Justus-Liebig-Universität Gießen
I. Physikalisches Institut

Kohärente Dynamik und Diffusionsprozesse von Charge-Transfer-Exzitonen

Dissertation

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

dem
Fachbereich 07
Mathematik und Informatik, Physik,
Geographie

vorgelegt von

Melanie Fey

aus Marburg

Gießen, Oktober 2021

Erstgutachter: Prof. Dr. Sangam Chatterjee
Zweitgutachter: Prof. Dr. Wolfram Heimbrodt

Selbständigkeitserklärung

Ich erkläre:

Ich habe die vorgelegte Dissertation selbstständig und ohne unerlaubte fremde Hilfe und nur mit den Hilfen angefertigt, die ich in der Dissertation angegeben habe. Alle Textstellen, die wörtlich oder sinngemäß aus veröffentlichten Schriften entnommen sind, und alle Angaben, die auf mündlichen Auskünften beruhen, sind als solche kenntlich gemacht. Ich stimme einer eventuellen Überprüfung meiner Dissertation durch eine Antiplagiat-Software zu. Bei den von mir durchgeführten und in der Dissertation erwähnten Untersuchungen habe ich die Grundsätze guter wissenschaftlicher Praxis, wie sie in der „Satzung der Justus-Liebig-Universität Gießen zur Sicherung guter wissenschaftlicher Praxis“ niedergelegt sind, eingehalten.

Gießen,

Ort, Datum

Melanie Fey

Abstract

In view of the advancing miniaturization of semiconductor-based devices and the ambition to further increase power efficiency and integration density on integrated circuits, the development of novel devices is the subject of ongoing research. Promising candidates are exciton-based optoelectronic devices, which may be used as integrable optoelectronic devices in the field of optical information processing. Thus it is necessary to investigate the spectral and dynamic properties of excitons in semiconductor heterostructures. For this reason, the present thesis is concerned with the study of coherent dynamics of various exciton polarizations by four-wave mixing experiments at liquid helium temperatures. Furthermore, the diffusion of optically excited excitons in semiconductor heterostructures is explored. As a result of miniaturization, the physical effects at internal interfaces are becoming increasingly important. For this purpose the main focus of this thesis is on so-called charge-transfer excitons (CTX) in a type-II like heterostructure. In this structure, the electrons and holes are localized in adjacent quantum films only a few hundred femtoseconds after optical excitation. The mutual Coulomb attraction allows the spatially separated electrons and holes to form charge-transfer excitons across the internal interface. The results show that internal interfaces have a great influence on the dephasing of excitonic polarizations. It has become apparent that the coherence of the CTX polarization is lost about four times faster than the coherence of a regular exciton polarization within a type-I heterostructure. Since the wave function of the CTX is extended across internal interfaces, the faster decay is attributed to increased scattering processes occurring at the internal interfaces. In addition, scattering processes between CTX polarizations and charge-transfer excitons or a spatially separated electron-hole-plasma are investigated. It is found that the scattering between a CTX polarization and incoherent CTX is about twice as strong as the interaction between a regular exciton polarization and incoherent excitons. Moreover, the four-wave mixing experiments show quantum beatings arising from the coherent excitation of excitonic and biexcitonic polarizations. Thus, a biexciton binding energy of $E_B \sim 1{,}85\,\mathrm{meV}$ could be determined.

In addition to the coherent dynamics of excitonic polarizations, this thesis focuses on the carrier propagation of optically induced carriers in semiconductor heterostructures. The results show that the expansion of spatially separated carriers is significantly slower than the carrier propagation in a type-I structure. Besides a larger extent of impurities and compositional fluctuations in the barrier layers, layer thickness fluctuations of the quantum films contribute significantly to the limitation of carrier diffusion. Layer thickness fluctuations lead to microscopic interfacial roughness, which limits the carrier mobility and thus leads to a reduction of the diffusion constants in the type-II like structure. In this structure, the carriers predominantly stay close to the internal interface due to the spatially indirect band structure. Since the carrier transport is parallel to the interface, the expansion of the spatially separated carriers is more affected by the interface morphology. Thus, the results obtained here show that the morphology of the interface has a great impact on the light-induced transport properties of the carriers in semiconductor heterostructures.

Inhaltsverzeichnis

Abstract **VII**

Abbildungsverzeichnis **XI**

Abkürzungen und Symbole **XIII**

1. Einleitung **1**

2. Grundlagen der Halbleiterphysik **5**
2.1. Elektronische Eigenschaften von Halbleitern . . . 5
2.1.1. Bandstruktur . . . 5
2.1.2. Halbleiterquantenfilme . . . 7
2.2. Licht-Materie-Wechselwirkung . . . 9
2.2.1. Ladungsträgerdynamik . . . 9
2.2.2. Halbleiter-Bloch-Gleichungen . . . 12
2.2.3. Coulomb-Wechselwirkung: Exzitonkonzept . . . 13
2.2.4. Lineare Absorption . . . 15
2.2.5. Linienverbreiterung optischer Übergänge . . . 16
2.3. Vier-Wellen-Mischen . . . 20
2.3.1. Dephasierung . . . 20
2.3.2. Methode des Vier-Wellen-Mischens . . . 24
2.4. Räumliche Ausbreitung angeregter Ladungsträger . . . 27

3. Experimentelle Methoden **33**
3.1. Vier-Wellen-Mischen . . . 33
3.2. Optische Anrege-Abfrage-Spektroskopie . . . 38

4. Charakterisierung der Halbleiterheterostrukturen **41**
4.1. Struktureller Aufbau . . . 41
4.2. Lineare Absorptionsmessungen . . . 43

5. Dephasierung in Quantenfilmen **45**
5.1. Vier-Wellen-Mischen ohne Vorpuls . . . 45
5.1.1. Experimentelle Durchführung . . . 46
5.1.2. Kohärente Polarisation in der Typ-I-Heterostruktur . . . 47
5.1.3. Kohärente Polarisation in der Typ-II-Heterostruktur . . . 54
5.2. Vier-Wellen-Mischen mit Vorpuls . . . 70
5.2.1. Experimentelle Durchführung . . . 70
5.2.2. Streuprozesse in der Typ-I-Heterostruktur . . . 71
5.2.3. Streuprozesse in der Typ-II-Heterostruktur . . . 76
5.2.4. Streuparameter . . . 77

6. Zweidimensionale Ladungsträgerdiffusion in Quantenfilmen 85
6.1. Experimentelle Durchführung 87
6.2. Vier-Wellen-Mischen mit drei Pulsen 88
6.2.1. Diffusionsmessungen an der Typ-I-Heterostruktur 88
6.2.2. Diffusionsmessungen an der Typ-II-Heterostruktur 92
6.3. Diffusion angeregter Ladungsträger in Quantenfilmen 97
6.3.1. Exzitondiffusion 97
6.3.2. Diffusion freier Elektronen und Löcher 101
6.3.3. Transporteigenschaften freier und gebundener Elektron-Loch-Paare . . . 105
6.3.4. Einfluss interner Grenzflächen 108

7. Zusammenfassung 111

A. Berechnung der Ladungsträgerdichte N 117

B. Probendokumentation 119

Literaturverzeichnis 120

Abbildungsverzeichnis

2.1. Schematischer Verlauf der Bandstruktur von Galliumarsenid 6
2.2. Schematische Bandstrukturen der Halbleiterheterostrukturen 9
2.3. Relaxation eines Ladungsträgersystems mit Dephasierung, Thermalisierung und Kühlung 11
2.4. Schematische Darstellung der parabolischen Dispersionsrelation von Exzitonen . 15
2.5. Schematische Illustration der linearen Absorption eines Halbleiterquantenfilms . 17
2.6. Linienprofile einer Gauß-, Lorentz- und Voigt-Funktion 18
2.7. Schematische Darstellung der Verteilung der Oszillatorfrequenzen in einem inhomogenen System 19
2.8. Schematische Darstellung des Verlusts der mikroskopischen Polarisation 22
2.9. Schematische Illustration eines Vier-Wellen-Misch-Experiments in Selbstbeugungsgeometrie 26
2.10. Schematische Darstellung der Ladungsträgerdiffusion innerhalb des Populationsgitters 28

3.1. Schematische Illustration des Vier-Wellen-Misch-Aufbaus 34
3.2. Zeitliche Abfolge der Laserpulse in den VWM-Experimenten 37
3.3. Schematische Darstellung des optischen Anrege-Abfrage-Messverfahrens 39

4.1. Schematische Bandstrukturen und struktureller Aufbau der Heterostrukturen . 42
4.2. Lineare Absorption der Heterostrukturen 43

5.1. VWM-Transiente mit Quantenschwebung 47
5.2. Anregungsbedingung für die VWM-Experimente an der Typ-I-Heterostruktur ohne Vorpuls 48
5.3. VWM-Transiente für unterschiedliche Anregungsdichten (Typ-I) 49
5.4. Homogene Linienbreite in Abhängigkeit der Anregungsdichte (Typ-I) 50
5.5. Lineare Absorption der Typ-I-Heterostruktur mit Voigt-Fit 52
5.6. Anregungsbedingungen für die VWM-Experimente an der Typ-II-Heterostruktur ohne Vorpuls 55
5.7. VWM-Transiente bei resonanter Anregung einer CT-Exzitonpolarisation (Typ-II) 55
5.8. Homogene Linienbreite in Abhängigkeit der Anregungsdichte (Typ-II) 56
5.9. VWM-Transiente bei resonanter Anregung regulärer Exzitonpolarisationen (Typ-II) 58
5.10. Simulation der VWM-Transienten bei resonanter Anregung regulärer Exzitonpolarisationen (Typ-II) 59
5.11. Lineare Absorption der Typ-II-Heterostruktur mit Voigt-Fit 61
5.12. Prinzip der Quantenschwebung in einem Drei-Niveau-System 63
5.13. VWM-Signale mit Quantenschwebung für unterschiedliche Anregungsdichten . 64
5.14. Schwebungsfrequenz der Quantenschwebung und Energiedifferenz der beteiligten Zustände 65

5.15. Anregungsbedingungen für polarisationsabhängige VWM-Experimente an der Typ-I-Heterostruktur . . . 67
5.16. VWM-Transienten der polarisationsabhängigen VWM-Experimente . . . 67
5.17. Beschreibung der biexzitonischen Auswahlregeln in einem Fünf-Niveau-System . 68
5.18. Anregungsbedingungen für die VWM-Experimente an der Typ-I-Heterostruktur mit Vorpuls . . . 71
5.19. VWM-Transiente bei nicht-resonanter Anregung der Typ-I-Heterostruktur mit Vorpuls . . . 73
5.20. VWM-Transiente bei resonanter Anregung der Typ-I-Heterostruktur mit Vorpuls 73
5.21. Homogene Linienbreite in Abhängigkeit der Anregungsdichte mit und ohne Vorpuls (Typ-I) . . . 75
5.22. Anregungsbedingungen für die VWM-Experimente an der Typ-II-Heterostruktur mit Vorpuls . . . 76
5.23. VWM-Transiente bei nicht-resonanter Anregung der Typ-II-Heterostruktur mit Vorpuls . . . 78
5.24. VWM-Transiente bei resonanter Anregung der Typ-II-Heterostruktur mit Vorpuls 78
5.25. Streuparameter . . . 80

6.1. Bestimmung der Diffusionskonstanten durch J. R. Salcedo . . . 86
6.2. Anregungsbedingungen für die Diffusionsexperimente an der Typ-I-Heterostruktur 88
6.3. Schematische Darstellung der Ladungsträgerdiffusion im Quantenfilm . . . 89
6.4. VWM-Signale bei resonanter Anregung der Typ-I-Heterostruktur in transienten Gitterexperimenten . . . 90
6.5. VWM-Signale bei nicht-resonanter Anregung der Typ-I-Heterostruktur in transienten Gitterexperimenten . . . 91
6.6. Anregungsbedingungen für die Diffusionsexperimente an der Typ-II-Heterostruktur . . . 92
6.7. VWM-Signale bei resonanter Anregung der Typ-II-Heterostruktur in transienten Gitterexperimenten . . . 94
6.8. VWM-Signale bei nicht-resonanter Anregung der Typ-II-Heterostruktur in transienten Gitterexperimenten . . . 95
6.9. VWM-Signale bei Anregung hochenergetischer freier Elektronen und Löcher in der Typ-II-Heterostruktur in transienten Gitterexperimenten . . . 96
6.10. Diffusionskonstanten resonant angeregter Exzitonen . . . 98
6.11. Diffusionskonstanten eines nicht-resonant angeregten Elektron-Loch-Plasmas . 103
6.12. Diffusionskonstanten bei resonanter und nicht-resonanter Anregung der Typ-I-Heterostruktur . . . 106
6.13. Diffusionskonstanten bei resonanter und nicht-resonanter Anregung der Typ-II-Heterostruktur . . . 106

Abkürzungen und Symbole

Abkürzungen

AC	akustische Phononen
BAL	zufällige Verteilung der Atome in der Barriere (engl.: *barrier alloy disorder*)
CT	Ladungstransfer (engl.: *charge-transfer*)
CTX	Charge-Transfer-Exziton
EHP	Elektron-Loch-Plasma
EID	anregungsinduzierte Dephasierung (engl.: *excitation-induced dephasing*)
FWHM	Halbwertsbreite (engl.: *full width at half maximum*)
GaAs	Galliumarsenid
Ga(As,P)	Galliumarsenidphosphid
Ga(As,Sb)	Galliumarsenidantimonid
(Ga,In)As	Galliumindiumarsenid
hh	schwere Löcher (engl.: *heavy hole*)
IFR	Grenzflächenrauigkeit (engl.: *interface roughness*)
lh	leichte Löcher (engl.: *light hole*)
LIG	laserinduziertes Gitter (engl.: *laser-induced grating*)
LO	optische Phononen
OPA	optisch parametrischer Verstärker (engl: *optical parametric amplifier*)
PL	Photolumineszenz
SBE	Halbleiter-Bloch-Gleichungen (engl: *semiconductor Bloch equations*)
SHG	Frequenzverdopplung (engl.: *second harmonic generation*)
soh	abgespaltene Löcher (engl.: *split-off hole*)
VWM	Vier-Wellen-Mischen
X	Exziton

Symbole

a_{exc}	Bohr-Radius
D	Diffusionskonstante
$\mathbf{E}$	elektrisches Feld
E_B	Biexzitonbindungsenergie
E_g	Bandlückenenergie
E_n	Exzitonbindungsenergie
E_X	Exzitonenergie
$\mathbf{G}$	Gittervektor
$\mathbf{k}$	Wellenvektor
L	Quantenfilmdicke
m_e^* / m_h^*	effektive Elektronen- / Lochmasse
N	Ladungsträgerdichte
N_{Mott}	Mottdichte
$\mathbf{P}$	markroskopische Polarisation
T_1	Populationslebensdauer
T_1^*	strahlende Lebenszeit
T_{12}	zeitliche Verzögerung zwischen den $\mathbf{k}_1$- und $\mathbf{k}_2$-Pulsen
T_{13}	zeitliche Verzögerung zwischen den $\mathbf{k}_1$- und $\mathbf{k}_3$-Pulsen
T_2	Dephasierungszeit
T_D	gemessene Zerfallszeit bei den VWM-Experimenten zur Dephasierung
T_{Diff}	diffusive Zerfallszeit
T_G	Gitterabklingzeit
T_S	gemessene Zerfallszeit bei den VWM-Experimenten zur Diffusion
$T_{zero\ density}$	Zerfallszeit bei verschwindender Anregungsdichte
$\Gamma_{(in\text{-})homogen}$	(in-)homogene Linienbreite
γ	Streuparameter
$\Gamma_{zero\ density}$	homogene Linienbreite bei verschwindender Anregungsdichte
ΔE	Energieaufspaltung bzw. Überschussenergie
Λ	Gitterkonstante

1

Einleitung

Als 1931 der Theoretiker Wolfgang Pauli an seinen Assistenten Peierls die Worte „*One shouldn't work on semiconductors, that is a filthy mess; who knows if they really exist?*“[1] schrieb, konnte er nicht erahnen, welch herausragende Bedeutung Halbleitern im heutigen digitalen Informationszeitalter zukommen wird.

Die Entdeckung und Untersuchung von Halbleitermaterialien geht bis ins 19. Jahrhundert zurück. Die erste Beobachtung eines Halbleitereffekts erfolgte 1833 durch Michael Faraday. Dieser stellte fest, dass die elektrische Leitfähigkeit von Silbersulfid von dem von Metallen bekannten Verhalten abwich: Die elektrische Leitfähigkeit nahm mit steigender Temperatur zu.[2] Einige Jahrzehnte später folgte die Beobachtung des photovoltaischen Effekts in einem Festkörper, welche zur Entwicklung der ersten photovoltaischen Zelle durch Charles Fritts führte.[3] Im Jahr 1874 gelang Ferdinand Braun eine bahnbrechende Entdeckung, als er den richtungsabhängigen elektrischen Stromfluss zwischen Metallsulfiden und dünnen Metallspitzen untersuchte.[4,5] Auf diese Weise entdeckte er den Gleichrichtereffekt der Halbleiter, womit er den Grundstein für die heutige Halbleitertechnik legte. Obwohl die physikalische Ursache des Gleichrichtereffekts zu dieser Zeit nicht bekannt war, wurden in den folgenden Jahrzehnten auf Silizium und Germanium basierende Punktkontakt-Gleichrichter entwickelt, wodurch die heutzutage wichtigen Halbleiter Silizium und Germanium Einzug in die Halbleitertechnik fanden.[4] 1931 entwickelte Alan Wilson die Bandtheorie von Festkörpern, die auf der Existenz leerer und gefüllter Energiebänder in Kristallen basiert. Durch Wilsons Theorie konnte erstmals das unterschiedliche Verhalten von Metallen und Halbleitern erklärt und die beobachteten Effekte verstanden werden.[6] Anlässlich verbesserter Züchtungsverfahren und der Verfügbarkeit reinerer Materialien gelang Walter H. Brattain, John Bardeen und William Shockley 1947 eine wegweisende Erfindung, welche den Einstieg in die Mikroelektronik ermöglichte. Den drei Forschern ist es gelungen den ersten Bipolartransistor in Form eines aus Germanium aufgebauten Spitzentransistors herzustellen.[7] In den Folgejahren ermöglichte die Entwicklung neuer Verfahren zur Herstellung von hochreinem Silizium und Germanium die Entwicklung des ersten Silizium-Transistors.[4] 1958 demonstrierte Jack Kilby, dass es möglich ist verschiedene Bauelemente und ihre Verbindungen auf einem gemeinsamen Halbleitersubstrat unterzubringen. Damit entwickelte er die erste integrierte Schaltung und läutete das Zeitalter der Mikroelektronik ein.[8] In den letzten 50 Jahren ist die Integrationsdichte auf einem Chip immer weiter gewachsen und die Größe der Bauteile stetig gesunken. Angetrieben wird dieser Trend durch

das Streben nach immer leistungsfähigeren Mikroprozessoren, höheren Taktfrequenzen und schnelleren Schaltkreisen.

Das Aufkommen moderner Epitaxieverfahren Ende der 1960er Jahre führte zur Herstellung besonders dünner Halbleiterheterostrukturen.[9] Diese auch als Quantenfilme bekannten Strukturen bestehen in der Regel aus dünnen, einige 100 Å breiten Halbleiterschichten, die die Ladungsträger in zwei Dimensionen einschließen. Dieser sogenannte Quanteneinschluss führt zur Ausbildung diskreter Energieniveaus und beeinflusst dementsprechend die optischen Eigenschaften des Materials. Damit war die Möglichkeit gegeben Bauelemente spezifischer auf ihre individuellen technischen Anforderungen anzupassen. Mit der Einführung der Quantenfilme konnte 1978 die erste elektrisch gepumpte Quantenfilm-Laserdiode entwickelt werden, die bei Raumtemperatur im CW-Modus betrieben werden konnte.[10] Neben Laserdioden, die heutzutage insbesondere bei der optischen Datenübertragung in Glasfaserkabeln eingesetzt werden, finden Quantenfilme ebenfalls in Solarzellen, Leuchtdioden, Photodetektoren oder HEMTs (engl.: *high-electron-mobility transistor*) Anwendung.

Getrieben durch die voranschreitende Miniaturisierung halbleiterbasierter Bauelemente und dem Streben die Leistungseffizienz und die Integrationsdichte der integrierten Bauelemente weiter zu erhöhen, ist die Entwicklung neuartiger Bauelemente Gegenstand laufender Forschung. Als vielversprechend gelten insbesondere exzitonenbasierte optoelektronische Bauelemente.[11,12,13] Bereits 2007 gelang der experimentelle Nachweis eines exzitonischen optoelektronischen Halbleitertransistors (engl.: *exciton optoelectronic transistor*, Abk.: EXOT).[11] Dessen Basis besteht aus gekoppelten GaAs/($Al_{0,33}Ga_{0,67}$)As-Quantenfilmen sowie den für elektronische Feldeffekttransistoren (Abk.: FET) üblichen Source-, Gate- und Drain-Anschlüssen. Aufgrund ihrer mit FETs vergleichbaren Größe, besteht die Möglichkeit sie in integrierte Schaltungen einzubauen und die Integrationsdichte auf diese Weise zu erhöhen. Durch einen Laser werden Exzitonen innerhalb des Halbleiterbauteils generiert. Über die Gate-Spannung kann ein lateral moduliertes elektrisches Feld senkrecht zur Quantenfilmebene erzeugt werden, welches zu einem beliebig modulierbarem Potentialprofil in der Ebene der Quantenfilme führt. Auf diese Weise kann die Ausbreitung der Exzitonen innerhalb des Bauteils durch die Gate-Spannung gesteuert werden. Anders als in konventionellen (ladungsbasierten) Transistoren stellen hierbei Exzitonen das Medium für den Transistorbetrieb dar.[14] Diese Eigenschaft ist insbesondere in der Signalverarbeitung vorteilhaft: Während zur Signalweiterleitung herkömmlicherweise Photonen eingesetzt werden, basiert die Signalverarbeitung auf der Verwendung von Elektronen. Eine Schnittstelle zwischen optischer Signalübertragung und elektronischer Signalverarbeitung sorgt somit für Verzögerungen. Durch den Einsatz von Exzitonen entfallen zeitliche Verzögerungen, da Exzitonen für die Signalverarbeitung genutzt werden und gleichzeitig eine direkte Verbindung zur optischen Kommunikation herstellen können.[15] Dementsprechend besitzen exzitonenbasierte Bauteile das Potential in Zukunft als integrierbare, optoelektronische Bauelemente mit hohen Vernetzungsgeschwindigkeiten im Bereich der optischen Informationsverarbeitung eingesetzt zu werden. Nur wenige Jahre später folgte der experimentelle Grundsatzbeweis für die Steuerung von Exzitonenflüssen in einer exzitonischen integrierten Schaltung sowie für den Betrieb exzitonischer Schaltungen bei Temperaturen bis zu 100 K.[14,15] Eine praktische Anwendung setzt jedoch den Betrieb bei Raumtemperatur voraus. Da Exzitonen lediglich bis zu Temperaturen $T \sim {}^{E_n}/_{k_B}$ existieren (in GaAs/($Al_{0,33}Ga_{0,67}$)As-CQW $\sim$ 40 K[11]), hatten schweizer Forscher die Idee alternative Materialien zur Herstellung exzitonenbasierter Bauele-

mente einzusetzen.[16,17] Mit ihrem aus einer MoS_2/WSe_2-Heterostruktur aufgebauten EXOT demonstrierten sie, dass eine elektrische Kontrolle der Ausbreitung der Exzitonen und damit allgemeine Transistoraktionen bei Raumtemperatur möglich sind.[18]

Der letzte Abschnitt hat verdeutlicht wie essentiell der Ladungsträgertransport in Halbleiterheterostrukturen für die Funktionalität technischer Geräte ist. Aus diesem Anlass beschäftigt sich ein Teil dieser Arbeit mit der Untersuchung der Diffusion optisch angeregter Exzitonen bzw. freier Ladungsträger innerhalb verschiedener lateraler Heterostrukturen. Infolge der Miniaturisierung spielen die inneren Grenzflächen zwischen zwei Halbleitermaterialien eine bedeutende Rolle für moderne technische Anwendungen und die Funktionalität halbleiterbasierter Bauelemente. Um den Einfluss interner Grenzflächen auf das Transportverhalten der Exzitonen zu untersuchen, bieten sich vor allem Modellsysteme in Form sogenannter Typ-II-artiger Heterostrukturen an. Während die untersuchte Referenzprobe aus (Ga,In)As-Quantenfilmen aufgebaut ist, besteht die Typ-II-Struktur aus zwei verschiedenen Quantenfilmen. Aufgrund ihrer räumlich indirekten Bandstruktur sind die Elektronen und Löcher nur wenige hundert Femtosekunden nach der optischen Anregung in unterschiedlichen Quantenfilmen lokalisiert.[19] Die räumlich voneinander getrennten Elektronen und Löcher können durch gegenseitige Coulomb-Anziehung sogenannte Charge-Transfer-Exzitonen (CTX) bilden. Da sich die CT-Exzitonen aufgrund ihres räumlich indirekten Charakters innerhalb der lateralen Heterostruktur entlang interner Grenzflächen ausbreiten, beeinflusst die Morphologie der Grenzflächen die Mobilität der Ladungsträger. Mithilfe des Vier-Wellen-Mischens kann die Diffusion der Exzitonen bzw. der freien Ladungsträger innerhalb der unterschiedlichen Quantenfilmstrukturen untersucht werden. Die im Rahmen dieser Arbeit gewonnenen Ergebnisse werden in Kapitel 6 zusammengefasst und unterschiedliche Diffusionseigenschaften der Ladungsträger innerhalb der Referenz- und Typ-II-Probe diskutiert.

Kapitel 2 gibt einen Einblick in die physikalischen Grundlagen von Halbleitern und der Licht-Materie-Wechselwirkung, welche den theoretischen Grundstein für das Verständnis der durchgeführten Experimente legt. Der darauffolgende Abschnitt beschäftigt sich mit der Dephasierung makroskopischer Polarisationen im Halbleitermaterial und den physikalischen Hintergründen des Vier-Wellen-Mischens. Anschließend wird die diffusive räumliche Ausbreitung angeregter Ladungsträger in Halbleiterquantenfilmen thematisiert.

Das darauffolgende Kapitel 3 beschäftigt sich mit den eingesetzten Messmethoden, wobei die anschauliche Beschreibung der Vier-Wellen-Mischung im Vordergrund steht. Der strukturelle Aufbau der in dieser Arbeit untersuchten Halbleiterheterostrukturen wird dem Leser in Kapitel 4 nähergebracht.

Kapitel 5 untersucht die kohärente Dynamik verschiedener Exzitonpolarisationen. Im Allgemeinen kann die Analyse der kohärenten Dynamik angeregter Oszillatoren einen Aufschluss über die Wechselwirkungen zwischen den Oszillatoren und deren Umgebung geben. Zu diesem Zweck werden zusätzliche Vier-Wellen-Misch-Experimente an der Referenzprobe sowie der Typ-II-Struktur durchgeführt. Unterschiede bezüglich der kohärenten Dynamik der 1s-Exzitonpolarisation der Referenzprobe und der CTX-Polarisation der Typ-II-Probe werden diskutiert und mit dem Einfluss der internen Grenzflächen der Typ-II-Struktur in Verbindung gebracht. Darüber hinaus werden Quantenschwebungen in der kohärenten Polarisation zwischen regulären 1s- und Biexzitonen beobachtet. Ferner kann mithilfe weiterer Vier-Wellen-Misch-Experimente der Einfluss von Ladungsträgerstreuprozessen auf die verschiedenen Exzi-

tonpolarisationen bestimmt werden. Zu diesem Zweck werden unterschiedliche Ladungsträger als Kollisionspartner bereitgestellt und aus den Messdaten sogenannte Streuparameter extrahiert. Unterschiede und Gemeinsamkeiten bezüglich der Streueigenschaften der 1s- und CTX-Polarisationen werden dargelegt und diskutiert. Die vorliegende Arbeit schließt mit einer Zusammenfassung der Ergebnisse in Kapitel 7 ab.

2

Grundlagen der Halbleiterphysik

Das folgende Kapitel soll eine Einführung in die grundlegenden Konzepte von Halbleitern geben und damit zum Verständnis der in dieser Arbeit vorgestellten Experimente beitragen. Zu diesem Zweck wird zunächst der Begriff der Bandstruktur erläutert, welche die elektrischen und optischen Eigenschaften des Halbleiters bestimmt. Danach wird der Effekt des Quanteneinschlusses in niederdimensionalen Halbleiterstrukturen besprochen. Da die im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten Experimente auf nichtlinearen spektroskopischen Untersuchungsmethoden basieren, wird anschießend die Licht-Materie-Wechselwirkung in Halbleitern vorgestellt. Die kurz nach einer optischen Anregung in Halbleiterstrukturen ablaufenden Prozesse werden beschrieben sowie die untersuchten Phänomene dargelegt. Weiterhin wird die Methode des Vier-Wellen-Mischens erklärt, ehe das Kapitel mit der Beschreibung des diffusiven Transportverhaltens räumlich lokalisiert angeregter Ladungsträger in Halbleiterheterostrukturen abschließt.

2.1. Elektronische Eigenschaften von Halbleitern

2.1.1. Bandstruktur

Weil ein Kristall aus einer regelmäßigen Anordnung von Atomen besteht, unterscheiden sich die elektronischen Eigenschaften eines Kristalls von denen einzelner Atome. Während einzelne Atome diskrete elektronische Energieniveaus besitzen, führt die Überlappung der Atomorbitale im Kristallgitter zu einer Ausbildung von Energiebändern.[20] Innerhalb eines Kristalls sind die Valenzelektronen einem schwachen periodischen Potential ausgesetzt, welches durch die positiven Atomrümpfe verursacht wird. Die theoretische Beschreibung eines Elektrons in einem periodischen Potential erfolgt über das Bloch-Theorem, welches die Bildung von Energielücken am Rand der ersten Brillouin-Zone erklärt.[21]

Die Darstellung der elektronischen Zustände in Abhängigkeit des Kristallimpulses $\mathbf{k}$ wird als Bandstruktur bezeichnet. Abbildung 2.1 zeigt beispielhaft die Bandstruktur eines Galliumarsenid-Volumenkristalls (Abk.: GaAs), der in der Zinkblendestruktur kristallisiert. Sie umfasst eine Vielzahl unterschiedlicher Bänder, deren jeweilige Energien von der Richtung im Impulsraum abhängen. Die Extrema der verschiedenen Bänder neigen dazu, entweder in der Mitte der ersten Brillouin-Zone, und damit bei $\mathbf{k} = 0$ am sogenannten Γ-Punkt, oder an den Rändern der Brillouin-Zone aufzutreten.[20]

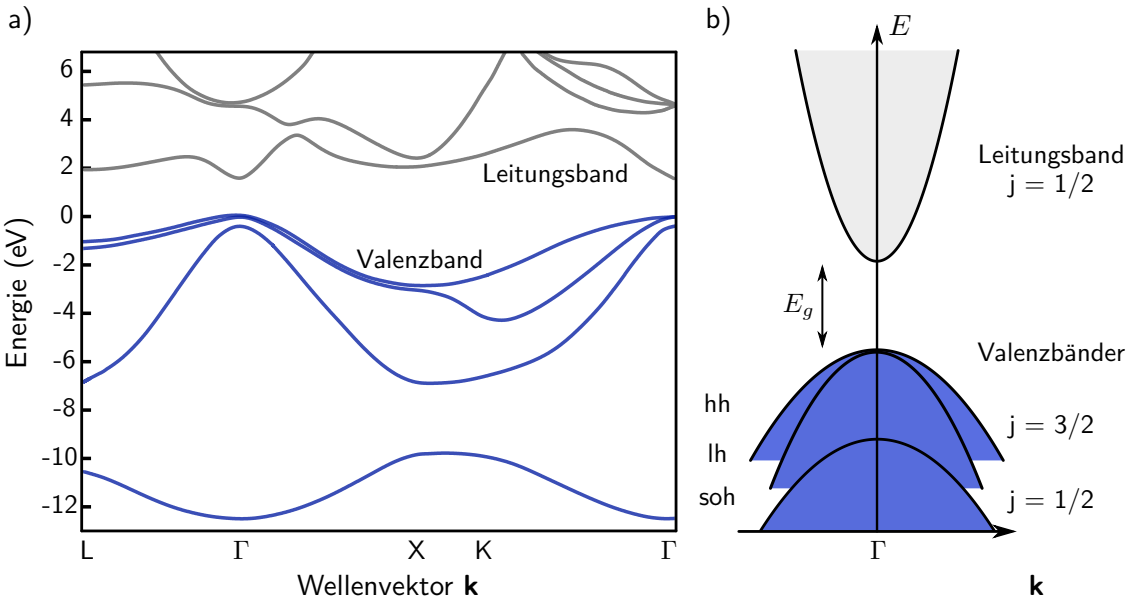

Abbildung 2.1.: a) Stellt die Bandstruktur des direkten Volumenhalbleiters Galliumarsenid entlang verschiedener Richtungen im **k**-Raum dar.[23] In (b) wird der Verlauf der Energiebänder am Γ-Punkt ($\mathbf{k} = 0$) in einem Halbleiter mit direkter Energielücke schematisch wiedergegeben. Das Valenzband spaltet aufgrund der Spin-Bahn-Kopplung in zwei Subbänder mit $j = 1/2$ und $j = 3/2$ auf. Die obersten Subbänder spalten wiederum in zwei getrennte Energiebänder mit unterschiedlicher Krümmung (hh, lh) auf. Jedes der drei Valenzbänder ist zweifach spinentartet.

Das im Grundzustand eines Halbleiters höchste vollbesetzte Energieband bezeichnet man als Valenzband, die darüberliegenden leeren Bänder als Leitungsbänder. Befinden sich das Valenzbandmaximum und das Leitungsbandminimum am gleichen **k**-Punkt der ersten Brillouin-Zone, ist von einem direkten Halbleiter die Rede. Im Gegensatz dazu besitzen die Extrema in Halbleitern mit indirekter Bandlücke nicht denselben Wellenvektor, sodass bei der Emission oder Absorption eines Photons aufgrund der Kristallimpulserhaltung ein zusätzlicher Impuls zugeführt werden muss. Der minimale Abstand zwischen Valenz- und Leitungsband wird als (Einteilchen-) Bandlücke $E_g = E_{\text{Leitungsband}} - E_{\text{Valenzband}}$ bezeichnet. Sie kennzeichnet einen Bereich, welcher üblicherweise nicht von elektronischen Zuständen besetzt werden kann. Die Bandlücke ist für viele elektronische und optische Eigenschaften des Halbleitermaterials von entscheidender Bedeutung und im Allgemeinen temperaturabhängig.[22] In der Regel besitzen Halbleiter nach einer möglichen Konvention eine Energielücke von $E_g \leq 4\,\text{eV}$, während für Isolatoren der energetische Abstand zwischen Valenz- und Leitungsband größer ist.

Wird ein Elektron beispielsweise durch optische Absorption aus dem vollständig besetzten Valenzband in das unbesetzte Leitungsband angeregt, bleibt ein unbesetzter Zustand im Valenzband zurück. Dieser wird häufig als Defektelektron oder auch als Loch bezeichnet, das die positive Elementarladung $+\,\text{e}$ trägt. Unter Einfluss eines äußeren elektrischen oder magnetischen Feldes bewegen sich Elektronen und Löcher wie freie Teilchen mit einer effektiven Masse m^* durch den Kristall. Für die effektive Masse gilt:[24]

$$\left(\frac{1}{m^*}\right)_{i,j} = \frac{1}{\hbar^2}\frac{\partial^2 E(\mathbf{k})}{\partial k_i \partial k_j} \; ; \quad i,j = x,y,z \tag{2.1}$$

Im Allgemeinen ist die effektive Masse ein Tensor $\overline{\overline{m^*}}$ und kann von der Bewegungsrichtung im Kristall abhängen. Häufig können die Dispersionsrelationen E(**k**) in der Nähe der Extrema durch Parabeln angenähert werden, sodass die effektiven Massen in diesen Bereichen konstant sind und als Skalare behandelt werden können.[24] Das energetisch höhere Valenzband ist aufgrund des Bahndrehimpulses (l = 1) und der zwei möglichen Spinausrichtungen der Elektronen (s = $\pm$ 1/2) insgesamt vierfach entartet (Gesamtdrehimpuls j = l $\pm$ s = 3/2; m_j = - 3/2, - 1/2, 1/2, 3/2).[25] Wie sich anhand Abbildung 2.1 b) erkennen lässt, spalten für **k** $\neq$ 0 die obersten entarteten Valenzbänder in zwei Subbänder mit unterschiedlicher Krümmung auf. Da die reziproke Masse proportional zur Krümmung des jeweiligen Energiebandes im **k**-Raum ist, bezeichnet man das stärker gekrümmte Energieband als Leichtlochband (engl.: *light hole*, Abk.: lh) mit der zugehörigen Masse m^*_{lh}, während das schwächer gekrümmte Band folglich als Schwerlochband (engl.: *heavy hole*, Abk.: hh) mit der effektiven Masse m^*_{hh} bekannt ist. Das energetisch niedrigere Lochband (mit j = 1/2) ist aufgrund der Spin-Bahn-Kopplung bei **k** = 0 von den anderen Valenzbändern abgespalten, weshalb es abgespaltenes Lochband (engl.: *split-off hole*, Abk.: soh) genannt wird.[26]

2.1.2. Halbleiterquantenfilme

Mithilfe epitaktischer Herstellungsverfahren wie der Molekularstrahlepitaxie[27] oder der metallorganischen Gasphasenepitaxie[28] können Halbleiterstrukturen mit einer Genauigkeit besser als einen Nanometer gewachsen werden.[29] Dadurch wird die Herstellung niederdimensionaler Halbleiterstrukturen wie beispielsweise Quantenfilme, Quantendrähte oder Quantenpunkte ermöglicht. Erstere bestehen grundsätzlich aus nur wenige Nanometer dicken Halbleiterschichten, welche von einem Halbleitermaterial mit größerer Bandlücke und ähnlicher Gitterkonstante umgeben sind. Den allgemeinsten Fall bezeichnet man als sogenannten Typ-I-Quantenfilm, welcher in Abbildung 2.2 a) schematisch skizziert ist.

Innerhalb eines Quantenfilms ist die Bewegungsfreiheit von Elektronen und Löchern in einer Raumdimension eingeschränkt. Parallel zur x-y-Ebene können sich die Ladungsträger frei bewegen. In Wachstumsrichtung hingegen werden die Ladungsträger aufgrund der Energiebarrieren des umgebenden Halbleiters räumlich gefangen. Die Dicke des Quantenfilms bestimmt maßgeblich die energetischen Zustände und Wellenfunktionen der Ladungsträger und dementsprechend seine elektrischen und optischen Eigenschaften. Ab einer Schichtdicke im Nanometerbereich müssen die Effekte des sogenannten Quanteneinschlusses (engl.: *quantum confinement*) berücksichtigt werden.[30] Durch den Quanteneinschlusseffekt können die Wellenfunktionen der Quasiteilchen lediglich als stehende Wellen innerhalb des Quantenfilms angesehen werden. Dies bewirkt eine Quantisierung der Energiezustände E_n entlang der z-Achse, welche die Ausbildung diskreter Energiezustände zur Folge hat. Dies resultiert in einer erhöhten Übergangsenergie zwischen Elektronen und Löchern und dementsprechend einer Blauverschiebung der Zustandsdichte $D(E)$. In realen Materialsystemen ist lediglich eine endliche Anzahl n möglicher Zustände verfügbar, welche herkömmlicherweise zwischen $n = 2$ und $n = 3$ liegt.[31]

Die Tatsache, dass die Abstände der einzelnen Energiezustände mit abnehmender Quantenfilmbreite L gemäß $E_n \sim L^{-2}$ zunehmen, verdeutlicht den starken Einfluss der Größe der räumlichen Begrenzung auf die Ausprägung des Quanteneinschlusses. Für Halbleiterstrukturen, deren eingeschränkte Dimensionen kleiner als der exzitonische Bohr-Radius sind, werden die Energiezustände der Ladungsträger besonders stark beeinflusst.[32] Außerdem bewirkt das zusätzliche Potential des Quanteneinschlusses die Aufhebung der Entartung des Leichtloch- und Schwerlochbandes bei $\Gamma = 0$. Die damit einhergehende Aufspaltung zwischen den beiden Bändern nimmt mit abnehmender Quantenfilmbreite zu.[33] Darüber hinaus führt die Diskretisierung der Energiezustände zu einer Änderung der Zustandsdichte $D(E)$. Während die (Einteilchen-) Zustandsdichten der Elektronen und Löcher im dreidimensionalen Fall eine wurzelförmige Energieabhängigkeit ($D^{3D}(E) \sim \sqrt{E}$) besitzen, äußert sich die Diskretisierung in einer stufenförmigen Zustandsdichte $D^{2D}(E) \sim \theta(E_n)$, die als eine Folge von Stufen verschiedener Quantenzahlen im Absorptionsspektrum beobachtet werden kann. In anderen niederdimensionalen Halbleiterstrukturen wie den Quantendrähten und Quantenpunkten resultiert der Einschluss der Ladungsträger in einer Zustandsdichte gemäß $D^{1D}(E) \sim 1/\sqrt{E}$ bzw. in diskrete Energiezustände.

Eine der im Rahmen dieser Arbeit analysierten Halbleiterproben besteht aus mehreren (Ga,In)As-Quantenfilmen, welche von Galliumarsenid umgeben sind. Sie ist schematisch in Abbildung 2.2 a) dargestellt. Die Heterostruktur besitzt einen räumlich direkten Übergang und wird im Folgenden als *Typ-I-Heterostruktur* oder *Referenzprobe* bezeichnet. Daneben ist die Untersuchung einer weiteren Probe wesentlicher Bestandteil dieser Arbeit. Sie besteht aus einzelnen Quantenfilmeinheiten, deren Aufbau schematisch in Abbildung 2.2 b) dargestellt ist. Eine Quantenfilmeinheit setzt sich aus zwei benachbarten Quantenfilmen unterschiedlicher Bandlückenenergien zusammen, welche durch eine dünne Barriereschicht voneinander getrennt sind. Beide Quantenfilme haben eine Typ-I-Bandausrichtung (engl.: *band alignment*) zur Barriere. Ist die Barriereschicht sehr dünn und die Potentialtöpfe der Quantenfilme nicht unendlich hoch, können die exponentiell abklingenden Wellenfunktionen der Ladungsträger in den benachbarten Quantenfilm hineinragen. Da sich die energetisch günstigsten Zustände der Elektronen und Löcher in diesem Fall in verschiedenen Quantenfilmen befinden, tunneln/relaxieren Elektronen und Löcher nach einer optischen Anregung durch die Barriereschicht in den für sie niedrigsten Zustand. Infolgedessen sind die Ladungsträger in der untersuchten Probe bereits nach ~ 100 fs nach der Anregung in verschiedenen Quantenfilmen lokalisiert. Wie sich in Abbildung 2.2 b) erkennen lässt, besitzen die gekoppelten Quantenfilme eine Typ-II-artige Bandausrichtung. Der Unterschied zwischen der untersuchten Probe und einer Typ-II-Heterostruktur besteht jedoch darin, dass in einer echten Typ-II-Heterostruktur zwei Quantenfilme mit einer Typ-II-Bandausrichtung direkt aufeinander folgen. In der untersuchten Probe wird dies durch eine dünne GaAs-Barriere verhindert, sodass es sich streng genommen nicht um eine Typ-II-Heterostruktur handelt. Nichtsdestotrotz wird die untersuchte Halbleiterprobe einfachheitshalber im Folgenden als *Typ-II-Heterostruktur* bezeichnet. Die Typ-II-Heterostruktur ermöglicht beispielsweise die Untersuchung des Ladungstransfers der Elektronen und Löcher sowie den Einfluss der räumlichen Separation auf die Ladungsträgerlebensdauer oder die Diffusion der Ladungsträger entlang der internen Grenzflächen.

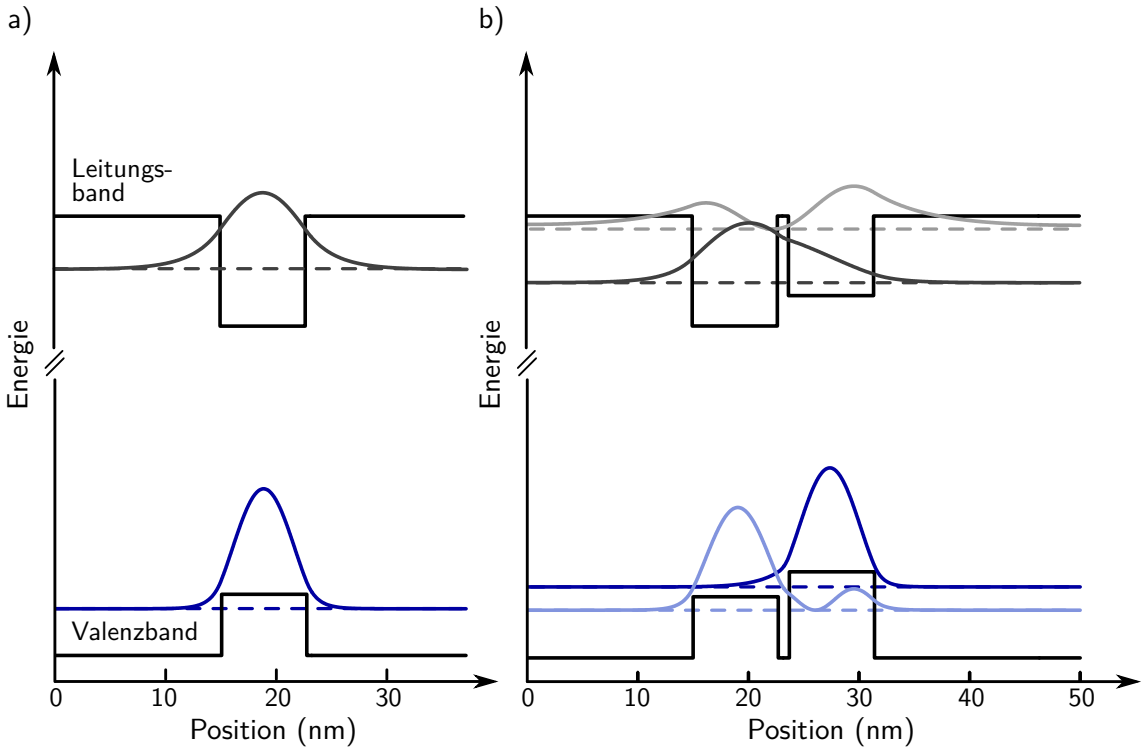

Abbildung 2.2.: Schematische Illustration der Bandstruktur der untersuchten Heterostrukturen im Ortsraum. a) Im Falle der Typ-I-Heterostruktur befinden sich die energetisch günstigsten Niveaus (gestrichelte Linien) der Elektronen (grau) und Löcher (blau) in derselben Halbleiterschicht. b) Die Heterostruktur mit einer Typ-II-artigen Bandausrichtung besteht aus verschiedenen Quantenfilmen, welche durch eine dünne Schicht voneinander getrennt sind. Hierbei befindet sich das niedrigste Energieniveau im Leitungsband und das Quadrat der zugehörigen Wellenfunktion (dunkelgraue Linie) überwiegend in einem Quantenfilm, während der energetisch günstigste Zustand der Löcher im Valenzband und das Quadrat der zugehörigen Wellenfunktion (dunkelblaue Linie) in dem benachbarten Quantenfilm lokalisiert ist.[34]

2.2. Licht-Materie-Wechselwirkung

Die Wechselwirkung zwischen Licht und einem Halbleitermaterial ist der Ausgangspunkt aller spektroskopischen Untersuchungen in der Halbleiteroptik. Das folgende Kapitel widmet sich daher den Grundlagen der Licht-Materie-Wechselwirkung. Für eine ausführliche Beschreibung dieser Thematik und eine Herleitung der genannten Gleichungen sei auf weitere Literatur verwiesen.[26,35,36,37,38,39]

2.2.1. Ladungsträgerdynamik

Wurde ein Halbleiter im thermodynamischen Gleichgewicht durch einen ultrakurzen Puls angeregt, relaxiert die angeregte Ladungsträgerverteilung innerhalb vier zeitlich überlappender Schritte in den thermodynamischen Grundzustand:[40,41,42,43]

Kohärentes Regime

Die optische Anregung führt zur Erzeugung einer makroskopischen Interbandpolarisation zwischen Valenz- und Leitungsband, welche mit der Frequenz des Erregerimpulses und einer wohldefinierten Phasenbeziehung oszilliert. Typischerweise führen elastische und inelastische Streuprozesse innerhalb weniger Femto- bis Pikosekunden zu einem schnellen Verlust der Phasenkohärenz zwischen Polarisation und treibendem Lichtfeld (Dephasierung).[44,45] Da der Effekt der Dephasierung eine zentrale Rolle in dieser Arbeit darstellt, soll der Begriff an dieser Stelle nur kurz erwähnt und in einem späteren Kapitel ausführlicher beschrieben werden. Die Dephasierung führt zur Ausbildung einer Population angeregter Zustände von Elektronen und Löchern. Unmittelbar nach der optischen Anregung ist die Energieverteilung der Ladungsträger durch den Laserpuls bestimmt (siehe Abbildung 2.3 b)). Im kohärenten Regime können verschiedene Phänomene wie beispielsweise kohärente Oszillationen[46], Photonechos[47,48,49,50] sowie Vier-Wellen-Misch-Signale[51,52] beobachtet werden.

Regime thermalisierter Ladungsträger

Da die Ladungsträgerverteilung nach der optischen Anregung im Wesentlichen durch die Energieverteilung des Laserpulses bestimmt ist, lässt sie sich zunächst nicht durch eine Fermi-Verteilung beschreiben. Während der Dephasierung verteilen Coulomb- und Interband-Streuung die Ladungsträger über weitere verfügbare **k**-Zustände, was zu einer thermischen Energie- und Impulsverteilung der Ladungsträger führt (Abbildung 2.3 c)-f)). Die heiße Ladungsträgerverteilung der Elektronen und Löcher lassen sich nun durch eine Fermi-Verteilung beschreiben, deren Temperatur typischerweise höher als die umgebende Gittertemperatur ist und für beide Teilchensysteme unterschiedlich sein kann. Der soeben beschriebene Prozess der Thermalisierung kann sich von wenigen hundert Femto- bis zu einigen Pikosekunden hinstrecken.[42,56]

Kühlung durch Phononemission

Nach der Thermalisierung findet eine Energierelaxation der Ladungsträger statt. Durch die Emission energiereicher optischer Phononen kühlen die Ladungsträger innerhalb weniger Pikosekunden ab. Ab einer gewissen Ladungsträgertemperatur wird die Abkühlung durch optische Phononen ineffektiv, weshalb fortan hauptsächlich energieärmere akustische Phononen abgegeben werden. Da die Temperaturreduktion durch Wechselwirkung mit akustischen Phononen deutlich langsamer abläuft, dauert es einige hundert Piko- bis Nanosekunden bis die Ladungsträgerverteilung auf die Kristalltemperatur gesunken ist.[42,55,57] Können alle Ladungsträger, Phononen und Exzitonen mit der Temperatur des Gitters beschrieben werden, liegt ein sogenanntes Quasi-Gleichgewicht vor.

Rekombination

Die angeregten Ladungsträger rekombinieren und bringen den Halbleiter dadurch in ein thermodynamisches Gleichgewicht. Die Rekombination kann dabei strahlend oder nicht-strahlend erfolgen. Letztere wird im Allgemeinen unterteilt in Shockley-Read-Hall- und Auger-Rekombination.[58] Bei der Shockley-Read-Hall-Rekombination bilden Defektatome zusätzliche Ener-

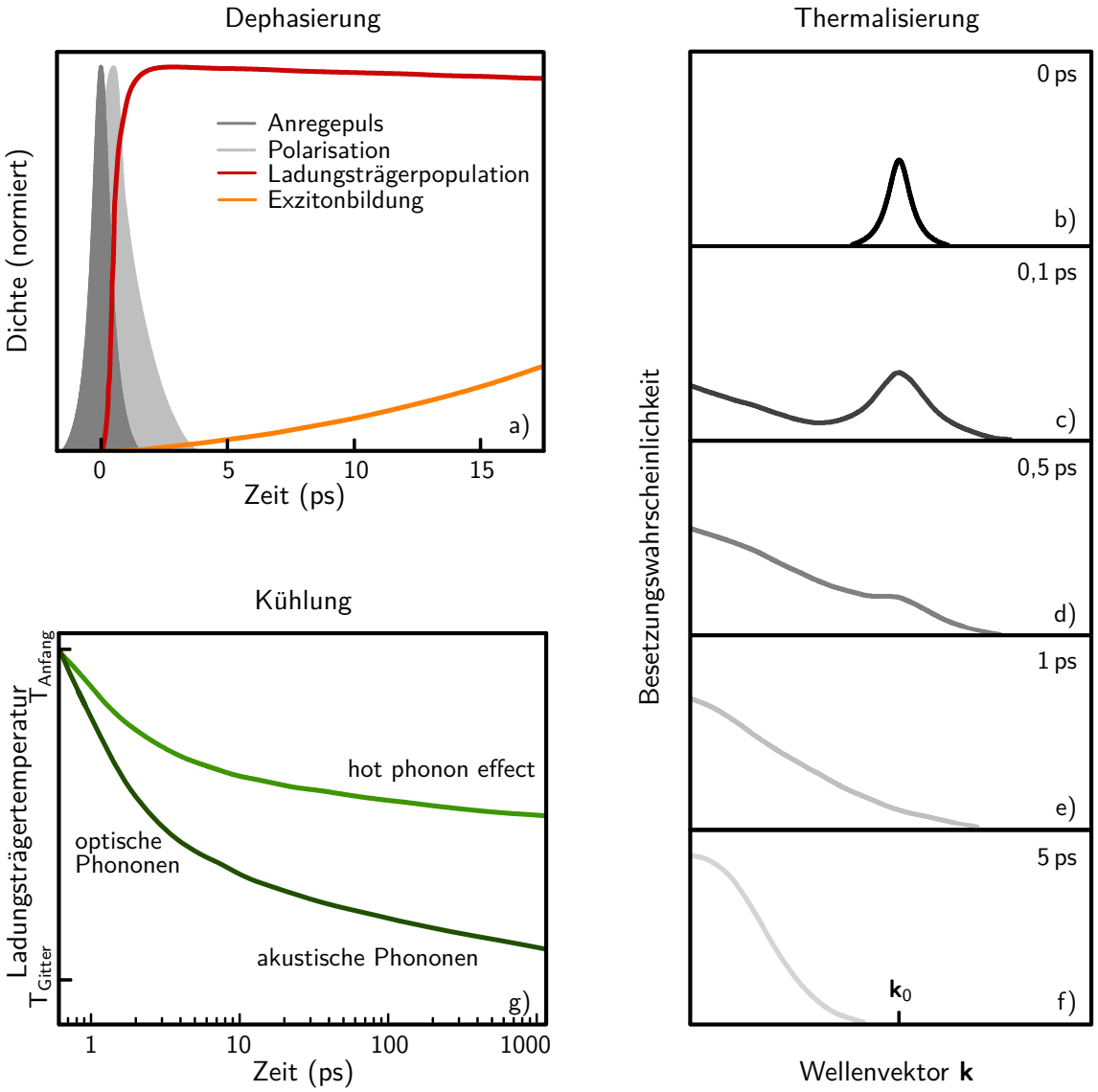

Abbildung 2.3.: Vereinfachte Darstellung der im Halbleitermaterial ablaufenden Prozesse zu verschiedenen Zeiten nach der optischen Anregung nach [42]. a) Gibt den zeitlichen Verlauf des Anregepulses (dunkelgrau) und der dadurch erzeugten makroskopischen Polarisation (hellgrau) im Halbleitermaterial wieder. Die Dephasierung führt zur Ausbildung einer Population freier Elektron-Loch-Paare (rot) und Exzitonen (orange). b)-f) Stellen die Verteilungen der elektronischen Einteilchenzustände in Abhängigkeit des Wellenvektors **k** zu verschiedenen Zeiten und den damit einhergehenden Übergang in eine thermische Fermiverteilung dar. In g) ist der Ladungsträgerabkühlungsprozess durch die Emission optischer und akustischer Phononen abgebildet. Bei einer hohen Anregungsdichte (hellgrün) verlangsamt die Reabsorption der emittierten Phononen das Sinken der Ladungsträgertemperatur (engl.: *hot phonon effect*). Die dargestellten Prozesse sind angelehnt an experimentelle Untersuchungen und theoretische Beschreibungen.[36,53,54,55]

giezustände innerhalb der Bandlücke über welche die Ladungsträger nicht-strahlend rekombinieren. Wird die bei der Rekombination eines Elektron-Loch-Paares freiwerdende Energie an einen dritten Ladungsträger abgegeben, spricht man von Auger-Rekombination. Durch Relaxationsprozesse gibt der dritte Ladungsträger die überschüssige Energie in Form von Phononen an das Gitter ab. Die Rekombinationszeit ist in der Regel von vielen Faktoren abhängig (bspw. Material, Defektdichte, Oberflächenqualitäten). Typische Rekombinationszeiten direkter Halbleiter liegen im Nanosekundenbereich[59], während sie für indirekte Halbleitermaterialien Nano- bis Mikrosekunden betragen können.[20]

2.2.2. Halbleiter-Bloch-Gleichungen

Halbleiter-Bloch-Gleichungen (engl.: *semiconductor Bloch equations*, Abk.: SBE) bilden die Grundlage für die theoretische Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung in Halbleitern. Sie können eingesetzt werden, um Phänomene der linearen und nichtlinearen Halbleiteroptik wie beispielsweise den Sommerfeld-Faktor in der linearen Absorption oder das Auftreten von Photonechos zu erklären.[60]

Die Herleitung der Halbleiter-Bloch-Gleichungen berücksichtigt die Bandstruktur des Halbleiters in vereinfachter Form durch die Zwei-Band-Näherung. Hierbei wird der Einfachheit halber angenommen, dass der Laserpuls nur mit *einem* dipolerlaubten Übergang resonant ist, sodass lediglich das beteiligte Valenz- und Leitungsband berücksichtigt werden.[37] In der zweiten Quantisierung kann der allgemeine Hamiltonoperator des Systems geschrieben werden als:[35]

$$H_{System} = H_{el} + H_I \tag{2.2}$$

H_{el} beschreibt das elektronische System bestehend aus Elektronen im Leitungsband und Löchern im Valenzband. Er berücksichtigt neben den kinetischen Einteilchenenergien der Elektronen und Löcher ebenfalls die abstoßenden und anziehenden Coulomb-Wechselwirkungen zwischen den (Quasi-)teilchen. Der Hamiltonoperator H_I enthält die Wechselwirkung des Halbleiters mit dem einfallenden elektrischen Feld $E(t)$. Dies erzeugt einen Dipol-Interbandübergang vom Valenz- ins Leitungsband und erzeugt und vernichtet dazu Elektronen und Löcher in den jeweiligen Bändern. Der System-Hamiltonoperator berücksichtigt somit sowohl die freien Teilchen, als auch die Coulomb-Wechselwirkungen der Elektronen und Löcher sowie die Wechselwirkungen mit dem einfallenden Lichtfeld.[37] Mithilfe des Hamiltonoperators H_{System} und der Heisenberg'schen-Bewegungsgleichung $i\hbar\frac{d}{dt}\ O(t) = [O(t),\ H_{System}]$ lassen sich die Bewegungsgleichungen, d. h. die zeitlichen Entwicklungen, der relevanten mikroskopischen Observablen $O(t)$ ableiten.[26,36] Diese umfassen die mikroskopische Interbandpolarisation $P_{\mathbf{k}}(t)$, sowie die Elektronenbesetzung $n_{e,\mathbf{k}}(t)$ und Lochbesetzung $n_{h,\mathbf{k}}(t)$. Sie sind über ihre quantenmechanischen Erwartungswerte wie folgt definiert:[35,36]

$$\begin{aligned} n_{e,\mathbf{k}}\ (t) &= \langle a^{\dagger}_{c,\mathbf{k}}\ a_{c,\mathbf{k}} \rangle \\ n_{h,\mathbf{k}}\ (t) &= 1 - \langle a^{t}_{v,\mathbf{k}}\ a_{v,\mathbf{k}} \rangle \\ P_{\mathbf{k}}(t) &= \langle a^{\dagger}_{\mathrm{v},\ \mathbf{k}}\ a_{\mathrm{c},\mathbf{k}} \rangle \end{aligned} \tag{2.3}$$

Hierbei stellt $a^{\dagger}_{\mathrm{c,v},\mathbf{k}}$ den Erzeugungsoperator eines Teilchens im Leitungs- (c) oder Valenzband

(v) und $a_{c,v,\mathbf{k}}$ den zugehörigen Vernichtungsoperator dar. Die Ausführung des Kommutators ergibt einen Satz gekoppelter nichtlinearer Differentialgleichungen, welche als Halbleiter-Bloch-Gleichungen bezeichnet und als Verallgemeinerung der optischen Bloch-Gleichungen betrachtet werden:[35]

$$\frac{\partial P_{\mathbf{k}}}{\partial t} = -i(e_{e,\mathbf{k}} + e_{h,\mathbf{k}})\ P_{\mathbf{k}} + i(1 - n_{e,\mathbf{k}} - n_{h,\mathbf{k}})\omega_{R,\mathbf{k}} + \frac{\partial P_{\mathbf{k}}}{\partial t}|_{scatt} \tag{2.4}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial n_{e,\mathbf{k}}}{\partial t} &= -2Im(\omega_{R,\mathbf{k}} \cdot P^*_{\mathbf{k}}) + \frac{\partial n_{e,\mathbf{k}}}{\partial t}|_{scatt} \\ \frac{\partial n_{h,\mathbf{k}}}{\partial t} &= -2Im(\omega_{R,\mathbf{k}} \cdot P^*_{\mathbf{k}}) + \frac{\partial n_{h,\mathbf{k}}}{\partial t}|_{scatt} \end{aligned} \tag{2.5}$$

Sie beschreiben die gekoppelte Dynamik der optischen Polarisation und der Elektronen und Löcher in der spektralen Nähe der Halbleiterbandlücke.[35] Hierbei repräsentieren $\hbar e_{e,\mathbf{k}}$ und $\hbar e_{h,\mathbf{k}}$ die normalisierten Einteilchenenergien, $P^*_{\mathbf{k}}$ die komplex konjugierte Polarisation und $\omega_{R,\mathbf{k}}$ die generalisierte Rabi-Frequenz, welche die Polarisation und das einfallende elektrische Feld mit den Besetzungen der Ladungsträger in Beziehung setzt. Der Term $(1 - n_{e,\mathbf{k}} - n_{h,\mathbf{k}})$ beschreibt den Prozess des Phasenraumfüllens, während $-2Im(\omega_{R,\mathbf{k}} \cdot P^*_{\mathbf{k}})$ die Generation von Elektronen und Löchern durch die Absorption von Licht beinhaltet.[35] Die durch den Index $\ldots|_{scatt}$ gekennzeichneten Streuterme berücksichtigen Coulomb-Wechselwirkung und Interaktionen zwischen Phononen und Ladungsträgern (sogenannte Zwei-Teilchen-Korrelationen). Sie werden eingesetzt, um u. a. die (anregungsinduzierte) Dephasierung und Ladungsträgerstreuung, Bandkantenrenormierung, die Abschirmung der (e-e, h-h, e-h) Coulomb-Wechselwirkung, exzitonische Effekte, die Bildung von Biexzitonen sowie die Relaxation von Ladungsträgerdichten zu beschreiben.[20,36,37] Einen genaueren Einblick in die komplexen Formen der Streuterme erhält man beispielsweise in den Veröffentlichungen von S. W. Koch und M. Kira.[36,37]

2.2.3. Coulomb-Wechselwirkung: Exzitonkonzept

Aufgrund der entgegengesetzten Ladungen von Elektronen und Löchern existiert zwischen den Ladungsträgern eine anziehende elektrostatische Wechselwirkung. Sie führt insbesondere zu gebundenen Elektron-Loch-Paaren, welche als Exzitonen bezeichnet werden. Da Exzitonen aus Elektronen und Löchern bestehen, sind sie elektrisch neutrale Quasipartikel. Bereits in den 1930er Jahren wurde das Konzept der Exzitonen theoretisch von Frenkel[61,62], Peierls[63] und Wannier[64] formuliert. Grundsätzlich unterscheidet man abhängig von ihrer Bindungsenergie in sogenannte *Frenkel*- und *Wannier-Mott*-Exzitonen, wobei letztere im folgenden Abschnitt näher beschrieben werden sollen.

Im allgemeinen Fall können die Energiezustände und Bindungsenergien der korrelierten Elektron-Loch-Paare eines anorganischen Halbleiters über die generalisierte Wannier-Gleichung berechnet werden. Unter der Annahme eines Quasi-Gleichgewichts, welches bedeutet, dass alle Ladungsträger über Streuprozesse in eine Fermi-Dirac-Verteilung überführt wurden (Zwei-Teilchen-Terme in Gleichung 2.4 und 2.5 $= 0$), geht sie aus der homogenen Lösung der Halbleiter-Bloch-Gleichungen hervor.[34] Für einen unangeregten Halbleiter ($n_{e,\mathbf{k}} = n_{h,\mathbf{k}} = 0$) vereinfacht sich das Eigenwertproblem und ist mathematisch analog zur Schrödingergleichung des Wasserstoffatoms[36], wenn man die effektiven Massen der Elektronen m^*_e und Löcher m^*_h sowie die Dielektrizitätskonstante ϵ_r des Halbleiters miteinbezieht.[65] Das Resultat ist die Wannier-

Gleichung, welche im Gegensatz zur generalisierten Wannier-Gleichung ausschließlich die anziehende Wechselwirkung zwischen einem Elektron und einem Loch beschreibt:[35]

$$-\left[\frac{\hbar^2\nabla_{\mathbf{r}}^2}{2m_r}+V(\mathbf{r})\right]\Psi_\lambda(\mathbf{r})=E_\lambda\Psi_\lambda(\mathbf{r}) \tag{2.6}$$

Hierbei setzt sich die inverse reduzierte Exzitonmasse $1/m_r$ über $1/m_r = 1/m_e^* + 1/m_h^*$ aus den effektiven Massen des Elektrons m_e^* und des Lochs m_h^* zusammen. Die Lösungen dieser Gleichung definieren gebundene Exzitonzustände, wobei die entgegengesetzt geladenen Quasiteilchen aufgrund der anziehenden Coulomb-Wechselwirkung $V(\mathbf{r})$ aneinander gebunden sind.[35] Die exzitonischen Bindungsenergien im 2D- und 3D-Fall sind gegeben durch:[35,66]

$$\begin{aligned} E_n &= R^*\frac{1}{n^2} \quad \text{in 3D} \\ E_n &= R^*\frac{1}{\left(n-\frac{1}{2}\right)^2} \quad \text{in 2D} \quad \text{mit } n=1,2,\dots \end{aligned} \tag{2.7}$$

In Analogie zum Wasserstoffatom beschreibt $R^* = \frac{m_r}{m_e\epsilon^2}\cdot 13{,}6\,\text{eV}$ die exzitonische Rydberg-Energie. Die Zustände der gebundenen Elektronen und Löcher liegen als Exzitonenserie vor (*1s, 2s, 3s,...*), deren Bindungsenergie für große n gegen Null geht (siehe Abbildung 2.4 a)). Der Einfluss des umgebenden Halbleitermaterials wird durch die Permittivität $\epsilon = \epsilon_r\epsilon_0$ berücksichtigt, welche sich aus der Dielektrizitätskonstanten des Halbleitermaterials ϵ_r und der Permittivität ϵ_0 des Vakuums zusammensetzt. Da Halbleiter eine vergleichsweise hohe Dielektrizitätskonstante ($\epsilon_{GaAs} \sim 13$)[67] besitzen, schirmt das umgebende Material die Coulomb-Anziehung zwischen den Ladungsträgern effizient ab, sodass die Anziehung zwischen den Elektronen und Löchern reduziert wird. Die schwache Coulomb-Wechselwirkung und die kleinen effektiven Massen von Elektronen und Löchern resultieren in geringen Exzitonbindungsenergien, welche für anorganische Halbleiter im Bereich einiger meV ($E = 4{,}2\,\text{meV}$ für 3D-GaAs)[68] liegen. Geringe Bindungsenergien führen zu großen Abständen zwischen Elektron und Loch, sodass sich der Exziton-Bohr-Radius a_{exc} über mehrere Einheitszellen erstreckt (siehe Abbildung 2.4 b)). In diesem Fall spricht man von sogenannten Mott-Exzitonen.

Demgegenüber stehen Frenkel-Exzitonen, welche häufig in organischen Halbleitern vorkommen. Elektronen und Löcher sind in diesem Fall stärker aneinander gebunden, sodass sich die geladenen Quasiteilchen häufig innerhalb desselben Atoms/Moleküls befinden und ihr mittlerer Abstand nur wenige Nanometer beträgt.[69] Wie der nächste Abschnitt zeigen wird, äußern sich Exzitonen unter anderem in Absorptionsspektren als starke Absorptionserhöhungen unterhalb der Bandlückenenergie E_g.

Wie anhand Gleichung 2.7 ersichtlich wird, hat der Quanteneinschluss in niederdimensionalen Halbleiterstrukturen Auswirkungen auf die exzitonischen Bindungsenergien E_n. Diese sind in idealen zweidimensionalen Strukturen um den Faktor vier höher als in dreidimensionalen Halbleiterkristallen. In realen Halbleitermaterialien kann die Bindungsenergie zusätzlich beeinflusst werden. Zu nennen sei hierbei beispielsweise der Unterschied zwischen den verschiedenen Dielektrizitätskonstanten des Quantenfilms und des umgebenden Halbleitermaterials. Eine geringere Dielektrizitätskonstante des umgebenden Halbleitermaterials führt zu einer reduzierten Coulomb-Abschirmung und damit zu einer stärkeren Anziehung zwischen Elektronen

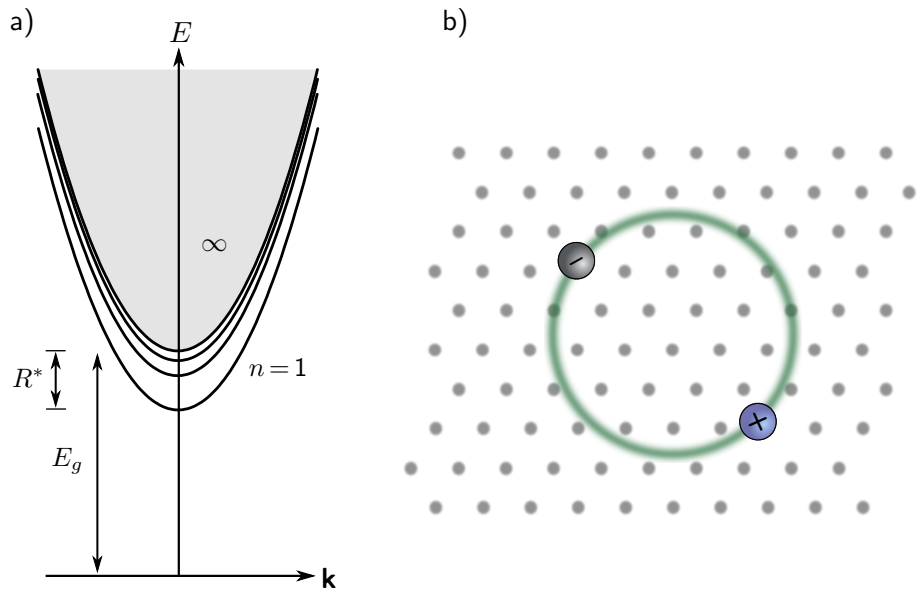

Abbildung 2.4.: a) Schematische Darstellung der parabolischen Dispersionsrelation von Exzitonen im Zwei-Teilchen-Bild. Die Lösung der Wannier-Gleichung ergibt eine Serie gebundener Exzitonzustände, von denen die ersten drei ($n = 1$ bis $n = 3$) eingezeichnet sind. Ab der Bandlückenenergie E_g gehen die gebundenen Zustände der Elektronen und Löcher in das Kontinuum (∞) über, in welchem keine gebundenen Zustände mehr vorliegen. b) Durch die anziehende Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern bilden sich gebundene Elektron-Loch-Paare (Exzitonen), welche sich durch eine exzitonische Bindungsenergie E_n und einen Exziton-Bohr-Radius a_{exc} kennzeichnen. Das eingezeichnete Mott-Exziton ist schwach gebunden, weshalb sich der mittlere Elektron-Loch-Abstand über mehrere Einheitszellen erstreckt.

und Löchern.[70] Darüber hinaus versucht die exzitonische Wellenfunktion trotz der räumlichen Einschränkung innerhalb des Quantenfilms ihre sphärische Symmetrie so weit wie möglich zu erhalten.[35] Mit einer erhöhten Bindungsenergie geht die Abnahme des Bohr-Radius senkrecht zur Quantenfilmebene einher, sodass für den Grundzustand $n = 1$ der exzitonische Bohr-Radius von a_{exc} im 3D-Fall auf $\frac{a_{exc}}{2}$ im 2D-Fall sinkt.[65]

2.2.4. Lineare Absorption

Die Absorption einer elektromagnetischen Welle erzeugt eine Interbandpolarisation $\mathbf{P}(\omega)$ innerhalb des Halbleitermaterials. Im linearen Dichteregime ist die induzierte Polarisation über $\mathbf{P}(\omega) = \epsilon_0 \chi(\omega) \mathbf{E}(\omega)$ mit der linearen optischen Suszeptibilität $\chi(\omega)$ und dem einfallenden elektrischen Feld $\mathbf{E}(\omega)$ verknüpft. Mithilfe der Halbleiter-Bloch-Gleichungen (siehe Gleichung 2.4 und 2.5) kann unter Annahme eines im Grundzustand befindlichen direkten Halbleiters und kleiner elektrischer Felder $\mathbf{E}(\omega)$ die Interbandpolarisation $\mathbf{P}(\omega)$ und dementsprechend die Suszeptibilität abgeleitet werden.[60,71] Die lineare Absorption ist im Wesentlichen proportional zum Imaginärteil der Suszeptibilität $\chi(\omega)$[36], sodass sich die Absorption $\alpha(\omega)$ in vereinfachter Form durch die folgende Formel beschreiben lässt:[60]

$$\alpha(\omega) \propto \left[\sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^3}\delta(\hbar \cdot \omega - E_g + E_n) + \theta(\hbar \cdot \omega - E_g)\pi C(\omega)\right] \tag{2.8}$$

Gleichung 2.8 ist als Elliott-Formel für die optische Absorption eines direkten Halbleiters bekannt und wurde bereits 1957 von Roger J. Elliott für den dreidimensionalen Fall hergeleitet.[71] Der erste Term beschreibt die Beiträge der gebundenen Elektron-Loch-Paare. Unterhalb der Bandlückenenergie E_g besteht das Absorptionsspektrum aus einer Serie diskreter Exzitonresonanzen, welche bei den Übergangsenergien $E_\lambda = E_g - E_n$ auftreten (siehe Abbildung 2.5). Die Oszillatorstärke der exzitonischen Übergänge fällt im dreidimensionalen Fall mit $1/n^3$ ab, sodass der 1s-Übergang ($n = 1$) die größte Resonanz im Absorptionsspektrum liefert. Die Oszillatorstärke eines Übergangs ist durch die Wahrscheinlichkeit bestimmt ein Leitungsbandelektron und ein Valenzbandloch bei $\mathbf{r} = 0$, d. h. am selben Gitterplatz, anzutreffen.[35] Da ausschließlich s-artige Zustände bei $\mathbf{r} = 0$ einen Wert ungleich Null besitzen, tragen dementsprechend nur sphärisch symmetrische s-Zustände zur optischen Absorption bei.[34,36,60] Berücksichtigt man eine Verbreiterung der Eigenenergien durch Streuprozesse lassen sich häufig nur wenige gebundene Zustände spektral auflösen.[35] Die Beiträge für Photonenergien nahe der Bandlücke gehen in die kontinuierliche Absorption der Kontinuumzustände über, welche durch den zweiten Term berücksichtigt werden. Wie anhand Abbildung 2.5 zu erkennen ist, führt der mit $C(\omega)$ abgekürzte Sommerfeld- oder Coulomb-Enhancement-Faktor in der Nähe der Bandlücke zu einer Verstärkung der Absorption der Kontinuumzustände. Dementsprechend erzeugt die attraktive Coulomb-Wechselwirkung nicht nur Resonanzen durch gebundene Elektron-Loch-Zustände unterhalb der Bandlückenenergie, sondern beeinflusst darüber hinaus die Absorption der ionisierten Kontinuumzustände.[37]

In realen Halbleiterstrukturen sind die exzitonischen Resonanzen keine schmalen Deltafunktionen. Streuprozesse zwischen Ladungsträgern und Gitterschwingungen führen zu einer verbreiterten Linienform.[72] Welche Mechanismen zur sogenannten Linienverbreiterung beitragen und in welche Arten Linienverbreiterungen unterteilt werden, wird im nächsten Unterabschnitt besprochen.

2.2.5. Linienverbreiterung optischer Übergänge

Die Absorption und Emission elektromagnetischer Strahlung äußert sich in charakteristischen Spektrallinien. Die Frequenz der Spektrallinien ist nicht streng monochromatisch; vielmehr besitzen sie eine bestimmte Frequenzbreite, weshalb auch von sogenannten Linienbreiten gesprochen wird. Der folgende Abschnitt soll einen Einblick in die Hauptursachen der spektralen Verbreiterungen optischer Übergänge geben.

Natürliche Linienbreite

Ein optisch angeregter Übergang besitzt durch spontane Emission eine endliche Lebensdauer T_1^*. Aufgrund der Energie-Zeit-Unschärfe, $\Delta E \cdot T_1^* \geq \hbar/2$, kann der Übergang dementsprechend nicht unendlich scharf sein. Daher besitzt er eine minimale Linienbreite, welche man als *natürliche Linienbreite* des Übergangs bezeichnet.[73] Anschaulich betrachtet, verhält sich das optisch angeregte Elektron analog zu einem oszillierenden Dipol, welcher aufgrund der schwin-

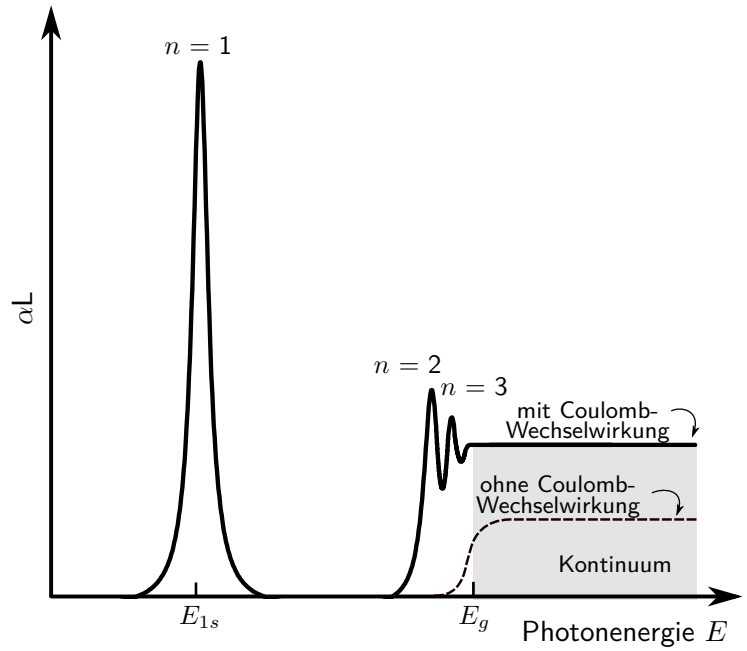

Abbildung 2.5.: Schematische Illustration der linearen Absorption eines Halbleiterquantenfilms. Unter Vernachlässigung der Coulomb-Wechselwirkung bewirkt die stufenförmige Zustandsdichte im 2D-Fall eine energetisch flache Absorption oberhalb der Bandlückenenergie E_g (gestrichelte Linie). Die Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern resultiert zum einen in exzitonische Resonanzen (E_{1s}, E_{2s}, E_{3s}) unterhalb der Bandlückenenergie (durchgezogene Linie). Zum anderen führt die Coulomb-Wechselwirkung zu einer Erhöhung der Absorption der Kontinuumzustände. Für Quantenfilme ist der Sommerfeld-Faktor nahe der Bandlücke $C = 2$, sodass die Absorption dort auf das Doppelte erhöht ist.[65] Im Vergleich zum 3D-Fall lässt sich die 1s-Resonanz aufgrund ihrer um den Faktor vier höheren Bindungsenergie in der Regel besser auflösen.[35] Ähnliche Illustrationen finden sich unter anderem in [35, 37].

genden Ladung eine Energieabstrahlung in Form eines elektromagnetischen Feldes bewirkt. Der Energieverlust führt zu einer gedämpften Schwingung mit exponentiell abfallender Amplitude.[74] Die Fourier-Transformation des zeitlichen Verlaufs des elektrischen Feldes liefert dessen spektrale Komponenten, sodass ein exponentieller Abklingvorgang einer lorentzförmigen Intensitätsverteilung $I(\omega)$ entspricht (siehe Abbildung 2.6).[73] Die volle Halbwertsbreite γ (engl.: *full width at half maximum*, Abk.: FWHM) der Lorentz-Funktion stellt die natürliche Linienbreite dar. Im Allgemeinen wird die natürliche Linienbreite durch zusätzlich auftretende Verbreiterungen überlagert. Diese werden üblicherweise zwei verschiedenen Linienverbreiterungsmechanismen zugeordnet, die im Folgenden kurz beschrieben werden.

Homogene Linienverbreiterung

Bei einer homogen verbreiterten Spektrallinie sind die Schwingungsfrequenzen ω_0 der einzelnen Oszillatoren gleich. Im Allgemeinen bezieht sich die homogene Verbreiterung auf Mechanismen,

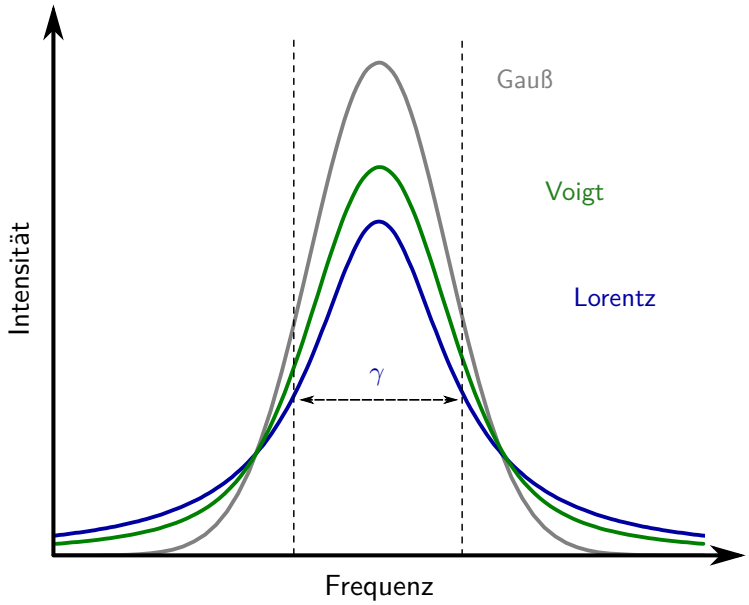

Abbildung 2.6.: Vergleich der im Text beschriebenen Linienprofile einer Gauß-, Lorentz- und Voigt-Funktion mit derselben Halbwertsbreite (Abk.: FWHM), welche durch die gestrichelten Linien gekennzeichnet ist. Im Vergleich zur Lorentz-Kurve fällt die Gauß-Funktion bei gleicher FWHM in den Randbereichen deutlich schneller gegen Null.

welche die Lebensdauer des elektronischen Übergangs in einer gleichmäßigen (d. h. homogenen) Weise für alle verschiedenen Zustände beeinflussen. Dies führt dazu, dass unabhängig vom Ort der Anregung innerhalb des Halbleiters alle Übergänge die gleiche Verbreiterung um dieselbe Übergangsfrequenz ω_0 besitzen.[73] Die Intensitätsverteilung einer homogen verbreiterten Linie folgt einer Lorentz-Funktion. Einer der möglichen Mechanismen ist die spontane Emission, weshalb die natürliche Linienbreite ein Beispiel für eine homogene Linienverbreiterung ist. Darüber hinaus führen Streuprozesse zu sogenannten homogenen Stoßverbreiterungen. Hierbei können die angeregten Zustände beispielsweise mit anderen Ladungsträgern wie Exzitonen oder freien Elektron-Loch-Paaren kollidieren.[70] Die Ladungsträgerstreuung führt zu einem Energieaustausch und wird durch die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Teilchen verursacht. Neben der Stoßverbreiterung durch Ladungsträger hat auch die Kopplung der Oszillatoren an die Gitterschwingungen (Phononen) der Kristallmatrix Auswirkungen auf die spektrale Linienbreite. Die homogene Verbreiterung durch Streuprozesse mit Phononen ist herkömmlicherweise temperaturabhängig.[75] Als anschauliches Beispiel sei hier die thermische Linienverbreiterung zu nennen. Mit zunehmender Gittertemperatur führen die Kristallatome vermehrt thermische Bewegungen um ihre Ruhelage aus, welche Schwingungen des Kristallgitters bewirken. Demzufolge steigt die Anzahl der Phononen innerhalb des Kristalls, sodass Streuprozesse bei hohen Temperaturen zu starken Linienverbeiterungen führen. Die temperaturabhängige Verteilung der akustischen (AC) und optischen (LO) Phononen wird durch die Bose-Einstein-Verteilung beschrieben. Bei niedrigen Temperaturen und Anregungsdichten dominiert die Wechselwirkung mit den energieärmeren akustischen Phononen.[76,77] Im Gegensatz dazu ist die LO-Phononenergie deutlich größer und Kollisionen mit optischen Phononen gewin-

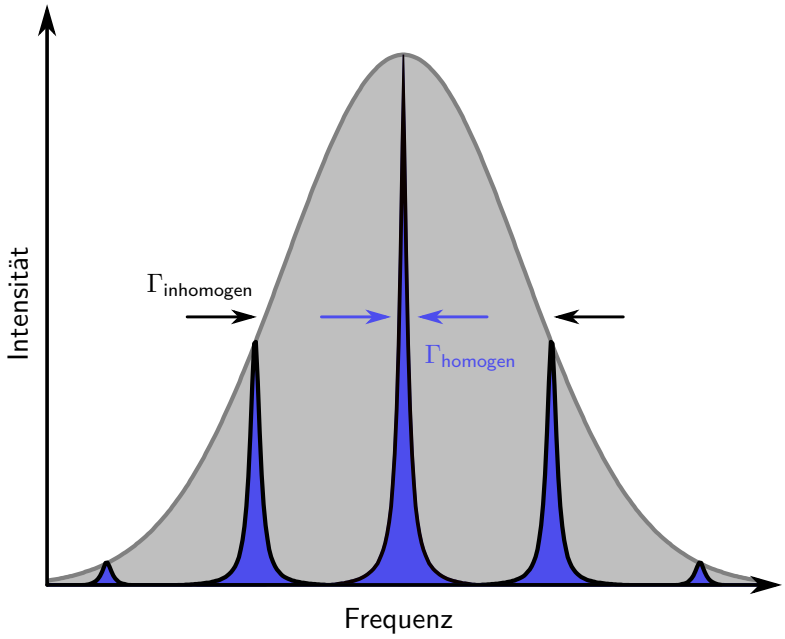

Abbildung 2.7.: Schematische Darstellung der Verteilung der Oszillatorfrequenzen in einem inhomogenen System (grau). Insbesondere Schichtdickenfluktuationen, Kristalldefekte sowie Verunreinigungen führen zu lokalen Veränderungen des Potentials, welche die Energien der optischen Übergänge und dementsprechend die Oszillatorfrequenzen beeinflussen. Die Folge sind Oszillatoren mit unterschiedlichen Eigenfrequenzen, welche repräsentativ durch die blauen Kurven gekennzeichnet sind.[79] Die Überlagerung aller Resonanzen führt zu einem spektral verbreiterten Linienprofil, dessen Halbwertsbreite größer als jene der einzelnen Resonanzen ist.

nen erst bei erhöhten Temperaturen zunehmend an Bedeutung.[70] Durch temperaturabhängige Bestimmungen der homogenen Linienbreite können die einzelnen Beiträge der unterschiedlichen Phononen ermittelt werden.[78]

Im allgemeinen Fall treten verschiedene homogene Verbreiterungsprozesse gleichzeitig auf. Hierbei ergibt sich die Gesamtverbreiterung der Intensitätsverteilung $I(\omega_0)$ aus der Addition der einzelnen lorentzförmigen Linienverbreiterungen.[73] Die homogene Linienverbreiterung und ihre Verknüpfung mit der Dephasierungszeit T_2 stellt eine zentrale Rolle in dieser Arbeit dar und wird in Abschnitt 2.3 ausführlich behandelt.

Inhomogene Linienverbreiterung

Inhomogene Linienverbreiterungen treten auf, wenn mehrere Resonanzen mit unterschiedlichen Frequenzen vorliegen. In diesem Fall schwingen die einzelnen Oszillatoren nach der optischen Anregung mit leicht unterschiedlichen Eigenfrequenzen, sodass sich mit der Zeit eine Phasenverschiebung zwischen den Einzelsystemen entwickelt. Insgesamt geht somit die Netto-Phasenbeziehung des Gesamtsystems und damit verbunden die makroskopische Polarisation verloren.[20] Inhomogene Linienverbreiterungen werden beispielsweise durch Kristalldefekte, Verunreinigungen, Konzentrationsfluktuationen der Materialzusammensetzung oder Verspannungen durch Gitterfehlanpassungen im Kristall verursacht und sind somit signifikant von der

Probenqualität abhängig. In Halbleiterheterostrukturen spielen Unebenheiten der Grenzflächen eine besonders wichtige Rolle. Grenzflächenrauigkeiten werden durch Schwankungen der Quantenfilmdicke um eine oder mehrere Atomgrößen verursacht.[80] Schichtdickenfluktuationen resultieren in einer Variation der exzitonischen Eigenenergien innerhalb des Quantenfilms. Diese wiederum führen zu leicht verschiedenen optischen Übergängen mit variierenden Frequenzen, deren Überlagerung schlussendlich zu einer erhöhten Linienbreite führt (siehe Abbildung 2.7).

Es sei darauf hingewiesen, dass Grenzflächenrauigkeiten und Streuprozesse an Kompositionsfluktuationen nicht automatisch eine inhomogene Verbreiterung verursachen. Vielmehr führen sie abhängig von ihrer lateralen Ausdehnung zu unterschiedlichen Verbreiterungsprozessen. Grenzflächenrauigkeiten und Kompositionsfluktuationen der Materialzusammensetzung mit einer lateralen Ausdehnung $X \ll 2 \cdot a_{exc}$ verursachen eine homogene Verbreiterung, wohingegen Unregelmäßigkeiten mit $X \gg 2 \cdot a_{exc}$ eine inhomogene Verbreiterung bewirken.[81] Das Intensitätsprofil $I(\omega)$ der inhomogenen Linienverbreiterung wird näherungsweise durch eine Gauß-Funktion charakterisiert. Treten zwei inhomogene Prozesse auf, setzt sich die Linienbreite $\Delta\nu$ der resultierenden Gauß-Funktion durch die Linienbreiten ($\Delta\nu_1$, $\Delta\nu_2$) der einzelnen Gauß-Linien wie folgt zusammen: $\Delta\nu = \sqrt{\Delta\nu_1^2 + \Delta\nu_2^2}$.[73]

In der Regel ist ein optischer Übergang sowohl homogen als auch inhomogen verbreitert. Der Intensitätsverlauf wird in diesem Fall durch eine Faltung einer Gauß- und einer Lorentz-Funktion beschrieben. Die resultierende Linienform wird als Voigt-Profil bezeichnet.[74] Alle drei Linienformen sind zum Vergleich in Abbildung 2.6 dargestellt.

2.3. Vier-Wellen-Mischen

Die Vier-Wellen-Mischung oder das Vier-Wellen-Mischen (Abk.: VWM) ist ein nichtlineares optisches Verfahren der Ultrakurzzeitspektroskopie. Diese Methode wird insbesondere zur Untersuchung von Effekten des kohärenten Regimes nach einer optischen Anregung eingesetzt. Durch die Erzeugung laserinduzierter Gitter ermöglicht das Vier-Wellen-Mischen unter anderem die Analyse der zeitlichen Dynamik der im Halbleiter induzierten makroskopischen Polarisation. Die theoretische Modellierung der Vier-Wellen-Misch-Signale kann über die Halbleiter-Bloch-Gleichungen erfolgen. Unter Berücksichtigung höherer Korrelationsterme können Effekte wie die anregungsinduzierte Dephasierung oder das Auftreten von Photonechos in die theoretische Beschreibung miteinbezogen werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wird die Vier-Wellen-Mischung eingesetzt, um zum einen die Diffusion angeregter Ladungsträger in verschiedenen Halbleiterquantenfilmen zu beobachten. Zum anderen wird das Dephasierungsverhalten unterschiedlicher Polarisationen (Exzitonen, Biexzitonen, freie Elektronen und Löcher) in Halbleiterheterostrukturen analysiert. Da im folgenden Abschnitt die Methode des Vier-Wellen-Mischens am Beispiel der Experimente zur Dephasierung veranschaulicht werden soll, wird zunächst der Begriff der Dephasierung näher beschrieben.

2.3.1. Dephasierung

Trifft das kohärente elektromagnetische Feld eines Laserpulses auf ein Halbleitermaterial, entsteht eine makroskopische Polarisation innerhalb des Mediums. Dabei schwingen die angeregten

Oszillatoren mit der Frequenz des Erregerimpulses und einer festen Phasenbeziehung zum treibenden Lichtfeld. Solange das Ensemble der angeregten Zustände mit der anfänglichen Phase schwingt, wird das System als kohärent bezeichnet.[70] Nach der optischen Anregung können verschiedene Effekte zu einem Zerfall der Phasenbeziehung der mikroskopischen Dipole führen. Dabei bezeichnet man den Verlust der sogenannten Phasenkohärenz als Dekohärenz oder *Dephasierung*. Eine charakteristische Größe in diesem Zusammenhang ist die Dephasierungszeit T_2. Sie gibt diejenige Zeit an, innerhalb derer der Anteil der Polarisation, der noch in Phase mit dem Laserpuls ist, auf $1/e$ abgefallen ist.[20] Anschließend sind die Oszillatoren vom anregenden Lichtfeld entkoppelt und schwingen mit einer willkürlichen Phase φ_r.[70] Die Dephasierung führt zur Ausbildung einer Population freier oder gebundener Elektronen und Löcher, welche anschließend in energetisch niedrigere Zustände relaxieren und strahlend oder nichtstrahlend rekombinieren.

In einem nicht mit seiner Umgebung wechselwirkenden System tragen lediglich Interbandrelaxationsprozesse der Polarisationen zur Dephasierung bei, welche durch eine (intrinsische) T_1^*-Zeit des Materialsystems beschrieben werden. Reemissionsprozesse reduzieren die Anzahl der angeregten Oszillatoren und führen dementsprechend zu einem Zerfall der makroskopischen Polarisation.[82] In der Regel treten jedoch Wechselwirkungen zwischen dem angeregten System und seiner Umgebung auf, welche die anfängliche Phase der Oszillatoren ändern. Ursächlich dafür sind unter anderem Streuprozesse mit unterschiedlichen Kollisionspartnern. Insgesamt führen sie – wie in Abbildung 2.8 veranschaulicht – zum Verlust der Phasenkohärenz. Die Zeit zwischen der optischen Anregung eines Ladungsträgers und seinem ersten Streuprozess bezeichnet man als pure Dephasierungszeit T_2^*. Die Dynamik der kohärenten exzitonischen Polarisation wird somit durch zwei grundlegende Parameter charakterisiert: Der strahlenden Lebenszeit des angeregten Zustandes T_1^* und der puren Dephasierungszeit T_2^*. Die effektive Dephasierungszeit T_2 ist somit gegeben durch:[20,82]

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1^*} + \frac{1}{T_2^*} \tag{2.9}$$

Es sei darauf hingewiesen, dass die T_1^*-Zeit in der Literatur häufig mit der Populationslebensdauer T_1 gleichgesetzt wird. Dabei beschreibt T_1^* die strahlende Lebensdauer der exzitonischen Polarisationen mit $\mathbf{k} \sim 0$. In GaAs-artigen Systemen liegt die T_1^*-Zeit im Bereich von $\sim 10\,\mathrm{ps}$.[83,84,85] Durch Streuprozesse dephasieren die kohärenten Polarisationen in Exzitonen, welche nicht-strahlende Zustände ($|\mathbf{k}| > \frac{\omega \cdot n}{c}$) besetzen. Anschließend können diese über weitere Streuprozesse zurück in strahlende Zustände gelangen, ehe sie strahlend rekombinieren.[83] Die Populationslebensdauer dieser thermalisierten Exzitonen wird durch T_1 beschrieben, welche typischerweise im Bereich einiger hundert Piko- bis Nanosekunden liegt und somit um ein Vielfaches größer als die T_1^*-Zeit ist.[20,42,86]

Typische exzitonische Dephasierungszeiten in Quantenfilmen liegen im einstelligen Pikosekundenbereich[52,76,77,87], sodass gemeinhin angenommen werden kann:[70]

$$T_1^* > T_2^* \rightarrow T_2 \sim T_2^* \tag{2.10}$$

Da die Dephasierungszeit durch den kürzeren der beiden Zerfallsmechanismen dominiert wird, wird der Prozess der Dephasierung gewöhnlicherweise primär durch Streuprozesse verursacht.

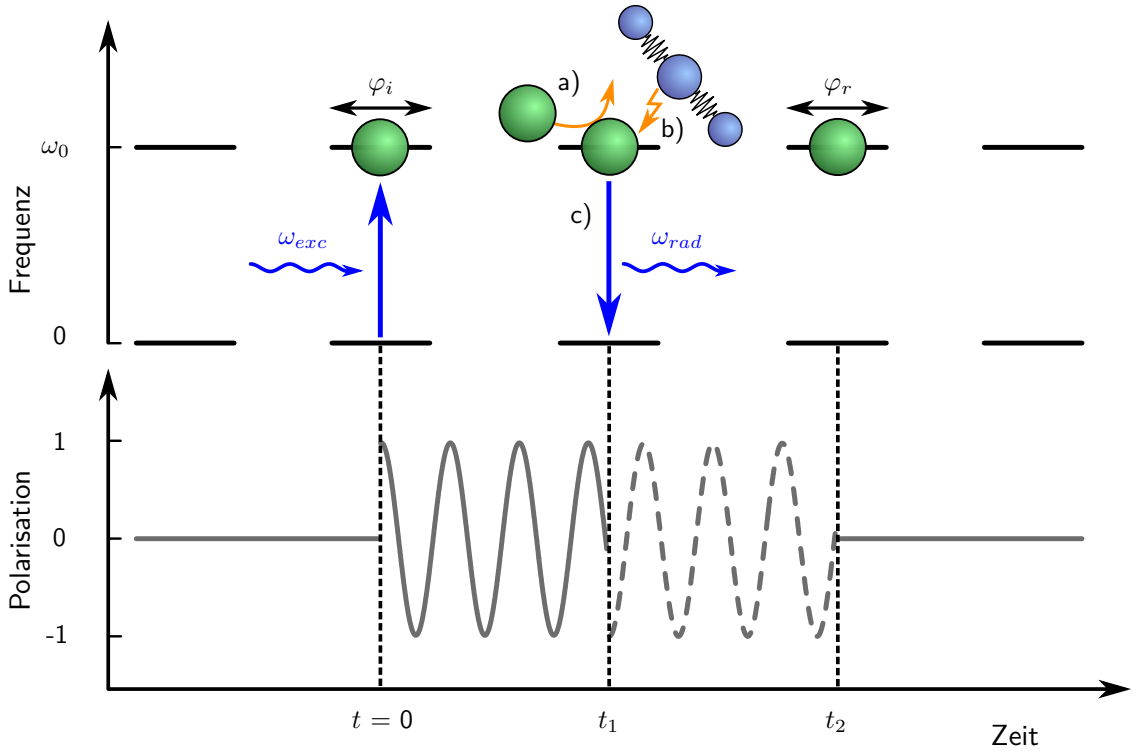

Abbildung 2.8.: Schematische Darstellung des Verlusts der mikroskopischen Polarisation innerhalb eines Halbleitermaterials. Zum Zeitpunkt $t = 0$ trifft das elektromagnetische Feld eines Laserpulses auf den Halbleiter. Entspricht die Photonenergie E_{exc} einem optischen Übergang im Material, wird der einfallende Lichtpuls absorbiert und die Oszillatoren zu Schwingungen mit der Erregerfrequenz ω_{exc} und einer wohldefinierten Phasenbeziehung angeregt. Die einzelnen mikroskopischen Polarisationen summieren sich auf zu einer makroskopischen Polarisation innerhalb des Materials. Zum Zeitpunkt t_1 führen Streuprozesse mit a) anderen Oszillatoren oder Ladungsträgern oder b) Phononen zum Verlust der Phasenbeziehung zwischen der Polarisation und dem treibenden Lichtfeld. Die einzelnen Oszillatoren schwingen nun mit einer willkürlichen Phase φ_r (gestrichelte Linie). Neben Streuprozessen kann auch c) die spontane Emission der Oszillatoren zur Dephasierung beitragen. Dies führt im Gegensatz zu Streuprozessen zum instantanen Verlust der mikroskopischen Polarisation. Nach einer Zeit t_2 ist die mikroskopische Polarisation im Material zerfallen. Abbildung angelehnt an [70].

Obgleich die strahlende Lebenszeit der exzitonischen Polarisation für die in dieser Arbeit untersuchten Proben nicht bekannt ist, liegen die T_1^*-Zeiten eines ähnliches Materialsystems (GaAs) im Bereich $\sim 10\,\mathrm{ps}$, sodass auch für das untersuchte Materialsystem $T_2 \sim T_2^*$ angenommen wird.

Im Allgemeinen lassen sich die zur Dephasierung beitragenden Streuprozesse in drei Kategorien unterteilen: Ladungsträger-Streuung, Streuung mit Phononen und Streuung an Verunreinigungen oder strukturellen Defekten in der Halbleiterprobe. Diese Mechanismen werden im Folgenden kurz diskutiert.

Ladungsträger-Streuung

Kollisionen mit Exzitonen und anderen elektronischen Anregungen führen zu einem Verlust der Phasenbeziehung.[88] Da sich die Stoßprozesse mit steigender Anzahl an Ladungsträgern im Material häufen, sinkt die Dephasierungszeit mit zunehmender optischer Anregung oder Dotierung im System.[20] Durch Vier-Wellen-Misch-Experimente mit einem Vorpuls können Streuprozesse zwischen verschiedenen kohärenten Polarisationen und unterschiedlichen Ladungsträgerarten untersucht werden (siehe Kapitel 5).

Streuung mit Phononen

Bei niedrigen Anregungsdichten wird die Dephasierung hauptsächlich durch Stöße mit Phononen hervorgerufen. Bei tiefen Temperaturen überwiegt die (quasi-) elastische Streuung mit akustischen Phononen.[70] Mit zunehmender Temperatur steigt die Streuwahrscheinlichkeit mit optischen Phononen. Da die LO-Phononenergien ($\sim 36\,\mathrm{meV}$) deutlich größer als typische Exzitonbindungsenergien ($\sim 10\,\mathrm{meV}$) in GaAs-Quantenfilmen sind, führen Streuprozesse mit optischen Phononen in der Regel zu einer Dephasierung der exzitonischen Polarisation in ein freies Elektron und Loch. Die Dekohärenz äußert sich durch einen schnellen Zerfall der Phasenbeziehung innerhalb von 300 fs bei Raumtemperatur.[82,89]

Streuung mit strukturellen Defekten

Streuprozesse an Grenzflächenrauigkeiten und (anderen) strukturellen Defekten haben große Auswirkung auf den Erhalt der makroskopischen Polarisation in Halbleiterheterostrukturen. Insbesondere Grenzflächenunebenheiten stellen in Mehrfachquantenfilmen den dominanten Streuprozess bei tiefen Temperaturen dar.[90,91] Die zusätzlich zur Verfügung stehenden Streukanäle führen zu einer Reduktion der Dephasierungszeit. Neben Grenzflächenrauigkeiten beeinflussen Kompositionsfluktuationen innerhalb der Quantenfilme und Barriereschichten die Kohärenz der angeregten Zustände. Durch Experimente an 20 nm breiten ternären (InGa)As/(InAl)As-Quantenfilmen kann der Einfluss zusätzlicher Materialkomponenten auf die Dephasierungszeit untersucht und mit der Dephasierungszeit in GaAs-Quantenfilmen verglichen werden.[82] Dazu wurden zeit-aufgelöste Vier-Wellen-Misch-Experimente bei Heliumtemperaturen durchgeführt. Es zeigt sich, dass sich die Dephasierungszeit durch zusätzliche Materialkomponenten massiv verkürzt. In diesem speziellen Fall kann eine T_2-Zeit in den ternären Quantenfilmen von $\sim 530\,\mathrm{fs}$ ermittelt werden, während die Dephasierungszeit im Falle der GaAs-Quantenfilme mehr als das Zehnfache beträgt.

Zusammenhang mit der homogenen Linienbreite

Wie in Unterabschnitt 2.2.5 bereits erläutert, führt die endliche Lebensdauer T_1^* des Zustandes zu einer natürlichen (homogenen) Linienbreite. Streuprozesse mit Gitterschwingungen oder angeregten Ladungsträgern verursachen ebenfalls eine homogene Verbreiterung der Spektrallinie. Beide Prozesse sind durch Gleichung 2.9 über die Dephasierungszeit T_2 miteinander verknüpft. Wird die in Gleichung 2.10 formulierte Annahme berücksichtigt, dass die strahlende Rekombinationszeit T_1^* herkömmlicherweise deutlich größer ist als die pure Dephasierungszeit T_2^* ($T_1^* > T_2^*$), ist die homogene Linienbreite eines Übergangs hauptsächlich eine Folge von Streuprozessen.[70] Das bedeutet, dass die effektive Dephasierungszeit T_2 die resultierende homogene Verbreiterung eines optischen Übergangs bestimmt, wobei gilt:[20,74]

$$\Gamma_{homogen} = \frac{2\hbar}{T_2} \tag{2.11}$$

Wie in Kapitel 5 ersichtlich wird, sind lineare Spektroskopieverfahren häufig nicht geeignet, um anhand der Linienverbreiterung Rückschlüsse auf die Dephasierungszeit zu erhalten. Das Problem hierbei ist, dass häufig homogene und inhomogene Verbreiterungen vorliegen, sodass die spektrale Breite des optischen Übergangs nur eine untere Grenze für die Dekohärenzzeit liefert.[20] Im Gegensatz dazu erlauben Vier-Wellen-Misch-Experimente zwischen homogener und inhomogener Verbreiterung zu differenzieren und die Dephasierungszeit T_2 einzelner Oszillatoren auch bei inhomogener Verbreiterung abzuleiten.[20,40,92] Überdies können die Beiträge verschiedener Streupartner zur Phasenrelaxation anhand ihrer unterschiedlichen Temperatur- und Dichteabhängigkeiten bestimmt werden.[76,77,81,88,93,94]

2.3.2. Methode des Vier-Wellen-Mischens

Das lineare und nichtlineare optische Verhalten eines Materials lässt sich im Allgemeinen durch den Zusammenhang zwischen dem elektrischen Feld **E** einer auf das Medium treffenden elektromagnetischen Welle und der dadurch induzierten Polarisation **P** des Mediums beschreiben. Der lineare Anteil der Polarisation $\mathbf{P}^{(1)}$ des Mediums ist gegeben durch:[95]

$$\mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{r},t) = \int \chi^{(1)}(\mathbf{r}-\mathbf{r}_1, t-t_1)\mathbf{E}(\mathbf{r}_1,t_1)d\mathbf{r}_1 dt_1 \tag{2.12}$$

Der $\chi^{(1)}$-Term wird als lineare elektrische Suszeptibilität bezeichnet. Er beschreibt die lineare Antwort des Systems und ist somit für die Absorption und den Brechungsindex des Materials verantwortlich.[96] Unter Berücksichtigung der nichtlinearen optischen Antwort lässt sich die Polarisation in einen linearen Anteil ($\mathbf{P}^{(1)}_{linear}$) und einen nichtlinearen (Abk.: NL) Anteil ($\mathbf{P}^{(n>1)}_{NL}$) aufspalten. Der nichtlineare Anteil wird in Potenzen von **E** erweitert. In abgekürzter Vektorschreibweise lässt sich die Polarisation wie folgt darstellen:[95]

$$\begin{aligned}
\mathbf{P}(\mathbf{r},t) &= \mathbf{P}^{(1)}_{linear} + \mathbf{P}^{(n>1)}_{nichtlinear} \\
\mathbf{P}(\mathbf{r},t) &= \chi^{(1)}\cdot\mathbf{E} + \chi^{(2)}\cdot\mathbf{E}\cdot\mathbf{E} + \chi^{(3)}\cdot\mathbf{E}\cdot\mathbf{E}\cdot\mathbf{E} + \chi^{(4)}\cdot\mathbf{E}\cdot\mathbf{E}\cdot\mathbf{E}\cdot\mathbf{E} + \ldots \\
\mathbf{P}(\mathbf{r},t) &= \mathbf{P}^{(1)}_{linear}(\mathbf{r},t) + \mathbf{P}^{(2)}_{NL}(\mathbf{r},t) + \mathbf{P}^{(3)}_{NL}(\mathbf{r},t) + \mathbf{P}^{(4)}_{NL}(\mathbf{r},t) + \ldots
\end{aligned} \tag{2.13}$$

Im allgemeinen Fall anisotroper Medien sind die Suszeptibilitäten χ Tensoren (n+1)-ter Stufe. Vier-Wellen-Mischen gehört zu den nichtlinearen optischen Prozessen dritter Ordnung. Typischerweise treffen hierbei drei elektromagnetische Wellen mit den elektrischen Feldern $\mathbf{E}_1$, $\mathbf{E}_2$ und $\mathbf{E}_3$ auf das zu untersuchende Material. Durch die nichtlineare Wechselwirkung der drei Felder wird eine Polarisation dritter Ordnung $\mathbf{P}_{NL}^{(3)}$ erzeugt, welche zur Emission einer vierten elektromagnetischen Welle führt.

Um den nichtlinearen Prozess des Vier-Wellen-Mischens anschaulich zu beschreiben, verwendet man herkömmlicherweise die vereinfachte Darstellung eines Zwei-Niveau-Systems bestehend aus einem Grundzustand und einem angeregten Zustand. Ein zum Übergang resonanter Puls erzeugt zum Zeitpunkt t_1 eine kohärente Polarisation $\mathbf{P}_1(t_1 = 0)$ innerhalb der Probe. Da der Puls mit Wellenvektor $\mathbf{k_1}$ in einem Winkel auf die Probe trifft, hängt die Phase der induzierten Kohärenz von der räumlichen Lage innerhalb der Probe ab.[40] Aufgrund phasenzerstörender Streuprozesse mit Ladungsträgern (z. B. Exzitonen), Phononen oder anderen Oszillatoren kommt es zu einem Verlust der globalen Phasenkohärenz mit der Dephasierungszeit T_2. Nach einer variablen Verzögerungszeit T_{12} trifft ein zweiter und zum ersten Anregungspuls kohärenter Puls mit Wellenvektor $\mathbf{k}_2$ zum Zeitpunkt t_2 auf denselben Probenort. Ebenso wie der erste erzeugt auch der zweite Puls eine Polarisation $\mathbf{P}_2(t_2 = T_{12})$, die mit dem verbleibenden kohärenten Anteil des ersten Pulses interferiert. Dabei wandelt er die bestehende Kohärenz in eine Besetzung des Grund- bzw. angeregten Zustands um, welche von der Phasenbeziehung zwischen den beiden Pulsen abhängt. An Orten, an denen der zweite Puls mit der induzierten Kohärenz in Phase ist, interferieren die Wellen konstruktiv und erzeugen eine Population des angeregten Zustandes. Dies ist schematisch in Abbildung 2.9 veranschaulicht. Destruktive Interferenz an Orten, an denen entgegengesetzte Phasen vorliegen, führt wiederum zu einer Population des Grundzustandes. Durch den Winkel α zwischen den beiden Pulsen, besitzt die räumlich modulierte Population des angeregten Zustands eine sinusförmige Modulation mit Gittervektor $\mathbf{G} = \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$.[40] Die Absorption ist für Orte angeregter Zustände stark reduziert, während sie für Orte im Grundzustand hoch ist. Die räumlich modulierte Zustandspopulation hat dadurch eine räumlich variierende Absorption zur Folge. Da die Modulation sinusförmig ist, kann sie wie ein Beugungsgitter fungieren. Die Gitterkonstante Λ des Gitters ist abhängig von der Wellenlänge λ der gitterschreibenden Pulse und dem Winkel α zwischen den beiden optischen Pulsen und gegeben durch:[20]

$$\Lambda = \frac{\lambda}{2\sin(\alpha/2)} = \frac{2\pi}{\mathbf{G}} \tag{2.14}$$

Ein optisches Gitter, das durch die Interferenz zweier Laserstrahlen entsteht, bezeichnet man als laserinduziertes Gitter (engl.: *laser-induced grating*, Abk.: LIG).[20]

Die Bezeichnung des Vier-Wellen-Mischens rührt daher, dass üblicherweise ein dritter (zeitlich verschobener) Puls auf die Probe gelenkt und am Gitter abgebeugt wird. Der am Gitter abgebeugte (vierte) Puls kann beispielsweise mit einer Photodiode detektiert werden. Bei einer Zwei-Puls-Konfiguration in Selbstbeugungsgeometrie (engl.: *self-diffraction*) bildet der zweite Puls das optische Gitter und wird an dem selbstgeschriebenen Gitter in die Richtungen $\mathbf{k}' = \mathbf{k}_2 \pm \mathbf{G} = \mathbf{k}_2 \pm (\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1)$ abgebeugt. Insgesamt dient er somit sowohl als „zweiter“ als auch als „dritter“ Puls. Dementsprechend kann ein abgebeugtes Signal nur detektiert werden, wenn die Verzögerungszeit T_{12} kleiner als die Dephasierungszeit T_2 ist. Nur in diesem Fall ist

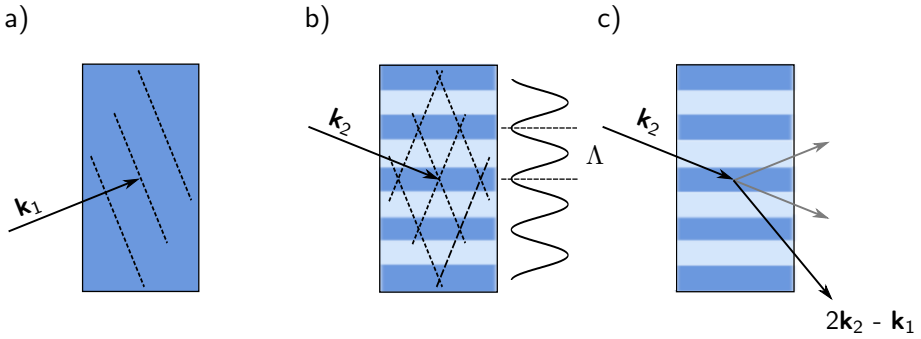

Abbildung 2.9.: Schematische Illustration eines Vier-Wellen-Misch-Experiments in Selbstbeugungsgeometrie nach [40]. a) Der mit dem Wellenvektor $\mathbf{k}_1$ auf die Probe treffende Laserpuls erzeugt eine makroskopische Polarisation im Halbleitermaterial. Die gestrichelten Linien stellen die Punkte gleicher Phase (Wellenfronten) dar. b) Nach einer variablen Verzögerungszeit T_{12} trifft ein zweiter und zum ersten Anregungspuls kohärenter Puls mit Wellenvektor $\mathbf{k}_2$ auf die Probe. Die Polarisation des zweiten Pulses interferiert mit dem Anteil der noch vorhandenen Polarisation des ersten Pulses. Dies führt zur Ausbildung einer Ladungsträgerpopulation im angeregten Zustand (dunkelblaue Bereiche) sowie des Grundzustandes (hellblaue Bereiche). c) Das auf diese Weise erzeugte Populationsgitter beeinflusst die Absorption des Halbleitermaterials, sodass in der Selbstbeugungsgeometrie ein Teil des zweiten Pulses an dem Gitter in Richtung $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ abgebeugt wird und mithilfe einer Photodiode detektiert werden kann.

bei der Ankunft des zweiten Pulses noch ein Teil der kohärenten Polarisation des ersten Pulses vorhanden, sodass sich ein Interferenzgitter bilden kann. Eine exakte Energieerhaltung der ein- und ausfallenden Wellen ist in Richtung $\mathbf{k}_1$ gegeben. In dieser Richtung ist die Detektion des abgebeugten Signals jedoch unvorteilhaft, da es mit dem starken Signal der linearen optischen Antwort überlagert ist. Herkömmlicherweise wird das abgebeugte Signal aus diesem Grund in der Richtung der ersten positiven Beugungsordnung $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ detektiert.[20,97] In dieser Richtung ist die Impulserhaltung der ein- und auslaufenden Wellen jedoch nicht erfüllt, wodurch eine sogenannte Phasenfehlanpassung $\Delta\mathbf{k}$ entsteht. Da das Vier-Wellen-Mischen ein phasensensitiver Vorgang ist, resultiert die Phasenfehlanpassung in einer reduzierten VWM-Intensität.[98] Häufig nimmt die Beugungsamplitude mit zunehmender Ordnung ab.[20]

Die Polarisation der angeregten Zustände oszilliert mit einer Frequenz ω und einer zeitlich abfallenden Amplitude, deren Einhüllende nach $\mathbf{P}_{NL}^{(3)}(t) = \exp^{-t/T_2}$ eine Exponentialfunktion mit der Zeitkonstanten T_2 beschreibt. Die Amplitude des von der nichtlinearen Polarisation $\mathbf{P}_{NL}^{(3)}$ abgestrahlten elektrischen Feldes $\mathbf{E}_{FWM}$ zeigt denselben zeitlichen Verlauf wie die Polarisation selbst.[70,99] Aus diesem Grund kann der exponentielle Polarisationsabfall des Ensembles durch schrittweises Abtasten der Amplitude des emittierten elektrischen Feldes erfasst werden.[70] Dazu wird bei sogenannten zeit-integrierten VWM-Messungen die Intensität des abgebeugten VWM-Signals $I(T_{12}) \sim \mathbf{E}_{FWM}^2$ gemessen und die Verzögerung zwischen den Pulsen T_{12} schrittweise verändert. Die Intensität des zeit-integrierten VWM-Signals ist proportional zu:

$$I(T_{12}) \sim \int_{-\infty}^{\infty} |\mathbf{P}_{NL}^{(3)}(t, T_{12})|^2 dt \tag{2.15}$$

$\mathbf{P}_{NL}^{(3)}$ beschreibt die nichtlineare Polarisation dritter Ordnung, welche ein Produkt aus den beiden Polarisationen erster Ordnung ist.[26]

Da die Änderung des abgebeugten Signals den Verlust der Phasenkohärenz im Material widerspiegelt, ermöglichen VWM-Experimente die Bestimmung der Dephasierungszeit T_2 und damit verbunden der homogenen Linienbreite eines optischen Übergangs.[41]

2.4. Räumliche Ausbreitung angeregter Ladungsträger

Nach der optischen Anregung sind die angeregten Exzitonen bzw. freien Elektron-Loch-Paare in der Lage sich innerhalb des Materials auszubreiten, ehe sie rekombinieren. Die räumliche Ausdehnung der Ladungsträger kann beispielsweise durch Vier-Wellen-Misch-Experimente untersucht werden.[100,101] Eine besonders interessante Fragestellung in diesem Zusammenhang ist das Transportverhalten der Ladungsträger im Material. Im Allgemeinen lässt sich der Ladungsträgertransport in einen ballistischen und diffusiven Transport unterteilen. Im *ballistischen* Transportregime treten keine Streuvorgänge zwischen den einzelnen Teilchen auf. Es beschreibt somit den Zeitbereich zwischen der optischen Anregung der Ladungsträger und dem ersten auftretenden Streuprozess. In dieser Zeit bewegen sich die Ladungsträger mit dem aus der Anregung erhaltenen Impuls durch den Kristall.[102] Der *diffusive* Transport hingegen kennzeichnet sich durch häufig auftretende Streuvorgänge während der räumlichen Ausdehnung. Aus diesem Grund erfahren die Ladungsträger nach jedem Streuprozess eine Richtungsänderung.[102] Als Folge ist in diesem Fall die mittlere-freie-Weglänge eines jeden Ladungsträgers klein gegen die im Kristall zurückgelegte Strecke innerhalb der Ladungsträgerlebensdauer.[26] Da im Rahmen dieser Arbeit der diffusive Transport verschiedener Ladungsträger untersucht wird, beschränkt sich der folgende Abschnitt auf das diffusive Transportregime.

Allgemeine Diffusionsgesetze

Im Allgemeinen bezeichnet die Diffusion eine zufällige Bewegung von Teilchen in einem Raum, die zum Abbau eines bestehenden Konzentrationsgradienten führt. Dabei ergibt sich eine Nettobewegung der Teilchen von Bereichen höherer Konzentration in Bereiche mit niedrigerer Konzentration.[103] Die treibende Kraft des Diffusionsprozesses ist dabei einzig und allein der Konzentrationsunterschied verschiedener Bereiche. Die Beschreibung des diffusiven Transports von Partikeln innerhalb eines Mediums ist auf Adolf Fick und die von ihm aufgestellten Fick'schen Diffusionsgesetze zurückzuführen.[104] Durch die Diffusion der Teilchen im Raum entsteht eine Teilchenstromdichte $j(\mathbf{r})$ am Ort $\mathbf{r}$. Diese beschreibt die Anzahl der Teilchen, die pro Zeiteinheit eine senkrecht zur Diffusionsrichtung ausgerichtete Referenzfläche passieren. Im dreidimensionalen Fall lässt sich das Erste Fick'sche Gesetz beschreiben durch:[24]

$$j(\mathbf{r}) = -D\nabla c(\mathbf{r}) \tag{2.16}$$

Die zeitlich konstante Diffusionsstromdichte $j(\mathbf{r})$ ist somit abhängig vom Konzentrationsgradienten $\nabla c(\mathbf{r})$. Der Proportionalitätsfaktor zwischen der Teilchenstromdichte und dem Konzentrationsgradienten wird als Diffusionskonstante D bezeichnet. In anisotropen Kristallen können

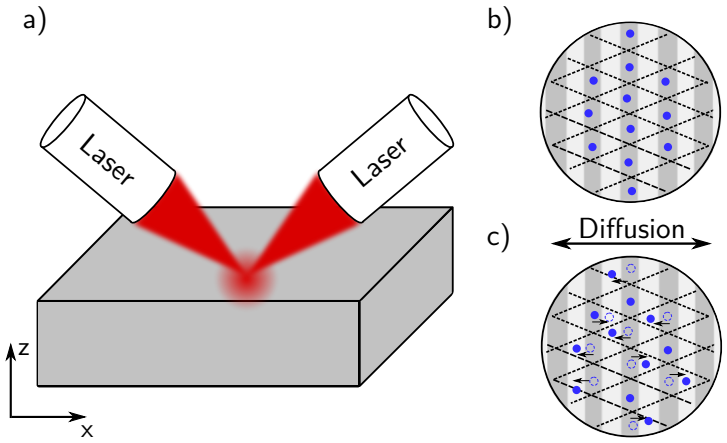

Abbildung 2.10.: Schematische Darstellung der Ladungsträgerdiffusion. a) Die Interferenz zweier Laserpulse führt zu einem Populationsgitter innerhalb des Halbleitermaterials (roter Kreis). b) Bildet den als Kreis dargestellten Bereich vergrößert ab. Hierbei handelt es sich um einen Schnitt parallel zur x-z-Ebene des dreidimensionalen Populationsgitters. Zunächst ist die Ladungsträgerpopulation (gefüllte Kreise) in den Interferenzmaxima (dunkelgraue Bereiche) konzentriert. c) Um den in x-Richtung vorhandenen Dichtegradienten auszugleichen, diffundieren die Ladungsträger in Bereiche niedrigerer Konzentration. Neben der Rekombination der Ladungsträger führt ihre räumliche Ausbreitung zur Vernichtung des Populationsgitters.

die Diffusionskonstanten richtungsabhängig sein. In diesem Fall wird der skalare Diffusionskoeffizient D zu einer Tensorgröße $\bar{\bar{D}}$.[24]

Aufgrund der Diffusion der Teilchen ist die räumliche Verteilung der Konzentration jedoch zeitabhängig $c(\mathbf{r}, t)$. Die Änderung der Konzentration mit der Zeit wird durch die zweite Fick'sche Diffusionsgleichung beschrieben. Sie stellt eine Relation zwischen der zeitlichen Änderung der Konzentration am Ort $\mathbf{r}$ und der räumlichen Variation der Konzentration an diesem Ort auf und ist gegeben durch:

$$\frac{\partial c(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = D\nabla^2 c(\mathbf{r}, t) = D\Delta c(\mathbf{r}, t) \tag{2.17}$$

Hierbei beschreibt Δ den Laplace-Operator.

Ladungsträgerdiffusion in Quantenfilmen

Es ist bekannt, dass eine Ladungsträgerdiffusion innerhalb eines Halbleitermaterials nur stattfindet, wenn eine räumliche Modulation der Ladungsträgerdichte $N(x, t)$ vorliegt. Darüber hinaus hat das vorherige Kapitel verdeutlicht, dass die Interferenz zweier Laserpulse eine periodische Änderung der Dichte angeregter Zustände (Exzitonen, freie Elektron-Loch-Paare) innerhalb des Materials induziert. Demnach eignen sich besonders laserinduzierte Gitterexperimente, um die räumliche Ausdehnung lokal angeregter Ladungsträger zu untersuchen.[105]

Zu dem Zweck die Diffusionseigenschaften angeregter Ladungsträger zu untersuchen, werden

zunächst zwei Pulse zur Erzeugung eines Populationsgitters verwendet. Kurz nach der optischen Anregung besteht die Ladungsträgerdichte $N(x,t)$ infolge der Relaxationsprozesse aus einer inkohärenten Population. Solange die Ladungsträgerdichte räumlich variiert, ist das Halbleitermaterial nicht im Gleichgewicht. Aus diesem Grund reagiert die Ladungsträgerverteilung auf die induzierte inhomogene, aber in x-Richtung periodische Verteilung, um die vorhandenen Dichtegradienten auszugleichen (siehe Abbildung 2.10).[106] Die Angleichung erfolgt grundsätzlich über zwei verschiedene Prozesse. Zum einen verursacht die Rekombination der angeregten Ladungsträger eine Abnahme der Population und damit der Amplitude der Interferenzmaxima.[107] Zum anderen führt die räumliche Ausbreitung der angeregten Zustände von den Orten hoher Ladungsträgerdichte zu Orten niedrigerer Dichte zu einer Vernichtung des Gitters. Im Allgemeinen führt ein Diffusionsprozess zu einem räumlichen „Verschmieren“ der angeregten Ladungsträger. Infolgedessen bleibt das Gitter stationär, während seine Amplitude monoton abnimmt.[105] Aus den soeben beschriebenen Gründen ist es notwendig Gleichung 2.17 durch weitere Terme zu ergänzen. Die zeitliche und räumliche Abhängigkeit der Ladungsträgerdichte $N(x,t)$ ist durch die eindimensionale Diffusionsgleichung gegeben:[105,106,108]

$$\frac{\partial N(x,t)}{\partial t} = \underbrace{D\frac{\partial^2}{\partial x^2}N(x,t)}_{\text{Diffusion}} - \underbrace{\frac{N(x,t)}{T_1}}_{\text{Rekombination}} + \underbrace{G(x,t)}_{\text{Generation}} \tag{2.18}$$

Wobei D den Diffusionskoeffizienten beschreibt. Anders als bei der Beschreibung der Dephasierung ist in diesem Fall die Populationslebensdauer T_1 der angeregten Ladungsträger von Bedeutung. Der Term $G(x,t)$ berücksichtigt die nahezu instantane Generation der Ladungsträger nach der Absorption des Pumplichts. Er ist unter anderem abhängig von der Photonenergie $h\nu$ des Pumplichts sowie der Quanteneffizienz für die Anregung der Ladungsträger aufgrund der einfallenden Pumpphotonen.[105] Üblicherweise gelten folgende Annahmen:

- Da sich die Exzitondiffusion häufig durch eine Zufallsbewegung (engl.: *random walk*[109]) beschreiben lässt, wird angenommen, dass D eine zeitunabhängige Konstante ist.[110]

- Es sollte angemerkt werden, dass hierbei ausschließlich eine diffusive Ladungsträgerbewegung in Betracht gezogen wird. Eine zusätzliche Annahme ist, dass es sich um eine rein isotherme Diffusion handelt. Temperaturgradienten, die durch zusätzliche Thermodiffusionsbeiträge berücksichtigt werden müssten, sind nicht enthalten. Diese Annahme ist gerechtfertigt, da sich Diffusionsprozesse üblicherweise auf großen Zeitskalen im Nanosekundenbereich abspielen. Innerhalb dieser Zeit können die optisch angeregten Ladungsträger mit einer typischen Relaxationszeit von wenigen Pikosekunden thermalisieren.[111]

- Herkömmlicherweise ist die Rekombinationsrate N/T_1 von der Ladungsträgerdichte im System abhängig. Bei hohen Anregungsdichten dominieren nichtlineare Mechanismen wie beispielsweise Auger-Prozesse die Ladungsträgerrekombination. Die Lebensdauer T_1 in Gleichung 2.18 kann dadurch nicht mehr als Konstante angesehen werden. Eine Möglichkeit diese Komplikation zu umgehen, ist die Verwendung geringer Anregungsdichten $N(x,t)$. Darüber hinaus hat sich gezeigt, dass die meisten Experimente zu laserinduzierten Populationsgittern unter Bedingungen ausgeführt werden, unter welchen der

Diffusionszerfall dominiert. In diesen Fällen nimmt die Rekombination der Ladungsträger einen vergleichsweise geringen Einfluss auf die Abklingzeit des Gitters.[105]

Im Zuge der Untersuchungen des Ladungsträgertransports in unterschiedlichen Materialien kommt der sogenannten Ladungsträgerdiffusionslänge L_D eine besondere Aufmerksamkeit zu. Diese beschreibt die mittlere freie Weglänge, die der Ladungsträger innerhalb seiner Lebensdauer T_1 entlang der Gitterrichtung zurücklegt. Die eindimensionale Ladungsträgerdiffusionslänge[103]

$$L_D = \sqrt{\frac{\sum dL_i^2}{N}} = \sqrt{2DT_1} \tag{2.19}$$

ist mit der Diffusionskonstanten D und der Rekombinationszeit T_1 verknüpft. Hierbei beschreiben dL_i die Verschiebung eines Ladungsträgers i von seiner Anfangsposition und N die Anzahl der Exzitonen.

Bestimmung der Diffusionskonstanten

Unter der Voraussetzung, dass der Ladungsträgertransport diffusiv ist[112], zerfällt die Gitteramplitude mit einer Zerfallszeit T_G, welche beschrieben wird durch:[108]

$$\frac{1}{T_G} = \frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_{Diff}} \tag{2.20}$$

Dabei repräsentiert T_1 die Populationslebensdauer und T_{Diff} die diffusive Zerfallszeit. Diese ist abhängig von der Gitterkonstanten Λ innerhalb des Kristalls und dem Diffusionskoeffizienten D der Ladungsträger. Sie ist gegeben durch folgende Gleichung:

$$T_{Diff} = \frac{\Lambda^2}{4\pi^2 D} \tag{2.21}$$

Die Modulationstiefe des Interferenzgitters Δn entspricht der Differenz zwischen den Maxima und Minima der räumlich modulierten Ladungsträgerdichte. Sie kann durch einen am Gitter abgebeugten und zeitverzögerten Puls untersucht werden. Dieser wird als Funktion der Verzögerungszeit zwischen den beiden Anregepulsen und einem dritten Abfragepuls detektiert. Die Abbeugungseffizienz und damit die zeitabhängige Intensität des am Gitter abgebeugten VWM-Signals sind proportional zur Tiefe des Gitters Δn.[107,113] Dies führt zum folgenden Ausdruck der Intensität des abgebeugten Abfragestrahls:[107]

$$I(t) = I_p \left(I_e \Delta n\right)^2 \tag{2.22}$$

Hierbei beschreibt I_p die Intensität des Abfragestrahls, I_e die Intensität der Anregepulse. Da die Tiefe des modulierten Interferenzgitters Δn mit der Zeitkonstanten der Gitteramplitude T_G abklingt, kann der exponentielle Zerfall des VWM-Signals für kurze optische Anregungspulse näherungsweise wie folgt beschrieben werden:[114]

$$I(t) \propto \exp\left(\frac{-t}{T_G}\right)^2 = \exp\left(\frac{-2 \cdot t}{T_G}\right) = \exp\left(\frac{-t}{T_S}\right) \tag{2.23}$$

Unter der Annahme, dass sowohl der Diffusionskoeffizient D als auch T_1 unabhängig von der Dichte $N(x,t)$ sind, gilt für die Zeitkonstante T_S des beobachteten abgebeugten Signals $I(t)$:[114,115]

$$\frac{1}{T_S} = \frac{2}{T_1} + \frac{8\pi^2 D}{\Lambda^2} \tag{2.24}$$

Da die Modulationstiefe von der Gitterkonstanten Λ abhängt, beeinflusst sie ebenso die zeitabhängige Intensität des VWM-Signals. Dies äußert sich in einer Winkelabhängigkeit des abgebeugten Abfragestrahls: Mit größer werdendem Winkel α zwischen den Anregungspulsen $\mathbf{k}_1$ und $\mathbf{k}_2$ und damit kleineren Gitterkonstanten Λ wird die Zerfallszeit des abgebeugten Signals reduziert. Diese Winkelabhängigkeit kann jedoch nur beobachtet werden, wenn die strahlungslose Diffusion der angeregten Zustände der dominante Prozess ist, der die Zerstörung des Gitters herbeiführt.[114] Da die Intensität des VWM-Signals bei schwacher Anregung quadratisch von der Ladungsträgerdichte $N(x,t)$ abhängt, entspricht die Zerfallszeit T_S der Hälfte der Gitterabklingzeit T_G.[105] Zum tieferen Verständnis der Herleitung von Gleichung 2.24 sei auf weitere Literatur verwiesen.[106,107,112,114]

Anhand Gleichung 2.24 kann die Diffusionskonstante der Ladungsträger (Exzitonen, freie Elektron-Loch-Paare) im Material ermittelt werden. Eine Kurzfassung verschiedener experimenteller Methoden zur Diffusionskonstantenbestimmung ist in Kapitel 6 zu finden.

3

Experimentelle Methoden

Im folgenden Kapitel werden die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten experimentellen Techniken vorgestellt. Die Beschreibung umfasst lineare Spektroskopieverfahren wie die lineare Absorption und optische Anrege-Abfrage-Experimente sowie die nichtlineare spektroskopische Methode des Vier-Wellen-Mischens (engl.: *four-wave mixing*, Abk.: FWM).

3.1. Vier-Wellen-Mischen

Es hat sich gezeigt, dass entartete Vier-Wellen-Misch-Experimente (engl.: *degenerate FWM*) eine hilfreiche Methode darstellen, um die Dephasierungszeit makroskopischer Polarisationen in einem Halbleitermaterial zu untersuchen.[76,94,116] Im Allgemeinen unterscheidet man entartetes und nicht-entartetes Vier-Wellen-Mischen. Bei letzterem wird das optische Gitter durch Pulse mit verschiedenen Frequenzen erzeugt, sodass aufgrund optischer Schwebung kein stationäres Gitter vorliegt. Im Rahmen dieser Arbeit werden ausschließlich entartete VWM-Experimente durchgeführt, bei welchen die zur Gittererzeugung verwendeten Pulse die gleiche Photonenergie besitzen.

Zwei-Puls-Konfiguration

Um das Dephasierungsverhalten exzitonischer Polarisationen zu untersuchen, wurde ein VWM-Messplatz in einer sogenannten Zwei-Puls-Konfiguration in Selbstbeugungsgeometrie aufgebaut. Der experimentelle Messaufbau ist schematisch in Abbildung 3.1 dargestellt.

Eine Kombination aus regenerativem Verstärkersystem und optisch parametrischem Verstärker dient als Anregungsquelle. Das regenerative Verstärkersystem[1] liefert eine Ausgangsleistung von maximal 20 W bei einer Zentralwellenlänge von 1030 nm und einer einstellbaren Repetitionsrate bis zu 1 MHz. Für die durchgeführten Experimente wird das Verstärkersystem mit einer Repetitionsrate von 1 MHz betrieben, sodass (von den ursprünglichen 20 W) 15 W für den Betrieb des optisch parametrischen Verstärkers zur Verfügung stehen. Ein optisch parametrischer Verstärker (engl.: *optical parametric amplifier*, Abk.: OPA)[2] erzeugt zunächst die zweite Harmonische (engl.: *second harmonic generation*, Abk.: SHG) des Pumplichts, sodass

[1] Pharos, Light Conversion
[2] Orpheus F, Light Conversion

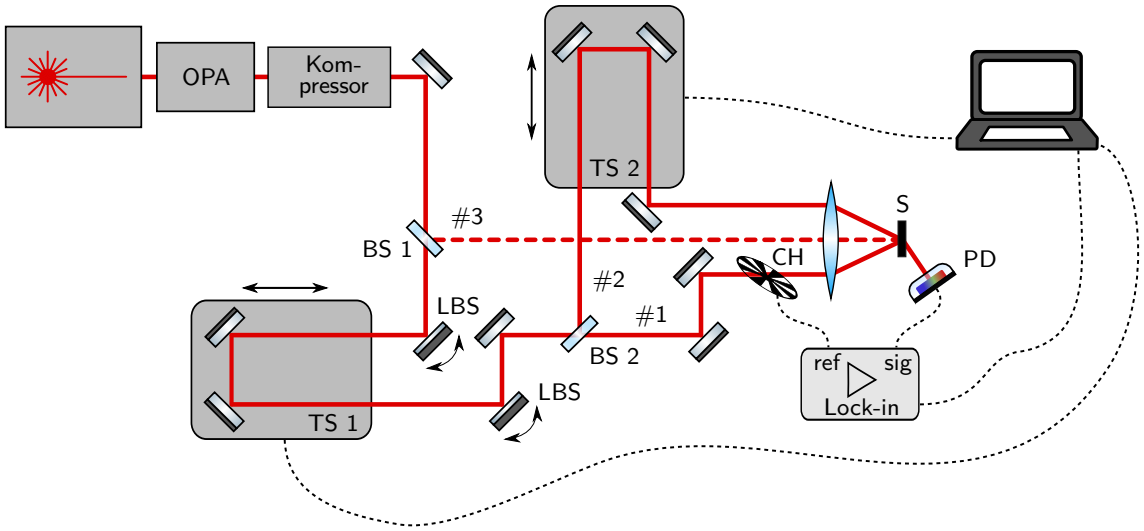

Abbildung 3.1.: Schematische Illustration des Vier-Wellen-Misch-Aufbaus in Selbstbeugungsgeometrie. Die durch ein Verstärkersystem generierten Laserpulse passieren einen optisch parametrischen Verstärker (OPA), ehe sie durch einen Strahlteiler (BS 2) in zwei Teilstrahle (#1, #2) aufgespalten und über eine Linse auf die Probe (S) fokussiert werden. Die Interferenz der makroskopischen Polarisationen durch den Anrege- (#1) und Abfragepuls (#2) erzeugen ein optisches Gitter, an welchem ein Teil des Abfragepulses in Richtung $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ abgebeugt und mit einer Photodiode (PD) detektiert wird. Durch eine Verfahrstrecke (TS 2) kann die Verzögerungszeit T_{12} zwischen den beiden Pulsen iterativ verändert und dadurch der zeitliche Abfall der makroskopischen Polarisation im Halbleiter untersucht werden. Die Verwendung eines Zerhackers (CH) sowie eines Lock-in-Verstärkers verstärkt die VWM-Signale und reduziert das Streulicht. Über einen weiteren Strahlteiler (BS 1) kann ein Teil der Pulse abgelenkt und als Vorpuls (#3) eingesetzt werden. Mithilfe einer zusätzlichen Verfahrstrecke (TS 1) wird der zeitliche Vorsprung des Vorpulses (T_{13}) eingestellt. Schwankungen der Laserpositionen der Anrege- und Abfragepulse werden durch eine aktive Strahlstabilisierung (LBS) ausgeglichen.

Pulse mit einer Wellenlänge von 515 nm entstehen. Anschließend werden die frequenzverdoppelten Pumppulse durch parametrische Verstärkung innerhalb eines nichtlinearen Kristalls in zwei Ausgangspulse mit niedrigeren Frequenzen umgewandelt. Diese werden als Idler und Signal bezeichnet. Aufgrund der Energieerhaltung muss die Summe der Idler- und Signalfrequenzen die Frequenz der Pumppulse betragen. Insgesamt lassen sich durchstimmbare ultrakurze Laserpulse mit Anregungswellenlängen zwischen 630 - 1030 nm (Signal) und 1024 - 2776 nm (Idler) erzeugen. Durch eine anschließende Prismeneinheit (Kompressor) kann der Chirp der Laserpulse ausgeglichen und die Pulsdauern auf weniger als 60 fs (Signal) bzw. 80 fs (Idler) komprimiert werden. Über nichtlineare Prozesse wie der SHG und FHG (engl.: *fourth harmonic generation*, Abk.: FHG) der verschiedenen Signale kann der durchstimmbare Wellenlängenbereich bis in den ultravioletten Bereich erweitert werden. Anschließend passiert der Laser eine Strahlstabilisierung[3], welche potentiell auftretende thermische Drifts innerhalb des Lasers und Schwankungen

[3] Aligna, TEM Messtechnik

durch die Bewegung des Verfahrtisches ausgleicht und dadurch eine präzise Laserstrahlpositionierung über den spektral breiten Anregungsbereich gewährleistet.

Um die für die Zwei-Puls-Konfiguration benötigten Pulse zu erhalten, wird ein Strahlteiler (BS 2) eingesetzt. Dieser teilt den vom OPA kommenden Strahl in zwei Teilstrahlen auf. Einer der beiden Teilstrahlen passiert einen steuerbaren Verfahrtisch (TS 2)[4], um eine zeitliche Verzögerung T_{12} zwischen den Pulsen zu generieren. Die Verfahrstrecke bietet einen Weglängenunterschied von bis zu 200 mm, was einer zeitlichen Verzögerung von etwa 600 ps entspricht. Über mehrere Silberspiegel werden die Strahlen durch den gleichen Achromaten (400 - 1100 nm, f = 80 mm) geleitet und somit auf die Probe fokussiert. Typischerweise sind die Spotgrößen der beiden Pulse bei VWM-Experimenten identisch. Um zu gewährleisten, dass beide Strahlen auf den gleichen Punkt fokussiert werden und beide Spots gleich groß sind, treffen sie parallel mit gleichem Abstand zum Zentrum auf die Linse. Zusätzlich wird der räumliche Überlapp der Strahlen mithilfe einer CCD-Kamera optimiert. Die zeitliche Überlappung beider Pulse ist als $T_{12} = 0$ definiert. Für $T_{12} > 0$ trifft der $\mathbf{k}_1$-Puls ($\#1$) vor dem $\mathbf{k}_2$-Puls ($\#2$) auf das zu untersuchende Material. Hierbei bezeichnen $\mathbf{k}_1$ und $\mathbf{k}_2$ die Wellenvektoren der beiden Pulse. Im Folgenden wird der $\mathbf{k}_1$-Puls auch als Anregepuls bezeichnet, da er eine makroskopische Polarisation im Material erzeugt. Der zeitlich verzögerte $\mathbf{k}_2$-Puls fragt den Anteil der zu diesem Zeitpunkt bestehenden makroskopischen Polarisation innerhalb der Probe ab, weshalb er Abfragepuls genannt wird. Um die Position der Verfahrstrecke zum Zeitpunkt $T_{12} = 0$ zu bestimmen, wird vor Messbeginn ein Bariumboratkristall (Abk.: BBO) an den Probenort positioniert. Anschließend wird der Ankunftszeitpunkt des Abfragepulses über das Verfahren der Verfahrstrecke gesteuert. Sind beide Pulse im zeitlichen Überlapp, erzeugen sie durch nichtlineare Prozesse ein gemeinsames Signal, welches auf einer Karte mit bloßem Auge wahrgenommen oder mit einer Photodiode detektiert werden kann.

Treffen Anrege- und Abfragepuls in kurzen zeitlichen Abständen $< T_2$ nacheinander auf die Probe, wird ein Interferenzgitter erzeugt. Ein Teil des Abfragepulses wird an diesem u. a. in Richtung $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ abgebeugt. Die Detektion des VWM-Signals lässt sich im Allgemeinen in drei Kategorien unterteilen. Im einfachsten Fall wird das abgebeugte Signal als Funktion der Verzögerungszeit T_{12} zwischen den beiden optischen Pulsen gemessen. Dazu wird ein langsamer Detektor verwendet, der das Signal bei der jeweiligen Zeitdifferenz zwischen den $\mathbf{k}_1$- und $\mathbf{k}_2$-Pulsen über die Zeit aufintegriert (engl.: *time-integrated FWM*, Abk.: TI-FWM). In diesem Fall wird das abgebeugte Signal durch eine weitere Linse auf eine Silizium-Photodiode[5] fokussiert. Die Photodiode detektiert Licht in einem Bereich von 350 - 1000 nm mit einer hohen Empfindlichkeit. Eine Blende vor der Linse unterdrückt störendes Hintergrundlicht, welches hauptsächlich durch die Streuung der Anregungspulse an der Probenoberfläche entsteht. Das üblicherweise relativ schwache VWM-Signal wird durch einen Lock-in-Verstärker[6] verstärkt. Dazu wird die Amplitude des Anregestrahls mechanisch durch eine rotierende Sektorblende[7] moduliert. Hierbei spricht man vom Zerhacken (engl.: *chopping*) des Strahls mit einer bestimmten Zerhackerfrequenz (Chopfrequenz), die an den Lock-in-Verstärker weitergegeben wird und dort als Referenz dient. Da der Lock-in-Verstärker nur Signale mit der Zerhackerfrequenz verstärkt, wird der Streulichtanteil des Abfragepulses in den Messungen reduziert.

[4] ACT115DL, Aerotech
[5] DET10A2, Thorlabs
[6] SR830, Stanford Research Systems
[7] MC2000B, Thorlabs

Eine weitere Detektionsvariante stellt das spektral aufgelöste Vier-Wellen-Mischen (engl.: *spectrally-resolved FWM*, Abk.: SR-FWM) dar. Durch die spektral aufgelöste zeit-integrierte Detektion können beispielsweise exzitonische und freie Ladungsträgerbeiträge anhand ihrer unterschiedlichen Signaturen im Signal identifiziert werden.[41,117] Bei TR-FWM (engl.: *time-resolved FWM*, Abk.: TR-FWM) wird die inhärente Zeitabhängigkeit des abgebeugten Signals ermittelt. Typischerweise wird diese durch einen zusätzlichen Referenzpuls und Aufkonversion in einem nichtlinearen Kristall gemessen.

Alle in dieser Arbeit vorgestellten VWM-Messungen werden bei niedrigen Temperaturen ($T \leq 10\,\mathrm{K}$) durchgeführt, um Streuprozesse mit Gitterschwingungen zu unterdrücken. Zu diesem Zweck befindet sich die Probe innerhalb eines Durchflusskryostaten, welcher an eine Vakuumpumpe angeschlossen ist. Diese erzielt Drücke von bis zu $10^{-6}\,\mathrm{mbar}$, sodass Messungen unter Hochvakuumbedingungen durchgeführt werden können. Sobald der Druck unterhalb von $10^{-4}\,\mathrm{mbar}$ gefallen ist, wird der Kühlprozess begonnen. Dazu wird flüssiges Helium mit einer Temperatur von $\sim 4\,\mathrm{K}$ mit Überdruck durch den Kryostaten geleitet. Sogenannte Hitzeschilder (engl.: *heat shield*) innerhalb des Kryostaten schirmen die von Außen einfallende Wärmestrahlung ab, sodass Messungen bei $\sim 10\,\mathrm{K}$ möglich sind. In der Regel bestehen sie aus mit Gold beschichtetem Kupfer, sodass sie zum einen einen hohen Reflexionsgrad für Wärmestrahlung besitzen und zum anderen gute thermische Leitfähigkeiten aufweisen. Mithilfe verschiedener Neutraldichtefilter lässt sich die Laserintensität variieren und somit unterschiedliche Anregungsdichten realisieren.

Zwei-Puls-Konfiguration mit Vorpuls

Die Methode des Vier-Wellen-Mischens bietet die Möglichkeit Streuprozesse zwischen Polarisationen und (verschiedenen) Ladungsträgern im Halbleiter zu untersuchen. Zu diesem Zweck wird ein dritter Laserpuls in den VWM-Messaufbau integriert (siehe Abbildung 3.1). Dieser wird hinter dem Ausgang des optisch parametrischen Verstärkers durch einen Strahlteiler (BS 1) abgespalten und als sogenannter Vorpuls (#3) eingesetzt. Über einen zusätzlichen linear motorisierten Verfahrtisch (TS 1)[8] kann der Ankunftszeitpunkt des Vorpulses mit dem zeitlichen Überlapp der Anrege- und Abfragepulse abgestimmt werden. Zweck des Vorpulses ist es, vor dem Eintreffen der VWM-Pulse Ladungsträger innerhalb der Probe zu generieren. Folglich gilt für die zeitliche Verzögerung zwischen Vor- und Anregepuls $T_{13} < 0$. Wie in Abbildung 3.2 a) schematisch dargestellt, wird das VWM-Signal in Richtung $2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ am Interferenzgitter abgebeugt und weiterhin mit einer Silizium-Photodiode detektiert. Durch die Verwendung verschiedener Neutraldichtefilter im Pfad des Vorpulses können unterschiedliche Ladungsträgersdichten im Halbleitermaterial injiziert werden.

Vier-Wellen-Mischen mit drei Pulsen

Zur Untersuchung der Transporteigenschaften angeregter Ladungsträger wurde das beschriebene Messsystem angepasst. Dazu wurde der Achromat durch eine CaF_2-Linse ($f = 200\,\mathrm{mm}$) ersetzt. Infolgedessen werden die (ehemaligen) Vor- und Abfragepulse nun mit einer längerbrennweitigen Linse auf die Probe fokussiert. Der Anregepuls #1 wird über eine zweite CaF_2-

[8] ACT115DL, Aerotech

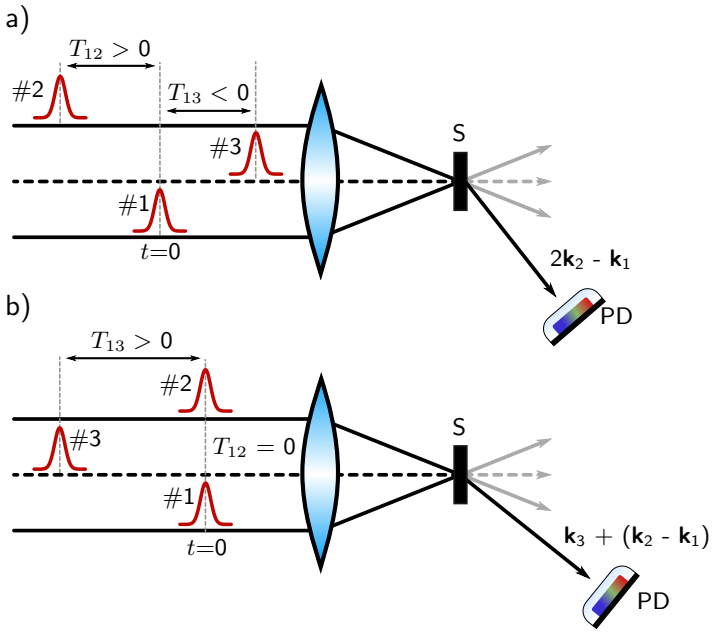

Abbildung 3.2.: a) VWM-Messungen mit Vorpuls: Zunächst erzeugt der Vorpuls (#3) mit einem zeitlichen Vorsprung T_{13} eine inkohärente Ladungsträgerpopulation im Halbleitermaterial. Anschließend induziert der Anregepuls (#1) eine makroskopische Polarisation, deren Dephasierung durch Streuprozesse zwischen der Polarisation und der Population beeinflusst wird. Ein nach einer variablen Verzögerungszeit T_{12} auftreffender Abfragepuls wird an dem optischen Gitter abgebeugt und das VWM-Signal mit einer Photodiode (PD) detektiert. b) VWM mit drei Pulsen: Die Pulse #1 und #2 treffen zeitgleich auf die Halbleiterprobe und erzeugen ein laserinduziertes Gitter an welchem der dritte Puls (#3) mit einer zeitlichen Verzögerung T_{13} in Richtung $\mathbf{k}_3 + (\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1)$ abgebeugt wird.

Linse (f = 225 mm) auf die gleiche Probenstelle fokussiert. In dieser Anordnung wird das optische Gitter weiterhin durch die Interferenz der Laserpulse mit Wellenvektor $\mathbf{k}_1$ und $\mathbf{k}_2$ erzeugt. Durch die Wahl des Winkels α zwischen den eintreffenden Pulsen $\mathbf{k}_1$ und $\mathbf{k}_2$ kann der relative Beitrag der Diffusion und Rekombination zur Gitterabklingzeit T_G gesteuert werden. Ein zu großer Winkel führt zu einer sehr kleinen Gitterkonstanten, welche wiederum geringe Diffusionslängen zur Folge haben. Im Gegensatz dazu bewirken sehr kleine Winkel große Gitterkonstanten, sodass die Ladungsträger rekombinieren, bevor ihre Ausbreitung innerhalb der Probe gemessen werden kann. Der Winkel sollte somit derart gewählt werden, dass zum einen die Ladungsträgerlebensdauer größer als die Diffusionszeit ist. Zum anderen sollte die Diffusionszeit mit der gegebenen experimentellen Ausrüstung gut messbar sein. In der Regel ist es vorteilhaft für typische Werte von $D \sim 20\,\mathrm{cm^2/s}$ und $T_1 \sim 10\,\mathrm{ns}$ eine Gitterkonstante $\Lambda < 20\,\mu\mathrm{m}$ zu wählen, damit die Diffusion den dominanten Beitrag zum Verlust des Interferenzgitters leistet.[105] Durch die Verwendung von Linsen größerer Brennweite wird dementsprechend ein kleinerer Winkel zwischen den Pulsen #1 und #2 und somit eine für die experimentellen Anforderungen ausreichend große Gitterkonstante realisiert. Darüber hinaus führt ein kleinerer

Winkel zu einer größeren Gittertiefe senkrecht zur Probenoberfläche, wodurch insgesamt ein stärkeres VWM-Signal erwartet wird.

Der Puls #3 wird an dem laserinduzierten Gitter in Richtung $\mathbf{k}' = \mathbf{k}_3 \pm \mathbf{G} = \mathbf{k}_3 \pm (\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1)$ abgebeugt und von derselben Photodiode detektiert (siehe Abbildung 3.2 b)). Da in diesem Fall ein am Gitter unbeteiligter Puls abgebeugt wird, spricht man in diesem Zusammenhang von Fremdbeugung. Anders als bei den Zwei-Puls-Experimenten werden die Amplituden der Pulse #1 und #3 mit unterschiedlichen Frequenzen moduliert. Die Differenzfrequenz wird als Referenzfrequenz an den Lock-in-Verstärker weitergegeben, sodass lediglich Signale mit der Differenzfrequenz verstärkt werden. Auf diese Weise wird sichergestellt, dass das gemessene Signal von der Wechselwirkung beider Pulse stammt und Streulicht der einzelnen Pulse nicht zum Messsignal beiträgt.

Die Synchronisation der einzelnen Komponenten erfolgt über ein eigens für diesen Messaufbau geschriebenes LabView-Programm. Dieses ermöglicht es darüber hinaus die Messung in Echtzeit zu verfolgen, Messparameter anzupassen und die erfassten Daten (inklusive Metadaten) abzuspeichern.

Bei der Detektion ultraschneller Prozesse, die innerhalb des untersuchten Materials ablaufen, ist die zeitliche Auflösung des Messsystems relevant. In diesem Fall ist die zeitliche Auflösung hauptsächlich durch die Pulsdauern der Laserpulse und durch die kleinstmögliche Schrittweite der linear motorisierten Verfahrstrecken limitiert. Mit einer Schrittweitengenauigkeit von wenigen Mikrometern erlauben die Verfahrtische eine zeitliche Auflösung von weniger als 5 fs. Die Pulsdauern der verschiedenen Laserpulse sind deutlich größer (~ 100 fs) und bestimmen somit maßgeblich die zeitliche Auflösung des Messaufbaus.

3.2. Optische Anrege-Abfrage-Spektroskopie

Neben dem Vier-Wellen-Mischen sind optische Anrege-Abfrage-Experimente eine typische Methode der Ultrakurzzeitspektroskopie. Während sich mithilfe linearer Absorptionsmessungen die spektralen Eigenschaften einer Probe im thermischen Grundzustand ermitteln lassen, wird die optische Anrege-Abfrage-Spektroskopie eingesetzt, um die Veränderungen spektraler Eigenschaften nach einer optischen Anregung sowie die Dynamik der nach der Anregung ablaufenden Prozesse zu untersuchen. Im Rahmen dieser Arbeit wird die differentielle Absorption $\Delta\alpha L$, d. h. die anregungsinduzierte Änderung der Absorption, untersucht.

Bei der optischen Anrege-Abfrage-Spektroskopie wird zunächst ein erster Laserpuls (Anregepuls) eingesetzt, der die Probe optisch anregt. Die Anregepulse werden durch das im vorherigen Abschnitt beschriebene Verstärkersystem bereitgestellt und können durch den optisch parametrischen Verstärker in einem breiten Wellenlängenbereich verstimmt werden. Wie in Abbildung 3.3 schematisch dargestellt, werden die Laserpulse über eine CaF_2-Linse auf die Probe fokussiert, welche sich während der Messungen in einem Kryostaten befindet. Zu dem Zweck die lineare Absorption der angeregten Probe zu untersuchen, wird ein zweiter, breitbandiger Laserpuls (Abfragepuls) verwendet. Hierzu wird ein Teil der aus dem Verstärkersystem kommenden Pulse hinter dessen Ausgang mithilfe eines Strahlteilers (BS) abgelenkt, über eine Verzögerungsstrecke (TS) geleitet und durch eine Linse auf einen wassergekühlten Saphirkristall fokussiert. Die hohen elektrischen Felder der Fundamentalen des Verstärkersystems führen

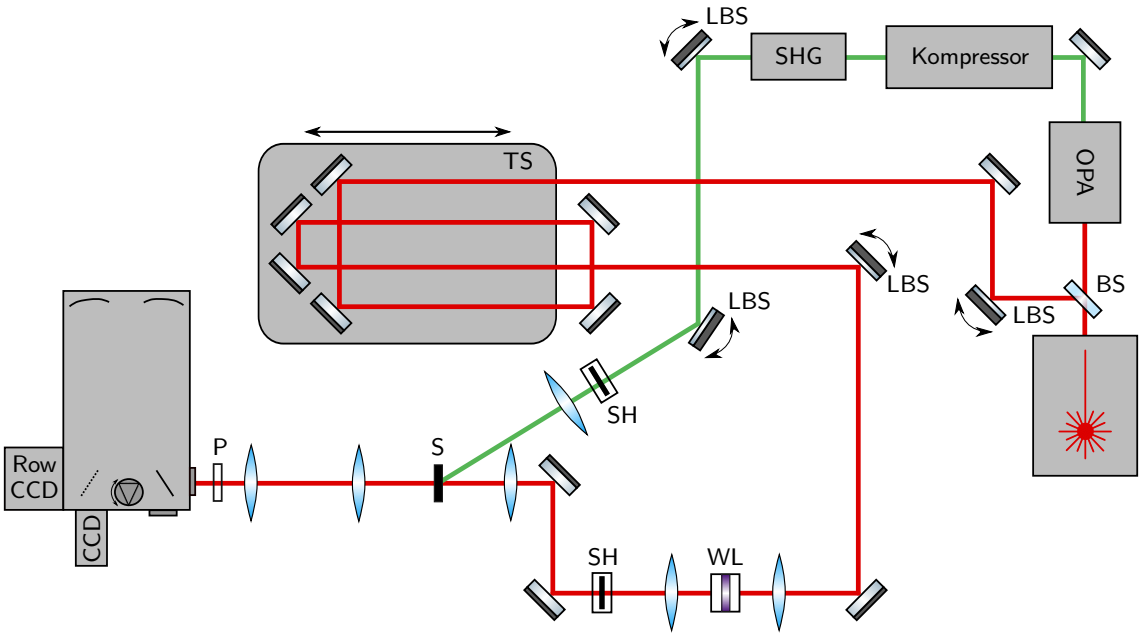

Abbildung 3.3.: Schematische Darstellung des optischen Anrege-Abfrage-Messverfahrens. Zu dem Zweck der optischen Anregung der Halbleiterprobe können die Pulse mithilfe des OPAs in einem breiten Wellenlängenbereich verstimmt werden. Über eine Linse werden die Anregepulse auf die Probe (S) fokussiert. Zur Erzeugung eines breitbandigen Abfragepulses werden die aus dem Verstärkersystem kommenden Pulse mithilfe eines Strahlteilers (BS) abgelenkt und auf einen Saphirkristall (WL) fokussiert. Anschließend wird das durch Selbstphasenmodulation erzeugte Weißlicht auf die Probe und das durch die Probe transmittierte Licht wiederum in den Eingangsspalt eines Spektrometers fokussiert. Zur Messung der differentiellen Absorption ist es notwendig das Eintreffen der einzelnen Pulse über Verschlüsse (SH) sowie die zeitliche Verzögerung zwischen den Anrege- und Abfragepulsen über eine Verzögerungsstrecke (TS) zu steuern. Zur Reduktion des Streulichts wird ein Polarisator (P) vor dem Eingang des Spektrometers eingesetzt. Mithilfe einer aktiven Strahlstabilisierung (LBS) werden auftretende Laserpositionsschwankungen in allen Pfaden ausgeglichen.

zur Selbstphasenmodulation innerhalb des Kristalls, wodurch ein spektral breiter Weißlichtpuls entsteht. Dieser wird anschließend durch einen Achromaten (400 - 1100 nm) auf die Probe fokussiert. Alternativ kann ein spektral breiter Puls aus dem OPA zur Abfrage verwendet werden. Um ausschließlich homogen angeregte Probenbereiche zu untersuchen, sollte darauf geachtet werden, dass der Abfragepuls einen geringeren Durchmesser als der Anregepuls besitzt. Das durch die Probe transmittierte Weißlicht wird über weitere Achromaten in den Eingangsspalt eines abbildenden Spektrometers[9] eingekoppelt, in welchem es durch ein Gitter (500 $^{l}/_{mm}$, 560 nm Blazewellenlänge) spektral zerlegt wird. Für die Detektion der Absorption wird eine thermoelektrisch gekühlte Silizium-CCD Kamera[10] mit 1024 x 256 Pixeln verwendet, welche eine hohe Sensitivität in einem breitbandigen Bereich von 300 - 1000 nm aufweist.[118] Durch die

[9] Shamrock 500i, Andor
[10] DU420A-BEX2-DD, Andor

thermoelektrische Kühlung des Chips wird ein niedriger Dunkelstrom und damit rauscharme Messungen erreicht. Aufgrund der rückwärtigen Beleuchtung (engl.: *backside-illumination*) des CCD-Chips besitzt die Kamera eine hohe Quanteneffizienz insbesondere im Nahinfrarotbereich, da Verluste, die durch Photonabsorption innerhalb der Elektroden auftreten, auf diese Weise eliminiert werden. Das durch die Probe transmittierte Licht wird mithilfe des Programms Andor Solis in Echtzeit als Spektrum dargestellt, wobei das aufgenommene Spektrum $I(\lambda)$ als Funktion der Wellenlänge abgespeichert werden kann. Zur Unterdrückung von Streulicht durch den Anregepuls werden die Anrege- und Abfragepulse kreuzlinear polarisiert, sodass mit einem Polarisator vor dem Spektrometereingang ein Großteil des Streulichts herausgefiltert werden kann.

Die Bestimmung der differentiellen Absorption $\Delta\alpha L$ erfolgt durch vier verschiedene Messungen. Zu diesem Zweck werden computergesteuerte Verschlüsse in den einzelnen Strahlengängen platziert. Sind beide Verschlüsse geöffnet, wird die Transmission des Abfragepulses der zuvor angeregten Probe $T_{exc}(\lambda)$ detektiert, welche von Streulicht durch den Anregepuls, Photolumineszenz der Probe und Hintergrundstrahlung überlagert ist. Um die Einflüsse der Photolumineszenz-, Streu- und Hintergrundstrahlung zu berücksichtigen, wird in der zweiten Messung der Abfragepuls blockiert und das Spektrum $T_{PL}(\lambda)$ aufgenommen. Zu dem Zweck die Änderung der Transmission zu untersuchen, muss ebenfalls die Transmission der unangeregten Probe gemessen werden. Dazu wird der Anregestrahl blockiert und die Transmission des Weißlichtpulses durch die nicht angeregte Probe $T_0(\lambda)$ detektiert. Da neben der Transmission des Abfragepulses auch Hintergrundstrahlung $T_{BG}(\lambda)$ in das Spektrometer gelangt, erfolgt eine Messung mit geschlossenen Verschlüssen in beiden Strahlengängen. Schlussendlich kann die differentielle Absorption $\Delta\alpha L$ aus den vier aufgenommenen Spektren wie folgt bestimmt werden:

$$\Delta\alpha(\lambda)L = -\ln\left(\frac{T_{exc}(\lambda) - T_{PL}(\lambda)}{T_0(\lambda) - T_{BG}(\lambda)}\right) \tag{3.1}$$

Um die Dynamik der nach der optischen Anregung ablaufenden Prozesse untersuchen zu können, wird die Länge der Verzögerungsstrecke zwischen Anrege- und Abfragepuls iterativ verändert und zu jedem Zeitschritt werden alle nötigen Messungen aufgenommen. Ein maximaler zeitlicher Versatz von zwei Nanosekunden ermöglicht die Analyse der zeitlichen Dynamik über einen Zeitraum mehrerer Größenordnungen.

Neben der differentiellen Absorption ermöglicht der Messaufbau die Bestimmung der linearen Absorption der (nicht angeregten) Probe. Diese gibt einen ersten Anhaltspunkt über die energetische Lage verschiedener optischer Übergänge im Material und kann somit wichtige Informationen für nachfolgende Experimente liefern. Hierzu bleibt der Anregestrahl während der Aufnahmen geblockt. Es wird die Hintergrundstrahlung $T_{BG}(\lambda)$ und die Transmission der nicht angeregten Probe $T_0(\lambda)$ aufgenommen. Indem die Probe aus dem Strahlengang entfernt wird, kann darüber hinaus das Spektrum des Weißlichtpulses $T_{WL}(\lambda)$ detektiert werden, sodass sich die lineare Absorption über $\alpha(\lambda)L = -\ln\left(\frac{T_0(\lambda) - T_{BG}(\lambda)}{T_{WL}(\lambda) - T_{BG}(\lambda)}\right)$ bestimmen lässt.

4

Charakterisierung der Halbleiterheterostrukturen

Im Rahmen dieser Arbeit werden zwei unterschiedliche Halbleiterstrukturen mithilfe der im letzten Kapitel beschriebenen nichtlinearen Spektroskopieverfahren untersucht. Der strukturelle Aufbau beider Proben wird im folgenden Abschnitt kurz vorgestellt.

4.1. Struktureller Aufbau

Ein Mehrfachquantenfilm bestehend aus 50 einzelnen $Ga_{0,942}In_{0,058}As$-Schichten dient als Referenzprobe, welche schematisch in Abbildung 4.1 a) dargestellt ist. Die 7,6 nm dicken Quantenfilme sind von GaAs-Barriereschichten umgeben. Da verschiedene Materialien mit ungleichen Gitterkonstanten aufeinander abgeschieden werden, kommt es zu epitaktischen Verspannungen. Innerhalb der $Ga_{0,942}In_{0,058}As$-Quantenfilme entstehen kompressive Verspannungen, da sich die Schichten mit größerer Gitterkonstante der kleineren Gitterkonstante der GaAs-Barrieren anpassen müssen. Gitterfehlanpassungen können im Allgemeinen verspannungsinduzierte Energieverschiebungen der Valenz- und Leitungsbänder verursachen. Dementsprechend beeinflussen Verspannungen im Halbleitermaterial die Bandstruktur der Elektronen und Löcher und damit zusammenhängend deren effektive Massen[102,119], sowie die Exzitonbindungsenergien.[120] Verschieben sich die verschiedenen Valenzbandkanten unterschiedlich stark, kann die Entartung von Leicht- und Schwerlochbändern am Γ-Punkt aufgehoben werden.[102,121] Es entsteht eine Aufspaltung in zwei voneinander getrennte Valenzbänder, weshalb die zugehörigen lh- und hh-Exzitonresonanzen als einzelne Peaks in linearen Absorptionsmessungen beobachtet werden können. Des Weiteren können aufgrund der eintretenden Verspannungen Defekte innerhalb der Heterostruktur entstehen. Die Herstellung versetzungsfreier Schichten ist lediglich bis zu einer kritischen Schichtdicke möglich.[122] Aus diesem Grund werden entgegengesetzt verspannte Ga(As,P)-Barrieren zwischen die einzelnen Quantenfilme gewachsen. Durch abwechselndes Abscheiden zug- und druckverspannter Schichten kann die Gitterspannung innerhalb des Kristalls reduziert werden.[102] Insgesamt bewirken die zusätzlichen Ga(As,P)-Schichten neben der Entkopplung der einzelnen Quantenfilme somit eine Verspannungskompensation über die gesamte Halbleiterstruktur hinweg.

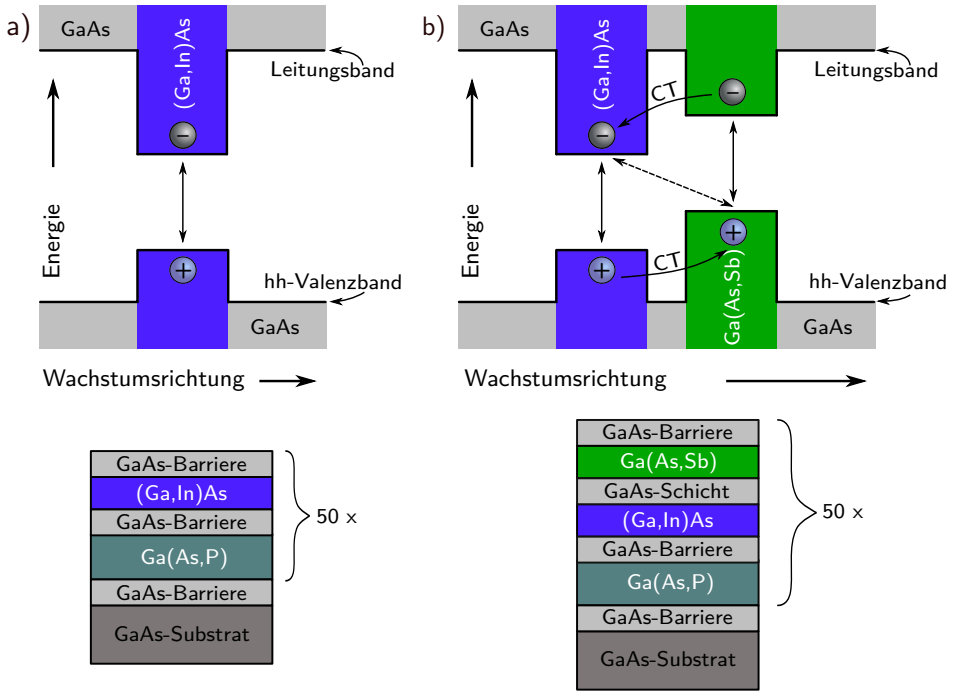

Abbildung 4.1.: Schematische Bandstruktur der untersuchten Halbleiterproben nach [19]. Die in a) dargestellte Referenzprobe besteht aus 50 einzelnen (Ga,In)As-Quantenfilmen, welche von GaAs-Barrieren umgeben sind. Sie verfügt über einen räumlich direkten Übergang (durchgezogener Pfeil) innerhalb der (Ga,In)As-Quantenfilme. Die in b) abgebildete Typ-II-Heterostruktur besteht aus 50 aufeinanderfolgenden Quantenfilmeinheiten. Diese setzen sich aus zwei verschiedenen Typ-I-Quantenfilmen zusammen, welche über dünne GaAs-Schichten voneinander getrennt sind. Nach der optischen Anregung innerhalb der Typ-I-Quantenfilme findet ein Ladungstransfer (engl.: *charge-transfer*, Abk.: CT) zwischen den benachbarten Schichten statt. Hierbei tunneln/relaxieren entweder die hh vom Valenzband der (Ga,In)As-Quantenfilme in die benachbarten Ga(As,Sb)-Schichten oder die Elektronen der Ga(As,Sb)-Schichten in die benachbarten Quantenfilme, um einen energetisch niedrigeren Zustand zu besetzen. Dementsprechend verfügt die Halbleiterstruktur über räumlich direkte (durchgezogener Pfeil) und indirekte Übergänge (gestrichelter Pfeil).

Die zweite Probe besteht aus 50 Mehrfachquantenfilmen, welche wiederum aus 7,7 nm dicken $Ga_{0,942}In_{0,058}As$- und 7,5 nm breiten $GaAs_{0,93}Sb_{0,07}$-Schichten aufgebaut sind. Die beiden Quantenfilme sind durch eine 1 nm breite GaAs-Zwischenschicht räumlich voneinander getrennt. Die Mehrfachquantenfilme sind in zusätzliche Abstandsschichten eingebettet, weshalb sie aufgrund der räumlichen Trennung einen Stapel ungekoppelter Mehrfachquantenfilme bilden. Die Abstandsschichten bestehen aus GaAs- sowie Ga(As,P)-Schichten, wobei letztere auch in diesem Fall für eine Verspannungskompensation der Quantenfilmschichten sorgen.[123] Aufgrund des speziellen strukturellen Aufbaus befindet sich das Valenzbandmaximum und das Leitungsbandminimum in räumlich getrennten Quantenfilmen (siehe Abbildung 4.1 b)). Dies hat zur Folge, dass nach einer optischen Anregung im Ga(In,As)-Quantenfilm die Löcher durch die

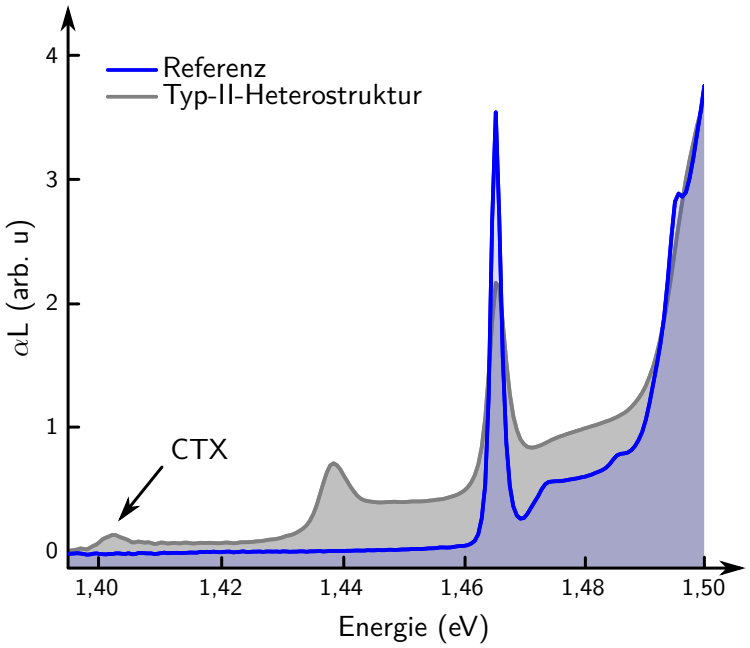

Abbildung 4.2.: Dargestellt ist die lineare Absorption der Referenz (blau) und Typ-II-Heterostruktur (grau) bei tiefen Temperaturen. In beiden Fällen ist die Resonanz des 1s-Exzitons der (Ga,In)As-Quantenfilme bei 1,465 eV zu erkennen. Im linearen Absorptionsspektrum der Typ-II-Probe tritt eine weitere Resonanz bei 1,437 eV auf, welche dem 1s-Exziton der (Ga,As)Sb-Quantenfilme zuzuordnen ist. Das aufgrund der Ladungsträgerseparation der Elektronen und Löcher räumlich indirekte Charge-Transfer-Exziton (CTX) ist für die niederenergetische Resonanz um $\sim$ 1,4 eV verantwortlich.

GaAs-Barriereschicht in energetisch niedrigere Zustände innerhalb des Ga(As,Sb)-Quantenfilms tunneln können. Die anziehende Coulomb-Wechselwirkung zwischen den räumlich getrennten Elektronen und Löchern führt zu gebundenen Elektron-Loch-Paaren (engl.: *charge-transfer exciton*, Abk.: CTX), deren Wellenfunktionen über die Quantenfilmeinheit ausgedehnt sind. Insgesamt ist der energetisch niedrigste Übergang aufgrund der Ladungsträgertrennung *räumlich indirekt*. Dünne GaAs-Schichten zwischen den benachbarten Quantenfilmen bewirken eine zusätzliche räumliche Trennung, während der Wellenfunktionenüberlapp der einzelnen Ladungsträger hinreichend groß bleibt.[124] Der Vergleich zwischen der Referenzprobe und der Typ-II-Heterostruktur ermöglicht es Unterschiede zwischen regulären Exzitonen und den sogenannten CTX zu identifizieren. Die spektroskopische Untersuchung der CTX, deren Elektronen und Löcher über eine innere Grenzfläche miteinander wechselwirken, stellt ein zentrales Thema dieser Arbeit dar.

4.2. Lineare Absorptionsmessungen

Absorptionsmessungen sind ein hilfreiches Mittel, um einen ersten Überblick über die energetischen Lagen der verschiedenen Resonanzen einer Halbleiterstruktur zu erlangen. Aus diesem

Grund werden lineare Absorptionsmessungen sowohl an der Referenzprobe als auch an der Typ-II-Heterostruktur bei tiefen Temperaturen durchgeführt.

Wie in Abbildung 4.2 dargestellt, zeigt die Referenzprobe eine starke Resonanz des regulären 1s-Exzitons innerhalb des (Ga,In)As-Quantenfilms bei 1,465 eV. Die Absorption energetisch unterhalb der exzitonischen Resonanz ist nahe Null. Im Gegensatz dazu kann energetisch oberhalb der Resonanz ein typischer stufenförmiger Verlauf beobachtet werden, ehe ab etwa 1,49 eV die Absorption aufgrund der Bandkante des GaAs-Substrats stark ansteigt. Etwa 7 meV oberhalb der 1s-Resonanz befindet sich der exzitonische 2s-Zustand, welcher mit den Kontinuumzuständen überlagert ist.[124]

Die Typ-II-Probe besteht ebenso wie die Referenzprobe aus (Ga,In)As-Quantenfilmen, weshalb auch in ihrem Absorptionsspektrum eine exzitonische Resonanz bei 1,465 eV auftritt. Da die Halbleiterheterostruktur im Vergleich zur Typ-I-Probe zusätzliche Quantenfilme beinhaltet, lässt sich ein weiterer Absorptionspeak bei 1,437 eV beobachten. Diese Erhöhung ist der exzitonischen Resonanz innerhalb der Ga(As,Sb)-Quantenfilme zuzuordnen. Darüber hinaus lässt sich eine im Verhältnis wesentlich schwächere Resonanz bei $\sim$ 1,4 eV erkennen. Der Vergleich der mikroskopischen Theorie mit linearen Absorptionsmessungen an strukturell sehr ähnlich aufgebauten Proben lässt eine Identifizierung der energetisch niedrigsten Resonanz zu.[123] Der Absorptionspeak bei $\sim$ 1,4 eV wird der 1s-Resonanz des CT-Exzitons zugeordnet. In Anlehnung an Abbildung 4.1 stellt diese den räumlich indirekten Übergang vom Ga(As,Sb)-Quantenfilm zum (Ga,In)As-Quantenfilm dar. In diesem Zusammenhang wird klar, weshalb die CT-Exzitonresonanz im Absorptionsspektrum derart schwach ausgeprägt ist: Die Ladungsträgerseparation der Elektronen und Löcher führt zu einem verminderten Wellenfunktionenüberlapp und dementsprechend zu einem reduzierten Übergangsdipolmoment.

5

Dephasierung in Quantenfilmen

Das folgende Kapitel stellt die Ergebnisse der durchgeführten Vier-Wellen-Misch-Experimente an den in Kapitel 4 vorgestellten Heterostrukturen vor. Während sich der erste Abschnitt mit der Beobachtung der kohärenten Dynamik verschiedener exzitonischer Polarisationen in den Halbleiterquantenfilmen befasst, untersucht der zweite Abschnitt den Einfluss von Vielteilchenwechselwirkungen auf den Verlust der exzitonischen Polarisationen.

5.1. Vier-Wellen-Mischen ohne Vorpuls

(Entartete) Vier-Wellen-Mischung und die Verwendung kurzer Laserpulse ermöglichen die Untersuchung des Verlusts der makroskopischen Polarisation innerhalb eines optisch angeregten Halbleitermaterials. Typische Dephasierungszeiten exzitonischer Übergänge in III-V-Halbleiterverbindungen erstrecken sich von 0,1 bis 10 ps.[82] Erste degenerierte VWM-Experimente an Halbleiterquantenfilmen wurden von Hegarty et al. an GaAs-Strukturen durchgeführt.[125] Nur wenige Jahre später begannen Schultheis et al. eine systematische Reihe von Experimenten, in denen sie die Dephasierungszeit verschiedener GaAs-Quantenfilme untersuchten.[47,76,77,126] Mithilfe der VWM-Methode und Pikosekunden-Laserpulsen untersuchten sie die Einflüsse verschiedener Streuprozesse wie beispielsweise Streuung an akustischen Phononen oder Verunreinigungen auf die Phasenkohärenzzeit der exzitonischen Polarisation. Sie fanden sowohl für GaAs-Volumenhalbleiter als auch für GaAs-Quantenfilme ($L \sim 10$ - 30 nm) Dephasierungszeiten im einstelligen Pikosekundenbereich bei niedrigen Anregungsdichten und tiefen Temperaturen.

Im Rahmen dieser Arbeit werden VWM-Experimente für eine Reihe verschiedener Anregungsbedingungen wie beispielsweise unterschiedliche Anregungsdichten und -energien durchgeführt. Durch die gezielten Anregungsbedingungen ist es erstmals gelungen eine reine CTX-Polarisation in einer Halbleiterprobe zu erzeugen und deren Dephasierungsverhalten mit der einer räumlich direkten Exzitonpolarisation in der Referenzprobe zu vergleichen. Des Weiteren kann die kohärente Dynamik der räumlich direkten Exzitonpolarisationen in der Typ-II-Probe und somit der Einfluss eines niederenergetischen CTX-Zustandes auf die Dephasierung von direkten Exzitonpolarisationen untersucht werden. Demzufolge können grundlegende Er-

kenntnisse zur kohärenten Dynamik der räumlich getrennten CT-Polarisation und der direkten Exzitonpolarisationen in Gegenwart von CT-Zuständen gewonnen werden.

Obwohl die Dephasierung streng genommen den Verlust einer kohärenten Polarisation im Material beschreibt, werden die Wörter Polarisation und Ladungsträger in wissenschaftlichen Veröffentlichungen häufig synonym verwendet.[77,93,127] Entsprechend wird in der Fachliteratur auch von einer Dephasierung von *Exzitonen* gesprochen, was streng genommen den Verlust einer *exzitonischen Polarisation* beschreibt. Streuprozesse zwischen exzitonischen Kohärenzen und inkohärenten Exzitonen sind somit ebenfalls als Exziton-Exziton-Streuung bekannt.

5.1.1. Experimentelle Durchführung

Die Vier-Wellen-Misch-Messungen werden mit dem in Abschnitt 3.1 erläuterten Aufbau durchgeführt. In diesem Fall treffen zwei Laserpulse der gleichen Frequenz ω mit unterschiedlichen Wellenvektoren $\mathbf{k}_1$ sowie $\mathbf{k}_2$ nicht-kollinear auf die Probe. Beide Strahlen werden auf eine Spotgröße mit einem Durchmesser von 43 µm fokussiert. Durch einen Verfahrtisch wird die zeitliche Verzögerung T_{12} zwischen dem Anrege- und Abfragepuls schrittweise variiert. Das elektrische Feld des zweiten Pulses interagiert mit der von Puls $\#1$ verbliebenen makroskopischen Polarisation, sodass ein Polarisationsgitter entsteht. Da die Amplitude des am Gitter abgebeugten VWM-Signals signifikant von den Pulsintensitäten der beiden Laserpulse abhängt, ist es sinnvoll ausreichend hohe Anregungsleistungen zu wählen. Hohe Anregungsleistungen resultieren in starken VWM-Signalen und einem guten Signal-zu-Rausch-Verhältnis. Überdies führen sie jedoch vermehrt zu Streuprozessen zwischen den Oszillatoren oder mit Ladungsträgern, wodurch die Dephasierungszeit immens verkürzt wird. Aus diesem Grund wird ein zusätzlicher Neutraldichtefilter im Strahlengang des Anregepulses $\#1$ verwendet, sodass die Dichte angeregter Zustände und damit die Streuwahrscheinlichkeit gering bleiben. Die Anregungsleistung des Abfragepulses ist etwa um das Vierfache höher, sodass insgesamt eine lange Dephasierungszeit und rauscharme Messergebnisse realisiert werden können.

Für die Anregungsbedingungen der VWM-Messungen sind verschiedene Anregungspulse mit unterschiedlichen Photonenergien und spektralen Halbwertsbreiten nötig. Teilweise werden breitbandige Anregungspulse wie beispielsweise der in Abbildung 5.2 dargestellte Laserpuls verwendet. Da die spektrale Breite chirpfreier Pulse über die Fourier-Transformation mit der Pulsdauer verbunden ist, zeichnen sich diese spektral breiten Pulse durch kurze Pulsdauern aus. Diese wiederum ermöglichen Messungen mit einer hohen Zeitauflösung. Zur Anregung der exzitonischen Resonanzen der Typ-II-Struktur ist es häufig nötig spektral schmale Pulse zu verwenden. Diese führen aufgrund ihrer längeren Pulsdauer zu einer geringeren Zeitauflösung. Um die Breite der Anregungspulse gemäß den jeweiligen Anregungsanforderungen zu beschränken, werden Hoch- und Tiefpassfilter der Firma Thorlabs eingesetzt. Die Transmission des Lichts oberhalb bzw. unterhalb einer bestimmten Grenzfrequenz liegt dabei unter einem Promille. Die Firma Thorlabs vertreibt Kantenfilter mit verschiedenen Grenzfrequenzen, welche den sichtbaren bis nahen Infrarotbereich in 50 nm-Schritten abdecken. Da die exzitonischen Resonanzen der untersuchten Proben um weniger als 50 nm auseinander liegen, ist eine genauere Einstellung der Grenzfrequenz vonnöten. Eine Feinabstimmung der Grenzfrequenz ist möglich, indem der Einfallswinkel des Pulses auf den Kantenfilter variiert wird. Mit zunehmendem Einfallswinkel verschiebt sich die Grenzfrequenz zu höheren Energien.

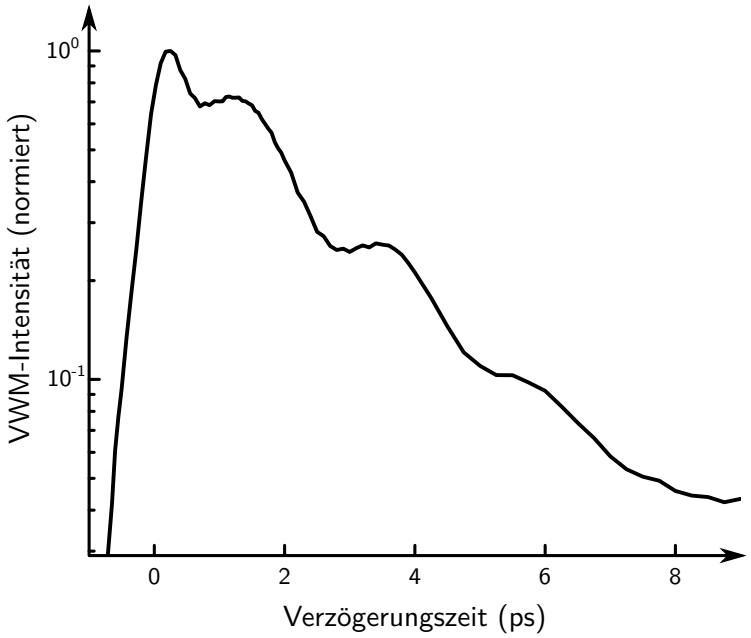

Abbildung 5.1.: Zeitintegriertes VWM-Signal in Abhängigkeit der Verzögerungszeit T_{12} bei resonanter Anregung der hh-Exzitonen der Referenzprobe mit kollinear polarisierten Pulsen. Der exponentielle Zerfall des Signals ist mit einer sinusförmigen Struktur überlagert.

5.1.2. Kohärente Polarisation in der Typ-I-Heterostruktur

Zunächst wird der Verlust der Phasenkohärenz der 1s-Exzitonpolarisation in der Typ-I-Heterostruktur diskutiert. Im ersten Schritt werden die Schwerlochexzitonen resonant angeregt, wobei der Anrege- und Abfragepuls kollinear polarisiert sind. Das abgebeugte VWM-Signal ist in Abhängigkeit der Verzögerungszeit T_{12} zwischen den beiden Pulsen in Abbildung 5.1 aufgetragen. Der Zerfall des abgebeugten Signals ist ein Maß für den Verlust der Phasenkohärenz und liefert Informationen über die im Material ablaufenden Dephasierungsprozesse.[41] Das zeitintegrierte VWM-Signal zeigt ein exponentielles Abklingen, wobei der Zerfall mit einer zusätzlichen sinusförmigen Struktur überlagert ist. Ersten Vermutungen zur Folge könnte die Struktur durch die gleichzeitige Erzeugung von exzitonischen und biexzitonischen Polarisationen hervorgerufen werden. Ein Biexziton ist ein gebundener Zustand, der aus einem Zusammenschluss zweier Exzitonen besteht. Befinden sich zwei Exzitonen in unmittelbarer Nähe zueinander, können ihre Wellenfunktionen symmetrisch oder antisymmetrisch überlagern. Die symmetrische Kombination der Wellenfunktionen hat eine geringere Energie und bildet somit einen gebundenen Zustand des Biexzitons, während die antisymmetrische Überlagerung einen nicht bindenden Zustand erzeugt.[65]

Für die Erzeugung von Biexzitonen müssen zwei Exzitonen mit unterschiedlichem Spin angeregt werden. Dazu sind zwei Photonen mit entgegengesetzter zirkularer Polarisation vonnöten. Unter der Annahme einer angeregten biexzitonischen Polarisation müsste die Struktur dementsprechend verschwinden, wenn beide Pulse kozirkular polarisiert sind. Aus diesem Grund wird als erste Maßnahme eine $\frac{\lambda}{4}$-Platte in den Strahlengang beider Pulse integriert und der in Abbildung 5.2 dargestellte Puls zur resonanten Anregung eingesetzt. Der spektral breite Puls

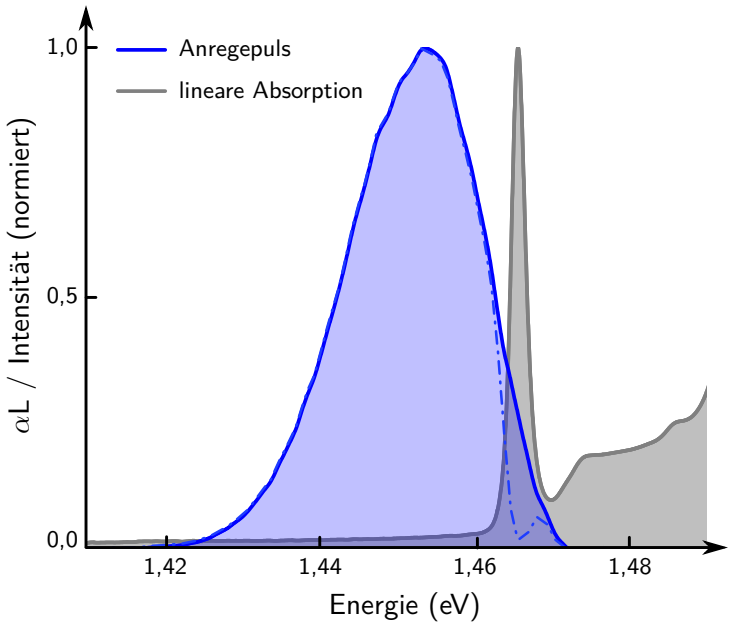

Abbildung 5.2.: Anregungsbedingung für die VWM-Experimente an der Referenzprobe. Dargestellt ist die lineare Absorption der Halbleiterstruktur (grau) und der Laserpuls (blau) zur resonanten Anregung der hh-Exzitonen der (Ga,In)As-Quantenfilme. Die gestrichelte Linie gibt den durch die Probe transmittierten Anregepuls wieder, weshalb er ein lokales Minimum bei der exzitonischen Übergangsenergie von 1,465 eV aufweist.

wird im Bereich höherer Energien ($\sim$ 1,47 eV) durch Kantenfilter beschnitten. Dadurch wird sichergestellt, dass ausschließlich reguläre 1s-Exzitonen angeregt werden und energetisch höhere Kontinuumzustände oder Zustände innerhalb des GaAs-Substrats in ihren Grundzuständen verbleiben.

Die Ergebnisse der zeitintegrierten VWM-Signale sind in Abbildung 5.3 semilogarithmisch aufgetragen. Der Farbverlauf von hell nach dunkel kennzeichnet steigende Ladungsträgerdichten während der Anregung. Die Berechnung der Ladungsträgerdichte N wird im Anhang A beschrieben. Die sinusförmige Struktur, welche man als Quantenschwebung (engl.: *quantum beating*) bezeichnet, ist größtenteils verschwunden. Damit liegt die Vermutung nahe, dass kohärent angeregte exzitonische und biexzitonische Polarisationen für die Quantenschwebung verantwortlich sind. Diese Vermutung wird in einem späteren Unterabschnitt dieses Kapitels ausführlich diskutiert.

Das Abklingen der Signalintensität ist ein Maß für eine zunehmend willkürliche Polarisationsverteilung und lässt sich durch eine Exponentialfunktion beschreiben. Dadurch können die unterschiedlichen Zerfallszeiten T_D durch einen exponentiellen Fit aus den Daten extrahiert werden. Die exponentiellen Fits sind als gleichfarbige Linien dargestellt. Für die niedrigste Ladungsträgerdichte von $4{,}3 \cdot 10^8\,\mathrm{cm}^{-2}$ ergibt sich eine Zerfallszeit von 3,8 ps. Dieser Wert entspricht einer typischen Abklingzeit in Halbleiterheterostrukturen. Es ist zu erkennen, dass die Zerfallszeit des Signals signifikant von der Leistung des Anregepulses abhängt. Bereits bei einer etwa vierfach höheren Ladungsträgerdichte ($18 \cdot 10^8\,\mathrm{cm}^{-2}$) beträgt die Abklingzeit nur noch 2,6 ps. Wird die Anregungsleistung weiter erhöht, sodass eine etwa eine Größenordnung höhere

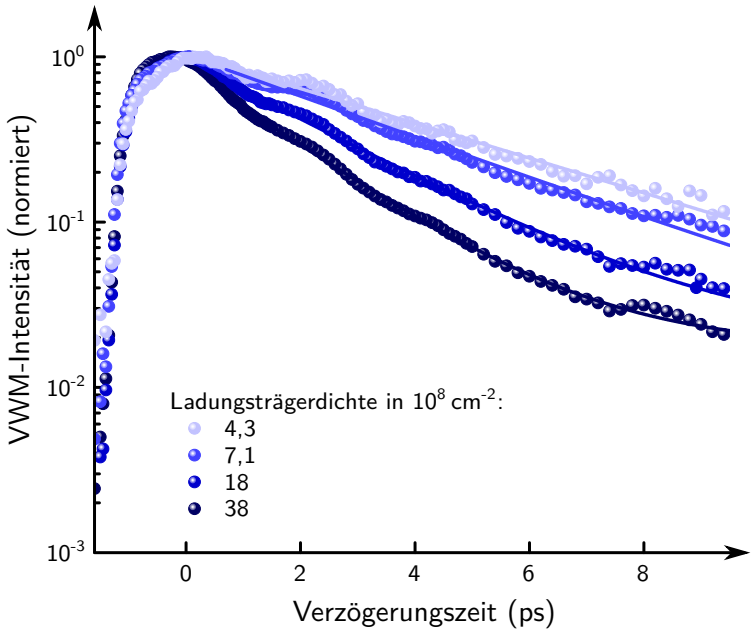

Abbildung 5.3.: VWM-Transienten unter Verwendung des in Abbildung 5.2 dargestellten Anregepulses. Mit zunehmender Ladungsträgerdichte geht das abgebeugte VWM-Signal und dementsprechend die exzitonische Polarisation in der Probe schneller verloren.

Ladungsträgerdichte ($38 \cdot 10^8\,\mathrm{cm}^{-2}$) im Material vorliegt, sinkt die Zerfallszeit von anfänglichen 3,8 ps auf etwa die Hälfte ab. Die Messungen zeigen somit, dass eine größere Anregungsleistung zu einem schnelleren Verlust der Phasenkohärenz führt. Daher liegt die Vermutung nahe, dass die Beobachtungen aufgrund der zunehmenden Oszillator- bzw. Exzitonendichte innerhalb der (Ga,In)As-Quantenfilme auftreten. Es ist bekannt, dass hohe Ladungsträgerdichten die Dephasierung eines Systems beeinflussen. Die Tatsache, dass die Dephasierungsrate von der Anregungsdichte abhängt, bezeichnet man als „anregungsinduzierte Dephasierung“ (engl.: *excitation-induced dephasing*, Abk.: EID).[96,128] Aufgrund der hohen Anzahl an Ladungsträgern beschreibt EID einen Vielteilcheneffekt, der auf der Coulomb-Wechselwirkung zwischen den einzelnen Ladungsträgern beruht.[37,124] In einer anschaulichen Beschreibung des EID führen hohe Anregungsdichten vermehrt zu Streuprozessen zwischen den Oszillatoren. Diese Streuprozesse bewirken den Verlust der Phasenkohärenz und damit eine reduzierte Abklingzeit des Signals[88] sowie eine verminderte VWM-Signalstärke.[129]

Durch die ermittelten Daten kann die Zerfallszeit bei verschwindender Anregungsdichte ($T_{\textit{zero density}}$) extrapoliert werden. Im Allgemeinen wird dazu die gemessene Zerfallszeit T_D in eine homogene Linienbreite $\Gamma_{\textit{homogen}}$ umgerechnet. Anschließend werden die homogenen Linienbreiten mit den zugehörigen Fehlerintervallen gegen die Ladungsträgerdichte innerhalb eines Quantenfilms aufgetragen, wie in Abbildung 5.4 dargestellt ist. Die Fehlerbalken sind in der Abbildung kaum zu erkennen, da sie so klein sind, dass sie von den Kreisen, die die einzelnen Messpunkte repräsentieren, verdeckt werden. Die Berechnung der einzelnen Fehlerintervalle sowie der homogenen Linienbreiten soll im Folgenden kurz beschrieben werden: Um auch bei schwachen VWM-Signalen rauscharme Messungen zu erhalten, werden im Durchschnitt zehn Messungen bei gleichen Anregungsbedingungen durchgeführt. Für jeden einzelnen Zeitschritt

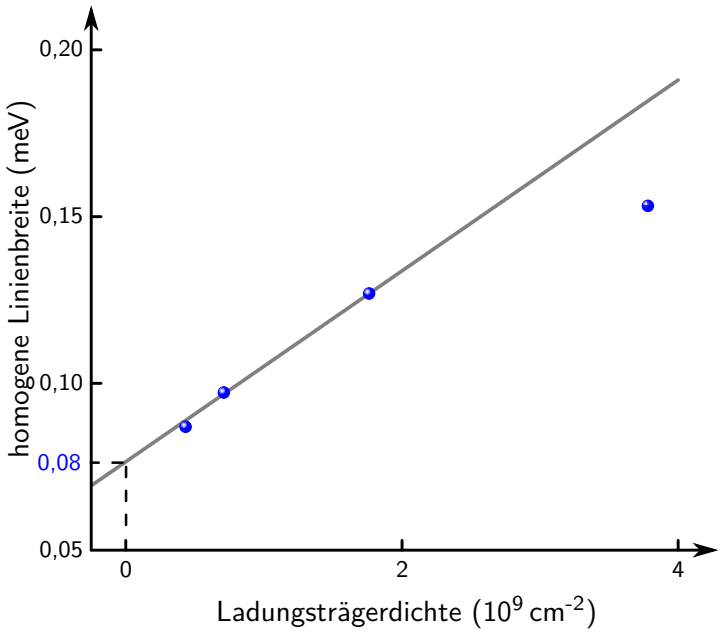

Abbildung 5.4.: Unter Annahme eines inhomogen verbreiterten Systems werden die aus den VWM-Messungen entnommenen Zerfallszeiten T_D in homogene Linienbreiten umgerechnet. Die dichteabhängigen homogenen Linienbreiten werden linear extrapoliert, um die homogene Linienbreite bei verschwindender Anregungsdichte (zero density) zu ermitteln. Die lineare Extrapolation ergibt eine $\Gamma_{\textit{zero density}}$ von 0,08 meV, was einer T_D-Zeit von 4 302 fs entspricht. Aufgrund eines möglichen Ausbleichens der Absorption bei hohen Ladungsträgerdichten trägt der Messpunkt bei N $= 3{,}8 \cdot 10^9$ cm^{-2} nicht zur Extrapolation bei.

liegen somit zehn Messwerte vor, sodass sich die einzelnen Mittelwerte aus den Messdaten berechnen lassen. Außerdem wird der zugehörige Standardfehler Σ durch die Standardabweichung s der Messwerte und den Stichprobenumfang n über $\Sigma = s/\sqrt{n}$ bestimmt. Der Standardfehler ist ein Maß für die Streuung des experimentell bestimmten Mittelwerts der Messgröße um den tatsächlichen Mittelwert einer Grundgesamtheit. Er liefert somit eine Aussage über die „Genauigkeit“ des Mittelwerts (Messgröße) und damit ein Fehlerintervall für die VWM-Intensitäten der abgebeugten Signale. Die Messwerte der VWM-Intensitäten werden mit ihren zugehörigen Fehlerintervallen (Standardfehler) gegen die Verzögerungszeit T_{12} aufgetragen und ein exponentieller Fit, der die Größen der Fehlerbalken berücksichtigt, an die Daten angelegt. Daraus lassen sich Zerfallszeiten T_D mit einem zugehörigen Fehlerintervall für die verschiedenen Ladungsträgerdichten ableiten. Anschließend werden unter der Annahme einer inhomogen verbreiterten Resonanz die Zerfallszeiten T_D inklusive Fehlerintervalle in Dephasierungszeiten T_2 umgerechnet. Der Zusammenhang zwischen T_D und T_2 sowie eine Erklärung, weshalb die getroffene Annahme einer inhomogenen Verbreiterung gerechtfertigt ist, wird im nachfolgenden Abschnitt dieses Kapitels erläutert.

Über Gleichung 2.11 ist die Dephasierungszeit mit der homogenen Linienbreite verknüpft, sodass in Abbildung 5.4 die zu den Zerfallszeiten korrespondierenden Linienbreiten gegen die Ladungsträgerdichte aufgetragen werden. Eine lineare Regression der Daten führt über die homogene Linienbreite $\Gamma_{\textit{zero density}}$ bei verschwindender Ladungsträgerdichte schlussend-

lich zur gesuchten Zerfallszeit $T_{\textit{zero density}}$.[81,130] Hierbei berücksichtigt die Regression nicht nur die einzelnen Datenpunkte, sondern auch die Größe der einzelnen Fehlerbalken der Intensitätsschwankungen des VWM-Signals (y-Achse). Fehler bei der Ladungsträgerdichtebestimmung (x-Achse) werden nicht berücksichtigt. Vergleicht man die Datenpunkte miteinander, fällt auf, dass die ersten drei Messpunkte einen linearen Zusammenhang zwischen homogener Linienbreite und Ladungsträgerdichte aufweisen. Der Messpunkt bei der höchsten Ladungsträgerdichte hingegen weicht von diesem Verhalten ab. Diese Beobachtung könnte mit der hohen Ladungsträgerdichte innerhalb des Halbleitermaterials zusammenhängen. Bei hohen Ladungsträgerdichten sind bereits viele der möglichen Zustände im Leitungsband besetzt, sodass mit zunehmender Oszillatoranzahl immer weniger Oszillatoren angeregt werden. Dadurch ist es möglich, dass die Ladungsträgerdichte in der Probe nicht mehr linear mit der eintreffenden Photonendichte ansteigt. Es könnte infolgedessen zu einer Sättigung der angeregten Zustände kommen. Die Folge wäre ein Ausbleichen der Absorption. Insgesamt könnte der Datenpunkt bei der höchsten Ladungsträgerdichte somit eigentlich die homogene Verbreiterung bei einer geringeren Ladungsträgerdichte repräsentieren und deshalb nicht zu den anderen Messpunkten passen. Aus diesen Gründen werden für die lineare Regression lediglich diejenigen Messdaten berücksichtigt, bei denen die homogene Linienbreite linear mit der Ladungsträgerdichte ansteigt. Da die Zerfallszeit $T_{\textit{zero density}}$ dem Wert bei einer Ladungsträgerdichte von Null entspricht, repräsentiert sie die Zerfallszeit des VWM-Signals ohne den Einfluss von Oszillatoren bzw. Ladungsträgern. Die Zerfallszeit bei verschwindender Dichte beträgt $T_{\textit{zero density}} = 4\,302\,\text{fs}$. Der Vergleich der $T_{\textit{zero density}}$ mit der aus Abbildung 5.3 extrahierten Abklingzeit bei niedrigster Dichte ($T_D = 3{,}8\,\text{ps}$) zeigt, dass beide Zerfallszeiten ähnlich sind.

Eine Abweichung von $\sim 500\,\text{fs}$ liegt zum einen daran, dass die Experimente bei niedrigen und nicht verschwindenden Dichten durchgeführt werden. Zum anderen berücksichtigt die Extrapolation lediglich drei Datenpunkte, was zu einer gewissen Unsicherheit führt. Insgesamt sollte die abgeleitete Größe somit eher als Abschätzung verstanden werden. Grundsätzlich lässt der Vergleich die Annahme zu, dass der Einfluss der anregungsinduzierten Dephasierung bei der niedrigsten Ladungsträgerdichte keinen dominanten Beitrag zum Phasenverlust liefert.

Homogene Linienverbreiterung der exzitonischen Resonanz

Das Abklingen der Signalintensität lässt sich für Pulse, deren Dauer viel kürzer als die Dephasierungszeit ist, in guter Annäherung durch eine Exponentialfunktion der Verzögerung T_{12} zwischen zwei Pulsen beschreiben:[20,99]

$$I(\tau) \sim |\mathbf{P}(\tau)|^2 \sim \exp\left(-\frac{T_{12}}{T_2}\right)^2 \sim \exp\left(-\frac{T_{12}}{T_D}\right) \tag{5.1}$$

Aufgrund der Beziehung $I(\tau) \sim |\mathbf{P}(\tau)|^2$ ist für homogen verbreiterte Systeme die Zerfallszeit T_D um einen Faktor zwei schneller als die Dephasierungszeit $\left(T_D = \frac{T_2}{2}\right)$. Im Gegensatz dazu gilt bei starker inhomogener Verbreiterung $T_D = \frac{T_2}{4}$. In inhomogen verbreiterten Systemen haben die einzelnen Oszillatoren leicht unterschiedliche Eigenfrequenzen, sodass sich mit der Zeit eine Phasenverschiebung zwischen den Einzelsystemen entwickelt. Insgesamt geht somit die Netto-Phasenbeziehung des Gesamtsystems und damit die makroskopische Polarisation

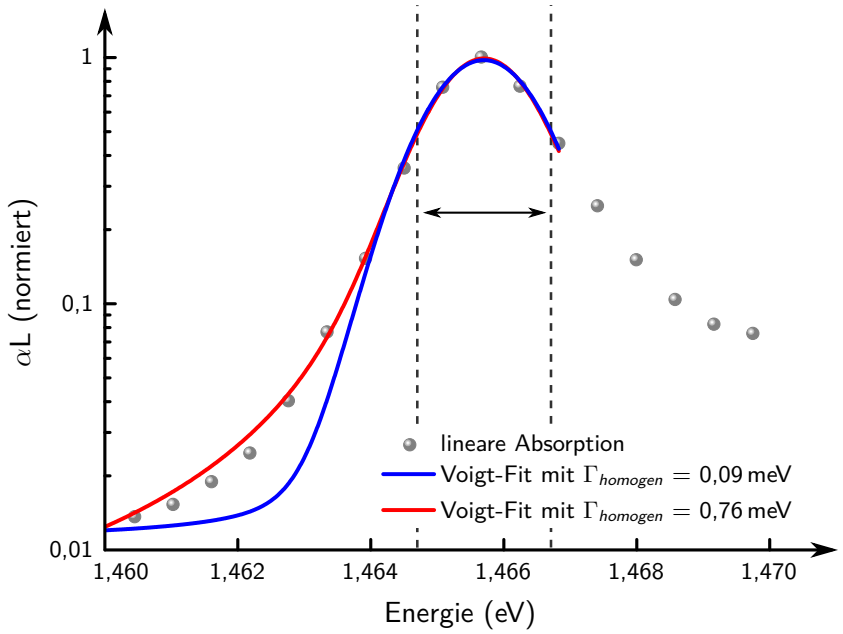

Abbildung 5.5.: Logarithmische Darstellung der linearen Absorption der Referenzprobe um den spektralen Bereich der (Ga,In)As-Resonanz. Die blaue Kurve stellt einen Voigt-Fit dar, dessen homogene Linienbreite ($\Gamma_{homogen} = 0{,}09$ meV) den Ergebnissen der VWM-Messungen entstammt. Während diese Fitfunktion die Messdaten nicht ausreichend gut wiedergibt, bildet ein Voigt-Fit mit einer um den Faktor acht größeren homogenen Linienbreite (rot) die Resonanz deutlich besser ab. Dies würde einer Zerfallszeit im VWM-Signal von 433 fs entsprechen. Tatsächlich liefern die Experimente jedoch um eine Größenordnung höhere Zerfallszeiten.

verloren. Der Faktor 4 berücksichtigt, dass die Oszillationen mit geringfügig unterschiedlichen Resonanzen zu einem schnelleren Abklingen der kohärenten Gesamtpolarisation führen. Insgesamt kann die Dephasierungszeit der Gesamtpolarisation des Ensembles (sogenannter *free polarization decay*) dementsprechend deutlich kürzer als die Dephasierungszeiten der Einzelsysteme sein.[20]

Messungen im niedrigen Dichteregime ermöglichen es anhand der abgeleiteten Zerfallszeit T_D Rückschlüsse auf die homogene Linienbreite der Resonanz zu ziehen. Nur in diesem Fall liefern Effekte der anregungsinduzierten Dephasierung keinen dominanten Beitrag zur Dekohärenz. Der Vergleich mit der extrapolierten $T_{zero\ density}$ bestätigt, dass die bei der niedrigsten Dichte gemessene Zerfallszeit $T_D = 3{,}8$ ps zur Berechnung der Linienbreite eingesetzt werden kann. In der Annahme eines homogen verbreiterten Systems, in welchem die Phasenkohärenz hauptsächlich durch Streuung an akustischen Phononen verloren geht, beträgt die Dephasierungszeit der exzitonischen Polarisation bei der niedrigsten untersuchten Ladungsträgerdichte $T_2 = 2 \cdot T_D = 7{,}6$ ps. Über Gleichung 2.11 können die experimentell bestimmten Zerfallszeiten mit der homogenen Linienbreite des exzitonischen Übergangs unter der Annahme einer lorentzförmigen Resonanz in Zusammenhang gebracht werden. Die kalkulierte Dephasierungszeit entspricht einer homogenen Linienbreite von $\Gamma_{homogen} = 0{,}17$ meV. Wie bereits in Abschnitt 2.3.1 ausführlich beschrieben, äußern sich Streuprozesse nicht nur als Verlust der

kohärenten Polarisation. Sie sind ebenso der Grund für homogene Linienverbreiterungen und lassen sich dadurch in der Absorption beobachten. Ein einfacher Ansatz, um die mit der Dephasierungszeit verknüpfte homogene Linienbreite mit den Linienbreiten der linearen Absorption zu vergleichen, sieht es vor die Halbwertsbreite der Resonanzen im Absorptionsspektrum zu bestimmen. Anhand Abbildung 5.5 lässt sich erkennen, dass die spektrale Breite der exzitonischen Resonanz im Absorptionsspektrum um 1,465 eV etwa 2 meV beträgt. Die Diskrepanz zwischen der homogenen Linienbreite $\Gamma_{homogen}$ aus den VWM-Messungen und der aus den Absorptionsmessungen ermittelten Breite deutet auf eine starke inhomogene Verbreiterung des exzitonischen Übergangs in der untersuchten Probe hin.

Für Systeme, in denen die inhomogene Verbreiterung $\Gamma_{inhomogen}$ größer als die homogene Linienbreite $\Gamma_{homogen}$ ist, sagen Modellrechnungen einen Zerfall des entarteten Vier-Wellen-Misch-Signals gemäß $T_D = \frac{T_2}{4}$ voraus.[99] Unter diesen Umständen repräsentiert die gemessene Abklingzeit eine Dephasierungszeit von $T_2 = 4 \cdot T_D = 15{,}2\,\text{ps}$, was einer homogenen Linienbreite $\Gamma_{homogen} = 0{,}09\,\text{meV}$ entspricht. Unter der Annahme einer sowohl homogen als auch inhomogen verbreiterten Resonanz wird ein Voigt-Fit mit einer homogenen Linienbreite von 0,09 meV (blaue Kurve) an die niederenergetische Flanke des Absorptionspeaks angelegt. Dadurch werden Kontinuumbeiträge, die an der hochenergetischen Flanke die Form der Exzitonresonanz beeinflussen können, vermieden. An der niederenergetischen Flanke ist zu erkennen, dass das Voigt-Profil mit einer homogenen Linienbreite von 0,09 meV die exzitonische Resonanz nicht perfekt wiedergibt. Demgegenüber schmiegt sich ein Voigt-Profil mit einer um einen Faktor acht größeren homogenen Linienbreite (rote Kurve) wesentlich besser an die Messdaten an. Diese Diskrepanz der homogenen Linienbreiten ist zunächst nicht zu erklären, da eine homogene Linienbreite von 0,76 meV einer beobachteten Zerfallszeit im VWM von 433 fs entspricht. Die VWM-Experimente widersprechen einer derart kurzen Zerfallszeit eindeutig. Insgesamt lässt sich die Absorption nicht mit der aus den VWM-Messungen resultierenden homogenen Linienbreite und einer gaußförmigen, frei wählbaren inhomogenen Linienbreite beschreiben. Eine mögliche Erklärung könnte sein, dass die inhomogene Verbreiterung innerhalb der Probe keiner reinen Gaußverteilung entspricht. Darüber hinaus ist die Bestimmung der homogenen und inhomogenen Linienbreite anhand der Absorptionsmessungen in der Regel fehlerbehaftet, wenn die exzitonische Resonanz mit weiteren Übergängen überlappt. Eine sehr schwache Biexzitonresonanz in der niederenergetischen Flanke könnte sowohl die exzitonische Linienbreite als auch die Form der Exzitonresonanz verändern und dementsprechend Abweichungen bei der Bestimmung der homogenen und inhomogenen Linienbreite bewirken.

Die Beobachtungen verdeutlichen die Überlegenheit des Vier-Wellen-Mischens als nichtlineare Spektroskopiemethode gegenüber linearen Absorptionsmessungen. Selbst bei diesem vergleichsweise einfachen und guten Modellsystem ist es unmöglich anhand der Absorptionsdaten eine Aussage über die Dephasierungszeit zu treffen. Insbesondere bei einer inhomogen verbreiterten Resonanz ist die Abschätzung der Dephasierungszeit aus den Absorptionsmessungen sehr ungenau und liefert lediglich eine untere Grenze.[20] Im Gegensatz dazu führen VWM-Experimente selbst bei Anwesenheit inhomogener Verbreiterungen zu aussagekräftigen Ergebnissen, da die Effekte der inhomogenen Verbreiterung minimiert werden. Insgesamt liefern sie somit bei niedrigen Temperaturen ein viel klareres Bild der Exziton-Phonon-Wechselwirkungen in Halbleitern als die Analyse der Absorptionslinienbreiten.[65]

5.1.3. Kohärente Polarisation in der Typ-II-Heterostruktur

Im Falle der Typ-II-Heterostruktur wird die kohärente Dynamik verschiedener exzitonischer Übergänge untersucht. Die exzitonischen Übergänge werden mittels spektral angepasster Pulse einzeln angeregt. Auf diese Weise können die Dephasierungszeiten einzelner optischer Resonanzen unabhängig voneinander untersucht werden.

Dephasierung einer CT-Exzitonpolarisation

Im ersten Schritt wird der in Abbildung 5.6 rot eingezeichnete Puls verwendet, um Charge-Transfer-Exzitonen direkt über die Grenzfläche der Quantenfilme hinweg anzuregen. Meines Wissens nach konnte auf diese Weise erstmals die Dephasierung einer reinen CTX-Polarisation beobachtet werden. Der Übersichtlichkeit halber sind die jeweiligen Intensitätsverläufe der abgebeugten VWM-Signale im Folgenden in den Farben der in Abbildung 5.6 eingezeichneten Anregepulse dargestellt. Anhand der semilogarithmischen Darstellung der VWM-Signale in Abbildung 5.7 ist der exponentielle Zerfall der kohärenten Polarisation mit zunehmender Verzögerungszeit zu erkennen. Ähnlich wie im Falle der Typ-I-Heterostruktur lässt sich eine verminderte Abklingzeit mit steigender Ladungsträgerdichte beobachten. Für niedrige Dichten lässt sich eine Abklingzeit von etwa 1 ps ermitteln. Wird die Ladungsträgerdichte auf das Doppelte erhöht ($29 \cdot 10^8\,\mathrm{cm}^{-2}$), dominieren Kollisionen mit Oszillatoren und Ladungsträgern den Dephasierungsprozess, sodass die Abklingzeit des Signals auf die Hälfte sinkt. In Anwesenheit der höchsten Anregungsdichte fällt das Signal bereits innerhalb 0,3 ps auf $1/e$ des Anfangswertes ab. Es lässt sich festhalten, dass eine mit steigender Ladungsträgerdichte sinkende Zerfallszeit sowohl für die Referenzprobe als auch die Typ-II-Struktur beobachtet werden kann. Daher liegt die Vermutung nahe, dass in beiden Fällen die Zerfallszeit des abgebeugten Pulses durch anregungsinduzierte Dephasierung mit zunehmender Ladungsträgerdichte sinkt.

Anhand der Messdaten kann die Zerfallszeit bei einer verschwindenden Anregungsdichte ($T_{\textit{zero density}}$) ermittelt werden. Dazu werden die aus den Messdaten abgeleiteten Zerfallszeiten in homogene Linienbreiten umgerechnet und gegen die Ladungsträgerdichte des Anregepulses aufgetragen (siehe Abbildung 5.8). Eine lineare Regression der dichteabhängigen homogenen Linienbreiten, welche die Fehlerbalken der Datenpunkte berücksichtigt, liefert eine $T_{\textit{zero density}}$ von 1 194 fs. Diese ist in guter Übereinstimmung mit der experimentell ermittelten Abklingzeit von 1 033 fs für die niedrigste untersuchte Ladungsträgerdichte.

Es kann festgehalten werden, dass die Zerfallszeiten der niedrigsten untersuchten Dichten für beide Proben bei ähnlichen Ladungsträgerdichten bestimmt werden. Darüber hinaus zeigen die Vergleiche mit den extrapolierten Zerfallszeiten $T_{\textit{zero density}}$, dass die kohärente Dynamik im niedrigen Dichtebereich hauptsächlich durch Phononen und strukturelle Defekte beeinflusst wird. Streuprozesse mit Oszillatoren und Ladungsträgern nehmen in diesem Dichteregime keinen dominanten Einfluss auf die Dephasierungszeiten in beiden Halbleiterstrukturen. Aus diesen Gründen ist ein valider Vergleich der kohärenten Dynamiken beider Systeme möglich: Im niedrigen Dichteregime zerfällt die Phasenkohärenz der CTX-Polarisation etwa viermal schneller als die Kohärenz der hh-Exzitonpolarisation der direkten Quantenfilme. Diese Beobachtung ist in guter Übereinstimmung mit aus der Literatur bekannten Ergebnissen.[123,124] Die Autoren untersuchten die kohärente Dynamik einer CTX-Polarisation an einer strukturell vergleichbaren Typ-II-Heterostruktur. Dabei fanden sie heraus, dass die exzitonische Zerfallszeit in der

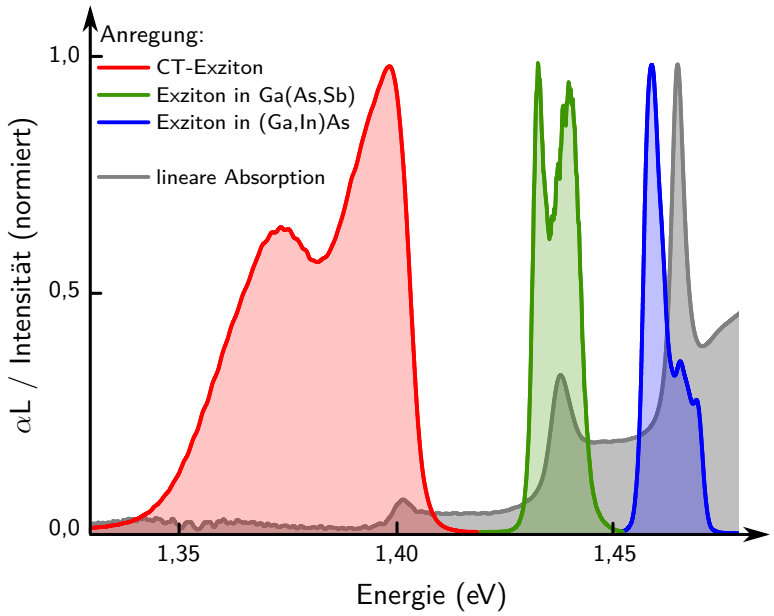

Abbildung 5.6.: Anregungsbedingungen für die VWM-Experimente an der Typ-II-Heterostruktur. Dargestellt ist die lineare Absorption der Halbleiterstruktur (grau) und die Spektren der Anregungspulse (rot, grün, blau). Mithilfe von Bandkantenfiltern werden die Pulse spektral beschnitten, um das Dephasierungsverhalten der einzelnen Polarisationen unabhängig voneinander zu untersuchen.

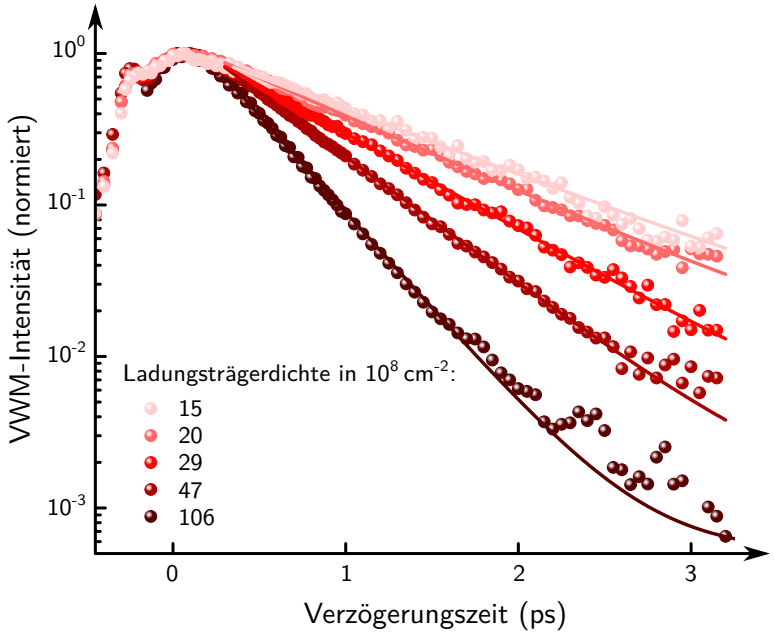

Abbildung 5.7.: VWM-Transienten unter resonanter Anregung der CTX-Polarisation (roter Puls). Die an die Messdaten angelegten exponentiellen Fitfunktionen sind als gleichfarbige Linien gekennzeichnet. Mit zunehmender Ladungsträgerdichte nimmt die Dephasierungszeit und damit die Abklingzeit des VWM-Signals ab.

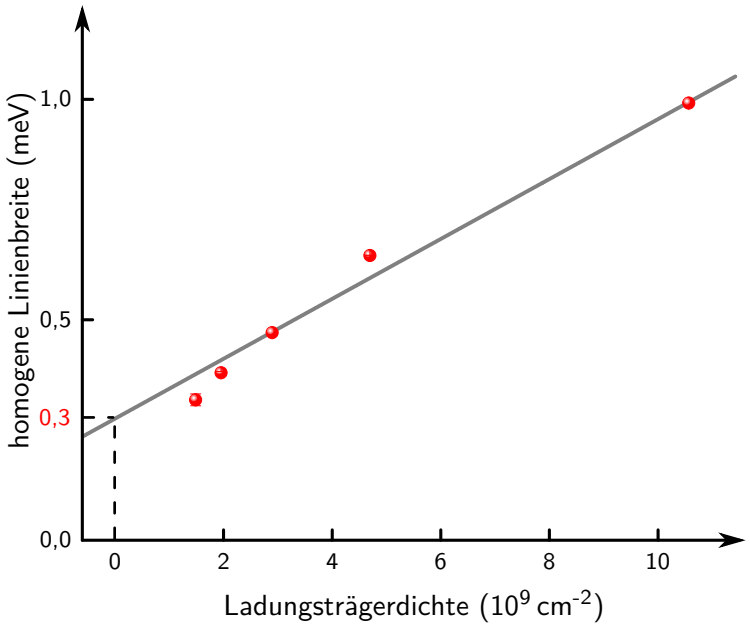

Abbildung 5.8.: Die lineare Extrapolation der aus den VWM-Experimenten abgeleiteten dichteabhängigen Linienbreiten ergibt eine homogene Linienbreite bei verschwindender Anregungsdichte $\Gamma_{\textit{zero density}}$. Unter Berücksichtigung eines inhomogen verbreiterten Systems ergibt sich $\Gamma_{\textit{zero density}} = 0{,}3\,\text{meV}$, was einer Zerfallszeit von 1 033 fs entspricht. Damit zerfällt die CTX-Polarisation etwa viermal schneller als eine Polarisation regulärer Exzitonen.

Typ-II-Struktur um mehr als das Zweifache geringer ist als die Abklingzeit in einer Typ-I-Heterostruktur. Im Gegensatz zu den hier vorgestellten Messungen haben Stein und Lammers et al. trotz ihrer bahnbrechenden Pionierarbeit keine reine CTX-Polarisation betrachtet. In ihrem Fall wurde vielmehr die Dynamik einer Superposition aus regulären 1s- und CT-Exzitonpolarisationen untersucht, was einen Einfluss auf die Messergebnisse genommen haben könnte. Des Weiteren erfolgten ihre Messungen mit einem Lasersystem mit einer Repetitionsrate von 80 MHz. Optische Anrege-Abfrage-Experimente (engl: *optical pump-optical probe*) legen jedoch nahe, dass die angeregten Ladungsträger nach 12,5 ns (Dauer zwischen aufeinanderfolgenden Pulsen) noch nicht vollständig rekombiniert sind und demzufolge kein thermisches Gleichgewicht in der Halbleiterprobe vorliegt. Infolgedessen ist nicht auszuschließen, dass noch Ladungsträger im Material anwesend sind, wenn der nächste Anregepuls auf die Halbleiterprobe eintrifft, sodass Stein und Lammers et al. VWM-Messungen in Anwesenheit einer Restpopulation an Exzitonen durchführten. Aus diesem Grund hätten die VWM-Messungen mit einem 80 MHz-Lasersystem insbesondere bei der Typ-II-Heterostruktur zu einem Pile-up-Effekt führen können. Beides könnte in den von Stein und Lammers et al. durchgeführten Experimenten zu einem schnelleren Verlust der Phasenkohärenz geführt haben. Die von Stein und Lammers et al. und in diesem Kapitel beschriebenen Experimente unterscheiden sich somit insbesondere darin, dass im Rahmen dieser Arbeit erstmals die kohärente Dynamik einer reinen CTX-Polarisation untersucht wird und dass diese bei einer Repetitionsrate von 1 MHz nicht durch bereits im Material vorhandene Ladungsträger beeinflusst wird. Dies könnte erklären,

weshalb Stein und Lammers et al. von deutlich verkürzten Dephasierungszeiten der regulären und der CT-Exzitonpolarisation berichten.

Der im Vergleich mit den Beobachtungen an der Referenzprobe um einen Faktor vier schnellere Zerfall der CTX-Polarisation wird durch ein höheres Maß an Unordnung innerhalb der Typ-II-Probe hervorgerufen. Diese tritt auf, da neben (Ga,In)As-Quantenfilmen zusätzlich Ga(As,Sb)-Quantenfilme vorliegen. Eine höhere Anzahl an Quantenfilmen, zusätzliche Materialkomponenten sowie damit verbunden ein vermehrtes Auftreten von Dicken- und Kompositionsfluktuationen können zusätzliche Streuzentren darstellen. Da sich die Wellenfunktion des CT-Exzitons über zwei zusätzliche innere Grenzflächen erstreckt, kann die Streuung an Grenzflächenrauigkeiten zu einer vergrößerten homogenen Linienbreite und damit zu kürzeren Dephasierungszeiten führen.[131,132] Darüber hinaus hat das CT-Exziton einen größeren Wellenfunktionenüberlapp mit der GaAs-Barriere zwischen den einzelnen Quantenfilmen. Diese Überlappung führt zu einer erhöhten Wahrscheinlichkeit der Streuung mit strukturellen Defekten in den Barriereschichten, welche zur Linienverbreiterung beiträgt. Alle zusätzlichen Streuprozesse führen zu einem schnelleren Verlust der makroskopischen Polarisation und dementsprechend zu einem schnelleren Zerfall des abgebeugten VWM-Signals. Demnach ist anzunehmen, dass die VWM-Spektroskopie eine valide Methode ist, um eine Aussage über die Qualität der inneren Grenzflächen zu treffen.

Dephasierung regulärer Exzitonpolarisationen

Neben der kohärenten Dynamik der CT-Exzitonpolarisation wird zusätzlich die Dephasierung der 1s-Exzitonkohärenzen der räumlich direkten Übergänge innerhalb der Typ-II-Heterostruktur untersucht. Wie sich anhand Abbildung 5.6 erkennen lässt, werden zu diesem Zweck Anregepulse verwendet, die um die jeweilige exzitonische Resonanz (1,437 eV (grün) und 1,465 eV (blau)) zentriert sind. Abbildung 5.9 a) stellt das zeitintegrierte VWM-Signal der resonant angeregten (Ga,In)As-Exzitonpolarisation dar. Die Messungen zeigen, dass der zeitabhängige Intensitätsverlauf unabhängig von der eintreffenden Photonendichte ist. Diese Beobachtung wird repräsentativ durch drei verschiedene Graphen mit unterschiedlicher Photonendichte verdeutlicht. Die Signale sind leicht asymmetrisch zum Zeitnullpunkt und scheinen ultraschnell zu zerfallen. Aufgrund der Asymmetrie ist anzunehmen, dass die Signale eine im Vergleich zur Pulslänge des Anregepulses kurze Zerfallszeit besitzen. Das äußerst schnelle Abklingverhalten wird noch deutlicher, wenn man den Zerfall der resonant angeregten (Ga,In)As-Exzitonpolarisation (blau) mit der VWM-Transiente der Typ-I-Heterostruktur (grau) in Abbildung 5.9 b) vergleicht. Die Abklingzeit der (Ga,In)As-Exzitonpolarisation ist innerhalb der Typ-II-Probe signifikant kürzer als in der Referenzprobe.

Neben den unterschiedlichen Abklingzeiten der Polarisationen unterscheiden sich die Experimente an der Referenz- und Typ-II-Probe ebenfalls in den verwendeten Photonendichten. Während der resonanten Messungen an der Typ-II-Struktur werden wesentlich höhere Photonendichten als bei der Referenzprobe benötigt, um überhaupt messbare VWM-Signale zu detektieren. Dies hat den folgenden Grund: Die (Ga,In)As-Polarisation in der Referenzprobe zerfällt nur langsam, sodass sich die einzelnen Oszillatoren über die Dauer des Anregepulses zu einer makroskopischen Polarisation aufsummieren und lange im Material erhalten bleiben. Infolge des schnellen Zerfalls der exzitonischen Polarisation in der Typ-II-Probe zerfällt ein

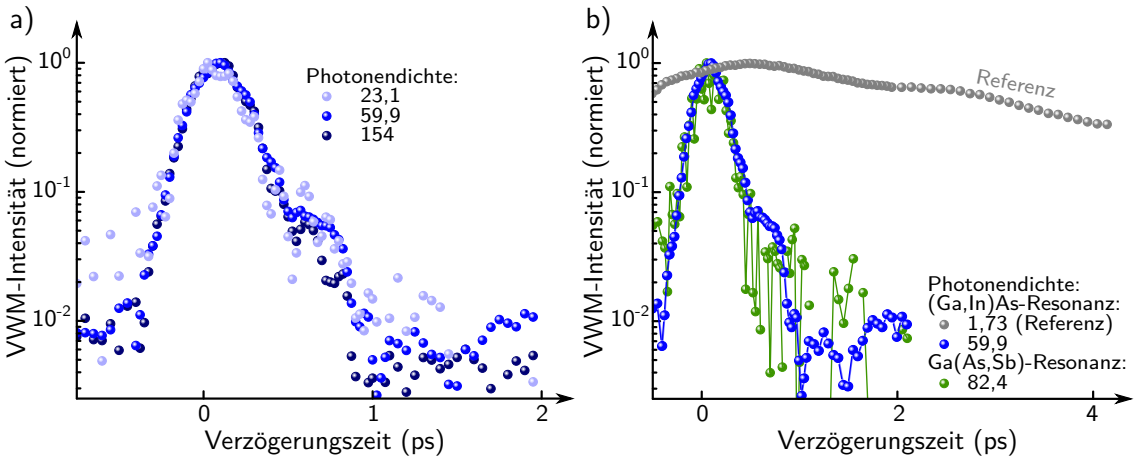

Abbildung 5.9.: VWM-Transienten bei resonanter Anregung der 1s-Exzitonpolarisationen innerhalb der a) (Ga,In)As-Quantenfilme (blau) und b) Ga(As,Sb)-Quantenfilme (grün) der Typ-II-Struktur. Die Photonendichte ist in $10^{11}\,\mathrm{cm}^{-2}$ angegeben. Der Vergleich mit dem VWM-Signal der resonant angeregten Referenzprobe (grau) zeigt, dass die abgebeugten VWM-Pulse der Typ-II-Probe ultraschnell zerfallen.

Großteil der makroskopischen Polarisation bereits auf den Zeitskalen des Anregepulses. Ein Aufsummieren der Oszillatoren über die Dauer des Anregepulses ist somit nur eingeschränkt möglich. Die maximal auftretende Polarisation in der Typ-II-Struktur bleibt infolgedessen gering und damit auch die Größe der auftretenden VWM-Signale. Um überhaupt messbare Signale zu erhalten, ist es daher nötig hohe Photonendichten einzusetzen.

Für beide resonanten Anregungen (grün, blau) ist eine genaue Bestimmung der Zerfallszeit der VWM-Signale nicht möglich, da sich ihr Zerfall zu wenig von der zeitlichen Auflösungsgrenze des Systems unterscheidet. Zur Abschätzung der jeweiligen Zerfallszeiten werden die VWM-Signale der räumlich direkten Übergänge durch ein Simulationsverfahren nachgebildet. Die Ergebnisse sind gemeinsam mit den gemessenen VWM-Intensitäten in Abbildung 5.10 dargestellt. Da die Polarisation in der Probe durch den Anregepuls induziert wird, wird dazu unter der Annahme eines symmetrischen Anregepulses eine Gauß-Funktion an die linke Flanke der Messdaten angefittet. Die Gauß-Funktion bildet das durch einen symmetrischen Anregepuls erzeugte VWM-Signal bei einer verschwindend kleinen Dephasierungszeit nach. Der Gauß-Puls besitzt in diesem Fall eine Halbwertsbreite von 300 fs. Während ein Laserpuls mit der Halbleiterprobe wechselwirkt, werden zu jedem Zeitpunkt mikroskopische Polarisationen innerhalb des Materials induziert. Die in der Probe befindlichen Polarisationen summieren sich zu einer makroskopischen Polarisation auf, deren Zerfall durch VWM-Experimente untersucht werden kann. Zur Nachbildung der makroskopischen Polarisation **P** innerhalb der Probe muss dementsprechend die durch den Anregepuls zum Zeitpunkt t + i erzeugte Polarisation $\mathbf{G}(t+i)$ mit der bereits in der Probe vorliegenden Polarisation aufsummiert werden. Dieser Vorgang lässt sich durch folgende Gleichung beschreiben:

$$\mathbf{P}(t+i) = \mathbf{P}(t) \cdot (1 - Z) + \mathbf{G}(t+i) \tag{5.2}$$

Hierbei ist $\mathbf{P}(t+i)$ die von der Verzögerungszeit T_{12} abhängige makroskopische Polarisati-

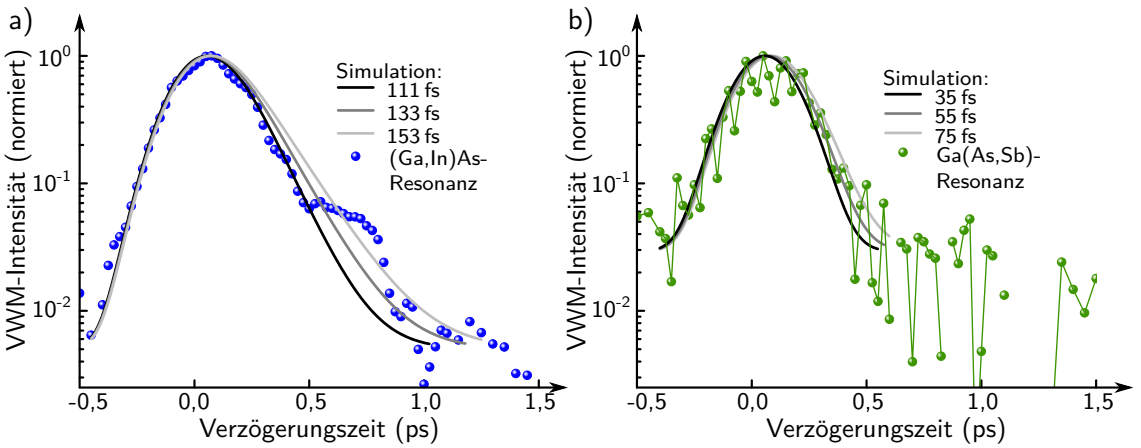

Abbildung 5.10.: Zur Abschätzung der Zerfallszeiten der in Abbildung 5.9 erläuterten VWM-Ergebnisse werden die abgebeugten Signale der resonant angeregten a) (Ga,In)As- und b) Ga(As,Sb)-Quantenfilme durch ein Simulationsverfahren nachgebildet. Die Simulationen ergeben Zerfallszeiten von $\sim$ 55 fs und $\sim$ 130 fs im Falle der 1s-Exzitonpolarisationen der Ga(As,Sb)- und (Ga,In)As-Schichten. Das ultraschnelle Abklingen der abgebeugten Signale lässt auf einen ultraschnellen Zerfall der exzitonischen Polarisationen in der Typ-II-Probe schließen. Ursächlich für den beobachteten ultraschnellen Zerfall ist vermutlich der Transferprozess der Oszillatoren, welcher nach der optischen Anregung durchschnittlich innerhalb von 60 fs stattfindet.[19]

on innerhalb der Probe. Darüber hinaus ist es nötig die Dephasierung der Polarisationen bei der Simulation der Messdaten zu berücksichtigen. Dieser Vorgang beginnt noch während der Anregepuls eine Polarisation im Probenmaterial erzeugt. Hierzu wird eine Dephasierungsrate Z (Verlust in % pro Zeiteinheit) eingeführt, die den Verlust der Polarisation nachbildet. In diesem speziellen Fall wird als Zeiteinheit eine fs verwendet. Insgesamt ergibt sich die simulierte Polarisation in der Probe zur Zeit t + i somit aus der in der Probe zum Zeitpunkt t vorhandenen Polarisation $\mathbf{P}(t)$ abzüglich eines Dephasierungsverlusts zuzüglich der durch den Anregepuls erzeugten Polarisation zur Zeit t + i. Zur Simulation der VWM-Daten wird der Parameter Z iterativ angepasst, bis die modellierten VWM-Signale gut mit den gemessenen Intensitäten übereinstimmen. Des Weiteren wird eine Verschiebung in y-Richtung hinzugefügt, um den Rauschoffset der experimentellen Daten zu berücksichtigen. Die Ergebnisse sind in Abbildung 5.10 zusammengefasst.

Die Dephasierungsraten der simulierten Signale lassen sich in eine exponentielle Zerfallszeit T_D umrechnen, sodass eine Abschätzung der jeweiligen Zerfallszeiten möglich wird. Im Falle der resonant angeregten (Ga,In)As-Quantenfilme (Abbildung 5.10 a)) lässt sich mit der Simulation ein exponentieller Zerfall des VWM-Signals mit Abklingzeiten zwischen 111 fs und 153 fs abschätzen. Während es den Anschein macht, dass die kürzeste Zeit von 111 fs die reale Zerfallszeit unterschätzt, erscheint die höchste Abklingzeit mit 153 fs zu hoch zu sein. Es erscheint somit sinnvoll, für den Zerfall der exzitonischen Polarisation eine Zerfallszeit von etwa (133 $\pm$ 20) fs anzunehmen. Der Vergleich zwischen Abbildung 5.10 a) und b) zeigt, dass die exzitonische Polarisation der resonant angeregten Ga(As,Sb)-Quantenschichten eine nochmals kürzere Abklingzeit zwischen 35 fs und 75 fs besitzt. Der Graph ähnelt sehr stark

einer Autokorrelation des Anregepulses. Bei einer Autokorrelation werden die Laserpulse durch einen Strahlteiler in zwei Teilstrahlen aufgeteilt und in einem nichtlinearen Medium überlagert. Die Überlagerung der Pulse führt zu einer Erzeugung der zweiten Harmonischen, welche in einem Detektor gemessen wird. Da die angeregten (virtuellen) Zustände faktisch keine Lebensdauer besitzen, wird nur während der Dauer, in der sich die beiden Pulse zeitlich und räumlich im Medium überlagern, ein SHG-Signal erzeugt und im Detektor gemessen. Eine ähnliche Situation liegt bei den gegebenen Anregungsvoraussetzungen vor: Während der Anregepuls eine Halbwertsbreite einiger hundert Femtosekunden besitzt, ist die Dephasierungszeit der makroskopischen Polarisation verschwindend klein. Die im Material erzeugte Polarisation zerfällt somit ultraschnell, sodass sie ohne treibendes Feld des Laserpulses nicht lange innerhalb der Probe erhalten bleibt. Das abgebeugte VWM-Signal spiegelt daher in erster Linie die Pulslänge des Anregepulses wider und gleicht dementsprechend einer Autokorrelationsmessung. Dies führt insgesamt zu dem in Abbildung 5.10 b) dargestellten VWM-Signal. Außerdem wird deutlich, dass das eigentliche Signal mit einer Substruktur überlagert ist. Der ultraschnelle Verlust der Phasenkohärenz verhindert weitestgehend den Aufbau einer makroskopischen Polarisation, sodass lediglich niedrige VWM-Signalstärken detektiert werden können. Bei sehr niedrigen Signalstärken (trotz vergleichsweise starker Anregepulse) können die Streulichtanteile vergleichsweise groß werden. Das Streulicht der beiden Anregepulse kann im Detektor konstruktiv interferieren und folglich zu einem Interferogramm führen. Diese Interferenz äußert sich in Abbildung 5.10 b) als eine hochfrequente Oszillation (grün), die mit dem eigentlichen VWM-Signal überlagert ist.

Wie bereits in vorangehenden Abschnitten erläutert, klingt das VWM-Signal bei resonanter Anregung der Referenzprobe (grau) bei der niedrigsten untersuchten Dichte mit einer Zerfallszeit von 3,8 ps ab. Das bedeutet, dass die kohärente Polarisation innerhalb der Typ-I-Probe um ein Vielfaches länger existiert als in den Quantenfilmen der Typ-II-Heterostruktur. Dieser Unterschied lässt sich durch den strukturellen Aufbau der Typ-II-Struktur begründen. Der ultraschnelle Zerfall der 1s-Exzitonpolarisationen ist höchstwahrscheinlich eine Folge der stattfindenden Relaxationsprozesse der Polarisationen in energetisch niedrigere Zustände, die durch die benachbarten Quantenfilme bereitgestellt werden. Innerhalb der untersuchten Typ-II-Heterostruktur kann mittels THz-Emissionsspektroskopie eine durchschnittliche Ladungsträgertransferzeit von etwa 60 fs bei Raumtemperatur abgeschätzt werden.[19] Um den inkohärenten Transfer der Ladungsträger zu untersuchen, analysierten die Autoren die durch den Transfer der Ladungsträger emittierte THz-Strahlung. Sie konnten zeigen, dass das Spektrum der emittierten THz-Strahlung ein direktes Maß für die mit dem Tunnelprozess verbundene Dynamik des Ladungstransfers ist.[19] Da ein Ladungsträgertransferprozess eine Dephasierung der angeregten Zustände impliziert, kann die mittels THz-Emission beobachtete Transferzeit als obere zeitliche Grenze für die Dephasierungsprozesse innerhalb der Probe betrachtet werden. Die abgeschätzte Ladungsträgertransferzeit von 60 fs passt gut zu den aus den Simulationen abgeleiteten Zeiten von $\sim$ 130 fs und $\sim$ 55 fs, mit denen die VWM-Signale zerfallen. Es erscheint naheliegend anzunehmen, dass die stattfindende Dephasierung in energetisch niedrigere Zustände die makroskopischen Polarisationen in der Probe innerhalb weniger zehn bis hundert Femtosekunden zerstört und dementsprechend ursächlich für den ultraschnellen Abfall der gemessenen VWM-Signale ist. Hinweise auf einen solch ultraschnellen Zerfall der regulären Exzitonpolarisationen in Typ-II-Strukturen konnten bereits Stein und Lammers et al. finden.[123]

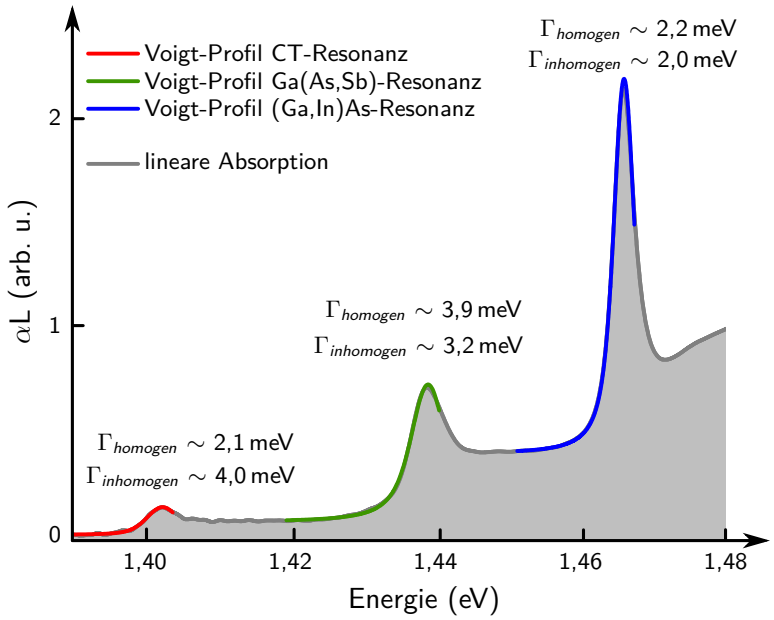

Abbildung 5.11.: An die einzelnen exzitonischen Resonanzen in der linearen Absorption der Typ-II-Heterostruktur (grau) werden verschiedene Voigt-Fits (rot, grün, blau) angelegt, um die homogenen und inhomogenen Beiträge zur Linienverbreiterung zu ermitteln.

Homogene Linienverbreiterung exzitonischer Resonanzen

In einem inhomogen verbreiterten System entspricht eine Zerfallszeit der CTX-Polarisation von 1 ps einer Dephasierungszeit von $T_2 = T_D \cdot 4 = 4$ ps, welche wiederum mit einer homogenen Linienbreite von 0,329 meV verbunden ist. Die Annahme einer stark inhomogenen Verbreiterung ist sinnvoll, da diese Probe im Vergleich zur Referenzprobe zusätzliche Materialkomponenten aufweist, welche zu größeren Unregelmäßigkeiten führen können. Da das System sowohl inhomogen als auch homogen verbreitert zu sein scheint, wird ein Voigt-Fit an den niederenergetischen Absorptionspeak in Abbildung 5.11 angelegt. Dieser sollte aufgrund der vergleichsweise schwach ausgeprägten Resonanz grundsätzlich mit Vorsicht betrachtet werden. Dennoch liefert er eine deutlich größere homogene Linienbreite als man durch die VWM-Daten erwarten würde. Der Voigt-Fit schlägt eine homogene Linienbreite von $\Gamma_{homogen} = 2{,}1$ meV vor, was einer gemessenen Zerfallszeit von 157 fs entspricht. Eine derart kurze Abklingzeit konnte nicht gemessen werden und geht auch nicht aus der Zerfallszeit $T_{zero\ density}$ hervor. Da die inhomogene Verbreiterung der räumlich indirekten CT-Exzitonresonanz von den inhomogenen Linienverbreiterungen der einzelnen Quantenfilme abhängt, würde man naiverweise eine inhomogene Verbreiterung von $\sqrt{\Gamma^2_{inhomogen,\ (Ga,In)As} + \Gamma^2_{inhomogen,\ Ga(As,Sb)}} = 3{,}8$ meV erwarten. Der an die Messdaten angelegte Voigt-Fit (rot) ergibt eine inhomogene Verbreiterung von 4 meV, welche in guter Übereinstimmung mit dem erwarteten Wert ist. Ein Vergleich zwischen den Absorptionsspektren beider Proben zeigt, dass die homogene Linienbreite des CT-Übergangs größer ist als die der regulären Exzitonresonanz der Referenzprobe. Diese Beobachtung deckt sich mit den VWM-Ergebnissen eines schnelleren Verlusts der CTX-Polarisation. Nichtsdestotrotz liefern die Absorptionsmessungen in beiden Fällen viel zu große homogene Linienbreiten, denen

zu kleine Dephasierungszeiten entsprechen würden. Ein zu erwartender direkter Rückschluss der homogenen Linienbreiten auf die Dephasierungszeiten ist in diesen Fällen nicht möglich.

Der Voigt-Fit der hochenergetischen (Ga,In)As-Resonanz um 1,465 eV erweckt den Anschein, dass die spektrale Breite des direkten Übergangs etwa zu gleichen Teilen homogen und inhomogen verbreitert ist. In Anbetracht eines inhomogen verbreiterten Systems entspricht die aus den Simulationen abgeschätzte Zerfallszeit von $T_D \sim 133\,\text{fs}$ einer homogenen Linienverbreiterung von 2,5 meV, welche gut zu der aus den Absorptionsdaten extrahierten Linienbreite von $\Gamma_{homogen} = 2{,}2\,\text{meV}$ passt. Der gleiche Trend lässt sich für die homogene Linienbreite der Ga(As,Sb)-Resonanz beobachten. Auch in diesem Fall sind die homogene und inhomogene Verbreiterung etwa gleich groß. Wird aus Konsistenzgründen eine inhomogene Verbreiterung angenommen, ergibt sich aus der simulierten kohärenten Dynamik eine homogene Verbreiterung von $\Gamma_{homogen} \sim 6\,\text{meV}$, was in etwa mit der FWHM von 3,9 meV der Ga(As,Sb)-Resonanz im Absorptionsspektrum übereinstimmt. Die verschiedenen Zerfallszeiten der direkten Übergänge spiegeln sich in unterschiedlich großen homogenen Linienverbreiterungen in der Absorptionsmessung wider. Aufgrund der kleinen effektiven Masse ragen die Wellenfunktionen der Elektronen weiter über die Barriere hinaus (siehe Abbildung 2.2). Aus diesem Grund können die Elektronen leichter in energetisch niedrigere Zustände relaxieren als die größeren Löcher der benachbarten Quantenfilme. Dies resultiert in einer kürzeren Abklingzeit der VWM-Signale und gleichzeitig in einer größeren homogenen Linienbreite im Absorptionsspektrum.

Die Beobachtungen lassen insgesamt folgende Schlussfolgerungen zu: Zum einen lässt sich für die exzitonischen Polarisationen der (Ga,In)As- bzw. Ga(As,Sb)-Quantenfilme in der Typ-II-Probe der Zusammenhang einer kleineren homogenen Linienbreite und einer größeren Dephasierungszeit in der linearen Absorption wiedererkennen. Für beide Resonanzen ist die homogene und inhomogene Verbreiterung etwa gleich stark und die aus den VWM-Messungen abgeleiteten homogenen Linienverbreiterungen sind ähnlich zu den Verbreiterungen im Absorptionsspektrum. Demzufolge lässt sich vermuten, dass in Systemen, in denen die homogene Verbreiterung möglichst groß im Vergleich zur inhomogenen Verbreiterung ist und deren homogene Linienverbreiterung üblicherweise auf einer schnellen Dephasierung beruhen sollte, anhand der Absorption Rückschlüsse auf die Dephasierungszeit getroffen werden können. Im Gegensatz dazu überschätzen die aus der Absorption abgeleiteten Linienbreiten die aus den VWM-Experimenten abgeleitete homogene Linienbreite des verhältnismäßig stark inhomogen verbreiterten CTX- bzw. des regulären 1s-Übergangs in der Referenzprobe. In diesen Fällen ist es möglich, dass es Verbreiterungen gibt, die ebenfalls zu einem lorentzartigen Profil führen, jedoch nicht durch die schnelle Dephasierung der Ladungsträger hervorgerufen werden. Nach Honold et al. verursachen Unordnungen im Kristall mit einer lateralen Ausdehnung deutlich kleiner als der zweifache Bohr-Radius ebenfalls homogene Verbreiterungen.[81] Dies führt dazu, dass insbesondere bei niedrigen homogenen Linienbreiten, die auf einer langsamen Dephasierung beruhen, diese lorentzartigen Verbreiterungen die homogene Linienbreite im Spektrum dominieren. In diesem Fall wird die homogene Linienbreite im Absorptionsspektrum nicht mehr durch die Dephasierung, sondern maßgeblich durch mikroskopische Fluktuationen innerhalb des Kristalls bestimmt. Valide Aussagen über die Dephasierungszeit scheinen unter diesen Umständen lediglich durch die Ergebnisse der VWM-Experimente getroffen werden zu können.

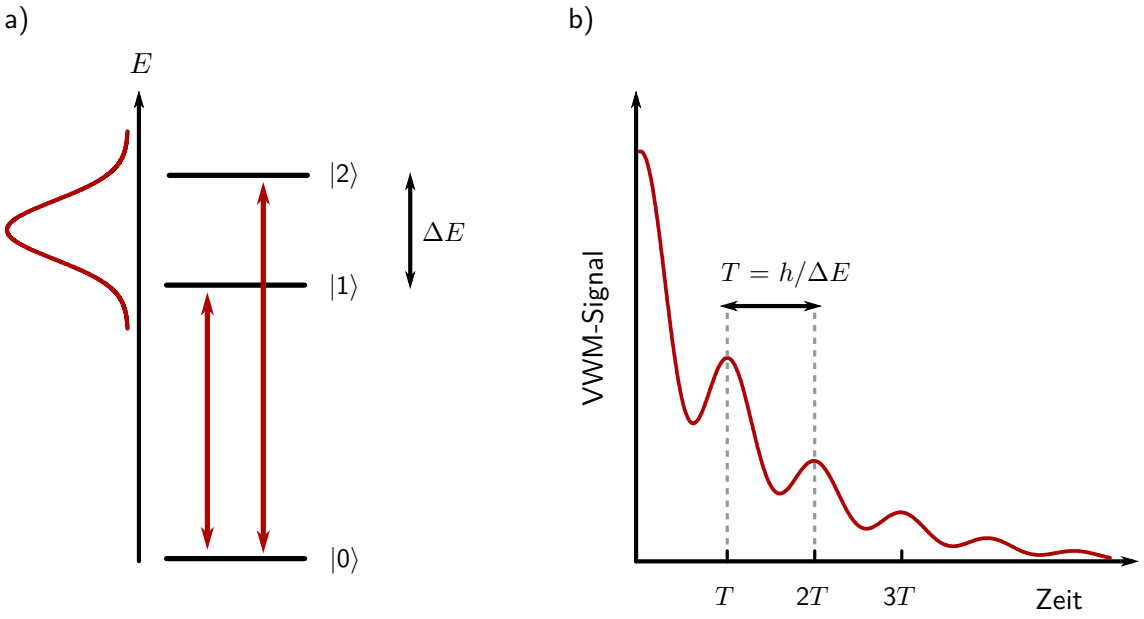

Abbildung 5.12.: Prinzip einer Quantenschwebung am Beispiel des Drei-Niveau-Systems. a) Durch einen spektral breiten Laserpuls werden zwei Zustände $|1\rangle$ und $|2\rangle$ gleichzeitig angeregt. b) Die kohärente Superposition der angeregten Polarisationen äußert sich in Form einer Quantenschwebung im VWM-Signal. Die Periodendauer der Schwebung ist mit der Energiedifferenz ΔE zwischen den beteiligten Zuständen verknüpft.

Quantenschwebung

Bereits zu Beginn des Kapitels wird darauf hingewiesen, dass bei resonanter Anregung der hh-Exzitonpolarisation mit kollinear polarisierten Pulsen eine Quantenschwebung im abgebeugten VWM-Signal der Referenzprobe beobachtet wird (siehe Abbildung 5.1). Zum besseren Verständnis der Thematik veranschaulicht Abbildung 5.12 das Prinzip einer optischen Quantenschwebung. Abhängig von der Photonenergie und der spektralen Breite des Pulses können neben der 1s-Resonanz ein (oder mehrere) höhere Exzitonzustände oder freie Elektronen und Löcher angeregt werden. Im einfachsten Fall reduziert sich das Multi-Niveau-System auf ein Drei-Niveau-System, welches einen Grundzustand $|0\rangle$ sowie zwei nahe beieinanderliegende Zustände $|1\rangle$ und $|2\rangle$ mit einer Energieaufspaltung von $\Delta E = E_2 - E_1$ beinhaltet.[133] Werden zwei oder mehr optische Übergänge gleichzeitig angeregt, entsteht eine kohärente Superposition der angeregten Zustände, welche gemeinhin als *kohärentes Wellenpaket* bezeichnet wird.[70,134] Die Folge ist eine oszillatorische Modulation der makroskopischen Polarisation, eine sogenannte *Quantenschwebung*.[43] Diese entsteht durch konstruktive und destruktive Interferenz der unterschiedlichen Frequenzen der beiden Übergänge und äußert sich durch eine oszillatorische Struktur, welche mit dem exponentiellen Zerfall des Gesamtsignals überlagert ist. Die Energiedifferenz zwischen den angeregten Zuständen bestimmt die Periode des Schwebungssignals, wie in Abbildung 5.12 b) dargestellt. Dabei ist die Periode der Quantenschwebung über $T = \frac{h}{\Delta E}$ mit der inversen Energieaufspaltung zwischen den angeregten Niveaus verknüpft.[133] Quantenschwebungsspektroskopie (engl.: *quantum beat spectroscopy*, Abk.: QBS)

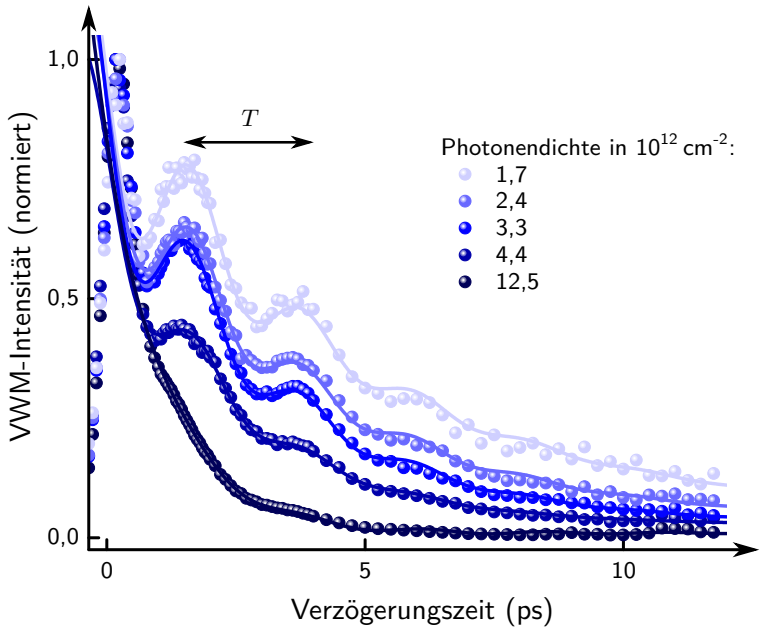

Abbildung 5.13.: VWM-Transienten bei resonanter Anregung der hh-Exzitonpolarisation mit kollinear polarisierten Pulsen in Abhängigkeit der Photonendichte. Die VWM-Signale sind mit einer oszillatorischen Struktur (Quantenschwebung) überlagert. Die durch Gleichung 5.3 beschriebene Fitfunktion bildet die dichteabhängigen Messdaten gut nach (durchgezogene Linien).

ermöglicht somit eine indirekte Bestimmung kleiner Energieaufspaltungen über die Periode T, welche im Frequenzbereich unter Umständen nur schwer aufzulösen sind.[133] Generell können abhängig von den gewählten Anregungsbedingungen im Experiment verschiedene Arten von Quantenschwebungen untersucht werden. Dazu zählen beispielsweise Schwebungen zwischen Polarisationen leichter und schwerer Exzitonen[135], zwischen gebundenen und freien Exzitonkohärenzen oder zwischen exzitonischen und biexzitonischen Polarisationen.[136,137]

Um den Einfluss der Ladungsträgerdichte auf das Schwebungssignal zu untersuchen, werden weitere Messungen mit kollinear polarisierten Pulsen und unterschiedlichen Anregungsleistungen durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 5.13 dargestellt. Die Frequenz der Quantenschwebung lässt sich beispielsweise durch eine Fourier-Transformation der VWM-Transiente ableiten. Eine alternative Möglichkeit besteht darin eine Fitfunktion zu entwickeln, die den Verlauf der Messwerte modelliert. Dies hat den Vorteil, dass neben der Frequenz weitere Parameter aus der Fitfunktion abgeleitet werden können. Für die Analyse der vorliegenden Messdaten wird die folgende Funktion eingesetzt:

$$y = A \cdot \exp\left(\frac{-T_{12}}{T_D^1}\right) + \left(B \cdot \exp\left(\frac{-T_{12}}{T_D^2}\right) \cdot \sin\left(\frac{\pi \cdot (T_{12} - T_c)}{\theta}\right)\right) + y_0 \qquad (5.3)$$

Der erste Term beschreibt den zeitlichen Verlauf der exzitonischen Polarisation $\mathbf{P}_1$. Das Abklingen der exzitonischen Polarisation innerhalb der Probe lässt sich durch eine Exponentialfunktion mit einer Abklingzeit T_D^1 beschreiben. Der darauffolgende Term berücksichtigt den zeitlichen Verlauf der im Signal beobachteten Quantenschwebung. Dabei bildet die Sinusfunktion die

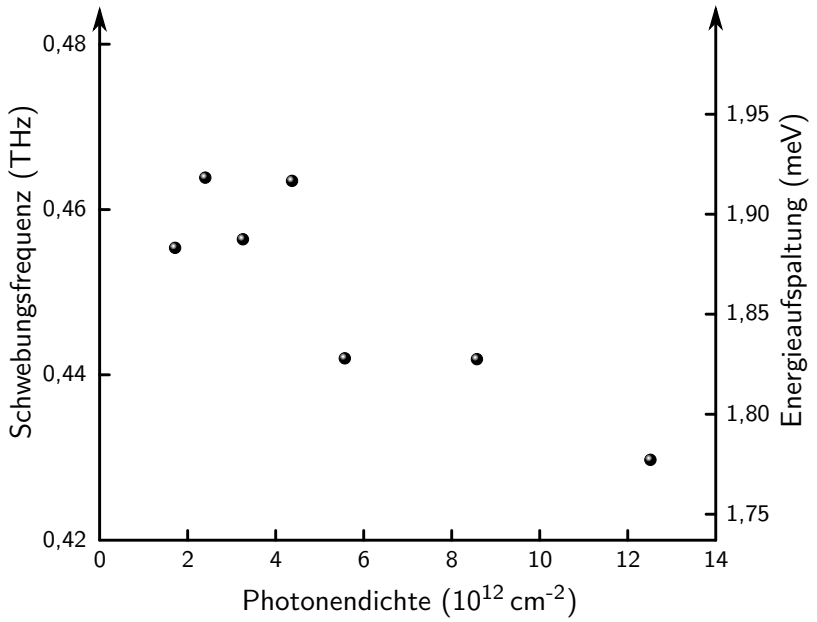

Abbildung 5.14.: Über die Periodendauer T der in den dichteabhängigen VWM-Transienten beobachteten Quantenschwebungen können die zugehörigen Schwebungsfrequenzen berechnet werden. Daraus lässt sich die Energieaufspaltung ΔE zwischen den beteiligten Zuständen ableiten. Eine Energiedifferenz von $\Delta E \sim 1{,}85\,\text{meV}$ passt gut zu bereits aus der Literatur bekannten Biexzitonbindungsenergien. Dies ist ein Hinweis darauf, dass die Quantenschwebung in den VWM-Signalen durch die kohärente Anregung einer Exziton- und Biexzitonpolarisation verursacht werden könnte.

oszillatorische Interferenzstruktur des VWM-Signals nach. Über den Parameter $\theta = \frac{T}{2}$ lässt sich die Periodendauer T und damit die Frequenz der Quantenschwebung ableiten. Ebenso wie die Amplitude A der exzitonischen Polarisation erfährt auch die Amplitude B der zusätzlich im Material erzeugten Polarisation $\mathbf{P}_2$ einen exponentiellen Abfall. In erster Näherung wird angenommen, dass die Polarisation der zusätzlich angeregten Zustände wesentlich kleiner ist als die exzitonische Polarisation. Da die Schwebung aus einer Überlagerung beider Polarisationen entsteht, wird folglich davon ausgegangen, dass ihr Zerfall hauptsächlich von $\mathbf{P}_2$ abhängig ist. Aus diesem Grund wird ihr exponentieller Zerfall durch eine zweite Zerfallszeit T_D^2 simuliert, die den Verlust der Polarisation zusätzlich angeregter Zustände widerspiegelt. Der letzte Term berücksichtigt einen möglichen Versatz der Messdaten in y-Richtung. Abbildung 5.13 macht deutlich, dass die gewählte Fitfunktion gut zu den Messwerten passt und damit valide Ergebnisse liefert.

Die durch die Fitfunktion abgeleiteten Schwebungsfrequenzen sind in Abbildung 5.14 gegen die Photonendichte aufgetragen. Aus der Schwebungsfrequenz lassen sich Rückschlüsse auf die Energieaufspaltung zwischen den angeregten Zuständen ziehen. Die aus der Fitfunktion abgeleitete Energieaufspaltung ΔE beträgt zwischen $\sim 1{,}77\,\text{meV}$ und $\sim 1{,}92\,\text{meV}$ und nimmt mit zunehmender Photonendichte leicht ab. Die Werte sind in guter Übereinstimmung mit aus der Literatur bekannten Biexzitonbindungsenergien[138,139,140,141,142] und unterstützen somit die zu Beginn des Kapitels geäußerte Vermutung, die Schwebung könne Ursache einer

zusätzlich angeregten Biexzitonpolarisation sein. Grundsätzlich wäre es theoretisch möglich, dass die Anregung einer in Quantentröpfchen (engl.: *quantum droplets*) dephasierenden Polarisation für das beobachtete Interferenzmuster verantwortlich ist. Ein Quantentröpfchen ist neben Exzitonen ein in Halbleitern vorkommendes Quasiteilchen, das aus kollektiv gebundenen Elektron-Loch-Komplexen besteht.[143] In Halbleitern mit direkter Bandlücke können sich Quantentröpfchen durch Coulomb-Wechselwirkung zwischen den entgegengesetzt geladenen Elektronen und Löchern auf einer ultraschnellen Zeitskala bilden. Aufgrund ihrer geringen Größe sollten Quantisierungseffekte eintreten, sodass Quantentröpfchen diskrete Eigenenergien besitzen könnten.[143] Dadurch wäre es prinzipiell möglich, dass Quantentröpfchenpolarisationen in Halbleitermaterialien Schwebungen im abgebeugten VWM-Signal verursachen. Durch Anrege-Abfrage-Experimente an GaAs-Quantenfilmen stellten Almand-Hunter et al. fest, dass die Bindungsenergie der Quantentröpfchen-Zustände von der Photonendichte im Material abhängt und mit zunehmender Dichte ansteigt.[143] Unter diesen Umständen müsste die Frequenz des Schwebungssignals mit der Oszillatordichte im System zunehmen. Wie anhand Abbildung 5.14 ersichtlich wird, liefern die VWM-Experimente jedoch keinen Hinweis auf eine Blauverschiebung der Energieaufspaltung mit zunehmender Dichte und damit ebenso wenig auf die Existenz einer angeregten Quantentröpfchenpolarisation.

Um dem Ursprung der Quantenschwebung weiter auf den Grund zu gehen und die Vermutung angeregter Biexzitonpolarsationen zu erhärten, werden zusätzliche VWM-Messungen in Zwei-Puls-Konfiguration an der Referenzprobe mit verschiedenen Anregungspulsen durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 5.16 zusammengefasst und die dabei eingesetzten Laserpulse in Abbildung 5.15 dargestellt.

Als erste Maßnahme wird eine $\frac{\lambda}{4}$ - Platte in den Strahlengang beider Pulse eingebaut, welche die lineare Polarisation des Lichts in eine zirkulare Polarisation umformt. In Abbildung 5.16 wird das Abklingen der VWM-Signale der 1s-Exzitonpolarisation für kollineare und kozirkulare Anregung verglichen. Wie zu erkennen ist, werden keine Schwebungen beobachtet, wenn die Anregepulse eine kozirkulare (mitte) statt einer kollinearen (oben) Polarisation besitzen. Anschließend wird ein spektral schmalerer Puls zur resonanten Anregung der hh-Exzitonpolarisation eingesetzt, dessen Spektrum in Abbildung 5.15 dunkelblau dargestellt ist. Auch in diesem Fall ist das abgebeugte VWM-Signal nicht mit einer oszillatorischen Struktur überlagert (siehe Abbildung 5.16 unten). Die Ergebnisse lassen zwei Schlussfolgerungen zu: Zum einen muss ein Zustand unterhalb der Exzitonresonanz existieren, da ein Zustand oberhalb der Resonanz aufgrund der spektralen Beschneidung der hochenergetischen Flanke der Anregepulse ausgeschlossen ist. Zum anderen lässt sich dieser Zustand zwar durch kollineare Pulse, nicht jedoch durch kozirkular polarisierte Pulse anregen.

Die Ergebnisse der polarisationsabhängigen VWM-Messungen lassen sich im Hinblick auf die für Biexzitonen geltenden Dipolauswahlregeln erklären. Die Ausbildung eines gebundenen Biexzitonzustands kann über das in Abbildung 5.17 dargestellte 5-Niveau-System beschrieben werden. Durch Absorption eines Photons mit einem Spin von $+1$ oder -1 kann ausgehend vom Grundzustand des Halbleiters $|0\rangle$ ein Exzitonzustand $|+1\rangle$ oder $|-1\rangle$ mit den exzitonischen Energien E_X erzeugt werden. Dafür ist entweder rechtszirkular polarisiertes Licht ($\sigma+$) oder linkszirkular polarisiertes Licht ($\sigma-$) nötig. Zwei Exzitonen mit antiparallelem Spin können ein gebundenes Biexziton im Zustand $|2\rangle$ bilden und vice versa.[97] Der mit $|3\rangle$ gekennzeichnete Zustand beschreibt den Zustand zweier einzelner Exzitonen. Die Energie des Biexzitons

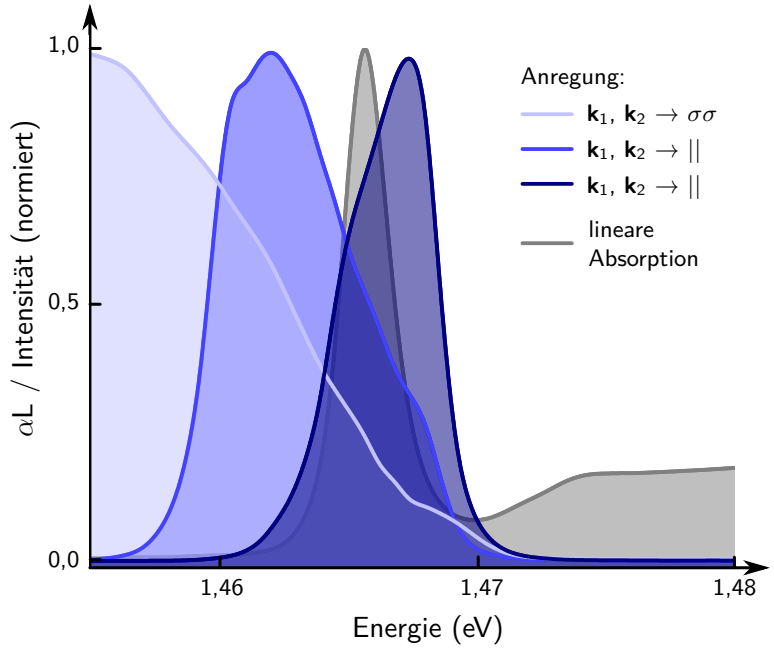

Abbildung 5.15.: Zu dem Zweck die Ursache der Quantenschwebungen zu ermitteln, werden mehrere Anregungspulse mit verschiedenen spektralen Breiten und Polarisationen eingesetzt (hellblau, blau, dunkelblau). Oberhalb der exzitonischen Übergangsenergie wurden die Pulse durch Bandkantenfilter beschnitten, um die Anregung von Kontinuumzuständen auszuschließen.

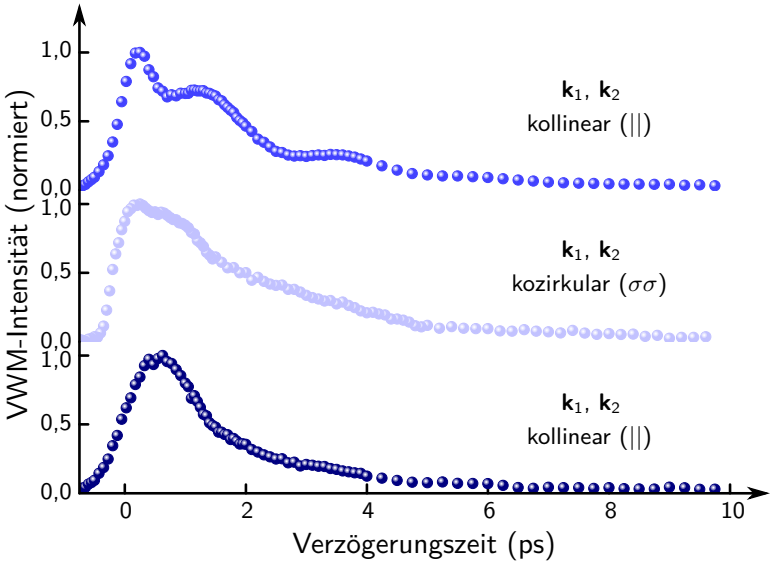

Abbildung 5.16.: VWM-Transienten der polarisationsabhängigen VWM-Experimente. Während bei kollinear polarisierten, spektral breiteren Pulsen eine Schwebung im VWM-Signal auftritt (oben), lässt sich unter Einsatz schmalerer Pulse (unten) und kozirkularer Pulse (mitte) lediglich ein einfacher exponentieller Zerfall der kohärenten Polarisation beobachten.

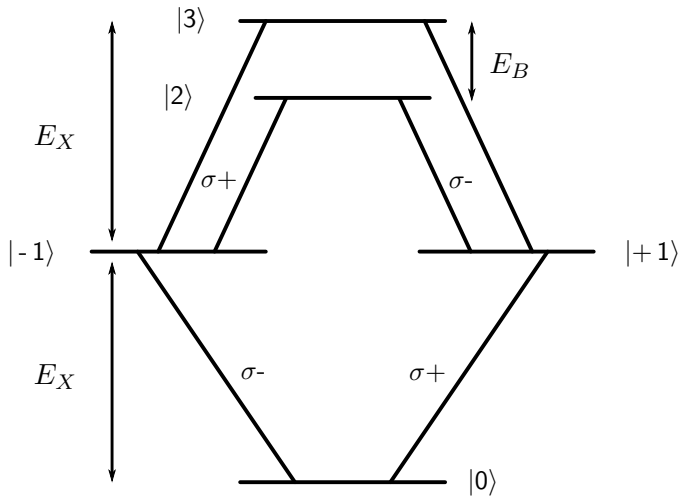

Abbildung 5.17.: Fünf-Niveau-System zur Beschreibung der hh-biexzitonischen Auswahlregeln nach [137]. Dargestellt sind neben dem Grundzustand $|0\rangle$ des Halbleiters die exzitonischen Zustände $|+1\rangle$ und $|-1\rangle$ mit Energien E_X sowie die Zustände zweier einzelner Exzitonen $|3\rangle$ mit Energien $2E_X$. Durch die gleichzeitige Absorption von rechts- ($\sigma+$) und linkszirkular ($\sigma-$) polarisiertem Licht können Biexzitonzustände $|2\rangle$ erzeugt werden, welche eine um E_B niedrigere Energie besitzen als zwei einzelne Exzitonen.

$E_{Bi-X} = 2 \cdot E_X - E_B$ ergibt sich aus der doppelten Energie eines Exzitons E_X abzüglich der Biexzitonbindungsenergie E_B, welche sich wiederum aus der Energiedifferenz zwischen der Energie zwei korrelierter und unkorrelierter Exzitonen zusammensetzt.[138]

Für die Erzeugung von Biexzitonen müssen zwei Exzitonen mit unterschiedlichem Spin angeregt werden, wofür zwei Photonen mit entgegengesetzter zirkularer Polarisation vonnöten sind. Dies erklärt, weshalb eine Quantenschwebung lediglich bei Anregung mit kollinear polarisierten Pulsen beobachtet wird. In diesem Fall resultiert das Signal aus einer kohärenten Überlagerung zweier Polarisationen, welche aus den Übergängen vom Grundzustand in einen Exzitonzustand und von einem Exzitonzustand in einen Biexzitonzustand hervorgehen.[82] Letzterer besitzt eine etwas tiefere Energie als die exzitonische Resonanz und schwingt somit mit einer geringfügig anderen Frequenz. Die Überlagerung der leicht unterschiedlichen Frequenzen führt zur beobachteten Interferenzstruktur im VWM-Signal. Ein elektromagnetisches Feld mit gegebener zirkularer Polarisation kann nur einen Übergang zwischen dem Grundzustand und einem bestimmten Exzitonzustand induzieren und somit nicht zur Ausbildung einer biexzitonischen Polarisation führen.[41,144] Aus diesem Grund führt die Anregung mit kozirkularen Pulsen nicht zur Ausbildung einer Schwebung im Signal. Auf ähnliche Weise wurden VWM-Experimente mit verschiedenen Polarisationen an GaAs-Quantenfilmen[129,145] sowie (In,Ga)As/GaAs-Quantendrähten[146] durchgeführt, um die Polarisationsabhängigkeit der biexzitonischen VWM-Beiträge zu untersuchen.

Die VWM-Messungen mit einem spektral schmaleren Anregepuls (Abbildung 5.15 dunkelblau) erhärten den Verdacht einer gleichzeitigen Anregung von exzitonischen und biexzitonischen Kohärenzen. In diesem Fall ist der Anregepuls derart schmal, dass er im Verhältnis wesentlich mehr Exzitonen im Halbleitermaterial anregt. Da die Schwebung infolgedessen massiv

unterdrückt sein sollte, beobachtet man lediglich einen exponentiellen Zerfall des abgebeugten VWM-Signals, welches den Phasenverlust der kohärent angeregten Exzitonpolarisation widerspiegelt. Zusammenfassend lässt sich sagen, dass sowohl die aus den Messdaten abgeleitete Bindungsenergie als auch die polarisationsabhängigen VWM-Experimente starke Hinweise auf die Existenz einer biexzitonischen Polarisation liefern. Die Ergebnisse sprechen mit einer hohen Wahrscheinlichkeit für eine kohärente Anregung einer hh-Exziton- und Biexzitonpolarisation in der Typ-I-Heterostruktur.

Unter diesem Aspekt lässt sich eine mögliche Erklärung für die in Abbildung 5.14 dargestellte Reduktion der Energieaufspaltung ΔE mit zunehmender Dichte finden. Die Abschwächung der Coulomb-Wechselwirkung durch die Abschirmung der oszillierenden Ladungsträger[147] und die Blockierung niederenergetischer Zustände aufgrund des Pauli'schen Ausschlussverfahrens bewirken eine Absenkung der Exzitonbindungsenergie. Da Biexzitonen aus zwei angeregten Exzitonen bestehen, sollten die Bindungsenergien der Exzitonen und Biexzitonen die gleiche Dichteabhängigkeit zeigen. Das bedeutet, dass die Bindungsenergie des Biexzitons mit zunehmender Photonendichte abnehmen müsste.[143] Eine Reduktion der Energieaufspaltung (Rotverschiebung) kann in Abbildung 5.14 beobachtet werden. Unter den soeben genannten Annahmen sprechen die Messergebnisse wiederholt für die Koexistenz kohärenter Exziton- und Biexzitonpolarisationen.

In Bezug auf Gleichung 5.3 entspricht die Zerfallszeit T_D^2 somit der Abklingzeit der Biexzitonpolarisation $\mathbf{P}_2$. Die aus der Fitfunktion abgeleiteten Zerfallszeiten der biexzitonischen und exzitonischen Polarisationen lassen sich in homogene Linienbreiten Γ umrechnen und gegen die jeweilige Photonendichte auftragen. Durch eine lineare Regression der Messdaten kann aus der homogenen Linienbreite bei $N = 0\,cm^{-2}$ die Zerfallszeit der biexzitonischen Polarisation bei verschwindender Anregungsdichte $T_{\textit{zero density, Bi-X}}$ abgeschätzt werden. Darüber lassen sich Aussagen über das Streuverhalten einer induzierten Biexzitonpolarisation treffen. Die Ergebnisse zeigen, dass die homogene Linienbreite $\Gamma_{\textit{zero density}}$ der Biexzitonpolarisation größer und damit die Zerfallszeit T_D^2 kleiner als die der angeregten Exzitonpolarisation ist. Die Ergebnisse deuten somit darauf hin, dass die biexzitonischen Polarisationen effizienter mit Gitterschwingungen oder Unregelmäßigkeiten in den Quantenfilmen streuen. Ursache für diese Beobachtung könnte der größere Bohr-Radius der Elektron-Loch-Komplexe sein. Durch Vier-Wellen-Misch-Experimente mit einem Vorpuls könnte in Zukunft untersucht werden, inwiefern sich Vielteilcheneffekte auf die biexzitonische Polarisation im Material auswirken. Damit könnten insbesondere Aussagen über die Streueigenschaften zwischen einer biexzitonischen Polarisation und Exzitonen getroffen und diese mit den Ergebnissen aus dem folgenden Kapitel verglichen werden. Zu dem Zweck eine biexzitonische Kohärenz in zukünftigen VWM-Experimenten gezielt anzuregen, sollte die hochenergetische Flanke der Laserpulse stärker beschnitten werden. Die Photonenergie der Pulse sollte dabei unterhalb der Exzitonresonanz liegen, um einen prozentual größeren Anteil an biexzitonischen Oszillatoren im Material zu induzieren.

Insgesamt zeigen die Messungen, dass Vielteilcheneffekte die Abklingzeit des VWM-Signals ändern und die zeitliche Position der destruktiven und konstruktiven Interferenzen eine geringe Dichteabhängigkeit aufweist. Weiterhin deuten sie darauf hin, dass durch die kollinearen Anregepulse sowohl Exziton- als auch Biexzitonpolarisationen im Material induziert werden. Die Überlagerung der Übergänge zwischen Grundzustand und Exzitonzustand sowie Exzitonzustand und Biexzitonzustand führt zu einer Interferenzstruktur im VWM-Signal. Ferner ermöglichen

sie die Untersuchung der Auswirkungen von Streuprozessen auf die biexzitonische Polarisation. Sie erwecken den Eindruck, dass Biexzitonen effizienter mit dem Kristallgitter streuen könnten als Exzitonen.

5.2. Vier-Wellen-Mischen mit Vorpuls

Ausgehend von den bisher gewonnenen Erkenntnissen werden zusätzliche VWM-Experimente an den Halbleiterstrukturen durchgeführt. Aus dem letzten Kapitel ist bekannt, dass die Phasenrelaxation eines kohärenten Ensembles durch die Gegenwart angeregter Zustände signifikant beeinflusst wird. Im vorangehenden Kapitel führen pumpinduzierte Änderungen der Anregungsdichte aufgrund der Streuung mit Oszillatoren und/oder Ladungsträgern zu einem schnelleren Zerfall der makroskopischen Polarisation. Zweck der in diesem Kapitel vorgestellten Experimente ist es, die Auswirkungen der Ladungsträgerstreuung auf die kohärente Dynamik genauer zu analysieren. Aus diesem Grund wird in dem folgenden Abschnitt untersucht inwiefern dichteabhängige Voranregungseffekte (engl.: *pre-excitation effects*) den Prozess der kohärenten Polarisation manipulieren. Durch die Verwendung eines Vorpulses können verschiedene Ladungsträger (Exzitonen, freie Elektronen und Löcher) im Material generiert werden, bevor ein weiterer Puls eine kohärente Exzitonpolarisation in der Probe aufbaut. Dabei wird sukzessive die Ladungsträgerdichte im System durch variierende Anregungsleistungen verändert. Eingriffe oder Manipulationen der Polarisation - wie sie insbesondere durch einen zusätzlichen kohärenten Vorpuls erfolgen können - werden gemeinhin als kohärente Kontrolle bezeichnet.[20]

Im Gegensatz zu den bereits beschriebenen Messungen kann durch eine gezielte Anregung der Einfluss der Wechselwirkungen zwischen einer exzitonischen Polarisation mit inkohärenten Exzitonen oder mit freien Elektronen und Löchern getrennt voneinander ermittelt werden. Dadurch ist es erstmals gelungen die Streueigenschaften einer reinen CTX-Polarisation mit inkohärenten CTX oder einem räumlich getrennten eh-Plasma zu untersuchen und mit dem Streuverhalten einer räumlich direkten Exzitonpolarisation in der Referenzprobe zu vergleichen.

5.2.1. Experimentelle Durchführung

Für die VWM-Experimente mit Vorpuls wird der bereits beschriebene Aufbau in Zwei-Puls-Konfiguration verwendet. Über einen Achromaten werden der Anregepuls #1 und Abfragepuls #2 auf die Probe fokussiert. Ein dritter Puls #3, der als Vorpuls dient, wird mittig durch dieselbe Linse geleitet. Auf diese Weise betragen die Spotdurchmesser der Anrege- und Abfragepulse etwa 44 µm und der des Vorpulses 53 µm. Über eine Verzögerungsstrecke kann die Ankunftszeit des Vorpulses auf der Probe eingestellt werden, sodass der Vorpuls mit einem zeitlichen Vorsprung T_{13} auf die Probe trifft. Abhängig von der Art der generierten Ladungsträger (Exzitonen, freie Elektronen und Löcher) erreicht der Vorpuls die Probe einige Pikosekunden vor dem Antreffen des Anregepulses #1. Dieser erzeugt anschließend eine makroskopische Polarisation innerhalb einer Ladungsträgerpopulation. Wie auch in den bisher beschriebenen Messungen interagiert der zweite Puls mit der verbliebenen Polarisation des Anregepulses, sodass er an dem erzeugten Interferenzgitter abgebeugt wird. Das VWM-Signal wird in Abhängigkeit der Verzögerungszeit T_{12} zwischen Anrege- und Abfragepuls mit einer Photodiode detektiert. Im Allgemeinen hat die Polarisation der Pulse Auswirkungen auf das VWM-Signal.[136,145,148]

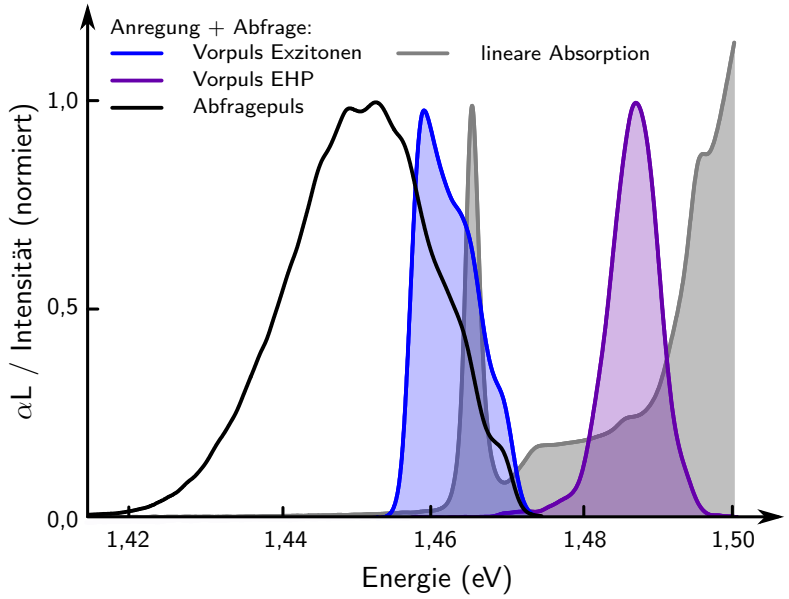

Abbildung 5.18.: Anregungsbedingungen für die VWM-Experimente mit Vorpuls an der Referenzprobe. Dargestellt ist die lineare Absorption der Halbleiterstruktur (grau) mit dem Vorpuls zur Anregung einer inkohärenten Exzitonpopulation (blau) sowie eines inkohärenten eh-Plasmas (violett). Die schwarze Linie kennzeichnet das Spektrum des abgebeugten Abfragepulses.

Während der durchgeführten VWM-Experimente mit Vorpuls sind alle drei Pulse zirkular polarisiert, indem eine $\frac{\lambda}{4}$-Platte in den Strahlengang eingebracht wird. Darüber hinaus werden vergleichbare Experimente auch mit kollinear polarisierten Pulsen durchgeführt, welche sehr ähnliche Ergebnisse liefern.

5.2.2. Streuprozesse in der Typ-I-Heterostruktur

Zur Untersuchung von Streuprozessen zwischen exzitonischen Polarisationen mit Exzitonen und freien Elektron-Loch-Paaren werden verschiedene Vorpulse eingesetzt, die in Abbildung 5.18 durch verschiedenfarbige Spektren gekennzeichnet sind. Während aller im Folgenden diskutierten Messungen wird eine möglichst niedrige Anregungsleistung für den $\mathbf{k}_1$-Puls gewählt, sodass Streuprozesse zwischen den von $\mathbf{k}_1$ angeregten Oszillatoren nicht zusätzlich zum Verlust der Polarisation beitragen und eine lange Dephasierungszeit gemessen werden kann. Diese Voraussetzung ist wichtig, um einen dominanten Einfluss der durch $\mathbf{k}_1$ erzeugten Oszillatoren auf die Dephasierung auszuschließen und dadurch Auswirkungen durch verschiedene Ladungsträger miteinander vergleichen zu können. Basierend auf den gewonnenen Erkenntnissen des letzten Kapitels wird die Leistung des Anregepulses derart gewählt, dass er eine Ladungsträgerdichte von $N_X \sim 7 \cdot 10^8\,\mathrm{cm}^{-2}$ innerhalb der Probe hervorruft. In diesem Dichteregime wird der Polarisationsverlust hauptsächlich durch die Streuung der exzitonischen Polarisation an akustischen Phononen und Unordnungen im Kristall bestimmt, wie in vorherigen Unterkapiteln mit variierenden Anregepulsdichten gezeigt wird.

Zunächst werden mithilfe des in Abbildung 5.18 violett dargestellten Vorpulses freie Elektronen und Löcher 22 meV oberhalb der Exzitonresonanz angeregt. Um angeregte Zustände der

(Ga,In)As-Quantenfilme oder des GaAs-Substrats zu vermeiden, wird der Vorpuls mit Bandkantenfiltern spektral beschnitten. Nach der Anregung eines eh-Plasmas (Abk.: EHP) in einem Halbleiter bildet ein Teil der freien Elektronen und Löcher gebundene Elektron-Loch-Paare. Die Bildungsrate ist dabei sowohl von experimentellen Bedingungen als auch von Materialeigenschaften der Probe selbst abhängig.[42] Für den direkten Halbleiter GaAs liegen charakteristische Zeitskalen im Bereich mehrerer hundert Pikosekunden.[149] Die Bildungszeiten der Exzitonen in Quantenfilmstrukturen erstrecken sich von mehreren Pikosekunden bis hin zu einigen hundert Pikosekunden.[150,151,152] Durch THz-Absorptionsmessungen an (Ga,In)As-Quantenfilmen kann zwar gezeigt werden, dass direkt nach der nicht-resonanten Anregung eine kontinuierliche Bildung von Exzitonen einsetzt, innerhalb der ersten 10 ps jedoch keine nennenswerte Exzitonpopulation in den (Ga,In)As-Quantenfilmen vorliegt.[34] Um sicherzustellen, dass die durch den Vorpuls angeregte Ladungsträgerverteilung während der VWM-Messungen hauptsächlich aus freien Elektronen und Löchern besteht, trifft der Vorpuls eine Pikosekunde vor dem Antreffen des Anregepulses (T_{13} = - 1 ps) auf die Probe. In Abbildung 5.19 sind die abgebeugten VWM-Signale in Abhängigkeit der durch den Vorpuls generierten Ladungsträgerdichte N_{EHP} semilogarithmisch dargestellt. Durch exponentielle Fits (durchgezogene Linien) an die Messdaten können die Abklingzeiten der kohärenten Polarisation im Halbleiter extrahiert werden. Die graue Kurve bildet den Intensitätsverlauf ohne Vorpuls ($N_{EHP} = 0$) ab. Mit 3,6 ps liegt die Abklingzeit T_D in der gleichen Größenordnung wie die im vorangegangenen Abschnitt extrahierte $T_{\textit{zero density}}$ von 4,3 ps. Es kann somit angenommen werden, dass die verwendete Anregungsleistung der $\mathbf{k}_1$-Pulse ausreichend niedrig ist und die anregungsinduzierte Dephasierung durch den Anregepuls keine dominante Rolle spielt. Mit steigender Ladungsträgerdichte N_{EHP} lässt sich eine Reduktion der Abklingzeit beobachten. Die Zerfallszeit von 3,6 ps bei Abwesenheit eines Vorpulses verringert sich in Gegenwart einer Ladungsträgerdichte von $N_{EHP} \sim 3{,}3 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$ auf 1,3 ps. Ein naheliegender Grund dafür ist der Effekt der anregungsinduzierten Dephasierung. Diese entsteht durch Vielteilchen-Wechselwirkungen zwischen den Kontinuumzuständen (d. h. den freien Elektron-Loch-Paaren) und der exzitonischen Polarisation. Die durch den Vorpuls generierten Ladungsträger wirken als zusätzliche Streupartner, sodass die kohärente Polarisation der Exzitonen schneller zerstört wird. Die vermehrt auftretenden Kollisionen mit freien Elektronen und Löchern führen zu einer sehr kurzen Abklingzeit von 0,26 ps bei der höchsten durch den Vorpuls induzierten Ladungsträgerdichte von $N_{EHP} = 35 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$. Insgesamt fällt die Zerfallszeit des VWM-Signals im untersuchten Dichteintervall auf 7 % des ursprünglichen Werts ab.

Im nächsten Schritt wird der in Abbildung 5.18 blau dargestellte Vorpuls eingesetzt, um resonant Exzitonen innerhalb der (Ga,In)As-Quantenfilme anzuregen. Durch Bandkantenfilter wird der Puls derart spektral beschränkt, dass Kontinuumbeiträge vermieden werden. Die Exzitonen werden 10 ps vor dem Eintreffen des Anregepulses (T_{13} = - 10 ps) in der Probe erzeugt. Damit wird sichergestellt, dass die Phasenkohärenz der durch den Vorpuls generierten Exzitonen verloren ist. Sie sind somit inkohärent zu der durch den Anregepuls erzeugten Exzitonpolarisation und dienen dementsprechend ausschließlich als inkohärenter Streuhintergrund. Abbildung 5.20 veranschaulicht den Einfluss zusätzlich angeregter Exzitonen auf die Abklingzeit des VWM-Signals. Die Zerfallszeit von 3,6 ps ohne Vorpuls (graue Kurve) verringert sich auf 0,9 ps bei einer Exzitonendichte von $N_X = 47{,}6 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$. Die Abklingzeit des VWM-Signals bei nichtresonanter Anregung führt bei ähnlicher Ladungsträgerdichte zu einem signifikant schnelleren

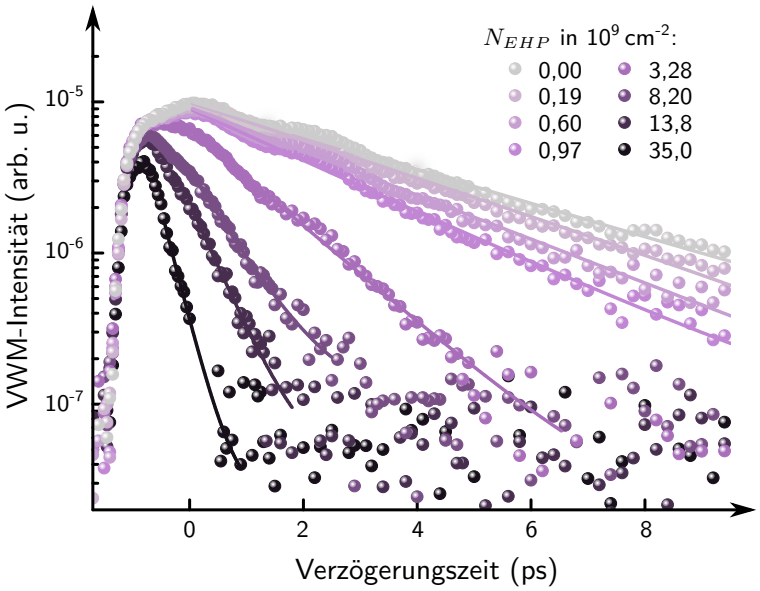

Abbildung 5.19.: VWM-Transiente in Abhängigkeit der durch den Vorpuls induzierten Dichte freier Elektronen und Löcher. Mit steigender Teilchenanzahl im System führen Kollisionen zwischen den angeregten Ladungsträgern und der exzitonischen Polarisation zu einem schnelleren Verlust der Polarisation und damit des VWM-Signals. Die durchgezogenen Linien kennzeichnen die an die Daten angelegten exponentiellen Fits zur Ermittlung der Signalzerfallszeit T_D.

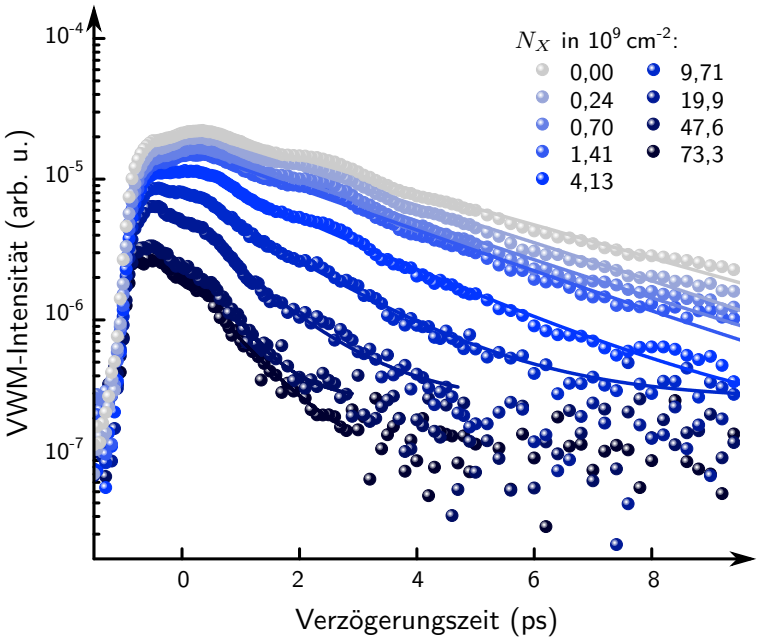

Abbildung 5.20.: VWM-Transiente in Abhängigkeit der durch den Vorpuls induzierten Exzitonendichte. Die mit der Teilchendichte zunehmende Anzahl an Streuprozessen resultiert in einer Abnahme der Zerfallszeit der VWM-Signale. Im Vergleich zur nicht-resonanten Anregung freier Elektronen und Löcher sind die Zerfallszeiten in Anwesenheit inkohärenter Exzitonen bei gleicher Dichte deutlich größer.

Verlust der Polarisation ($T_D = 0{,}26$ ps, $N_{EHP} = 35 \cdot 10^9$ cm^{-2}). Mit zunehmender Ladungsträgerdichte N_X bewirkt die Streuung mit den angeregten Exzitonen eine starke Abnahme der Zerfallszeit.[79,153] Insgesamt verringert sich die Abklingzeit des abgebeugten Signals innerhalb des untersuchten Dichteintervalls auf 23 % des ursprünglichen Werts. Es ist gemeinhin bekannt, dass sich bei resonanter Anregung mit hohen Pulsintensitäten das System angeregter Exzitonen in ein Elektron-Loch-Plasma transformieren kann. Diese als Mott-Übergang bezeichnete Umwandlung in freie Elektronen und Löcher sollte Auswirkungen auf die Dynamik des Polarisationszerfalls in der Halbleiterprobe haben. Da die Zerfallszeiten der exzitonischen Kohärenz bei resonantem und nicht-resonantem Vorpuls und vergleichbaren Anregungsdichten unterschiedlich sind, sollte ein Mott-Übergang dementsprechend in den VWM-Experimenten sichtbar sein. Die Messungen zeigen jedoch, dass bei resonanter Anregung längere Abklingzeiten beobachtet werden als bei nicht-resonanter Anregung. Darüber hinaus wird berichtet, dass Mott-Übergänge erst ab Ladungsträgerdichten im Bereich von $\sim 1 \cdot 10^{11}$ cm^{-2} eintreten.[154] In einer anderen Veröffentlichung wird eine Mott-Dichte von $8 \cdot 10^{10}$ cm^{-2} abgeschätzt.[123] Beides führt zu der Annahme, dass die Ladungsträgerverteilung auch im hohen Dichteregime hauptsächlich aus Exzitonen besteht.

Im Rahmen der VWM-Experimente ohne Vorpuls wird die Zerfallszeit bei verschwindender Ladungsträgerdichte ($T_{\textit{zero density}}$) aus den Messdaten abgeleitet. Da die Experimente mit Vorpuls eine größere Menge an Messdaten umfassen, bietet es sich an, ebenfalls eine Zerfallszeit bei verschwindender Dichte aus den Messdaten mit Vorpuls zu extrahieren. Hierzu werden sowohl die Ladungsträgerdichte durch den resonanten Vorpuls als auch durch den später eintreffenden Anregepuls $\mathbf{k}_1$ berechnet. Die Nettodichte der Ladungsträger innerhalb der Probe ergibt sich aus der Addition beider Ladungsträgerdichten. Anschließend werden die einzelnen Zerfallszeiten T_D unter Annahme eines inhomogen verbreiterten Systems in homogene Linienbreiten umgerechnet und inklusive ihrer Fehlerintervalle gegen die Ladungsträgerdichte aufgetragen. Für niedrige und mittlere Anregungsdichten zeigt sich ein linearer Zusammenhang zwischen homogener Linienbreite und Ladungsträgerdichte. Eine lineare Regression innerhalb dieses Dichtebereichs ergibt eine $T_{\textit{zero density}}$ von 3 822 fs. Dieser Wert ist um etwa 500 fs kleiner als die aus den Messungen ohne Vorpuls abgeleitete Zerfallszeit von 4 302 fs. Eine weitere Möglichkeit, die Zerfallszeit $T_{\textit{zero density}}$ abzuschätzen, besteht darin, die Ergebnisse der Messungen ohne und mit Vorpuls zu kombinieren. Dazu werden die homogenen Linienbreiten beider Messungen gegen die Ladungsträgerdichte aufgetragen (siehe Abbildung 5.21). Auf diese Weise steht eine höhere Anzahl an Datenpunkten zur linearen Regression zur Verfügung, wodurch die Zerfallszeit genauer bestimmt werden kann. Die lineare Regression erfolgt für Datenpunkte mit niedrigen und mittleren Dichten, in welchem ein linearer Zusammenhang zwischen Linienbreite und Dichte besteht. Im Bereich hoher Dichten kommt es vermutlich aufgrund des Ausbleichens der Absorption zu einer Abweichung des linearen Verhaltens mit steigender Ladungsträgeranzahl. Die lineare Regression der kombinierten Messdaten ergibt eine $T_{\textit{zero density}}$ von 3 733 fs. Es ist zu erkennen, dass sich die extrapolierte Zerfallszeit $T_{\textit{zero density}}$ mit steigender Anzahl an Messpunkten immer näher der gemessenen Abklingzeit bei niedrigster Dichte von $\sim$ 3,6 ps annähert. Hieraus lässt sich schließen, dass die Messergebnisse der VWM-Experimente sehr gut zu den abgeleiteten Zerfallszeiten bei verschwindender Ladungsträgerdichte passen und somit die Konsistenz der durchgeführten Messungen bestätigen.

Neben einer Verminderung der Abklingzeit lässt sich in beiden Fällen eine Reduktion der Si-

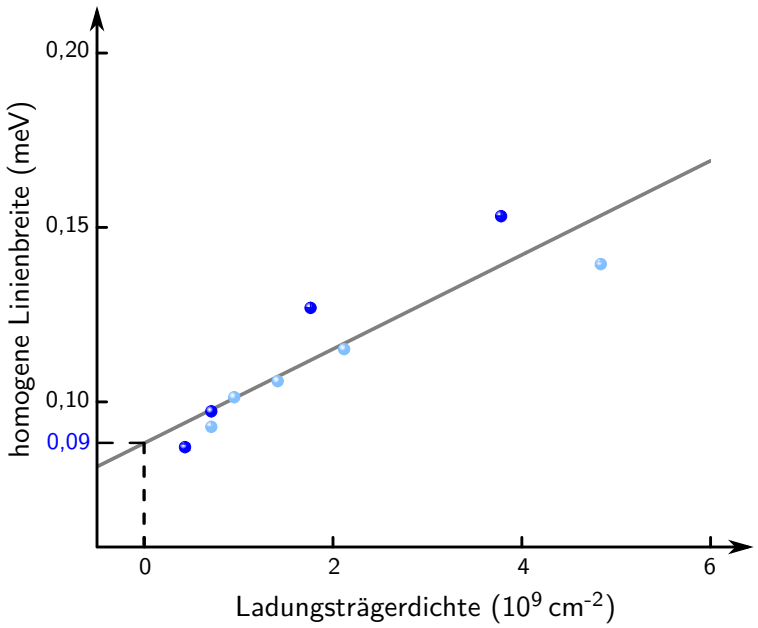

Abbildung 5.21.: Die Zerfallszeiten T_D aus den VWM-Experimenten ohne Vorpuls (dunkelblau) und mit Vorpuls (hellblau) werden in homogene Linienbreiten umgerechnet und gemeinsam gegen die Ladungsträgerdichte aufgetragen. Eine lineare Extrapolation der Messpunkte im niedrigen und mittleren Dichtebereich ergibt eine homogene Linienbreite $\Gamma_{\textit{zero density}} \sim 0{,}09\,\text{meV}$, was einer T_D-Zeit von 3 733 fs entspricht. Diese Zerfallszeit ist in guter Übereinstimmung mit den gemessenen Zerfallszeiten bei niedrigen Dichten. Dies bestätigt die Annahme, dass die durch den Anregepuls induzierte Polarisation hauptsächlich durch Streuung mit dem Kristallgitter verloren geht und Streuprozesse zwischen der Polarisation und Ladungsträgern gezielt durch den jeweiligen Vorpuls reguliert werden können.

gnalstärke mit wachsender Ladungsträgerdichte durch die Vorpulse beobachten. Das Ausmaß des Signalverlusts ist ähnlich wie in polarisationsabhängigen VWM-Messungen an GaAs, in welchen eine Reduktion der Signalstärke um einen Faktor sechs festgestellt wurde.[129] Ansteigende Anregungsleistungen führen zu einer immer höheren Anzahl an Ladungsträgern. Dadurch steigt die Wahrscheinlichkeit für Ladungsträgerstreuprozesse während der optischen Anregung. Diese wiederum führen instantan zu einem Verlust der Polarisation und damit zum Verlust des Interferenzgitters. Ohne Interferenzgitter kann der zweite Puls nicht an diesem abgebeugt werden, sodass das VWM-Signal mit steigender Anregungsdichte sinkt. Dies trifft besonders dann zu, wenn die Streuzeiten der Ladungsträger in der Größenordnung der Pulslänge liegen, wie es für den nicht-resonanten Vorpuls der Fall ist. Unter Einsatz des resonanten Vorpulses hingegen könnte außerdem ein Ausbleichen der exzitonischen Resonanz mit steigender Anregungsleistung zu einer sinkenden VWM-Intensität beitragen.

Insgesamt zeigen die VWM-Messungen, dass Kollisionen zwischen exzitonischen Oszillatoren und freien Ladungsträgern einen stärkeren Einfluss auf die Zerstörung der kohärenten Polarisation haben. VWM-Experimente von Schultheis et al.[88] und Honold et al.[81] an einem GaAs-Volumenhalbleiter sowie GaAs-Quantenfilmen lassen ähnliche Schlussfolgerungen zu.

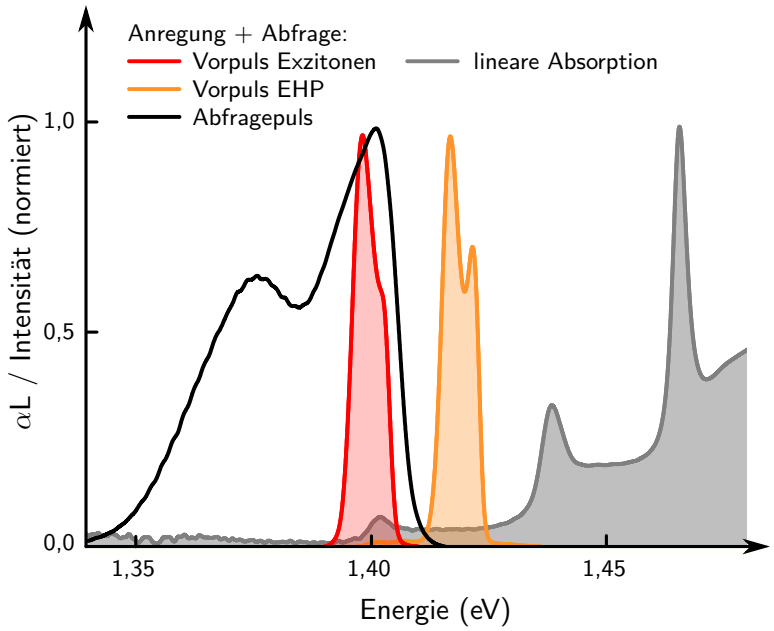

Abbildung 5.22.: Anregungsbedingungen für die VWM-Experimente mit Vorpuls an der Typ-II-Struktur. Dargestellt ist die lineare Absorption der Halbleiterprobe (grau) mit dem Vorpuls zur Anregung einer inkohärenten Exzitonpopulation (rot) sowie eines inkohärenten eh-Plasmas (orange). Die schwarze Linie kennzeichnet das Spektrum des abgebeugten Abfragepulses. Das Minimum um $\sim$ 1,38 eV kommt möglicherweise durch die eingesetzten Bandkantenfilter zustande.

5.2.3. Streuprozesse in der Typ-II-Heterostruktur

Zu dem Zweck den Einfluss von Streuprozessen auf den Verlust der kohärenten CTX-Polarisation zu untersuchen, werden die gleichen Experimente an der Typ-II-Heterostruktur durchgeführt. Auch in diesem Fall wird darauf geachtet, dass die Leistung des Anregungspulses möglichst niedrig ist, sodass anregungsinduzierte Dephasierung durch den Anregepuls keinen dominanten Beitrag zum Phasenverlust liefert. Die Leistung des Anregepulses wird derart gewählt, dass er in der Typ-II-Struktur eine Ladungsträgerdichte von $N_X \sim 17 \cdot 10^8\,\mathrm{cm}^{-2}$ injiziert.

Anhand Abbildung 5.22 ist zu erkennen, dass freie Ladungsträger durch den orange dargestellten Vorpuls 19 meV oberhalb der CTX-Resonanz erzeugt werden. Hierbei wird zwecks Vergleichbarkeit darauf geachtet, dass der Vorpuls etwa die gleiche Überschussenergie besitzt wie der nicht-resonante Vorpuls der Referenzprobe. Auch in diesem Fall trifft der dritte Puls mit einer zeitlichen Verzögerung von 1 ps vor der Ankunft des Anregungspulses (T_{13} = - 1 ps) auf die Probe, damit die freien Ladungsträger während der Messungen noch nicht in gebundene Elektronen und Löcher kondensiert sind.

Die graue Kurve in Abbildung 5.23 stellt das abgebeugte VWM-Signal in Abhängigkeit der Verzögerungszeit T_{12} ohne einen Vorpuls dar. Wie bereits bekannt ist, ist die zugehörige Zerfallszeit mit $\sim$ 1 ps deutlich kürzer als die der 1s-Exzitonpolarisation der Referenzprobe. Mit steigender Ladungsträgerdichte N_{EHP} treten Vielteilcheneffekte auf, die eine verminderte Zerfallszeit der kohärenten CTX-Polarisation bewirken. Die vermehrt auftretende Streuung

mit freien Ladungsträgern führt zu einem schnellen Verlust der Phasenkohärenz, sodass bei einer Ladungsträgerdichte von $\sim 60 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$ eine deutlich kürzere Zerfallszeit von 0,15 ps beobachtet wird.

Ein ähnliches Bild ergibt sich in Gegenwart inkohärenter Exzitonen (Abbildung 5.24). Diese werden mit einem zeitlichen Vorsprung von $T_{13} =$ - 4 ps innerhalb der Probe erzeugt, sodass die Phasenkohärenz der CT-Exzitonen zum Zeitpunkt, in dem der $\mathbf{k}_1$-Puls auf die Probe trifft, bereits zerfallen ist. Mit steigender Exzitonendichte N_X lässt sich auch in diesem Fall eine verminderte Abklingzeit durch eine anregungsinduzierte Dephasierung beobachten. Im Regime hoher Dichten ist der Verlust der CTX-Polarisation so schnell, dass die Abklingzeit lediglich 30 % ihres anfänglichen Werts entspricht. Anhand der gemessenen Zerfallszeiten in Anwesenheit der durch den Vorpuls induzierten Ladungsträger erhält man eine $T_{\textit{zero density}}$ von 1 081 fs. Dieser Wert stimmt gut mit der aus den VWM-Messungen ohne Vorpuls abgeleiteten Zeit von 1 194 fs und der gemessenen Zerfallszeit bei niedrigster Dichte ($T_D =$ 1 034 fs) überein. Daraus lässt sich schließen, dass die Leistung des Anregepulses ausreichend niedrig gewählt wurde, um lange Zerfallszeiten der VWM-Intensitäten zu gewährleisten und den Effekt der anregungsinduzierten Dephasierung zu minimieren.

Der Vergleich der Zerfallszeiten in Anwesenheit freier Ladungsträger ($T_D =$ 0,27 ps) und Exzitonen ($T_D =$ 0,46 ps) bei ähnlicher Dichte ($N \sim 35 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$) zeigt, dass Kollisionen zwischen einer CTX-Polarisation und freien Ladungsträgern einen stärkeren Einfluss auf den Verlust der kohärenten Polarisation haben. Das gleiche Ergebnis folgt ebenfalls aus den Experimenten an der Referenzprobe. Mögliche Ursachen für diese Beobachtung sollen im nächsten Abschnitt ausführlich thematisiert werden.

5.2.4. Streuparameter

Bereits 1969 setzte man sich mit Ladungsträgerstreuprozessen in Halbleitermaterialien auseinander. Damals wurden Streuprozesse zwischen Exzitonen und Exzitonen mit freien Ladungsträgern in GaAs-Volumenhalbleitern durch Photolumineszenzmessungen untersucht.[155] Erst einige Jahre später führten Schultheis et al. VWM-Experimente an 190 nm dicken GaAs-Schichten durch, um den Einfluss der Ladungsträgerstreuung auf die Dephasierungszeit zu untersuchen.[88] Bald darauf folgten ähnliche Experimente an GaAs-Quantenfilmen. Es stellte sich heraus, dass die Wechselwirkungen zwischen exzitonischen Oszillatoren und angeregten Ladungsträgern (Exzitonen, EHP) in Quantenfilmen deutlich stärker sind als in GaAs-Volumenhalbleitern.[81] Honold et al. schlussfolgerte, dass die Ursache für diese Beobachtungen eine reduzierte Coulomb-Abschirmung in 2D-Systemen ist.[156]

Mithilfe der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten entarteten VWM-Experimente mit unterschiedlichen Vorpulsen werden die Streuraten für Kollisionen einer exzitonischen Polarisation mit Exzitonen (X-X) sowie mit ungebundenen Elektron-Loch-Paaren (X-EHP) bestimmt. Des Weiteren kann erstmals das Streuverhalten einer Charge-Transfer-Exzitonpolarisation untersucht werden. Außerdem können die Streueigenschaften der räumlich getrennten CTX-Polarisation mit dem Streuverhalten einer regulären Exzitonpolarisation verglichen werden. Wie in den letzten Abschnitten ausführlich diskutiert, sinken die gemessenen Dephasierungszeiten mit zunehmender Ladungsträgerdichte N. Da die Dephasierungszeit T_2 mit der homogenen Linienbreite verknüpft ist, lässt sich die Verbreiterung der homogenen Linienbreite im Regime

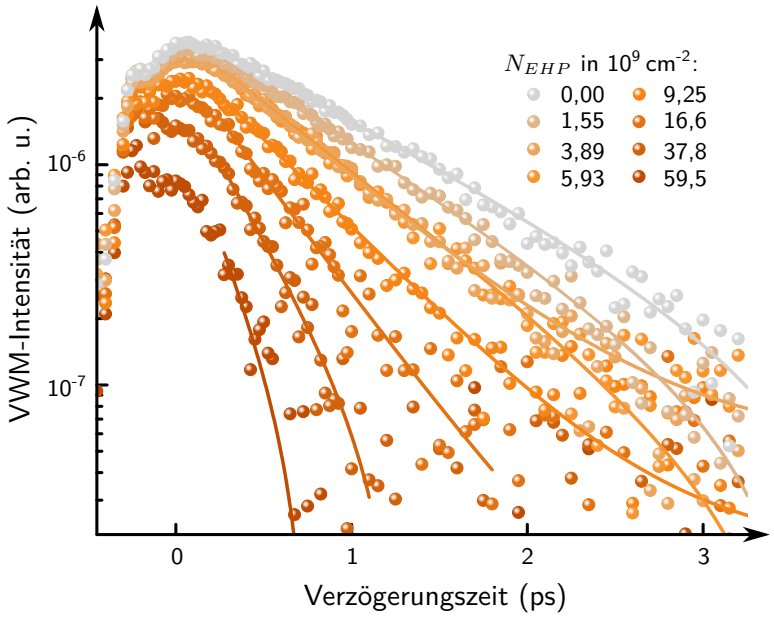

Abbildung 5.23.: VWM-Transiente in Abhängigkeit der durch den Vorpuls induzierten Dichte freier Elektronen und Löcher. Aufgrund von Streuprozessen zwischen der CTX-Polarisation und den induzierten Ladungsträgern sinkt die Dephasierungszeit mit zunehmender Dichte. Dies führt zu einer dichteabhängigen Zerfallszeit der VWM-Signale.

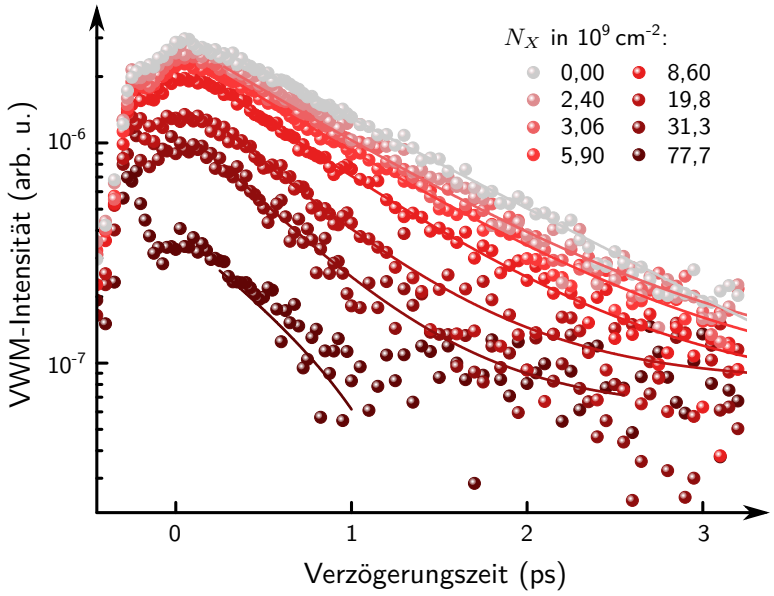

Abbildung 5.24.: VWM-Transiente in Abhängigkeit der durch den Vorpuls induzierten inkohärenten Exzitonendichte. Neben einer Reduktion der Zerfallszeit führen anregungsinduzierte Kollisionen zwischen einer CTX-Polarisation und optisch angeregten CTX ebenfalls zu einer Verminderung der Intensität der VWM-Signale.

niedriger Dichten wie folgt durch eine lineare Dichteabhängigkeit beschreiben.[88,157]

$$\Gamma(N_{EHP,\,X}) = \Gamma_0 + \gamma \cdot N_{EHP,\,X} \tag{5.4}$$

Hierbei ist Γ die homogene Linienbreite und $N_{EHP,\,X}$ die Dichte der jeweiligen Streupartner. γ wird als Streuparameter bezeichnet, der ein Maß für die Wechselwirkungsstärke zwischen den exzitonischen Oszillatoren und freien Elektronen und Löchern (γ_{X-EHP}) bzw. inkohärenten Exzitonen (γ_{X-X}) angibt. Der dichteunabhängige Beitrag Γ_0 berücksichtigt alle zusätzlichen Streuprozesse zwischen den Oszillatoren und akustischen Phononen, Verunreinigungen, Grenzflächenrauigkeiten oder Kompositionsfluktuationen, die zu einem Verlust der Polarisation und damit zur homogenen Linienbreite beitragen.[81] Es sei darauf hingewiesen, dass durch VWM-Messungen lediglich die Gesamtstreurate ermittelt werden kann. Eine Differenzierung zwischen elastischen und inelastischen Streuprozessen ist nicht möglich. Die erst kürzlich von Stein, Schäfer und Gomell vorgestellte Variante der Optischen-Anrege-Terahertz-Abfrage-Spektroskopie mit einem zweiten optischen Anregepuls ermöglicht es durch Untersuchungen der Linienbreite und Zerfallszeit des intraexzitonischen 1s-2p-Übergangs die inelastische Streurate und die Gesamtstreurate getrennt voneinander zu ermitteln, wie es beispielsweise an Germanium gemacht wurde.[158]

Abbildung 5.25 zeigt die Abhängigkeit der homogenen Linienbreite von der jeweiligen Streupartnerdichte für Dichten unterhalb des Mott-Übergangs. Für die Berechnung der homogenen Linienbreite aus den gemessenen Zerfallszeiten T_D wird sowohl für die Referenzprobe als auch für die Typ-II-Heterostruktur eine inhomogene Verbreiterung angenommen. Diese Annahme ist gerechtfertigt, da die Linienbreiten der Absorptionspeaks des (Ga,In)As-Übergangs in der Referenzprobe und der CTX-Resonanz wesentlich größer sind, als sie es aufgrund ihrer Dephasierungszeit sein müssten. Dementsprechend dominiert eine inhomogene Verbreiterung die exzitonischen Linienbreiten. Die Ergebnisse der Referenzprobe sind in violett (X-EHP) und blau (X-X) dargestellt. In beiden Fällen lässt sich, wie aus der Literatur bekannt, eine Verbreiterung der homogenen Linie mit zunehmender Ladungsträgerdichte feststellen.[41,88,159] Aus der Steigung eines linearen Fits lassen sich die Streuparameter der X-X- und X-EHP-Streuung ermitteln. Die Messungen ergeben $\gamma_{X-X} = 0{,}44 \cdot 10^{-11}$ meVcm^2 sowie $\gamma_{X-EHP} = 3{,}36 \cdot 10^{-11}$ meVcm^2, siehe Tabelle 5.1. Dies bedeutet, dass die Wechselwirkung zwischen der exzitonischen Polarisation und freien Elektronen und Löchern wesentlich effizienter zur Dephasierung beiträgt als die Dipol-Dipol-Streuung der Exzitonen. Die Messungen ergeben, dass Streuprozesse zwischen exzitonischen Oszillatoren und einem EHP etwa 7,5 mal effizienter sind als Streuprozesse mit Exzitonen. Zu einem ähnlichen Resultat kamen Schultheis et al. durch zeitintegrierte VWM-Experimente an 190 nm dicken GaAs-Schichten.[88] Sie berichten von einer zehnmal effizienteren Streuung zwischen exzitonischen Oszillatoren und den freien Elektronen und Löchern. Darüber hinaus deckt sich das Ergebnis hervorragend mit den von Honold et al. durchgeführten Untersuchungen an einem 12 nm Einfachquantenfilm.[81] Hierbei zeigen VWM-Experimente in einer rückwärts gerichteten Selbstbeugungsgeometrie und mit Pikosekundenpulsen eine achtmal stärkere Streuung der hh-Exzitonpolarisation mit freien Ladungsträgern. Die Kollision mit freien Ladungsträgern ist stärker, da ihre Wechselwirkung auf der Fernwirkung der wesentlich effizienteren langreichweitigen Coulomb-Anziehung basiert.[81] Im Gegensatz zu freien Elektronen und Löchern sind Exzitonen elektrisch neutrale Quasipartikel, die über die wesentlich schwächere

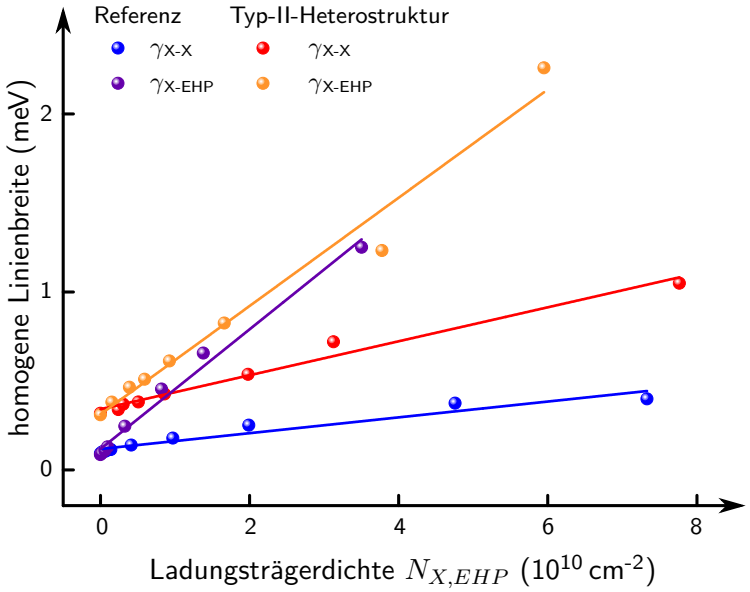

Abbildung 5.25.: Aus den VWM-Experimenten abgeleitete homogene Linienbreiten der regulären Exziton- (blau, violett) und CT-Exzitonresonanz (rot, orange) in Abhängigkeit der zusätzlich erzeugten Exzitonen und freien Ladungsträger durch verschiedene Vorpulse. Kollisionen mit Exzitonen (X-X) oder freien Ladungsträgern (X-EHP) führen zu einer Linienverbreiterung mit zunehmender Streupartnerdichte. Über eine lineare Regression der Messdaten (durchgezogene Linien) können die jeweiligen Streuparameter abgeleitet werden. Während die Wechselwirkungsstärke zwischen exzitonischen Oszillatoren und einem EHP relativ unabhängig von den strukturellen Differenzen der regulären und CT-Exzitonen ist, scheint die Streurate der CTX-Polarisation mit inkohärenten Exzitonen um einen Faktor zwei effizienter zu sein als Kollisionen zwischen einer 1s-Exzitonpolarisation und regulären Exzitonen.

Dipolwechselwirkung miteinander agieren. In anderen Vier-Wellen-Misch-Experimenten wurde von Koch et al. die Dichteabhängigkeit der exzitonischen Dephasierungszeit eines Typ-I-Typ-II-GaAs/AlAs-Doppelquantenfilms in einem ähnlichen Dichteregime bei 5 K untersucht. Dieser besteht aus GaAs-Quantenfilmen unterschiedlicher Dicken, die durch eine ~ 10 nm dicke AlAs-Barriere getrennt sind. Für die VWM-Untersuchungen wurde die hh-Exzitonresonanz innerhalb der breiteren GaAs-Filme angeregt.[93] Verglichen mit den im Rahmen dieser Arbeit gewonnenen Ergebnissen führen die Messungen zu einem etwas größeren exzitonischen Streuparameter von $\gamma_{X-X} = 0{,}65 \cdot 10^{-11}$ meVcm^2. Ursächlich für die unterschiedlichen γ-Werte können (probenspezifische) Eigenschaften wie beispielsweise der exzitonische Bohr-Radius a_{exc} und die Exzitonbindungsenergie E_n sein. Diese werden in Gleichung 5.4 nicht berücksichtigt. Um den Einfluss des Bohr-Radius und der Bindungsenergie auf den Streuparameter zu unterbinden, ist es sinnvoll Gleichung 5.4 mit diesen Größen zu ergänzen. Auf diese Weise wird der Streuparameter γ zu einer dimensionslosen Größe. Es ergibt sich:[81,160]

$$\Gamma(N_{EHP,\,X}) = \Gamma_0 + \gamma \cdot a_{exc}^2 \cdot E_n \cdot N_{EHP,\,X} \tag{5.5}$$

Tabelle 5.1.: Zusammenfassung einiger probenspezifischer Eigenschaften sowie der aus den Experimenten abgeleiteten Streuparameter γ.

	a_{exc} (nm)	E_n (meV)	Γ_0 (meV)	γ_{X-X} (meVcm^2)	γ_{X-X} (-)	γ_{X-EHP} (meVcm^2)	γ_{X-EHP} (-)
Typ-I	9,95	7,9	0,12	$0{,}44 \cdot 10^{-11}$	0,56	$3{,}36 \cdot 10^{-11}$	4,3
Typ-II	14,8	3,6	0,33	$0{,}95 \cdot 10^{-11}$	1,2	$3{,}04 \cdot 10^{-11}$	3,86

Der exzitonische Bohr-Radius und die Übergangsenergie des 1s - 2p-Zustandes ist für die Referenzprobe und eine strukturell ähnliche Probe bekannt.[123] Im Fall der Referenzprobe beträgt der Bohr-Radius $a_{exc} = 9{,}95\,\text{nm}$ und die Übergangsenergie $E_{1s\text{-}2p} = 7{,}0\,\text{meV}$. Im Quantenfilm kann die exzitonische Bindungsenergie E_n abgeschätzt werden, indem die 1s-2p-Übergangsenergie mit einem Faktor von $^9/_8$ multipliziert wird.[41] Die E_n beträgt somit 7,9 meV, wodurch sich anhand Gleichung 5.5 folgende Wechselwirkungsstärken ableiten lassen: $\gamma_{X-X} = 0{,}56$ sowie $\gamma_{X-EHP} = 4{,}3$. Der Streuparameter der X-X-Streuung der Doppelquantenfilmstruktur von Koch et al. ist mit $\gamma_{X-X} = 1{,}0$ nach der Umrechnung etwas größer als der durch die durchgeführten Experimente ermittelte Wert von $\gamma_{X-X} = 0{,}56$. Im Rahmen der Unsicherheiten zeigen beide Werte eine gute Übereinstimmung. Eine mögliche Ursache für einen größeren Streuparameter im Falle der Halbleiterprobe von Koch et al. könnte der strukturelle Aufbau der Doppelquantenfilmstruktur sein. Im Gegensatz zu den hier untersuchten und vergleichsweise flachen (Ga,In)As-Quantenfilmen analysierte Koch et al. tiefe GaAs-Quantenfilme, welche von AlAs-Barrieren umgeben sind.[93] Dementsprechend kann von einer vergleichsweise 2D-artigeren Halbleiterstruktur ausgegangen werden. Da zweidimensionale Halbleitermaterialien bekanntermaßen zu größeren Streuparametern als im 3D-Fall führen[81], kann der 2D-artigere Aufbau der GaAs-Quantenfilme ursächlich für einen höheren Streuparameter sein. Auch die von Honold et al. abgeleiteten Parameter stimmen etwa mit den Ergebnissen der (Ga,In)As-Schichten überein. Er berichtet von einer X-X-Streuung mit einer Wechselwirkungsstärke von $\gamma_{X-X} = 1{,}5 \pm 0{,}3$ und einer X-EHP-Streuung mit einem Wert von $\gamma_{X-EHP} = 11{,}5 \pm 2{,}0$. Vier-Wellen-Mischen an ZnSe-Schichten verschiedener Dicken (80, 16, 8, 4 nm) ergeben leicht höhere Streuparameter von $\gamma_{X-X} \sim 5$ im quasi 2D-Fall.[127,161]

Im Allgemeinen wird erwartet, dass der dimensionslose Streuparameter γ_{X-X} in verschiedenen Materialien ähnlich ist. Leichte Abweichungen können nicht durch verschiedene Bindungsenergien und Bohr-Radien erklärt werden, da Gleichung 5.5 diese bereits berücksichtigt. Die wahrscheinlichste Ursache für die Unterschiede zwischen den hier vorgestellten Ergebnissen und den in der Literatur berichteten Streuparametern liegt in der Bestimmung der Ladungsträgerdichte N. Diese ist von vielen Faktoren wie beispielsweise der Größe des Anregungsflecks, Reflexionsverlusten an der Probenoberfläche und Streuverlusten abhängig. Schwankungen des thermischen Leistungsmessgeräts um einige Prozent sowie nicht exakt vermessene Spotdurchmesser beeinflussen die aus diesen Daten kalkulierte Ladungsträgerdichte ebenfalls. Darüber hinaus ist die lineare Absorptionsmessung der Halbleiterprobe ein wichtiger Faktor für die Unsicherheit der Ladungsträgerdichte. Aufgrund der großen Anzahl an Fehlerquellen sind Unsicherheiten bei der Bestimmung der Ladungsträgerdichte um einen Faktor zwei bis drei nicht auszuschließen. Im Rahmen dieser Unsicherheiten passen die gewonnenen Ergebnisse gut zu den aus der Literatur bekannten Werten von Koch et al. und Schultheis et al. Kleine Abweichungen

können darüber hinaus durch die unterschiedlich starke Abschirmung der Coulomb-Potentiale zwischen den Exzitonen begründet werden.[52] In einem realen Halbleiterquantenfilm ragen die Wellenfunktionen in die Barriereschichten hinein. Unterschiedliche Dielektrizitätskonstanten der Quantenfilme und Barriereschichten können auf diese Weise zu leicht unterschiedlicher Coulomb-Abschirmung führen. Mit den gleichen Argumenten lassen sich Abweichungen der X-EHP-Streuparameter erklären. Außerdem können lokalisierte Exzitonzustände die Wechselwirkungsstärke beeinflussen. Es wird erwartet, dass die Wahrscheinlichkeit eines Streuprozesses für tief lokalisierte Zustände geringer ist[162], was wiederum zu einem kleineren Streuparameter führen kann.

Die Wechselwirkungsstärke der Streuung zwischen exzitonischen Oszillatoren und Exzitonen wurde bisher an einer Vielzahl an Materialien und Halbleitersystemen erforscht. Darunter ergeben Untersuchungen an Übergangsmetall-Dichalkogenid-Monolagen (engl.: *transition metal dichalcogenide*, Abk.: TMD), dass diese Wechselwirkungsstärke im Vergleich zu konventionellen Halbleitersystemen, wie den soeben erwähnten ZnSe und GaAs, deutlich erhöht ist. Die Abweichungen zu den hier beschriebenen Ergebnissen lassen sich vermutlich durch eine reduzierte dielektrische Abschirmung der Coulomb-Kraft in atomar dünnen Materialien erklären. In Analogie zu den unterschiedlich großen Streuparametern in 2D- und 3D-GaAs führt diese zu einer erhöhten Streuung in TMD-Monolagen.[79,161] Trotz der zahlreichen Untersuchungen zur Ladungsträgerstreuung sind Streuprozesse zwischen einer Charge-Transfer-Exzitonpolarisation und CT-Exzitonen oder einem eh-Plasma bis zum jetzigen Zeitpunkt unbekannt. Der folgende Abschnitt dient dazu diese Wissenslücke zu schließen.

Zu diesem Zweck sind die dichteabhängigen homogenen Linienbreiten beider Proben gemeinsam in Abbildung 5.25 dargestellt. In beiden Fällen nimmt die homogene Linienbreite linear mit der Ladungsträgerdichte zu. Für einen Bohr'schen Radius von 14,8 nm und eine Exzitonbindungsenergie von 3,6 meV[123] ergeben die Messungen eine Wechselwirkungsstärke von $\gamma_{X-EHP} = 3{,}86$ für die Streuung zwischen den freien Elektronen und Löchern und der durch den Anregepuls generierten Exzitonpolarisation. Die Wechselwirkungsstärke zwischen der Charge-Transfer-Exzitonpolarisation und einem räumlich getrennten eh-Plasma ist somit ähnlich stark wie in den (Ga,In)As-Quantenfilmen der Referenzprobe. Die Vermutung liegt nahe, dass die räumliche Separation der Ladungsträger in der Typ-II-Probe keinen signifikanten Einfluss auf die Streuung mit freien Ladungsträgern nimmt. Für Streuprozesse zwischen der CTX-Polarisation und inkohärenten Charge-Transfer-Exzitonen ergibt sich ein Streuparameter von $\gamma_{X-X} = 1{,}2$. Der Vergleich beider Parameter zeigt, dass die Wechselwirkung zwischen einer CTX-Polarisation und freien Ladungsträgern auch in der Typ-II-Heterostruktur effizienter zu einem Verlust der makroskopischen Polarisation beiträgt. Ein deutlicher Unterschied zwischen der Typ-II-Struktur und der Referenzprobe lässt sich feststellen, wenn man die Verhältnisse der X-EHP- zur X-X-Streuung beider Proben vergleicht. Im Falle der Typ-I-Probe beträgt $\frac{\gamma_{X-EHP}}{\gamma_{X-X}} = 7{,}5$, wohingegen das Verhältnis für die Typ-II-Probe mit $\frac{\gamma_{X-EHP}}{\gamma_{X-X}} = 3{,}2$ geringer ist. Dieser Unterschied ist hauptsächlich der stärkeren X-X-Streuung in der Typ-II-Probe geschuldet. Die Messungen zeigen, dass die Streurate der CTX-Polarisation mit den inkohärenten Exzitonen etwa doppelt so groß ist wie jene der regulären Exzitonpolarisation. Grund für diese Beobachtungen ist vermutlich der strukturelle Aufbau der Typ-II-Probe. Durch die zusätzlichen Ga(As,Sb)-Schichten sind die angeregten Oszillatoren bzw. Ladungsträger in unterschiedlichen Quantenfilmen lokalisiert. Da die Coulomb-Anziehung mit dem Quadrat der

Entfernung abnimmt, führt die Ladungsträgerseparation aufgrund des größeren Abstandes zu einer reduzierten Anziehung zwischen den Elektronen und Löchern. Aus diesem Grund ist die CTX-Bindungsenergie kleiner als bei regulären Exzitonen, wie sich anhand Tabelle 5.1 erkennen lässt. Darüber hinaus ist die Ladungsträgerseparation für größere Dipolmomente verantwortlich, weshalb eine verstärkte Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen der CTX-Polarisation und räumlich indirekten Exzitonen vermutet wird. Außerdem verstärkt ein größerer Bohr-Radius die nicht-bosonischen Eigenschaften der CT-Exzitonen.[123] Dadurch wechselwirken die Exzitonen mehr wie freie Elektronen und Löcher, sodass sie über weitreichendere Coulomb-Wechselwirkungen miteinander agieren. Einen Hinweis darauf, dass CTX empfindlicher auf die fermionische Elektron-Loch-Substruktur reagieren als reguläre Exzitonen, konnte bereits an einer ähnlich aufgebauten Typ-II-Heterostruktur beobachtet werden.[123]

Abschließend lässt sich festhalten, dass selbst bei verschwindender Ladungsträgerdichte die Charge-Transfer-Polarisation und die Polarisation regulärer Exzitonen unterschiedliche Dephasierungsdynamiken besitzen, wobei die CT-Polarisation wesentlich schneller zerfällt als eine Polarisation aus regulären Exzitonen. Im Gegensatz dazu zeigen die Experimente mit Vorpuls, dass die CTX-Polarisation trotz der strukturellen Differenzen ähnliche Streueigenschaften mit einem räumlich getrennten EHP oder anderen CTX aufweist wie eine Polarisation regulärer Exzitonen mit einem EHP bzw. anderen Exzitonen. Da die verschiedenen Experimente unter vergleichbaren Bedingungen durchgeführt werden, fallen einige der Unsicherheiten bei der Bestimmung der Ladungsträgerdichte weniger stark ins Gewicht. Unter diesem Aspekt deuten die Ergebnisse auf die Tendenz hin, dass die Streuung der CTX-Polarisation mit inkohärenten CTX um den Faktor zwei effizienter ist als Streuprozesse zwischen einer regulären Exzitonpolarisation und Exzitonen in der Referenzprobe. Als Ursache dafür wird die Ladungsträgerseparation und der daraus folgende fermionischere Charakter der Charge-Transfer-Exzitonen angesehen.

6

Zweidimensionale Ladungsträgerdiffusion in Quantenfilmen

Häufig stellen Halbleiter die fundamentalen Bestandteile optoelektronischer Geräte wie beispielsweise Solarzellen[163,164], Leuchtdioden[165], Photodetektoren[166,167] und Lasern[168] dar. Nach einer optischen Anregung können sich Ladungsträger durch Diffusionsprozesse innerhalb der halbleitenden Materialien ausbreiten. Das Verständnis des lichtinduzierten Ladungsträgertransports spielt eine wichtige Rolle in modernen technologischen Geräten, da sie die Leistung einiger Bauteile beeinflussen. Im Hinblick auf Solarzellen kommt beispielsweise der Diffusionslänge eine entscheidende Bedeutung zu.[169] Sie bestimmt, ob die von den Exzitonen absorbierte Photonenergie bis zur Raumladungszone transportiert werden kann. Schaffen es die Ladungsträger nicht vor ihrer Rekombination bis zur Raumladungszone zu diffundieren, tragen sie nicht zur Stromerzeugung bei. Das letzte Kapitel verdeutlicht, dass der strukturelle Aufbau der Halbleiterheterostruktur und damit verbunden die Existenz interner Grenzflächen einen großen Einfluss auf die Dephasierung exzitonischer Polarisationen nehmen. Darüber hinaus zeigen die Ergebnisse, dass die strukturellen Differenzen der Halbleiterstrukturen Auswirkungen auf die Streuprozesse der Ladungsträger haben. Insgesamt beeinflusst die Qualität der internen Grenzflächen die angeregten Ladungsträger und damit die optischen Eigenschaften einer Halbleiterstruktur. Im Zuge der fortschreitenden Miniaturisierung optoelektronischer Bauelemente nehmen die Einflüsse interner Grenzflächen auf die Leistungsfähigkeit der Bauelemente immer weiter zu. Dies gilt besonders, wenn die Leistung vom Energietransport/Ladungsträgertransport parallel zur Grenzfläche abhängig ist.[91] Ein ideales Modellsystem, um Grenzflächeneffekte zu untersuchen, ist die bereits vorgestellte Typ-II-Heterostruktur. Im Rahmen dieser Arbeit kann die Diffusion von Charge-Transfer-Ladungsträgern entlang einer inneren Grenzfläche untersucht werden. Der Vergleich mit den Diffusionseigenschaften regulärer Exzitonen in einer Referenzprobe lässt Rückschlüsse auf die Einflüsse der Grenzfläche auf die Transporteigenschaften der räumlich separierten Ladungsträger zu.

Eine Literaturrecherche spiegelt anhand der Vielfalt der untersuchten Materialsysteme die Bedeutsamkeit der Transporteigenschaften photoangeregter Zustände wider. In diesem Zusammenhang wurden bereits Diffusionskoeffizienten von CdS[106], CdSSe[100,170], ZnSe[171], InSb[172], (In,Ga)As-[173,174] sowie GaAs-Quantenfilmen[80,175] und TMD-Monolagen wie WSe_2[176] untersucht, um nur einige Beispiele zu nennen. Zur experimentellen Untersuchung der Transport-

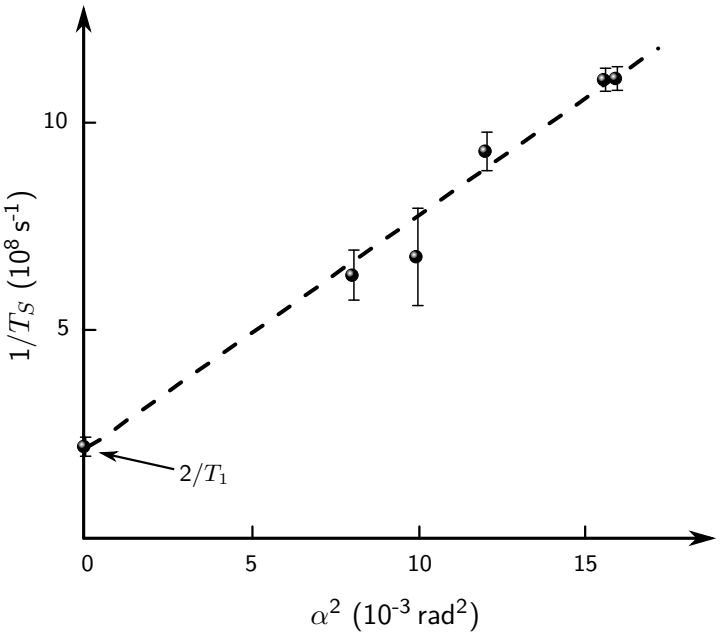

Abbildung 6.1.: Dargestellt sind die Ergebnisse transienter Gitterexperimente von J. R. Salcedo et al. an mit Pentacen dotierten p-Terphenyl-Einkristallen. Die inverse Zerfallszeit der abgebeugten Signale wird gegen den Winkel α^2 zwischen den Anregungspulsen aufgetragen. Über die Steigung einer linearen Regression lässt sich die Diffusionskonstante für die elektronische Singulett-Anregung bestimmen.[114]

eigenschaften steht eine große Anzahl verschiedener Methoden zur Verfügung. Der folgende Abschnitt soll einige dieser Methoden kurz vorstellen.

Salcedo et al. ist 1978 erstmals die direkte Untersuchung von Energietransportprozessen in mit Pentacen dotierten p-Terphenyl-Einkristallen durch transiente Gitterexperimente gelungen.[114] In transienten Gitterexperimenten erzeugt die Interferenz zweier Laserpulse eine periodische räumliche Ladungsträgerverteilung, ein sogenanntes Gitter. Das Abklingen des Gitters wird durch die Beugung eines dritten Pulses detektiert.[100,101,175] Eine systematische Änderung der Gitterkonstanten (und damit des Winkels zwischen den Laserpulsen) erlaubt es die inverse Zerfallszeit des abgebeugten Signals gegen Λ^2 aufzutragen. Wie in Abbildung 6.1 dargestellt, lassen sich auf diese Weise aus der Steigung der Geraden und dem y-Achsenabschnitt die Diffusionskonstante D und die Rekombinationszeit T_1 über Gleichung 2.24 getrennt voneinander ableiten.

In räumlich aufgelösten Anrege-Abfrage-Experimenten wird ebenso ein Laserpuls zur optischen Anregung der Ladungsträger eingesetzt. Die Bewegung der Ladungsträger weg vom Anregungspunkt wird durch die Messung der (Änderung der) Transmission eines zweiten zeitlich verzögerten Laserpulses erfasst. Über das räumliche Abtasten des Probenortes durch den Abfragepuls kann die Verteilung der Ladungsträger gemessen werden.[102,154,177]

Eine recht einfache Methode die Diffusion von Ladungsträgern zu untersuchen, stellen zudem räumlich aufgelöste Photolumineszenzmessungen dar.[171,178] Hierbei wird die Probe auf einer Fläche angeregt, deren Durchmesser kleiner als die Diffusionslänge der angeregten Zustände ist. Der diffusive Transport wird aus der örtlich detektierten Photolumineszenz der rekombi-

nierenden Ladungsträger abgeleitet. Darüber hinaus lässt die zeitlich und örtlich aufgelöste Photolumineszenzspektroskopie in der time-of-flight-Konfiguration Aussagen über die Diffusion der Ladungsträger zu.[176,179,180] Hillmer et al. bestimmten den Transport von Exzitonen in GaAs/(Al,Ga)As-Quantenfilmen, indem sie opake Masken über ihren Proben positionierten.[111,181] Exzitonen, die von ihrem Anregungsort in maskierte Bereiche diffundieren, sorgen für eine Abnahme der detektierten Photolumineszenz (Abk.: PL). Über die Abnahme der zeitabhängigen PL-Intensität lassen sich wiederum Rückschlüsse auf die Diffusionskonstante der Exzitonen gewinnen.[179]

6.1. Experimentelle Durchführung

Da sich laserinduzierte Gitterexperimente als eine geeignete Methode zur direkten Untersuchung von Energietransportprozessen in Halbleitermaterialien erwiesen haben, wird der in Kapitel 3 näher beschriebene Vier-Wellen-Misch-Aufbau zur Bestimmung der Diffusionskonstanten D verwendet. Zu diesem Zweck werden drei nicht-kollineare ultrakurze Pulse mit den Wellenvektoren $\mathbf{k}_1$, $\mathbf{k}_2$ und $\mathbf{k}_3$ auf die Probe fokussiert, wo sie sich räumlich überlappen. Im Gegensatz zu den in Kapitel 5 beschriebenen Messungen der Dephasierungszeit treffen die Pulse $\mathbf{k}_1$ und $\mathbf{k}_2$ zeitgleich ($T_{12} = 0$) auf die Probe. In der Literatur werden solche Messungen häufig als „transiente Gitterexperimente“ bezeichnet.[96] In dieser Anordnung werden ein Winkel α zwischen den $\mathbf{k}_1$- und $\mathbf{k}_2$-Pulsen von 13,75° (in Luft) sowie Spotdurchmesser von $\sim 50\,\mu m$ realisiert. Für die Berechnungen der Diffusionskonstanten wird der Winkel um den Brechungsindex der Probenstruktur korrigiert, sodass sich ein Winkel von 3,8° innerhalb der Probe ergibt. Die zeitgleiche Überlagerung der ersten beiden optischen Pulse bildet ein sinusförmiges Interferenzgitter mit einer Gitterkonstanten Λ. Bei einem Winkel von 3,8° beträgt die Gitterkonstante etwa 4 µm, damit liegt sie in der Größenordnung bekannter Literaturwerte.[100] Durch optische Band-zu-Band-Absorption wird das Interferenzgitter in eine räumlich variierende Dichte angeregter Ladungsträger transformiert.[106] Um die Modulationstiefe des entstandenen Populationsgitters zu untersuchen, trifft ein zeitlich verzögerter Abfragepuls (#3) mit Wellenvektor $\mathbf{k}_3$ auf die Probe. Wie bereits in Abschnitt 2.4 beschrieben, zerfällt das Populationsgitter für Zeiten größer als die Dephasierungszeit T_2. Grund dafür sind die Rekombination und Diffusion der angeregten Ladungsträger. Das an dem Gitter in Richtung $\mathbf{k}_3 \pm \mathbf{G} = \mathbf{k}_3 \pm (\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1)$ abgebeugte Signal wird als Funktion der Verzögerungszeit T_{13} zwischen Anrege- und Abfragepulsen mit einer Silizium-Photodiode detektiert. Der zeitliche Verlauf des VWM-Signals gibt Aufschluss über die Abklingzeit des Gitters.

Zur Streulichtunterdrückung wird eine $\frac{\lambda}{2}$-Platte in den Pfad des dritten Pulses integriert, die die Polarisation des Abfragepulses senkrecht zur Polarisation der Anregepulse orientiert (kreuzlinear). Ein vor die Photodiode angebrachter linearer Polarisator blockiert Licht, welches die gleiche Polarisation wie die beiden Anregepulse #1 und #2 besitzt. Außerdem werden die Amplituden der Pulse #1 und #3 mit unterschiedlichen Frequenzen moduliert und lediglich Signale mit der Differenzfrequenz mithilfe eines Lock-in-Verstärkers verstärkt. Zur Berechnung der Diffusionskonstanten D ist die Populationslebensdauer T_1 der Ladungsträger nötig. Diese wird durch Anrege-Abfrage-Experimente innerhalb des gleichen Aufbaus bestimmt. Damit wird die Vielseitigkeit des im Rahmen dieser Arbeit konstruierten und errichteten Messaufbaus de-

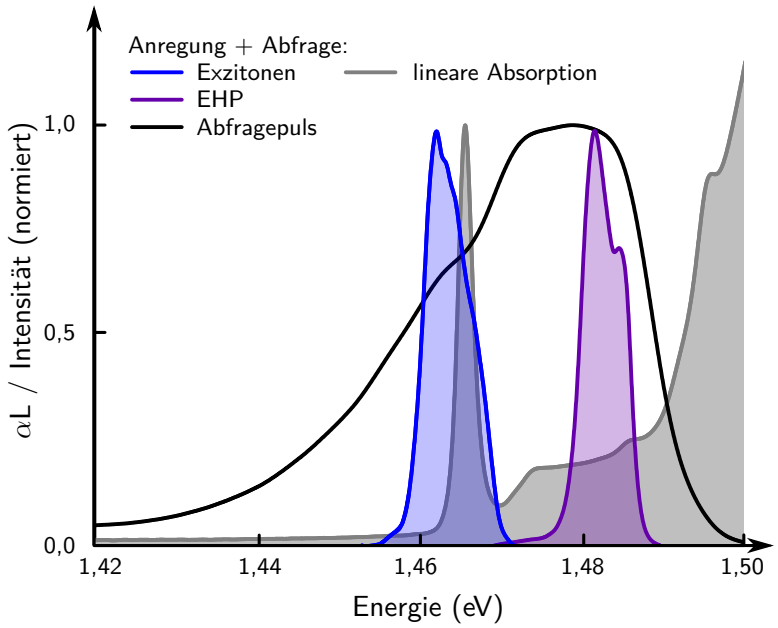

Abbildung 6.2.: Anregungsbedingungen der Diffusionsexperimente an der Referenzprobe. Dargestellt ist die lineare Absorption der Halbleiterstruktur (grau) sowie die Spektren der Anregepulse zur Generation kalter Exzitonen (blau) oder freier Elektronen und Löcher (violett). Das schwarze Spektrum kennzeichnet den am Interferenzgitter abgebeugten Abfragepuls.

monstriert. Hierzu wird der Abfragepuls $\mathbf{k}_3$ mit einem Spiegel in ein Spektrometer eingekoppelt. Zusätzlich werden mechanische Verschlüsse in den Pfad der $\mathbf{k}_1$-, $\mathbf{k}_2$- bzw. $\mathbf{k}_3$-Pulse integriert, die sich über ein Programm steuern lassen. Darüber hinaus werden differentielle Absorptionsmessungen an einem reinen Anrege-Abfrage-Messplatz unter ähnlichen Anregungsbedingungen reproduziert. Da bei dieser Messeinrichtung die Spotgröße des optischen Pumppulses größer als die des Abfragepulses ist, wird in diesem Fall jedoch kein transientes Gitter durch den zeitlich verzögerten Puls abgefragt. Verschieden starke Neutraldichtefilter werden verwendet, um die Intensität des Laserlichts und damit die Anregungsleistung variieren zu können. Auf diese Weise wird der diffusive Energietransport in Abhängigkeit der Ladungsträgerdichte bestimmt.

6.2. Vier-Wellen-Mischen mit drei Pulsen

6.2.1. Diffusionsmessungen an der Typ-I-Heterostruktur

Mithilfe transienter Gitterexperimente kann der laterale Energietransport verschiedener Teilchenarten in 2D-(Ga,In)As-Quantenfilmen untersucht werden. Hierzu werden die in Abbildung 6.2 dargestellten optischen Pulse zur Anregung der verschiedenen Ladungsträger verwendet. Dazu werden diverse Bandkantenfilter eingesetzt, um die Pulse gemäß ihres Anregungszwecks spektral zu beschneiden. Bekanntermaßen resultiert die spektrale Beschränkung in einer größeren Pulslänge, wodurch üblicherweise die zeitliche Auflösung des Experiments begrenzt wird. Diese Tatsache ist für die durchgeführten Experimente jedoch vernachlässigbar, da die detektierten Signale eine um mehrere Größenordnungen längere Lebensdauer besitzen.

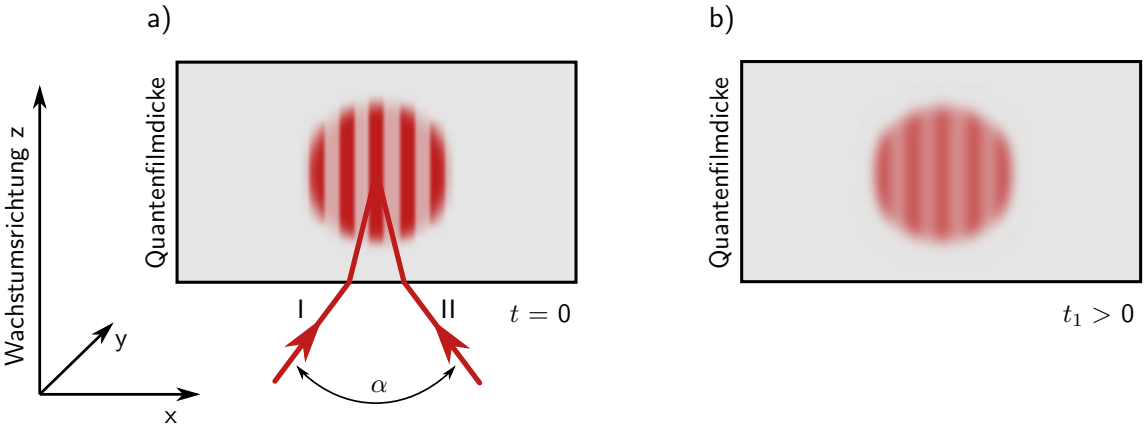

Abbildung 6.3.: Schematische Illustration der Ladungsträgerdiffusion im Quantenfilm im Rahmen transienter Gitterexperimente. a) Die zur Anregung eingesetzten Pulse I und II treffen unter einem Winkel α auf den Halbleiterquantenfilm. Die durch die Laserpulse angeregten Ladungsträger sind zum Zeitpunkt $t = 0$ in den Maxima (dunkelrote Bereiche) des Populationsgitters konzentriert. b) Streuprozesse zwischen den Ladungsträgern führen zu einer stetigen Richtungsänderung der sich ausbreitenden Teilchen und dementsprechend zu einer lateralen Ausbreitung der Ladungsträger im Quantenfilm. Dies führt im Bild zu einer Verschmierung und Verblassung des Gitters.

Abbildung 6.3 veranschaulicht schematisch die Diffusion der Ladungsträger in der Halbleiterprobe nach der Anregung durch die Laserpulse. Zum Zeitpunkt $t = 0$ ist die laterale Verteilung der Exzitonen $N(x, y)$ durch den gemeinsamen Strahlquerschnitt der Laserpulse im Fokus bestimmt. Im resonant angeregten Fall (blauer Puls in Abbildung 6.2) werden ausschließlich kalte Exzitonen ohne einen wesentlichen Impuls innerhalb der (Ga,In)As-Quantenfilme generiert. Diese können im Allgemeinen durch die Absorption (akustischer) Phononen zusätzliche thermische Energie gewinnen. Durch zufällige Streuprozesse zwischen den angeregten Ladungsträgern finden auf ihrem Weg durch den Kristall kontinuierlich Richtungsänderungen statt. Auf diese Weise kommt es zu einer lateralen Ausdehnung der Ladungsträger innerhalb des Quantenfilms. Die rechte Abbildung stellt die Exzitonverteilung zum Zeitpunkt $t_1 > 0$ dar. Während ihrer Lebensdauer T_1 breitet sich die angeregte Exzitonenwolke ausgehend vom Anregungsort lateral innerhalb des Quantenfilms aus, wobei die durch optische Anregung übertragene Energie im Halbleiter transportiert wird.

Aufgrund der Diffusion und Rekombination der Ladungsträger zerfällt das Populationsgitter mit der Zeit. Dieser Zerfall kann durch einen dritten optischen Puls abgefragt werden. Er ist in Abbildung 6.2 als schwarzes Spektrum veranschaulicht. Der Abfragepuls umfasst die direkte 1s-Exzitonresonanz (1,465 eV), ist jedoch zu niedrigeren und höheren Energien hin spektral breiter. Die am Gitter abgebeugten Vier-Wellen-Misch-Signale des Abfragepulses sind in Abbildung 6.4 für den resonant angeregten Fall dargestellt. Der Farbverlauf (hell $\rightarrow$ dunkel) kennzeichnet dabei zunehmende Ladungsträgerdichten innerhalb der Probe, welche durch die beiden Anregepulse induziert werden. Der zeitliche Verlauf der Intensität des abgebeugten Pulses lässt sich durch eine Exponentialfunktion mit Zerfallszeit T_S beschreiben. Die Abklingzeit des detektierten Signals kann folglich durch einen exponentiellen Fit an die Messdaten extrahiert werden. Auf den ersten Blick fällt auf, dass das VWM-Signal bei hohen Dichten

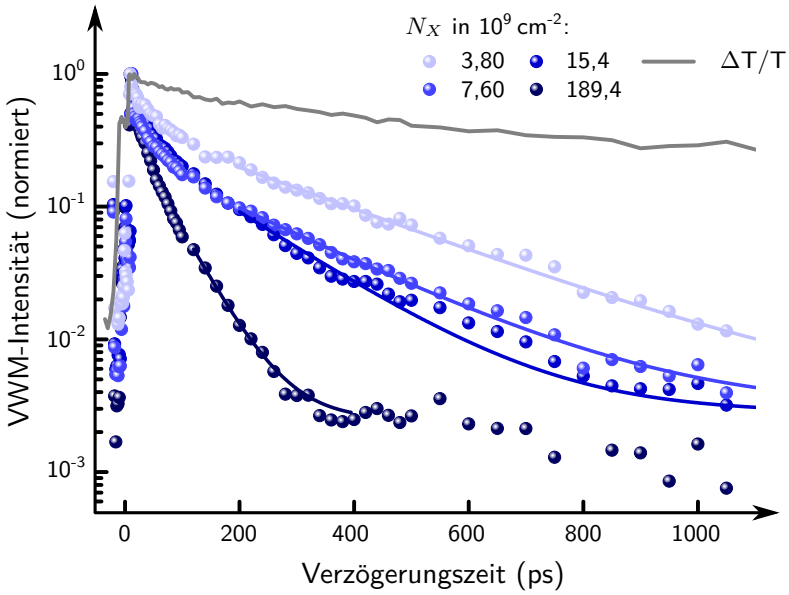

Abbildung 6.4.: VWM-Transienten unter Anwesenheit resonant angeregter Exzitonen in Abhängigkeit der Exzitonendichte. Die mit zunehmender Teilchendichte sinkende Zerfallszeit der VWM-Signale deutet auf eine mit zunehmender Dichte schneller werdende Ausbreitung der angeregten Ladungsträger hin. Zwecks semilogarithmischer Auftragung der Ergebnisse wurde ein konstanter Offset auf die Messdaten addiert. In dieser sowie den folgenden Abbildungen kennzeichnen die farbigen Linien die an die Datenpunkte angelegten exponentiellen Fitfunktionen, während die graue Linie der aus den Anrege-Abfrage-Experimenten gewonnenen anregungsinduzierten Änderung der Transmission entspricht.

schneller zerfällt als im Regime niedriger Dichten. Es ist zu erkennen, dass eine Abhängigkeit der Zerfallszeit von der Ladungsträgerdichte N über eine Größenordnung hinweg besteht. Bei der niedrigsten Dichte von $3{,}8 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$ ist die Intensität des Abfragepulses innerhalb von 272 ps auf $1/e$ des Anfangswertes abgeklungen. In Anlehnung an Kapitel 5 ist diese Zerfallszeit etwa hundertmal größer als die gemessenen Dephasierungszeiten innerhalb der Probe. Wird die Exzitonendichte auf etwa das Vierfache erhöht, zerfällt das Signal deutlich schneller. In diesem Fall beträgt die abgeleitete Zerfallszeit lediglich die Hälfte ($T_S = 156$ ps). Eine weitere Steigerung der Ladungsträgerdichte auf $N = 189{,}4 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$ führt zu einem rapiden Verlust des abgebeugten Signals. Die Abklingzeit macht mit 55 ps nur noch einen Bruchteil der im Regime niedriger Dichten extrahierten Zerfallszeit aus. Der in grau abgebildete Graph stellt die aus den Anrege-Abfrage-Experimenten gewonnene anregungsinduzierte Änderung der Transmission bei einer Ladungsträgerdichte von $N \sim 90 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$ dar. In den (Ga,In)As-Quantenfilmen beträgt die Lebensdauer der Ladungsträger bei dieser Dichte $T_1 = 2$ ns. Die vergleichsweise niedrige Zeitkonstante des Populationsgitters zeigt, dass die Rekombination in Bezug auf den Zerfall des VWM-Signals vernachlässigt werden kann und dementsprechend die Ladungsträgerdiffusion der dominierende Faktor für die Abnahme des detektieren Signals ist. Es sei darauf hingewiesen, dass die Ladungsträgerlebensdauer in der Regel abhängig von der Ladungsträgerdichte im System ist und mit zunehmender Dichte abnimmt. Dieser Umstand spielt in den durchgeführten

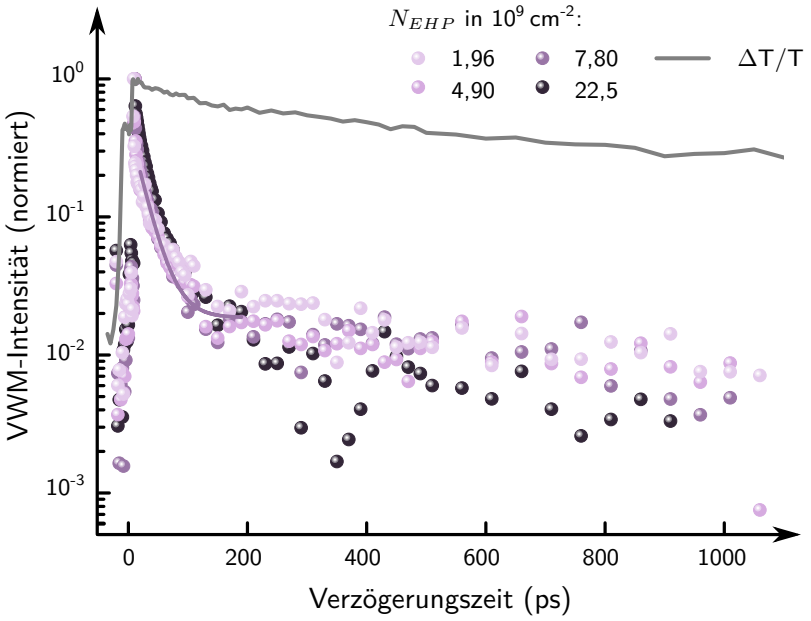

Abbildung 6.5.: Dichteabhängige VWM-Transienten bei nicht-resonanter Anregung freier Elektronen und Löcher. Im Vergleich zu den Ergebnissen bei resonanter Anregung zerfallen die VWM-Signale deutlich schneller und zeigen keine bedeutende Ladungsträgerdichteabhängigkeit. Aus diesem Grund ist repräsentativ der exponentielle Fit lediglich für eine untersuchte Teilchendichte dargestellt.

Messungen jedoch aufgrund der um etwa eine Größenordnung längeren T_1-Zeit lediglich eine zu vernachlässigende Rolle.

Um die Halbleiterprobe nicht-resonant anzuregen, wird der in Abbildung 6.2 durch das violette Spektrum gekennzeichnete Puls eingesetzt. Die Photonenergie des Pulses ist niedriger als die Bandlücke der umgebenden GaAs-Barrieren, sodass der Laserpuls in den einzelnen Quantenfilmen absorbiert wird. Da er energetisch oberhalb der 1s-Exzitonresonanz liegt, generiert er freie Elektronen und Löcher innerhalb der (Ga,In)As-Quantenfilme. Der zeitliche Verlauf des abgebeugten Abfragepulses ist in Abbildung 6.5 dargestellt. Im Gegensatz zur resonanten Anregung lässt sich keine bedeutende Abhängigkeit zwischen der Zerfallszeit des Signals und der Ladungsträgerdichte im System feststellen. Die aus den Messdaten abgeleiteten Abklingzeiten sind für die verwendete Ladungsträgerdichte, welche sich über eine Größenordnung erstreckt, sehr ähnlich. Ein weiterer Unterschied besteht in den deutlich kürzeren Abklingzeiten bei nicht-resonanter Anregung. Selbst bei der niedrigsten Ladungsträgerdichte von $1{,}96 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$ ist das detektierte Signal nach etwa 31 ps auf $1/e$ des Anfangswerts abgefallen. Während bei vergleichbaren Dichten im resonant angeregten Fall das erzeugte Gitter deutlich länger lebt und demzufolge das abgebeugte Signal nur langsam abfällt ($T_S = 211\,\mathrm{ps}$, $N_X = 7{,}6 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$), lässt sich für nicht-resonante Anregung bei $N_{EHP} = 7{,}8 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$ eine Zerfallszeit von 21 ps beobachten. Daraus lässt sich schließen, dass das Exzitongitter etwa zehnmal langsamer zerfällt als das Interferenzgitter bestehend aus freien Elektronen und Löchern. Dies lässt folgende Schlussfolgerung zu: Aufgrund der deutlich schnelleren Diffusion der Elektronen und Löcher klingt das abgebeugte VWM-Signal signifikant schneller ab.

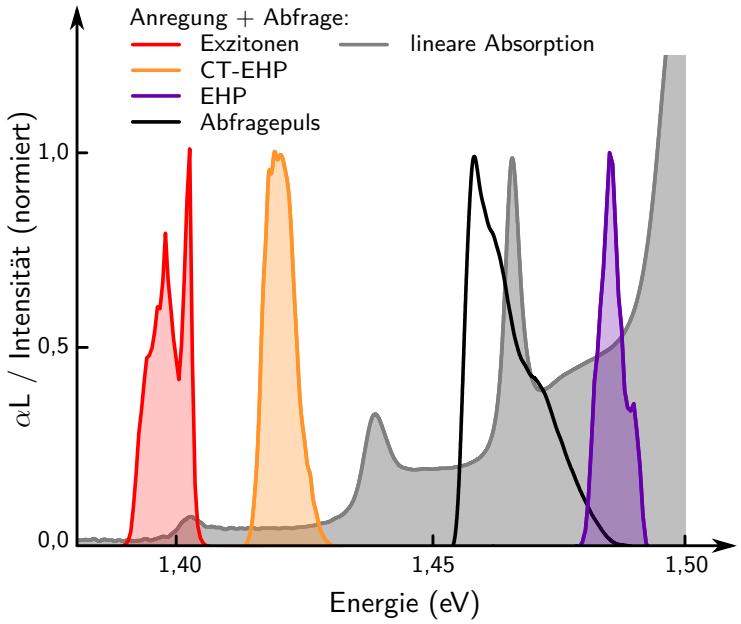

Abbildung 6.6.: Anregungsbedingungen der Diffusionsexperimente an der Typ-II-Heterostruktur. Dargestellt ist die lineare Absorption der Halbleiterstruktur (grau) sowie die Spektren der Anregepulse zur Generation kalter Exzitonen (rot) oder freier Elektronen und Löcher (orange, violett) mit unterschiedlichen Überschussenergien. Das schwarze Spektrum kennzeichnet den am Interferenzgitter abgebeugten Abfragepuls.

6.2.2. Diffusionsmessungen an der Typ-II-Heterostruktur

Die Untersuchung des Transportverhaltens verschiedener Zustände innerhalb der Typ-I-Referenzprobe dient grundsätzlich dazu die gewonnenen Erkenntnisse mit den Ergebnissen an der Typ-II-Heterostruktur zu vergleichen. Abweichungen in den Diffusionsdynamiken der Ladungsträger können Aufschlüsse über den Einfluss der internen Grenzfläche auf die Mobilität der räumlich separierten Ladungsträger geben. Während im letzten Abschnitt die experimentellen Messdaten der Referenzprobe diskutiert werden, widmet sich das folgende Kapitel der Ladungsträgerdiffusion innerhalb der Typ-II-Struktur.

Wie sich anhand Abbildung 6.6 erkennen lässt, erfolgt die optische Anregung durch drei verschiedene Pulse (rot, orange, violett). Der Abfragepuls ist um die exzitonische Resonanz der (Ga,In)As-Quantenfilme zentriert und als schwarzes Spektrum abgebildet. Ein Abfragen der CTX-Resonanz gestaltet sich aus den folgenden Gründen als schwierig: Beim Abfragen der CTX-Resonanz können die VWM-Signale mit starkem Streulicht durch die Anregepulse überlagert sein, wodurch die Messungen erschwert werden. Aufgrund der Ladungsträgerseparation und des damit verbundenen reduzierten Überlapps der e- und h-Wellenfunktionen ist die Absorption der Probe im niederenergetischen Bereich vergleichsweise klein. Dies führt dazu, dass beinahe sämtliches Licht der Anregepulse durch die Probe transmittiert und als Streulicht die Messungen erschwert. Gleichzeitig sind bei Anregepulsen unterhalb der direkten Exzitonresonanzen aufgrund der niedrigen Absorption wesentlich höhere Photonendichten nötig, um ausreichend große Ladungsträgerdichten zu erzeugen. Dementsprechend

führt die Kombination aus einer niedrigen Absorption und vergleichsweise hohen Photonendichten beim Abfragen der CTX-Resonanz zu einem hohen Streulichtanteil im VWM-Signal. Außerdem sind die anregungsinduzierten Änderungen an der CTX-Resonanz und somit auch die Modulationstiefe des Gitters vergleichsweise klein. Wesentlich größere anregungsinduzierte Änderungen beobachtet man hingegen an der deutlich ausgeprägteren Typ-I-Resonanz der (Ga,In)As-Quantenfilme. In diesem Fall verhilft die größere Modulationstiefe des Interferenzgitters zu einer starken Abbeugung des Abfragepulses und damit zu vergleichsweise starken VWM-Signalen. Darüber hinaus ermöglicht eine Abfrage des Gitters bei dieser Resonanz die Streulichtanteile der energetisch niedriger liegenden Anregepulse mithilfe eines Kurzpassfilters[1] vollständig herauszufiltern. Dadurch sind bei allen Anregungsleistungen Messungen ohne Streulicht und somit mit einem guten Signal-zu-Rausch-Verhältnis möglich.

Der rote Puls in Abbildung 6.6 regt die Charge-Transfer-Exzitonen resonant innerhalb der Probe an. In diesem Fall bilden sich die Exzitonen über die Grenzfläche zwischen den (Ga,In)As- und Ga(As,Sb)-Quantenfilmen aus. Die Absorption des CTX ist im Vergleich zur 1s-(Ga,In)As-Exzitonresonanz deutlich schwächer und relativ breit, weshalb sie sich nicht deutlich von der höherenergetischen Plasmaabsorption um 1,42 eV abhebt. Aus diesem Grund können durch einen spektral zu breiten Puls neben CT-Exzitonen zusätzlich freie Elektron-Loch-Paare generiert werden. Um dies zu vermeiden, ist der rote Anregepuls derart beschnitten, dass er ausschließlich die niederenergetische Flanke der CTX-Resonanz umfasst.

Die zugehörigen VWM-Signale sind in Abbildung 6.7 in Abhängigkeit der Exzitonendichte semilogarithmisch aufgetragen. Zwecks Übersicht sind die jeweiligen Intensitätsverläufe in den Farben der in Abbildung 6.6 gezeigten Anregepulse dargestellt. Der Farbverlauf (hell $\rightarrow$ dunkel) kennzeichnet die zunehmende Teilchendichte innerhalb der Quantenfilme, welche sich in diesem Fall über mehr als eine Größenordnung erstreckt. Wie sich erkennen lässt, ist die Zerfallszeit des detektierten VWM-Signals abhängig von der Ladungsträgerdichte im System. Mit zunehmender Anregungsleistung und damit Ladungsträgerdichte nimmt die Abklingzeit des Signals immer stärker ab. Aus diesen Beobachtungen lässt sich schließen, dass die CT-Exzitonen mit steigender Dichte immer schneller vom Anregungsort weg diffundieren. Infolgedessen zerfällt das exzitonische Populationsgitter schneller und das daran abgebeugte VWM-Signal ebenso. Dieses Verhalten wird auch bei resonanter Anregung der (Ga,In)As-Quantenfilme der Typ-I-Probe beobachtet. Die Abklingzeit T_S ist im Falle der Typ-II-Heterostruktur jedoch um ein Vielfaches länger, was auf eine langsamere Diffusion hinweist. Die am Gitter abgebeugten Signale können anhand ihres Intensitätsverlaufes in drei Dichtebereiche unterteilt werden: Bei den drei niedrigsten Anregungsdichten ($N \leq 32 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$) sind die Zerfallszeiten relativ konstant ($T_S \sim 900\,\mathrm{ps}$), ehe sie im mittleren Dichtebereich bei $N = 32 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$ von 911 ps auf 676 ps bei einer Dichte von $N = 80 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$ abfallen. Verglichen mit der Typ-I-Struktur läuft die Änderung der Zerfallszeit pro Ladungsträgerdichte jedoch langsamer ab. Für höhere Dichten sind die Zerfallszeiten wieder einigermaßen konstant, sodass die Intensität des Abfragepulses in Anwesenheit der höchsten Teilchendichte von $448 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$ innerhalb von $\sim 505\,\mathrm{ps}$ auf $1/\mathrm{e}$ des Anfangswertes abgeklungen ist. Der in grau abgebildete Graph stellt die aus den Anrege-Abfrage-Experimenten gewonnene anregungsinduzierte Änderung der Transmission repräsentativ bei einer Ladungsträgerdichte von $N \sim 62 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$ dar. Nach der optischen An-

[1] FESH850, Thorlabs

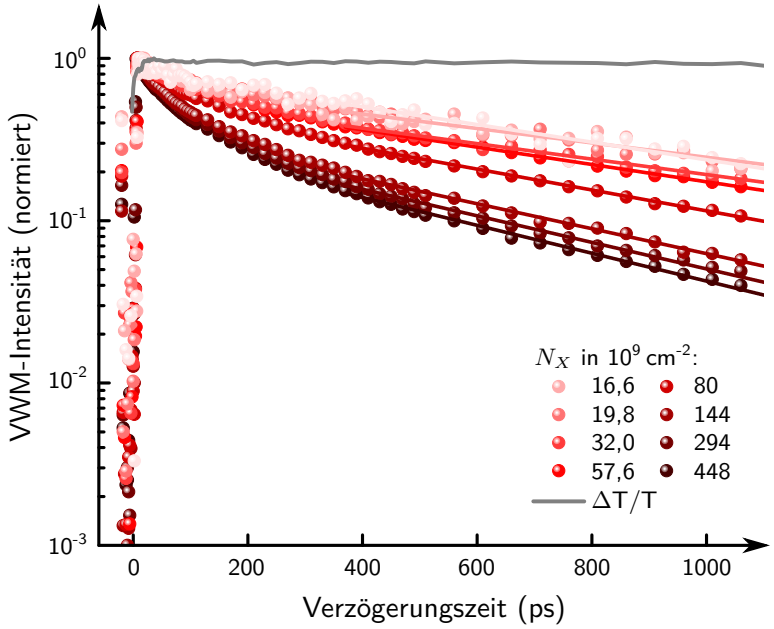

Abbildung 6.7.: Dichteabhängige VWM-Transienten bei resonanter Anregung gebundener Charge-Transfer-Exzitonen in der Typ-II-Struktur. Im Vergleich zu den Ergebnissen an der Referenzprobe zerfallen die VWM-Signale deutlich langsamer, was auf eine langsamere Exzitondiffusion innerhalb der Typ-II-Heterostruktur hindeutet.

regung relaxieren die Ladungsträger in unterschiedliche Quantenfilme. Der reduzierte Überlapp der Wellenfunktionen der Elektronen und Löcher bewirkt eine im Vergleich zur Referenzprobe verlängerte Lebensdauer der angeregten Ladungsträger ($T_1 = 20$ ns). Analog zur Typ-I-Struktur liefert dementsprechend die Diffusion der Ladungsträger den dominanten Beitrag zur Abnahme des VWM-Signals.

Im Gegensatz zu den VWM-Experimenten an der Referenzprobe werden für die Untersuchungen an der Typ-II-Heterostruktur zwei verschiedene Pulse zur hochenergetischen Anregung verwendet. Diese unterscheiden sich in ihrer Photonenergie und damit in ihrem Anregungszweck. Der in Abbildung 6.6 durch das orange Spektrum gekennzeichnete Puls liegt energetisch oberhalb der 1s-CTX-Resonanz, sodass er freie Elektronen und Löcher über die Grenzfläche hinweg generiert. Er wird im Folgenden als nicht-resonanter CT-Puls bezeichnet. Er ist so gewählt, dass die freien Ladungsträger eine ähnliche Überschussenergie (18 meV) besitzen wie die nicht-resonant angeregten Elektronen und Löcher in den (Ga,In)As-Quantenfilmen der Referenzprobe. Wie sich anhand Abbildung 6.8 erkennen lässt, wird auch in diesem Fall die Abhängigkeit des abgebeugten Signals von der Ladungsträgerdichte über mehr als eine Größenordnung gemessen. Während für die Typ-I-Probe im untersuchten Dichteregime eine nahezu konstante Zerfallszeit beobachtet werden kann, wird der zeitliche Verlauf der VWM-Signale für die räumlich indirekten freien Elektronen und Löcher wesentlich stärker von der Ladungsträgerdichte beeinflusst. Ein Vergleich mit den in Abbildung 6.5 dargestellten Ergebnissen zeigt darüber hinaus, dass die abgebeugten Signale in Anwesenheit eines angeregten eh-Plasmas in der Referenzstruktur um ein Vielfaches schneller abgeklungen sind. Das wiederum bedeutet, dass sich die Ladungsträger innerhalb der Typ-I-Probe trotz gleicher Überschussenergie schneller innerhalb

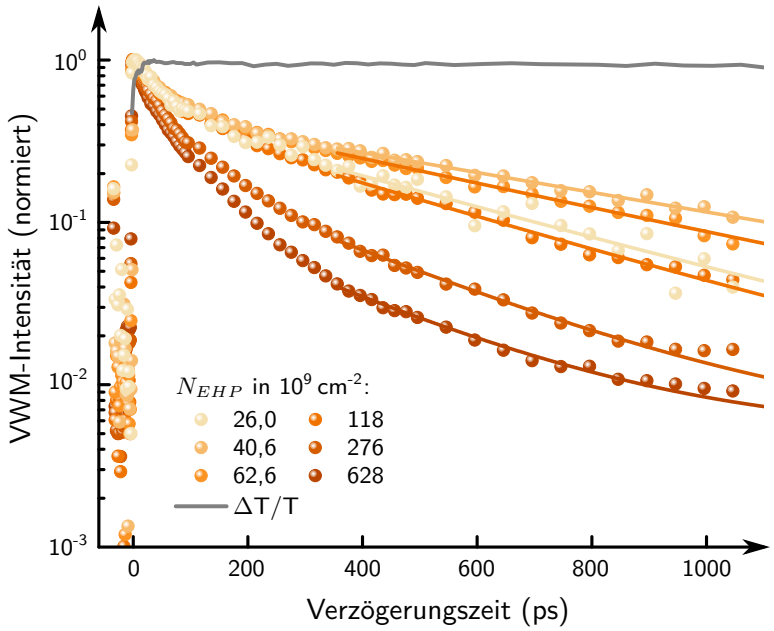

Abbildung 6.8.: Dichteabhängige VWM-Transienten in Anwesenheit freier Elektronen und Löcher mit einer Überschussenergie von 18 meV. Da die Zerfallszeiten der hier dargestellten VWM-Signale kleiner sind als im Falle resonanter Anregung, lässt sich schlussfolgern, dass CT-Exzitonen langsamer durch die Quantenfilme diffundieren als separierte Elektronen und Löcher. Trotz gleicher Überschussenergie breiten sich die Ladungsträger innerhalb der Typ-II-Heterostruktur langsamer aus als in der Referenzprobe.

des Kristalls ausbreiten. Diese Schlussfolgerung ergibt sich ebenfalls beim Vergleich der Messungen mit resonanter Anregung. Die durch resonante Anregung generierten CT-Exzitonen diffundieren langsamer durch die Quantenfilme als die durch den orangen Puls angeregten freien Elektronen und Löcher. Diese Tatsache spiegelt sich in den kürzeren Zerfallszeiten der Elektronen und Löcher wider. Im niedrigen Dichteregime ($N \leq 32 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$) fällt das VWM-Signal im resonant angeregten Fall nach $\sim 900\,\mathrm{ps}$ auf $1/e$ des Anfangswertes ab, während es im nicht-resonant angeregten Fall bereits nach $\sim 690\,\mathrm{ps}$ ($N = 40{,}6 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$) abgeklungen ist.

Zu dem Zweck die nicht-resonanten Messungen beider Halbleiterproben miteinander vergleichen zu können, werden wie bereits erwähnt zwei verschiedene Anregungsbedingungen für die Typ-II-Struktur gewählt. Während der durch das orange Spektrum dargestellte Anregepuls dazu eingesetzt wird, um ein EHP mit ähnlicher Überschussenergie zu erzeugen, besitzt der violett abgebildete Puls die gleiche Energie wie der Anregepuls der Typ-I-Probe. Da er energetisch oberhalb der räumlich direkten 1s-Exzitonresonanz der (Ga,In)As-Quantenfilmschicht gelegen ist, regt er freie Elektronen und Löcher sowohl innerhalb der (Ga,In)As-Quantenfilme als auch der Ga(As,Sb)-Quantenfilme an. In diesem Fall tunneln die angeregten Löcher der (Ga,In)As-Schicht durch die einen Nanometer dicke GaAs-Zwischenschicht in den benachbarten Ga(As,Sb)-Quantenfilm, während die dort angeregten Elektronen in die (Ga,In)As-Schicht tunneln. Der Ladungsträgertransfer geschieht auf einer sub-Pikosekunden-Zeitskala, sodass sich erneut ein Elektron-Loch-Plasma an der Grenzschicht ausbildet. Dieses unterscheidet sich

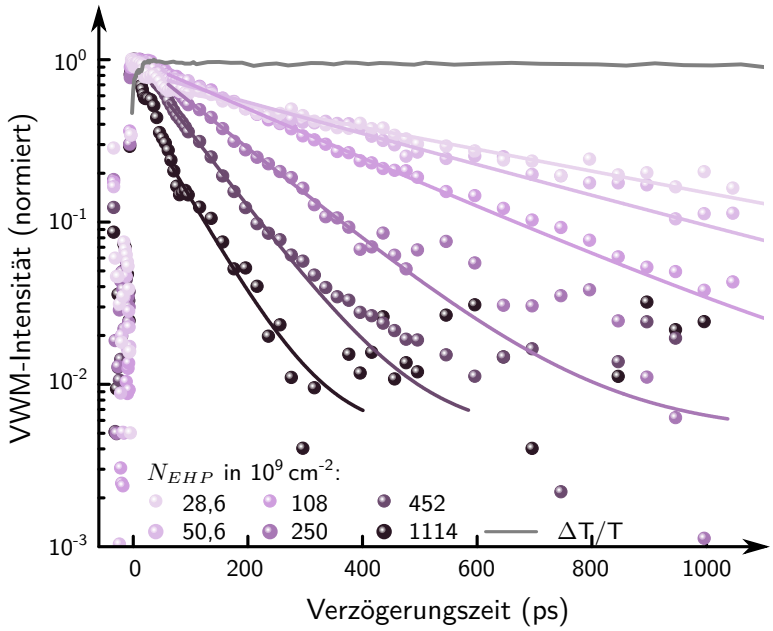

Abbildung 6.9.: Dichteabhängige VWM-Transienten in Anwesenheit hochenergetischer freier Elektronen und Löcher ($\Delta E = 83\,\text{meV}$). Im Gegensatz zur nicht-resonanten Anregung der Referenzprobe zeigen die hier dargestellten VWM-Signale unter Verwendung eines spektral ähnlichen Anregepulses eine deutliche Dichteabhängigkeit. Insgesamt klingen die Signale im Vergleich zu den in Abbildung 6.5 gezeigten Ergebnissen langsamer ab, was auf eine langsamere Diffusion des eh-Plasmas an der internen Grenzfläche der Typ-II-Probe schließen lässt.

jedoch von dem durch den nicht-resonanten CT-Puls angeregten eh-Plasma, indem die angeregten Elektronen und Löcher eine deutlich höhere Überschussenergie besitzen. Im Gegensatz zum abgebeugten Signal, das bei nicht-resonanter Anregung der Referenzprobe beobachtet wird, zeigt der abgebeugte Puls bei nicht-resonanter Anregung der Typ-II-Heterostruktur ein vollkommen anderes Verhalten (siehe Abbildung 6.9). Die Zerfallszeiten der VWM-Signale besitzen eine wesentlich stärkere Abhängigkeit von der Ladungsträgerdichte als es für die Referenzprobe beobachtet wird. Dies wiederum bedeutet folgendes: Während die Diffusion eines Elektron-Loch-Plasmas in der Typ-I-Probe im untersuchten Dichtebereich nur eine geringe Dichteabhängigkeit zeigt, weist die Diffusion in der Typ-II-Probe immer eine vergleichsweise starke Dichteabhängigkeit auf. Insgesamt sind die Zerfallszeiten für die nicht-resonante Anregung deutlich länger als es in der Referenzprobe der Fall ist. Während bei vergleichbarer Dichte eine Zerfallszeit $T_{S,\ \text{Typ-I}} \sim 22\,\text{ps}$ ($N = 22{,}5 \cdot 10^9\,\text{cm}^{-2}$) aus den Messungen abgeleitet werden kann, beträgt sie für die Typ-II-Heterostruktur bei nicht-resonanter Anregung $T_{S,\ \text{Typ-II}} \sim 630\,\text{ps}$ ($N \sim 28{,}6 \cdot 10^9\,\text{cm}^{-2}$). Daraus lässt sich schlussfolgern, dass der diffusive Transport der an der internen Grenzfläche gelegenen Ladungsträger deutlich langsamer abläuft.

Der direkte Vergleich mit der nicht-resonanten CT-Anregung aus Abbildung 6.8 zeigt, dass das Populationsgitter bestehend aus Ladungsträgern höherer Überschussenergie bei hohen Dichten kürzer lebt, während bei niedrigen Dichten die Lebensdauern für beide nicht-resonanten Anregungen ähnlich sind. Ähnlich wie im Fall der Referenzprobe fällt das abge-

beugte Signal der angeregten CT-Exzitonen um ein Vielfaches langsamer ab als in Anwesenheit freier Elektronen und Löcher.

6.3. Diffusion angeregter Ladungsträger in Quantenfilmen

Aus den in Abschnitt 6.2 erläuterten Messdaten lassen sich die Zerfallszeiten T_S der VWM-Signale ableiten, welche wiederum mit der Diffusionskonstante D über folgende Gleichung verknüpft sind:

$$D = \frac{\Lambda^2}{8\pi^2} \cdot \left(\frac{1}{T_S} + \frac{2}{T_1} \right) \tag{6.1}$$

Die Lebensdauer T_1 der Ladungsträger wird durch differentielle Transmissionsmessungen gewonnen. Da die Gitterkonstante Λ durch Gleichung 2.14 gegeben ist, lässt sich die Diffusionskonstante D mit dem Winkel α, der Anregungswellenlänge λ und der gemessenen Zerfallszeit T_S aus den VWM-Messungen ableiten.

Innerhalb dieses Kapitels werden die Diffusionskonstanten verschiedener Ladungsträger (Exzitonen, freie Elektronen und Löcher) vorgestellt. Darüber hinaus werden Aussagen über deren Transporteigenschaften getroffen sowie Unterschiede und Gemeinsamkeiten erörtert. Außerdem wird die räumliche Ausdehnung der Ladungsträger innerhalb der Referenzprobe mit der Ladungsträgerausbreitung in der Typ-II-Heterostruktur verglichen. Die Untersuchungen der diffusiven Ladungsträgerexpansion parallel zur Grenzfläche in der Typ-II-Heterostruktur ermöglichen es, Erkenntnisse über den Einfluss der Grenzfläche auf die einzelnen Ladungsträgermobilitäten zu gewinnen.

6.3.1. Exzitondiffusion

In Abbildung 6.10 sind die Diffusionskoeffizienten der Ladungsträger bei resonanter Anregung der untersuchten Proben zusammengefasst. Nach der optischen Anregung im Regime niedriger Ladungsträgerdichten besitzen die Exzitonen bei $\mathbf{k} \sim 0$ nahezu keinen Impuls und damit kaum Energie, um sich innerhalb des Kristalls bewegen zu können. Folglich ist ihre Diffusion gering und die zugehörigen Diffusionskonstanten D für beide untersuchten Halbleiterstrukturen klein. Für die Referenzprobe ergeben sich im untersuchten Dichtebereich Diffusionskoeffizienten von $D_{\text{Typ-I, X}} \sim$ (4 - 27) $\mathrm{cm^2/s}$. Im Falle der Typ-II-Heterostruktur erstrecken sich die Diffusionskonstanten von $D_{\text{Typ-II, X}} \sim 1{,}5\,\mathrm{cm^2/s}$ bis $D_{\text{Typ-II, X}} \sim 3\,\mathrm{cm^2/s}$. Die Größenordnung der Diffusionskonstanten stimmt mit den in der Literatur berichteten Konstanten direkter Halbleiterquantenfilme überein. Hillmer et al. berichten von exzitonischen Diffusionskoeffizienten von $D_X \sim 20\,\mathrm{cm^2/s}$ für GaAs/(Al,Ga)As-Mehrfachquantenfilme bei Heliumtemperaturen.[80] Zeitaufgelöste Photolumineszenzmessungen an GaAs-Quantenfilmen durch Heller et al. deuten auf exzitonische Diffusionskoeffizienten zwischen 15 und $80\,\mathrm{cm^2/s}$ hin.[179] Für beide untersuchten Proben ist eine Zunahme der Diffusionsgeschwindigkeit mit steigender Ladungsträgerdichte zu erkennen. Eine solche Abhängigkeit wird im Allgemeinen nicht von einer „einfachen“ oder „reinen“ Teilchendiffusion erwartet und ist somit in Gleichung 2.18 nicht vorgesehen. Der folgende Abschnitt legt verschiedene Gründe dar, welche für das beobachtete Verhalten verantwortlich sein können.

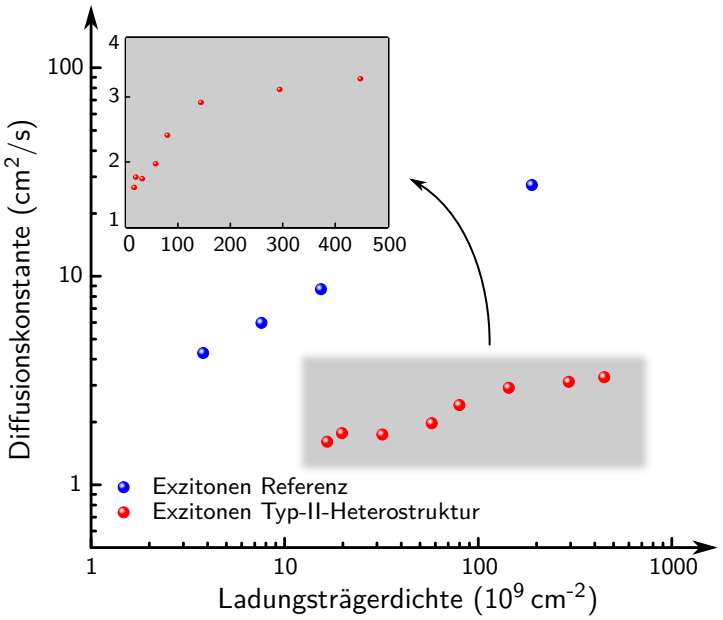

Abbildung 6.10.: Vergleich der Diffusionskonstanten resonant angeregter Exzitonen in der Referenzprobe (blau) und der Typ-II-Heterostruktur (rot). In beiden Fällen steigen die Diffusionskonstanten mit größer werdender Ladungsträgerdichte. Es wird angenommen, dass die Diffusionskonstanten der Exzitonen vergleichsweise niedrig sind und mit steigender Dichte durch Auger-Prozesse und einen mit zunehmender Dichte steigenden Plasmaanteil größer werden.

Eine mögliche Erklärung für diese Beobachtung liefern lokalisierte Exzitonzustände. Im Falle niedriger Temperaturen und Ladungsträgerdichten können sie die Diffusion der Exzitonen innerhalb der Quantenfilme beeinflussen. Lokalisierte Zustände entstehen, da die verschiedenen Schichten innerhalb der Proben üblicherweise nicht vollkommen glatt sind. Genauer gesagt fluktuieren die Schichtdicken innerhalb der Quantenfilme in der Größenordnung einer bis mehrerer Monolagen. Da die Exzitonenergie abhängig von der Schichtdicke ist, ergeben sich unterschiedliche Exzitonenergien. Diese ändern sich von Punkt zu Punkt und sind abhängig davon, an welchem Ort im Quantenfilm das Exziton generiert wird. Aufgrund der fluktuierenden Schichtdicken „sieht“ das Exziton bei der Bewegung durch den Quantenfilm ein zufällig fluktuierendes Potential. Nach Anderson kann sich die Elektronenwellenfunktion in einem perfekten Kristall unendlich ausbreiten.[182] In einem realen Halbleitermaterial hingegen bewirken Unordnungen eine elastische Streuung der Wellenfunktion. Während eine schwache Streuung lediglich die Beweglichkeit des Elektrons einschränkt, kann eine starke Streuung zur Lokalisierung der Wellenfunktion führen. Diese entsteht, da die sich im Kristall ausbreitende Welle mit einer am fluktuierenden Potential in entgegengesetzte Richtung gestreuten Welle destruktiv interferiert. In diesem Fall ist das Exziton lokalisiert.[182] Die Diffusion eines lokalisierten Exzitons ist vergleichsweise klein. Im einfachsten Fall kann sie durch eine „hüpfende“ (engl.: *hopping*) Fortbewegung beschrieben werden. Dabei reicht eine geringe thermische Energie aus, um niedrige Potentialbarrieren zu überwinden und somit in einen anderen Zustand zu tunneln.[182] Im Hinblick auf die vorgestellten Experimente bedeutet dies, dass bei einer niedrigen Ladungsträgerdichte viele der angeregten Exzitonen von lokalisierten Zuständen gefangen werden könnten. Die Exzito-

nen könnten fortan nicht mehr zur Diffusion beitragen, sodass die Diffusion gehemmt und dadurch die Diffusionskonstante verringert werden würde. Mit zunehmender Exzitonendichte würden zwar immer noch Exzitonen durch die lokalisierten Zustände eingefangen, die Mehrheit der Ladungsträger wäre jedoch in der Lage sich frei im Kristall auszubreiten. Folglich wäre ein Anstieg der Diffusionskonstanten mit zunehmender Ladungsträgerdichte erkennbar. Bereits 1985 haben Hegarty und Sturge in GaAs/(Al,Ga)As-Quantenfilmen eine Abnahme des Diffusionskoeffizienten bei niedrigen Dichten mit der Existenz lokalisierter Zustände in Verbindung gebracht.[182] Hierzu führten Hegarty et al. Experimente zur Untersuchung der zweidimensionalen Exzitondiffusion in GaAs/(Al,Ga)As-Quantenfilmen bei 5 K durch. Zur Anregung der Exzitonen wurden verschiedene Anregungspulse eingesetzt. Diese Laserpulse waren spektral innerhalb der inhomogenen Linienbreite der Exzitonresonanz zueinander verschoben. Es wurde festgestellt, dass die Diffusionskonstanten abhängig von der spektralen Lage des Anregepulses innerhalb der inhomogenen Linienbreite sind. Diese Abhängigkeit deutet nach Mott auf eine Trennung der Exzitonen in lokalisierte und nicht-lokalisierte Exzitonen hin. Für lokalisierte Exzitonen fanden sie Diffusionskoeffizienten um $1\,\mathrm{cm^2/s}$.[175] Aufgrund der zusätzlichen Quantenfilme sind Schichtdickenfluktuationen innerhalb der Typ-II-Heterostruktur wahrscheinlicher. Daraus lässt sich schließen, dass auch die Anwesenheit lokalisierter Zustände wahrscheinlicher ist und die Diffusion der Exzitonen womöglich stärker durch diese beeinflusst wird als in der Referenzprobe.

Einen zusätzlichen Beitrag zur Dichteabhängigkeit der Diffusionskonstanten kann die nichtstrahlende Auger-Rekombination leisten. Da Auger-Prozesse mit steigender Ladungsträgerdichte im System zunehmen, gewinnen sie erst bei mittleren und hohen Dichten an Bedeutung. Innerhalb eines Auger-Prozesses wird die Energie bei der Rekombination eines Elektron-Loch-Paars nicht als Photon emittiert, sondern an einen weiteren Partner (Elektron, Loch) abgegeben. Der zusätzliche Ladungsträger wird dadurch in einen energetisch höheren Zustand angehoben. Dies bewirkt ein Aufheizen der Ladungsträgertemperatur, welche durch Streuprozesse auf weitere Ladungsträger verteilt wird. Insgesamt resultiert das Aufheizen der Ladungsträger in einer erhöhten Mobilität und einer gesteigerten Diffusionskonstante.[154]

Eine weitere Beobachtung kann die Dichteabhängigkeit der Diffusionskonstanten erklären: Im Regime hoher Anregungsdichten werden für beide Halbleiterstrukturen kürzere Abklingzeiten von $T_{S,\ \textit{Typ-I}} \sim 55\,\mathrm{ps}$ und $T_{S,\ \textit{Typ-II}} \sim 505\,\mathrm{ps}$ festgestellt. Diese sind mit einer vergleichsweise schnellen Diffusion der angeregten Zustände vom Anregungsort weg verbunden. Vergleicht man die Diffusionskonstanten bei resonanter Anregung (Abbildung 6.10) mit jenen bei nicht-resonanter Anregung (Abbildung 6.11) im niedrigen Dichteregime, fällt auf, dass die Diffusionskonstanten der freien Ladungsträger insbesondere im Fall der Typ-I-Struktur deutlich größer sind als jene der Exzitonen. Es macht den Anschein, als würden sich die Diffusionskonstanten bei resonanter Anregung für hohe Dichten den Diffusionskonstanten bei nicht-resonanter Anregung annähern. Dementsprechend besteht Grund zur Annahme, dass im hohen Dichteregime anstelle von Exzitonen freie Elektronen und Löcher durch den Kristall diffundieren. Diese Beobachtung würde sich durch einen Mott-Übergang erklären lassen. Ab einer kritischen Teilchendichte $N_{\textit{Mott}}$ (Mottdichte) verhindert die mit der Dichte zunehmende Abschirmung der Coulomb-Wechselwirkung die Formation gebundener Elektron-Loch-Paare. Dieser Effekt wird in den Halbleiter-Bloch-Gleichungen (siehe Unterabschnitt 2.2.2) durch den Phasenraumfüllfaktor $(1 - n_{e,\mathbf{k}} - n_{h,\mathbf{k}})$ berücksichtigt. Für hohe Elektron- und Lochdichten

wird der Faktor negativ, sodass sich die vorerst anziehende Coulomb-Wechselwirkung in eine abstoßende Kraft aufgrund des fermionischen Pauli-Prinzips ändert.[36] Auf diese Weise verhindert sie die Existenz gebundener Exzitonen oberhalb der Mottdichte und wandelt infolgedessen das System angeregter Exzitonen in ein System freier Ladungsträger um.[106,183] Für größere Anregungsleistungen würde der Zerfall des Interferenzgitters somit immer mehr durch den Einfluss des Elektron-Loch-Plasmas bestimmt. Diese These wird durch experimentelle Ergebnisse durch Yoon et al. gestützt. In räumlich aufgelösten Anrege-Abfrage-Messungen an einem Mehrfachquantenfilm bestehend aus 21 nm dicken GaAs-Schichten stellten sie einen Anstieg der Diffusion mit wachsender Ladungsträgerdichte im Bereich von $\sim (1\text{-}3) \cdot 10^{11}\,\mathrm{cm}^{-2}$ fest. Daraus schlussfolgerten sie die Anwesenheit freier Elektronen und Löcher in dem vorliegenden Dichteregime. Weitere Messungen, in denen die Dichteabhängigkeit der exzitonischen Linienbreite untersucht wurde, suggerieren die Überlegenheit des exzitonischen Zustands unterhalb von $\sim 1 \cdot 10^{11}\,\mathrm{cm}^{-2}$. Insgesamt deuten die Ergebnisse auf einen Mott-Übergang ab einer Anregungsdichte von $\sim 1 \cdot 10^{11}\,\mathrm{cm}^{-2}$ hin.[154,184] Außerdem schlagen theoretische Berechnungen den folgenden Zusammenhang zwischen der Mottdichte und dem exzitonischen Bohr-Radius im 2D-Fall vor $(N_{Mott})^{1/2} \cdot a_{exc} \sim 0{,}08$, sodass von einer Mott-Dichte $N_{Mott} = 3 \cdot 10^{11}\,\mathrm{cm}^{-2}$ in 2D berichtet wird.[154] Während in den durchgeführten Diffusionsmessungen ein Anstieg der Diffusionskonstanten bei $\sim 80 \cdot 10^{9}\,\mathrm{cm}^{-2}$ beobachtet wird, tritt dieser in den Messungen von Yoon et al. bei etwas höheren Ladungsträgerdichten zwischen $\sim (1\text{-}3) \cdot 10^{11}\,\mathrm{cm}^{-2}$ ein. Die verschiedenen Materialsysteme können beispielsweise ein Grund für unterschiedliche Mottdichten sein. Darüber hinaus können die voneinander abweichenden Mottdichten dadurch erklärt werden, dass die Bestimmung der Ladungsträgerdichte nicht trivial ist. Die in dieser Arbeit angegebenen Ladungsträgerdichten entsprechen durchschnittlichen Ladungsträgerdichten, welche durch die $\mathbf{k}_1$- und $\mathbf{k}_2$-Pulse im Material erzeugt werden. Streng genommen stimmt dies jedoch nicht mit der realen Situation innerhalb der Probe überein. Da durch die Interferenz der Pulse ein Populationsgitter entsteht, ändert sich die Ladungsträgerdichte periodisch in der Probe. Dementsprechend ist die real im Material vorliegende Dichte in den Maxima des Gitters um den Faktor zwei höher, während sie in den Minima verschwindet. Berücksichtigt man bei der Angabe der Ladungsträgerdichte den Faktor zwei, kann man in den hier vorgestellten Messergebnissen einen Anstieg der Diffusionskonstanten ab einer Dichte von $\sim 160 \cdot 10^{9}\,\mathrm{cm}^{-2}$ erkennen, was gut zu den von Yoon et al. berichteten Beobachtungen passt. Es sollte angemerkt werden, dass die Ladungsträgerdichte darüber hinaus aufgrund verschiedener Unsicherheiten bei der Dichtebestimmung nur mit einer gewissen Unsicherheit angegeben werden kann. Nichtsdestotrotz kann unter Berücksichtigung der soeben diskutierten Gründe davon ausgegangen werden, dass der Anstieg der Diffusionskoeffizienten in beiden Messungen in einem ähnlichen Dichtebereich stattfindet, sodass ein Mott-Übergang eine sinnvolle Erklärung für den Anstieg der Diffusion mit zunehmender Exzitonendichte bietet. Wie anhand des Einschubs in Abbildung 6.10 ersichtlich, lässt sich insbesondere im Falle der Typ-II-Struktur ein Mott-Übergang durch einen sprunghaften Anstieg der Diffusionskonstanten in einem Dichtebereich von $N \sim 80 \cdot 10^{9}\,\mathrm{cm}^{-2}$ deutlich erkennen.

Es lässt sich folgendes festhalten: Bei niedrigen Dichten würden in Anwesenheit lokalisierter Zustände sowohl für Exzitonen als auch für das eh-Plasma niedrige Diffusionskonstanten erwartet werden. Der große Unterschied zwischen den Diffusionskonstanten des eh-Plasmas und der Exzitonen bei niedrigen Dichten spricht insbesondere bei der Referenzprobe tendenziell gegen

das Einfangen durch lokalisierte Zustände. Im Falle der Typ-II-Struktur sind die Unterschiede zwischen den Diffusionskoeffizienten weniger stark und lokalisierte Zustände wegen vermehrter Unordnung im Kristallgitter wahrscheinlicher. Insgesamt wird angenommen, dass die Diffusionskonstanten der Exzitonen vergleichsweise niedrig sind und durch den mit zunehmender Dichte steigenden Plasmaanteil zunehmen.

6.3.2. Diffusion freier Elektronen und Löcher

Nachdem die Ausbreitung kalter Exzitonen innerhalb der Quantenfilme untersucht wurde, widmet sich der folgende Abschnitt den Transporteigenschaften hochenergetisch angeregter Ladungsträger. Während Exzitonen nach ihrer Anregung lediglich einen unwesentlichen Impuls besitzen, bewirkt die nicht-resonante Anregung eine Verteilung freier Elektronen und Löcher mit zusätzlicher (Überschuss-)Energie. Aus diesem Grund haben die Ladungsträger ausreichend Energie, um sich schneller im Kristall auszubreiten.

Für die Erklärung der räumlichen Ausdehnung angeregter Elektronen und Löcher wird zunächst der Begriff der *ambipolaren Diffusion* eingeführt. Gebundene Elektronen und Löcher diffundieren als Einheit in Form eines Exzitons durch den Kristall. Im Gegensatz dazu, breiten sich die freien Elektronen und Löcher als unabhängige Teilchen im Quantenfilm aus. Die Diffusion der freien Ladungsträger wird durch unterschiedliche Diffusionskonstanten (i. A. $D_e \neq D_h$) beschrieben. Aufgrund ihrer höheren effektiven Masse und ihres größeren Streuquerschnitts bewegen sich Löcher nach ihrer Generation langsamer. Infolgedessen brauchen Löcher länger, um den Dichtegradienten nach der optischen Anregung auszugleichen. Die deutlich leichteren Elektronen ($\frac{m_e}{m_{hh}} \approx 0{,}15$ für GaAs)[154] hingegen bewegen sich schneller vom Anregungsort weg. Über die Einstein-Relation $D/\mu = k_B T/q$ ist die Beweglichkeit μ der Teilchen mit der Diffusionskonstanten D verbunden.[185] Hierbei beschreibt k_B die Boltzmann-Konstante und q die Ladung des Teilchens. Eine geringe Beweglichkeit der Löcher impliziert somit einen kleinen Diffusionskoeffizienten D_h.[40] Durch die unterschiedlichen Ausbreitungsgeschwindigkeiten von Elektronen und Löchern kommt es zu einem räumlichen Auseinanderlaufen der Ladungsträger. Folglich bildet sich ein elektrisches Feld zwischen den Teilchensystemen aus. Das elektrische Feld wiederum sorgt für eine gekoppelte Diffusion der unterschiedlichen Ladungsträger, indem die langsameren Löcher beschleunigt und die schnelleren Elektronen abgebremst werden. Diesen Effekt bezeichnet man als Dember-Effekt.[40] Im Modell der ambipolaren Diffusion diffundieren die Elektronen und Löcher gemeinsam als Zweikomponentenplasma durch den Kristall, deren Komponenten über die Coulomb-Kräfte miteinander wechselwirken. Die Diffusion von Elektronen und Löchern gleicher Dichten lässt sich durch einen ambipolaren Diffusionskoeffizienten beschreiben $D_{ambi} = \frac{2D_e D_h}{D_e + D_h}$.[186] Dieser wird durch den Transport des langsameren Ladungsträgers dominiert, was zu einer insgesamt langsameren Diffusion führt.

Im Falle der Referenzprobe ist der Abfragepuls um die exzitonische Resonanz des (Ga,In)As-Quantenfilms zentriert, wodurch er den exzitonischen Übergang abfragt. Die Interpretation der Diffusion der Exzitonen bzw. freien Elektronen und Löcher in der Typ-II-Struktur hingegen ist nicht trivial, da in der Typ-II-Probe eine andere Ausgangssituation vorliegt. Hierbei fragt der spektral beschnittene Abfragepuls ebenfalls das Ausbleichen der (Ga,In)As-Resonanz ab. Nach der optischen Anregung tunneln die angeregten Löcher in die für sie niedrigsten Energiezustände innerhalb der Ga(As,Sb)-Quantenfilme. Die Elektronen und Löcher sind so-

mit in verschiedenen Quantenfilmen lokalisiert. Aus diesem Grund bilden sich Exzitonen bzw. freie Elektron-Loch-Paare über die Grenzfläche hinweg aus. Es ist somit nicht von vornherein klar, wessen Transporteigenschaften die gemessene Diffusion widerspiegelt. Im (Ga,In)As-Quantenfilm sollten sich kurz nach der Anregung lediglich Elektronen im Leitungsband befinden, während sich alle Löcher im Valenzband im Ga(As,Sb)-Quantenfilm aufhalten sollten. Es ist somit zu erwarten, dass die Elektronen einen tendenziell größeren Einfluss auf das Ausbleichen der (Ga,In)As-Resonanz haben als die Löcher im benachbarten Quantenfilm. Unter diesen Umständen würde die beobachtete Ladungsträgerausbreitung möglicherweise auf die unipolare Diffusionskonstante der Elektronen schließen lassen. Unter der Annahme eines gekoppelten Quantenfilmsystems ist jedoch davon auszugehen, dass auch Löcher im Ga(As,Sb)-Quantenfilm zum Ausbleichen der Resonanz beitragen können. Insgesamt ist es sehr wahrscheinlich, dass die Bewegung der Elektronen in den (Ga,In)As-Quantenfilmen mit den langsameren Löchern der benachbarten Schichten gekoppelt ist und die Ladungsträgerexpansion innerhalb der Typ-II-Struktur durch eine gemeinsame ambipolare Diffusionskonstante D_{ambi} beschrieben werden kann. In diesem Fall sollte der tendenziell stärkere Beitrag der Elektronen keine Auswirkungen auf das Messergebnis haben.

Die aus den Messdaten abgeleiteten Zerfallszeiten T_S können durch Gleichung 6.1 in Diffusionskonstanten überführt werden. Abbildung 6.11 stellt die Diffusionskonstanten der nichtresonant angeregten freien Elektronen und Löcher für beide Halbleiterheterostrukturen dar. Wie sich bereits aus den Zerfallszeiten aus Abbildung 6.5 schließen lässt, ist die Diffusion des EHP der Referenzprobe (dunkelviolette Kreise) relativ unabhängig von der im System vorliegenden Teilchendichte. Die Werte der Diffusionskonstanten liegen bei etwa 70 cm^2/s und sind damit um mindestens das zehnfache größer als die Diffusionskonstanten der Exzitonen im niedrigen Dichtebereich. Dieser Trend wird auch für die Typ-II-Heterostruktur beobachtet und in einem späteren Unterabschnitt diskutiert.

Grundsätzlich wäre es möglich anzunehmen, dass die Diffusion der freien Ladungsträger durch eine Transformation in gebundene Elektron-Loch-Paare beeinflusst werden könnte. Dies würde bedeuten, dass die Diffusionskoeffizienten nicht die Diffusion der freien Elektronen und Löcher beschreiben. Vielmehr würde man durch die transienten Gitterexperimente den lateralen Transport einer Superposition von freien und gebundenen Elektron-Loch-Paaren beobachten. Die Formationszeit der Exzitonen nach der Anregung eines Elektron-Loch-Plasmas liegt im Bereich mehrerer hundert Pikosekunden.[187] Außerdem ergeben THz-Absorptionsmessungen an (Ga,In)As-Quantenfilmen, dass bei nicht-resonanter Anregung innerhalb der ersten 10 ps keine nennenswerte Anzahl an Exzitonen vorliegt. Ein Aufbau der Exzitonpopulation kann auf einer Zeitskala von mehreren hundert Pikosekunden festgestellt werden.[19] Diese Beobachtung wird durch theoretische Berechnungen gestützt, in welchen davon berichtet wird, dass etwa eine Nanosekunde nach der optischen Anregung lediglich ein Bruchteil der Ladungsträger als Exzitonen im System vorliegt.[36] Es wird somit davon ausgegangen, dass Exzitonen und freie Elektronen und Löcher zwar in dem untersuchten Zeitbereich koexistieren, jedoch mehrheitlich freie eh-Paare in den Quantenfilmen vorliegen und die beobachtete Diffusionsdynamik dominieren.

Ähnlich wie im Fall der resonanten Anregung wird auch im hochenergetisch angeregten Fall der Typ-II-Probe ein dichteabhängiger Diffusionskoeffizient beobachtet. Es existieren mehrere Gründe, die den Anstieg der Ladungsträgermobilität mit steigender Ladungsträgerdichte in

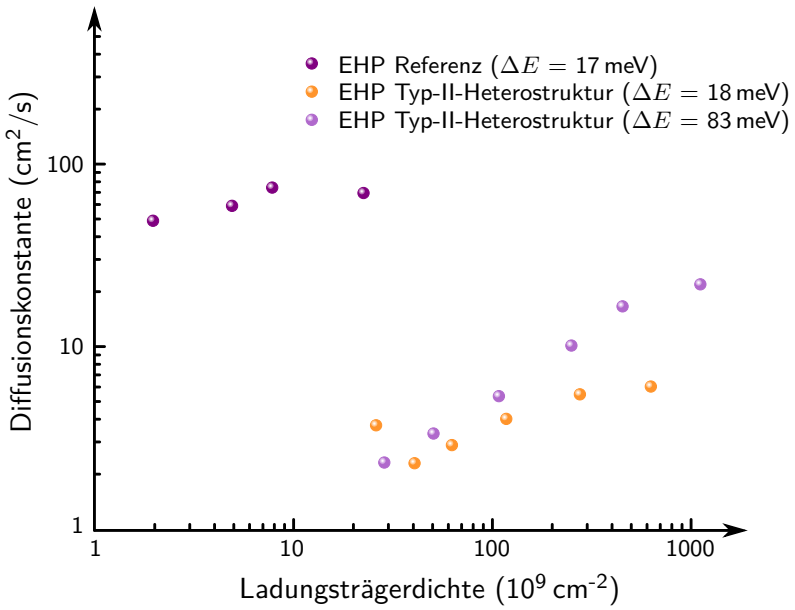

Abbildung 6.11.: Vergleich der Diffusionskonstanten nicht-resonant angeregter Elektronen und Löcher in der Referenzprobe (dunkelviolett) und der Typ-II-Heterostruktur (orange, hellviolett) mit unterschiedlichen Überschussenergien. Während die Diffusionskoeffizienten der Referenzstruktur keine bedeutende Dichteabhängigkeit zeigen, steigen die Diffusionskoeffizienten für die Typ-II-Probe mit zunehmender Teilchenanzahl. Ursächlich für die beobachtete Dichteabhängigkeit könnte ein ballistischer Phononwind sein.

der Typ-II-Struktur erklären könnten. Diese werden in den nächsten Abschnitten vorgestellt. Grundsätzlich können die im Folgenden beschriebenen Effekte ebenfalls in der Referenzprobe stattfinden und Einfluss auf die Ladungsträgerdiffusion nehmen. Es ist jedoch möglich, dass sie wegen der schnellen Diffusion der Ladungsträger in der Typ-I-Struktur keinen relevanten Beitrag leisten.

Einer der möglichen Ursachen ist die Abschirmung geladener Verunreinigungen. Geladene Verunreinigungen können in Quantenfilmen lokalisiert oder an deren Grenzflächen angereichert sein.[111] Dort agieren sie als geladene Streuzentren und führen somit zu einer reduzierten Ladungsträgerbeweglichkeit. Steigende Anregungsleistungen und wachsende Teilchenanzahlen führen zu einer Abschirmung der geladenen Streuzentren. Folglich wird die Ladungsträgermobilität bei hohen Dichten weniger von den Streuzentren gehemmt und die Ladungsträger können sich schneller im Quantenfilm ausbreiten, was zu einer größeren Diffusionskonstante führt.

Darüber hinaus wird mit zunehmender Anregungsleistung eine größere Anzahl von Elektronen und Löchern im Quantenfilm generiert. Aufgrund ihres fermionischen Charakters folgen sie der Fermi-Dirac-Verteilung. Diese besagt, dass jeder quantenmechanische Zustand eines Systems von nur einem Fermion besetzt werden kann. Mit größerer Ladungsträgeranzahl werden die niederenergetischen Zustände somit nacheinander aufgefüllt. Aus diesem Grund werden zusätzliche Fermionen gezwungen, Zustände immer höherer Energien zu besetzen. Diese

zusätzliche Energie verhilft den Ladungsträgern sich über weitere Wegstrecken innerhalb des Kristalls fortzubewegen. Daraus kann mit wachsender Dichte ein ansteigender Diffusionskoeffizient resultieren.

Ein weiterer Grund, der zur Dichteabhängigkeit des Diffusionskoeffizienten beitragen könnte, ist die Anwesenheit eines ballistischen Phononwinds. Es wird berichtet, dass der ballistische Phononwind einen bedeutsamen Transportmechanismus für Elektron-Loch-Quantentröpfchen in Germanium und Silizium darstellt.[188] Smith et al. berichten von mit der Ladungsträgerdichte ansteigenden Diffusionskoeffizienten in einem GaAs/(Al,Ga)As-Mehrfachquantenfilm bei nichtresonanter Anregung.[189] Einen mit steigender Anregungsleistung zunehmenden Diffusionskoeffizienten begründet Smith mit einem ballistischen Phononwind, der die Ladungsträger vom Anregungsort wegtreibt. Dieser entsteht aufgrund der Thermalisierung der hochenergetisch angeregten Ladungsträger. Während der Thermalisierung emittieren die angeregten Ladungsträger Phononen, um in niederenergetische Zustände relaxieren zu können. Dabei erzeugen sie akustische Phononen, die nicht im thermodynamischen Gleichgewicht mit dem Kristallgitter sind. Aufgrund der lokalisierten Anregung sind auch die akustischen Phononen räumlich lokalisiert. Dies führt zu einem nach außen gerichteten Phononfluss, um den entstandenen Phonongradienten auszugleichen. Auf ihrem Weg werden die gerichteten Phononen von den Ladungsträgern reabsorbiert und anschließend in eine zufällige Richtung reemittiert. Insgesamt führt der Phononwind somit zu einem Impulstransfer zwischen Phononen und Ladungsträgern, sodass die Ladungsträger schneller vom Anregungsort weg diffundieren.[189] Für einen ballistischen Phonontransport muss eine niedrige Gittertemperatur vorliegen. Nur in diesem Fall ist die mittlere freie Weglänge der Phononen ausreichend groß, um den Anregungsort zu überwinden. Unter der Annahme, dass die Kühlfingertemperatur während der Messungen etwa der Gittertemperatur entspricht ($T_{Kühlfinger} \sim 6\,\mathrm{K}$), liegt die mittlere freie Weglänge der Phononen abhängig von der Konzentration der Störstellen in einem Bereich von $\geq 50\,\mu\mathrm{m}$.[189] Mit einer Gitterkonstante von $\sim 4\,\mu\mathrm{m}$ und einer Gittertemperatur von $\sim 6\,\mathrm{K}$ sind die Voraussetzungen eines ballistischen Phononwinds in den Messungen erfüllt. Besonders die stark ausgeprägte Dichteabhängigkeit der Diffusionskoeffizienten in der Typ-II-Probe deutet darauf hin, dass ein ballistischer Phononwind für die Diffusion der Ladungsträger innerhalb der Typ-II-Heterostruktur eine bedeutende Rolle spielen könnte. Bei der Referenzprobe hingegen sind die gemessenen Zerfallszeiten so niedrig, dass ein vergleichsweise langsamerer Phononwind keinen großen Beitrag zur Ladungsträgerdiffusion leisten kann. Darüber hinaus ergeben die Untersuchungen an der Typ-II-Heterostruktur, dass die Diffusionskonstanten bei nicht-resonanter CT-Anregung (orange Kreise in Abbildung 6.11) insbesondere bei hohen Dichten um bis zu dreimal kleiner sind als für Elektronen und Löcher mit höheren Überschussenergien (hellviolette Kreise). Eine höhere Diffusionskonstante bei größerer Überschussenergie ist ebenso ein Hinweis auf einen ballistischen Phononwind innerhalb der Halbleiterprobe. Eine höhere Überschussenergie und die schnelle Emission von LO-Phononen führen zu einer größeren Anzahl an Phononen im Kristall. Dies wiederum bewirkt eine größere Ausdehnungsgeschwindigkeit der Ladungsträger und schlussendlich einen größeren Diffusionskoeffizienten bei gleicher Anregungsdichte. Insgesamt liegen die Werte des Diffusionskoeffizienten bei nicht-resonanter CT-Anregung somit zwischen denen der höherenergetischen Anregung eines EHP und der resonanten Anregung von Exzitonen.

6.3.3. Transporteigenschaften freier und gebundener Elektron-Loch-Paare

Nachdem die Diffusion der Exzitonen und freien Elektronen und Löcher in den unterschiedlichen Halbleiterproben diskutiert wurde, sollen im Folgenden die diffusiven Transporteigenschaften beider Ladungsträgerarten miteinander verglichen werden. Dazu sind die Diffusionskonstanten für die Typ-I- und Typ-II-Heterostruktur in Abbildung 6.12 und 6.13 gegen die jeweilige Ladungsträgerdichte aufgetragen. Auf den ersten Blick ist zu erkennen, dass die Diffusionskonstanten der resonant angeregten Exzitonen (blau, rot) signifikant kleiner als die Diffusionskonstanten der freien Elektron-Loch-Paare (orange, violett) sind. Unabhängig von der Anregungsleistung diffundieren die freien Elektronen und Löcher schneller durch die Halbleiterkristalle. Im Falle der Typ-II-Probe liegt der Faktor $\frac{D_{\textit{nicht-resonant}}}{D_{\textit{resonant}}}$ bei einer mittleren Dichte lediglich bei ~ 2. Dies ist ein Hinweis darauf, dass auch im Falle der Typ-II-Heterostruktur eine ambipolare Diffusion gemessen wird. Wäre die laterale Ausdehnung der Ladungsträger durch Elektronen dominiert, müssten sich aufgrund der hohen Mobilitäten der leichten Elektronen wesentlich höhere Diffusionskonstanten ergeben.

Über die Einstein-Relation ist die Diffusionskonstante D nicht nur mit der Beweglichkeit der Ladungsträger, sondern auch mit der mittleren Streuzeit zwischen zwei Stößen τ verknüpft:

$$D = \frac{\mu \cdot k_B \cdot T}{q} = \frac{k_B \cdot T \cdot \tau}{m^*} \tag{6.2}$$

Insbesondere Streuprozesse mit akustischen Phononen (Abk.: AC-Streuung) können im niedrigen bis mittleren Temperaturbereich der dominierende Faktor für die Reduzierung der Streuzeit τ und damit der Diffusionskonstanten der Ladungsträger sein.[181] Modellrechnungen zeigen, dass die Streuung mit akustischen Phononen stärkeren Einfluss auf die Beweglichkeit der Exzitonen nimmt als es für eine ambipolare Diffusion freier Elektronen und Löcher der Fall ist.[181] Unter der Annahme reiner AC-Streuung besitzt das gekoppelte EHP eine um eine Größenordnung höhere Beweglichkeit als Exzitonen.[181] Dies passt zu den um bis zu einem Faktor zehn größeren Diffusionskonstanten des eh-Plasmas im Vergleich zu gebundenen Elektron-Loch-Paaren in der Referenzprobe. Nichtsdestotrotz liegen im Falle nicht-resonanter Anregung aufgrund der Ladungsträgerrelaxation deutlich mehr AC-Phononen im Kristall vor, sodass obgleich der schwächeren Kopplung zwischen AC-Phononen und dem EHP die hohe Anzahl an Phononen wiederum zu einer Reduzierung der Diffusionskoeffizienten führen müsste. Infolgedessen erscheint es unwahrscheinlich, dass AC-Streuung insbesondere bei der Typ-I-Probe die alleinige Ursache für die großen Unterschiede in den Diffusionskonstanten ist. Neben Streuung mit akustischen Phononen können auch Streuprozesse mit optischen Phononen oder Fluktuationen der Barriereschichten (Abk: BAL-Streuung) die Diffusion der Teilchen limitieren. Für hohe Temperaturen ($T \gtrsim 100\,\mathrm{K}$) wird die Ladungsträgermobilität hauptsächlich durch die Streuung mit polaren optischen (Abk.: PO) Phononen begrenzt.[90] Da die Messungen bei einer Temperatur von $T_{\textit{Kühlfinger}} = 6\,\mathrm{K}$ durchgeführt werden, spielen Streuprozesse mit optischen Phononen vermutlich nur eine untergeordnete bis gar keine Rolle. Unordnung innerhalb der Barriere führt zu einem zusätzlich fluktuierenden Potential, an welchem die Ladungsträger ebenfalls gestreut werden können. Dieser Streumechanismus ist abhängig von der Breite der jeweiligen Quantenfilme, da die Wellenfunktionen der Elektronen und Löcher je nach Barrierenhöhe und Quantenfilmbreite mehr oder weniger in die

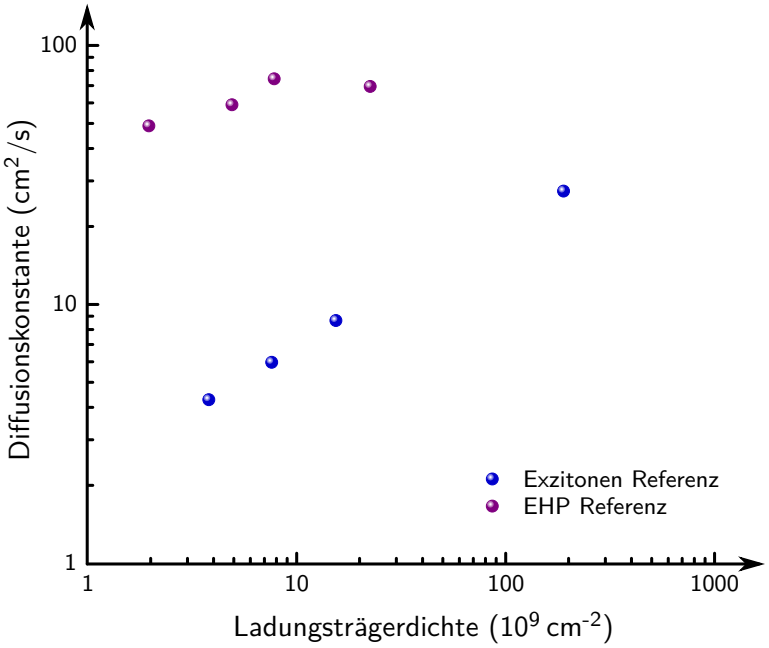

Abbildung 6.12.: Vergleich der Diffusionskonstanten bei resonanter (blau) und nicht-resonanter Anregung (violett) der Referenzprobe. Die Diffusionskonstanten der freien Ladungsträger sind um ein Vielfaches größer als jene der regulären Exzitonen.

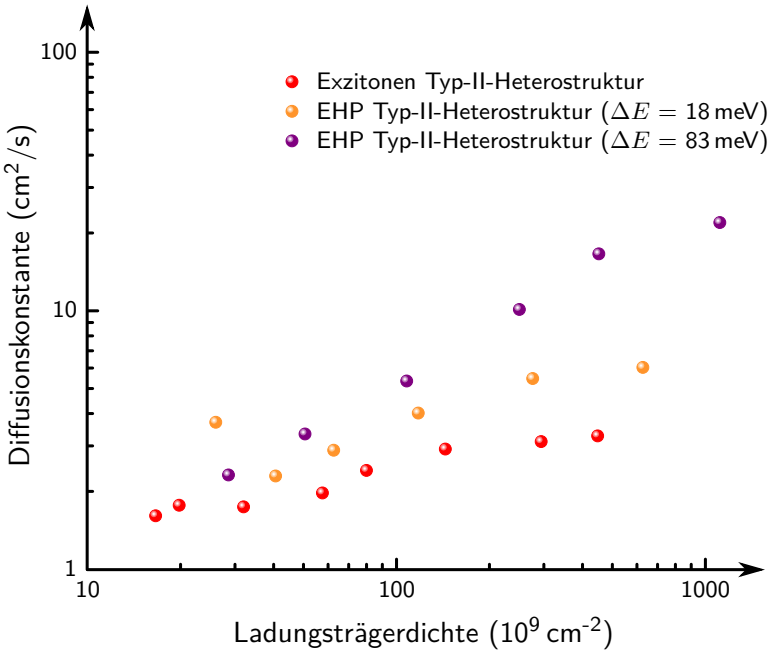

Abbildung 6.13.: Vergleich der Diffusionskonstanten bei resonanter (rot) und nicht-resonanter Anregung (orange, violett) der Typ-II-Struktur. Die Messdaten zeigen, dass sich die freien Elektronen und Löcher tendenziell schneller innerhalb der Quantenfilme ausbreiten als die räumlich separierten CT-Exzitonen.

Barriereschicht hineinragen. Infolgedessen gewinnt die Wechselwirkung mit der Barriereschicht besonders für kleine Quantenfilme ($L_{(Ga,In)As} = 7{,}7\,nm$) an Bedeutung. Obwohl Modellrechnungen bezüglich der BAL-Streuung von Exzitonen nicht bekannt sind, erwarten Hillmer et al., dass die exzitonischen BAL-Mobilitäten kleiner sind als die BAL-Mobilitäten des ambipolaren Elektron-Loch-Systems.[111] Darüber hinaus konnten Hillmer et al. zeigen, dass für kleine Quantenfilmbreiten ($L < 8\,nm$) Streuprozesse in den Barriereschichten die Exzitonmobilität in einem Temperaturbereich zwischen 70 K und 150 K bestimmen.[181] Die Beobachtungen deuten insgesamt auf eine reduzierte Streuzeit für Exzitonen hin und passen somit zu den Ergebnissen der VWM-Experimente. Nichtsdestotrotz liegt der Temperaturbereich für effiziente PO- und BAL-Streuung oberhalb von 70 K, weshalb diese Streumechanismen im Rahmen der Diffusionsexperimente bei einer Kristalltemperatur von 6 K keinen dominierenden Beitrag zur Mobilitätsbegrenzung der Ladungsträger liefern sollten.

Ein weiterer Grund für die schnellere Diffusion des EHP stellt die nicht-resonante Anregung der Ladungsträger dar. Eine nicht-resonante Anregung erzeugt eine Verteilung heißer Ladungsträger, welche eine Überschussenergie $\Delta E < 100\,meV$ besitzen. Es ist bekannt, dass die Anregung mit Photonenergien oberhalb der Bandlücke zu hohen Ladungsträgertemperaturen oberhalb der Gittertemperatur führt. Zeitaufgelöste Photolumineszenzmessungen an GaAs/(Al,Ga)As-Quantenfilmen zeigen, dass die Ladungsträgertemperatur bis auf 150 K ansteigen kann, wobei die Gittertemperatur im Bereich flüssiger Heliumtemperaturen liegt.[154,190] Durch die hohe Temperatur und Energie können sich die Ladungsträger schneller bewegen als die resonant angeregten Exzitonen. Sowohl durch die optische Anregung selbst als auch durch Wechselwirkungen mit Phononen oder Coulomb-Streuung verteilen sich die Ladungsträger in Zustände $\mathbf{k} \neq 0$, sodass sie durch ihre höhere Geschwindigkeit größere Wegstrecken innerhalb des Kristalls zurücklegen. Ähnliche Beobachtungen wurden bereits an GaAs-Quantenfilmen gemacht.[154] Auch in diesem Fall führen höhere Pumpenergien zu einer schnelleren Diffusion der Ladungsträger. Neben dem Größenunterschied der Diffusionskoeffizienten freier und gebundener Elektron-Loch-Paare können unterschiedlich hohe Anregungsenergien ebenfalls die verschieden großen Diffusionskonstanten bei nicht-resonanter Anregung und nicht-resonanter CT-Anregung der Typ-II-Probe erklären (siehe Abbildung 6.13). Die verschiedenen Überschussenergien ΔE der Photonen können zu Ladungsträgern mit unterschiedlichen kinetischen Energien und Ladungsträgertemperaturen führen. Dadurch, dass die Elektronen und Löcher mit höherer Ladungsträgertemperatur (violette Kreise) größere Beweglichkeiten besitzen, können sie sich vergleichsweise schneller vom Anregungsort weg bewegen als die mit einer ΔE von 18 meV angeregten Elektronen und Löcher (orange Kreise).

Darüber hinaus kann ein bei nicht-resonanter Anregung auftretender Phononwind die Diffusion des eh-Plasmas beeinflussen und zu höheren Diffusionskoeffizienten führen. Außerdem werden höherenergetische Ladungsträger weniger durch Grenzflächenrauigkeiten beeinflusst, weshalb sie eine vergleichsweise höhere Mobilität und eine längere Streuzeit besitzen. Die freien Elektronen und Löcher breiten sich somit schneller vom Anregungsort aus als gebundene Elektron-Loch-Paare.

Neben der unterschiedlich schnellen diffusiven Ladungsträgerausbreitung der Exzitonen und des eh-Plasmas haben die Ergebnisse der VWM-Messungen an der Referenzprobe und der Typ-II-Heterostruktur eine Gemeinsamkeit: Die Exzitonen und das EHP in der Typ-II-Probe sowie die resonant angeregten Ladungsträger der Referenzprobe zeigen eine mit zunehmen-

der Teilchendichte ansteigende Diffusionskonstante. Obwohl die Ergebnisse darauf hindeuten, dass im Falle der nicht-resonanten Anregung der Referenzprobe ein relativ konstanter Koeffizient vorliegt, kann eine Dichteabhängigkeit des Diffusionskoeffizienten aufgrund des kleineren untersuchten Dichtebereichs ($< 23 \cdot 10^9\,\mathrm{cm}^{-2}$) grundsätzlich nicht ausgeschlossen werden. Es sei darauf hingewiesen, dass im Gegensatz zu den hier beschriebenen Ergebnissen zeitaufgelöste Photolumineszenzmessungen an GaAs/(Al,Ga)As-Quantenfilmen in einem ähnlichen Dichtebereich eine Abnahme des Diffusionskoeffizienten mit steigender Ladungsträgerdichte aufzeigen.[191] Die Autoren argumentieren, dass die mit wachsender Dichte ansteigende Streuwahrscheinlichkeit zwischen den einzelnen Ladungsträgern zu einer reduzierten Diffusionskonstante führt. Generell ergeben die Experimente von Akiyama et al. an den untersuchten Proben im Vergleich zu den hier beschriebenen Messungen höhere Diffusionskonstanten. Größere Diffusionskoeffizienten deuten darauf hin, dass die bisher diskutierten Streuprozesse in den untersuchten GaAs/(Al,Ga)As-Quantenfilmen keinen dominierenden Beitrag zur Begrenzung der Ladungsträgerausbreitung leisten und dementsprechend von hochreinen Proben ausgegangen werden kann. In hochreinen Proben wiederum kann die Ladungsträgerstreuung effektiv zur Limitierung der Ladungsträgerbeweglichkeit und damit der Diffusionskonstanten beitragen. Da dieses Verhalten in den durchgeführten VWM-Messungen weder für Exzitonen noch für freie Elektronen und Löcher beobachtet wird, besteht Grund zur Annahme, dass Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung in den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben eine untergeordnete Rolle spielt und andere Effekte dominieren. Nichtsdestotrotz können Streuprozesse zwischen Ladungsträgern die Ursache dafür sein, dass die Diffusionskoeffizienten mit größer werdender Teilchendichte immer langsamer ansteigen.

6.3.4. Einfluss interner Grenzflächen

In den letzten Abschnitten dieser Arbeit werden die Unterschiede der Transporteigenschaften verschiedener Ladungsträger innerhalb der untersuchten Materialsysteme diskutiert. Es zeigt sich, dass sich der dichteabhängige Diffusionskoeffizient im resonant angeregten Fall möglicherweise auf die Anwesenheit lokalisierter Zustände, durch Aufwärmung aufgrund nichtstrahlender Rekombinationsprozesse und einen Mott-Übergang ab einer kritischen Teilchendichte zurückführen lässt. Die gleiche Beobachtung eines dichteabhängigen Diffusionskoeffizienten lässt sich für die energiereicheren freien Elektronen und Löcher beispielsweise durch eine zusätzlich wirkende Kraft aufgrund eines Phononwinds begründen.

Ein weiterer bisher noch nicht thematisierter Aspekt ist der signifikante Größenunterschied der Diffusionskonstanten zwischen der Typ-I- und Typ-II-Heterostruktur. Intuitiv könnte man zunächst erwarten, dass Elektronen und Löcher in der Typ-II-Struktur weniger stark gekoppelt sind, da sie sich in unterschiedlichen Quantenfilmen aufhalten. Durch die Ladungsträgerseparation sind sie weiter voneinander entfernt als in den (Ga,In)As-Quantenfilmen der Referenzprobe. Insgesamt könnte man somit vermuten, dass sich die einzelnen Ladungsträger ungehemmter durch den Kristall bewegen können. Demnach würde man höhere Diffusionskonstanten für die Ladungsträger innerhalb der Typ-II-Struktur erwarten. Vergleicht man die Diffusionskonstanten in Abbildung 6.10 und Abbildung 6.11 wird jedoch deutlich, dass die Messungen genau das gegenteilige Verhalten zeigen.

Um die Unterschiede in der zweidimensionalen Ladungsträgerausbreitung innerhalb der un-

tersuchten Proben eingehender analysieren zu können, müssen die inhärenten (strukturellen) Eigenschaften der Halbleiterstrukturen berücksichtigt werden. Die Typ-II-Probe besitzt neben (Ga,In)As-Quantenfilmen zusätzliche Ga(As,Sb)-Schichten, welche über GaAs-Barrieren miteinander verbunden sind. Aufgrund der zusätzlichen Materialkomponente steigt die Wahrscheinlichkeit für Verunreinigungen und Schichtdickenfluktuationen. Diese Unordnung wiederum bildet ein zusätzliches Streupotential, welches die Transporteigenschaften der Ladungsträger beeinflusst. Darüber hinaus können sich geladene Verunreinigungen an der Grenzfläche zwischen den Quantenfilmen anhaften und somit zur Ladungsträgerstreuung beitragen.[111,192] Der strukturelle Aufbau der Typ-II-Struktur lässt somit vermuten, dass innerhalb dieser Probe potentiell mehr Verunreinigungen und Dickenvariationen vorliegen. Diese Vermutung wird durch die Analyse der exzitonischen Linienbreiten in den Absorptionsspektren der Typ-I- und Typ-II-Heterostruktur unterstützt. Sowohl die (Ga,In)As-Resonanz der Referenzprobe als auch die CTX-Resonanz sind durch eine inhomogene Linienverbreiterung dominiert. Ein Vergleich zeigt, dass die inhomogene Linienverbreiterung der CTX-Resonanz etwa um einen Faktor drei größer ist als die inhomogene Verbreiterung des exzitonischen Übergangs in der Referenzprobe. Dies lässt vermuten, dass in der Typ-II-Probe ein größeres Ausmaß an Verunreinigungen vorliegt. Die gleichen Rückschlüsse lassen die Ergebnisse der Dephasierungsmessungen aus Kapitel 5 zu: Die Zerfallszeiten T_D der CTX-Polarisation sind bei niedrigen Anregungsleistungen etwa viermal kleiner als die Abklingzeiten der regulären Exzitonpolarisation in der Referenzprobe. Einflüsse durch EID sollten im niedrigen Dichteregime keine dominante Rolle spielen. Folglich wird insgesamt davon ausgegangen, dass ein vermehrtes Ausmaß an Streuzentren innerhalb der Typ-II-Heterostruktur vorliegt.

Außerdem gewinnt im Falle niedriger Temperaturen und schmaler Quantenfilme der Einfluss der Grenzflächenrauigkeiten (engl.: *interface roughness*, Abk.: IFR) an zentraler Bedeutung. Es wird sowohl theoretisch berichtet als auch experimentell bestätigt, dass die IFR-Streuung die Ladungsträgermobilität in 2D-Strukturen stark reduziert.[91,192,193,194,195] Generell wird eine signifikante Reduktion der Ladungsträgerbeweglichkeit mit abnehmender Quantenfilmbreite beobachtet.[90,192,195] Insgesamt wird angenommen, dass die Streuung mit Grenzflächenunebenheiten maßgeblich zur Begrenzung der Ladungsträgermobilitäten in beiden untersuchten Halbleiterproben beiträgt. Die Ergebnisse deuten darauf hin, dass Grenzflächenunebenheiten innerhalb der Typ-II Struktur einen stärkeren Einfluss auf die Ladungsträgerexpansion nehmen als es in der Referenzprobe der Fall ist. Dieser Umstand lässt sich zum einen damit begründen, dass die zusätzlichen Materialien innerhalb der Typ-II-Probe vermehrt zu Grenzflächenfluktuationen und einer größeren Unordnung im Kristall führen, welche die Ladungsträgermobilität einschränken. Ein weiterer Grund ist die räumlich indirekte Bandstruktur der Probe. Während die Wellenfunktionen der Ladungsträger in der Typ-I-Struktur überwiegend mittig im Quantenfilm lokalisiert sind und die Ladungsträger deshalb weniger mit den Grenzflächen wechselwirken, ragen die Wellenfunktionen der Ladungsträger in der Typ-II-Struktur weiter in die innere Grenzfläche hinein (siehe Abbildung 2.2). Aus diesem Grund ist die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Ladungsträger in der Typ-II-Heterostruktur zur inneren Grenzfläche hin verschoben. Unter diesen Umständen halten sich die Ladungsträger überwiegend an der internen Grenzfläche auf, weshalb die räumlich separierten Ladungsträger viel stärker von (Unebenheiten) der Grenzfläche beeinflusst werden als die regulären 1s-Exzitonen der Referenzprobe. Die aufgrund der IFR verminderte Mobilität der Exzitonen und freien Ladungsträger führt dementsprechend zu

stark reduzierten Diffusionskoeffizienten in der Typ-II-Struktur. Außerdem könnte die Ladungsträgerseparation die Beweglichkeit zusätzlich limitieren. Die Ladungsträgertrennung verursacht ein elektrisches Feld innerhalb der Probe, welches sich senkrecht zur Quantenfilmebene ausrichtet. Dieses Feld könnte schließlich dazu führen, dass die Ladungsträger näher an die Grenzfläche getrieben werden. Bewegen sich die einzelnen Ladungsträger nach ihrer Anregung parallel zur Grenzfläche, sind sie den mikroskopischen Unebenheiten dementsprechend stärker ausgesetzt. Es wäre somit denkbar, dass das aufgrund der Separation der Ladungsträger entstehende Feld ebenfalls eine vermehrte Streuung an der Grenzfläche bewirkt.

Ein weiterer Faktor, der die Mobilität der Ladungsträger beeinflusst, ist die laterale Ausdehnung X der Schichtdickenfluktuationen. Berechnungen zeigen, dass die Ladungsträgerbeweglichkeit zweidimensionaler Elektronen in GaAs/(Al,Ga)As-Quantenfilmen abhängig von X um bis zu eine Größenordnung variieren kann.[193] Da beide Halbleiterproben aus unterschiedlichen Quantenfilmen bestehen, könnten deren Grenzflächen unterschiedlich ausgedehnte Dickenvariationen besitzen. Infolgedessen könnten unterschiedlich ausgedehnte Fluktuationen innerhalb der Proben dazu führen, dass die Mobilität der CT-Ladungsträger und damit auch die zugehörigen Diffusionskonstanten kleiner sind.

7

Zusammenfassung

Die optischen Eigenschaften eines Halbleitermaterials sind von zentraler Bedeutung für die Anwendung halbleiterbasierter Geräte. Aus diesem Anlass beschäftigt sich diese Dissertation mit der spektroskopischen Untersuchung physikalischer Prozesse, die in Halbleiterstrukturen nach einer optischen Anregung stattfinden. Hierbei erfolgt die optische Anregung durch einen Verstärkerlaser, welcher zeitlich kurze Pulse mit Pulsdauern im Bereich von $\leq 100\,\mathrm{fs}$ generiert. In Anbetracht dessen, dass die optoelektronischen Eigenschaften eines Halbleiterbauelements von Exzitonen beeinflusst werden, wird insbesondere die kohärente Dynamik verschiedener Exzitonpolarisationen sowie die Ausbreitung optisch induzierter Exzitonen in lateralen Halbleiterquantenfilmstrukturen untersucht. Im Hinblick auf die fortschreitende Miniaturisierung gewinnen die physikalischen Effekte an internen Grenzflächen zunehmend an Bedeutung. Deshalb soll diese Arbeit zu einem tiefergehenden Verständnis der Auswirkung interner Grenzflächen auf die angeregten Ladungsträger und damit auf die optischen Eigenschaften einer Halbleiterstruktur beitragen. Da der Ergebnisteil dieser Arbeit in zwei Kapitel untergliedert ist, werden die Ergebnisse im Folgenden in getrennten Abschnitten zusammengefasst.

Dephasierung in Quantenfilmen

Der erste Abschnitt des Kapitel 5 beschäftigt sich mit der kohärenten Dynamik einer reinen CTX-Polarisation, die im Rahmen dieser Arbeit erstmals untersucht wird. Bei niedrigen Anregungsdichten und Heliumtemperaturen ergibt die Vier-Wellen-Mischung für III-V-Halbleiter typische kohärente Lebensdauern im Pikosekundenbereich. In diesem Dichtebereich ist die Dephasierung hauptsächlich durch Phononstreuung und Streuung mit Unordnung im Kristall bestimmt. Es wird festgestellt, dass die Kohärenz der CTX-Polarisation etwa vier mal schneller verloren geht als die Kohärenz einer regulären Exzitonpolarisation in der aus (Ga,In)As-Quantenfilmen aufgebauten Referenzprobe ($T_{2,\,\mathit{Referenz}} = 15{,}2\,\mathrm{ps}$, $T_{2,\,\mathit{Typ\text{-}II}} = 4\,\mathrm{ps}$). Da die Wellenfunktion des CT-Exzitons über innere Grenzflächen ausgedehnt ist, wird der schnellere Zerfall insbesondere auf vermehrt auftretende Streuprozesse an den inneren Grenzflächen zurückgeführt. Die VWM-Ergebnisse lassen somit die Schlussfolgerung zu, dass interne Grenzflächen einen großen Einfluss auf die Dephasierung der exzitonischen Polarisationen haben. Neben der kohärenten Dynamik der CT-Exzitonpolarisation wird zusätzlich die Dephasierung der

1s-Exzitonpolarisationen der räumlich direkten Übergänge innerhalb der Typ-II-Heterostruktur untersucht. Es stellt sich heraus, dass die 1s-Exzitonpolarisationen bereits innerhalb der ersten $\sim$ 100 fs zerfallen. Ursache für das ultraschnelle Abklingen der makroskopischen Polarisationen sind höchstwahrscheinlich Relaxationsprozesse in energetisch niedrigere Zustände, welche innerhalb weniger zehn bis hundert Femtosekunden stattfindenden.

Da die Dephasierungszeit mit der homogenen Linienbreite eines optischen Übergangs verknüpft ist, können die aus den VWM-Messungen und den Absorptionsspektren abgeleiteten Dephasierungszeiten verglichen werden. Es zeigt sich, dass in (stark) inhomogen verbreiterten Systemen valide Aussagen über die Dephasierungszeit lediglich durch die nicht-lineare Methode des Vier-Wellen-Mischens getroffen werden können. In Systemen, in denen die homogene Verbreiterung im Vergleich zur inhomogenen Linienbreite möglichst groß ist, und deren homogene Verbreiterung hauptsächlich auf der schnellen Dephasierung der Polarisation beruht, ermöglichen Absorptionsspektren zumindest eine Abschätzung der T_2-Zeit.

Die gleichzeitige Anregung einer hh-Exzitonpolarisation und weiterer Zustände führt zum Auftreten von Quantenschwebungen in den VWM-Signalen. Polarisations- und dichteabhängige VWM-Experimente sowie die aus den Messdaten extrahierte Bindungsenergie von $E_B \sim 1{,}85$ meV stützen die Vermutung, dass die kohärente Anregung einer exzitonischen und biexzitonischen Polarisation Ursache für die im VWM-Signal beobachtete Interferenzstruktur ist.

Trotz zahlreicher in der Literatur bekannter Untersuchungen zur Ladungsträgerstreuung sind Streuprozesse von CT-Exzitonpolarisationen bisher noch nicht erforscht. Aus diesem Grund handelt der zweite Teil des Kapitels 5 von Streuprozessen zwischen CTX-Polarisationen und CT-Exzitonen oder einem räumlich getrennten eh-Plasma. Hierzu werden VWM-Experimente mit einem Vorpuls durchgeführt, wodurch inkohärente Exzitonen oder freie Elektronen und Löcher als Kollisionspartner zur Verfügung stehen. Für beide Halbleiterstrukturen nimmt die Zerfallszeit der exzitonischen Polarisationen linear mit der Ladungsträgerdichte $N_{EHP,X}$ durch den Vorpuls ab. Darüber hinaus führt sowohl anregungsinduzierte Dephasierung als auch ein Ausbleichen der abgefragten Resonanz zu einer Reduktion der Signalstärke mit wachsender $N_{EHP,X}$. Ferner zeigen die Messungen, dass Kollisionen mit einem eh-Plasma einen stärkeren Einfluss auf die Zerstörung der kohärenten Polarisation haben und dementsprechend effizienter sind als Streuprozesse mit inkohärenten Exzitonen. Des Weiteren deuten die Ergebnisse auf die Tendenz hin, dass die Wechselwirkung zwischen der CTX-Polarisation und den inkohärenten CTX um einen Faktor zwei stärker ist als jene zwischen einer regulären Exzitonpolarisation und inkohärenten 1s-Exzitonen. Ein möglicher Grund für diese Beobachtung könnte der größere exzitonische Bohr-Radius der CTX sein, welcher einen ausgedehnteren Streuquerschnitt und dementsprechend eine erhöhte Streuwahrscheinlichkeit zur Folge hat. Des Weiteren führt die Ladungsträgerseparation zu größeren Dipolmomenten, weshalb von einer verstärkten Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen der Exzitonpolarisation und den inkohärenten Exzitonen auszugehen ist. Außerdem wird vermutet, dass der mit der Separation der Ladungsträger einhergehende fermionischere Charakter der CTX für einen höheren X-X-Streuparameter im Falle der Typ-II-Struktur verantwortlich sein könnte.

Zweidimensionale Ladungsträgerdiffusion

Mithilfe von Vier-Wellen-Misch-Experimenten ist es gelungen die Diffusion von Charge-Transfer-Exzitonen sowie eines räumlich separierten eh-Plasmas entlang innerer Grenzflächen zu untersuchen und mit den Ergebnissen an einer Typ-I-Heterostruktur zu vergleichen.

Entgegen der Annahme eines dichteunabhängigen Diffusionskoeffizienten wird für alle untersuchten Halbleiterproben eine von der Ladungsträgerdichte $N_{EHP,X}$ abhängige Diffusionskonstante D festgestellt, welche mit zunehmender Dichte steigt.

Bei *resonanter* Anregung im niedrigen Dichteregime ergeben die Messungen Diffusionskoeffizienten von $D_{\textit{Referenz, X}} \sim 4\,\mathrm{cm^2/s}$ und $D_{\textit{Typ-II, X}} \sim 1{,}5\,\mathrm{cm^2/s}$. Insbesondere im Falle der Typ-II-Struktur können die durch Unordnung im Kristall verursachten lokalisierten Exzitonzustände eine dichteabhängige Diffusion im Bereich kleiner Dichten bewirken. In Anwesenheit höherer Anregungsdichten können Auger-Effekte zur Aufheizung der Ladungsträger und dementsprechend zu einer gesteigerten Ladungsträgermobilität führen. Da von einem Mott-Übergang ab einer kritischen Dichte von $N_{Mott} = 3 \cdot 10^{11}\,\mathrm{cm^{-2}}$ berichtet wird[154] und sich das untersuchte Dichteregime über einen ähnlichen Bereich erstreckt, ist anzunehmen, dass die exzitonischen Diffusionskonstanten darüber hinaus durch den mit zunehmender Dichte steigenden Plasmaanteil zunehmen.

Im *nicht-resonant* angeregten Fall werden für die niedrigsten untersuchten Dichten Diffusionskonstanten von $D_{\textit{Referenz, EHP}} \sim 50\,\mathrm{cm^2/s}$ sowie $D_{\textit{Typ-II, EHP}} \sim 2\,\mathrm{cm^2/s}$ beobachtet. Ursächlich für eine mit der Ladungsträgerdichte N_{EHP} steigende Diffusionskonstante kann einerseits eine mit größerer N_{EHP} einhergehende Abschirmung geladener Verunreinigungen und andererseits ein infolge der Thermalisierung der hochenergetisch angeregten Ladungsträger hervorgerufener Phononwind sein. Im Falle der Typ-II-Probe kann ein Phononwind ebenfalls die unterschiedlich großen Diffusionskonstanten bei nicht-resonanter Anregung mit verschiedenen Überschussenergien ΔE erklären: Je höher die an die Ladungsträger abgegebene Überschussenergie ist, desto mehr Phononen werden im Zuge der Thermalisierung an den Kristall abgegeben. Dies führt zu einem stärkeren Phononwind und dementsprechend zu einer höheren Ausdehnungsgeschwindigkeit der Ladungsträger.

Des Weiteren zeigen die Untersuchungen, dass die Diffusion der CT-Exzitonen und des CT-Plasmas deutlich langsamer ist als die Ladungsträgerausbreitung innerhalb der Referenzstruktur. Es wird davon ausgegangen, dass innerhalb der untersuchten Typ-II-Heterostruktur ein größeres Ausmaß an Verunreinigungen und Kompositionsfluktuationen existiert. Ebenso wie Schichtdickenfluktuationen bewirken sie zusätzliche Streuzentren innerhalb des Kristalls. Diese Annahme wird durch die Messergebnisse aus Kapitel 5 gestützt: Zum einen ist die Dephasierungszeit der CTX-Polarisation im Vergleich zur T_2-Zeit der regulären 1s-Exzitonpolarisation aufgrund vermehrter Unordnung im Kristall stark reduziert, zum anderen sind die exzitonischen Linienbreiten in den Absorptionsspektren durch eine inhomogene Verbreiterung dominiert. Im Falle niedriger Temperaturen und schmaler Quantenfilme beeinflussen insbesondere mikroskopische Grenzflächenunebenheiten die Ladungsträgermobilität. Abhängig vom Ausmaß und der lateralen Ausdehnung X der Schichtdickenfluktuationen bewirken die Grenzflächenrauigkeiten eine Einschränkung der Mobilität, sodass sie dementsprechend zu kleineren Diffusionskonstanten führen. Außerdem halten sich die Ladungsträger in der Typ-II-Probe infolge der räumlich indirekten Bandstruktur überwiegend an der internen Grenzfläche auf. Da

der Ladungsträgertransport parallel zur Grenzfläche erfolgt, wird die Ausdehnung der räumlich separierten Ladungsträger stärker von der Morphologie der Grenzfläche beeinflusst.

Während die Diffusion der CT-Exzitonen im Vergleich zur Ausbreitung der regulären Exzitonen in der Referenzprobe maximal um einen Faktor neun geringer ist, ist die Ladungsträgerdiffusion des CT-Plasmas etwa um das Zwanzigfache schwächer als jene des EHP in der Typ-I-Struktur. Diese Beobachtung ist im Hinblick auf die Ergebnisse in Kapitel 5 erstaunlich. Die Untersuchungen der kohärenten Dynamik sowie der Streueigenschaften zeigen, dass das Verhalten der regulären und der CT-Zustände grundsätzlich ähnlich ist und die Zerfallszeit bei verschwindender Dichte lediglich um einen Faktor von etwa vier voneinander abweicht. Trotz ähnlicher Dephasierungsdynamik der untersuchten Exzitonpolarisationen belegen die VWM-Experimente einen signifikanten Unterschied bezüglich der Diffusion der jeweiligen eh-Plasmen. Die Ergebnisse der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen zeigen, dass die Morphologie der Grenzfläche einen großen Einfluss auf die lichtinduzierten Transporteigenschaften der Ladungsträger nimmt. Im Hinblick auf halbleiterbasierte Bauelemente wie beispielsweise HEMTs, in denen hohe Ladungsträgermobilitäten essentiell sind, ist die Erkenntnis, dass die Mobilitäten insbesondere stark durch den Einfluss interner Grenzflächen limitiert werden, von zentraler Bedeutung.

A

Berechnung der Ladungsträgerdichte N

Für die Auswertung der verschiedenen Messungen ist es nötig, die durch einen Laserpuls generierte Ladungsträgerdichte $N_{EHP,X}$ (freie Elektronen und Löcher, Exzitonen) innerhalb der untersuchten Halbleiterprobe zu bestimmen.

Dazu wird im ersten Schritt die durchschnittliche Absorption des Anregepulses A_{avg} kalkuliert. Diese ist abhängig von dem gemessenen Spektrum des Anregepulses $I_0(\omega)$ und der linearen Absorption $\alpha(\omega)$ der Probe. Zur Berechnung der durchschnittlichen Absorption des Anregepulses wird die Absorption wellenlängenabhängig mit der Intensität des Anregespektrums wie folgt gewichtet:[158]

$$A_{avg} = \frac{\sum_\omega \left(I_0(\omega) - I_0(\omega) \cdot e^{-\alpha(\omega) \cdot L} \right)}{\sum_\omega I_0(\omega)} \tag{A.1}$$

Abhängig von der untersuchten Halbleiterprobe und dem verwendeten Anregepuls liegen die Werte der berechneten durchschnittlichen Absorption bei den durchgeführten Experimenten zwischen 3 % und 30 %.

Für die Berechnung der Ladungsträgerdichten ist neben der durchschnittlichen Absorption des Anregepulses ebenso die (leistungsabhängige) Photonendichte eine relevante Größe. Um diese zu ermitteln, wird der Spotdurchmesser des Laserpulses mithilfe einer zusätzlichen Kamera bestimmt. Dazu wird die Kamera am Probenort in den Strahlengang platziert und ein Bild des Laserspots aufgenommen. Anschließend wird über die Halbwertsbreite des als gaußförmig angenommenen Laserspots und der Pixelgröße der Kamera die durch den Laser angeregte Fläche $A = \pi \cdot \left(\frac{FWHM}{2} \right)^2$ berechnet. Zur Leistungsmessung des Anregepulses wird ein thermisches Leistungsmessgerät eingesetzt. Anschließend kann die Photonendichte pro Puls ρ mit der Repetitionsfrequenz ν des Lasers, der Photonenergie des Pulses E_{Laser}, der angeregten Fläche A und der gemessenen Leistung P kalkuliert werden:

$$\rho = \frac{P}{A \cdot E_{Laser} \cdot \nu} \tag{A.2}$$

Schließlich berechnet sich die Ladungsträgerdichte $N_{EHP,X}$ wie folgt:

$$N_{EHP,X} = (\rho - \rho R) \cdot A_{avg} \tag{A.3}$$

Hierbei berücksichtigt die Reflektivität R den Anteil des Lichts, der durch Reflexionsverluste nicht zur Ladungsträgergeneration innerhalb der Halbleiterprobe beiträgt. Für senkrechten Einfall beträgt die Reflexion an der Probenoberfläche etwa 33 %. Da sich die Probe bei Tieftemperaturmessungen in einem Kryostaten befindet, erfolgen zusätzliche Reflexionsverluste an der Fensteraußenseite (Luft-Glas) und Fensterinnenseite (Glas-Vakuum). Diese führen dazu, dass lediglich 93 % des einfallenden Laserlichts auf die Probenoberfläche trifft. Insgesamt ergibt sich daraus eine Reflektivität von $R = 0{,}37$. Der Begriff Ladungsträgerdichte bezeichnet im Folgenden immer die *Ladungsträgerdichte pro Quantenfilm*. Da die Halbleiterproben aus 50 einzelnen Quantenfilmen bestehen, wird dazu die berechnete Ladungsträgerdichte $N_{EHP,X}$ durch 50 dividiert. Diese Berechnung liefert im Falle resonanter Anregung der Referenzprobe nur einen Mittelwert, da aufgrund der starken Absorption ein Großteil der Ladungsträger in den ersten Quantenfilmen erzeugt wird.

B

Probendokumentation

Die untersuchten Heterostrukturen wurden im Struktur- & Technologie-Forschungslabor des wissenschaftlichen Zentrums für Materialwissenschaften (WZMW) der Philipps-Universität Marburg hergestellt.

Bezeichnung in der Arbeit	Probennummer	Aufbau der M(D)QW	Herstellungsort
Referenzprobe / Typ-I-Struktur	#26802	(Ga,In)As	WZMW
Typ-II-Struktur	#26801	(Ga,In)As/Ga(As,Sb)	WZMW

Literaturverzeichnis

[1] Wolfgang Pauli. *Wissenschaftlicher Briefwechsel mit Bohr, Einstein, Heisenberg u.a., Band II: 1930 - 1939*. Hrsg. von K. v. Meyenn. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1985.

[2] Lidia Łukasiak und Andrzej Jakubowski. „History of Semiconductors“. In: *Journal of Telecommunications and Information Technology* (2010).

[3] C. E. Fritts. „On a new form of selenium cell, and some electrical discoveries made by its use“. In: *American Journal of Science* s3-26.156 (Dez. 1883), S. 465–472. DOI: 10.2475/ajs.s3-26.156.465.

[4] Tudor Jenkins. „A brief history of ... semiconductors“. In: *Physics Education* 40.5 (Sep. 2005), S. 430–439. DOI: 10.1088/0031-9120/40/5/002.

[5] Ferdinand Braun. „Ueber die Stromleitung durch Schwefelmetalle“. In: *Annalen der Physik und Chemie* 229.12 (1875), S. 556–563. DOI: 10.1002/andp.18752291207.

[6] A. H. Wilson. „The theory of electronic semi-conductors. - II“. In: *Proceedings of the Royal Society of London A* 134.823 (Nov. 1931), S. 277–287. DOI: 10.1098/rspa.1931.0196.

[7] J. Bardeen und W. H. Brattain. „The Transistor, A Semi-Conductor Triode“. In: *Physical Review* 74.2 (Juli 1948), S. 230–231. DOI: 10.1103/physrev.74.230.

[8] Jack S. Kilby. „Invention of the Integrated Circuit“. In: *IEEE Transactions on Electron Devices* 23.7 (Juli 1976), S. 648–654. DOI: 10.1109/t-ed.1976.18467.

[9] R. Dingle, W. Wiegmann und C. H. Henry. „Quantum States of Confined Carriers in Very Thin $Al_xGa_{1-x}As$-GaAs-$Al_xGa_{1-x}As$ Heterostructures“. In: *Physical Review Letters* 33.14 (Sep. 1974), S. 827–830. DOI: 10.1103/physrevlett.33.827.

[10] R. D. Dupuis u. a. „Room-temperature laser operation of quantum-well $Ga_{1-x}Al_xAs$-GaAs laser diodes grown by metalorganic chemical vapor deposition“. In: *Applied Physics Letters* 32.5 (März 1978), S. 295–297. DOI: 10.1063/1.90026.

[11] A. A. High u. a. „Exciton optoelectronic transistor“. In: *Optics Letters* 32.17 (Aug. 2007), S. 2466. DOI: 10.1364/ol.32.002466.

[12] L. V. Butov. „Excitonic devices“. In: *Superlattices and Microstructures* 108 (Aug. 2017), S. 2–26. DOI: 10.1016/j.spmi.2016.12.035.

[13] T. Lundstrom. „Exciton Storage in Semiconductor Self-Assembled Quantum Dots“. In: *Science* 286.5448 (Dez. 1999), S. 2312–2314. DOI: 10.1126/science.286.5448.2312.

[14] A. A. High u. a. „Control of Exciton Fluxes in an Excitonic Integrated Circuit“. In: *Science* 321.5886 (Juli 2008), S. 229–231. DOI: 10.1126/science.1157845.

[15] G. Grosso u. a. „Excitonic switches operating at around 100 K“. In: *Nature Photonics* 3.10 (Sep. 2009), S. 577–580. DOI: 10.1038/nphoton.2009.166.

[16] Dmitrii Unuchek u. a. „Valley-polarized exciton currents in a van der Waals heterostructure“. In: *Nature Nanotechnology* 14.12 (Okt. 2019), S. 1104–1109. DOI: 10.1038/s41565-019-0559-y.

[17] Alberto Ciarrocchi u. a. „Polarization switching and electrical control of interlayer excitons in two-dimensional van der Waals heterostructures“. In: *Nature Photonics* 13.2 (Dez. 2018), S. 131–136. DOI: 10.1038/s41566-018-0325-y.

[18] Dmitrii Unuchek u. a. „Room-temperature electrical control of exciton flux in a van der Waals heterostructure“. In: *Nature* 560.7718 (Juli 2018), S. 340–344. DOI: 10.1038/s41586-018-0357-y.

[19] Markus Stein u. a. „Direct Probe of Room-Temperature Quantum-Tunneling Processes in Type-II Heterostructures Using Terahertz Emission Spectroscopy“. In: *Physical Review Applied* 13.5 (Mai 2020), S. 054073. DOI: 10.1103/physrevapplied.13.054073.

[20] Claus Klingshirn. *Semiconductor Optics*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2007. DOI: 10.1007/978-3-540-38347-5.

[21] Felix Bloch. „Über die Quantenmechanik der Elektronen in Kristallgittern“. In: *Zeitschrift für Physik* 52.7-8 (Juli 1929), S. 555–600. DOI: 10.1007/bf01339455.

[22] Y.P. Varshni. „Temperature dependence of the energy gap in semiconductors“. In: *Physica* 34.1 (Jan. 1967), S. 149–154. DOI: 10.1016/0031-8914(67)90062-6.

[23] Peter Y. Yu und Manuel Cardona. *Fundamentals of Semiconductors*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2010. DOI: 10.1007/978-3-642-00710-1.

[24] Siegfried Hunklinger. *Festkörperphysik*. Oldenbourg Wissenschaftsverlag, Sep. 2012. DOI: 10.1524/9783486711547.

[25] Lars Schneider. „Optische Kurzzeitspektroskopie an magnetisch dotierten Halbleiter-Nanopartikeln“. Diss. Universität Duisburg-Essen, 2011.

[26] Stephan W. Koch, Torsten Meier und Peter Thomas. *Coherent Semiconductor Optics*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, Okt. 2006. 336 S. ISBN: 3540325549.

[27] P. Frigeri u. a. „Molecular Beam Epitaxy: An Overview“. In: *Comprehensive Semiconductor Science and Technology*. Elsevier, 2011, S. 480–522. DOI: 10.1016/b978-0-44-453153-7.00099-7.

[28] Gerald B. Stringfellow. *Organometallic Vapor-Phase Epitaxy: Theory and Practice*. Academic Press, Dez. 1998. 572 S. ISBN: 0126738424.

[29] Philippe Caroff u. a. „High-Quality InAs/InSb Nanowire Heterostructures Grown by Metal–Organic Vapor-Phase Epitaxy“. In: *Small* 4.7 (Juli 2008), S. 878–882. DOI: 10.1002/smll.200700892.

[30] Mark Fox und Radu Ispasoiu. „Quantum Wells, Superlattices, and Band-Gap Engineering“. In: *Springer Handbook of Electronic and Photonic Materials*. Springer International Publishing, 2017, S. 1–1. DOI: 10.1007/978-3-319-48933-9_40.

[31] Peter Zory. *Quantum well lasers*. Hrsg. von Peter Zory. Boston: Academic Press, 1993. ISBN: 0127818901.

[32] Ashutosh Tiwari. *Intelligent Nanomaterials: Processes, Properties, and Applications*. Hrsg. von Ashutosh Tiwari u. a. John Wiley & Sons, 2012.

[33] Nasser Peyghambarian, Stephan W. Koch und Andre Mysyrowicz. *Introduction to semiconductor optics*. Englewood Cliffs, N.J: Prentice Hall, 1993. ISBN: 9780136389903.

[34] Markus Stein. „Dynamics of Excitons in Semiconductors“. Diss. Philipps-Universität Marburg, 2019.

[35] Stephan W. Koch Hartmut Haug. *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors (4th Edition)*. World Scientific Publishing Company, Feb. 2004. 468 S. ISBN: 9812386092.

[36] M. Kira und S. W. Koch. „Many-body correlations and excitonic effects in semiconductor spectroscopy“. In: *Progress in Quantum Electronics* 30.5 (2006), S. 155–296. DOI: 10.1016/j.pquantelec.2006.12.002.

[37] Stephan W. Koch Mackillo Kira. *Semiconductor Quantum Optics*. Cambridge University Press, Nov. 2011. 658 S. ISBN: 0521875099.

[38] T. Takagahara. *Quantum coherence, correlation and decoherence in semiconductor nanostructures*. London: Academic Press, 2003. ISBN: 0126822255.

[39] M. Lindberg und S. W. Koch. „Effective Bloch equations for semiconductors“. In: *Physical Review B* 38.5 (Aug. 1988), S. 3342–3350. DOI: 10.1103/physrevb.38.3342.

[40] Rohit P. Prasankumar und Antoinette J. Taylor. *Optical techniques for solid-state materials characterization*. Hrsg. von Rohit P. Prasankumar und Antoinette J. Taylor. S.l: CRC Press, 2012. ISBN: 9780367576929.

[41] Kong-Thon Tsen, Hrsg. *Ultrafast Phenomena in Semiconductors*. Springer New York, 2001. DOI: 10.1007/978-1-4613-0203-2.

[42] Alexey A. Chernikov. „Time-Resolved Photoluminescence Spectroscopy of Semiconductors for Optical Applications beyond the Visible Spectral Range“. Diss. Philipps-Universität Marburg, 2011.

[43] Ernst O. Göbel. „Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors“. In: *Optics and Photonics News* 3.5 (Mai 1992), S. 33. DOI: 10.1364/opn.3.5.000033.

[44] S. Arlt u. a. „Ultrafast dephasing of continuum transitions in bulk semiconductors“. In: *Physical Review B* 59.23 (Juni 1999), S. 14860–14863. DOI: 10.1103/physrevb.59.14860.

[45] Michael A. Becker u. a. „Long Exciton Dephasing Time and Coherent Phonon Coupling in $CsPbBr_2Cl$ Perovskite Nanocrystals“. In: *Nano Letters* 18.12 (Nov. 2018), S. 7546–7551. DOI: 10.1021/acs.nanolett.8b03027.

[46] B. Fluegel u. a. „Femtosecond Studies of Coherent Transients in Semiconductors“. In: *Physical Review Letters* 59.22 (Nov. 1987), S. 2588–2591. DOI: 10.1103/physrevlett.59.2588.

[47] L. Schultheis, M. D. Sturge und J. Hegarty. „Photon echoes from two-dimensional excitons in GaAs-AlGaAs quantum wells“. In: *Applied Physics Letters* 47.9 (Nov. 1985), S. 995–997. DOI: 10.1063/1.95955.

[48] M. Lindberg, R. Binder und S. W. Koch. „Theory of the semiconductor photon echo“. In: *Physical Review A* 45.3 (Feb. 1992), S. 1865–1875. DOI: 10.1103/physreva.45.1865.

[49] A. Lohner u. a. „Coherent optical polarization of bulk GaAs studied by femtosecond photon-echo spectroscopy“. In: *Physical Review Letters* 71.1 (Juli 1993), S. 77–80. DOI: 10.1103/physrevlett.71.77.

[50] G. Noll u. a. „Picosecond stimulated photon echo due to intrinsic excitations in semiconductor mixed crystals“. In: *Physical Review Letters* 64.7 (Feb. 1990), S. 792–795. DOI: 10.1103/physrevlett.64.792.

[51] A. Leitenstorfer u. a. „Excitonic and free-carrier polarizations of bulk GaAs studied by femtosecond coherent spectroscopy“. In: *Physical Review B* 49.23 (Juni 1994), S. 16372–16380. DOI: 10.1103/physrevb.49.16372.

[52] R. Hellmann u. a. „Dephasing of excitons in a $CdTe/Cd_{0.86}Mn_{0.14}Te$ multiple quantum well“. In: *Journal of Crystal Growth* 138.1-4 (Apr. 1994), S. 791–795. DOI: 10.1016/0022-0248(94)90908-3.

[53] M. Kira, F. Jahnke und S. W. Koch. „Microscopic Theory of Excitonic Signatures in Semiconductor Photoluminescence“. In: *Physical Review Letters* 81.15 (Okt. 1998), S. 3263–3266. DOI: 10.1103/physrevlett.81.3263.

[54] N. Balkan. *Hot Electrons in Semiconductors*. Hrsg. von N. Balkan. Oxford New York: Clarendon Press Oxford, 1998. ISBN: 0198500580.

[55] Kathleen Kash und Jagdeep Shah. „Carrier energy relaxation in $In_{0.53}Ga_{0.47}As$ determined from picosecond luminescence studies“. In: *Applied Physics Letters* 45.4 (Aug. 1984), S. 401–403. DOI: 10.1063/1.95235.

[56] S. Chatterjee u. a. „Optical gain and transient nonlinearities in Ge quantum wells“. In: *2009 6th IEEE International Conference on Group IV Photonics*. IEEE, Sep. 2009. DOI: 10.1109/group4.2009.5338362.

[57] H. -J. Polland u. a. „Nonequilibrium cooling of thermalized electrons and holes in $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$ quantum wells“. In: *Physical Review B* 35.15 (Mai 1987), S. 8273–8276. DOI: 10.1103/physrevb.35.8273.

[58] W. Shockley und W. T. Read. „Statistics of the Recombinations of Holes and Electrons“. In: *Physical Review* 87.5 (Sep. 1952), S. 835–842. DOI: 10.1103/physrev.87.835.

[59] G. W. 't Hooft u. a. „Giant oscillator strength of free excitons in GaAs“. In: *Physical Review B* 35.15 (Mai 1987), S. 8281–8284. DOI: 10.1103/physrevb.35.8281.

[60] Stephan Glutsch. *Excitons in Low-Dimensional Semiconductors*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2004. DOI: 10.1007/978-3-662-07150-2.

[61] J. Frenkel. „On the Transformation of light into Heat in Solids. I“. In: *Physical Review* 37.1 (Jan. 1931), S. 17–44. DOI: 10.1103/physrev.37.17.

[62] J. Frenkel. „On the Transformation of Light into Heat in Solids. II“. In: *Physical Review* 37.10 (Mai 1931), S. 1276–1294. DOI: 10.1103/physrev.37.1276.

[63] R. Peierls. „Zur Theorie der Absorptionsspektren fester Körper“. In: *Annalen der Physik* 405.8 (1932), S. 905–952. DOI: 10.1002/andp.19324050803.

[64] Gregory H. Wannier. „The Structure of Electronic Excitation Levels in Insulating Crystals“. In: *Physical Review* 52.3 (Aug. 1937), S. 191–197. DOI: 10.1103/physrev.52.191.

[65] Jagdeep Shah. *Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures*. Hrsg. von Manuel Cardona u. a. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1996. DOI: 10.1007/978-3-662-03299-2.

[66] Wolfgang Demtröder. *Experimentalphysik 3*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2010. DOI: 10.1007/978-3-642-03911-9.

[67] Ireneusz Strzalkowski, Sharad Joshi und C. R. Crowell. „Dielectric constant and its temperature dependence for GaAs, CdTe, and ZnSe“. In: *Applied Physics Letters* 28.6 (März 1976), S. 350–352. DOI: 10.1063/1.88755.

[68] S. B. Nam u. a. „Free-exciton energy spectrum in GaAs“. In: *Physical Review B* 13.2 (Jan. 1976), S. 761–767. DOI: 10.1103/physrevb.13.761.

[69] Charles Kittel. *Einführung in die Festkörperphysik*. Oldenbourg, 1983. ISBN: 3486327666.

[70] Bernhard Johann Bohn. „Exciton Dynamics in Lead Halide Perovskite Nanocrystals: Recombination, Dephasing and Diffusion“. Diss. Ludwig-Maximilians-Universität München, 2019.

[71] R. J. Elliott. „Intensity of Optical Absorption by Excitons“. In: *Physical Review* 108.6 (Dez. 1957), S. 1384–1389. DOI: 10.1103/physrev.108.1384.

[72] Wei Liu u. a. „Broadening of the excitonic linewidth due to scattering of two-dimensional free carriers“. In: *Applied Physics Letters* 67.5 (Juli 1995), S. 679–681. DOI: 10.1063/1.115201.

[73] Marc Eichhorn. *Laserphysik*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2013. DOI: 10.1007/978-3-642-32648-6.

[74] Wolfgang Demtröder. *Laser Spectroscopy 1*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2014. DOI: 10.1007/978-3-642-53859-9.

[75] S. Rudin, T. L. Reinecke und B. Segall. „Temperature-dependent exciton linewidths in semiconductors“. In: *Physical Review B* 42.17 (Dez. 1990), S. 11218–11231. DOI: 10.1103/physrevb.42.11218.

[76] L. Schultheis u. a. „Optical dephasing of homogeneously broadened two-dimensional exciton transitions in GaAs quantum wells“. In: *Physical Review B* 34.12 (Dez. 1986), S. 9027–9030. DOI: 10.1103/physrevb.34.9027.

[77] L. Schultheis u. a. „Phase coherence and line broadening of free excitons in GaAs quantum wells“. In: *Superlattices and Microstructures* 2.5 (Jan. 1986), S. 441–443. DOI: 10.1016/0749-6036(86)90008-x.

[78] P. Borri u. a. „Well-width dependence of exciton-phonon scattering in $In_xGa_{1-x}As$/GaAs single quantum wells“. In: *Physical Review B* 59.3 (Jan. 1999), S. 2215–2222. DOI: 10.1103/physrevb.59.2215.

[79] Galan Moody u. a. „Intrinsic homogeneous linewidth and broadening mechanisms of excitons in monolayer transition metal dichalcogenides“. In: *Nature Communications* 6.1 (Sep. 2015). DOI: 10.1038/ncomms9315.

[80] D. Oberhauser u. a. „Exciton scattering in quantum wells at low temperatures“. In: *Physical Review B* 47.11 (März 1993), S. 6827–6830. DOI: 10.1103/physrevb.47.6827.

[81] A. Honold u. a. „Collision broadening of two-dimensional excitons in a GaAs single quantum well“. In: *Physical Review B* 40.9 (Sep. 1989), S. 6442–6445. DOI: 10.1103/physrevb.40.6442.

[82] R. T. Phillips, Hrsg. *Coherent Optical Interactions in Semiconductors*. Springer US, 1994. DOI: 10.1007/978-1-4757-9748-0.

[83] B. Deveaud u. a. „Enhanced radiative recombination of free excitons in GaAs quantum wells“. In: *Physical Review Letters* 67.17 (Okt. 1991), S. 2355–2358. DOI: 10.1103/physrevlett.67.2355.

[84] B. Deveaud u. a. „Enhanced radiative recombination of free excitons in GaAs quantum wells“. In: *Surface Science* 263.1-3 (Feb. 1992), S. 491–495. DOI: 10.1016/0039-6028(92)90395-m.

[85] B. Sermage u. a. „Radiative recombination of free excitons in GaAs quantum wells“. In: *Superlattices and Microstructures* 13.2 (März 1993), S. 271. DOI: 10.1006/spmi.1993.1054.

[86] J. Szczytko u. a. „Determination of the Exciton Formation in Quantum Wells from Time-Resolved Interband Luminescence“. In: *Physical Review Letters* 93.13 (Sep. 2004), S. 137401. DOI: 10.1103/physrevlett.93.137401.

[87] L. A. Dunbar u. a. „Excitation-induced coherence in a semiconductor microcavity“. In: *Physical Review B* 66.19 (Nov. 2002), S. 195307. DOI: 10.1103/physrevb.66.195307.

[88] L. Schultheis u. a. „Ultrafast Phase Relaxation of Excitons via Exciton-Exciton and Exciton-Electron Collisions“. In: *Physical Review Letters* 57.13 (Sep. 1986), S. 1635–1638. DOI: 10.1103/physrevlett.57.1635.

[89] W. H. Knox u. a. „Femtosecond Dynamics of Resonantly Excited Excitons in Room-Temperature GaAs Quantum Wells“. In: *Physical Review Letters* 54.12 (März 1985), S. 1306–1309. DOI: 10.1103/physrevlett.54.1306.

[90] H. Hillmer u. a. „Two-dimensional exciton transport in GaAs/GaAlAs quantum wells“. In: *Applied Physics Letters* 53.20 (Nov. 1988), S. 1937–1939. DOI: 10.1063/1.100328.

[91] H. Hillmer u. a. „Interface-roughness-controlled exciton mobilities in GaAs/$Al_{0.37}Ga_{0.63}$As quantum wells“. In: *Physical Review B* 42.5 (Aug. 1990), S. 3220–3223. DOI: 10.1103/physrevb.42.3220.

[92] Andrew M. Weiner und Erich P. Ippen. „Novel transient scattering technique for femtosecond dephasing measurements“. In: *Optics Letters* 9.2 (Feb. 1984), S. 53. DOI: 10.1364/ol.9.000053.

[93] M. Koch u. a. „Enhanced energy and phase relaxation of excitons in the presence of bare electrons“. In: *Physical Review B* 51.19 (Mai 1995), S. 13887–13890. DOI: 10.1103/physrevb.51.13887.

[94] T. F. Albrecht u. a. „Femtosecond degenerate four-wave-mixing on unstrained (InGa)As/InP multiple-quantum-wells using an optical parametric oscillator“. In: *Solid-State Electronics* 37.4-6 (Apr. 1994), S. 1327–1331. DOI: 10.1016/0038-1101(94)90418-9.

[95] Baldassare Di Bartolo, Hrsg. *Nonlinear Spectroscopy of Solids: Advances and Applications*. Springer US, 1994. DOI: 10.1007/978-1-4899-1190-2.

[96] Steven T. Cundiff. „Coherent spectroscopy of semiconductors“. In: *Optics Express* 16.7 (März 2008), S. 4639. DOI: 10.1364/oe.16.004639.

[97] Hans-Peter Tranitz. „Vier- und Multiwellenmischen an II-VI-Halbleiternanostrukturen“. Diss. Technische Universität Chemnitz, 2001.

[98] A. Honold u. a. „Reflected degenerate four-wave mixing on GaAs single quantum wells“. In: *Applied Physics Letters* 52.25 (Juni 1988), S. 2105–2107. DOI: 10.1063/1.99549.

[99] Tatsuo Yajima und Yoichi Taira. „Spatial Optical Parametric Coupling of Picosecond Light Pulses and Transverse Relaxation Effect in Resonant Media“. In: *Journal of the Physical Society of Japan* 47.5 (Nov. 1979), S. 1620–1626. DOI: 10.1143/jpsj.47.1620.

[100] H. Schwab u. a. „Measurements of exciton diffusion by degenerate four-wave mixing in $CdS_{1-x}Se_x$“. In: *Physical Review B* 46.12 (Sep. 1992), S. 7528–7532. DOI: 10.1103/physrevb.46.7528.

[101] D. Webber u. a. „Carrier diffusion in thin-film $CH_3NH_3PbI_3$ perovskite measured using four-wave mixing“. In: *Applied Physics Letters* 111.12 (Sep. 2017), S. 121905. DOI: 10.1063/1.4989970.

[102] Martin Vollmer. „Ortsaufgelöste ultraschnelle Ladungsträgerdynamik in Halbleiterquantenfilmen“. Diss. Philipps-Universität Marburg, 1999.

[103] Oleksandr V. Mikhnenko, Paul W. M. Blom und Thuc-Quyen Nguyen. „Exciton diffusion in organic semiconductors“. In: *Energy & Environmental Science* 8.7 (2015), S. 1867–1888. DOI: 10.1039/c5ee00925a.

[104] Adolf Fick. „Ueber Diffusion“. In: *Annalen der Physik und Chemie* 170.1 (1855), S. 59–86. DOI: 10.1002/andp.18551700105.

[105] Hans Joachim Eichler, Peter Günter und Dieter W. Pohl. *Laser-Induced Dynamic Gratings*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1986. DOI: 10.1007/978-3-540-39662-8.

[106] C. Weber u. a. „Measurement of the diffusion-length of carriers and excitons in CdS using laser-induced transient gratings“. In: *Zeitschrift für Physik B: Condensed Matter* 72.3 (Sep. 1988), S. 379–384. DOI: 10.1007/bf01312825.

[107] Christopher M. Lawson, Richard C. Powell und Walter K. Zwicker. „Measurement of Exciton Diffusion Lengths in $Nd_xLa_{1-x}P_5O_{14}$ by Four-Wave Mixing Techniques“. In: *Physical Review Letters* 46.15 (Apr. 1981), S. 1020–1023. DOI: 10.1103/physrevlett.46.1020.

[108] H. J. Eichler und F. Massmann. „Diffraction efficiency and decay times of free-carrier gratings in silicon“. In: *Journal of Applied Physics* 53.4 (Apr. 1982), S. 3237–3242. DOI: 10.1063/1.331025.

[109] Gleb M. Akselrod u. a. „Visualization of exciton transport in ordered and disordered molecular solids“. In: *Nature Communications* 5.1 (Apr. 2014). DOI: 10.1038/ncomms4646.

[110] Elizabeth M. Y. Lee und William A. Tisdale. „Determination of Exciton Diffusion Length by Transient Photoluminescence Quenching and Its Application to Quantum Dot Films“. In: *The Journal of Physical Chemistry C* 119.17 (Apr. 2015), S. 9005–9015. DOI: 10.1021/jp512634c.

[111] H. Hillmer, A. Forchel und C. W. Tu. „An optical study of the lateral motion of two-dimensional electron-hole pairs in GaAs/AlGaAs quantum wells“. In: *Journal of Physics: Condensed Matter* 5.31 (Aug. 1993), S. 5563–5580. DOI: 10.1088/0953-8984/5/31/019.

[112] Y. M. Wong und V. M. Kenkre. „Extension of exciton-transport theory for transient grating experiments into the intermediate coherence domain“. In: *Physical Review B* 22.6 (Sep. 1980), S. 3072–3077. DOI: 10.1103/physrevb.22.3072.

[113] A. E. Siegman. „Bragg diffraction of a Gaussian beam by a crossed-Gaussian volume grating“. In: *Journal of the Optical Society of America* 67.4 (Apr. 1977), S. 545. DOI: 10.1364/josa.67.000545.

[114] J. R. Salcedo u. a. „Dynamics of Energy Transport in Molecular Crystals: The Picosecond Transient-Grating Method“. In: *Physical Review Letters* 41.2 (Juli 1978), S. 131–134. DOI: 10.1103/physrevlett.41.131.

[115] D. Oberhauser u. a. „Coherent and Incoherent Exciton Dynamics in $Al_{1-y}Ga_yAs/GaAs$ Multiple Quantum Wells“. In: *physica status solidi (b)* 173.1 (Sep. 1992), S. 53–68. DOI: 10.1002/pssb.2221730106.

[116] S. Pau u. a. „Femtosecond degenerate four-wave mixing of GaN on sapphire: Measurement of intrinsic exciton dephasing time“. In: *Physical Review B* 56.20 (Nov. 1997), R12718–R12721. DOI: 10.1103/physrevb.56.r12718.

[117] J. M. Hvam u. a. „Ultrafast nonlinear optics in GaAs/AlGaAs quantum wells“. In: *Physica Scripta* T54 (Jan. 1994), S. 181–186. DOI: 10.1088/0031-8949/1994/t54/045.

[118] *Andor (iDus 420 Series)*.

[119] G. Fuchs u. a. „Intervalence band absorption in strained and unstrained InGaAs multiple quantum well structures“. In: *Applied Physics Letters* 60.2 (Jan. 1992), S. 231–233. DOI: 10.1063/1.106973.

[120] Karen J. Moore u. a. „Observations and calculations of the exciton binding energy in (In,Ga)As/GaAs strained-quantum-well heterostructures“. In: *Physical Review B* 41.2 (Jan. 1990), S. 1090–1094. DOI: 10.1103/physrevb.41.1090.

[121] M. Schlierkamp u. a. „Quantum-well states under biaxial compression and tension“. In: *Physical Review B* 40.5 (Aug. 1989), S. 3077–3080. DOI: 10.1103/physrevb.40.3077.

[122] J. W. Matthews und A. dE. Blakeslee. „Defects in epitaxial multilayers“. In: *Journal of Crystal Growth* 27 (Dez. 1974), S. 118–125. DOI: 10.1016/s0022-0248(74)80055-2.

[123] M. Stein u. a. „Dynamics of charge-transfer excitons in type-II semiconductor heterostructures“. In: *Physical Review B* 97.12 (März 2018), S. 125306. DOI: 10.1103/physrevb.97.125306.

[124] Christian Lammers. „Über die Dynamik des Charge-Transfer-Exzitons“. Diss. Philipps-Universität Marburg, 2017.

[125] J. Hegarty u. a. „Resonant degenerate four-wave mixing in GaAs multiquantum well structures“. In: *Applied Physics Letters* 40.2 (Jan. 1982), S. 132–134. DOI: 10.1063/1.93013.

[126] L. Schultheis u. a. „Picosecond Phase Coherence and Orientational Relaxation of Excitons in GaAs“. In: *Physical Review Letters* 57.14 (Okt. 1986), S. 1797–1800. DOI: 10.1103/physrevlett.57.1797.

[127] H. P. Wagner u. a. „Interaction and dephasing of center-of-mass quantized excitons in wide ZnSe/$Zn_{0.94}Mg_{0.06}$Se quantum wells“. In: *Physical Review B* 57.3 (Jan. 1998), S. 1791–1796. DOI: 10.1103/physrevb.57.1791.

[128] S. W. Koch u. a. „Microscopic theory of optical dephasing in semiconductors“. In: *Applied Physics A: Materials Science & Processing* 71.5 (Nov. 2000), S. 511–517. DOI: 10.1007/s003390000707.

[129] Hailin Wang u. a. „Transient nonlinear optical response from excitation induced dephasing in GaAs“. In: *Physical Review Letters* 71.8 (Aug. 1993), S. 1261–1264. DOI: 10.1103/physrevlett.71.1261.

[130] R. Hellmann u. a. „Homogeneous linewidth of excitons in semimagnetic CdTe/$Cd_{1-x}Mn_x$ multiple quantum wells“. In: *Physical Review B* 48.4 (Juli 1993), S. 2847–2850. DOI: 10.1103/physrevb.48.2847.

[131] K. L. Campman u. a. „Interface roughness and alloy-disorder scattering contributions to intersubband transition linewidths“. In: *Applied Physics Letters* 69.17 (Okt. 1996), S. 2554–2556. DOI: 10.1063/1.117737.

[132] S. Tsujino u. a. „Interface-roughness-induced broadening of intersubband electroluminescence in p-SiGe and n-GaInAs/AlInAs quantum-cascade structures“. In: *Applied Physics Letters* 86.6 (Feb. 2005), S. 062113. DOI: 10.1063/1.1862344.

[133] Martin Koch u. a. „Excitonic quantum beats in semiconductor quantum-well structures“. In: *Chemical Physics* 210.1-2 (Okt. 1996), S. 367–388. DOI: 10.1016/0301-0104(96)00135-8.

[134] K. Leo u. a. „Subpicosecond four-wave mixing in GaAs/$Al_xGa_{1-x}As$ quantum wells“. In: *Physical Review B* 44.11 (Sep. 1991), S. 5726–5737. DOI: 10.1103/physrevb.44.5726.

[135] B. F. Feuerbacher u. a. „Quantum beats between the light and heavy hole excitons in a quantum well“. In: *Solid State Communications* 74.12 (Juni 1990), S. 1279–1283. DOI: 10.1016/0038-1098(90)90992-k.

[136] E. J. Mayer u. a. „Polarization dependence of beating phenomena at the energetically lowest exciton transition in GaAs quantum wells“. In: *Physical Review B* 51.16 (Apr. 1995), S. 10909–10914. DOI: 10.1103/physrevb.51.10909.

[137] T. F. Albrecht u. a. „Disorder mediated biexcitonic beats in semiconductor quantum wells“. In: *Physical Review B* 54.7 (Aug. 1996), S. 4436–4439. DOI: 10.1103/physrevb.54.4436.

[138] K. W. Stone u. a. „Two-Quantum 2D FT Electronic Spectroscopy of Biexcitons in GaAs Quantum Wells“. In: *Science* 324.5931 (Mai 2009), S. 1169–1173. DOI: 10.1126/science.1170274.

[139] D. Birkedal u. a. „Binding of Quasi-Two-Dimensional Biexcitons“. In: *Physical Review Letters* 76.4 (Jan. 1996), S. 672–675. DOI: 10.1103/physrevlett.76.672.

[140] A. Euteneuer u. a. „Biexcitonic binding energies in the transition regime from three- to two-dimensional semiconductors“. In: *Physical Review B* 56.16 (Okt. 1997), R10028–R10031. DOI: 10.1103/physrevb.56.r10028.

[141] K.-H. Pantke u. a. „Coherent generation and interference of excitons and biexcitons in GaAs/$Al_xGa_{1-x}As$ quantum wells“. In: *Physical Review B* 47.4 (Jan. 1993), S. 2413–2416. DOI: 10.1103/physrevb.47.2413.

[142] P. Borri u. a. „Binding energy and dephasing of biexcitons in $In_{0.18}Ga_{0.82}As$/GaAs single quantum wells“. In: *Physical Review B* 60.7 (Aug. 1999), S. 4505–4508. DOI: 10.1103/physrevb.60.4505.

[143] A. E. Almand-Hunter u. a. „Quantum droplets of electrons and holes“. In: *Nature* 506.7489 (Feb. 2014), S. 471–475. DOI: 10.1038/nature12994.

[144] I. J. Blewett u. a. „Comparison of the biexciton and exciton coherent polarization lifetimes in ZnSe/(Zn,Cd)Se multiple quantum wells“. In: *Semiconductor Science and Technology* 12.7 (Juli 1997), S. 820–824. DOI: 10.1088/0268-1242/12/7/011.

[145] E. J. Mayer u. a. „Evidence of biexcitonic contributions to four-wave mixing in GaAs quantum wells“. In: *Physical Review B* 50.19 (Nov. 1994), S. 14730–14733. DOI: 10.1103/physrevb.50.14730.

[146] T. Baars u. a. „Biexcitons in semiconductor quantum wires“. In: *Physical Review B* 58.4 (Juli 1998), R1750–R1753. DOI: 10.1103/physrevb.58.r1750.

[147] R. Huber u. a. „How many-particle interactions develop after ultrafast excitation of an electron–hole plasma“. In: *Nature* 414.6861 (Nov. 2001), S. 286–289. DOI: 10.1038/35104522.

[148] K. Bott u. a. „Influence of exciton-exciton interactions on the coherent optical response in GaAs quantum wells“. In: *Physical Review B* 48.23 (Dez. 1993), S. 17418–17426. DOI: 10.1103/physrevb.48.17418.

[149] R. A. Kaindl u. a. „Ultrafast terahertz probes of transient conducting and insulating phases in an electron–hole gas“. In: *Nature* 423.6941 (Juni 2003), S. 734–738. DOI: 10.1038/nature01676.

[150] P. W. M. Blom u. a. „Selective exciton formation in thin GaAs/$Al_xGa_{1-x}As$ quantum wells“. In: *Physical Review Letters* 71.23 (Dez. 1993), S. 3878–3881. DOI: 10.1103/physrevlett.71.3878.

[151] T. C. Damen u. a. „Dynamics of exciton formation and relaxation in GaAs quantum wells“. In: *Physical Review B* 42.12 (Okt. 1990), S. 7434–7438. DOI: 10.1103/physrevb.42.7434.

[152] B. Deveaud, B. Sermage und D. S. Katzer. „Free exciton versus free carrier luminescence in a quantum well“. In: *Le Journal de Physique IV* 03.C5 (Okt. 1993), S. 11–14. DOI: 10.1051/jp4:1993502.

[153] Florian Katsch, Malte Selig und Andreas Knorr. „Exciton-Scattering-Induced Dephasing in Two-Dimensional Semiconductors“. In: *Physical Review Letters* 124.25 (Juni 2020), S. 257402. DOI: 10.1103/physrevlett.124.257402.

[154] H. W. Yoon u. a. „In-plane transport of photoexcited carriers in GaAs quantum wells“. In: *Physical Review B* 46.20 (Nov. 1992), S. 13461–13470. DOI: 10.1103/physrevb.46.13461.

[155] R. C. C. Leite, Jagdeep Shah und J. P. Gordon. „Effect of Electron-Exciton Collisions on the Free-Exciton Linewidth in Epitaxial GaAs“. In: *Physical Review Letters* 23.23 (Dez. 1969), S. 1332–1335. DOI: 10.1103/physrevlett.23.1332.

[156] S. Schmitt-Rink, D. S. Chemla und D. A. B. Miller. „Theory of transient excitonic optical nonlinearities in semiconductor quantum-well structures“. In: *Physical Review B* 32.10 (Nov. 1985), S. 6601–6609. DOI: 10.1103/physrevb.32.6601.

[157] G. Manzke, K. Henneberger und V. May. „Many-Exciton Theory for Multiple Quantum-Well Structures“. In: *physica status solidi (b)* 139.1 (Jan. 1987), S. 233–239. DOI: 10.1002/pssb.2221390121.

[158] M. Stein, F. Schäfer und L. Gomell. „Inelastic electron-exciton scattering in bulk germanium“. In: *Physical Review B* 99.14 (Apr. 2019), S. 144310. DOI: 10.1103/physrevb.99.144310.

[159] Dai-Sik Kim u. a. „Giant excitonic resonance in time-resolved four-wave mixing in quantum wells“. In: *Physical Review Letters* 68.7 (Feb. 1992), S. 1006–1009. DOI: 10.1103/physrevlett.68.1006.

[160] Jürgen Kuhl u. a. „Optical dephasing and orientational relaxation of wannier-excitons and free carriers in GaAs and GaAs/$Al_xGa_{1-x}As$ quantum wells“. In: *Advances in Solid State Physics*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1989, S. 157–181. DOI: 10.1007/bfb0108011.

[161] H. P. Wagner u. a. „Coherent optical nonlinearities and phase relaxation of quasi-three-dimensional and quasi-two-dimensional excitons in ZnS_xSe_{1-x}/ZnSe structures“. In: *Physical Review B* 56.19 (Nov. 1997), S. 12581–12588. DOI: 10.1103/physrevb.56.12581.

[162] H. Schwab u. a. „Dynamics of Excitons in CdS, CdSe, and $CdS_{1-x}Se_x$“. In: *physica status solidi (b)* 172.2 (Aug. 1992), S. 479–519. DOI: 10.1002/pssb.2221720202.

[163] Kevin M. Coakley und Michael D. McGehee. „Conjugated Polymer Photovoltaic Cells“. In: 16.23 (Aug. 2004), S. 4533–4542. DOI: 10.1021/cm049654n.

[164] Meng-Lin Tsai u. a. „Monolayer MoS_2 Heterojunction Solar Cells“. In: 8.8 (Juli 2014), S. 8317–8322. DOI: 10.1021/nn502776h.

[165] Zhi-Kuang Tan u. a. „Bright light-emitting diodes based on organometal halide perovskite“. In: 9.9 (Aug. 2014), S. 687–692. DOI: 10.1038/nnano.2014.149.

[166] Gerasimos Konstantatos u. a. „Hybrid graphene-quantum dot phototransistors with ultrahigh gain“. In: 7.6 (Mai 2012), S. 363–368. DOI: 10.1038/nnano.2012.60.

[167] Oriol Lopez-Sanchez u. a. „Ultrasensitive photodetectors based on monolayer MoS_2“. In: 8.7 (Juni 2013), S. 497–501. DOI: 10.1038/nnano.2013.100.

[168] Felix Deschler u. a. „High Photoluminescence Efficiency and Optically Pumped Lasing in Solution-Processed Mixed Halide Perovskite Semiconductors“. In: 5.8 (Apr. 2014), S. 1421–1426. DOI: 10.1021/jz5005285.

[169] Zhibin Yang u. a. „Enhancing electron diffusion length in narrow-bandgap perovskites for efficient monolithic perovskite tandem solar cells“. In: 10.1 (Okt. 2019). DOI: 10.1038/s41467-019-12513-x.

[170] U. Siegner u. a. „Optical dephasing in semiconductor mixed crystals“. In: *Physical Review B* 46.8 (Aug. 1992), S. 4564–4581. DOI: 10.1103/physrevb.46.4564.

[171] Hui Zhao, Sebastian Moehl und Heinz Kalt. „Coherence Length of Excitons in a Semiconductor Quantum Well“. In: *Physical Review Letters* 89.9 (Aug. 2002), S. 097401. DOI: 10.1103/physrevlett.89.097401.

[172] D. J. Hagan u. a. „Carrier diffusion measurements in InSb by the angular dependence of degenerate four-wave mixing“. In: *Optics Letters* 10.4 (Apr. 1985), S. 187. DOI: 10.1364/ol.10.000187.

[173] Shuo Cao u. a. „Resolving exciton diffusion in InGaAs quantum wells using microphotoluminescence mapping with a lateral excitation“. In: *Semiconductor Science and Technology* 28.12 (Okt. 2013), S. 125004. DOI: 10.1088/0268-1242/28/12/125004.

[174] V. Malyarchuk u. a. „Nanoscopic measurements of surface recombination velocity and diffusion length in a semiconductor quantum well“. In: *Applied Physics Letters* 81.2 (Juli 2002), S. 346–348. DOI: 10.1063/1.1492307.

[175] J. Hegarty, L. Goldner und M. D. Sturge. „Localized and delocalized two-dimensional excitons in GaAs-AlGaAs multiple-quantum-well structures“. In: *Physical Review B* 30.12 (Dez. 1984), S. 7346–7348. DOI: 10.1103/physrevb.30.7346.

[176] F. Cadiz u. a. „Exciton diffusion in WSe_2 monolayers embedded in a van der Waals heterostructure“. In: *Applied Physics Letters* 112.15 (Apr. 2018), S. 152106. DOI: 10.1063/1.5026478.

[177] Martin Vollmer u. a. „Ultrafast nonlinear subwavelength solid immersion spectroscopy at T=8 K“. In: *Applied Physics Letters* 74.13 (März 1999), S. 1791–1793. DOI: 10.1063/1.123087.

[178] Y. Nagamune u. a. „One-dimensional exciton diffusion in GaAs quantum wires“. In: *Applied Physics Letters* 67.11 (Sep. 1995), S. 1535–1537. DOI: 10.1063/1.114484.

[179] W. Heller u. a. „Direct measurement of exciton diffusion in quantum wells“. In: *Solid-State Electronics* 40.1-8 (Jan. 1996), S. 725–728. DOI: 10.1016/0038-1101(95)00351-7.

[180] Z. Vörös u. a. „Long-Distance Diffusion of Excitons in Double Quantum Well Structures“. In: *Physical Review Letters* 94.22 (Juni 2005), S. 226401. DOI: 10.1103/physrevlett.94.226401.

[181] H. Hillmer u. a. „Optical investigations on the mobility of two-dimensional excitons in $GaAs/Ga_{1-x}Al_xAs$ quantum wells“. In: *Physical Review B* 39.15 (Mai 1989), S. 10901–10912. DOI: 10.1103/physrevb.39.10901.

[182] J. Hegarty und M. D. Sturge. „Studies of exciton localization in quantum-well structures by nonlinear-optical techniques“. In: *Journal of the Optical Society of America B* 2.7 (Juli 1985), S. 1143. DOI: 10.1364/josab.2.001143.

[183] C. Klingshirn und H. Haug. „Optical properties of highly excited direct gap semiconductors“. In: *Physics Reports* 70.5 (Apr. 1981), S. 315–398. DOI: 10.1016/0370-1573(81)90190-3.

[184] D. Huang u. a. „Excitonic absorption in modulation-doped $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$ quantum wells“. In: *Physical Review B* 38.2 (Juli 1988), S. 1246–1250. DOI: 10.1103/physrevb.38.1246.

[185] Alexander W. Achtstein u. a. „Tuning exciton diffusion, mobility and emission line width in CdSe nanoplatelets via lateral size“. In: *Nanoscale* 12.46 (2020), S. 23521–23531. DOI: 10.1039/d0nr04745g.

[186] Karlheinz Seeger. *Semiconductor Physics: An Introduction*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, Juni 2004. 552 S. ISBN: 3540219579.

[187] S. W. Koch u. a. „Semiconductor excitons in new light“. In: *Nature Materials* 5.7 (Juli 2006), S. 523–531. DOI: 10.1038/nmat1658.

[188] J. P. Wolfe. „Transport of degenerate electron-hole plasmas in Si and Ge“. In: *Journal of Luminescence* 30.1-4 (Feb. 1985), S. 82–113. DOI: 10.1016/0022-2313(85)90045-6.

[189] L. M. Smith u. a. „Phonon-wind-driven transport of photoexcited carriers in a semiconductor quantum well“. In: *Physical Review B* 39.3 (Jan. 1989), S. 1862–1870. DOI: 10.1103/physrevb.39.1862.

[190] K. Leo, W. W. Rühle und K. Ploog. „Hot-carrier energy-loss rates in GaAs/$Al_xGa_{1-x}As$ quantum wells“. In: *Physical Review B* 38.3 (Juli 1988), S. 1947–1957. DOI: 10.1103/physrevb.38.1947.

[191] Hidefumi Akiyama, Toshio Matsusue und Hiroyuki Sakaki. „Carrier scattering and excitonic effects on electron-hole-pair diffusion in nondoped an p-type-modulation-doped GaAs/$Al_xGa_{1-x}As$ quantum-well structures“. In: *Physical Review B* 49.20 (Mai 1994), S. 14523–14530. DOI: 10.1103/physrevb.49.14523.

[192] C. Guillemot u. a. „Temperature dependence of electron mobility in GaAs-$Ga_{1-x}Al_xAs$ modulation-doped quantum wells“. In: *Physical Review B* 35.6 (Feb. 1987), S. 2799–2807. DOI: 10.1103/physrevb.35.2799.

[193] H. Sakaki u. a. „Interface roughness scattering in GaAs/AlAs quantum wells“. In: *Applied Physics Letters* 51.23 (Dez. 1987), S. 1934–1936. DOI: 10.1063/1.98305.

[194] R. Gottinger u. a. „Interface Roughness Scattering and Electron Mobilities in Thin GaAs Quantum Wells“. In: *Europhysics Letters* 6.2 (Mai 1988), S. 183–188. DOI: 10.1209/0295-5075/6/2/015.

[195] P. K. Basu und Partha Ray. „Calculation of the mobility of two-dimensional excitons in a GaAs/$Al_xGa_{1-x}As$ quantum well“. In: *Physical Review B* 44.4 (Juli 1991), S. 1844–1849. DOI: 10.1103/physrevb.44.1844.