photonenergie 1.645 eV generierte Elektron-Loch-Dichte $N = 7 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ist zehnmal größer als die probeinjizierte.

oberhalb $E_X + E_{LO}$ transmittiert. Knapp unterhalb der LO-Emissionsschwelle benötigt ein hhX-Polaritonwellenpaket etwa 1.5 ps für den Durchgang durch die GaAs-Schicht; die schnelleren lhX-Polaritonen entkommen schon innerhalb von 700 fs. Beide Transitzeiten sind konsistent mit der aus Messung 6.5 bestimmten Dispersionsrelation.

Zeitaufgelöste differentielle Spektren an der 50 nm GaAs-Schicht

Noch tiefere Einsicht in grundlegende Polaritoneigenschaften und in die mikroskopische Elektrodynamik an Grenzflächen gewinnt man bei der Untersuchung der spektralen Dynamik des differentiellen Transmissionssignals der nur 50 nm dünnen GaAs-Probe. Dort durchqueren die exzitonartigen Polaritonen die Halbleiterschicht schneller als die pumpinjizierten Ladungsträger relaxieren. Man kann deshalb die Streuung von Exzitonen an einer Nichtgleichgewichts-Ladungsträgerverteilung beobachten. In der vorliegenden Probe ist die Dicke des GaAs-Films im Bereich des exzitonischen Bohrradius; auch Phasenänderungen der exzitonartigen Polaritonwellen durch die vorausgesagte Energieabhängigkeit der effektiven Propagationslänge [Sta81, And90] erhalten in dünnen Proben größeres Gewicht im Vergleich zur dispersionsabhängigen Phase: $k \delta l / l \delta k$ steigt mit abnehmender Schichtdicke l . Damit können Größe und Verlauf der exzitonfreien Randschicht in Abhängigkeit der kinetischen Exzitonenergie analysiert werden. Ganz allgemein spielen grenzflächennahe Phänomene wegen des wachsenden Verhältnisses Oberfläche/Volumen eine wichtigere Rolle als in den vorangegangenen Abschnitten.

Abb. 6.15 zeigt zu verschiedenen Verzögerungszeiten differentielle Transmissionspektren der 50 nm-GaAs-Schicht für ein bei 1.541 eV injiziertes, $3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ dichtes Elektron-Loch-Plasma ($N_{\text{probe}} = 6 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$). Die Relaxation der Schwerlohexzitonen durch LO-Phonon-Emission reicht nun, da Streu- und Propagationslänge etwa gleich sind, nicht mehr zur Ausdämpfung der hhX-Polaritonzillationen oberhalb $E_{Xh} + E_{LO}$. Aus später zu besprechenden Gründen können keine lhX-Polaritonen nachgewiesen werden; das Signal wird von hhX-Beiträgen dominiert. Nahe der Pump-Photonenergie ist bei $t_D \simeq 0$ das Ausbleichsignal Pauli-geblockter Interbandübergänge zu sehen.

Vergleicht man die zu negativen Verzögerungszeiten t_D ermittelten Propagationszeiten mit denen der 500 nm-Probe bei der gleichen kinetischen Exzitonenergie, z.B. 250 fs gegenüber 3.8 ps bei $E_{\text{kin}} = 25 \text{ meV}$, und setzt eine für alle betrachteten Schichtdicken konsistente hhX-Masse ($0.52 m_0$) voraus, so ist die gemessene Transitzeit nur durch eine effektive Propagationslänge von etwa 30 nm erklärbar. Genau diesen Wert erhält man, wenn man an beiden Grenzflächen eine exzitonfreie Randschicht von einem hhX-Bohrradius (11.5 nm) einführt. Neu sind bei den differentiellen Spektren dieser Probe auch eine Art Nebenmaxima, die sich

in früheren Rechnungen (Abb.6.7) mit dem Betrag nach großen Reflexionskoeffizienten angedeutet hatten. Sie entstehen unter nachfolgend abgeleiteten Bedingungen und sind Ausdruck der durch den Einschluß in der Schicht quantisierten Schwerpunktsbewegung der Exzitonen [Kis77, Kis85, Ada94, Tre93], für die die Wellenvektoren K_z auf diskrete Werte beschränkt sind: $K_z = \pi n/l$ (n : natürli-

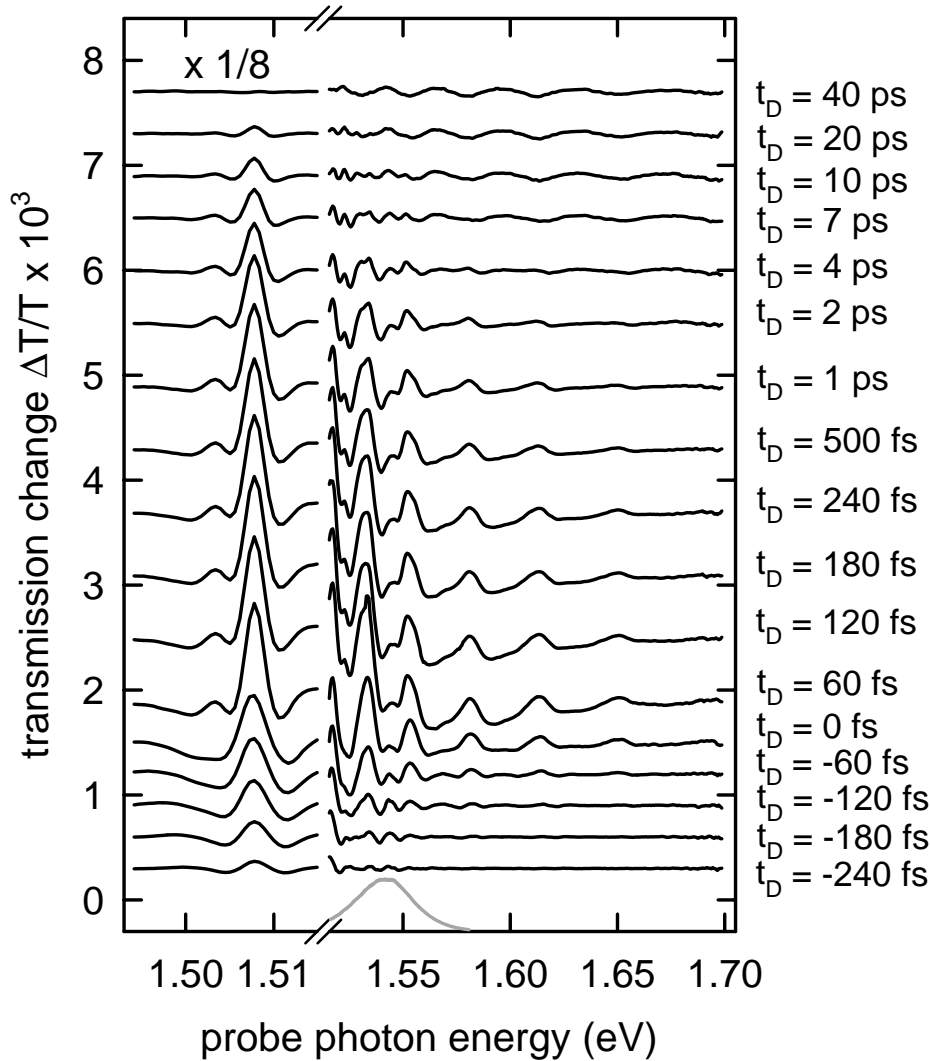


Abb. 6.15: Differentielle Transmissionsspektren der 50 nm-GaAs-Probe für verschiedene Verzögerungszeiten t_D nach der Injektion einer Elektron-Loch-Dichte von $N = 3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ durch einen bei $E = 1.541 \text{ eV}$ zentrierten Pumpimpuls (graues Spektrum ganz unten). Die vom Abtastimpuls generierte Ladungsträgerdichte ist $N = 6 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$. Um das achtmal verkleinerte Exzitonsignal herum ist die Abszisse gestreckt.

che Zahl). Das Confinement der Elektronen und Löcher spielt im vorliegenden Schichtdickenbereich keine Rolle, da die Quantisierungsenergien noch deutlich kleiner als die Exzitonbindungsenergie sind. Tuffigo et al. [Tuf88] konnten für Dipolübergänge der Exzitonen mit ungeradem bzw. geradem n Paritätsauswahlregeln angeben und damit die Strukturen in den Polaritonspektren begründen: Demnach sind Zustände mit (un)geradem n , also mit Parität $-1(+1)$, dipol aktiv, wenn das Produkt aus Photonwellenvektor im Medium k_{ph} und Schichtdicke l ein ungeradzahliges (geradzahliges) Vielfaches von π ergibt. Wegen der von Kiselev et al. [Kis77] gezeigten Äquivalenz des obigen Ansatzes und des Modells aus Abschnitt 6.3.2 sind die Effekte in den Gleichungen 6.23 und 6.25 voll enthalten. In den Spektren der 500 nm-Probe sind die zusätzlich neben den Exzitonen mit Parität $+1$ wegen $k_{\text{ph}} l = 4.4 \pi$ etwas schwächeren Beiträge der Exzitonen mit Parität -1 aufgrund der beschränkten spektralen Auflösung nicht beobachtbar. Für die 200 nm-Probe gilt $k_{\text{ph}} l = 1.8 \pi$, weshalb – wie im Experiment gefunden –

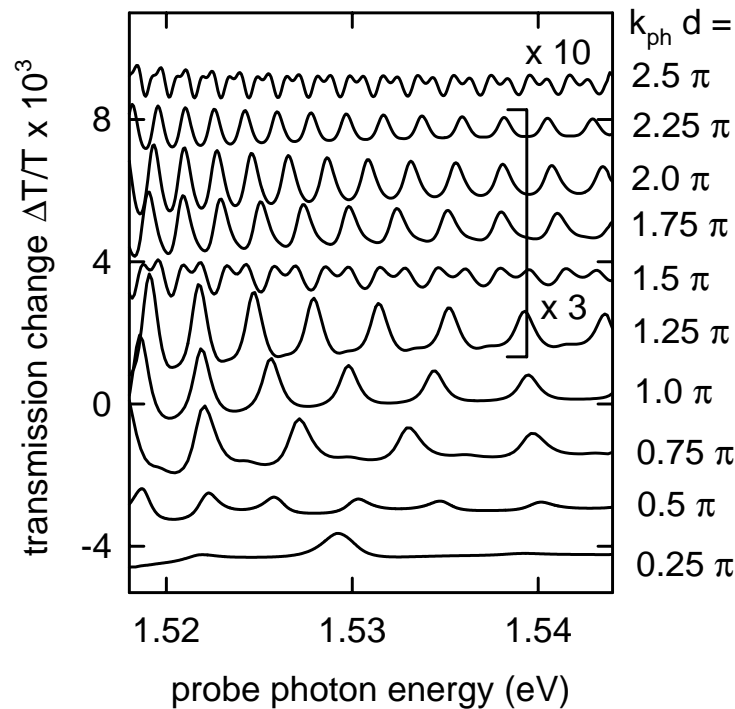


Abb. 6.16: Für verschiedene Werte des Produkts aus Wellenvektor des Photons k_{ph} in der GaAs-Schicht und Propagationslänge d berechnete differentielle Transmissionspektren für hhX-Polaritonen. Abgesehen von $u = -0.7$ und $\gamma_{\text{pump}} = 4 \text{ meV}$ sind die Parameter die gleichen wie in Abb. 6.5 (b). Ist $k_{\text{ph}} d$ ein ganzzahliges Vielfaches von π , treten nur Exzitonen mit gerader oder ungerader Wellenfunktion der Schwerpunktsbewegung auf.

hauptsächlich die mit ungeradem n quantisierten Exzitonen in den Interferenzspektren auftreten. Um den Sachverhalt zu veranschaulichen, sind in Abb. 6.16 für verschiedene Probendicken berechnete hhX-Polaritonoszillationen dargestellt. Bis auf $u = -0.7$ und eine willkürliche pumpbedingte Dämpfung von 4 meV werden die gleichen Parameter wie für Abb. 6.5 (b) verwendet. Bei ungeradzahligen Vielfachen von $\pi/2$ verdoppelt sich die Periode der Oszillationen. Geht man von der oben näherungsweise bestimmten effektiven Schichtdicke von 30 nm für die dünne Probe aus, ergibt sich $k_{\text{ph}} l \simeq \pi/4$. In guter Übereinstimmung mit den Spektren aus Abb. 6.15 zu positiven Verzögerungszeiten sind die Polaritoninterferenzen asymmetrisch mit langsamerem Abfall auf ein Nebenmaximum an der niederenergetischen Flanke. Eine Anpassung zweier ausgewählter Spektren zeigt Abb. 6.17. Für $t_{\text{D}} = 1$ ps wird das hhX-Polaritonwellenpaket durch das hochdichte Plasma effizient dephasiert. Mit der hhX-Masse $0.52 m_0$, der Position des fundamentalen hhX bei 1.5078 eV, einem Reflexionskoeffizienten $u = -0.5$, der Hintergrunddämpfungsbreite 0.3 meV und einer pumpinduzierten Dämpfung von 4 meV wird das experimentelle Signal (a) bis auf die etwas zu geringe Amplitude befriedigend wiedergegeben (b). Die exzitonfreie Randschicht, die bei E_{Xh} gleich dem doppelten Bohrradius gewählt wurde und mit zunehmender kinetischer Exzitonenergie leicht abnimmt, führt auf die im kleinen Diagramm eingefügte effektive Propagationslänge. Zu frühen Zeiten, hier $t_{\text{D}} = -60$ fs (c), durchlaufen die Polaritonen ein relativ großes ungepumptes Halbleitervolumen. Das differentielle Transmissionssignal ist deshalb weniger auf Dämpfungs- als vielmehr auf Grenzflächeneffekte sensitiv. Sie bestehen v. a. in der Abschirmung der Elektron-Loch-Wechselwirkung und damit der Vergrößerung des Exzitonradius und der Veränderung des Oberflächenpotentials bzw. des oberflächennahen, ionisierenden elektrischen Feldes (vgl. Kap. 6.3.3) [Jaz88]. Beides verringert die effektive Propagationslänge der Polaritonen, was in den Rechnungen durch eine pumpinduzierte Zunahme der exzitonfreien Randschicht um 3 nm simuliert wurde (d). Im Spektrum, das man sich aus der Differenz des unteren Graphen in Abb. 6.16 und eines weiteren, bei dem wegen des kleineren Werts von $k_{\text{ph}} l$ das Nebenmaximum noch geringer ausfällt, vorstellen kann, tritt die Komponente mit geradem n stärker hervor. Die gute Reproduktion (d) der experimentellen Spektren (c) stützt die Interpretation der Daten für $t_{\text{D}} < 0$ als die von der Theorie vorausgesagte ultraschnelle Vergrößerung der exzitonfreien Randschicht [Bis97].

Einige Pikosekunden nach der Ladungsträgerinjektion kann man an der Amplitude der differentiellen Transmission sowohl am fundamentalen Exziton als auch bei den höherenergetischen Polaritonen ein Nachlassen der Dämpfung beobachten (Abb. 6.15). Während das Ausbleichen bei 1.508 eV nach 40 ps fast vollständig zurückgegangen ist, nimmt das Polaritonsignal wieder an Stärke zu. Dabei ändert sich nicht nur die Phase der Oszillationen, sondern überraschend nimmt auch

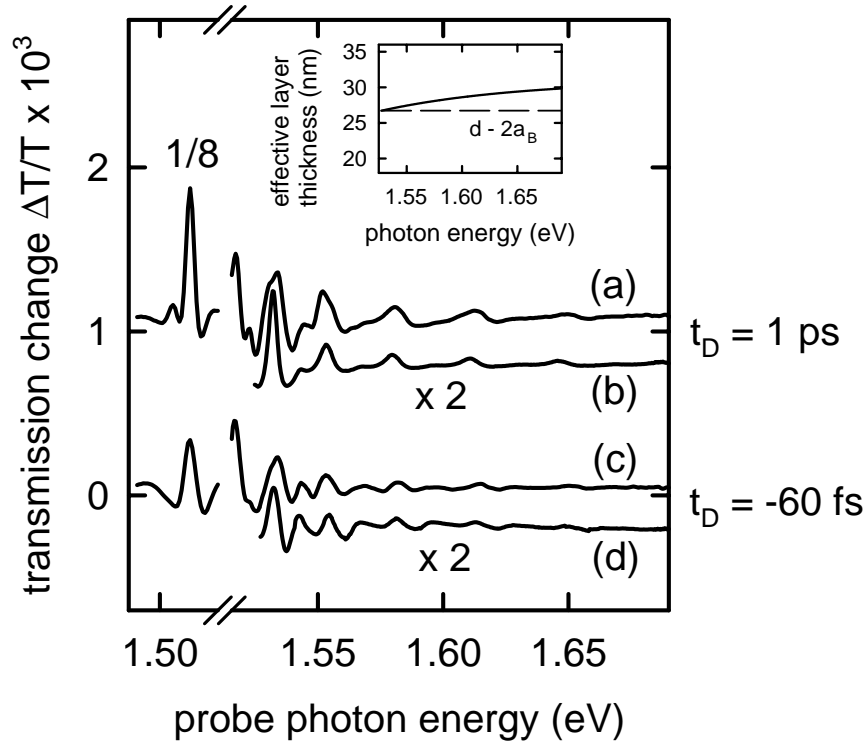


Abb. 6.17: Aus Abb.6.15 entnommene differentielle Transmissionsspektren zu den Verzögerungszeiten $t_D = 1 \text{ ps}$ (a) und $t_D = -60 \text{ fs}$ (c). (b) und (d) zeigen um den Faktor zwei vergrößerte, berechnete Signale für dominante pumpinduzierte Dämpfung bzw. vorherrschende pumpinduzierte Vergrößerung der exzitonfreien Schicht; Details im Text. Im kleinen Diagramm ist der Verlauf der angepaßten effektiven Propagationslänge dargestellt.

die Amplitude mit größeren Probephotonenenergien kaum ab. Thermische Effekte oder Brechungsindexänderungen der umgebenden Schichten würden den gesamten Spektralbereich in vergleichbarer Weise beeinflussen und können deshalb für das Verhalten nicht verantwortlich sein. Eventuelle Modifikationen der Grenzflächeneigenschaften bleiben spekulativ. Einen vielversprechenden Erklärungsansatz bietet die Bildung von Exzitonen mit $K \simeq 0$: nach Elkomoss [Elk81] ist der Wirkungsquerschnitt für elastische Exziton-Exziton-Stöße bei hohen Relativgeschwindigkeiten v näherungsweise konstant in der Größenordnung des quadratischen X-Bohrradius. Für die Streurrate ergibt sich dann ein linearer Anstieg proportional zu v bzw. E_{kin} , der eine schnellere pumpinduzierte Dephasierung höherenergetischer Polaritonen bedeutet. Diese Energieabhängigkeit überträgt sich auf die Oszillationen im differentiellen Transmissionsspektrum.

Die vergleichsweise geringe Oszillatorstärke der Leichtlohexzitonen wirkt sich hier in zweierlei Hinsicht schmalernd auf das lhX-Polariton-Signal aus: Einerseits

mindert der kleinere Photongehalt des lhX-artigen Dispersionsastes die Amplitude des Interferenzmusters; auf der anderen Seite wächst nach Kap. 6.3.3 die dead layer mit abnehmender Aufspaltung E_{LT} . Bei der vorliegenden Probe kann die effektive Propagationslänge bereits unter 20 nm sinken, so daß wegen der verlängerten Oszillationsperiode (vgl. Gl. 6.11) lhX kaum identifiziert werden können.

6.3.8 Experimente zur Polariton-Phonon-Streuung

Die Polaritoninterferenzen in den drei unterschiedlich dicken GaAs-Proben wurden auch in Abhängigkeit der Gittertemperatur untersucht (Abb. 6.18). Aus den bei $t_D = 10$ ps aufgenommenen Transmissionsspektren der 500 nm-Probe ersieht man, wie die LO-Emissionsschwelle für Schwerlohexzitonen gemeinsam mit der Bandlückenenergie (nicht abgebildet) mit steigender Temperatur rotverschoben wird. Gleichzeitig geht die Amplitude der Oszillationen zurück, bis sie bei etwa 100 K wegen der effizienten Dämpfung der hhX-Polarisation durch Exziton-Phonon-Stöße ganz verschwindet. Daß wie beim fundamentalen Exziton in Quan-

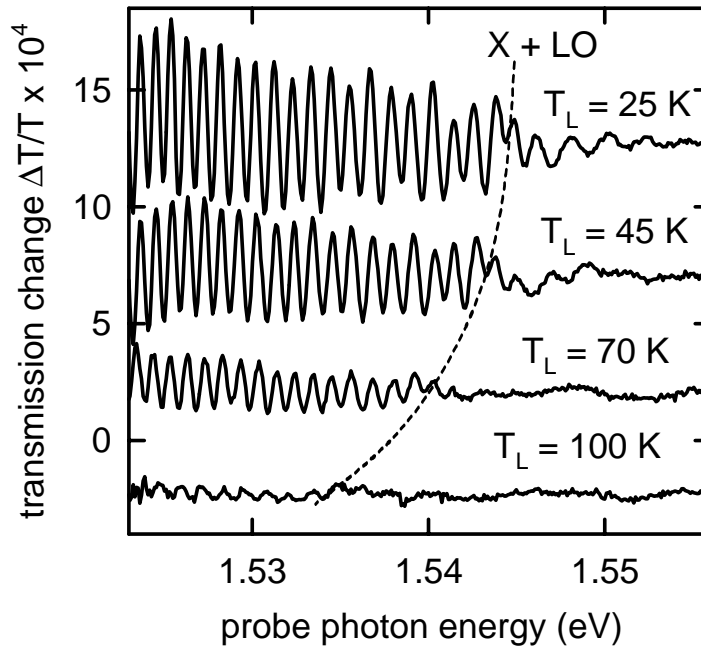


Abb. 6.18: Spektral aufgelöste Transmissionsänderungen in der 500 nm dicken GaAs-Probe zur Verzögerungszeit $t_D = 10$ ps für verschiedene Temperaturen des Kristallgitters T_L . Die von Pump- und Probeimpulsen injizierten Ladungsträgerdichten sind $N_{\text{pump}} = 5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ bzw. $N_{\text{probe}} = 1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$.

tentrögen [Lee86] die Deformationpotential-Streuung an akustischen Phononen bis etwa 100 K den schnellsten Dephasierungs-Mechanismus darstellt, soll mit Rechnungen zu temperaturabhängigen Streuraten für verschiedene Kopplungen der hhX an das Phononbad belegt werden (Abb.6.19). Übergänge ins lhX-Band sind wegen des geringeren Phasenraums und des kleineren Überlappintegrals der Wellenfunktionen langsamer und deshalb hier nicht dargestellt. Für

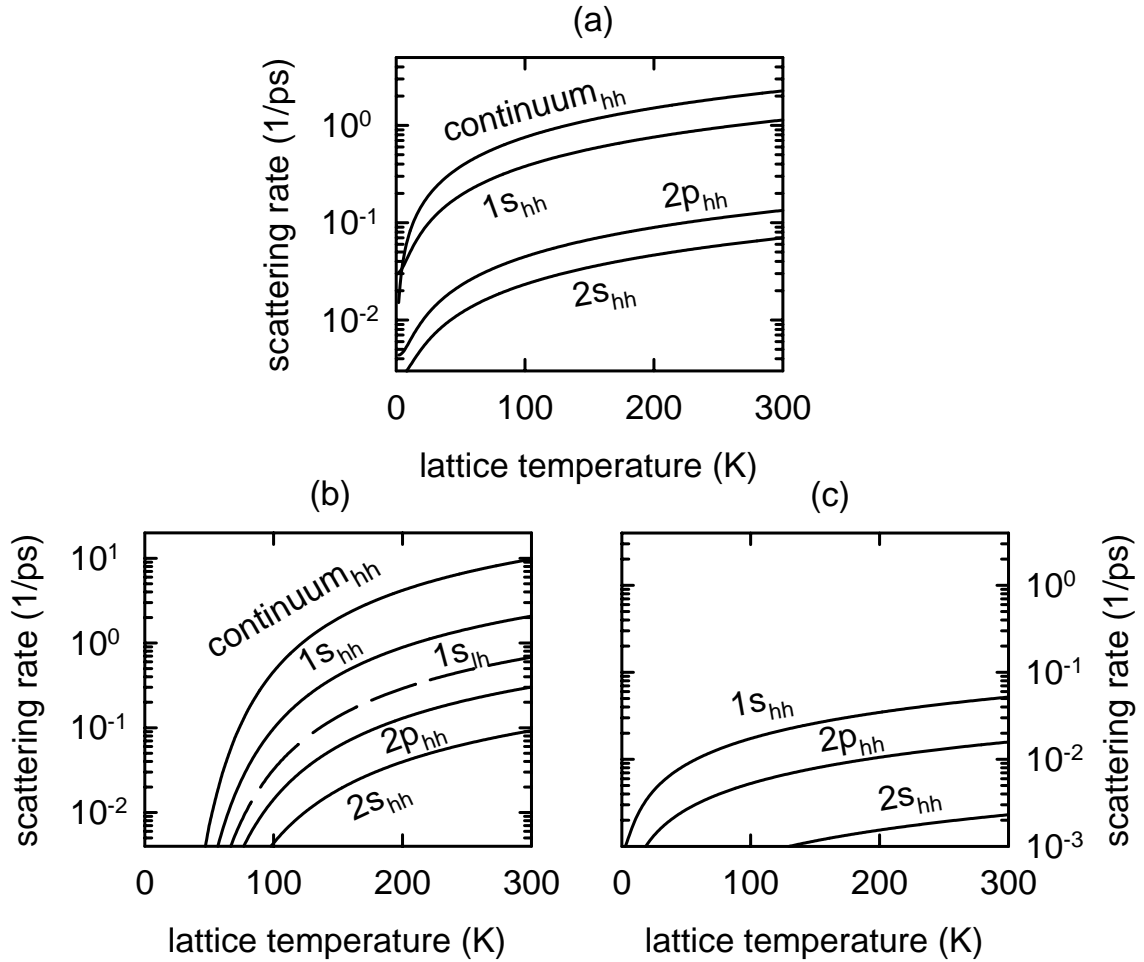


Abb. 6.19: Theoretische Streuraten für Schwerlohexzitonen mit einer kinetischen Energie von 25 meV in Abhängigkeit der Gittertemperatur T_L . In (a) sind mit Parametern aus Kap. 5.5.1 berechnete Raten für akustische Deformationpotential-Streuung in $1s_{hh}$ -, $2s_{hh}$ -, $2p_{hh}$ -Zustände und ins Kontinuum von schweren Löchern und Leitungsbandelektronen dargestellt; (b) zeigt entsprechende Rechnungen zur polaroptischen Streuung, die bei Temperaturen über 120 K zum schnellsten Relaxationskanal wird. Die piezoelektrische Streuung ist im gesamten Temperaturbereich vernachlässigbar langsam (c).

Schwerlohexzitonen mit 25 meV kinetischer Energie sind in (a) mit Parametern aus Kap. 5.5.1 die Deformationspotential-Streuratzen in verschiedene hhX-Zustände gegen T_L aufgetragen. Die phononassistierte Dissoziation in freie Elektronen und schwere Löcher ($\text{continuum}_{\text{hh}}$) wurde nach Toyozawa [Toy59] berechnet. Erst bei $T_L > 120$ K überwiegt die schneller mit der Temperatur zunehmende polar-optische Dissoziation der $1s\text{-hhX}$ (Abb. 6.18 (b), berechnet nach [Rud90]). Aus Abb. 6.19 (c) sieht man, daß der Beitrag der piezoelektrischen Streuung vernachlässigt werden kann. Ruft man sich das Ergebnis für die zur vollständigen Dämpfung der hhX-Polaritonen nötige Streurrate von 1.2ps^{-1} aus Kap. 6.3.7 ins Gedächtnis zurück, und vergleicht sie mit den führenden Termen in der Summe der berechneten Streuratzen bei 100 K, also der Deformationspotential- und polar-optischen Streuung in den $1s_{\text{hh}}$ -Zustand und ins Kontinuum ($\Sigma = 1.5\text{ps}^{-1}$), so bestätigt die sehr gute Übereinstimmung von Experiment und Theorie die vier oben genannten als die dominanten Dephasierungskanäle.

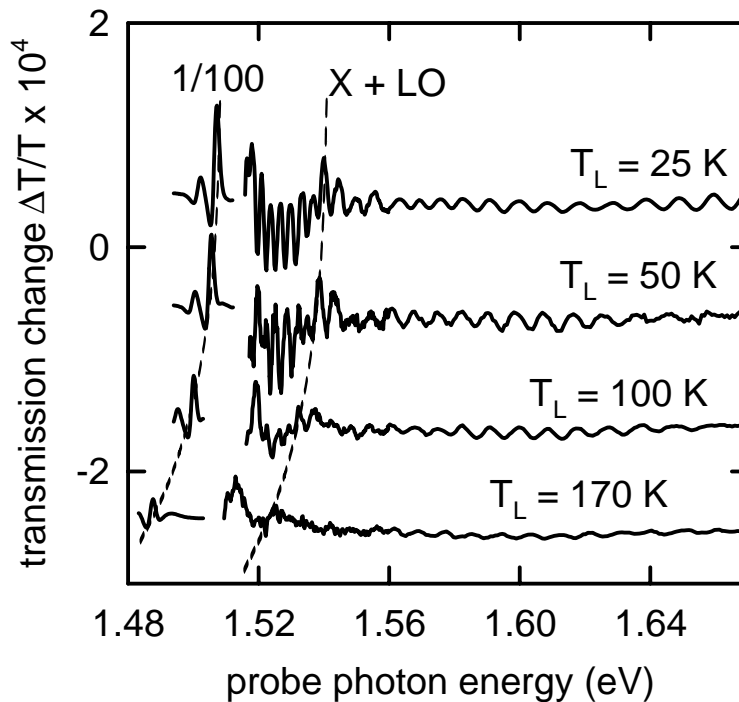


Abb. 6.20: Bei verschiedenen Gittertemperaturen T_L für $t_D = 10$ ps aufgenommene differentielle Transmissionspektren in der 200 nm-GaAs-Schicht. Die injizierten Ladungsträgerdichten sind $N_{\text{pump}} = 7 \times 10^{15} \text{cm}^{-3}$ und $N_{\text{probe}} = 8 \times 10^{14} \text{cm}^{-3}$. Entlang der gestrichelten Linien verschieben sich die energetischen Positionen des Exzitons und der LO-Emissionsschwelle für hhX.

Die kürzere Transitzeit durch die 200 nm-Schicht macht eine höhere Gittertemperatur zur Dephasierung der Polaritonen erforderlich (siehe Abb. 6.20). Durch die Erhöhung von T_L auf 50 K werden die energetischen Positionen der Schwer- und Leichtlochexzitonen leicht unterschiedlich renormiert, was unterhalb der LO-Emissionsschwelle das spektrale Schwebungsmuster verändert. Während bei $T_L = 100$ K die hhX-Polaritonen merklich gedämpft werden, bleiben die hochenergetischen lhX-Polaritonen wegen ihrer großen Propagationsgeschwindigkeit noch bis $T_L = 170$ K sichtbar. Durch die 50 nm dicke GaAs-Schicht werden die hhX-Polaritonen selbst bei Raumtemperatur noch transmittiert, wenn auch wegen der hohen Dämpfung in den Pump-Probe-Spektren keine Strukturen mehr auf den Oszillationen erkennbar sind (siehe Abb. 6.21).

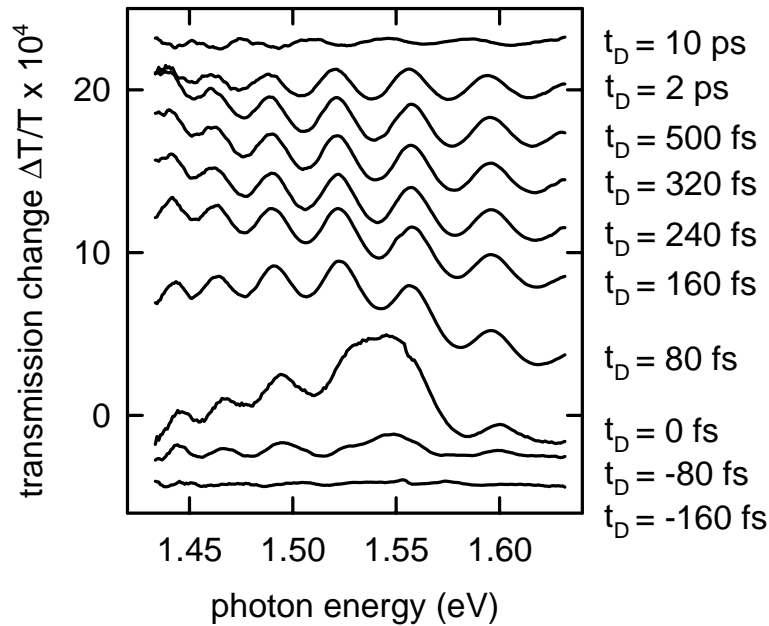


Abb. 6.21: Bei Raumtemperatur gemessene Polaritonooszillationen in der 50 nm-GaAs-Probe für verschiedene Verzögerungszeiten t_D . Die Bandkante bei 1.42 eV ist nicht abgebildet. Leicht rotverschoben ist für $t_D = 0$ das Ausbleichsignal der bei 1.565 eV injizierten Ladungsträger der Dichte $N_{\text{pump}} = 6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ zu sehen. Die probegenerierte Paardichte beträgt $N_{\text{probe}} = 3 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$.

6.4 Exziton-Phonon-Resonanz im Absorptionskontinuum von GaAs

Ein weiteres interessantes, bisher außer acht gelassenes Detail der bisherigen Messungen ist die schwache, von den Polaritonoszillationen verdeckte Struktur an der spektralen Position von $E_X + E_{LO}$ (siehe z.B. Abb. 6.11). Um sie möglichst klar herauszuarbeiten, wird in den folgenden Untersuchungen eine 800 nm dicke GaAs-Schicht verwendet, für die die hier störenden Polaritoninterferenzen von so kleiner Periode sind, daß sie bei der für die Untersuchung der Exziton-Phonon-Resonanz nötigen spektralen Auflösung nicht mehr in Erscheinung treten. Das differentielle Transmissionssignal wird zur Unterdrückung von Beiträgen relaxierter Ladungsträger zur schwach negativen Verzögerungszeit $t_D = -100$ fs aufgenommen (Abb. 6.22(a)). Pump- und Probeimpulse regen in

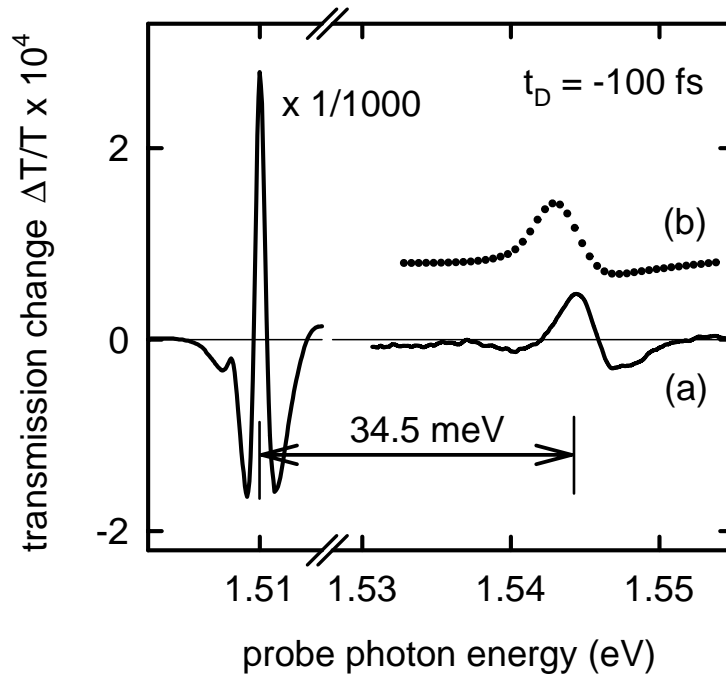


Abb. 6.22: Differentielles Transmissionsspektrum der 800 nm dicken GaAs-Probe, 100 fs vor der Injektion einer Ladungsträgerdichte von $1.2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ durch einen 80 fs kurzen Pumpimpuls bei 1.615 eV (a). Die probegenerierte Elektron-Lochdichte ist $8 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$. Zum Vergleich zeigt (b) die spektrale Form der Exziton-Phonon-Resonanz nach Rechnungen von Zimmermann [Zim97] für ein 1 meV breites fundamentales Exziton. Die Amplitude ist willkürlich skaliert.

dem auf $T_L = 20$ K gehaltenen Film Elektron-Loch-Dichten von $1.2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ bzw. $8 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ an. 34.5 meV, also etwas weniger als eine LO-Phononenergie über dem eintausendfach verkleinerten Signal der sehr scharfen Exzitonlinie, tritt ein asymmetrisches Ausbleichsignal auf, das wie die differentielle Transmission einer durch den Pumpimpuls stark gedämpften Fanoresonanz [Fan61] auf der höherenergetischen Seite von induzierter Absorption begleitet wird. Dieses charakteristische Muster beruht nicht wie die überlagerten Polaritonsoszillationen auf der *kohärenten Exziton-Photon-*, sondern der *kohärenten Exziton-Phonon-Kopplung*. Auf Zeitskalen, die kurz gegenüber der Dephasingzeit von Elektronen und Löchern sind, können die Ladungsträger kohärent mit LO-Phononen wechselwirken. Die virtuelle Streuung in Exziton+LO-Phonon-Zustände ist der Konfigurationswechselwirkung eines in ein Kontinuum eingebetteten und mit ihm

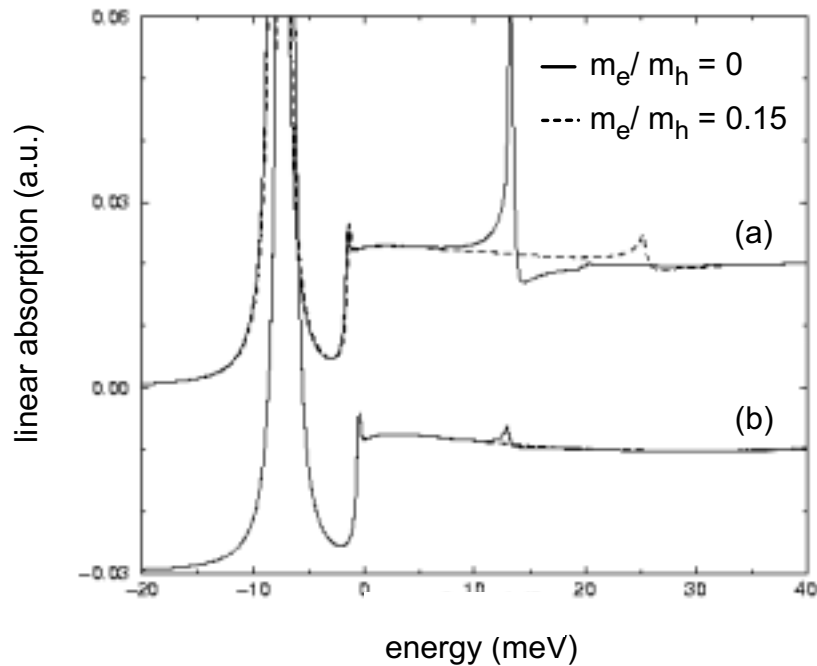


Abb. 6.23: Lineares Absorptionsspektrum eines eindimensionalen Modells mit kohärenter Exziton-LO-Phonon-Wechselwirkung aus [Oes97]: Die für große Kopplungskonstante und unendliche Lochmasse auftretende Fanoresonanzartige Struktur bei $E_X + E_{LO}$ (durchgezogene Linie in (a)) geht mit abnehmender Lochmasse (gestricheltes Spektrum) zurück. In (b) ist die gleiche Situation für kleinere Polaronkopplung dargestellt.

schwach wechselwirkenden diskreten Niveaus ähnlich [Fan61, Oes97]. Während die Kopplung zwischen diskretem Zustand und Kontinuum bei den meisten Systemen, z.B. den genau untersuchten Magnetoexzitonen [Mar98, Bec87, Glu94], durch Coulombwechselwirkung geschieht, erfolgt sie hier durch die polar-optische Wechselwirkung. Der zugrundeliegende Prozeß ist in Abb.6.24 rechts dargestellt. Er führt zur Renormierung der Elektron-Loch-Paarenergie [Tra93]. Unterhalb von $E_X + E_{LO}$ entsteht ein quasi-gebundener Zustand [Pel97] mit erhöhter Absorption, während auf der kurzwelligen Seite – wie beobachtet – Zustandsdichte und Absorption abnehmen. Analog zur Fanoresonanz steigt mit der Kopplungsstärke zwischen diskretem Zustand und Kontinuum neben der Bindungsenergie automatisch auch die Breite der Absorptionsbande, was die ausgedehnte Phononseitenbande im stark polaren CdTe (Abb.2.4) erklärt [Zim97]. Der gerade beschriebene Mechanismus ist nur für Schwerlochexzitonen wirksam: bei Leichtlochexzitonen verhindert die schwache Polaronkopplung (vgl. Kap.6.3.4) die Ausbildung einer zusätzlichen anziehenden Wechselwirkung zwischen Elektron und Loch. Dies wird bei eindimensionalen Modellrechnungen von Oestreich [Oes97] deutlich (Abb.6.23): Für ein monoenergetisches Exzitonband ($m_h \rightarrow \infty$) und große Polaronkopplung tritt eine ausgeprägte Fanoresonanz bei $E_X + E_{LO}$ auf (durchgezogene Linie in (a)), die bei endlicher Lochmasse ($m_e/m_h = 0.15$, gestrichelt in (a)) im linearen Absorptionsspektrum nicht mehr ausgemacht werden kann. Wegen der parabolischen Dispersion des Exzitonbands kann streng nicht mehr von einem diskreten Zustand gesprochen werden. Die Kopplung von Exziton+LO-Zuständen mit $E_X(q) \neq E_X(0)$ führt zu einer intrinsischen Verbreiterung der resonanzartigen Struktur. Eine rigorose Behandlung des Problems in drei Dimensionen durch Greensfunktionen ist Zimmermann et al. gelungen. Mithilfe des aus [Zim97] entnommenen, in der Amplitude skalierten Spektrums (Abb.6.22, gepunktet) kann die Struktur bei 1.543 eV zweifelsfrei als Exziton-Phonon-Quasiteilchen identifiziert werden.

LO-Seitenbanden im Absorptionsspektrum von ionischen Isolatoren (z.B. MgO, BeO [Wal68]) oder polaren Halbleitern (z.B. CdS [Dil68]) sind schon früh mit der Exziton-LO-Phonon-Kopplung durch die Fröhlich-Wechselwirkung in Verbindung gebracht worden. Je nach Verhältnis von Exzitonbindungs- und LO-Phonon-Energie kann man verschiedene Regimes unterscheiden (Abb.6.24 links):

(a) $E_B \gg E_{LO}$: In Systemen mit sehr großer Exzitonbindungsenergie (z.B. NaBr, KAl) finden nur indirekte Übergänge statt, bei denen ein Exziton mit Energie $E_X(-\mathbf{q})$ und ein LO-Phonon mit Impuls \mathbf{q} erzeugt werden. Sie sind für ein lokales Absorptionsmaximum *oberhalb* $E_X(\mathbf{q} = 0) + E_{LO}$ verantwortlich [Bal69].

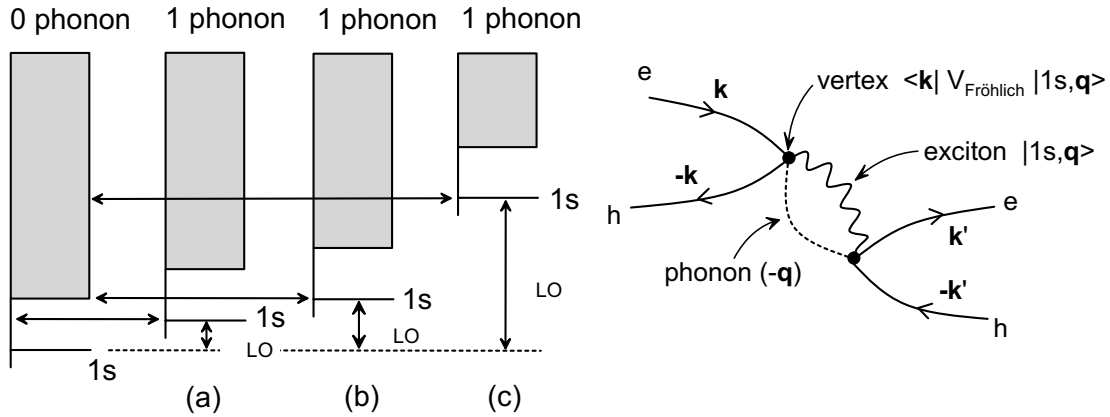


Abb. 6.24: Links: Skizze der Kopplung von Null- und Ein-Phonon-Hilberträumen für unterschiedliche LO-Phononenergien. Horizontale Pfeile markieren LO-assistierte Übergänge. Rechts: Zusätzliche Elektron-Loch-Wechselwirkung nach [Sak70]. Die Renormierung der Kontinuumszustände durch virtuelle Übergänge zu 1s-hhX-Zuständen plus einem LO-Phonon ((b) und (c) links) ergibt knapp unterhalb $E_{Xh} + E_{LO}$ ein lokales Absorptionsmaximum. Im benachbarten höherenergetischen Spektralbereich entsteht ein lokales Absorptionsminimum (siehe Abb. 6.22). Wegen der schwachen Fröhlich-Wechselwirkung ist die Streuung in 1s-lhX-Zustände vernachlässigbar.

(b) $E_B \simeq E_{LO}$: Wenn rein elektronische und gemischte Exziton+LO-Phonon-Zustände entartet sind (z.B. ZnO, BeO, MgO), führt die resonante Fröhlich-Wechselwirkung zwischen ihnen zur Bildung eines gebundenen Exziton-Phonon-Komplexes, dessen Bindungsenergie ein Zehntel der LO-Phonon-Energie erreichen kann [Toy68, Wal68]. Es entsteht eine Seitenbande *unterhalb* von $E_X(\mathbf{q} = 0) + E_{LO}$.

(c) $E_B \ll E_{LO}$: Die resonante Kopplung von Exziton+LO-Phonon- und überlappenden Kontinuums-Zuständen (CdTe, GaAs) hat einen schwächer gebundenen Exziton-Phonon-Komplex zur Folge. Auch hier liegt die LO-Seitenbande *unterhalb* der hhX-LO-Emissionschwelle [Dil68, Sak70, Zim97].

Abb. 6.25 zeigt die spektrale Form der LO-Bande für verschiedene progenerierte Ladungsträgerdichten bei einer Kristalltemperatur von 25 K ($N_{\text{pump}} = 6 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$). Die Amplituden des differentiellen Transmissionssignals am fundamentalen Exziton und am Exziton-Phonon-Komplex nehmen bei Erhöhung von $N_{\text{probe}}^{\text{eh}}$ von $3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ auf $5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ stark ab. Gleichzeitig gewinnen die Strukturen an spektraler Breite. Das Ausbleichsignal des Exziton-Phonon-Komplexes, das aufgrund der Bandkantenrenormierung durch die pumpinjizierten, nach $t_D = 10 \text{ ps}$ thermalisierten Ladungsträger auf einem

schiefen Untergrund sitzt, verliert zudem mit steigender Temperatur seine Asymmetrie. Wegen der engen Verwandtschaft mit einer Fanoresonanz kann das beobachtete spektrale Verhalten des Exziton-Phonon-Quasiteilchens nach einem Modell von Marquezini et al. [Mar98] diskutiert werden. Im Unterschied zu [Fan61] wird hier die Linienbreite γ des diskreten Niveaus nicht gegenüber der Fanolinienbreite Γ , die allein durch die Diskret-Kontinuum-Kopplung gegeben ist, vernachlässigt. Dieser Aspekt ist im vorliegenden Fall sicher von Bedeutung, da die spektrale Breite des 1s-Exzitons nicht viel kleiner als die des Quasiteilchens ist. Auf eine genaue Anpassung der differentiellen Spektren wird im folgenden verzichtet, weil der Anteil der intrinsischen, von der Exzitondispersion bedingten Verbreiterung (s.o.) des Exziton-Phonon-Komplexes nicht bekannt ist. Stattdessen wird das Signal qualitativ anhand der Variation der beiden freien Parameter γ und Γ in den Absorptionsspektren von Abb. 6.26 diskutiert. Wie man an der nach links unten verlaufenden Sequenz sieht, überträgt sich eine Verbreiterung der diskreten Linie zwar auf die resonanzartige Struktur. Die Zunahme der Absorption auf der höherenergetischen Seite kann damit aber nicht erklärt werden. Dazu ist vielmehr die Verringerung des Kopplungsparameters

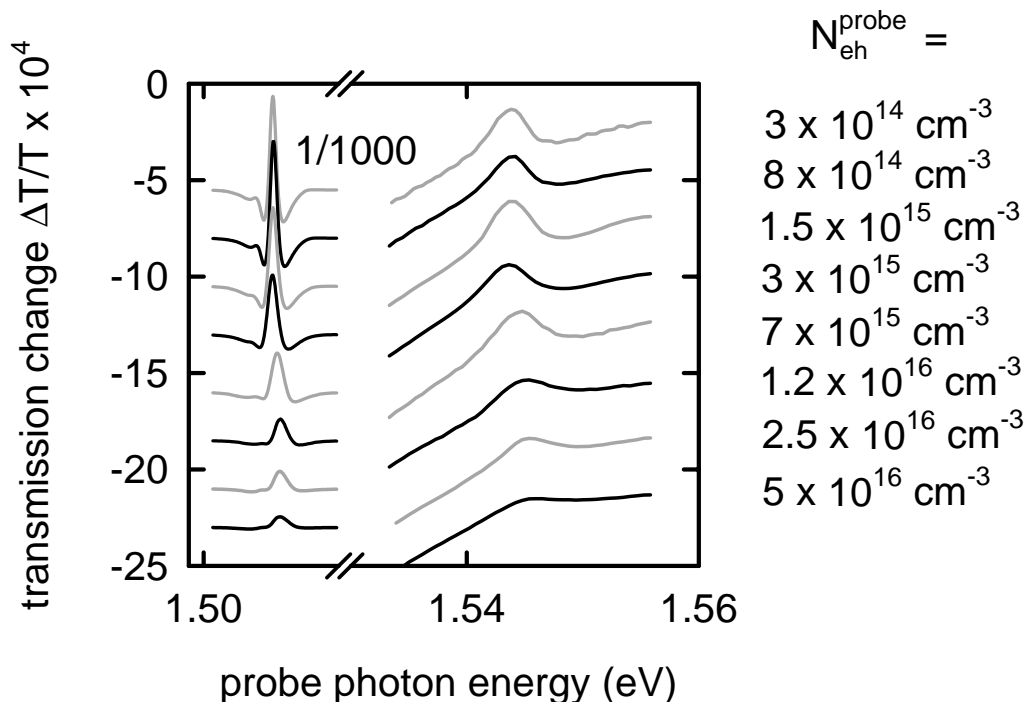


Abb. 6.25: Spektrale Form der Exziton-Phonon-Resonanz in Abhängigkeit der probeinjizierten Elektron-Loch-Dichte $N_{\text{probe}}^{\text{eh}}$. Die differentiellen Spektren wurden mit Pumpimpulsen, die bei einer zentralen Photonenergie von 1.62 eV eine Ladungsträgerdichte von $6 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ anregen, zur Verzögerungszeit $t_D = 10 \text{ ps}$ aufgenommen.



Abb. 6.26: Allgemeine spektrale Form einer Fanoresonanz nach [Mar98]. Links: zunehmende Verbreiterung γ des diskreten Niveaus. Rechts: Abnahme der Kopplungsstärke zwischen diskretem Zustand und Kontinuum.

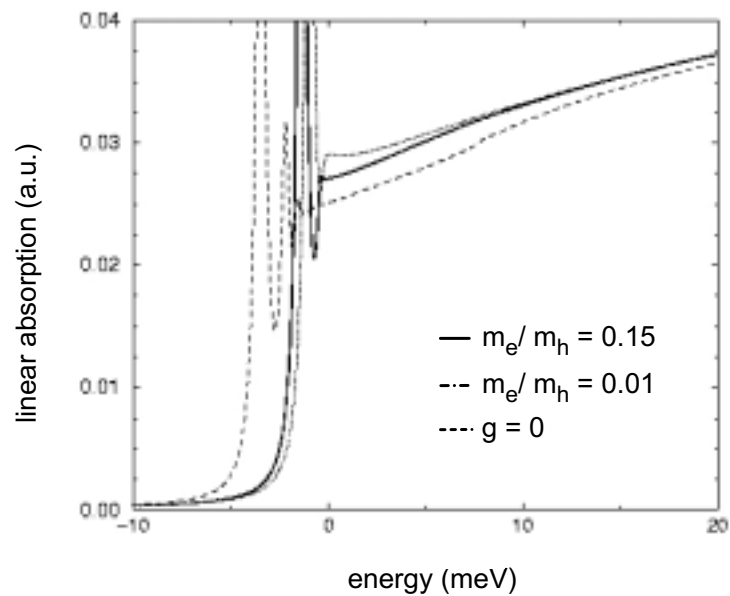


Abb. 6.27: Lineares Absorptionsspektrum von GaAs (durchgezogene Linie) mit Berücksichtigung der kohärenten LO-Phonon-Wechselwirkung nach [Oes97]. Strichpunktiert: Exzitonen mit geringer Dispersion ($m_e/m_h = 0.01$). Das zu niedrigeren Energien verschobene Spektrum ohne Polaronwechselwirkung ist gestrichelt dargestellt.

notwendig (Sequenz nach rechts unten). Formgebend für die Spektren in Abb. 6.25 sind also zwei Mechanismen:

Probeinjizierte Ladungsträger dephasieren das zusammen mit LO-Phononen ans Kontinuum koppelnde, (quasi-)diskrete Exziton; sie erhöhen durch Stöße und Abschirmung seine homogene Linienbreite. Darüberhinaus schirmen sie auch die für die Ausbildung der zusätzlichen Elektron-Loch-Anziehung wesentliche polaroptische Wechselwirkung ab.

Beachtung verdient auch das Abknicken des differentiellen Transmissionssignals an der Stelle $E_X + E_{LO}$ bei $N_{\text{probe}}^{\text{eh}} = 5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, das nicht von der glatt verlaufenden Bandkantenrenormierung hervorgerufen werden kann. Berechnungen von Zimmermann et al. bzw. Oestreich [Zim97, Oes97] sagen solch einen durch die kohärente Wechselwirkung mit LO-Phononen begründeten Wechsel in der Steigung der linearen Absorption an genau dieser Position voraus (siehe Abb. 6.27). Möglicherweise wird dieser Effekt hier durch die Schwächung der Polaronkoppelung in nichtlinearer Spektroskopie sichtbar.

Kapitel 7

Nichtentartetes Vierwellenmischen

7.1 Motivation

Mithilfe des Zweistrahl-Vierwellenmischens (VWM) kann die Dynamik der durch einen fs-Lichtimpuls in die Halbleiterprobe eingebrachten Interbandpolarisation genau studiert werden. Nichtlinearitäten dritter Ordnung erzeugen ein in eine untergrundfreie, phasenangepaßte Richtung abgelenktes VWM-Signal, das auf verschiedenste Weise analysiert werden kann (zeitlich integriert, zeitlich oder spektral aufgelöst). Durch Variation der zeitlichen Verzögerung zwischen den zwei Impulsen erhält man Informationen über den Verlust der mikroskopischen Phase bei der Streuung von Ladungsträgern an Elementaranregungen.

Bei Anregungsdichten kleiner als 10^{16} cm^{-3} tritt das stärkste VWM-Signal am fundamentalen Exziton auf [Loh93]: In einfachster Näherung ist die integrierte VWM-Intensität proportional zum Quadrat der Dephasierungszeit T_2 und zur sechsten Potenz des Dipolmatrixelements d_{cv} [Sha96]. Lohner et al. lösten neben dem VWM-Signal am Exziton auch den Beitrag des Kontinuums bei moderaten Anregungsdichten ($\simeq 10^{16} \text{ cm}^{-3}$) zeitlich auf. Am Exziton, das Ähnlichkeit mit einem isolierten Zweiniveausystem besitzt, konnte der für homogen verbreiterte Übergänge typische freie Induktionszerfall nachgewiesen werden, während man das Bandsignal als Photonecho identifizierte – charakteristisch für ein inhomogen verbreitertes Ensemble. Außerdem wurde festgestellt, daß die Signalintensität beim VWM an Kontinuumszuständen schneller mit der angeregten Ladungsträgerdichte anwächst als am Exziton.

In weiteren Experimenten [Cun94, Koc92, Rap93b, Rap94] wurde speziell für

das VWM-Signal am Exziton die Bedeutung der Coulombkopplung von exzitonischer und Kontinuumpolarisation sowie die dephasierende Wirkung besetzter Zustände erkannt. Vielteilcheneffekte wie das mit der Anregung von Elektronen und Löchern eingebrachte Dephasing der Polarisation durch Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung (sog. *excitation induced dephasing*, EID) und die Renormierung des lokalen Feldes (Lorenzfeld) durch Beiträge angeregter Dipole im Medium (*local field effects*, LFE) führen unerwartet zu einem VWM-Signal auch zu negativen Verzögerungszeiten. In diesem Fall ist kein elektrisches Feld des abfragenden Impulses mehr im Halbleiter vorhanden. EID und LFE vermitteln jedoch die Abbeugung der verbliebenen *Polarisation* des zweiten Impulses. Sie erzeugen auch einen VWM-Beitrag, der etwa um T_2 verzögert nach dem Abfrage-Impuls auftritt. Schon bei niedrigen Anregungsdichten ergibt das anregungsinduzierte Dephasing durch Exziton-Exziton-Stöße eine komplizierte exzitonische VWM-Dynamik [Schä93]. Bei höheren Dichten beschleunigen Interferenzen Coulombgekoppelter exzitonischer und Kontinuumpolarisationen den Zerfall des VWM-Signals [Rap93b, Rap94]; diese Kopplung von Polarisationen bewirkt selbst dann ein Signal am Exziton, wenn der erste Impuls dort wegen fehlenden spektralen Überlapps keine Polarisation anregt [Cun94].

Reicht die spektrale Breite eines der Impulse vom Exziton bis zur Emissionsschwelle von LO-Phononen durch Elektronen, muß der Einfluß des Bads optischer Phononen berücksichtigt werden. Bei kleiner Exziton-Bindungsenergie E_B und kleiner Polaronkopplungskonstante oszilliert die VWM-Intensität in Abhängigkeit der Verzögerungszeit wegen LO-assistierter Polarisationsstreuung mit $\omega_{LO}/2\pi (1 + m_e/m_h)$ [Ban95], bei großem E_B mit $\omega_{LO}/2\pi$ [Wog00]. Wegener et al. konnten durch Verwendung eines phasengekoppelten Impulspaares anstelle nur eines anregenden Impulses im zeitintegrierten VWM-Signal den Polarisations-transfer vom Exziton auf die LO-Seitenbande im Kontinuum besonders deutlich herausarbeiten und bei bestimmter Wahl der Anregungsparameter diese Wechselwirkung quasi an- und abschalten (**kohärente Kontrolle**) [Weh98]. Erhöht man die Anregungsdichte über 10^{16} cm^{-3} , so treten Interferenzen mit nichtlinearen Beiträgen der nächsthöheren Ordnung ($\chi^{(5)}$ -Prozesse) auf [Weg90]. Bandsignale bei Dichten zwischen $1.5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ und $7 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ wurden von Becker et al. aufgenommen und mithilfe der optischen Blochgleichungen ausgewertet. Die ermittelten Dephasingzeiten nahmen dabei von 40 fs auf 14 fs ab. Dieses Modell ist jedoch im Kontinuum wegen oben genannter Effekte nicht angemessen. Zusätzlich müssen nun auch Gedächtniseffekte bei Coulombstreu Prozessen in die theoretische Beschreibung aufgenommen werden, die sich in dichteabhängigen Seitenbanden im Spektrum der VWM-Transienten äußern sollen [Vu97]. Auch in diesem Zusammenhang konnten Wegener et al. mit kohärent kontrollierten VWM-Experimenten Signaturen für eine nur im Rahmen der *Coulomb-Quantenkinetik*

[Hau92, Hau96] auftretende Elektron-Plasmon-Kohärenz gewinnen, bei der anders als oben nicht Phononen, sondern Plasmonen als Bad fungieren [Vu00].

Sämtliche bisherigen experimentellen Ergebnisse können auch mit dem um einen Freiheitsgrad reicheren Dreistrahl-VWM gewonnen werden. Es gestattet überdies die Untersuchung reiner Populationsdynamik im Fall verschwindender Zeitverzögerung zwischen erstem und zweitem Impuls (siehe Kap. 7.4).

In den folgenden Abschnitten werden Zweistrahl-VWM-Messungen vorgestellt und analysiert, die sich durch die freie Wahl der Zentralwellenlängen und Dauern der Impulse (*nichtentartetes* VWM) und niedrigste Anregungsdichten hoch im Kontinuum von bisherigen Experimenten unterscheiden. Vorteilhaft kann die unabhängige Abstimmung der spektralen Eigenschaften der Impulse zur Hervorhebung bestimmter Aspekte der Interbandpolarisationsdynamik ausgenutzt werden. Bei geringer Anregungsdichte dephasiert die Polarisation von Kontinuumszuständen am schnellsten durch LO-Phonon-Emission von Elektronen; bei hoher Dichte freier Elektron-Loch-Paare können die vom Exziton her bekannten Mechanismen EID und LFE im Kontinuum beobachtet und Hinweise auf Polarisationsstreuung und Coulomb-Quantenkinetik gewonnen werden.

7.2 Vierwellenmischen nahe der Bandkante: Experiment und Theorie

In Zweistrahlanordnung (siehe Abb. 7.1) werden VWM-Transienten in der Abbeu- gerichtung $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ in einem Doppelmonochromator mit 4 meV Auflösung analysiert. Als Probe wird eine 400 nm dicke GaAs-Schicht verwendet, die beidseits in $\text{Al}_{0.33}\text{GaAs}$ -Barrieren eingebettet und mit SiN antireflexbeschichtet ist. Sie befindet sich auf einem transparenten Saphirsubstrat und wird in einem Kryostaten auf $T_L = 20$ K gekühlt. Der linear polarisierte Impuls 1 besitzt mit einer zentralen Photonenergie von 1.599 eV und einer FWHM-Breite von 22 meV (entsprechend einer Impulsdauer τ_p von 80 fs) keinen Überlapp mit dem Exziton bei 1.509 eV. Auch das Spektrum des zum ersten parallel polarisierten Impulses 2 mit Maximum bei 1.553 eV und Breite 50 meV ($\tau_p = 36$ fs) hat nur sehr schwache Frequenzkomponenten unterhalb der Bandkante. Beide Impulse regen jeweils eine Elektron-Loch-Dichte von $8 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ an. Mit diesen Parametern aufgenommene VWM-Spektren sind für verschiedene Verzögerungszeiten t_{21} in Abb. 7.2 (a) dargestellt. Das zu negativen Verzögerungszeiten strukturlose Spektrum entwickelt bei $t_{21} = 0$ fs zwei Bereiche deutlich erhöhter VWM-Intensität, die durch ein Minimum bei 1.554 eV getrennt sind. Während das Maximum bei

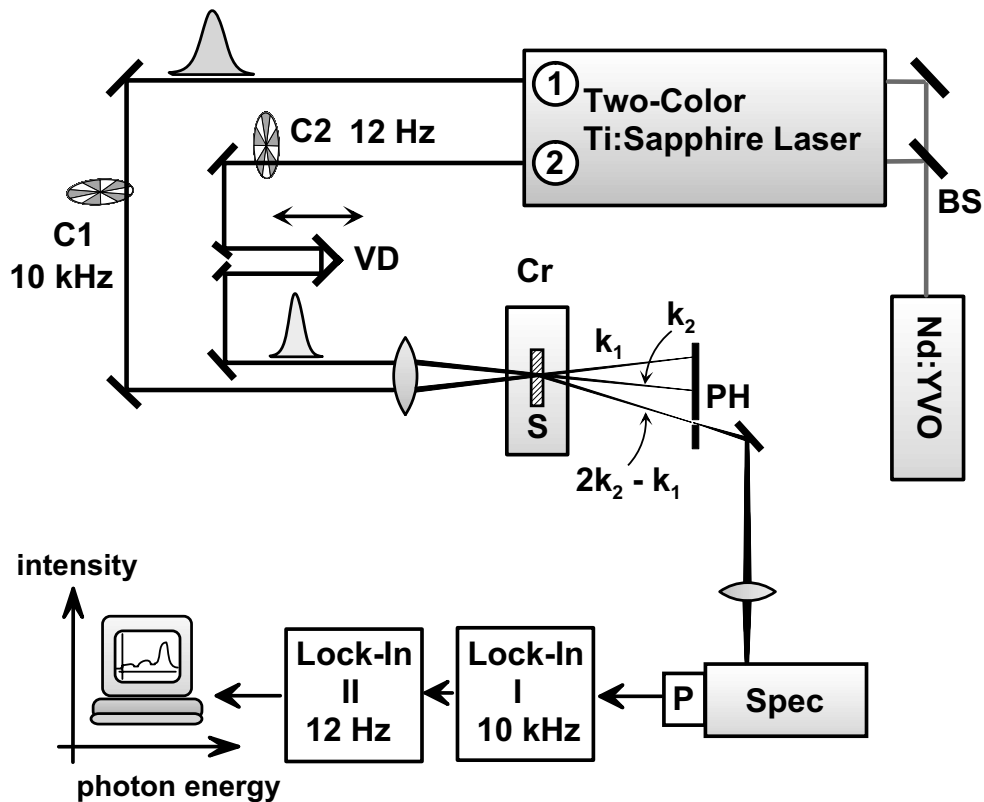


Abb. 7.1: Experimenteller Aufbau zur spektral und zeitlich aufgelösten, nichtentarteten 2-Strahl-Vierwellenmischung. Das Pinhole (PH) dient der Streulichtunterdrückung. Weitere verwendete Abkürzungen: Unterbrecherräder (C1/2), variable Verzögerungsstrecke (VD), Kryostat (Cr), Spektrometer (Spec), Photomultiplier (P).

1.57 eV etwa in der Faltung der beiden Impulse – $I(\omega) \sim I_1(\omega) \times (I_2(\omega))^2$ – liegt, tritt das zweite Maximum bei 1.545 eV an einer spektralen Position fern der Komponenten des anregenden Impulses auf. Für zunehmende Verzögerung von Impuls 2 verringert sich zunächst das Signal bei 1.545 eV, später das bei 1.57 eV. Bei 1.52 eV setzt trotz sehr kleinen Überlapps durch Impuls 2 ein starkes exzitonisches VWM-Signal ein.

Um die zeitliche Entwicklung und die spektralen Besonderheiten dieser erstmalig im Kontinuum durchgeführten nichtentarteten VWM-Experimente besser zu verstehen, wurden die optischen Blochgleichungen für ein Ensemble nicht wechselwirkender Zweiniveausysteme bei obiger Impulskonstellation gelöst. Beiträge des Leichtlochbandes wurden wegen der Proportionalität der VWM-Intensität zur sechsten Potenz des Dipolmatrixelements d_{cv} und $d_{cv, lh} = \sqrt{1/3} d_{cv, hh}$ gegenüber dem Schwerlochsignal vernachlässigt.

Zunächst bringt man die optischen Blochgleichungen unter der Annahme gleicher

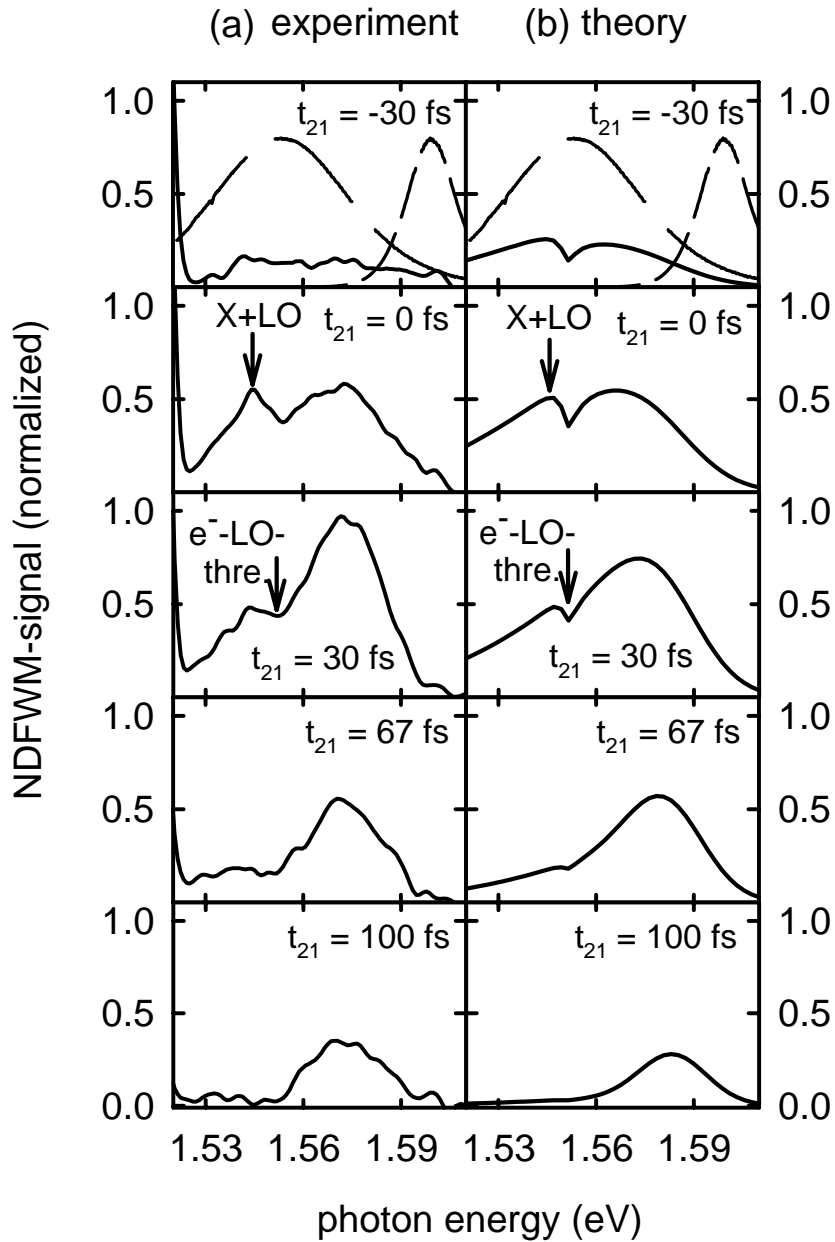


Abb. 7.2: (a) Spektral aufgelöstes VWM-Signal (durchgezogen) zu verschiedenen Verzögerungszeiten t_{21} zwischen Impuls1 (kurz gestrichelt) und Impuls2 (lang gestrichelt) bei einer Anregungsdichte von $N = 2 \times 8 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$. Das starke Signal am Exziton ($E_X = 1.509 \text{ eV}$) setzt am linken Rand ein. Deutlich sind zwei bei der LO-Emissionsenergie von Leitungsbandelektronen getrennte Bereiche mit unterschiedlicher Dynamik zu sehen. (b) Für die experimentelle Impulskonstellation auf Basis der optischen Blochgleichungen berechnetes VWM-Signal (Details siehe Text).

Relaxationszeiten von oberem und unterem Niveau auf die Form [Yaj75]:

$$\partial_t f = -\frac{2i}{\hbar}(E^* p - E p^*) - 1/T_1(f - f_0) \quad (7.1)$$

$$\partial_t p = \frac{i}{2\hbar} d_{cv} E f - (1/T_2 + i\omega_0) p/d_{cv}. \quad (7.2)$$

Dabei ist $f = n^e + n^h$ die kombinierte Elektron-Loch-Besetzung, ω_0 die Frequenz des betrachteten Übergangs im Ensemble und

$$E = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int (E_1(\omega) e^{i(k_1 r - \omega t)} + E_2(\omega) e^{i(k_2 r - \omega t)}) d\omega + cc$$

die elektrische Feldstärke der einfallenden Laserimpulse. Wichtig ist an dieser Stelle zu bemerken, daß Gl. 5.15 im Gegensatz zu Rechnungen nach Fermis Goldener Regel einen retardierten Generationsprozeß beschreibt. Dabei führt die Energie-Zeit-Unschärfe zur Anregung einer breiteren Besetzungs- und Polarisationsverteilung als man es nach einer inkohärenten Betrachtung erwartet [Kuh92]. Zu späteren Zeiten verschmälert stimulierte Rekombination diese Verteilung wieder. Die beiden Gleichungen iteriert man, beginnend mit $f = f_0$, bis zur dritten Ordnung in den Feldstärken, wobei nur nahresonante Terme betrachtet werden (*rotating wave approximation*). Anschließend integriert man über die verschiedenen Übergänge des inhomogenen Ensembles unter der Voraussetzung wurzelförmig mit der Überschußenergie über der Bandkante ansteigender Zustandsdichte und erhält für die in Richtung $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ abgebeugte Polarisation:

$$P^{(3)}(\omega, t_{21}) \sim \int_{E_G}^{\infty} d\omega_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_2 d_{cv}^3(\omega_0) e^{i\omega_1 t_{21}} \frac{\sqrt{\hbar\omega_0 - E_G} E_1^*(\omega_1) E_2(\omega_2) E_2(\omega - \omega_2 + \omega_1)}{1} \frac{1}{1/T_1(\omega_0) + i(\omega_1 - \omega_2)} \frac{1}{1/T_2(\omega_0) + i(\omega_0 - \omega)} \left(\frac{1}{1/T_2(\omega_0) + i(\omega_0 - \omega_2)} + \frac{1}{1/T_2(\omega_0) + i(\omega_1 - \omega_0)} \right) \quad (7.3)$$

Longitudinale und transversale Relaxationszeiten sind abhängig vom zugehörigen Zweiniveausystem im Ensemble mit Übergangsenergie $\hbar\omega_0$.

Für Elektron-Loch-Dichten kleiner als 10^{16} cm^{-3} liegen nach [Col93] die Ladungsträger-Ladungsträger-Steueraten unter 1 ps^{-1} . Oberhalb der Emissionsschwelle von LO-Phononen für Elektronen bei einer Übergangsenergie $E_{e,LO}^{\text{thr}} = E_X + E_B + \hbar\omega_{LO} (1 + m_e/m_h) = 1.554 \text{ eV}$ beträgt die Steurrate etwa 4 ps^{-1} (siehe Kap. 5.5.1). Die LO-Schwelle für Löcher liegt weit höher bei Übergangsenergien von 1.795 eV . Dieses Schwellenverhalten der Relaxationsraten sollte sich

auch auf die Dephasingraten der Polarisation übertragen. Aus diesem Grund wurde folgender Verlauf von T_2 gewählt:

$$\begin{aligned} T_2 &= 500 \text{ fs}, & \hbar\omega_0 &< E_{e,LO}^{\text{thr}} \\ T_2 &= 130 \text{ fs}, & \hbar\omega_0 &> E_{e,LO}^{\text{thr}}. \end{aligned}$$

Für T_1 , das für wechselwirkungsfreie Zweiniveausysteme kaum Einfluß auf die Dynamik des VWM-Signals hat, wurde die gleiche Energieabhängigkeit verwendet. Rechnungen mit konstantem d_{cv} sind in Abb. 7.2 (b) den gemessenen VWM-Spektren gegenübergestellt. Die Übereinstimmung ist erstaunlich gut in Anbetracht der Einfachheit des Modells. Bei niedrigen Dichten scheinen Vielteilcheneffekte im Kontinuum anders als am Exziton also nur eine untergeordnete Rolle zu spielen. Das Blockieren von Übergängen durch das Pauli-Verbot ist die dominante Nichtlinearität. Der Sprung von T_2 ergibt bei $E_{e,LO}^{\text{thr}}$ destruktive Interferenz im Spektrum des VWM-Signals. Unterhalb $E_{e,LO}^{\text{thr}}$ führt die längere Dephasingzeit zu einer höheren VWM-Intensität; oberhalb – im Überlappbereich der Spektren 1 und 2 – erscheint ein weiteres Signalmaximum. Auch das frühere Auftreten spektraler Komponenten unterhalb $E_{e,LO}^{\text{thr}}$ wird durch die Theorie gut wiedergegeben. Diese Abfolge ist nicht nur durch die unterschiedlich langen Dephasingzeiten, sondern insbesondere, wie weitere Rechnungen ergaben, wegen der Mischung von Frequenzen aus Spektrum 1 und 2 durch die energetische Lage der beiden Impulse festgelegt. Besonders deutlich läßt sich der Sprung der Dephasingzeiten in nichtentartetem VWM mit einem hoch über $E_{e,LO}^{\text{thr}}$ positionierten Anregungsimpuls zeigen, was zu einer ausgeprägten Doppelpeakstruktur führt (siehe Abb. 7.3 rechts). Im Gegensatz dazu war es in bisherigen nichtentarteten VWM-Experimenten nur schwer möglich, die unterschiedlich schnelle Dephasierung dies- und jenseits der LO-Schwelle $E_{e,LO}^{\text{thr}}$ selbst im stärker polaren InP [All99], bei dem der Effekt viel ausgeprägter sein sollte, eindeutig nachzuweisen (Impuls etwa bei $E_{e,LO}^{\text{thr}}$ zentriert, Abb. 7.3 links).

Bei genauer Betrachtung fallen einige kleine Unterschiede zwischen den experimentellen und simulierten VWM-Spektren auf: Unterhalb 1.53 eV weicht die Theoriekurve vom gemessenen VWM-Signal wegen der Nähe zur starken Nichtlinearität am Exziton ab. Andeutungen von lokalen Feldeffekten lassen sich aus der Differenz der Signalmaxima bei $t_{21} = 30$ fs ablesen: Sie erhöhen nach [Schä93] zu schwach positiven Verzögerungszeiten die VWM-Intensität. Eine kleine zusätzliche Spitze mit nur wenigen meV Breite ist zu $t_{21} = 0$ fs bei 1.545 eV zu sehen, das ist die spektrale Position des Exzitons plus einer LO-Phonon-Energie. Sie kann dem Exziton-Phonon-Quasiteilchen zugeschrieben werden, einem Zustand, bei dem sich Exziton und Phonon gemeinsam durch den Kristall bewegen und eine schwache Bindung aneinander ausbilden (siehe Kap. 6.4) [Zim97, Tra93]. Dabei erhöht sich die Oszillatorstärke des zugehörigen optischen Übergangs.

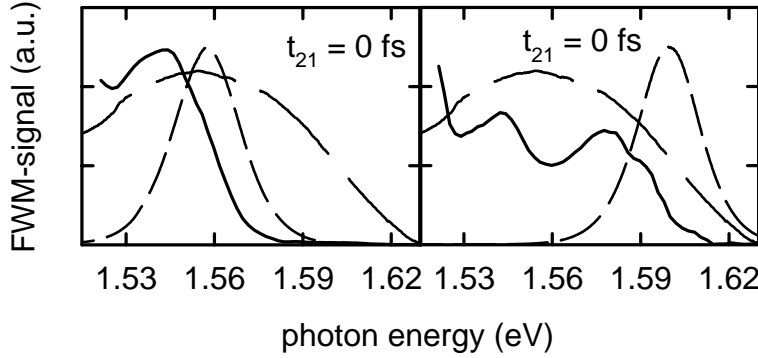


Abb. 7.3: Sichtbarkeit des schwellenartigen Verlaufs der Dephasingzeit an der LO-Schwelle für Elektronen bei verschiedenen zentralen Photonenergien des anregenden Impulses (kurz gestrichelt). Spektrale Charakteristik für Anregung bei $E_{e,LO}^{\text{thr}}$ (links) bzw. 50 meV über $E_{e,LO}^{\text{thr}}$ (rechts).

7.3 Vierwellenmischen hoch im Absorptionskontinuum

Um den Einfluß von Coulomb-Effekten auf Band-VWM-Signale isoliert von der nahezu diskreten Exzitonresonanz und vom stufenförmigen Verlauf der Dephasingrate untersuchen zu können, wurden die Spektren der Impulse 1 und 2 zu 1.580 eV (durchgezogene Linie in Abb. 7.4) bzw. 1.621 eV (gestrichelte Linie) verschoben. Ihre Impulsdauern wurden beibehalten.

Für die niedrige Anregungsdichte von $5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ je Impuls sind in (a) punktiert VWM-Spektren zu verschiedenen Verzögerungszeiten t_{21} aufgetragen. Bei $t_{21} = -20$ fs liegt das Maximum des abgebeugten Signals im Überlappbereich der Spektren 1 und 2. Mit zunehmender Zeitverzögerung verschmälert sich das VWM-Spektrum leicht, sein Schwerpunkt wandert um wenige meV zu niedrigeren Photonenergien. Nach $t_{21} = 140$ fs ist die VWM-Intensität erst auf die Hälfte abgefallen.

Viel ausgeprägter ist die Dynamik des in (b) gepunktet dargestellten, spektral aufgelösten VWM-Signals bei der vierzigmal höheren Anregungsdichte ($2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ je Impuls): Zu negativen Verzögerungszeiten erscheint die maximale spektrale VWM-Intensität stark blauverschoben bezüglich der Zentralwellenlänge des Abtastimpulses. Das Signal besitzt gleichzeitig eine doppelt so große energetische Breite wie der anregende Impuls 1. Zu späteren Verzögerungszeiten t_{21} verschiebt sich das VWM-Spektrum um etwa 40 meV in das beiden Impulsen gemeinsame Energieintervall hinein und verliert dabei an spektraler Breite. Die Polarisation zerfällt rasch irreversibel: Schon bei $t_{21} = 75$ fs ist die Intensität des

VWM-Signale auf ein Drittel abgesunken.

Nach der Anpassung der bandkantennahen Niedrigdichtemessungen (Abb. 7.2) sollte das verwendete Modell auch höher im Band zur Beschreibung des VWM-Signals in (a) geeignet sein. In der Tat werden die Spektren recht gut von einer Simulation mit einer Dephasingzeit von 250 fs reproduziert (durchgezogene Linie

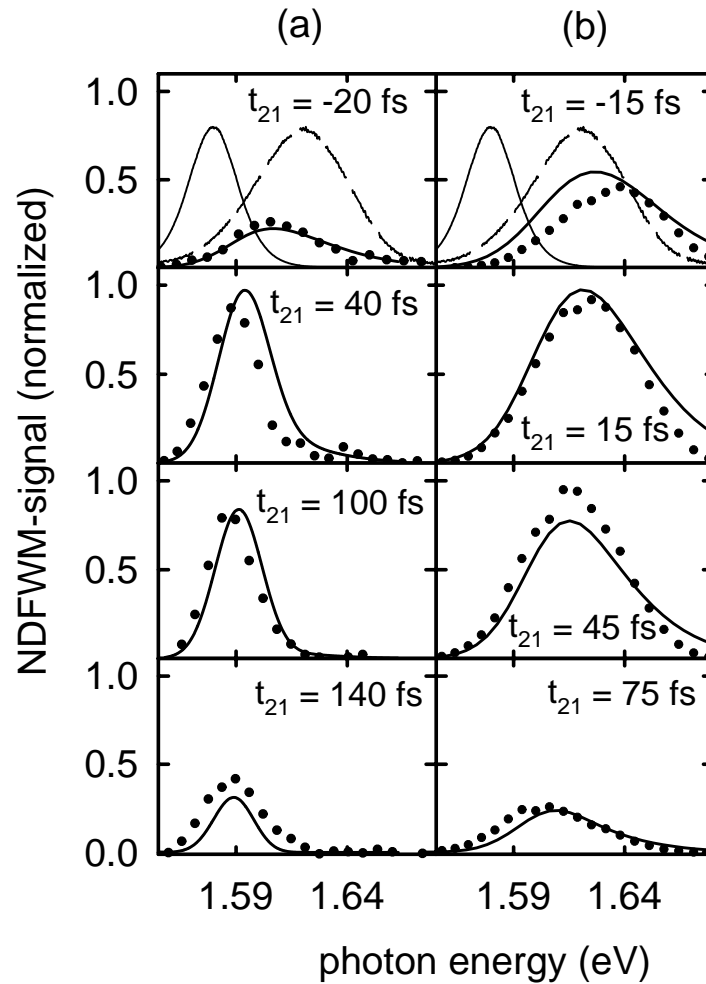


Abb. 7.4: Spektral aufgelöste VWM-Signale (gepunktet) zu verschiedenen Verzögerungszeiten t_{21} zwischen den Impulsen 1 und 2, bei Anregungsdichten von $N = 5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ (a) und $N = 2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ (b). Die Gittertemperatur beträgt $T_L = 20 \text{ K}$. Berechnete VWM-Spektren sind durchgezogen eingetragen.

in Abb. 7.4 (a)) – ein wegen der geringeren Anregungsdichte größerer Wert als in 7.2. Die hier auch zu 250 fs gewählte longitudinale Relaxationszeit T_1 ist unkritisch. Die Verschiebung des VWM-Spektrums und das zeitliche Verhalten seiner Breite lassen sich also alleine durch Frequenzmischung beider Impulse verstehen:

Beim zeitlichen Überlapp der Impulse $t_{21} \simeq 0$ fs entsteht das VWM-Signal durch die prompte Abbeugung von Impuls 2 an den verschiedenen phasengleichen Untergittern des Ensembles im spektralen Überlappbereich der beiden Impulse. Es werden nicht nur Komponenten innerhalb dieses gemeinsamen Spektralbereichs, sondern mit nachlassender Effizienz auch spektrale Anteile von Impuls 2 außerhalb davon abgebeugt. Die Abbeugeeffizienz verstimmter Frequenzen nimmt dabei mit wachsender homogener Linienbreite ($\sim 1/T_2$) zu. Zu späteren Delayzeiten entsteht neben dem schwächer werdenden prompten Signal, das dem freien Induktionszerfall ähnelt und das wegen der endlichen spektralen Breite des anregenden Impulses immer auftritt [Schä93], ein relativ stärkeres photonechoartig verzögertes Signal. Die für das Zustandekommen des Echos nötige Rephasierung kann nur von den spektralen Komponenten aus Impuls 2 bewirkt werden, die minimal gegen die Zentralfrequenz von Impuls 1 verstimmt sind ($\nu_k \simeq 0$, vgl. Kap. 5.4). Aus diesem Grund folgt das abgebeugte nichtentartete VWM-Signal eines inhomogen verbreiterten Ensembles zu frühen Zeiten mehr der spektralen Charakteristik des zweiten Impulses, während es zu späteren Zeiten im gewichteten spektralen Überlapp $I_1(\omega) \times (I_2(\omega))^2$ der beiden Impulse zu liegen kommt.

Die bei hoher Dichte gemessenen VWM-Spektren sind dominiert von Vielteilcheneffekten. Ihnen kann man in den Simulationen näherungsweise Rechnung tragen durch mit steigender Elektron-Loch-Dichte abnehmende Relaxationszeiten. Im einfachsten Fall kann man ein mittleres, zeitlich konstantes T_2 annehmen, das ein Maß für das anregungsinduzierte Dephasing durch Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung abgibt. Damit über(unter-)schätzt man zu frühen (späten) Zeiten das EID und die spektrale Breite des VWM-Signals leicht. Für eine transversale Relaxationszeit von $T_2 = 35$ fs und eine longitudinale von $T_1 = 50$ fs, deren Wert ohne merklichen Einfluß um einige 10 fs verändert werden kann, erhält man die in Abb. 7.4 (b) dargestellten Spektren (durchgezogene Linien). Die berechneten spektralen Intensitäten stimmen in den entscheidenden Punkten wie der – verglichen mit (a) – stärkeren anfänglichen Blauverschiebung, der spektralen Eingenkung zu späten Verzögerungszeiten und in den Amplitudenverhältnissen befriedigend mit den Messungen überein: *Die anregungsinduzierte Vergrößerung der homogenen Linienbreite ist also das bestimmende Element für die Breite des VWM-Signals.*

Die Abweichungen der Theorie von den experimentellen VWM-Spektren haben ihre Gründe in der Vernachlässigung folgender Terme der Halbleiter-Bloch-Gleichungen:

(1) Die in den optischen Bloch-Gleichungen nicht berücksichtigten lokalen Feldeffekte renormieren das elektrische Feld im Halbleiter durch Dipolbeiträge angeregter Übergänge. Mathematisch gesprochen bedeutet dies, daß die Polarisierung dritter Ordnung nun zusätzlich zum äußeren Feld noch durch die Polarisierung erster Ordnung getrieben wird, die bei entsprechend großer Phasenrelaxationszeit deutlich länger als das äußere Feld wirken kann [Sha96]. Damit ist das in den Experimenten bei $t_{21} = 45$ fs im Vergleich zur Rechnung später angenommene Signalmaximum zu erklären (vgl. Kap. 7.1). LFE koppeln darüberhinaus Zustände mit verschiedenem Wellenvektor (siehe Gl. 5.15). Dadurch werden zum Anregungsimpuls nichtresonante Polarisierungen erzeugt, die für die zu $t_{21} = -15$ fs beobachtete große Blauverschiebung des spektralen Maximums des VWM-Signals verantwortlich sein können.

(2) Die genauere Behandlung der Coulombstreuung von Ladungsträgern bei hohen Dichten und auf sehr kurzen Zeitskalen ergibt ein über das anregungsinduzierte Dephasieren und die vorher besprochene Kopplung von Polarisierungen hinausgehendes, komplexeres Bild (*Coulomb-Quantenkinetik*): Ein Elektron-Loch-Plasma der Dichte n kann eine eingebrachte, über das Coulombpotential wechselwirkende Störung erst etwa nach der inversen Plasmafrequenz $1/\omega_{\text{pl}}$ ($\omega_{\text{pl}} = \sqrt{4\pi e^2 n / \epsilon_0 \mu}$) abschirmen [ELS94a]. Für größere Zeiten ist die Näherung der komplizierten Vielteilchendynamik durch die Einführung eines effektiven Zweiteilchenpotentials mit dynamischer Abschirmung nach Lindhard [Lin54] gerechtfertigt. Die bei der Ableitung gemachten Annahmen gelten jedoch nicht mehr für sehr kurze Zeiten verglichen mit $1/\omega_{\text{pl}}$. Die Berechnung der Ladungsträgerdynamik durch die Boltzmann-Gleichung scheitert, da das nichtabgeschirmte Coulombpotential divergente Streuraten liefert. Diese unphysikalischen Ergebnisse treten nicht auf, wenn man die bei aufeinanderfolgenden Streuprozessen teilweise erhaltenen Phasen der beteiligten Wellenfunktionen berücksichtigt. Aus einem zweizeitigen Greensfunktionen-Formalismus konnten El Sayed et al. [ELS94b] für vernachlässigbare Abschirmung und vernachlässigbare Energieerhaltung bei einzelnen Stößen die für die Halbleiter-Bloch-Gleichungen resultierenden Kollisionsterme angeben:

$$\partial_t p_k |_{\text{col}} = \frac{4}{\hbar^2} \sum_q \int_{-\infty}^t dt' V_q^2 (p_{|k-q|}(t') - p_k(t')) F_q(t') \quad (7.4)$$

$$\partial_t n_k^{e(h)} |_{\text{col}} = \frac{4}{\hbar^2} \sum_q \int_{-\infty}^t dt' V_q^2 (n_{|k-q|}^{e(h)}(t') - n_k^{e(h)}(t')) F_q(t') \quad (7.5)$$

$$F_q(t') = \sum_{j=e,h} \sum_p n_p^j(t') [1 - n_{|p+q|}^j(t') - \text{Re}(p_{|p+q|}(t') p_p^*(t'))] \quad (7.6)$$

Sie beschreiben einen teilweise kohärenten Prozeß, der im Gegensatz zur Boltzmandynamik nicht lokal in der Zeit ist und einen kohärenten Polarisationstransfer zwischen Zuständen mit verschiedenem Impuls vermittelt. Im Langzeitlimit münden die obigen Gleichungen wegen Interferenzen der Polarisationssterme wieder in die Markovsche Beschreibung der Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung. Wegen des kontinuierlichen Spektrums der Stoßpartner ist die Coulomb-Quantenkinetik komplizierter als die LO-Phonon-Quantenkinetik ($\omega_{\text{LO}} \simeq \text{const.}$). Rechnungen von Vu et al. lassen für kleine Verzögerungszeiten ein blauverschobenes VWM-Signal mit einer schwächeren höherenergetischen Bande erwarten, was die größere Verschiebung des spektralen Maximums im Experiment erklärt. Zu späteren Verzögerungszeiten sollte sich das Dephasing verlangsamen. Dieser Effekt kann zur höheren VWM-Intensität bei $t_{21} = 45$ fs führen.

7.4 Untersuchung der Populationsdynamik in GaAs und CdTe: Drei-Impuls-Vierwellenmischen

Verschiedenste Aspekte sowohl kohärenter als auch inkohärenter Ladungsträgerdynamik werden von Mehrfarben-VWM-Experimenten erschlossen, bei denen bestimmte Übergänge selektiv angeregt werden. Unabhängig davon kann bei anderen Übergangsenergien der Besetzungs- und Polarisationszustand abgefragt werden.

In den bislang einzigen derartigen Messungen in Dreistrahl-Geometrie von Kim et al. wurden zufällige Koinzidenzen von Impulsen aus zwei fs-Lasern zur Aufnahme von VWM-Signalen verwendet [Kim98]. Zwei gleichzeitig auf die Halbleiterprobe gekreuzt eingestrahelte Impulse erzeugten eine räumliche Modulation der exzitonschen Besetzung, an der ein weiterer Impuls abgebeugt werden konnte. An diesem aus der kohärenten Überlagerung von Schwer- und Leichtloch-Exziton-Zuständen bestehenden Populationsgitter wurden Quantenschwebungen nachgewiesen. Auch weit gegen die Exzitonresonanz verstimmte Impulse konnten an dem Gitter abgebeugt werden. Das VWM-Signal besaß dann die gleiche spektrale Form wie der dritte Impuls.

7.5 Experimentelles Prinzip

Unser hochrepetitiver Zweifarbenlaser gestattet es, entsprechende Messungen im Absorptionskontinuum durchzuführen, d.h. ein Abbeugungsgitter im schwächer

nichtlinear reagierenden Band-zu-Band-Kontinuum zu erzeugen. Im Mittelpunkt steht die Untersuchung des Relaxationsverhaltens von Leitungsbandelektronen in GaAs und im stärker polaren CdTe im Regime dominanter LO-Phonon-Emission. Verglichen mit der ebenfalls zu diesem Zweck verfolgten differentiellen Transmissionspektroskopie bietet das Drei-Impuls-VWM den Vorteil, das Signal in einer untergrundfreien Richtung beobachten zu können und bei der Detektion nicht durch das Schrotrauschen des transmittierten Abtastimpulses begrenzt zu sein. Der experimentelle Aufbau ist in Abb. 7.5 dargestellt. Zur Erzeugung einer definierten Elektronen- und Löcherverteilung dient der spektral schmalere Impuls. Ein Strahlteiler spaltet ihn in zwei parallel polarisierte Komponenten mit Wellenvektoren \mathbf{k}_1 und \mathbf{k}_2 auf, die zeitgleich auf der Probe überlagert werden. Der Kreuzungswinkel ist mit 5° groß genug gewählt, um eine kleine Gitterkonstante für hohe Abbeugeeffizienz zu ergeben, und klein genug, um die Zeitauflösung nicht zu beeinträchtigen. Der breitbandige um t_D verzögerte Impuls mit Wellenvektor

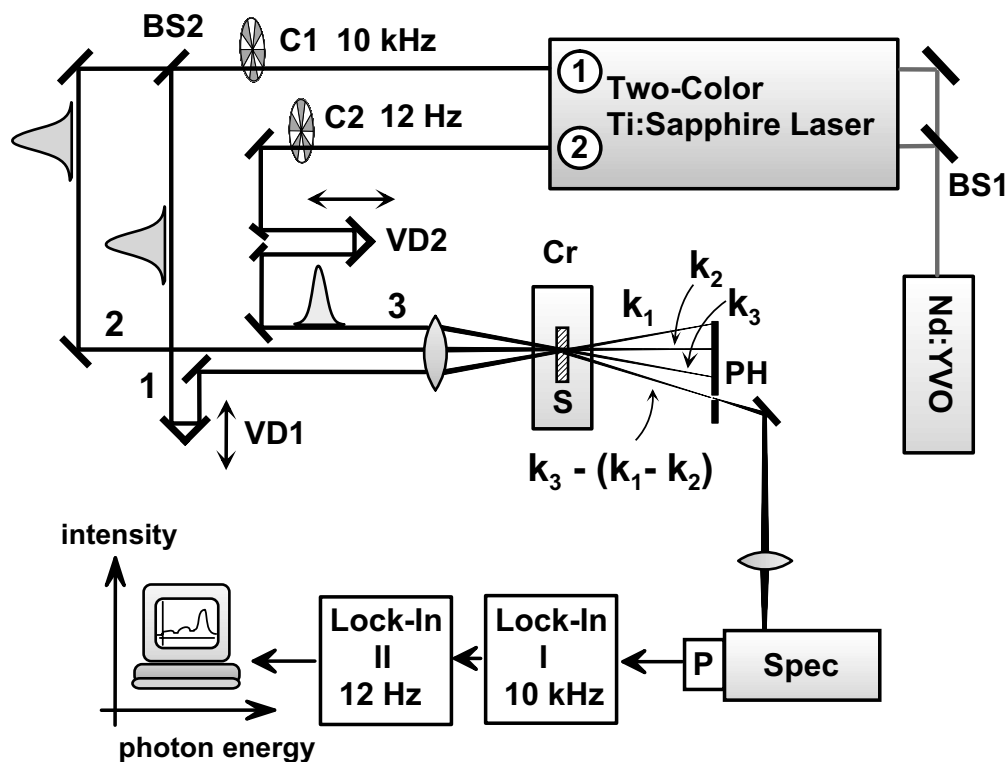


Abb. 7.5: Experimenteller Aufbau beim 3-Strahl-Vierwellenmischen. Abkürzungen wie in Abb. 7.1. Mit der Verzögerungsstrecke VD1 wird die zeitliche Koinzidenz der beiden vom Strahlteiler BS2 abgeleiteten Impulse aus dem Laserzweig 1 eingestellt. Den Zeitpunkt, zu dem der abfragende Impuls aus Zweig 2 einfällt, gibt man mithilfe von VD2 vor.

\mathbf{k}_3 ist senkrecht zu den anregenden Impulsen linear polarisiert, um kohärente Effekte abzuschneiden und in Verbindung mit einem nachfolgenden Polarisator Streulicht zu unterdrücken. Er besitzt zum Abtasten eines Bereichs möglichst gleichmäßiger Modulation nur den halben Bündeldurchmesser der anregenden Impulse. Nach der Abbeugung in die Phasenanpassungsrichtung $\mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ wird in einem Fokus hinter der Probe mit einer kleinen Blende der Raumwinkel für von der Probenoberfläche gestreutes Licht minimiert. In einem Doppelmonochromator (Auflösung: 4 meV) wird das VWM-Signal spektral aufgelöst und mit einem Photomultiplier nachgewiesen. Die Modulation der Gittererzeugenden und des Abtaststrahls mit Unterbrecherrädern und die anschließende Demodulation des Signals in zwei Lock-In-Verstärkern sorgt für zusätzliche Streulichtunterdrückung. Um ein Maß für die spektrale Abbeugeeffizienz zu erhalten, wird das Signal durch die eingestrahlte spektrale Intensität des dritten Impulses geteilt.

7.6 Spektral aufgelöstes Drei-Impuls-VWM an GaAs

Zunächst wird die Eignung des Verfahrens zur Abbildung von Elektron-Loch-Verteilungsfunktionen in GaAs demonstriert. Die Probe ist im Anhang A (a) charakterisiert. Die gittererzeugenden Impulse (gestrichelte Linien in Abb. 7.6) von 90 fs Dauer sind bei 1.680 eV zentriert und regen eine mittlere Elektron-Loch-Dichte von $7 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ an. Um eine Größenordnung weniger freie Ladungsträger werden vom breitbandigen Abtastimpuls erzeugt, mit dessen Hilfe der Bereich von der Exzitonenergie $E_X = 1.509 \text{ eV}$ bis zu 1.70 eV untersucht werden kann. Im linken Teil der Abb. 7.6 ist die abgebeugte zeitintegrierte VWM-Intensität für verschiedene Verzögerungszeiten t_D aufgetragen. Bei $t_D = 0 \text{ fs}$ gibt das VWM-Spektrum gut die angeregte Ladungsträgerverteilung wieder. Das Ausbleichmaximum bei 1.67 eV ist zur Anregewellenlänge leicht rotverschoben (vgl. Kap. 5.3). Das Signal bei 1.60 eV kommt zustande durch die Pauli-Blockade von Übergängen aus dem Schwerlochband in Leitungsbandzustände, die von aus dem Leichtlochband erzeugten Elektronen besetzt sind (siehe Abb. 7.6 rechts). 100 fs nach der Injektion der Nichtgleichgewichts-Ladungsträger wird das Minimum zwischen den beiden Komponenten aufgefüllt durch Elektronen, die aus dem Schwerlochband heraus generiert worden sind und ein LO-Phonon emittiert haben. Innerhalb einiger hundert Femtosekunden relaxieren die Ladungsträger zu einer thermischen Verteilung. Aus den abgebeugten Spektren kann man ersehen, daß die räumliche Modulation der Probeneigenschaften hauptsächlich auf Besetzungseffekten beruht. Schwache lokale Feldeffekte verschieben das Signal um 10 meV zu niedri-

geren Photonenergien. Das zu späten Verzögerungszeiten abgebeugte strukturlose VWM-Signal wird von Bandkantenrenormierung und spektralen Ausläufern des exzitonischen Gitters verursacht. Es bildet sich trotz nichtresonanten Pumpens im Band aufgrund der Abschirmung der Elektron-Loch-Anziehung durch die eingebrachten Ladungsträger und kann selbst weit entfernte Spektralkomponenten abbeugen (siehe Einleitung).

Das abbeugende Gitter kann also als Amplitudengitter verstanden werden, das selektiv auf Pauli-geblockte Übergänge wirkt. Das nach den Kramers-Kronig-Relationen energetisch nahe der Absorptionsänderung auftretende Phasengitter ist von geringer Effizienz. Dies ergibt sich aus dem im Vergleich zum Anregungsspektrum kaum verbreiterten VWM-Signal.

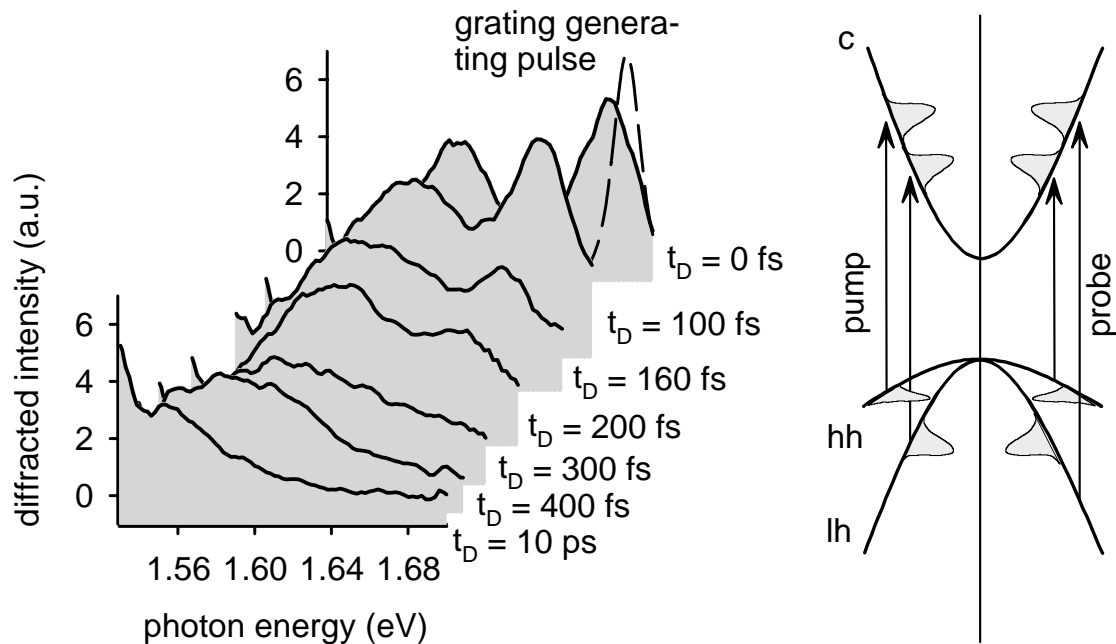


Abb. 7.6: Links: Spektral aufgelöstes Vierwellenmischsignal in GaAs für verschiedene Verzögerungen $t_D = t_3 - t_1$ zwischen dem abtastenden dritten Impuls und den zwei koinzidenten gekreuzten 90 fs-Impulsen (gestrichelt). Rechts: Pumpgenerierte Elektronen- und Lochverteilungen im Leitungs- (c), im Leichtloch- (lh) bzw. Schwerlochband (hh). Neben Übergängen bei der Pumpenergie werden auch die nebenstehenden ausgebleicht: höher- bzw. niederenergetische Übergänge aus dem Band der leichten bzw. schweren Löcher in Zustände, die von aus dem Schwer- bzw. Leichtlochband heraus erzeugten Elektronen blockiert sind.

7.7 LO-Phonon-Emissionszeiten von Leitungsbandelektronen in GaAs und CdTe

Wie im vorigen Abschnitt gezeigt, ist nichtentartetes Drei-Impuls-Vierwellenmischen ein hervorragendes Instrument zur Beobachtung der fs-Dynamik von Nichtgleichgewichts-Ladungsträgerverteilungen. Um gezielt die LO-Phonon-Emissionszeiten hochenergetischer Leitungsbandelektronen in GaAs und CdTe zu bestimmen, kann man bei niedrigsten Anregungsdichten an zwei verschiedenen Photonenergien abtasten:

(1) Ein rein elektronisches Signal ohne Lochbeiträge erhält man, wenn man die aus dem Schwerlochband erzeugten Elektronen über das Leichtlochband abfragt (Abb. 7.6 rechts). Dieser Übergang ist relativ zur Anregung blauverschoben und wegen der stärkeren Krümmung des Leichtlochbandes spektral verbreitert. Für GaAs ist er leicht auffindbar. In CdTe wird das Signal jedoch wegen der viel schnelleren Relaxation schwach und spektral unscharf. Man muß deshalb

(2) die VWM-Transienten bei der Anregwellenlänge aufnehmen. Auch dort ist das Signal fast ausschließlich elektronischen Ursprungs: Nach der Anregung des Schwerloch-Übergangs besitzen nur die Leitungsbandelektronen, die 90% der Überschußenergie aufnehmen, eine zur LO-Phonon-Emission ausreichende Energie. Der überraschende, semiklassisch verbotene, rein quantenkinetische *Relaxationskanal für Löcher unterhalb der LO-Schwelle* [Bet00] sollte für die im folgenden nur halb so große Schwerlochenergie (verglichen mit den Anregungsbedingungen in [Bet00]) schwächer in Erscheinung treten und bei der Auswertung der Messungen vernachlässigbar sein. Schwere Löcher streuen dann nur auf einer Pikosekunden-Zeitskala an akustischen Phononen. Der Leichtloch-Übergang macht wegen der geringeren Zustandsdichte nur knapp 14% des gesamten Ausbleichsignals aus. Wegen des abrupten Anstiegs der LO-Emissionszeit auf einen annähernd konstanten Wert über der Schwelle relaxieren aus dem Leichtlochband generierte Elektronen etwa so schnell wie mit der selben Photonenergie aus dem Schwerlochband erzeugte. Die auch am Übergang beteiligten leichten Löcher mit einem Signalanteil von nur 7% verschwinden noch während der Dauer des Anregungsimpulses durch polar-optische Streuung ins Schwerlochband [Scho95].

Im linken Teil der Abb. 7.7 sind VWM-Transienten in GaAs bei einer Abtastenergie von 1.610 eV dargestellt. Der Pumpimpuls liegt bei 1.580 eV und besitzt mit 16 meV eine geringere Breite als die LO-Phonon-Energie (36 meV), um Streuung innerhalb der angeregten Verteilung zu vermeiden. Der biexpo-

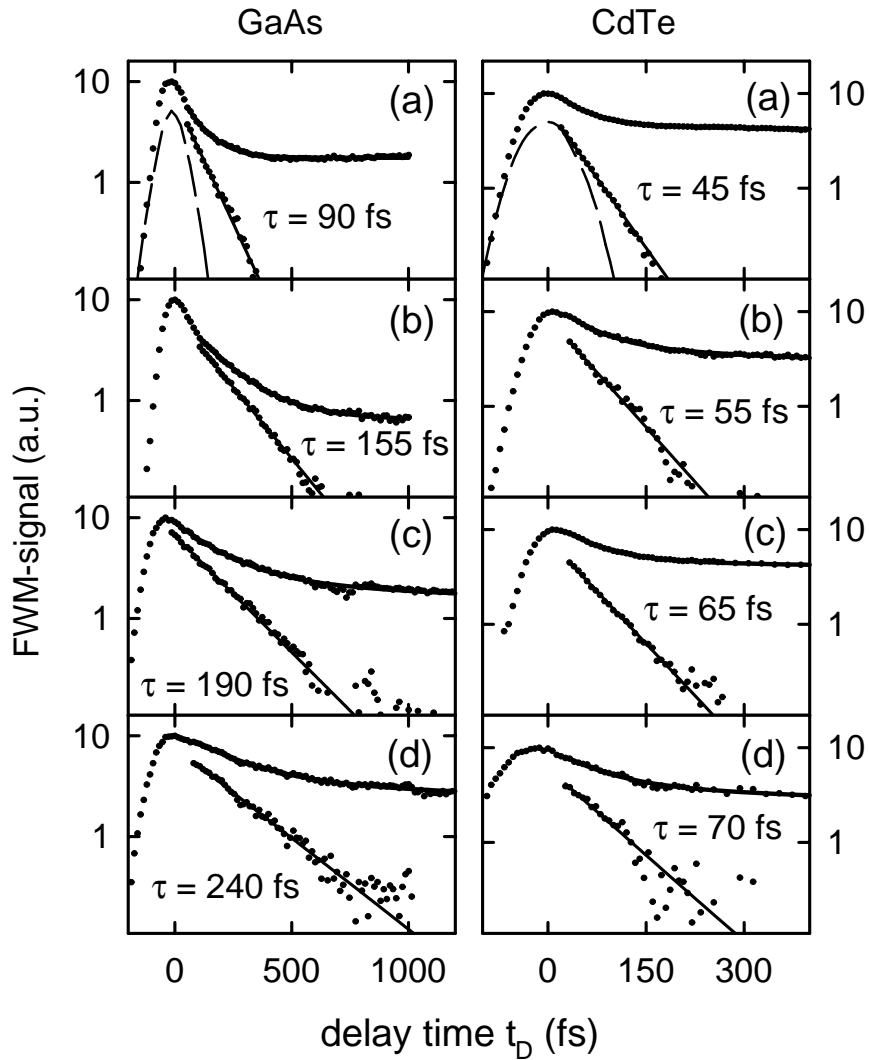


Abb. 7.7: Links: zeitaufgelöste VWM-Signale in GaAs bei 1.610 eV für verschiedene Anregungsdichten N . Die zentrale Photonenergie des Gittererzeugenden liegt bei 1.580 eV. $N = 1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ (a), $N = 5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ (b), $N = 8 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ (c), $N = 2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ (d). Nach Abzug eines langlebigen Untergrunds kann die Zeitkonstante τ des schnellen Zerfalls bestimmt werden. Gestrichelt: Kreuzkorrelation der Anrege- und Abtastimpulse. Rechts: VWM-Signale in CdTe bei der Anregungsenergie 1.650 eV in CdTe für unterschiedliche Elektron-Lochdichten: $N = 1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ (a), $N = 4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ (b), $N = 3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ (c), $N = 5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ (d). τ ist die kleinere Zeitkonstante der biexponentiellen Anpassung.

nentielle Abfall besteht aus einer schnellen Komponente und einem im vorigen Abschnitt erklärten, langsam veränderlichen Beitrag, der hier nicht interessiert. Nach [Men73] ist die Abbeugeeffizienz eines Gitters mit kleiner harmonischer

Modulation proportional zur Modulationstiefe der Absorption, weshalb die Abfallskonstante des VWM-Signals direkt die Ladungsträger-Relaxationsrate angibt. Ausgehend von 90 fs bei sehr hoher Dichte sättigt die Relaxationszeit in GaAs bei 240 ± 20 fs für Elektron-Loch-Dichten kleiner als $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, wenn Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung vernachlässigbar wird [Col93]. Die auch in hochempfindlicher differentieller Transmissionsspektroskopie [Lei96a] zu 240 fs bestimmte LO-Phonon-Emissionszeit von Elektronen ist deutlich genauer als bisher mit indirekten Methoden gewonnene Werte [Kas85, Lev85]. Die Ergebnisse für eine 370 nm dicke CdTe-Probe in Abbn. 7.7 und 7.8 sind mit Pumpimpulsen von 1.650 eV und einer Breite von 16 meV, die wiederum kleiner als die LO-Energie von 21 meV ist, erzielt worden. Wegen der stärkeren Polaronkopplung erfolgt die LO-Emission innerhalb von nur 70 ± 15 fs und dominiert die Relaxation schon bei Anregungsdichten kleiner als $3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ [Bet99]. In sehr guter Übereinstimmung mit dem Experiment berechnet man für polar-optische Streuung die LO-Emissionszeiten für Elektronen mit Überschußenergien von 65 meV (GaAs) und 45 meV (CdTe) zu 255 fs und 75 fs (siehe Abb. 5.5). Überraschenderweise genügt für Elektronen in CdTe Störungstheorie in erster Ordnung, obwohl der Entwicklungsparameter – die Polaronkopplungskonstante $\alpha = 0.33$ – nicht mehr klein gegen 1 ist und Prozesse höherer Ordnung an Gewicht zunehmen sollten.

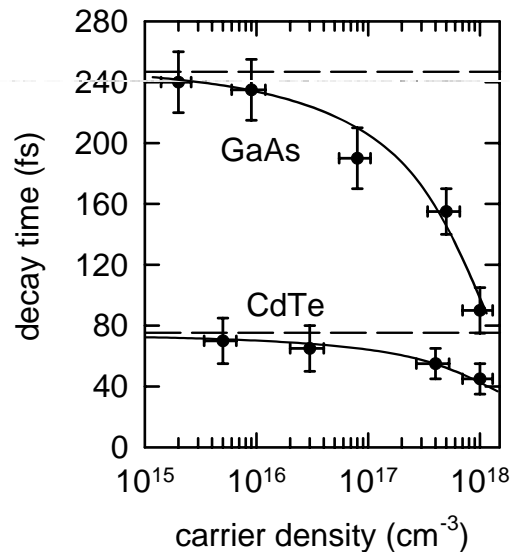


Abb. 7.8: Abfallskonstanten des VWM-Signals in GaAs und CdTe für verschiedene Anregungsdichten. Die theoretischen LO-Emissionsraten für polar-optische Streuung von Leitungsbandelektronen sind gestrichelt eingezeichnet. Durchgezogene Linien dienen der Augenführung.

Kapitel 8

Zusammenfassung

Im Mittelpunkt der vorliegenden Arbeit steht die Untersuchung der ultraschnellen Dynamik von hochenergetischen gebundenen und freien Ladungsträgern in den Halbleitern GaAs und CdTe. Besonderes Augenmerk gilt dabei der quantenmechanischen Phase im System und eventuellen kohärenten Kopplungen der angeregten Zustände mit Photonen oder Phononen. Die wichtigsten der mit modernster nichtlinearer Ultrakurzzeitspektroskopie gewonnenen experimentellen Ergebnisse werden im folgenden knapp zusammengestellt:

An Halbleiteroberflächen können anders als im Volumenmaterial, wo dieser Prozeß verboten ist, kohärent ans Lichtfeld gekoppelte Exzitonen erzeugt werden, deren Schwerpunktsimpuls den der eingestrahnten Photonen um mehr als das Einhundertfache übertrifft. Bisher ist der Nachweis solcher hochenergetischer gebundener Elektron-Loch-Paare in piezomodulierter Reflexionsspektroskopie nur in wenige Nanometer dünnen Schichten von Materialien mit großer exzitonischer Oszillatorstärke gelungen [Lef97]. Hier jedoch ist es erstmals möglich, Exzitonen mit kinetischen Energien von bis zu 300 meV in GaAs durch hochempfindliche Anrege-Abfrage-Experimente zu detektieren. Aus den differentiellen Transmissionsspektren werden die effektiven Massen von Schwer- und Leichtlohexzitonen in $\langle 100 \rangle$ -Richtung präzise zu 0.52 bzw. 0.19 freien Elektronmassen bestimmt. Die Dispersion des Leichtlohexzitons wird bis zu Energien hin erfaßt, bei denen durch das Band der abgespaltenen Löcher induzierte Nichtparabolizitäten sichtbar werden. Darüberhinaus liefern die stationären Spektren gerade im Bereich hoher Exzitonenergien ein wichtiges Entscheidungskriterium für die seit über 40 Jahren diskutierte Frage nach den „richtigen zusätzlichen Randbedingungen“. Gemeint ist damit die Übersetzung der mikroskopischen Elektrodynamik an Grenzflächen von Medien, in denen sich mehrere Moden bei gleicher Energie und Polarisation ausbreiten können,

in Gleichungen, die die makroskopischen elektrischen und magnetischen Felder zusätzlich zu den Maxwell'schen Stetigkeitsbedingungen erfüllen müssen. Für Wannierexzitonen legen die Messungen die Verwendung fast Pekarscher Randbedingungen nahe, die das Verschwinden der exzitonischen Polarisation an der Oberfläche fordern. Erstmals wird die grundsätzlich verschiedene polar-optische Wechselwirkung von Leicht- und Schwerlohexzitonen beobachtet: Während die LO-Phonon-Streuung für Schwerlohexzitonen wie für freie Ladungsträger der schnellste Relaxationskanal bleibt, reduziert die destruktive Interferenz von Elektron- und Lochbeiträgen die Streurrate für Leichtlohexzitonen in einem bestimmten Energiebereich drastisch. Ausschlaggebend für dieses Verhalten sind die von der Ladungsträgerspezies unabhängigen Kopplungsstärken an LO-Phononen und die annähernd gleichen effektiven Massen von Elektronen und leichten Löchern. Die Ultrakurzzeitspektroskopie gestattet es außerdem, die Propagation der hochenergetischen Exzitonen durch die 50 nm bis 500 nm dicken Proben direkt zeitlich mitzuverfolgen. Auf diesem Weg wird die Abhängigkeit der Exziton-Ladungsträger-Streurate von der Dichte eines injizierten Elektron-Loch-Plasmas ermittelt. In der 50 nm dünnen Probe, deren differentielle Transmissionsspektren besonders empfindlich auf Änderungen der effektiven Propagationslänge reagieren, kann man nach der Ladungsträgerinjektion die ultraschnelle Veränderung der Oberflächeneigenschaften in Form der Ausdehnung der exzitonfreien Randschicht beobachten. Sämtliche besprochenen Effekte werden von einem speziell entwickelten Modell sehr gut reproduziert.

Neben der den obigen Messungen zugrundeliegenden kohärenten Exziton-Photon-Wechselwirkung wird in den differentiellen Transmissionsspektren noch eine weitere kohärente exzitonische Kopplung offenbar, nämlich die an LO-Phononen. Durch die Konfigurationswechselwirkung von Kontinuums- und kohärenten Exziton-plus-LO-Phonon-Zuständen bildet sich ein schwach gebundenes Quasiteilchen, das in Materialien mit starker polar-optischer Wechselwirkung als spektral breite Absorptionsbande bekannt ist und hier zum ersten Mal als schmale Fanoresonanzartige Struktur im Absorptionsspektrum des schwächer polaren GaAs aufgelöst wird. Die Gegenwart freier Ladungsträger führt zur Verbreiterung der Exzitonlinie und zur Abschirmung der Exziton-Phonon-Wechselwirkung. Bei Plasmadichten über $5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ verschwindet die Exziton-LO-Phonon-Resonanz.

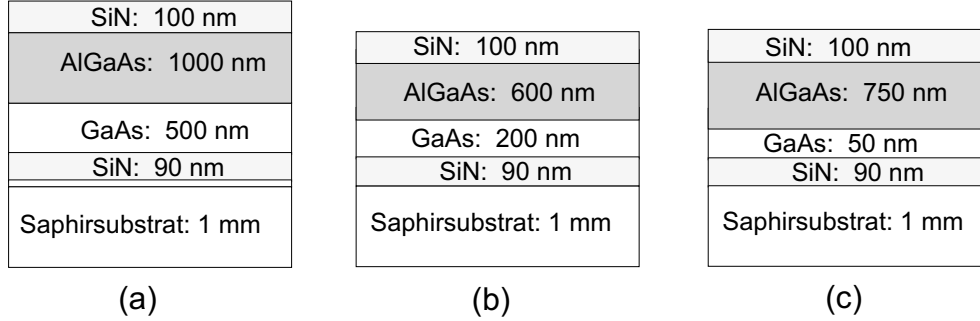
Auch im nichtentarteten Vierwellenmischen schlägt sich die durch den obigen Prozeß ins Kontinuum transferierte exzitonische Oszillatorstärke als leicht erhöhtes Signal nieder. Noch interessanter ist die Dynamik der Interbandpolarisation: Bei geringer Anregungsdichte ($\leq 10^{16} \text{ cm}^{-3}$) können im spektral aufgelösten Vierwellenmischsignal nahe der Bandkante zwei Bereiche unterschiedlich schneller Phasenrelaxation getrennt werden. Anhand der energetischen Position des

Wechsels der Dephasingzeiten und zusammen mit Simulationsrechnungen wird die LO-Phonon-Emission durch Leitungsbandelektronen als der Mechanismus identifiziert, der für den beschleunigten Zerfall der Polarisation höherenergetischer Übergänge verantwortlich ist. Steigert man die Anregungsdichte auf über 10^{17} cm^{-3} , so nimmt durch Streuung an den injizierten Ladungsträgern die homogene Linienbreite der Interbandübergänge zu, wodurch über einen bemerkenswert großen Spektralbereich Polarisationen erzeugt und beim Vierwellenmischen abgebeugt werden.

Mit einem speziellen dreistrahligen Vierwellenmischungsverfahren können schließlich ohne die Schrotrauschbegrenzung der differentiellen Transmissionspektroskopie auch inkohärente Aspekte, insbesondere die Populationsdynamik injizierter Nichtgleichgewichts-Ladungsträgerverteilungen, studiert werden. Die Zeiten für die LO-Phonon-Emission von Leitungsbandelektronen werden in GaAs zu $240 \pm 20 \text{ fs}$ und erstmals im stärker polaren CdTe zu $75 \pm 15 \text{ fs}$ bestimmt.

Anhang A

Die Schichtstruktur der untersuchten GaAs-Proben ist in der folgenden Abbildung dargestellt. Die hochreinen MBE-gewachsenen $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ - ($n_{\text{AlGaAs}} = 3.43$, $E_G = 1.9$ eV) und GaAs-Schichten sind beidseits mit SiN antireflexbeschichtet und



auf ein Saphirsubstrat ($n_{\text{Al}_2\text{O}_3} = 1.74$) aufgebracht, im Fall (a) mit einem tieftemperaturgeeigneten Kleber ($n = 1.56$) von ca. $1 \mu\text{m}$ Dicke und in (b) und (c) allein durch Adhäsion.

Anhang B

Die in Kap. 6.3.4 eingeführten Formfaktoren der Elektron- und Lochterme im Matrixelement für 1s-Exzitonen-Übergänge in gebundene und freie Zustände (mit Relativ-Impuls $\hbar \mathbf{k}$) der gleichen Spezies sind folgende Funktionen des ausgetauschten Wellenvektors \mathbf{q} :

$$S_{1s}^{1s}(q) = \frac{1}{(1 + (q a_1/2)^2)^2} \quad (\text{A.1})$$

$$S_{1s}^{2s}(q) = \frac{16 \sqrt{2}}{27} \left(\frac{1}{(1 + (2q a_1/3)^2)^2} - \frac{1 - (2q a_1)^2/27}{(1 + (2q a_1/3)^2)^3} \right) \quad (\text{A.2})$$

$$S_{1s}^{2p}(q) = \frac{i 8 \sqrt{2}}{27 a_1 q} \left(\frac{1}{(1 + (2q a_1/3)^2)^2} - \frac{1 - 3 (2q a_1/3)^2}{(1 + (2q a_1/3)^2)^3} \right) \quad (\text{A.3})$$

$$S_{1s}^{\text{cont}}(\mathbf{k}, \mathbf{q}) = 8 \sqrt{\frac{\pi a^3}{V}} \frac{1}{(1 + a^2 |\mathbf{k} - \mathbf{q}|^2)^2} \quad (\text{A.4})$$

Bei der Streuung zwischen 1s-Schwer- und 1s-Leichtloch-Exzitonzuständen werden die Formfaktoren zusätzlich vom ursprünglichen Schwerpunktswellenvektor \mathbf{K} abhängig:

$$S_{1s, \text{lh}}^{1s, \text{hh}} |_{\text{h(e)}}(\mathbf{q}, \mathbf{K}) = \frac{8 a^3}{\sqrt{a_{1, \text{hh}}^3 a_{1, \text{lh}}^3}} \frac{1}{(1 + a^2 |\mathbf{q} p_{\text{h(e)}, \text{hh}} + \mathbf{K} (p_{\text{e(h)}, \text{lh}} - p_{\text{e(h)}, \text{hh}})|^2)^2}$$

$$\frac{1}{a} = \frac{1}{a_{1, \text{hh}}} + \frac{1}{a_{1, \text{lh}}}$$

$$p_{\text{e}, j} = \frac{m_{\text{h}, j}}{m_{\text{h}, j} + m_{\text{e}}}, \quad p_{\text{h}, j} = \frac{m_{\text{e}}}{m_{\text{h}, j} + m_{\text{e}}}, \quad j = \text{hh}, \text{lh} \quad (\text{A.5})$$

Die obige Formel ist ohne Berücksichtigung spinabhängiger Überlappfaktoren berechnet worden. Im Fall gleicher Schwer- und Leichtlochmassen reduziert sich Formel A.5 auf den Intraband-Formfaktor A.1 für Elektron- oder Lochbeiträge.

Literaturverzeichnis

- [Ada85] S. Adachi, J. Appl. Phys. **58**, R1 (1985)
- [Ada94] S. Adachi, S. Takeyama, Y. Takagi, J. J. Dubowski, E. Deleporte, Superlattices and Microstructures **16**, 1 (1994)
- [Agg88] R. L. Aggarwal et al., IEEE J. Quant. Electron. **24**, 1003 (1988)
- [Akh81] N. N. Akhmediev, Sov. Phys. JETP **52**, 773 (1981)
- [All99] G. R. Allan, H. M. van Driel, Phys. Rev. B **59**, 15740 (1999)
- [And98] T. Ando, Y. Arakawa, K. Furuya, S. Komiyama, H. Nakashima, *Mesoscopic Physics and Electronics*, Springer-Verlag, Berlin (1998)
- [And90] A. D'Andrea, R. Del Sole, Phys. Rev. B **41**, 1413 (1990)
- [Arl68] G. Arlt, P. Quadflieg, Phys. Stat. Sol. **25**, 323 (1968)
- [Bal71] A. Baldareschi, N. C. Lipari, Phys. Rev. B **3**, 439 (1971)
- [Bal88] P. L. Baldeck, R. R. Alfano, G. P. Agrawal, Appl. Phys. Lett. **52**, 1939 (1988)
- [Bal69] G. Baldini et al., Phys. Rev. Lett. **23**, 846 (1969)
- [Bals81] I. Balslev, Phys. Rev. B **23**, 3977 (1981)
- [Ban95] L. Banyai, D. B. Tran Thoai, E. Reitsamer, H. Haug, D. Steinbach, M. U. Wehner, M. Wegener, T. Marschner, W. Stolz, Phys. Rev. Lett. **75**, 2188 (1995)
- [Bas93] F. Bassani, Y. Chen, G. Czajkowski, A. Tredicucci, Phys. Stat. Sol. (b) **180**, 115 (1993)

- [Bec88] P. C. Becker, H. L. Fragnito, C. H. Brito Cruz, R. L. Fork, J. E. Cunningham, J. E. Henry, C. V. Shank, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 1647 (1988)
- [Bec87] W. Becker, B. Gerlach, T. Hornung, R. G. Ulbrich, in *Proceedings of the 18th International Conference on the Physics of Semiconductors, Stockholm, Sweden, 1986*, O. Engström (ed.), World Scientific, Singapore (1987)
- [Bet99] M. Betz, G. Göger, A. Leitenstorfer, K. Ortner, C. R. Becker, G. Böhm, A. Laubereau, *Phys. Rev. B* **60**, 11265 (1999)
- [Bet00] M. Betz, G. Göger, A. Leitenstorfer, A. Laubereau, P. Gartner, L. Banyai, H. Haug, K. Ortner, C. R. Becker, submitted to *Phys. Rev. Lett.*
- [Bir75] J. L. Birman, J. J. Sein, *Phys. Rev. B* **6**, 2482 (1975)
- [Bir79] J. L. Birman, „Electrodynamic and non-local optical effects in *Excitons*, K. Cho (ed.), Springer-Verlag, Berlin (1979)
- [Bis97] S. Bischoff, A. Knorr, S. W. Koch, *Phys. Rev. B* **55**, 7715 (1997)
- [Bla82] J. S. Blakemore, *J. Appl. Phys.* **53**, R123 (1982)
- [Bow69] R. Bowers, G. Mahan, *Phys. Rev.* **185**, 1073 (1969)
- [Bru90] T. Brudevoll, T. A. Fieldly, J. Baek, M. S. Shur, *J. Appl. Phys.* **67**, 7373 (1990)
- [Che76] J. R. Chelikowsky, M. L. Cohen, *Phys. Rev. B* **14**, 556 (1976)
- [Che91] Y. Chen, F. Bassani, J. Massies, C. Deparis, G. Neu, *Europhys. Lett.* **14**, 483 (1991)
- [Cit97] D. S. Citrin, T. B. Norris, *IEEE J. Quant. Electron.* **33**, 404 (1997)
- [Col93] J. Collet, *Phys. Rev. B* **47**, 10279 (1993)
- [Com91] M. Combescot, O. Betbeder-Matibet, *Solid State Commun.* **80**, 1011 (1991)
- [Con68] E. M. Conwell, M. O. Vassell, *Phys. Rev.* **166**, 797 (1968)
- [Cun94] S. T. Cundiff, A. Knorr, J. Feldmann, S. W. Koch, E. O. Göbel, H. Nickel, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1178 (1994)

- [Dil68] J. Dillinger, C. Konak, V. Prosser, J. Sak, M. Zvara, Phys. Stat. Sol. (b) **29**, 707 (1968)
- [Elk81] S. G. Elkomoss, G. Munschy, J. Phys. Chem. Solids **42**, 1 (1981)
- [Ell57] R. J. Elliott, Phys. Rev. **108**, 1384 (1957)
- [ElS94a] K. El Sayed, S. Schuster, H. Haug, F. Herzel, K. Henneberger, Phys. Rev. B **49**, 7337 (1994)
- [ElS94b] K. El Sayed, L. Banyai, H. Haug, Phys. Rev. B **50**, 1541 (1994)
- [ElS97] K. El Sayed, D. Birkedal, V. G. Lyssenko, J. M. Hvam, Phys. Rev. B **55**, 2456 (1997)
- [ElS98] J. A. Kenrow, K. El Sayed, C. J. Stanton, Phys. Rev. B **58**, 13399 (1998) and Proceedings of *Nonlinear Optics '98*
- [Fan61] U. Fano, Phys. Rev. **124**, 1866 (1961)
- [Fis77] G. Fishman, Solid State Commun. **27**, 1097 (1977)
- [Flu87] B. Fluegel, N. Peyghambarian, G. Olbright, M. Lindberg, S. W. Koch, M. Joffre, D. Hulin, A. Migus, A. Antonetti, Phys. Rev. Lett. **59**, 2588 (1987)
- [Frö37] H. Fröhlich, Proc. Roy. Soc. A **160**, 230 (1937)
- [Frö91] D. Fröhlich, A. Kulik, B. Uebbing, A. Mysyrowicz, V. Langer, H. Stolz, W. van der Osten, Phys. Rev. Lett. **67**, 2343 (1991)
- [Für96] C. Fürst, A. Leitenstorfer, A. Laubereau, IEEE J. of Select. Top. in Quantum Electron. **2**, 473 (1996)
- [Für97a] C. Fürst, A. Leitenstorfer, A. Laubereau, R. Zimmermann, Phys. Rev. Lett. **78**, 3733 (1997)
- [Für97b] C. Fürst, A. Leitenstorfer, A. Nutsch, G. Tränkle, A. Zrenner, Phys. Stat. Sol. (b) **204**, 20 (1997)
- [Gin58] V. L. Ginzburg, JETP **34**, 1593 (1958)
- [Glu94] S. Glutsch, U. Siegner, M.-A. Mycek, D. S. Chemla, Phys. Rev. B **50**, 17009 (1994)
- [Gög00] G. Göger, M. Betz, A. Leitenstorfer, M. Bichler, W. Wegscheider and G. Abstreiter, Phys. Rev. Lett. **84**, 5812 (2000)

- [Hal82] P. Halevi, G. Hernandez-Cocoletzki, Phys. Rev. Lett. **48**, 1500 (1982)
- [Hal84] P. Halevi, R. Fuchs, J. Phys. C: Solid State Phys. **17**, 3869 (1984)
- [Hau88] H. Haug, *Optical Nonlinearities and Instabilities in Semiconductors*, Academic Press, San Diego (1988)
- [Hau92] H. Haug, C. Ell, Phys. Rev. B **46**, 2126 (1992)
- [Hau94] H. Haug, S. W. Koch, *Quantum Theory of the Optical and Electronical Properties of Semiconductors*, World Scientific, Singapore (1994), 3. Auflage
- [Hau96] H. Haug, A. P. Jauho, *Quantum Kinetics in Transport and Optics of Semiconductors*, Springer-Verlag, Berlin (1996)
- [Heb95] A. P. Heberle, J. J. Baumberg, K. Köhler, Phys. Rev. Lett. **75**, 2598 (1995)
- [Hen93] F. Henneberger, S. Schmitt-Rink, E. O. Göbel, *Optics of Semiconductor Nanostructures*, Akademie Verlag, Berlin (1993)
- [Hen98] K. Henneberger, Phys. Rev. Lett. **80**, 2889 (1998)
- [Hie75] P. Hiesinger, S. Suga, F. Willmann, W. Dreybrodt, Phys. Stat. Sol. (b) **67**, 641 (1975)
- [Hop58] J. J. Hopfield, Phys. Rev. **112**, 1555 (1958)
- [Hüg99] W. A. Hügel, M. F. Heinrich, M. Wegener, Q. T. Vu, L. Banyai, H. Haug, Phys. Rev. Lett. **83**, 3313 (1999)
- [Jaz88] S. Jaziri, R. Bennaceur in *Excitons in Confined Systems*, R. Del Sole, A. D'Andrea, A. Lapicciarella (eds.), Springer-Verlag, Berlin (1988)
- [Jof88] M. Joffre, D. Hulin, A. Migus, A. Antonetti, C. Benoit a la Guillaume, N. Peyghambarian, M. Lindberg, S. W. Koch, Opt. Lett. **13**, 276 (1988)
- [Jos97] M. Joschko, M. Woerner, T. Elsässer, E. Binder, T. Kuhn, R. Hey, H. Kostial, K. Ploog, Phys. Rev. Lett. **78**, 737 (1997)
- [Kad62] L. P. Kadanoff, G. Baym, *Quantum Statistical Mechanics*, Benjamin, New York (1962)

- [Kai88] W. Kaiser (ed.), *Ultrashort Light Pulses and Applications*, Springer Verlag, Heidelberg (1988)
- [Kan75] E.O. Kane, Phys. Rev. B **11**, 3850 (1975)
- [Kan96] K. J. Kang et al., Appl. Opt. **35**, 417 (1996)
- [Kas85] J. A. Kash, J. C. Tsang, J. M. Hvam, Phys. Rev. Lett. **54**, 2151 (1985)
- [Kat94] T. Katsuyama, K. Ogawa, J. Appl. Phys. **75**, 7607 (1994)
- [Kim98] D. S. Kim, J. Y. Sohn, J. S. Yahng, Y. H. Ahn, K. J. Yee, D. S. Yee, Y. D. Jho, S. C. Hohng, D. H. Kim, W. S. Kim, J. C. Woo, T. Meier, S. W. Koch, D. H. Woo, E. K. Kim, S. H. Kim, C. S. Kim, Phys. Rev. Lett. **80**, 4803 (1998)
- [Kis75] V. A. Kiselev, B. S. Razbirin, I. N. Uraltsev, Phys. Stat. Sol. (b) **72**, 171 (1975)
- [Kis77] V. A. Kiselev, I. V. Makarenko, B. S. Razbirin, I. N. Uraltsev, Sov. Phys. Solid State **19**, 1374 (1977)
- [Kis85] V. A. Kiselev, I. N. Uraltsev, I. V. Makarenko, Solid State Commun. **53**, 591 (1985)
- [Koc92] S. W. Koch, A. Knorr, R. Binder, M. Lindberg, Phys. Stat. Sol. (b) **173**, 177 (1992)
- [Kuh92] T. Kuhn, F. Rossi, Phys. Rev. Lett. **69**, 977 (1992)
- [Lee86] J. Lee, E. S. Koteles, M. O. Vassell, Phys. Rev. B **33**, 5512 (1986)
- [Lef97] P. Lefebvre, V. Gallo, N. Magnea, T. Taliercio, J. Allegre, H. Mathieu, Phys. Rev. B **56**, R10040 (1997)
- [Lei95] A. Leitenstorfer, C. Fürst, A. Laubereau, Opt. Lett. **20**, 916 (1995)
- [Lei96a] A. Leitenstorfer, C. Fürst, A. Laubereau, W. Kaiser, G. Tränkle, G. Weimann, Phys. Rev. Lett. **76**, 1545 (1996)
- [Lei96b] A. Leitenstorfer, Dissertation, Technische Universität München (1996)
- [Leo90] K. Leo, T. C. Damen, J. Shah, E. O. Göbel, K. Köhler, Appl. Phys. Lett. **57**, 19 (1990)

- [Lev85] A. F. J. Levi, J. R. Hayes, P. M. Platzmann, W. Wiegmann, Phys. Rev. Lett. **55**, 2071 (1985)
- [Lin54] J. Lindhard, Kgl. Danske Videnskab. Mat. Fys. Medd. **28**, 8 (1954)
- [Loh93] A. Lohner, K. Rick, P. Leisching, A. Leitenstorfer, T. Elsaesser, T. Kuhn, F. Rossi, W. Stolz, Phys. Rev. Lett. **71**, 77 (1993)
- [Mad96] O. Madelung, *Semiconductors - Basic Data*, Springer-Verlag, Berlin (1996)
- [Mak80] I. V. Makarenko, I. N. Uraltsev, V. A. Kiselev, Phys. Stat. Sol. (b) **98**, 773 (1980)
- [Mar98] M. V. Marquezini, P. Kner, S. Bar-Ad, J. Tignon, D. S. Chemla, Phys. Rev. B **57**, 3745 (1998)
- [Mat84] M. Matsushita J. Wicksted, H. Z. Cummins, Phys. Rev. B **29**, 3362 (1984)
- [Men73] E. Menzel, W. Mirande, I. Weingärtner, *Fourier-Optik und Holographie*, Kap. 2, Springer-Verlag, Wien (1973)
- [Mon80] R. Monreal, F. Garcia-Moliner, F. Flores, Physica Scripta **22**, 155 (1980)
- [Mou86] P. F. Moulton, J. Opt. Soc. Am. B **3**, 125 (1986)
- [Nis97] M. Nisoli, S. De Silvestri, O. Svelto, R. Szipöcs, K. Ferencz, Ch. Spielmann, S. Sartania, F. Krausz, Opt. Lett. **22**, 522 (1997)
- [Mul00] E. Muljarov, R. Zimmermann, to be published
- [Nüs97] S. Nüsse, P. Haring Bolivar, H. Kurz, F. Levy, A. Chevy, O. Lang, Phys. Rev. B **55**, 4620 (1997)
- [Oes97] T. Oestreich, Phys. Stat. Sol. (a) **164**, 313 (1997)
- [Pek58a] S. I. Pekar, Sov. Phys. JETP **34**, 1176 (1958)
- [Pek58b] S. I. Pekar, Sov. Phys. JETP **6**, 785 (1958)
- [Pel97] N. T. Pelekanos, H. Haas, N. Magnea, V. I. Belitsky, A. Cantarero, Phys. Rev. B **56**, 10056 (1997)
- [Plö81] W. Plötz, P. Vogl, Phys. Rev. B **24**, 2025 (1981)

- [Rap93a] T. Rappen, G. Mohs, M. Wegener, Phys. Rev. B **47**, 9658 (1993)
- [Rap93b] T. Rappen, U. Peter, M. Wegener, W. Schäfer, Phys. Rev. B **48**, 4879 (1993)
- [Rap94] T. Rappen, U. Peter, M. Wegener, W. Schäfer, Phys. Rev. B **49**, 10774 (1994)
- [Rud90] S. Rudin, T. L. Reinecke, B. Segall, Phys. Rev. B **42**, 11218 (1990)
- [Ruf90] T. Ruf, M. Cardona, Phys. Rev. B **41**, 10747 (1990)
- [Rid88] B. K. Ridley, *Quantum Processes in Semiconductors*, Clarendon Press, Oxford (1988)
- [Row74] J. M. Rowe, R. M. Nicklow, D. L. Price, K. Zanio, Phys. Rev. B **10**, 671 (1974)
- [Sak70] J. Sak, Phys. Rev. Lett. **25**, 1654 (1970)
- [Schä93] W. Schäfer, F. Jahnke, S. Schmitt-Rink, Phys. Rev. B **47**, 1217 (1993)
- [Schä97] A. C. Schaefer, D. G. Steel, Phys. Rev. Lett. **79**, 4870 (1997)
- [Schm85] S. Schmitt-Rink, D. S. Chemla, D. A. B. Miller, Phys. Rev. B **32**, 6601 (1985)
- [Scho95] R. Scholz, J. Appl. Phys. **77**, 3219 (1995)
- [Schu86] L. Schultheis, J. Kuhl, A. Honold, C. W. Tu, Phys. Rev. Lett. **57**, 1635 und 1797 (1986)
- [Schü99] A. Schülzgen, R. Binder, M. E. Donovan, M. Lindberg, K. Wundke, H. M. Gibbs, G. Khitrova, N. Peyghambarian, Phys. Rev. Lett. **82**, 2346 (1999)
- [Sel96] P. E. Selbman, M. Gulia, F. Rossi, E. Molinari, P. Lugli, Phys. Rev. B **54**, 4660 (1996)
- [Sha96] J. Shah, *Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures*, Springer-Verlag, Berlin (1996)
- [Sko76] M. S. Skolnick, A. K. Jain, R. A. Stradling, J. Leotin, J. C. Ousett, S. Askenazy, J. Phys. C **9**, 2809 (1976)
- [Sno91] D. W. Snoke, D. Braun, M. Cardona, Phys. Rev. B **44**, 2991 (1991)

- [Sol88] R. Del Sole, A. D'Andrea, A. Lapicciarella, *Excitons in Confined Systems*, Springer-Verlag, Berlin (1988)
- [Spe91] D. E. Spence, P. N. Kean, W. Sibbett, *Opt. Lett.* **16**, 42 (1991)
- [Spi94] C. Spielmann, P. F. Curley, T. Brabec, F. Krausz, *IEEE Quantum Electron.* **30**, 1058 (1994)
- [Sta81] A. Stahl, *Phys. Stat. Sol. (b)* **106**, 575 (1981)
- [Tig00] J. Tignon, T. Hasche, D. S. Chemla, H. C. Schneider, F. Jahnke, S. W. Koch, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3382 (2000)
- [Tin75] C. S. Ting, M. J. Franckel, J. L. Birman, *Solid State Commun.* **17**, 1285 (1975)
- [Toy59] Y. Toyozawa, *Prog. Theor. Phys.* **12**, 111 (1959)
- [Toy68] Y. Toyozawa, J. Hermanson, *Phys. Rev. Lett.* **21**, 1637 (1968)
- [Tra93] C. Trallero-Giner, M. Cardona, F. Iikawa, *Phys. Rev. B* **48**, 5187 (1993)
- [Tre93] A. Tredicucci, Y. Chen, F. Bassani, J. Massies, C. Deparis, G. Neu, *Phys. Rev. B* **47**, 10348 (1993)
- [Tuf88] H. Tuffigo, R. T. Cox, N. Magnea, Y. Merle d'Aubigne, A. Millon, *Phys. Rev. B* **37**, 4310 (1988)
- [Uet86] M. Ueta, H. Kanzaki, K. Kobayashi, Y. Toyozawa, E. Hanamura, *Excitonic Processes in Semiconductors*, Springer-Verlag, Berlin (1986)
- [Ulbr88] R. G. Ulbrich, in *Optical Nonlinearities and Instabilities in Semiconductors*, H. Haug (ed.), Academic Press, San Diego (1988)
- [Vu97] Q. T. Vu, L. Banyai, P. I. Tamborenea, H. Haug, *Europhys. Lett.* **40**, 323 (1997)
- [Vu00] Q. T. Vu, H. Haug, W. A. Hügel, S. Chatterjee, M. Wegener, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3508 (2000)
- [Wal68] W. C. Walker, D. M. Roessler, E. Loh, *Phys. Rev. Lett.* **20**, 847 (1968)
- [Weg90] M. Wegener, D. S. Chemla, S. Schmitt-Rink, W. Schäfer, *Phys. Rev. A* **42**, 5675 (1990)

- [Weh98] M. U. Wehner, M. H. Ulm, D. S. Chemla, M. Wegener, Phys. Rev. Lett. **80**, 1992 (1998)
- [Wei85] J. S. Weiner, D. S. Chemla, D. A. B. Miller, T. H. Wood, D. Sivco, A. Y. Cho, Appl. Phys. Lett. **46**, 619 (1985)
- [Wil71] J. D. Wiley, Phys. Rev. B **4**, 2485 (1971)
- [Wog00] U. Woggon, F. Gindele, W. Langbein, J. M. Hvam, Phys. Rev. B **61**, 1935 (2000)
- [Yaj75] T. Yajima, Opt. Comm. **14**, 378 (1975)
- [Yam75] K.Yamanaka et al., Appl. Phys. Lett. **48**, 840 (1986)
- [Zim88] R. Zimmermann, Phys. Stat. Sol. (b) **146**, 371 (1988)
- [Zim97] R. Zimmermann, C. Trallero-Giner, Phys. Rev. B **56**, 9488 (1997)

Danksagung

Danken möchte ich

Herrn **Prof. Dr. Dr. h.c. Alfred Laubereau** für die Möglichkeit, an seinem hervorragend ausgestatteten Institut dieses interessante und herausfordernde Thema zu bearbeiten. Meine Forschungsaktivitäten durfte ich dabei weitgehend eigenständig gestalten.

Herrn **Dr. habil. Alfred Leitenstorfer** für die kompetente und motivierende Betreuung und die nette Zusammenarbeit. Er hat es prima verstanden, experimentelle Kniffe weiterzugeben, tiefgründiges halbleiterphysikalisches Wissen zu vermitteln und Erfolge mit Schmankerln aus der griechischen Küche (und dem griechischen Weinkeller!) zu feiern.

Herrn **Prof. Dr. Dr. h.c. mult. Wolfgang Kaiser** für das aufmerksame Korrekturlesen von Manuskripten, viele pointierte Anmerkungen und hilfreiche Tips.

Herrn **Dipl. Phys. Markus Betz** für die in unsere gemeinsamen Projekte investierte Mühe, seine zielstrebige und begeisterte Grundeinstellung sowie die stets angenehme Atmosphäre bei der Zusammenarbeit.

meinen ehemaligen Kollegen Herrn **Dr. Cornelius Fürst**, **Dr. Michael Assel** und **Dr. Thomas Roth** für das freundschaftliche Büroklima und (bis auf erfolgreich verdrängte Abende) die großzügige finanzielle Unterstützung beim Schafkopfen.

dem Lehrstuhl von Herrn **Prof. Dr. Gerhard Abstreiter**, insbesondere Herrn **Max Bichler**, sowie Herrn **Dr. Charly Becker** für die zuvorkommende Versorgung mit Halbleiterproben höchster Qualität, ohne die viele Experimente nicht möglich gewesen wären.

den Herren **Wolfgang Dürichen**, **Lukas Loidl**, **Max Wittmann** und **Hans-Jürgen Schneider** aus der mechanischen und elektronischen Werkstatt für die trotz abweichenden fußballerischen Bekenntnisses sorgfältige Erfüllung meiner Wünsche. Oder wie B. Vogts gesagt hätte: „Kompliment an meine Mannschaft: Sie haben Unmenschliches geleistet“.

allen weiteren Mitarbeitern des Instituts E11 für das angenehme Arbeitsklima, die Hilfsbereitschaft und die kollegiale Zusammenarbeit.

meiner Frau **Marianne** für die fortwährende liebevolle Unterstützung und den seelischen Rückhalt.