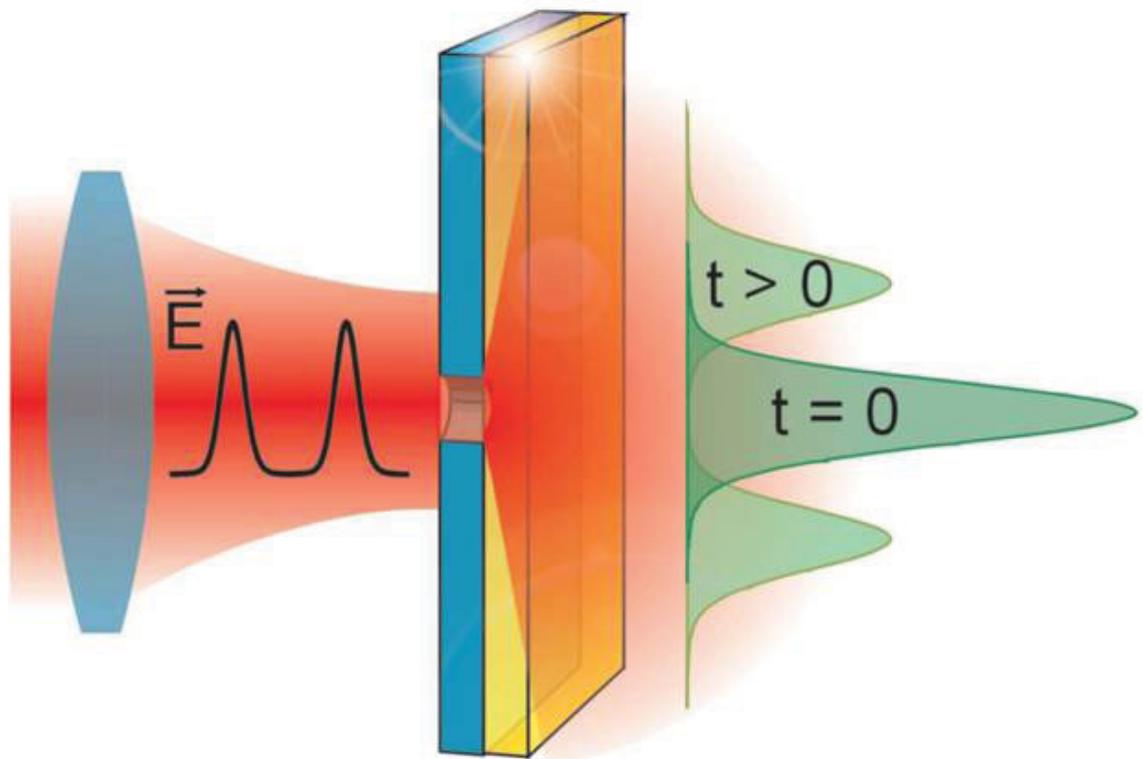


Jochen Hetzler

Optische Nanoaperturen zur Untersuchung der raumzeitlichen Ladungsträgerdynamik im Halbleiter Galliumarsenid



Universität Karlsruhe (TH)
Institut für Angewandte Physik

**Optische Nanoaperturen
zur Untersuchung der
raumzeitlichen Ladungsträgerdynamik
im Halbleiter Galliumarsenid**

Zur Erlangung des akademischen Grades eines
DOKTORS DER NATURWISSENSCHAFTEN
von der Fakultät für Physik der Universität Karlsruhe (TH)

genehmigte

DISSERTATION

von

Diplom-Physiker Jochen Hetzler
aus Landau in der Pfalz

Tag der mündlichen Prüfung 20. Juli 2001
Referent: Prof. Dr. Martin Wegener
Korreferent: Prof. Dr. Heinz Kalt

Die Deutsche Bibliothek - CIP-Einheitsaufnahme

Hetzler, Jochen:

Optische Nanoaperturen zur Untersuchung der raumzeitlichen Ladungsträgerdynamik im Halbleiter Galliumarsenid / von Jochen Hetzler. -

1. Aufl. - Göttingen : Cuvillier, 2001

Zugl.: Karlsruhe (TH), Univ., Diss., 2001

ISBN 3-89873-185-5

© CUVILLIER VERLAG, Göttingen 2001

Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen

Telefon: 0551-54724-0

Telefax: 0551-54724-21

www.cuvillier.de

Alle Rechte vorbehalten. Ohne ausdrückliche Genehmigung des Verlages ist es nicht gestattet, das Buch oder Teile daraus auf fotomechanischem Weg (Fotokopie, Mikrokopie) zu vervielfältigen.

1. Auflage, 2001

Gedruckt auf säurefreiem Papier

ISBN 3-89873-185-5

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	3
2	Herstellung von Nanoaperturen	7
2.1	Anforderungen an das Material der Masken	8
2.2	Belackung der Proben	10
2.3	Elektronenstrahlolithographie	11
2.4	Entwicklung des Photoresists	13
2.5	Metallbedampfung	14
2.6	Lift-Off-Prozess	15
2.7	Entfernen des GaAs-Substrats	16
2.8	Beschreibung der GaAs-Proben	17
3	Raumzeitliche Ladungsträgerdynamik	21
3.1	Grundlagen: Klassischer Transport	21
3.1.1	Die Boltzmann-Gleichung	21
3.1.2	Die Diffusionsgleichung	26
3.1.3	Transport bei hohen Dichten	29
3.1.4	Ballistischer Transport	30
3.2	Transport in Galliumarsenid	33
3.3	Optik und Nanoaperturen	37
3.3.1	Optische Eigenschaften metallischer Nanoaperturen	37
3.3.2	Halbleiteroptik unter Nanoaperturen	43
3.4	Experimenteller Aufbau	44
3.4.1	Beschreibung	44
3.4.2	Charakterisierung	47
3.5	Ergebnisse und Diskussion	50

4 Einfluss der Nanoaperturen	63
4.1 Photolumineszenzexperimente an Metallaperturen	63
4.2 Diskussion der Rotverschiebung	69
4.3 Modell des Metall-Halbleiter-Kontakts	70
4.3.1 Der eindimensionale Fall	70
4.3.2 Statisches Potential unter der Apertur	73
4.3.3 Dynamik optisch angeregter Ladungsträger	77
4.4 Modell der Verspannung des Halbleiterfilms	81
4.5 Experimente mit Variation des Potentials der Metallmaske	88
4.6 Experimente zum Einfluss des Materials in den Aperturen	90
4.7 Lumineszenzexperimente mittels Nahfeldmikroskop	92
5 Zusammenfassung und Ausblick	97
Literaturverzeichnis	101

Kapitel 1

Einleitung

Die Nanotechnologie befasst sich mit der Erforschung und Entwicklung von Systemen auf einer Nanometerskala (ein Nanometer = ein millionstel Millimeter). Objekte auf dieser Größenskala liegen typischerweise zwischen der Ausdehnung eines Moleküls (~ 1 nm) und Strukturen, die gerade noch unter einem konventionellen Lichtmikroskop beobachtet werden können (mehrere 100 nm). Solche Systeme verhalten sich entschieden anders, als man zunächst erwarten würde. Die Eigenschaften können nicht von größeren Objekten durch einfaches Skalieren abgeleitet werden, so wie etwa das Prinzip einer alten Kirchturmuhren in einer mechanischen Armbanduhr verwirklicht werden kann. Die fundamentale Problematik besteht jedoch nicht in der Schwierigkeit, die die Erzeugung von immer kleiner und kleineren Objekten mit sich bringt, sie ist von viel allgemeinerer Natur. Die Gesetze der klassischen Mechanik versagen in der Nanowelt. Die Physik stand schon Anfang des 20. Jahrhunderts vor diesem Dilemma. Selbst scheinbar relativ einfache Beobachtungen, wie die Wärmestrahlung von heißen Körpern, konnten mit der klassischen Physik nicht erklärt werden. Erst die Einführung der Energiequanten des Lichts, für die der Physiker Max Planck 1918 den Nobelpreis erhielt, konnte das Problem lösen. Damit war der Grundstein für eine neue Theorie gelegt. Diese Quantentheorie kann auch die Natur im Nanokosmos richtig beschreiben. Das Plancksche Wirkungsquantum h , eine der fundamentalen Naturkonstanten, beschreibt das charakteristische sprunghafte Verhalten in der Nanowelt. Viele physikalische Größen, wie beispielsweise Drehimpuls und Energie ändern sich nicht kontinuierlich, sondern nur in diskreten Werten. Das Wirkungsquantum liefert auch den Zusammenhang zwischen dem Wellen- und Teilchencharakter einer Strahlung. Diese Quantisierung verändert die ganze Physik bei der Beschreibung solcher kleiner Systeme. Die Nanotechnologie versucht die völlig neuartigen Eigenschaften auf diesen Größenskalen zu beherrschen. Dies setzt jedoch ein grundlegendes Verständnis der physikalischen Vorgänge auf einer Nanometerskala voraus.

Um den Begriff der Nanotechnologie etwas zu konkretisieren, werden hier ein paar Anwendungen aufgezeigt [1]. Die Aufzählung erhebt keinen Anspruch auf Vollständigkeit, vielmehr soll gezeigt werden, dass die Nanotechnologie weit mehr ist als nur eine Spielwiese der Wissenschaft. Viele Produkte basieren schon heute auf dieser Technologie.

Eine der Triebfedern für den Vorstoß in die Nanowelt ist mit Sicherheit die Halbleitertechnologie. Schnellere Prozessoren und höhere Speicherkapazität lassen sich nur durch eine immer höhere Integrationsdichte verwirklichen. Aktuell werden Strukturen von 130 nm Breite mit Hilfe der Ultraviolett-Lithographie erzeugt [2]. Neben der Chipherstellung existieren noch viele weitere Einsatzbereiche, die man vielleicht zunächst gar nicht mit der Nanotechnologie in Verbindung bringt. In der Energietechnik erhofft man sich leistungsfähigere Brennstoffzellen und Batterien. Die ultrapräzise Bearbeitung von Oberflächen ermöglicht die Herstellung von Spezialoptiken. Mit ultradünnen Schichten lassen sich neuartige Sensoren, Aktuatoren, Membranen und Katalysatoren herstellen. Nanopartikel sollen zu neuen Produkten in der Kosmetik, Pharmazie und Optik führen. Maßgeschneiderte Moleküle durch Selbstorganisation werden in der Chemie der Zukunft in Pharmazeutika, Farben und Kleb- oder Schmierstoffen Verwendung finden. In der Medizin denkt man an Nanopartikel, mit deren Hilfe Medikamente erst selektiv vor Ort ihr pharmakologisches Potential entfalten.

In der Analytik der Nanostrukturen spielt neben der Elektronenmikroskopie die Raster-sondentechnik eine entscheidende Rolle [3]. Während die reine Abtastung *nur* die Topographie der Oberfläche liefert, existieren spezielle Sonden, die auch Reibung, magnetische oder elektrische Felder, Temperatur, Leitfähigkeit oder das Oberflächenpotential auf einer Nanometerskala ausmessen können. Inzwischen können einzelne Atome beobachtet und sogar manipuliert werden [4]. In der Nanooptik werden Glasfaserspitzen verwendet, die metallische Aperturen oder Nahfeld-Verstärkungseffekte ausnutzen und es somit ermöglichen, mit optischer Spektroskopie das klassische Beugungslimit [5] zu umgehen [6]. Diese Nahfeldspektroskopie wird beispielsweise auch in dieser Arbeit zur Untersuchung der Aperturen auf einer Halbleiteroberfläche eingesetzt.

Die Kombination der Halbleiteroptik mit der Nanotechnologie eröffnet ein hochinteressantes Forschungsgebiet. Wird die Bewegungsfreiheit von Elektronen und Löchern in einer oder mehreren Dimensionen eingeschränkt, so kommt es zu Quanteneffekten, über die sich beispielsweise die Wellenlänge des emittierten Lichts einstellen lässt. Quantenfilmlaser basieren auf diesem Effekt. Die Bewegungseinschränkung in einer Dimension kann durch die schichtweise Verwendung von Halbleiterverbindungen mit unterschiedlicher Bandlücke, sogenannten Heterostrukturen, erfolgen. Quantenfilmbasierende Halbleiterlaser haben heute bereits ein Weltmarktvolumen von fast 3 Mrd. DM, und für das Jahr 2001 wird eine Verdopplung des Umsatzes prognostiziert [1]. Die sowohl wissenschaftliche wie auch gesellschaftliche Relevanz dieses Arbeitsgebiets wird auch durch den Physik-Nobelpreis des Jahres 2000 untermauert. Dieser ging für grundlegende Arbeiten in der Informations- und Kommunikationstechnologie an Zhores I. Alferov, Herbert Kroemer und Jack Kilby. Alferov und Kroemer wurden für die Entwicklung von Halbleiterheterostrukturen für Hochgeschwindigkeits- und Optoelektronik ausgezeichnet. Diese Halbleiterheterostrukturen sind in den letzten Jahren zu einem idealen Testsystem für die Beobachtung quantenmechanischer Phänomene geworden. So erhielten Laughlin, Störmer und Tsui den Physik-Nobelpreis 1998 für die Entdeckung des fraktionalen Quantenhalfeffekts. Bei Untersuchungen von Halbleiterheterostrukturen in einem starken Magnetfeld entdeckten sie eine neue Form von Quantenflüssigkeit, in der An-

regungen mit gebrochenzahliger Elementarladung existieren.

In dieser Arbeit geht es um die räumliche Dynamik von optisch angeregten Elektronen und Löchern in solchen Halbleiterheterostrukturen aus Galliumarsenid und Aluminiumgalliumarsenid. Stöße zwischen den Ladungsträgern und mit Phononen (Störungen im Kristallgitter), führen zu einer Phasen- und Energierelaxation und beeinflussen natürlich auch die räumliche Ausbreitung. In den meisten Experimenten auf einer Skala von mehreren Mikrometern kann die Bewegung der Ladungsträger durch einen diffusiven Transport beschrieben werden. Im Falle elektrischer Felder kommt eine Driftbewegung hinzu. Die Bewegung wird dominiert von Stößen. Der Energieaustausch bewirkt, dass sich die Teilchen im thermischen Gleichgewicht befinden oder sehr schnell in diesen Zustand gelangen. Die ganze Dynamik wird in diesem Fall nur durch die Beweglichkeit der Ladungsträger und ihrer Temperatur bestimmt. Es wird aber erwartet, dass die gesamte Beschreibung ihre Gültigkeit verliert, wenn man sich das Verhalten auf einer kleinen räumlichen Skala mit hoher Zeitaufösung betrachtet. Die Dynamik von optisch angeregten Ladungsträgern auf dieser Nanometer-Femtosekunden-Skala ist Thema dieser Arbeit.

An dieser Stelle sollen zuerst die typischen zeitlichen und räumlichen Skalen veranschaulicht werden. In einem wenige Nanometer dicken Quantenfilm wird in kurzer Zeit, beispielsweise 100 fs, eine sehr kleine Wolke aus Ladungsträgern erzeugt. Die anfängliche Ausdehnung der Wolke soll 100 nm betragen. Die Dynamik der zeitlichen Ausdehnung der als gaußförmig angenommenen Ladungsträgerverteilung wird mit Hilfe der Diffusionsgleichung berechnet. Bei einer typischen Diffusionskonstante für GaAs von $70 \text{ cm}^2/\text{s}$ sollte nach einer Zeit von 386 fs die Breite der Verteilung auf 200 nm angewachsen sein. Dies bedeutet, dass Teilchen in dieser Zeit eine Strecke von 50 nm durchlaufen müssen. Dazu benötigen sie eine Geschwindigkeit von 129 km/s, entsprechend einer kinetischen Energie von 47 meV. Die Überschussenergie infolge der spektralen Breite von 100 fs-Impulsen liegt bei resonanter Anregung an der Bandkante des Halbleiters aber nur im Bereich von 5 meV. Daraus kann gefolgert werden, dass die Diffusionsgleichung bei großen Dichtegradienten eine zu schnelle Bewegung vorhersagt. Auf dieser Skala kann die Bewegung nicht mehr durch einfache Diffusion beschrieben werden.

Bei Experimenten zur Beobachtung einer solchen Dynamik müssen zwei Anforderungen erfüllt werden. Der erste Punkt betrifft die zeitliche Auflösung der Messapparatur. Dieses Problem kann durch einen Laser mit ultrakurzen Lichtimpulsen gelöst werden. Die rasante Entwicklung der modengekoppelten Festkörperlaser in den letzten Jahren ermöglicht heute standardmäßig die Erzeugung von Impulsen mit einer Dauer von weniger als 100 fs. Die Methode der differentiellen Transmissionspektroskopie erlaubt das Erzeugen von Ladungsträgern und die Beobachtung der zeitlichen Entwicklung der Ladungsträgerdichte über Nichtlinearitäten des Halbleitermaterials, wie beispielsweise das Ausbleichen aufgrund besetzter Zustände im Leitungsband. Diese Methode ermöglicht es somit, die zeitliche Entwicklung der Ladungsträgerwolke zu studieren. Der zweite, schwieriger zu realisierende Punkt betrifft die räumliche Auflösung. In der Fernfeldoptik ist die Auflösung prinzipiell auf die Größe der halben Wellenlänge des Lichts beschränkt. Soll im Experiment Galliumar-

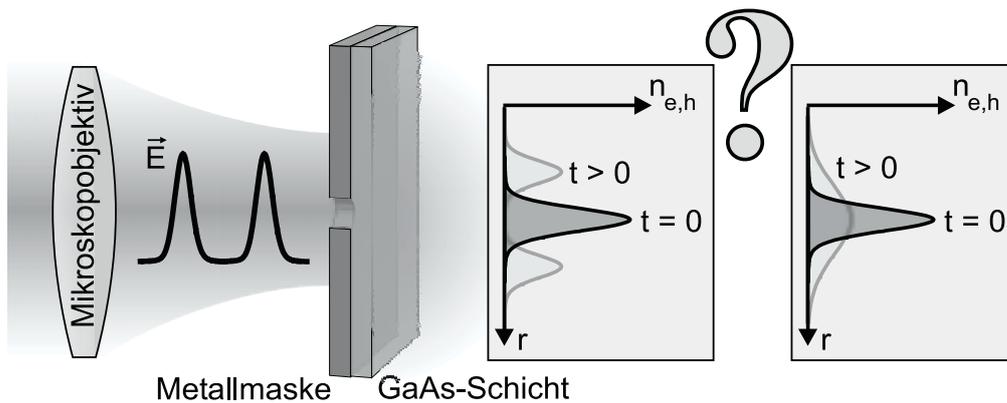


Abbildung 1.1: Die Abbildung zeigt schematisch das Experiment zur Untersuchung der raumzeitlichen Ladungsträgerdynamik in Halbleitern.

senid bei tiefen Temperaturen in der Nähe der Bandkante angeregt werden, so beträgt die Wellenlänge ca. 820 nm. In einem Kryostaten ist somit eine realistische Auflösung mittels Mikroskopobjektiv ca. $1 \mu\text{m}$. Bessere Auflösungen erhält man mit einem optischen Nahfeldmikroskop oder durch Verwendung von Nahfeldmasken. Die Vorteile von Nahfeldmasken liegen neben der einfacheren experimentellen Realisierung auch in der Möglichkeit, auf einer Probe Aperturen mit unterschiedlichem Durchmesser im Metallfilm zu erzeugen. Auf diese Weise können sehr definiert verschiedene Anfangsverteilungen der Ladungsträger präpariert und speziell auch die Abhängigkeit von der Breite der Verteilung untersucht werden. Ein prinzipieller Nachteil dieser Art von Experimenten liegt darin, dass nur das Weglaufen der Ladungsträger unter der Apertur beobachtbar ist. Das Erreichen einer bestimmten Position oder Durchlaufen einer definierten Wegstrecke ist nicht direkt messbar.

Die schematische Darstellung des Experiments ist in Abbildung 1.1 gezeigt. Die beiden Laserimpulse werden mittels eines Mikroskopobjektivs auf die Probe fokussiert. Der $1 \mu\text{m}$ große Fokus wird über einer Apertur positioniert. Der erste Impuls erzeugt die Ladungsträgerwolke, und der zweite Impuls tastet die Dichte der Wolke hinter der Apertur zeitverzögert ab. Aus einer solchen Messung lassen sich Informationen über die raumzeitliche Dynamik der Ladungsträger gewinnen. Die differentielle Transmissionsspektroskopie an metallischen Nanoaperturen erlaubt somit die räumliche und zeitliche Dynamik der Ladungsträger auf einer 100 nm und 100 fs Skala zu studieren.

Die Arbeit ist in drei Kapitel eingeteilt: Im ersten Teil wird die Herstellung der optischen Nanoaperturen mittels Elektronenstrahlolithographie beschrieben. Das anschließende Kapitel befasst sich mit den eigentlichen Experimenten zur raumzeitlichen Ladungsträgerdynamik und deren Beschreibung durch einfache Modelle. Im letzten Kapitel wird der Einfluss der Nanoaperturen auf den Halbleiter untersucht.

Kapitel 2

Herstellung von Nanoaperturen

Die Nanostrukturierung einer Metallschicht kann mit Hilfe unterschiedlicher Methoden durchgeführt werden. Eine direkte und sehr präzise Herstellung von Aperturen ist durch direkte Ionenstrahlabtragung möglich [7]. Derart hergestellte Strukturen verblüffen durch hohe Aspektverhältnisse und sehr geringen Abweichungen von der vorgegebenen lateralen Form. Der wesentliche Nachteil besteht in der Schädigung des darunterliegenden Materials durch den Ionenbeschuss, sodass dieses Verfahren nicht für die Strukturierung auf Halbleitern eingesetzt werden kann.

Eine sanftere Methode der Strukturierung ist durch die Verwendung eines Photolacks möglich. Die Strukturen werden durch Belichten im ultravioletten Spektralbereich oder Beschreiben mit einem Elektronenstrahl im Lack erzeugt und anschließend in den Metallfilm übertragen. Die Auflösung der konventionellen optischen Lithographie ist jedoch durch die verwendete Wellenlänge definiert. Strukturgrößen unter ca. 400 nm sind mit einem erheblichen technischen Aufwand verbunden. In der Halbleiterindustrie rechnet sich dieser Aufwand, da der nötige hohe Durchsatz momentan nur mit der optischen Lithographie erreicht werden kann. Zur Herstellung der Nanoaperturen bietet sich für uns vor allem die Elektronenstrahlolithographie an. Standardmäßig lassen sich Strukturen von 100 nm und kleiner herstellen. Typische Schreibzeiten für eine Probe liegen im Minutenbereich. Mit Hilfe einer rechnergesteuerten Elektronik wurde das Elektronenmikroskop als Elektronenstrahlschreiber verwendet. Die Übertragung der Struktur in den Metallfilm kann über zwei mögliche Prozesse erfolgen. Im ersten Fall wird das positive Abbild im Lack mittels Ätzprozess auf einen darunterliegenden Metallfilm übertragen. Der Lift-Off-Prozess verwendet ein negatives Abbild im Lack. Das darauf aufgedampfte Metall kann auf den Flächen mit Lack wieder entfernt werden.

Für den Ätzprozess wird der Elektronenstrahllack über der Metallschicht aufgebracht. Wir verwenden als Positivresist PMMA (Polymethylmethacrylate) mit einem Molekulargewicht von 950 k [8, 9, 10]. Der Bereich der Aperturen wird mit dem Elektronenstrahl belichtet und durch Entwickeln entfernt. Danach wird durch Ätzen die Maske im Lack auf den Metallfilm übertragen. Das wesentliche Problem dieser Methode liegt im Ätzprozess. Da uns keine Anlage zum Ätzen mit reaktiven Ionen zur Verfügung steht, bleibt nur nasschemisches

Ätzen. Dies ist jedoch isotrop und führt damit zu Unterätzungen des Lacks. Der Aperturdurchmesser hängt damit stark von der Ätzdauer bzw. Ätzrate ab, außerdem lässt sich kaum bestimmen, zu welchem Zeitpunkt der Metallfilm komplett durchgeätzt ist. Desweiteren sind die Ränder der Aperturen sehr rau. Diese Technik wurde zu Anfang dieser Arbeit getestet. Eine genauere Beschreibung ist in der Diplomarbeit von Zoltan Nagy [11] zu finden. Die Methode kann verwendet werden um Strukturen mit kleinem Aspektverhältnis zu präparieren. Solche Proben sind beispielsweise ideale Teststrukturen für ein optisches Rasternahfeldmikroskop [12]. An dieser Stelle soll nicht genauer auf den Ätzprozess eingegangen werden, da der Lift-Off-Prozess deutlich bessere Ergebnisse liefert.

Die Herstellung der Nanostrukturen mit Hilfe dieses Lift-Off-Prozesses soll detaillierter beschrieben werden. Eine ausführliche Beschreibung ist auch in der Diplomarbeit von Alexander Brunner zu finden [13]. Im ersten Schritt wird der Negativresist direkt auf das Substrat aufgebracht. Nach der Elektronenstrahlbelichtung werden die nicht belichteten Flächen im Entwickler entfernt. Es bleibt ein negatives Bild der Maske im Lack. Darauf wird die Metallschicht aufgedampft. Im Anschluss werden die entwickelten Lackstrukturen im Lösungsmittel mitsamt dem aufgedampften Metall entfernt. Das Metall auf den Flächen ohne Lack bleibt zurück und bildet den strukturierten Metallfilm. Die anschließenden Abschnitte gehen auf jeden dieser Prozessschritte genauer ein.

2.1 Anforderungen an das Material der Masken

An erster Stelle steht die Wahl des Materials für die Masken. Das Material muss lichtundurchlässig für die im Experiment verwendete Wellenlänge sein. Ideale Masken für die Spektroskopie wären infinitesimal dünn bei einer Transmission von null außerhalb der Aperturen und einer Transmission von eins in den Aperturen. Realistischer Weise ist natürlich eine endliche Dicke der Maske notwendig, um eine bestimmte Lichtabschwächung zu erhalten. Die hierfür notwendige Dicke der Schicht ist ein wesentliches Kriterium. Eine einfache Abschätzung kann wie folgt aussehen. Der überwiegende Anteil des transmittierten Lichts soll durch die Apertur gehen und beispielsweise nur 1% der Intensität durch den Bereich um die Apertur. Dieser Anteil kann klein gehalten werden, falls die beleuchtete Fläche auf der Maske klein ist. Mit konventioneller Fernfeldoptik sollte ein Fokusedurchmesser von $1\ \mu\text{m}$ erreicht werden. Sollen Aperturen bis 100 nm Durchmesser hergestellt werden, so beträgt das Flächenverhältnis der Apertur zu der beleuchteten Fläche 1:100. Für Aperturen kleiner als die Wellenlänge ist die geometrische Optik nicht mehr gültig. Als Folge des Wellencharakters des Lichts wird nicht mehr die gesamte Intensität, die auf die Apertur fällt transmittiert. Dieser Mechanismus reduziert die Transmission für 100 nm-Aperturen um ca. einen Faktor 10 (siehe Abschnitt 3.3.1). Wird von diesen Zahlenwerten ausgegangen, so ist eine Abschwächung der Intensität durch die Maske von 10^5 nötig. Eine 100 nm Apertur ist wegen des experimentell erreichbaren Aspektverhältnisses von ca. 1:1 nur in einer ca. 100 nm oder dünneren Schicht realisierbar. Die Anforderungen einer Abschwächung um fünf Größenordnungen für eine Schichtdicke von 100 nm kann nur durch eine metallische Maske erfüllt

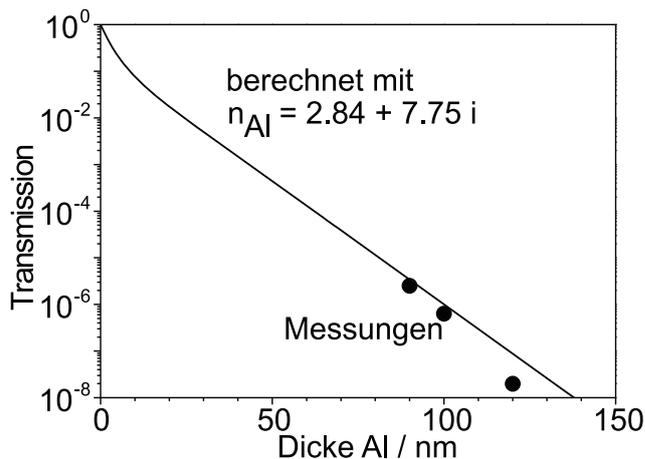


Abbildung 2.1: Transmission durch einen Aluminiumfilm als Funktion der Dicke bei $\lambda = 800 \text{ nm}$ und $T = 300 \text{ K}$. Punkte: Messungen an aufgedampften Schichten mit Dicken um 100 nm . Durchgezogene Linie: Berechnete Transmission mit Berücksichtigung der Anschlussbedingungen an den Grenzflächen. Dies verursacht eine leichte Krümmung der Kurve für geringe Dicken.

werden.

Die Auswahl des Metalls ist zusätzlich bestimmten Anforderungen unterworfen. Das Metall soll in einer Vakuumaufdampfanlage aufgebracht werden und somit für diesen Prozess geeignet sein. Es sollte beim Aufdampfen dünne, glatte und gut haftende Schichten liefern [14, 15, 16] und an der Luft chemisch stabil sein. Diese Kriterien limitieren die Auswahl der Kandidaten erheblich. Tabelle 2.1 gibt eine Übersicht über die optischen Eigenschaften bei 800 nm Wellenlänge.

Material	ϵ_1	ϵ_2	n_1	n_2	$I/I_0(d = 100 \text{ nm})$	$d(I/I_0 = 10^{-5})$
Al	-52	44	2.84	7.75	$1.0 \cdot 10^{-6}$	81 nm
Cr	-12	38	3.73	5.09	$9.2 \cdot 10^{-5}$	127 nm
Pt	-19	27	2.64	5.10	$1.0 \cdot 10^{-4}$	130 nm
Au	-26	1.6	0.16	5.10	$1.8 \cdot 10^{-4}$	136 nm

Tabelle 2.1: Zur Herstellung von optischen Masken geeignet erscheinende Metalle. Dielektrische Konstante $\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2$ und Brechungsindex $n = n_1 + in_2 = \sqrt{\epsilon}$ bei $T = 300 \text{ K}$ und $\lambda = 800 \text{ nm}$ sowie die daraus errechnete Transmission einer 100 nm Schicht und die benötigte Schichtdicke d für eine Abschwächung um fünf Größenordnungen.

Innerhalb der Metallschicht fällt die Intensität exponentiell ab. Der Imaginärteil des Brechungsindex n_2 und die Wellenlänge λ definieren die Absorptionskonstante α .

$$I(x) = I_0 \cdot e^{-\alpha x} \quad \text{mit} \quad \alpha = \frac{4\pi n_2}{\lambda}$$

Tabelle 2.1 berücksichtigt zusätzlich die Anschlussbedingungen an den Grenzflächen Vakuum-Metall und Metall-Vakuum, d. h. auch die Reflexion geht in die Rechnung mit ein. Das geeignetste Metall mit der höchsten optischen Dichte ist Aluminium. Abbildung 2.1 zeigt die gemessene und berechnete Transmission durch einen Aluminiumfilm. Als Anmerkung sei noch erwähnt, dass die gemessene Absorption α von Aluminiumschichten bei tiefen Temperaturen um ca. 10% abnimmt.

2.2 Belackung der Proben

Resist

GaAs

Ziel der Belackung ist ein möglichst homogener Lackfilm definierter Dicke. Wir verwenden einen auf Bisaziden basierenden Einkomponentenlack mit der Bezeichnung ma-N 2405¹. Der Photoresist besitzt eine spektrale Empfindlichkeit unterhalb 325 nm. Eine Verwendung in der Elektronenstrahlolithographie ist ebenso möglich. Die Belichtung verursacht eine Photolyse des Bisazids im Lack. Die beiden funktionelle Gruppen des gespaltenen Bisazids bewirken eine Verbrückung zweier Novolakoligomere. Die Folge ist eine Zunahme des Molekulargewichts der Novolakoligomere und damit einer Löslichkeitsabnahme für bestimmte Lösungsmittel [17, 11].

Zunächst ist auf eine gründliche Reinigung der Probenoberfläche zu achten. Wir verwenden Aceton (reinst) zusammen mit einer Behandlung im Ultraschallbad. Anschließend sollte die Probe mit Isopropanol abgespült und mit der Stickstoffpistole trocken geblasen werden. Das Aceton sollte nie direkt abgeblasen werden. Die starke Verdunstung kühlt die Probenoberfläche so stark ab, dass sich Kondenswasser bilden kann. Dies führt zu einem Verschmutzen der Proben. Die Chemie der Oberfläche beeinflusst stark die Hafteigenschaften und damit die Lackdicke. Schon kleine Partikel im Mikrometerbereich führen zu einem Meniskus und damit zu einer Erhöhung der Dicke um den Partikel in Bereichen von 10 μm bis 100 μm .

Das Aufbringen des Lacks erfolgt mit einer Lackschleuder. Die Dicke der Lackschicht lässt sich über Drehzahl, Dauer und Verdünnung des Lacks einstellen. Eine für unsere Zwecke sinnvolle Dicke von ca. 200 nm erhält man mit folgenden Parametern: Ein Mischungsverhältnis von 1:1 für den Photoresist ma-N 2405 und die Verdünnung ma-T 1024 bei einer Drehzahl von 700 U/min für 5 s und anschließend eine Drehzahl von 7000 U/min für 180 s. Die geringe Geschwindigkeit zu Anfang soll den Lack auf der gesamten Probe verteilen, die hohe Drehzahl über längere Zeit erzeugt die dünne und homogene Lackschicht. Die Änderung der Dicke der Lackschicht kann schon relativ gut anhand der Farbe der Probe beobachtet werden. Dies ist eine Folge der Interferenz des reflektierten Lichts an den beiden Grenzflächen. Da es an den Rändern grundsätzlich zu Lackwulsten kommt, sollten die Proben nicht kleiner als $5 \times 5 \text{ mm}^2$ sein. Der Lack aus diesen Randbereichen kann sich nach dem Belacken wieder langsam zur Mitte der Probe ziehen. Diese Problematik tritt bei Lacken auf, deren Lösungsmittel nur langsam verdampfen. Der Lack im Randbereich ist dann nach der Belackung noch flüssig. Aus diesem Grund soll die Dauer des Schleudervorgangs relativ lang sein (mehrere Minuten). Die Proben müssen anschließend sofort für 30 min in einen 90°C heißen Ofen gelegt werden, um den Lack vollständig zu trocknen.

¹Photolack: Negative Tone Photoresist ma-N 2405, Verdünner: ma-T 1024, Entwickler: ma-D 532, Micro Resist Technology GmbH, Köpenicker Str. 325, 12555 Berlin.

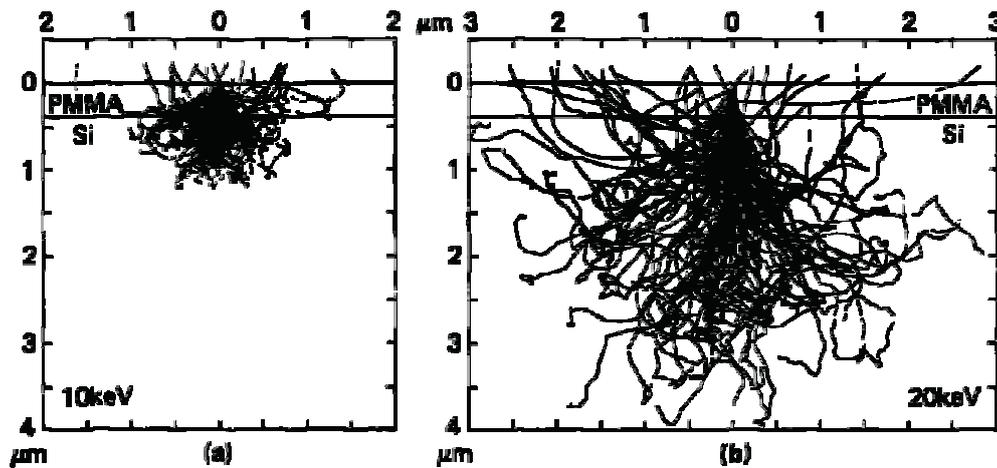
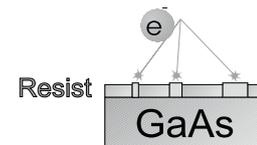


Abbildung 2.2: Monte-Carlo-Simulation der Laufbahnen von gestreuten Elektronen in einer 400 nm dicken PMMA Schicht auf einem Silizium-Substrat. Die Elektronen fallen in der Darstellung mittig von oben mit einer Energie von 10 keV bzw. 20 keV ein. [19].

2.3 Elektronenstrahlolithographie



Während die Auflösung der optischen Lithographie im wesentlichen durch die verwendete Lichtwellenlänge definiert ist, erzielt man mit der Elektronenstrahlolithographie wegen der sehr kleinen de Broglie-Wellenlänge (~ 0.01 nm bei 10 kV) der Elektronen eine viel höhere Auflösung. Im verwendeten Rasterelektronenmikroskop Jeol JSM-6300 F beträgt der Fokusbereich ca. 3 nm bei 30 kV Beschleunigungsspannung. Diese Grenze ist bedingt durch die Abbildungsfehler der magnetischen Linsen, die zudem auch nur eine sehr kleine numerische Apertur zulassen. Die Wechselwirkung zwischen den Elektronen limitiert den maximalen Strom bei gegebenem Fokusbereich. Neben dem Abbildungsmodus kann das Elektronenmikroskop auch zum Schreiben von Strukturen verwendet werden. Ein Rechner steuert dann die Strahlposition, die Verweildauer und das Unterbrechen des Strahlstroms. Durch mäanderförmiges Abfahren kann auch eine größere Fläche beschrieben werden. Der limitierende Faktor in der Auflösung ist jedoch in der Regel der verwendete Photoresist [18]. Die Belichtungsverteilung im Photoresist hängt vom Energieverlust der Elektronen durch Streuung ab. Typische Eindringtiefen von Elektronen betragen einige Mikrometer. Abbildung 2.2 zeigt Monte-Carlo-Simulationen für die Laufbahnen von Elektronen in PMMA auf Silizium.

Es sind hier zwei konkurrierende Aspekte zu beachten. Für größere Energien der Elektronen besitzt der primäre Streukegel einen kleineren Öffnungswinkel, d. h. die Auflösung wird besser. Andererseits wird der Energieverlust pro Strecke geringer, sodass mit höheren Dosen belichtet werden muss. Der unerwünschte Beitrag durch rückgestreute Elektronen (Proximity-Effekt [20]) steigt an. Es wird somit ein größerer räumlicher Bereich, wenn auch

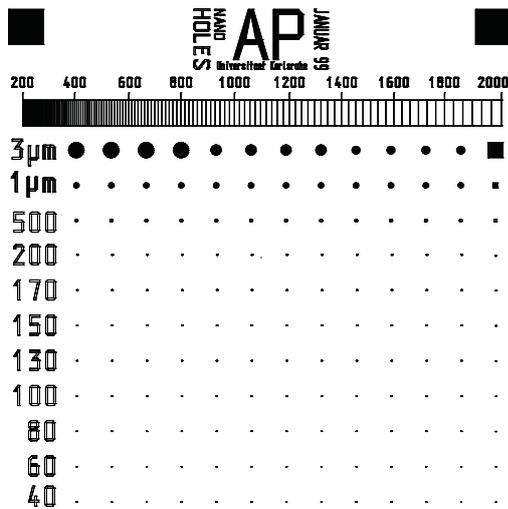


Abbildung 2.3: Muster zur Belichtung mittels Elektronenstrahlithographie. Die Größe des gesamten Bereichs beträgt $100 \times 100 \mu\text{m}^2$.

mit geringer Dosis, belichtet [21, 22, 23, 24, 25]. Für den Energieverlust pro Strecke eines Elektrons der Energie E bei kontinuierlicher Abbremsung durch Streuung an Atomen gilt

$$\frac{dE}{ds} = -\frac{2\pi e^4 N_A \rho Z}{(4\pi\epsilon_0)^2 EA} \ln\left(\gamma \frac{E}{J}\right) \propto -\frac{1}{E}$$

mit der Dichte ρ , dem Atomgewicht A , der Ordnungszahl Z , der mittlere Ionisationsenergie $J \ll E$, der Avogadro-Zahl N_A und relativistischen Effekten $\gamma = 1.166$.

Die benötigte Dosis zur kompletten Belichtung des Lacks wird in Ladung pro Flächeneinheit bei einer gewissen kinetischen Energie der Elektronen angegeben. In unseren Experimenten mit dem Photoresist ma-N 2405 bei einer Energie der Elektronen von 30 keV liegt die Dosis für Strukturgrößen um 100 nm bei $840 \mu\text{As}/\text{cm}^2$. Infolge des Proximity-Effektes muss aber bei großen Flächen ($> 1 \mu\text{m}$) die Dosis geringer gewählt werden ($240 \mu\text{As}/\text{cm}^2$), da hier die rückgestreuten Elektronen einen größeren Beitrag liefern. Bei typischen Schreibströmen von 13 pA werden ca. 20 s für eine komplett belichtete Fläche von $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ benötigt. Dies entspricht auch der Zeit zum Schreiben einer Struktur, wie in Abbildung 2.3 gezeigt.

Die Flächenbedeckung der beschriebenen Bereiche sollte nicht zu groß werden. Zum einen steigt die Schreibzeit an. Dies führt zu Problemen, falls sich die Probenposition durch Drift der Halterung verändert. Der Abstand zwischen Objekten innerhalb der Struktur weicht dann gering von den Vorgaben ab, was bei Erzeugung von regelmäßigen Gitterstrukturen sehr störend sein kann. Ein viel größeres Problem bei hoher Flächenbedeckung verursachen die rückgestreuten Elektronen. Kleine nicht beschriebene Bereiche umgeben von sehr großen beschriebenen Bereichen werden durch die rückgestreuten Elektronen ebenfalls belichtet. Die Erzeugung der Strukturen aus Abbildung 2.3 durch invertiertes Schreiben in einen Positivresist ist deshalb nicht möglich.

Die Steuerung des Schreibvorgangs wird durch das Programm Proxy95g² übernommen. Das Programm ermöglicht den Import von CAD Dateien oder die Erstellung der Struktu-

²Proxy Writer, Raith GmbH, Hauert 18, 44227 Dortmund

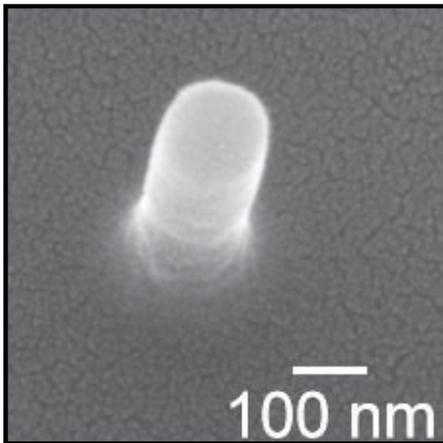


Abbildung 2.4: Elektronenmikroskopische Aufnahme einer entwickelten Struktur aus Negativresist ma-N 2405 auf GaAs zur späteren Erzeugung einer 100 nm-Apertur.

ren in einem eigenen Editor. Es können nahezu beliebige Objekte erstellt werden. Die Dosis kann für jedes Objekt relativ zur eingestellten Empfindlichkeit des Lacks verändert werden. Die Feldgröße des gesamten Bereichs (Schreibfenster) beträgt bei der höchsten Auflösung $100 \times 100 \mu\text{m}^2$. Dies entspricht der Einstellung einer 500 fachen Vergrößerung des Elektronenmikroskops. Das Programm benötigt die Feldgröße, die Empfindlichkeit des Photoresists (Dosis bei vollständiger Belichtung) in $\mu\text{As}/\text{cm}^2$ und den Strahlstrom ($\sim 13 \text{ pA}$) und berechnet daraus die Verweildauer pro Fläche bzw. pro Punkt auf dem Raster. Das Raster besteht aus 50000×50000 Punkten im Schreibfenster. Der Abstand der Rasterpunkte beträgt damit 2 nm. Das Programm ermöglicht auch die Ansteuerung des Verschiebetisches, auf dem sich die Probe befindet. Damit kann jede beliebige Position auf der Probe vor dem Schreiben angefahren werden. Der eigentliche Schreibvorgang läuft dann völlig automatisch ab. Der Strahl wird elektrisch abgelenkt sowie ein- und ausgeschaltet. Im Anschluss an diese hochauflösten Strukturen werden oftmals noch größere Strukturen zur Orientierung auf der Probe erzeugt. Das maximale Schreibfenster beträgt $2 \times 2 \text{ mm}^2$ bei 25 facher Vergrößerung.

2.4 Entwicklung des Photoresists



Zum Entwickeln der Proben verwenden wir einen alkalischen organischen und metallionfreien Entwickler mit der Bezeichnung ma-D 532. Der Entwickler löst die unbelichteten Bereiche. In den belichteten Bereichen ist die Löslichkeit infolge der Vernetzung der Moleküle stark reduziert. Die Entwicklungszeit für unsere 200 nm dicken Lackschichten beträgt ca. 12 s. Die Entwicklung wird gestoppt, indem die Probe in bidestilliertes Wasser eingetaucht wird. Anschließend sollte die Probe sehr vorsichtig mit der Stickstoffpistole trocken geblasen werden. Zu großer Druck kann die feinen Lackstrukturen umkippen oder zerstören. Abbildung 2.4 zeigt eine elektronenmikroskopische Aufnahme einer entwickelten Struktur zur Herstellung einer 100 nm Apertur in einem später aufgetragenen Metallfilm.

Der dickere Lack im Randbereich der Probe kann in der Entwicklungszeit nicht entfernt werden. Der Entwicklungsprozess der größeren Strukturen kann gut unter dem Lichtmikro-

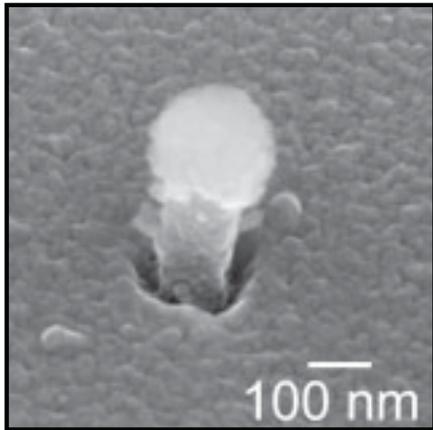


Abbildung 2.5: Lackstruktur nach dem Aufdampfen von 100 nm Aluminium. Die Probe wurde während des Aufdampfprozesses nicht rotiert. Deutlich zu erkennen ist das pilzförmige Aufwachsen des Metalls und die damit verbundene Abschattung. Dies führt zu einer unerwünschten Vergrößerung des Aperturdurchmessers.

skop beobachtet werden. Bei zu kurzer Entwicklung sind noch typische *Füße* an den Strukturen zu erkennen. Rückgestreute Elektronen führen beim Beschreiben zu einer geringen Belichtung um die eigentliche Struktur. Die Löslichkeit des Lack wird dadurch leicht reduziert. Im Interferenzkontrastmodus des Mikroskops können auch diese nur wenige 10 nm dicken Lackreste beobachtet werden. Bei zu langen Entwicklungszeiten werden auch die belichteten Bereiche angegriffen, unter dem Mikroskop kann man erkennen, dass die kleinen Strukturen (< 100 nm) verschwinden. Diese kleinen Lacktürmchen können im Lichtmikroskop zwar nicht aufgelöst werden, sie streuen jedoch das Licht und sind dadurch auf einem glatten Untergrund deutlich zu erkennen.

2.5 Metallbedampfung



Die Metallbedampfung der entwickelten Probe erfolgt im Hochvakuum bei einem Druck von weniger als 10^{-7} mbar. Die Aufdampfrate kann über den Emissionsstrom des Elektronenstrahlverdampfers eingestellt werden. Ein Schwingquarz in unmittelbarer Nähe der Probe misst die Dicke des aufgedampften Materials. Glatte Aluminiumschichten erhält man bei hohen Raten (> 5 nm/s) und geringer Temperatur der Probe. Um eine Aufheizung zu vermeiden, sollte die Probe einen möglichst großen Abstand zur Verdampfungsquelle haben.

Bei kleinen Strukturen ist die Rauigkeit des Metallfilms zunehmend ein Problem. Das Metall wächst nicht mehr glatt auf der Lackstruktur auf, sondern es bilden sich bis zu 50 nm große Körner. Dies führt zu einem pilzförmigen Aufwachsen auf den Lacktürmchen und damit zu einer Abschattung einer größeren Fläche neben der Struktur, wie in Abbildung 2.5 dargestellt. Die erzeugten Aperturen zeigen einen deutlich größeren Durchmesser. Dieses Problem lässt sich stark reduzieren indem man die Proben während des Aufdampfens leicht verkippt und rotiert (Abb. 2.6). Zwar ändert sich dadurch nicht die Korngröße, aber die Körner liegen sehr gut an den Flanken der Lacktürmchen an, sodass der Durchmesser im Metall genau dem Durchmesser der Lackstruktur entspricht.

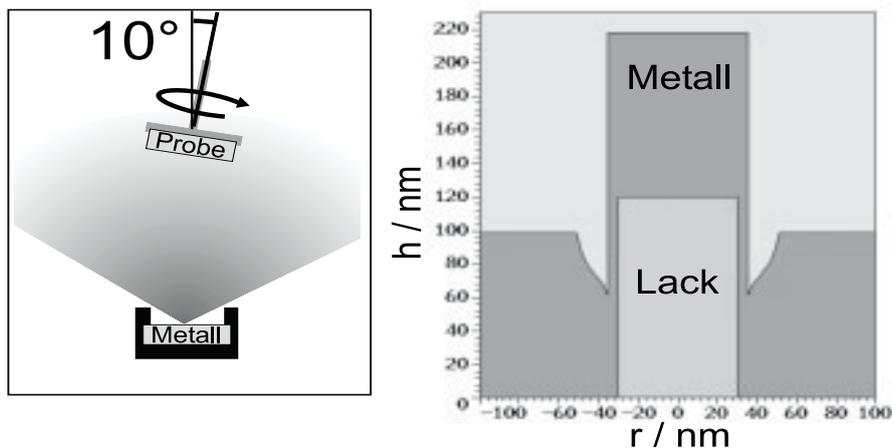


Abbildung 2.6: Links: Schematische Darstellung der Bedampfung mit rotierender Probe unter einem Winkel von 10° . Rechts: Berechnetes Ergebnis der Bedampfung auf eine Lackstruktur mit 60 nm Durchmesser und 120 nm Höhe. Die Dicke des senkrecht aufgedampften Metalls beträgt 100 nm.

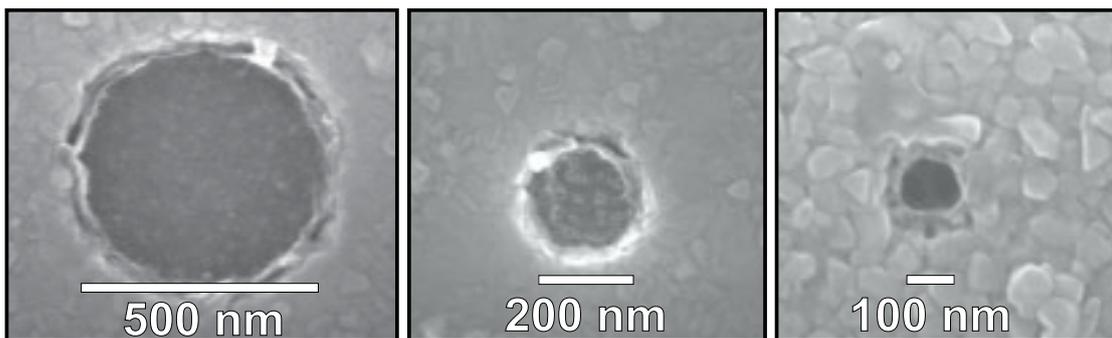


Abbildung 2.7: Elektronenmikroskopische Aufnahme von Aperturen in einem 100 nm dicken Aluminiumfilm auf GaAs-Substrat

2.6 Lift-Off-Prozess



Im Lift-Off-Prozess soll der Metallfilm über den Lackstrukturen entfernt werden. Die Proben werden dazu für ca. eine Minute in Aceton im Ultraschallbad behandelt. Die dünne Metallschicht an den Flanken der Struktur in Abbildung 2.6 ist wegen des granularen Aufwachsens nicht geschlossen. Das Aceton kann den Lack angreifen und auflösen. Dies führt zum Entfernen oder zumindest zu einer Destabilisierung der Struktur. Die mechanische Vibration im Ultraschallbad entfernen dann das restliche Metall über den Aperturen. Anschließend wird die Probe wieder mit Isopropanol abgespült und mit der Stickstoffpistole getrocknet. Die Ergebnisse des Lift-Off-Prozesses sind in Abbildung 2.7 gezeigt. Es handelt sich um Aperturen in einem 100 nm dicken Aluminiumfilm mit Aperturdurchmessern zwischen 500 nm und 100 nm.

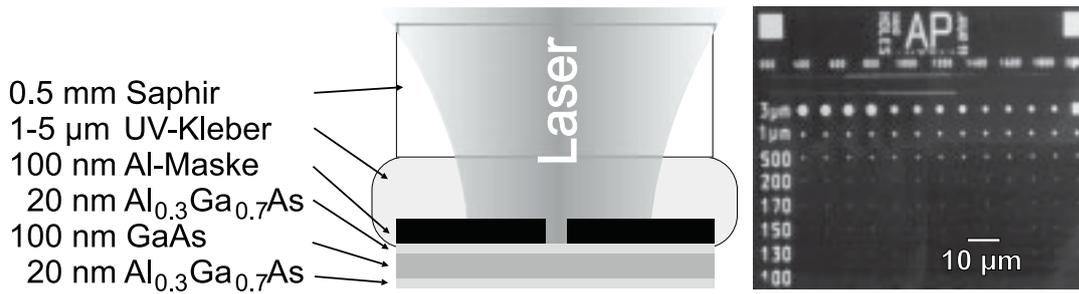


Abbildung 2.8: Links: Schematischer Aufbau der präparierten Probe. Rechts: Lichtmikroskopische Aufnahme (Durchlichtmodus) der Maske in einem 100 nm dicken Aluminiumfilm.

2.7 Entfernen des GaAs-Substrats



Zur Durchführung von Transmissionsexperimenten an den Proben ist es nötig, das GaAs-Substrat zu entfernen. Dazu wird bei der Herstellung der Probe eine Ätzstoppschicht aus $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ vor der optisch aktiven GaAs-Schicht gewachsen. Die Aluminiumkonzentration x sollte aus Gründen der Ätzselektivität mindestens 30% betragen. Da die Bandlücke von $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ mit zunehmendem Aluminiumanteil x wächst, kann die Ätzstoppschicht für viele optische Experimente als transparent angenommen werden.

Da die gesamte Heterostruktur meist nur ca. 100 nm dick ist, muss die Probe vor dem Entfernen des GaAs-Substrats mit UV-Optikkleber auf ein Saphirplättchen geklebt werden. Danach kann die Probe bis auf 30 µm Dicke abgeschliffen werden. Das Schleifen erfolgt mit einem Schleifstempel auf nassem Schleifpapier der Körnungen 40 µm, 12 µm und 3 µm. Die Versetzungstiefe in das GaAs, beträgt dabei das achtfache der Korngröße. Die Restdicke nach den jeweiligen Schleifschritten muss größer sein als die Versetzungstiefe.

Das Ätzen der Probe erfolgt unter einem Strahl der Ätzlösung. Für das Abtragen ist eine chemische und mechanische Komponente notwendig. Die Ätzlösung trifft auf die Probe und oxidiert das GaAs. Die hohe Strömungsgeschwindigkeit hilft beim Abtragen des Oxides. Die Apparatur ist so aufgebaut, dass während des Ätzvorgangs die Probe von unten beleuchtet wird. Bei Erreichen der Ätzstoppschicht werden die dünnen Proben schlagartig rötlich transparent. Auf diese Weise lässt sich der Fortschritt des Ätzprozesses sehr gut verfolgen. Zum Ätzen wird eine Mischung aus 100 ml Wasserstoffperoxid (H_2O_2 30%-Lösung) und 2.2 ml Ammoniaklösung (NH_3OH 25%-Lösung) verwendet [26, 27]. Der pH-Wert der Lösung sollte bei 8.2 liegen. Die Ätzrate für GaAs beträgt nach unseren Messungen 2 µm/min, die für $\text{Al}_{0,8}\text{Ga}_{0,2}\text{As}$ ist um einen Faktor 100 kleiner. Bei Ätzstoppschichten mit geringerer Aluminiumkonzentration sinkt die Ätzselektivität, der Ammoniakanteil in der Lösung sollte verringert werden (für $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ nur 1.6 ml NH_3OH auf 100 ml H_2O_2). Erreicht man die Ätzstoppschicht, so wird die Oberfläche der Probe schlagartig glatt und glänzend. Abbildung 2.8 zeigt schematisch den Aufbau der Probe nach kompletter Präparation und die Aluminiummaske im Durchlichtmodus des Mikroskops. In Abbildung 2.9 sind die Ätzraten von GaAs und $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ nach Lepore [26] als Funktion des Ammoniakanteils der Ätzlösung

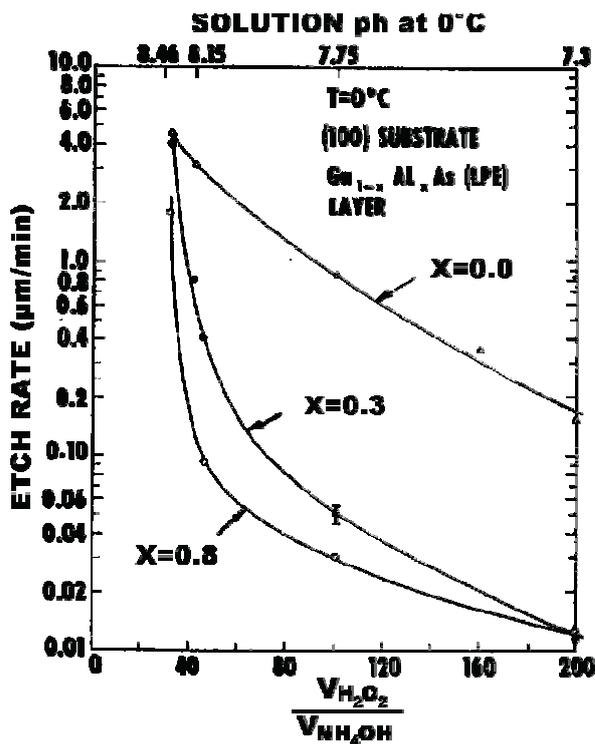


Abbildung 2.9: Ätzzraten von GaAs und $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ als Funktion des Verhältnisses von Wasserstoffperoxid zu Ammoniak in der Ätzlösung [26].

aufgetragen.

2.8 Beschreibung der GaAs-Proben

Galliumarsenid ist ein III-V Halbleiter mit direkter Bandlücke. Der Kristall zeigt eine Zinkblendestruktur (Abb. 2.10), er hat kubische Symmetrie und besitzt kein Inversionszentrum. In jeder Einheitszelle sitzen zwei Atome, ein Arsenatom bei $[0, 0, 0]$ und ein Galliumatom bei $[\frac{1}{4}, \frac{1}{4}, \frac{1}{4}]$. Die Bandstruktur (Abb. 2.11) zeigt um den Γ -Punkt drei Valenzbänder und eine Leitungsband. Zwei Valenzbänder sind am Γ -Punkt entartet, das schwere Lochband $|J = \frac{3}{2}, m_j = \pm\frac{3}{2}\rangle$ und das leichte Lochband $|J = \frac{3}{2}, m_j = \pm\frac{1}{2}\rangle$. Das dritte Valenzband $|J = \frac{1}{2}, m_j = \pm\frac{1}{2}\rangle$ ist durch Spin-Bahn-Kopplung energetisch um 0.341 eV nach unten verschoben. Die Valenzbänder können den 4p Orbitalen von Gallium, das Leitungsband den 4s Orbitalen von Arsen zugeordnet werden. Der Übergang ist somit dipolerlaubt. Die Bandlücke von Galliumarsenid beträgt $E_g = 1.5177$ eV, die Bindungsenergie des Exzitons $E_b = 4.2$ meV und die Absorption des Exzitons $\alpha = 10^5 - 10^6$ cm^{-1} bei einer Temperatur von 4.2 K [31].

An dieser Stelle sollen kurz die verwendeten GaAs-Probe vorgestellt werden. Abbildung 2.12 zeigt den Aufbau. Die 100 nm GaAs-Volumenprobe stammt aus der Gruppe von W. Stolz³. Sie wurde mit Hilfe der Gasphasenepitaxie (MOCVD) gewachsen. Die Probe zeigt

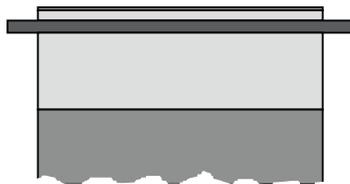
³S. Leu, S. Nau und W. Stolz, Philipps-Universität Marburg, Wiss. Zentrum für Materialwissenschaften und Fachbereich Physik, Hans-Meerwein-Str., 35032 Marburg

100 nm GaAs Volumenprobe



5 nm GaAs-Deckschicht
 20 nm $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Barriere
100 nm GaAs-Volumenschicht
 20 nm $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Barriere
 5 nm GaAs-Zwischenschicht
 150 nm $\text{Al}_{0,85}\text{Ga}_{0,15}\text{As}$ -Ätzstoppschicht
 500 nm GaAs-Puffer
 GaAs-Substrat

20 nm GaAs Quantenfilm



2 nm GaAs-Deckschicht
 20 nm $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Barriere
20 nm GaAs-Quantenfilm
 500 nm $\text{Al}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Barriere, Ätzstopp
 500 nm GaAs-Puffer
 GaAs-Substrat

3.5 nm GaAs Quantenfilm



10 nm GaAs-Deckschicht
 37 nm Übergitter, 11 Perioden 4 ML AlAs / 8 ML GaAs
3.5 nm GaAs-Quantenfilm
 136 nm Übergitter, 40 Perioden 4 ML AlAs / 8 ML GaAs
 500 nm GaAs-Puffer
 GaAs-Substrat

Abbildung 2.12: Die Abbildungen zeigen den Aufbau der verwendeten GaAs-Proben. Die 100 nm GaAs-Volumenprobe stammt aus der Gruppe von W. Stolz aus Marburg. Die beiden Quantenfilmproben stammen aus der Gruppe von H. M. Gibbs.

Kapitel 3

Raumzeitliche Ladungsträgerdynamik auf einer 100 nm – 100 fs Skala

3.1 Grundlagen: Klassischer Transport

Der Transport von Teilchen soll in diesem Abschnitt anhand zweier Grenzfälle diskutiert werden. Zum einen der diffusive Transport und zum anderen der ballistische Transport. Beide Fälle lassen sich mathematisch relativ einfach beschreiben und liefern genaue Vorhersagen für die Messgrößen im Experiment. Der diffusive Transport ist dominiert von Stößen zwischen den Teilchen. Diese Wechselwirkung führt dazu, dass sich das System ständig im lokalen thermischen Gleichgewicht befindet oder zumindest sehr schnell dorthin relaxiert. Der Teilchenstrom wird getrieben vom Gradienten des elektrochemischen Potentials. Die Dynamik kann durch eine Diffusionskonstante beschrieben werden. Beispielsweise lässt sich die Wärmeausbreitung in einem Medium meist sehr gut mit der Diffusionsgleichung beschreiben. Der andere Extremfall wird durch ballistischen Transport beschrieben. Hier treten überhaupt keine Stöße auf. Die Teilchen bewegen sich einfach mit ihrem anfänglichen Impuls durch den Raum. Der Transport verläuft mit einer charakteristischen Geschwindigkeit, entsprechend der Impulsverteilung der Teilchen. Neben diesen einfachen Grenzfällen kann der Transport aber auch viel komplizierter ablaufen. Die Dynamik hängt dann sowohl von der räumlichen Verteilung als auch von der Verteilung der Impulse ab. Die energetische Relaxation und die räumliche Dynamik können in diesem Fall nicht mehr getrennt betrachtet werden. Eine Möglichkeit der Beschreibung eines solchen Systems liegt in der Boltzmann-Gleichung.

3.1.1 Die Boltzmann-Gleichung

Zunächst soll der Weg von der Boltzmann-Gleichung zur Diffusionsgleichung aufgezeigt werden. Speziell wird auch auf die Näherungen eingegangen, die in der Drift-Diffusions- und der einfachen Diffusionsgleichung stecken. Die Ableitung wird auch in vielen Lehrbüchern dargestellt [32, 33, 34]. Umfassende Darstellungen der Transporttheorie sind in weiteren

Lehrbüchern zu finden [35, 36].

Die Boltzmann-Gleichung beschreibt die zeitliche Entwicklung der Verteilungsfunktionen der Elektronen $f_e(\vec{r}, \vec{k}, t)$ und der Löcher $f_h(\vec{r}, \vec{k}, t)$ im Ortsraum \vec{r} und Impulsraum $\hbar\vec{k}$. Offensichtlich ist dies eine klassische Beschreibung, da der quantenmechanische Orts- und Impulsoperator nicht kommutieren. Ort und Impuls lassen sich nicht gleichzeitig beliebig genau bestimmen. Die semi-klassische Boltzmann-Gleichung ohne Magnetfeld lautet für die Elektronen im Halbleiter:

$$\frac{d}{dt} f_e(\vec{r}, \vec{k}, t) = \frac{\partial f_e}{\partial t} + \frac{d\vec{r}}{dt} \cdot \nabla_r f_e + \frac{d\hbar\vec{k}}{dt} \cdot \nabla_{\hbar\vec{k}} f_e \quad (3.1)$$

$$= \frac{\partial f_e}{\partial t} + \frac{\hbar\vec{k}}{m_e} \cdot \nabla_r f_e - [\nabla_r V(\vec{r})] \cdot \nabla_{\hbar\vec{k}} f_e = \left. \frac{\partial f_e}{\partial t} \right|_{\text{streu}} \quad (3.2)$$

$V(\vec{r})$ bezeichnet die potentielle Energie der Elektronen. Es sollen zunächst nur die Gleichungen für die Elektronen betrachtet werden. Die Gleichungen für die Löcher sind äquivalent.

Das größte Problem bei der Lösung der Boltzmann-Gleichung liegt im Streuterm. Üblicherweise beschreibt dieser Term zum einen die Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung als auch die Streuung mit Phononen. Werden die Streueignisse als punktförmig in der Zeit betrachtet, so können die Streuraten beispielsweise quantenmechanisch über Fermi's Goldene Regel berechnet werden. Diese Beschreibung vernachlässigt demnach Überlagerungszustände aus „Teilchen hat gestreut“ und „Teilchen hat nicht gestreut“. Die einfachste Behandlung dieses Terms wird durch die Relaxationszeitnäherung beschrieben. Die Verteilung nähert sich dabei exponentiell der Gleichgewichtsverteilung f_e^0 . Die Zeitkonstante τ wird hier sogar als k-unabhängig angenommen.

$$\left. \frac{\partial f_e}{\partial t} \right|_{\text{streu}} = -\frac{\delta f_e}{\tau} = -\frac{f_e - f_e^0}{\tau} \quad (3.3)$$

Aus der Verteilungsfunktionen f_e können alle wesentlichen physikalischen Größen durch Summation über alle Impulse \vec{k} und Spinfreiheitsgrade berechnet werden. Der Spinfreiheitsgrad wird in den folgenden Gleichungen vernachlässigt. Für die Ladungsstromdichte \vec{j}_e und die Teilchendichte n_e gilt:

$$\vec{j}_e(r, t) = -\frac{e}{V} \sum_{\vec{k}} \vec{v}_e f_e(\vec{r}, \vec{k}, t) \quad \text{mit} \quad \vec{v}_e = \frac{\hbar\vec{k}}{m_e} \quad (3.4)$$

$$n_e(r, t) = \frac{1}{V} \sum_{\vec{k}} f_e(\vec{r}, \vec{k}, t) \quad (3.5)$$

m_e ist die effektive Masse eines Elektrons. Befindet sich das System nahezu im Gleichgewicht so kann die Verteilungsfunktion aus der Gleichgewichtsverteilung f_e^0 und einer kleinen Abweichung δf_e zusammengesetzt werden.

$$f_e(\vec{r}, \vec{k}) = f_e^0(\vec{r}, \vec{k}) + \delta f_e(\vec{r}, \vec{k}) \quad (3.6)$$

Die Gleichgewichtsverteilung f_e^0 ist gegeben durch die Fermi-Funktion. Die Ortsabhängigkeit der Gleichgewichtsverteilung wird als lokales Gleichgewicht interpretiert. Die Verteilungsfunktion f_e darf sich räumlich und zeitlich nur langsam ändern, verglichen mit der Relaxationszeit τ und der Strecke $\vec{v}_e\tau$.

Gleichung (3.6) und (3.3) werden in die Boltzmann-Gleichung (3.2) eingesetzt. Auf der linken Seite werden die kleinen Änderungen $\delta f_e \ll f_e^0$ vernachlässigt. Für das elektrostatische Potential $\phi(\vec{r})$ gilt $-e\phi(\vec{r}) = V(\vec{r})$ und für die Gleichgewichtsverteilung gilt $\partial f_e^0/\partial t = 0$. Daraus folgt:

$$\frac{\hbar\vec{k}}{m_e}\nabla_r f_e^0 + e[\nabla_r\phi(\vec{r})]\nabla_{\hbar\vec{k}}f_e^0 = -\frac{\delta f_e}{\tau} \quad (3.7)$$

Im nächsten Schritt werden die Ableitungen der Fermi-Funktion berechnet. Die Temperatur soll als räumlich konstant betrachtet werden ($\nabla_r T = 0$), ansonsten ergeben sich zusätzliche treibende Terme.

$$\begin{aligned} f_e^0 &= \left(1 + \exp\left(\frac{E_e - \tilde{\mu}_e}{k_B T}\right)\right)^{-1} & \text{mit} & \quad E_e(k) = \frac{(\hbar\vec{k})^2}{2m_e} + E_c \\ \nabla_r f_e^0 &= \frac{\partial f_e^0}{\partial(E_e - \tilde{\mu}_e)} \cdot \nabla_r(E_e - \tilde{\mu}_e) \\ \nabla_{\hbar\vec{k}} f_e^0 &= \frac{\partial f_e^0}{\partial E_e} \cdot \nabla_{\hbar\vec{k}} E_e = \frac{\partial f_e^0}{\partial E_e} \cdot \frac{\hbar\vec{k}}{m_e} \end{aligned} \quad (3.8)$$

Die Energie der Ladungsträger $E_e(k)$ wird in der Effektivmassennäherung (parabolische Bänder) betrachtet. E_c ist die Energie im Bandminimum und $\tilde{\mu}_e$ ist das chemische Potential.

Durch Einsetzen der Ableitungen in Gleichung (3.7) erhält man ($\nabla_r E_e = 0$, $\partial/\partial E_e = \partial/\partial(E_e - \tilde{\mu}_e)$):

$$\delta f_e = \tau \left[\frac{\hbar\vec{k}}{m_e} \frac{\partial f_e^0}{\partial E_e} \nabla_r (\tilde{\mu}_e - e\phi) \right] \quad (3.9)$$

Der Strom kann durch Einsetzen von δf_e in Gleichung (3.4) berechnet werden.

$$\vec{j}_e = -\frac{e}{V} \sum_{\vec{k}} \frac{\hbar\vec{k}}{m_e} \delta f_e(\vec{r}, \vec{k}) \quad (3.10)$$

$$= \underbrace{\left[-\sum_{\vec{k}} \frac{e^2}{V} \left(\frac{\hbar\vec{k}}{m_e}\right)^2 \tau \frac{\partial f_e^0}{\partial E_e} \right]}_{\sigma_e} \frac{1}{e} \nabla_r \underbrace{(\tilde{\mu}_e - e\phi)}_{\eta_e} \quad (3.11)$$

Das elektrochemische Potential η_e setzt sich aus dem chemischen Potential $\tilde{\mu}_e$ und dem elektrischen Potential ϕ zusammen. Die Integration über den k -Raum liefert die Leitfähigkeit σ_e . Mit Hilfe der Definition der Beweglichkeit μ_e über $\sigma_e = en_e\mu_e$ kann der Ladungsstrom \vec{j}_e in der bekannten einfachen Weise geschrieben werden:

$$\vec{j}_e = n_e \mu_e \nabla_r \eta_e \quad (3.12)$$

Der treibende Term des Stroms ist der Gradient im elektrochemischen Potential. Im thermodynamischen Gleichgewicht ist das elektrochemische Potential konstant, der Strom verschwindet. Um zur Drift-Diffusionsgleichung zu gelangen, muss der Gradient des elektrochemischen Potentials in seine Ursachen unterteilt werden. Dies sind der Gradient der Teilchendichte und der des elektrischen Potentials. Durch Ableiten von $\eta_e(n, \phi) = \mu_e(n) - e\phi$ erhält man:

$$\nabla_r \eta_e = \frac{\partial \eta_e}{\partial n_e} \cdot \nabla_r n_e + \underbrace{\frac{\partial \eta_e}{\partial \phi}}_{-e} \cdot \nabla_r \phi$$

Einsetzen in Gleichung (3.12) liefert:

$$\vec{j}_e = e D_e \nabla_r n_e - e n_e \mu_e \nabla_r \phi \quad (3.13)$$

D_e bezeichnet die Diffusionskonstante.

$$D_e = n_e \mu_e \frac{1}{e} \left(\frac{\partial n_e}{\partial \eta_e} \right)^{-1} = - \sum_{\vec{k}} \frac{1}{V} \left(\frac{\hbar \vec{k}}{m_e} \right)^2 \tau \frac{\partial f_e^0}{\partial E_e} \left(\frac{\partial n_e}{\partial \eta_e} \right)^{-1} \quad (3.14)$$

An dieser Stelle werden die Ladungsströme $\vec{j}_{e,h}$ in Teilchenströme $\vec{J}_{e,h}$ umgeschrieben. Für Elektronen gilt $\vec{J}_e = -\vec{j}_e/e$ für Löcher entsprechend $\vec{J}_h = \vec{j}_h/e$. Die Drift-Diffusionsgleichung hat damit folgende Form:

$$\vec{J}_e = - D_e \nabla_r n_e + n_e \mu_e \nabla_r \phi \quad (3.15)$$

$$\vec{J}_h = \underbrace{- D_h \nabla_r n_h}_{\text{Diffusionsstrom}} + \underbrace{- n_h \mu_h \nabla_r \phi}_{\text{Driftstrom}} \quad (3.16)$$

In diesen Gleichung ist gut zu erkennen, dass der Diffusionsstrom durch den Gradienten der Dichte getrieben wird. Der Strom wirkt diesem Gradienten immer entgegen. Der Driftstrom resultiert aus dem Gradienten im elektrischen Potential, also dem elektrischen Feld. Die Richtung dieses Beitrags ist abhängig vom Vorzeichen der Ladung.

Die Kontinuitätsgleichung verknüpft nun den Teilchenstrom mit der zeitlichen Änderung der Dichte.

$$\frac{dn_{e,h}}{dt} = - \nabla_r \cdot \vec{J}_{e,h} \quad (3.17)$$

Eine Änderung der Ladungsdichte bewirkt nun eine Änderung im elektrischen Potential. Diese muss über die Poisson-Gleichung neu berechnet werden.

$$\Delta_r \phi = -\frac{1}{\epsilon \epsilon_0} \rho \quad \text{mit} \quad \rho = -en_e + en_h \quad (3.18)$$

Das Potential koppelt dann wieder auf den Driftstrom zurück. Die Drift-Diffusionsgleichung (3.15) und (3.16) muss aus diesem Grund zusammen mit der Kontinuitätsgleichung (3.17) selbstkonsistent mit der Poisson-Gleichung (3.18) gelöst werden. Die Lösung eines solchen Gleichungssystems kann speziell in mehreren Dimensionen sehr aufwendig werden. Es existieren zahlreiche Programme, die das Problem für eine gegebene Geometrie numerisch lösen können. Solche Software wird beispielsweise bei der Berechnung von Bauelementen in der Halbleitertechnik sehr häufig eingesetzt.

Durch eine weitere Näherung kann ein einfacher Zusammenhang zwischen der Diffusionskonstanten und der Beweglichkeit abgeleitet werden. Im Falle des nicht-entarteten Halbleiters (kleine Ladungsträgerdichte) kann die Fermi-Verteilung durch eine Boltzmannverteilung approximiert werden.

$$f_e^0 \approx \exp\left(-\frac{E_e - \tilde{\mu}_e}{k_B T}\right) \quad (3.19)$$

Zur Berechnung der Diffusionskonstanten muss die Teilchendichte n_e in Gleichung (3.5) nach dem elektrochemischen Potential η_e abgeleitet werden.

$$\frac{\partial n_e}{\partial \eta_e} = \frac{\partial n_e}{\partial \tilde{\mu}_e} = \frac{n_e}{k_B T}$$

Für die Diffusionskonstante gilt dann die bekannte Einstein-Beziehung

$$D_e = \frac{k_B T}{e} \mu_e \quad (3.20)$$

Die Diffusionskonstante hängt jetzt nicht mehr direkt von der Dichte ab.

Die bisher durchgeführten Näherungen führen zu einer relativ einfachen Beschreibung der Dynamik mit Hilfe der Drift-Diffusionsgleichung. Anstatt der sieben Koordinaten in der Boltzmann-Gleichung, drei Orts-, drei Impuls- und eine Zeitkoordinate, kann das System mit nur vier Koordinaten, Ort und Zeit, beschrieben werden. In vielen Fällen reicht das einfache Modell jedoch nicht aus, um die Phänomene richtig zu beschreiben. Andererseits ist die direkte Lösung der Boltzmann-Gleichung oft nicht möglich. Mit Hilfe der Modellierung der Beweglichkeit $\mu_e(n_e, T, \nabla_r \phi)$ können zusätzlich Effekte eingefügt oder Effekte, die beim Ableiten der Drift-Diffusionsgleichung aufgrund der Integration über alle Impulse vernachlässigt wurden, wieder nachträglich berücksichtigt werden. Beispielsweise können Streuprozesse zwischen den Ladungsträgern oder mit Phononen, die über die Streuzeit τ in die Beweglichkeit eingehen, durch eine Dichte- bzw. Temperaturabhängigkeit berücksichtigt werden. Heiße Ladungsträger lassen sich über eine Feldabhängigkeit der Beweglichkeit modellieren. Dieser Methode sind natürlich auch Grenzen gesetzt. Befindet sich das System weit weg vom Gleichgewicht, so kann dies nicht durch eine Modifizierung der Beweglichkeit beschrieben werden. Der ballistische Transport ist hierfür ein gutes Beispiel.

Zum Schluss wird noch der Weg von der Drift-Diffusionsgleichung zur *einfachen* Diffusionsgleichung dargestellt. In erster Näherung kann die Beweglichkeit und Temperatur und somit die Diffusionskonstante als räumlich konstant angenommen werden. Dies vereinfacht die Behandlung der Diffusionsströme enorm. Werden elektrisch neutrale Teilchen betrachtet, so fällt der Driffterm komplett weg. Dies kann auch bei optisch angeregten Elektronen und Löchern der Fall sein, falls die Wechselwirkung Elektronen- und Löcherbewegung so koppelt, dass die Ladungsträger nach außen als neutral erscheinen. Dies wird als ambipolarer Transport bezeichnet. Setzt man den Diffusionsstrom in die Kontinuitätsgleichung ein, so kann eine räumlich konstante Diffusionskonstante D vor den Nablaoperator gezogen werden $-\nabla_r \cdot (-D \nabla_r n) = D \Delta_r n$. Dies liefert die einfache Diffusionsgleichung.

$$\boxed{\frac{\partial n(\vec{r}, t)}{\partial t} = D \Delta_r n(\vec{r}, t)} \quad (3.21)$$

3.1.2 Die Diffusionsgleichung

In diesem Abschnitt sollen spezielle Lösungen der Diffusionsgleichung diskutiert werden. Die Diffusionsgleichung wird in Zylinderkoordinaten $\vec{r}(r, \varphi, z)$ transformiert. Im Experiment kann von einer homogenen Anregung des Halbleiters in z -Richtung senkrecht zur Oberfläche ausgegangen werden. Die erzeugte Ladungsträgerdichte wird zusätzlich rotationssymmetrisch sein. Es ist deshalb ausreichend nur die radiale Abhängigkeit der Dichte $n(r, t)$ zu betrachten.

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D \left(\frac{\partial^2 n}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial n}{\partial r} \right) \quad (3.22)$$

Es existiert keine allgemeine Lösung zu dieser Differentialgleichung. Aus diesem Grund werden zwei spezielle Lösungen für relevante Anfangsbedingungen angegeben [37].

Betrachtet wird im ersten Fall ein Gebiet $0 < r < R$. Die Anfangsverteilung wird vorgegeben: $n(r, t = 0) = n_0(r)$. Randbedingung ist $n(r = R, t) = 0$. Dies bedeutet, dass die Dichte bei $r \geq R$ immer Null ist. Die Lösung ist mit der experimentellen Bedingung nur vergleichbar, falls die Ladungsträger im Modell den Rand R im betrachteten Zeitraum nicht erreichen. Zur Berechnung wird die Anfangsverteilung einmalig in die Bessel-Funktion nullter Ordnung entwickelt. Sind die Koeffizienten A_n bekannt, so kann die Lösung zu jedem Zeitpunkt durch eine Summe berechnet werden. μ_n bezeichnen die Nullstellen der Bessel-Funktion J_0 .

$$\begin{aligned} \text{Anfangsbedingung :} \quad n(r, t = 0) &= n_0(r) \\ A_n &= \frac{2}{R^2 J_1^2(\mu_n)} \int_0^R r n_0(r) J_0\left(\mu_n \frac{r}{R}\right) dr \end{aligned} \quad (3.23)$$

$$n(r, t) = \sum_{n=1}^{\infty} A_n \exp\left(-\frac{D \mu_n^2 t}{R^2}\right) J_0\left(\mu_n \frac{r}{R}\right) \quad (3.24)$$

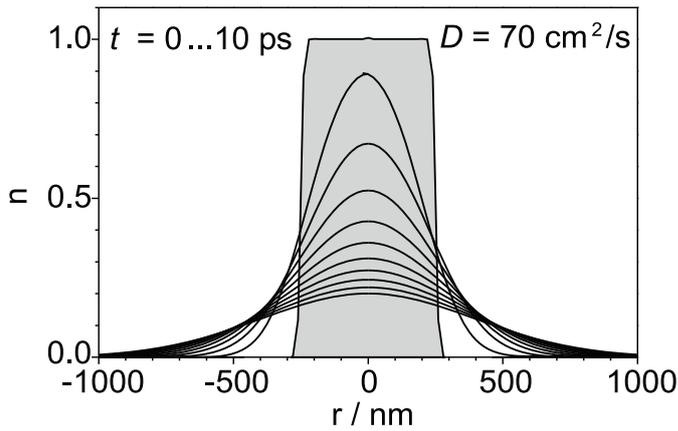


Abbildung 3.1: Lösung der Diffusionsgleichung für eine 500 nm breite Anfangsverteilung in Zeitschritten von 1 ps, $D = 70 \text{ cm}^2/\text{s}$, $R = 2000 \text{ nm}$, A_n mit $n = 0 \dots 200$. Eine Rechteckfunktion konnte aus numerischen Gründen wegen der großen Gradienten nicht realisiert werden. Deshalb sind die Ränder durch Fermi-Funktionen approximiert.

Abbildung 3.1 zeigt die Lösung der Diffusionsgleichung $n(r)$ für eine 500 nm breite rechteckähnliche Anfangsverteilung (grau hinterlegt) in Zeitschritten von 1 ps. Die Diffusionskonstante von $D = 70 \text{ cm}^2/\text{s}$ ist ein typischer Wert für den ambipolaren Transport in GaAs. Bemerkenswert ist, dass sich die Verteilung in sehr kurzer Zeit ($< 1 \text{ ps}$) einer Gaußkurve annähert. Die Ursache liegt in den großen Dichtegradienten an den Kanten. Ein großer Gradient erzeugt große Ströme und sorgt damit für eine schnelle Umverteilung.

Die zweite betrachtete spezielle Lösung der Diffusionsgleichung in Zylindersymmetrie ist die Lösung für eine gaußförmige Anfangsverteilung. Da schon die Rechteckfunktion sich in Richtung Gaußverteilung entwickelt, ist es nicht verwunderlich, dass die Gaußfunktion ihre Form beibehält und sich nur die Breite der Verteilung ändert.

$$\begin{aligned} \text{Anfangsbedingung: } n(r, t = 0) &= n_0 \exp\left(-\frac{r^2}{\sigma_0^2}\right) \\ n(r, t) &= \frac{\sigma_0^2 n_0}{4Dt + \sigma_0^2} \exp\left(-\frac{r^2}{4Dt + \sigma_0^2}\right) \end{aligned} \quad (3.25)$$

Die volle Halbwertsbreite beträgt zu Beginn $d_0 = \sigma_0 \sqrt{4 \ln 2}$ und entwickelt sich dann mit $d^2(t) = d_0^2 + 16 \ln(2)Dt$. Definiert man eine Kreisfläche $\pi d^2/4$ über die volle Halbwertsbreite d der Verteilung, so wächst diese Fläche bei einer Diffusionsbewegung linear in der Zeit. Im Experiment ist eine zugängliche Größe jedoch nicht die Zeitabhängigkeit des Durchmessers der Verteilung, sondern vielmehr die Dichte der Verteilung in Zentrum, also $n(r = 0, t)$. Weiterhin kann eine charakteristische anfängliche Abfallzeit τ_n der Dichte im Zentrum ausgerechnet werden.

$$\begin{aligned} n(r = 0, t) &= \frac{\sigma_0^2 n_0}{4Dt + \sigma_0^2} \\ \tau_n &= -\left(\frac{1}{n_0} \frac{\partial n(r = 0, t)}{\partial t} \Big|_{t=0}\right)^{-1} = \frac{\sigma_0^2}{4D} \end{aligned}$$

Genauer betrachtet misst der Abfrageimpuls im Experiment jedoch nicht die Dichte im Zentrum, sondern vielmehr wird über die Dichteverteilung mit dem Intensitätsprofil als Gewichtungsfaktor gemittelt. Anrege- und Abfrageimpuls besitzen identische Intensitätsverteilungen. Aus diesem Grund erscheint es sinnvoll, die Verteilung zu einem gewissen Zeitpunkt

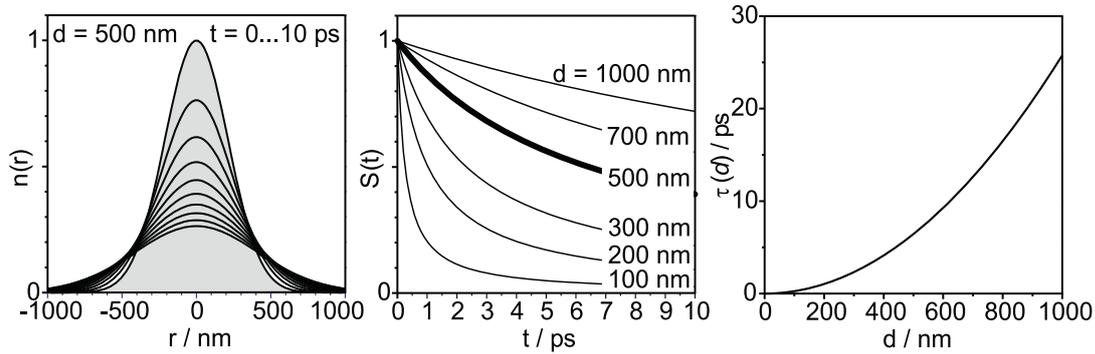


Abbildung 3.2: Links: zeitliche Entwicklung $n(r, t)$ einer gaußförmigen Anfangsverteilung mit 500 nm Anfangsdurchmesser, einer Diffusionskonstante von $D = 70 \text{ cm}^2/\text{s}$ in 1 ps Zeitschritten. Mitte: Abfall der gemittelten Dichte im Zentrum $S(t)$, dicke Kurve entspricht dem Verhalten der linken Graphen. Rechts: Anfängliche Abfallzeit τ_{diff} als Funktion des Anfangsdurchmessers.

mit der Anfangsverteilung zu gewichten. Die Größe S sollte proportional zum Messsignal sein.

$$S(t) = \frac{\int_0^\infty n(r, t) \cdot e^{-r^2/\sigma_0^2} \cdot 2\pi r \, dr}{\int_0^\infty e^{-r^2/\sigma_0^2} \cdot 2\pi r \, dr} = \frac{\sigma_0^2}{2Dt + \sigma_0^2} \quad (3.26)$$

Die anfängliche Abfallzeit τ_{diff} der Größe $S(t)$ ergibt sich zu:

$$\tau_{\text{diff}} = \frac{\sigma_0^2}{2D} = \frac{1}{8 \ln 2} \cdot \frac{d_0^2}{D} \quad (3.27)$$

Dies ist ein wichtiges Ergebnis für den diffusiven Transport. Die anfängliche Abfallzeit der gewichteten Dichte geht quadratisch mit dem Anfangsdurchmesser $\tau_{\text{diff}} \propto d_0^2$. Streng genommen gilt diese Aussage nur für den Fall einer gaußförmigen Anfangsverteilung. Im Falle von rechteckförmigen Verteilungen wurde aber gezeigt, dass diese sehr schnell in eine Gaußkurve übergehen. Ist die Form der Anfangsverteilung nicht all zu exotisch, so kann generell von einem Skalieren der Abfallzeit mit d_0^2 ausgegangen werden. Eigene numerische Rechnungen haben dieses generelle Verhalten bestätigt.

Zur Veranschaulichung des Verhaltens sind spezielle Lösungen der Diffusionsgleichung mit $D = 70 \text{ cm}^2/\text{s}$ in Abbildung 3.2 dargestellt. Die linke Grafik zeigt die zeitliche Entwicklung $n(r, t)$ einer gaußförmigen Anfangsverteilung gemäß Gleichung (3.25). In der Mitte ist der Abfall der gewichteten Dichte $S(t)$ zu sehen (Gl. (3.26)). Die fett gedruckte Kurve entspricht dem Verhalten der links dargestellten Verteilung. Diese Auftragung entspricht im Experiment dem Signal der differentiellen Transmission als Funktion der Zeitverzögerung zwischen Anrege- und Abfrageimpuls. Die rechte Seite zeigt die Auftragung der anfängli-

chen Abfallzeit τ_{diff} als Funktion des Durchmessers gemäß Gleichung (3.27). Diese Auftragung hat den Vorteil, dass verschiedene Funktionen miteinander quantitativ verglichen werden können. In der Auswertung der Experimente kann mit dieser Methode eine charakteristische Zeit aus einer Messkurve extrahiert werden.

3.1.3 Transport bei hohen Dichten

In diesem Abschnitt soll die Dichteabhängigkeit der Diffusionskonstanten diskutiert werden. Ein wesentlicher Beitrag liefert der sogenannte *Fermi-Druck*. Im Falle hoher Dichten kommt es zu einer Entartung der Besetzung für Elektronen und Löcher. Dies resultiert aus dem Pauli-Prinzip für Fermionen, jeder Zustand darf nur von einem Teilchen besetzt sein. Die freie Energie ist damit signifikant größer als im klassischen Fall. Die Erhöhung der freien Energie Φ ist abhängig von der Teilchendichte n und damit auch vom Volumen V . Dies kann als Druck $p = \partial\Phi/\partial V$ interpretiert werden. Im entarteten Fall ist die Einstein-Beziehung $D = k_B T \mu / e$, die auf einer Boltzmann-Verteilung basiert, nicht mehr gültig. Die Diffusionskonstante wird dichteabhängig. Die Mobilität μ sinkt zwar mit steigender Dichte, so dass die Leitfähigkeit $\sigma = en\mu$ nur noch mit $\sigma \propto n^{2/3}$ ansteigt. Im nicht-entarteten Fall gilt $\sigma \propto n$. Die abnehmende Mobilität ist eine Folge der Fermi-Verteilung, nur Zustände um die Fermi-Energie tragen zum Transport bei. Der treibende Term für die Erhöhung der Diffusionskonstanten ist jedoch das starke Ansteigen des chemischen Potentials mit zunehmender Dichte. Insgesamt erhält man einen Anstieg der Diffusionskonstanten, wie er in Abbildung 3.3 dargestellt ist. Die Zahlenwerte beziehen sich dabei auf GaAs bei 300 K. Bei einer Dichte von 10^{18} cm^{-3} setzt die Entartung der Elektronenverteilung ein. Die Diffusionskonstante steigt proportional zu $n^{2/3}$ [38]. Infolge der größeren Lochmasse kommt es erst bei einer Dichte von ca. 10^{19} cm^{-3} zu einer Entartung der Lochverteilung. Die jeweiligen Bereiche sind durch das Verändern des Skalierungsverhaltens deutlich zu erkennen. Für hohe Dichten steigt die Diffusionskonstante nahezu linear an [39]. Die Dichteabhängigkeit der Diffusionskonstanten hat weitreichende Folgen. Die Diffusionsgleichung kann nicht mehr in ihrer einfachen Form (3.21) geschrieben werden. Es gilt

$$\frac{dn(\vec{r}, t)}{dt} = \nabla_r [D(n(\vec{r}, t)) \cdot \nabla_r n(\vec{r}, t)] \quad (3.28)$$

Die Differentialgleichung wird nichtlinear. Der Anstieg der Ausbreitungsgeschwindigkeit mit zunehmender Dichte kann zum Ausbilden einer Schockwelle führen, die sich im Halbleiter mit einer konstanten Geschwindigkeit ausbreitet [40, 41]. Beobachtete Geschwindigkeiten in GaAs liegen bei 100 nm/ps [42]. Dieser Effekt beruht einfach auf der Tatsache, dass sich der vordere Teil einer Ladungsträgerverteilung mit entsprechend niedriger Dichte langsamer ausbreitet als der Bereich maximaler Dichte dahinter. Dies führt zum Entstehen einer stabilen Schockfront.

Der Fermi-Druck liefert nur einen Beitrag zur Dynamik von Elektron-Loch-Plasmen. Ein weiterer Effekt ist beispielsweise die Bandkantenrenormierung [43, 44]. Bei hoher Anregungsdichte verringert sich der Bandabstand im Halbleiter. Dies führt zu einer Absen-

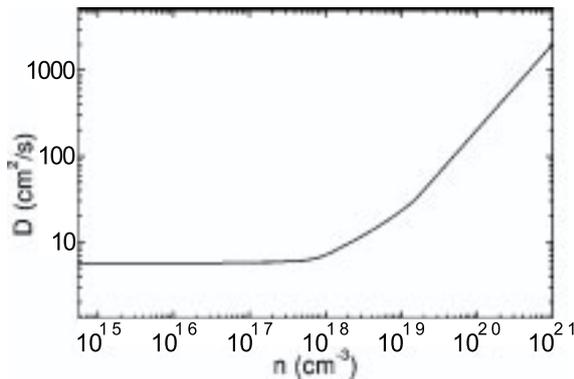


Abbildung 3.3: Abhängigkeit der ambipolaren Diffusionskonstanten von GaAs von der Dichte als Folge des Fermi-Drucks bei $T = 300$ K. Die Diffusionskonstanten bei niedrigen Dichten betragen für Elektronen $D_e^0 = 100 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ und für Löcher $D_h^0 = 3 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$.

kung der potentiellen Energie der Ladungsträger und damit zu einer effektiv anziehenden Wechselwirkung, die der Diffusion entgegen wirken kann. Diese konkurrierenden Prozesse können die Ausbreitungsdynamik von Elektron-Loch-Plasmen stark beeinflussen [45, 46]. Es kann zum Auftreten von Elektron-Loch-Tröpfchen kommen [43, 47]. Dies sind lokale, scharf abgegrenzte Bereiche mit hoher Ladungsträgerdichte aufgrund der anziehenden Wechselwirkung über die Bandkantenrenormierung [48]. Aufgrund der hohen Lebensdauer der Ladungsträger in indirekten Halbleitern wurde dieser Effekt in Germanium und Silizium entdeckt [49].

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass der Fermi-Druck zur Ausbildung einer Schockwelle führen kann, die mit einer konstanten Geschwindigkeit läuft. Der Effekt ist jedoch sehr stark von der Anregungsdichte abhängig.

3.1.4 Ballistischer Transport

Im Falle des ballistischen Transports treten überhaupt keine Stöße auf, oder sie können zumindest vernachlässigt werden. Die Verteilung befindet sich damit im allgemeinen sehr weit weg vom Gleichgewicht. Betrachtet man sich die optische Anregung eines Halbleiters über der Bandkante, so wird bei Absorption eines Photons ein Elektron-Loch-Paar erzeugt. Aufgrund des vernachlässigbaren Impulses des Photons, zeigt der Impuls von Elektron und Loch zunächst in entgegengesetzte Richtung und ist gleich groß. Der ballistische Transport würde dann eine geradlinige Bahn für die Ladungsträger vorhersagen.

An dieser Stelle sollen einfache geometrische Überlegungen durchgeführt werden, um die zeitliche Entwicklung der Ladungsträgerdichte unterhalb einer Apertur zu veranschaulichen. Im ersten Schritt wird nur von einer Sorte Teilchen ausgegangen, die alle die gleiche Geschwindigkeit v besitzen. Betrachtet wird die zweidimensionale Dynamik einer homogenen Anfangsverteilung innerhalb eines Kreises (Apertur) mit dem Radius R . Die Richtung der Geschwindigkeit soll gleichverteilt sein. Gefragt ist die mittlere Dichte innerhalb des Kreises als Funktion der Zeit.

Zunächst kann die Entwicklung für eine deltaförmige Anregung auf einem Punkt mit dem Abstand ρ zum Zentrum des Kreises berechnet werden. Bewegen sich die Teilchen mit der Geschwindigkeit v , so befinden sich alle Teilchen nach der Zeit t auf einem Kreisring

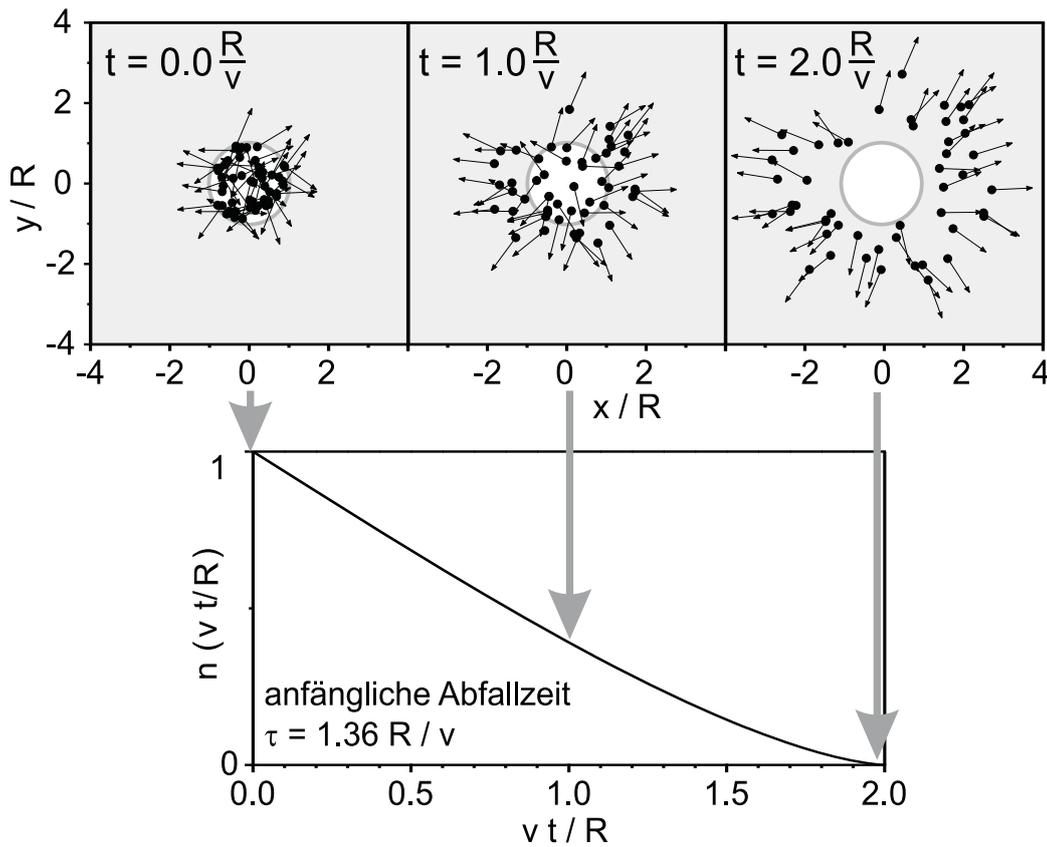


Abbildung 3.4: Oben: Schematische Darstellung des ballistischen Transports. Unten: Entwicklung der Teilchenzahl unterhalb einer Apertur mit Radius R für einheitlicher Geschwindigkeit v der Teilchen.

mit dem Durchmesser vt . Der Mittelpunkt des Rings hat immer den Abstand ρ zum Zentrum der Apertur. Es muss nun berechnet werden, wie viele Teilchen n_δ auf diesem Ring sich unterhalb der Apertur mit Radius R befinden:

$$n_\delta(\rho, t) = \begin{cases} 1 & : vt \leq R - \rho \\ \frac{1}{\pi} \arccos \frac{\rho^2 + (vt)^2 - R^2}{2\rho vt} & : R - \rho < vt < R + \rho \\ 0 & : vt \geq R + \rho \end{cases} \quad (3.29)$$

Die Integration über die Kreisfläche liefert das Ergebnis für homogene Anfangsverteilung im Kreis.

$$n\left(\frac{vt}{R}\right) = \frac{\int_0^R n_\delta(\rho, t) 2\pi\rho d\rho}{\pi R^2} \quad (3.30)$$

Die numerische Integration liefert die Funktion $n(vt/R)$. Der Verlauf ist in Abbildung 3.4 zu sehen. Zum Zeitpunkt $t = 0$ befinden sich alle Teilchen innerhalb des Kreises. Nach der Zeit $t = 2R/v$ haben alle Teilchen eine Strecke durchlaufen, die dem Durchmesser entspricht.

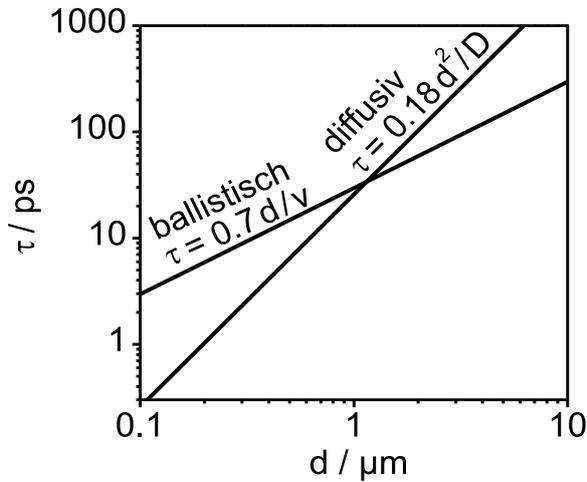


Abbildung 3.5: Vergleich der anfänglichen Abfallzeit der Dichte für ballistischen Transport mit $v = 23 \text{ nm/ps}$ entsprechend der abgeschätzten Geschwindigkeit für schwere Löcher und für Diffusion mit einer typischen Diffusionskonstante für GaAs von $D = 7000 \text{ nm}^2/\text{ps}$.

Alle Teilchen befindet sich jetzt außerhalb des Kreises. Die charakteristische Abfallzeit der Teilchenzahl zu Beginn als Funktion des Anfangsdurchmessers $d = 2R$ kann bei Annahme einer konstanten Geschwindigkeit berechnet werden. Zum Vergleich ist nochmal das Verhalten einer gaußförmigen Verteilung bei diffusivem Transport angegeben.

$$\text{Ballistischer Transport mit Geschwindigkeit } v : \quad \tau_{\text{ball.}} = 0.68 \frac{d}{v} \quad (3.31)$$

$$\text{Diffusion mit Diffusionskonstante } D : \quad \tau_{\text{diff.}} = \frac{1}{8 \ln 2} \cdot \frac{d^2}{D} \quad (3.32)$$

Im Falle des ballistischen Transports skaliert die Abfallzeit linear, für diffusiven Transport quadratisch mit dem Anfangsdurchmesser. Diese Abhängigkeit wird in Abbildung 3.5 auf einer doppelt logarithmischen Skala dargestellt. Für die Diffusionskonstante wurde ein typischer Wert für GaAs von $D = 70 \text{ cm}^2/\text{s} = 7000 \text{ nm}^2/\text{ps}$ verwendet. Die Geschwindigkeit von optisch angeregten Elektronen und Löcher in GaAs kann aus der Überschussenergie berechnet werden. Die Impulse sind betragsmäßig gleich groß, zeigen jedoch in entgegengesetzte Richtung. Die typische Überschussenergie bei resonanter Anregung mit 100 fs Impulsen beträgt 5 meV. Mit Hilfe der effektiven Massen ($m_e = 0.067m_0$, $m_{\text{hh}} = 0.45m_0$) erhält man eine Geschwindigkeit für Elektronen von $v_e = 151 \text{ nm/ps}$ und für schwere Löcher von $v_{\text{hh}} = 23 \text{ nm/ps}$. Die Skalierung entsprechend der Geschwindigkeit der Löcher wurde in Abb. 3.5 eingetragen.

Bemerkenswert an Grafik 3.5 ist, dass sich die Kurven bei einem Anfangsdurchmesser von ca. $1 \mu\text{m}$ schneiden. Für größere Durchmesser entspricht das Verhalten, der intuitiven Erwartung. Die Diffusion liefert größere Zeitkonstanten. Der Transport ist demzufolge langsamer verglichen mit der ballistischen Lösung. Dies entspricht der Vorstellung, dass bei Diffusion die Transportgeschwindigkeit durch die zahlreichen Stöße reduziert wird. Infolge des unterschiedlichen Skalierungsverhaltens kommt es für kleine Anfangsdurchmesser zu der kontraintuitiven Situation, dass die Diffusionsgleichung kürzere Zeiten voraussagt als die ballistische Beschreibung. Der Transport durch Diffusion müsste damit schneller sein

als die Geschwindigkeit der Teilchen. Dies kann nicht richtig sein. Die Diffusionsgleichung kann in diesem Bereich zur Beschreibung des Transports nicht mehr verwendet werden. Im Experiment sollte man für kleiner werdende Anfangsdurchmesser ein Abknicken vom Skalierungsverhalten der Diffusion auf das Skalieren gemäß dem ballistischen Transport beobachten. Genau dieser Punkt soll in Messungen an GaAs in dieser Arbeit untersucht werden.

Das Versagen der Diffusionsgleichung kann auch leicht anschaulich verstanden werden. Der treibende Term ist der Teilchengradient, ein höherer Gradient verursacht einen größeren Strom oder entsprechend auch eine höhere Teilchengeschwindigkeit. Prinzipiell kann diese Geschwindigkeit für hohe Gradienten beliebig schnell werden, unrealistischer Weise auch größer als die individuelle Geschwindigkeit der Teilchen.

Im Fall der optischen Anregung der Ladungsträger im Experiment besitzen die Teilchen natürlich unterschiedliche Geschwindigkeiten. Die Abfallzeit erhält man durch entsprechendes Mitteln über alle Geschwindigkeiten. Trotzdem skaliert die Zeitkonstante linear mit dem Anfangsdurchmesser, sodass die vereinfachte Annahme einer einheitlichen Geschwindigkeit nur einen falschen Vorfaktor liefert. Der Vergleich zwischen Diffusion und ballistischem Transport sowie das Skalierungsverhalten ist weiterhin korrekt.

3.2 Transport in Galliumarsenid

In diesem Abschnitt soll eine Einführung in experimentelle und theoretische Arbeiten zum räumlichen Transport von optisch angeregten Ladungsträgern gegeben werden. Dies ist als Ausgangspunkt für die in dieser Arbeit durchgeführten Experimente zu sehen. Die Darstellung soll zeigen, dass es eine Vielzahl sehr unterschiedlicher Methoden gibt, um diesen Transport zu untersuchen. Ein direkter Vergleich der Ergebnisse ist relativ schwierig. Die Experimente unterscheiden sich durch die Anregungsenergie und Anregungsdichte, die Detektion der Ladungsträger mittels Lumineszenz oder Transmissionsänderung, die räumlichen und zeitlichen Skalen oder einfach im Probedesign und der Beweglichkeit der Ladungsträger. Die Ergebnisse müssen deshalb immer im Zusammenhang der jeweiligen experimentellen Realisierungen betrachtet werden.

Die Experimente von Hillmer und Koautoren [50, 51] zur Bestimmung der Beweglichkeit sind vom Prinzip ähnlich zu den Experimenten in dieser Arbeit. Mehrere unterschiedlich dicke GaAs-Quantenfilme werden durch eine Apertur in einem Metallfilm mit 8 ps-Laserimpulsen bei 2 eV angeregt. Die Ladungsträger formieren sich nach der Anregung zu Exzitonen und die Lumineszenz wird zeitlich aufgelöst detektiert. Der Aperturdurchmesser variiert zwischen $1.5 \mu\text{m}$ und $10 \mu\text{m}$, die Zeitauflösung beträgt 50 ps. Typische Abfallzeiten der Lumineszenz aufgrund des Transports liegen im Bereich von Nanosekunden. Die Lebensdauer der Exzitonen von wenigen Nanosekunden ist diesem Abfall überlagert. Die Messkurven werden durch die Lösung der Diffusionsgleichung mit zusätzlicher Rekombination beschrieben. Die Anpassung liefert die Diffusionskonstanten. Infolge der Thermalisierung in den betrachteten großen Zeitbereichen kann die Dynamik der Exzitonen komplett durch die Diffusionsgleichung beschrieben werden. Die Impulsverteilung der Exzitonen wird

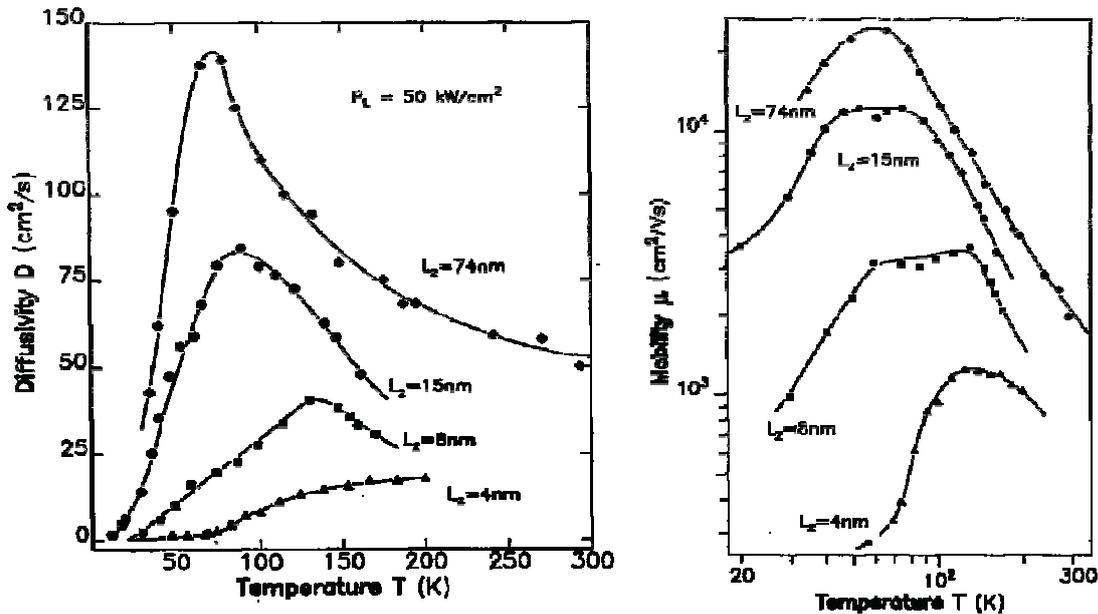


Abbildung 3.6: Diffusionskonstante $D = \mu k_B T / e$ und Beweglichkeit μ für GaAs-Quantenfilme verschiedener Dicke [51]

durch die Streuung mit Phononen festgelegt. Aus der Dynamik wird die temperaturabhängige Diffusionskonstante und die Beweglichkeit bestimmt. Diese Größen sind für verschieden dicke Quantenfilme in Abbildung 3.6 dargestellt. Die starke Reduktion der Diffusionskonstanten und der Beweglichkeit zu dünneren Quantenfilmen hin ist verursacht durch die Grenzflächenrauigkeiten. Diese Rauigkeit führt zu einem Unordnungspotential, dessen Amplitude zu dünneren Schichten hin dramatisch zunimmt. Vor allem bei tiefen Temperaturen wirkt sich dieser Mechanismus sehr stark auf die Beweglichkeit aus. Die Beweglichkeit fällt zu größeren Temperaturen infolge der Streuung mit akustischen und optischen Phononen ab. Dieser Effekt ist intrinsisch und wird nicht durch die Qualität der Proben beeinflusst. Die Reduktion der Beweglichkeit zu tieferen Temperaturen ist eine Folge der Störstellenstreuung. Die Qualität der Probe spielt hier eine wesentliche Rolle.

Richter und Koautoren [52] studieren den lateralen Transport in einem Quantenfilm bei resonanter Anregung mit 100 fs-Impulsen durch eine metallisierte Glasfaserspitze mit einem Aperturdurchmesser von 200 nm. Innerhalb des Quantenfilms befindet sich ein Quantendraht. Die erzeugten Ladungsträger bewegen sich durch den Quantenfilm und können in dem Quantendraht strahlend rekombinieren. Diese Lumineszenz wird als Funktion des Abstandes zwischen Glasfaserspitze und Quantendraht mit einer Zeitauflösung von 260 ps detektiert. Der maximale Abstand beträgt $3 \mu\text{m}$. Der Potentialverlauf senkrecht zum Quantendraht wird über Lumineszenzmessungen bestimmt [53] und in das Modell basierend auf der Drift-Diffusionsgleichung eingesetzt. Der Vergleich zwischen Modell und Experiment zeigt eine gute Übereinstimmung für eine Beweglichkeit der Exzitonen von $\mu_{\text{Exz.}} = 1500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$

bei 100 K. Für tiefere Temperaturen überwiegt der Driftbeitrag in den Messungen.

In den bisher aufgezeigten Experimenten wurden die Ladungsträger über die Lumineszenz nachgewiesen. Die geringe zeitliche Auflösung erlaubt nur die Beobachtung von thermalisierten Verteilungen.

Einen direkten Zugang zur Ladungsträgerdichte ermöglicht die Messung der Absorptionsänderung unter Verwendung von zwei Laserimpulsen mit definierter Zeitverzögerung. Smith und Koautoren [54] haben solche Messungen der differentiellen Transmission mit einem optischen Nahfeldmikroskop bei einer Auflösung von 200–300 nm durchgeführt. Für eine Anregung und Detektion mit identischen 80 fs-Impulsen 130 meV über der Bandkante zeigt das Signal im Gegensatz zu Fernfeldexperimenten keinen Beitrag mit einer Zeitkonstanten von 150 fs - 300 fs. Dieser Beitrag wird für die Emission von optischen Phononen erwartet. Die Interpretation der Autoren besagt, dass ein Teil der Ladungsträger den Fokusbereich ballistisch verlassen, bevor optische Phononen emittiert werden.

Ein weitere Möglichkeit die räumliche Dynamik zu studieren liefert die Methode des Dreistrahl-Vierwellenmischens. Dieser Zugang wurde von Schaefer und Koautoren verfolgt [55]. Die Interferenz von zwei Laserstrahlen unter einem gewissen Winkel θ erzeugt in einem Halbleiterquantenfilm ein Dichtegitter der Exzitonenverteilung. In den Experimenten wurde die Periode des Gitters über den Winkel θ zwischen $3 \mu\text{m}$ und $30 \mu\text{m}$ variiert. Die Amplitude dieses Gitter kann durch Rekombination der Ladungsträger oder durch lateralen Transport reduziert werden. Die Autoren führen das Experiment bei Dichten um 10^{15} cm^{-3} in der Frequenzdomäne durch. Die beiden Laserstrahlen werden mit unterschiedlichen Frequenzen moduliert. Als Messsignal dient die abgebeugte Intensität eines dritten Strahls als Funktion der Differenzfrequenz. Im Fall der $3 \mu\text{m}$ Periodizität ist die Zerfallszeit des Gitters aufgrund von Transport 30% langsamer als die Vorhersage des Diffusionsmodells. Die Ergebnisse können jedoch durch die Boltzmann-Gleichung gut beschrieben werden.

Experimente mit höherer räumlicher Auflösung wurden von Vollmer und Koautoren durchgeführt [56]. Ein 130 fs Laserimpuls wird mittels Mikroskopobjektiv und Immersionslinse aus GaP auf einen Durchmesser von 355 nm fokussiert. Die Ausbreitung der Ladungsträger in der Mehrfach-Quantenfilmprobe wird mittels differentieller Transmissionspektroskopie bei $T = 8 \text{ K}$ gemessen. Der laterale Abstand der Fokusse von Anrege- und Abfrageimpuls wird über einige Mikrometer variiert. Die Methode erlaubt ein räumliches Abtasten der Verteilung zu gewissen Zeiten nach der Anregung. Die Experimente geben Hinweise auf einen Transport mit 30 nm/ps zu frühen Zeiten und ein Übergehen zu diffusivem Transport nach 10 ps bei einer Anregung von 15 meV über der Schwerlochresonanz. Im Fall resonanter Anregung von Exzitonen kann erst nach dem Aufheizen durch Phononen ($\sim 100 \text{ ps}$) ein Transport beobachtet werden.

In ähnlicher Weise jedoch ohne Immersionslinse studieren Grosse und Koautoren [57] das Aufheizen und Abkühlen von Ladungsträgern und die Auswirkungen auf die räumliche Dynamik. In früheren Experimenten [58] wurde mit dieser Methode eine Erhöhung der Diffusionskonstanten für größere Anregungsdichten beobachtet. Die Ursache liegt in der Entartung des Plasmas wie in Abschnitt 3.1.3 beschrieben und der Abschirmung von Streuzentren.

Neben diesen vorgestellten Methoden gibt es noch eine Vielzahl weiterer Möglichkeiten räumlichen Transport zu untersuchen. Ladungsträger können beispielsweise mit einem Elektronenstrahl unter einer Metallmaske erzeugt werden. Laufen die Ladungsträger unter der Maske heraus, so ist die Lumineszenz durch strahlende Rekombination detektierbar [59]. Es ist möglich durch Ionenbeschuss die nichtstrahlende Rekombination lokal stark zu erhöhen. Der laterale Transport in diese Rekombinationszentren kann mit einem optischen Nahfeldmikroskop untersucht werden [60, 61]. Eine Möglichkeit den Transport in Wachstumsrichtung zu studieren, besteht darin den Halbleiter nur in der Nähe der Oberfläche optisch anzuregen. Die zeitaufgelöste Messung der Lumineszenz verschieden tief vergrabener Quantenfilme liefert Aussagen über die Dynamik der Ladungsträger [62].

Weiterhin beschäftigen sich viele theoretische Arbeiten mit der raumzeitlichen Dynamik von exzitonischen Wellenpaketen. Die Entwicklung der Verteilungsfunktion nach lokaler optischer Anregung wird dabei berechnet. Untersucht wird beispielsweise die unterschiedliche Dynamik bei resonanter Anregung und Anregung über der Bandlücke. Die Coulomb-Wechselwirkung wird in Hartree-Fock Näherung behandelt. Der Streuterm der Halbleiter-Blochgleichungen berücksichtigt die Wechselwirkung mit den Phononen [63]. Diese können, je nach kinetischer Energie der Ladungsträger, sowohl zum Aufheizen als auch zum Abkühlen der Ladungsträger führen. Die Phononenstreuung führt zu Veränderungen speziell auch in der Verteilung der Impulsrichtungen. Der Übergang von ballistischem zu diffusivem Transport kann theoretisch untersucht werden [64, 65]. In weiteren Modellen werden auch Potentialfluktuationen durch Grenzflächenrauigkeiten berücksichtigt [66].

Der experimentelle Zugang zur Dynamik, der in dieser Arbeit gewählt wurde, vereinigt die Vorteile von verschiedenen Methoden. Die Beobachtung der Ladungsträger erfolgt durch Transmissionsmessungen. Damit ist es möglich mit sehr hoher zeitlicher Auflösung alle Ladungsträger im spektralen Fenster des Lasers zu erfassen. Diese Methode ist der relativ indirekten Beobachtung über die Lumineszenz vorzuziehen. Der Hauptbeitrag der Lumineszenz wird erst nach dem Thermalisieren der Ladungsträger durch Streuung emittiert und liegt damit in einem relativ uninteressanten Zeitfenster. Abweichungen vom diffusiven Verhalten sind jedoch in den ersten Pikosekunden zu erwarten. Ladungsträger, die nicht unter Emission eines Photons rekombinieren, werden in solchen Experimenten erst gar nicht erfasst. Ein zweiter sehr wichtiger Punkt betrifft die räumliche Auflösung. Die Abweichung von der Diffusionsgleichung ist gerade für sehr kleine Anfangsdurchmesser am stärksten ausgeprägt. Unsere Metallaperturen besitzen Durchmesser von nur 100 nm. Der Abstand zwischen Maske und optisch aktiver Schicht beträgt gerade einmal 22 nm. Die Anfangsverteilung sollte damit nur unwesentlich größer sein als die Apertur. Die Masken erlauben es, diesen Anfangsdurchmesser in sehr definierter Weise zu variieren und speziell das Messsignal nach dieser Abhängigkeit zu analysieren. Die Experimente erlauben den Transport auf einer 100 nm und 100 fs Skala systematisch zu studieren.

3.3 Optik und Nanoaperturen

Dieser Abschnitt befasst sich mit der Optik metallischer Aperturen. Im ersten Teil wird die Transmission durch Aperturen diskutiert. Besonders die große Diskrepanz zwischen einfachen theoretischen Modellen und experimentellen Ergebnissen soll aufgezeigt werden. Im zweiten Teil steht die Anwendung dieser Nahfeldaperturen in der Halbleiteroptik zur Erhöhung der räumlichen Auflösung im Vordergrund.

3.3.1 Optische Eigenschaften metallischer Nanoaperturen

Die geometrische Optik liefert für die transmittierte Intensität I durch eine Apertur oder Lochblende mit dem Durchmesser d bei homogener Beleuchtung einfach eine Proportionalität zur Fläche $I \propto d^2$. Die Transmissionseffizienz T ist die transmittierte Intensität relativ zur einfallenden Intensität auf die Fläche der Apertur. Sie ist in der geometrischen Optik trivialerweise 1. Das gesamte Licht, das auf die Apertur fällt, wird transmittiert. Im nächsten Schritt sollen auch Beugungseffekte berücksichtigt werden. Die Kirchhoffsche Theorie, basierend auf dem Huygenschen Prinzip, setzt das Feld in der Ebene der Apertur gleich dem einfallenden Feld. Die Integration über diese Ebene liefert das Feld hinter der Apertur. Ist die Lochblende deutlich kleiner als die Wellenlänge ($d/\lambda \ll 1$), so ergibt sich eine konstruktive Interferenz in alle Richtungen. Das transmittierte Feld skaliert proportional zur Fläche. Die Intensität fällt für kleine Durchmesser mit $(d/\lambda)^4$ ab. Aus der Kirchhoffschen Beugungstheorie ergibt sich eine Transmissionseffizienz T proportional zu $(d/\lambda)^2$.

Erste weitergehende theoretische Untersuchungen zur Transmission einer elektromagnetischen Welle durch eine kleine Lochblende wurden 1944 von Bethe unternommen [67]. Diese Rechnungen wurden durchgeführt, um das Verhalten gekoppelter Mikrowellenresonatoren besser zu verstehen. Betrachtet wird eine kreisförmige Öffnung in einer perfekt leitenden Platte mit vernachlässigbarer Dicke. Die Behandlung geht über die Kirchhoffsche Beugungstheorie hinaus und beschreibt eine Lösung, die sowohl den Maxwell-Gleichungen als auch den Randbedingungen genügt. Fiktiv eingeführte Ströme und Ladungen in der Ebene der Platte werden so eingestellt, dass die Randbedingungen für elektrische und magnetische Felder auf der Plattenoberfläche erfüllt werden. Die totale Transmission durch die Apertur S_{Bethe} kann ausgedrückt werden als Funktion von Aperturdurchmesser d und Wellenvektor $k = 2\pi/\lambda$. Die Felder H_0 und E_0 entsprechen einer einfallenden Welle auf der Platte ohne Apertur. Die Intensität der Transmission einer Apertur skaliert nach Bethe mit d^6 , die Transmissionseffizienz mit d^4 .

$$S_{\text{Bethe}} = \frac{c}{27\pi^2} k^4 d^6 (4H_0^2 + E_0^2) \quad (3.33)$$

Damit kann die Transmissionseffizienz für eine metallische Apertur nach verschiedenen Modellen noch einmal zusammengefasst werden.

Geometrische Optik	$T_{\text{Geom}} = 1$
Kirchhoffsche Beugungstheorie	$T_{\text{K}} \propto \left(\frac{d}{\lambda}\right)^2$
Bethe-Lösung	$T_{\text{B}} \propto \left(\frac{d}{\lambda}\right)^4$

Die bisherigen Überlegungen betrachten das Metall als idealen Leiter. Es ist jedoch leicht einzusehen, dass diese Näherung für die hier betrachteten Probleme im allgemeinen nicht gerechtfertigt ist. Beispielsweise dringt die elektromagnetische Welle in das Metall ein. Die Absorptionslänge $\alpha = 4\pi n_2/\lambda$ ist die maßgebende Größe. Sie ist proportional zum Imaginärteil des Brechungsindex n_2 . Der Durchmesser der Apertur bezüglich der Optik kann somit größer sein als der geometrische Durchmesser.

Theoretische Arbeiten beschäftigen sich auch mit dem Problem der Feldverteilung unterhalb einer metallischen Apertur. Die Maxwell-Gleichungen werden für bestimmte Randbedingungen numerisch mit Hilfe der Methode der Greenfunktionen gelöst. Die Simulationen zeigen die exponentielle Abnahme des evaneszenten Feldes unterhalb der Apertur. An den Rändern der Apertur, die senkrecht zum Vektor des elektrischen Feldes stehen, ist eine starke Erhöhung des Nahfelds zu beobachten [68]. Aus diesem Grund wird in unseren Experimenten eine zirkulare Polarisation für Anrege- und Abfragestrahl gewählt. Somit kann sichergestellt werden, dass die Ladungsträgerverteilung rotationssymmetrisch ist. Intensive theoretische Untersuchungen zur Nahfeldverstärkung an Objekten unter einer Glasfaserspitze wurden auch in der Diplomarbeit von G. v. Freymann durchgeführt [69].

Einen weiteren sehr wichtigen Einfluss auf die optischen Eigenschaften der metallischen Aperturen haben Oberflächenplasmonen [70]. Deren Eigenschaften unterscheiden sich in wesentlichen Punkten von den *gewöhnlichen* Volumenplasmonen in Metallen. Plasmonen sind eine kollektive Anregung des Elektronensystems [71]. Die Energie dieser Volumenplasmonen $\hbar\omega_p$ hängt nur von der Dichte n der freien Elektronen und von deren effektiver Masse m_0 ab:

$$\omega_p^2 = \frac{ne^2}{\epsilon_0 \epsilon m_0}$$

Typische Energien liegen in Metallen im Bereich von 10 eV. Eine wichtige Erweiterung bringt das Konzept der Oberflächenplasmonen. Abbildung 3.7 zeigt links eine schematische Darstellung. Oberflächenplasmonen sind die Quasiteilchen einer Schwingung des kollektiven Elektronensystems an einer Metalloberfläche. Die Dichte der Elektronen im Bereich der Oberfläche fluktuiert. Die Maxwell-Gleichungen zeigen, dass diese elektromagnetischen Oberflächenwellen entlang der Grenzfläche Metall-Isolator in x -Richtung propagieren können. Die Feldstärke ist maximal an der Grenzfläche und fällt in z -Richtung in das Metall und in den Isolator exponentiell ab.

In Abbildung 3.7 ist rechts die Dispersionsrelation des Volumenplasmons und des Oberflächenplasmons dargestellt. Die Dispersion des Oberflächenplasmons hängt auch von der dielektrischen Funktion ϵ_2 des Dielektrikums ab. Für größere ϵ_2 verläuft die Dispersionskurve flacher (gestrichelt eingezeichnet). Das Spektrum der Eigenfrequenzen liegt zwischen

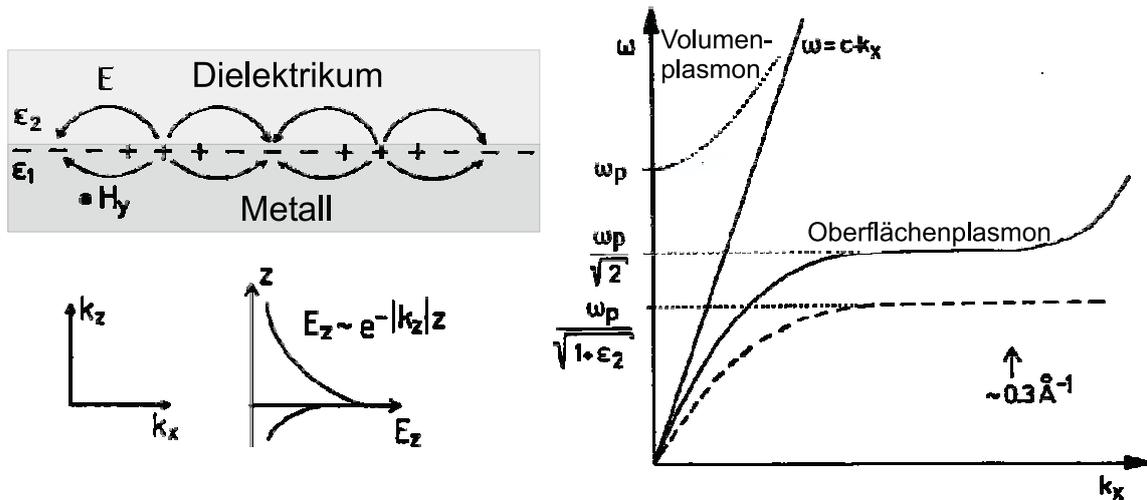


Abbildung 3.7: Links: Schematische Darstellung des Oberflächenplasmons. Unten: Exponentielles Abklingen des elektrischen Feldes mit zunehmendem Abstand zur Grenzfläche. Rechts: Dispersionsrelation des Volumenplasmons und des Oberflächenplasmons an der Grenze Metall-Vakuum und Metall-Dielektrikum [70].

$\omega = 0$ und $\omega = \omega_p / \sqrt{1 + \epsilon_2}$. Die Dispersionskurve $\omega(k_x)$ liegt immer unterhalb der Lichtgeraden, sodass keine direkte optische Anregung der Oberflächenplasmonen möglich ist. Andererseits können diese auch nicht in Photonen zerfallen. Die Dispersionsrelation mit dem komplexen Wellenvektor des Oberflächenplasmons k_x in der Ebene der Grenzfläche hängt von der komplexen dielektrischen Funktion des Metalls $\epsilon_1(\omega)$ und dem Dielektrikum $\epsilon_2(\omega)$ ab.

$$k_x = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_1 \epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2}} \quad (3.34)$$

Der Wellenvektor k_z senkrecht zur Grenzfläche hängt von der dielektrischen Funktion des jeweiligen Mediums $\epsilon_{1,2}$ ab und kann geschrieben werden als $k_x^2 + k_z^2 = \epsilon_{1,2}(\omega/c)^2$. Die Feldstärke fällt in das Medium mit $\exp(-|k_z||z|)$ exponentiell ab. Bei Silber und einer Wellenlänge von $\lambda = 514.4 \text{ nm}$ beträgt die Eindringtiefe 24 nm ins Silber und 390 nm ins Vakuum. Die Intensität der Oberflächenplasmonen propagiert entlang der Oberfläche wie $I_{\text{sp}} \propto \exp(-2 \text{Im}\{k_x\}x)$. Die Propagationsweite beträgt bei Silber rechnerisch sogar 22 μm .

Die optische Anregung von Oberflächenplasmonen kann über zwei verschiedene Methoden dennoch gelingen. Mit Hilfe der frustrierten Totalreflexion oder über eine raue Oberfläche, idealerweise ein Gitter. Im ersten Fall wird das evaneszente Feld einer Totalreflexion (beispielsweise an einem Prisma) dicht über die Metalloberfläche gebracht. Die Steigung der Lichtgerade wird um den Brechungsindex des Prismas kleiner und kann die Dispersionskurve schneiden. Ein weiterer Mechanismus ist die Kopplung über ein Gitter. Die Periodizität des Gitters g bricht die Translationsinvarianz der Oberfläche. Es gilt nur noch eine k -Erhaltung bis auf Vielfache des reziproken Gittervektors $|\vec{G}| = 2\pi/g$. Oftmals wird dieses

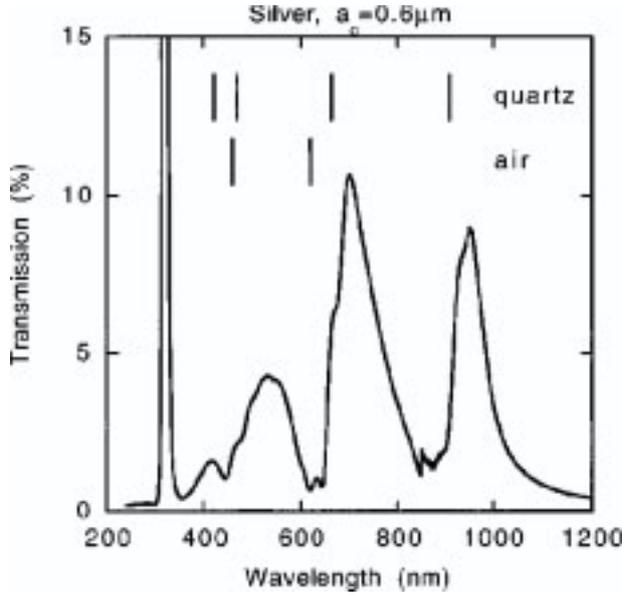


Abbildung 3.8: Transmission in Richtung nullter Ordnung eines 200 nm dicken Silberfilms mit periodisch angeordneten Aperturen von 150 nm Durchmesser auf einem 600 nm quadratischen Raster. Die durchgezogenen Linien markieren die Position der Moden \vec{k}_{photon} für verschiedene Werte von n und m [73].

Verhalten durch das Zurückfalten der Dispersionskurve [72] in eine viel kleinere Brillouin-Zone von Null bis $|\vec{G}|$ dargestellt. Dadurch ergeben sich zahlreiche Schnittpunkte mit der Lichtgeraden. In einer zweidimensionalen Anordnung von Strukturen mit dem Abstand g_x und g_y gilt für den Wellenvektor des Oberflächenplasmons \vec{k}_{sp} und dem Wellenvektor des Lichts in der Ebene der Struktur \vec{k}_{photon} ($|\vec{G}_{x,y}| = 2\pi/g_{x,y}$):

$$\vec{k}_{\text{sp}} = \vec{k}_{\text{photon}} \pm n \cdot \vec{G}_x \pm m \cdot \vec{G}_y \quad (3.35)$$

Die Ankopplung an das Lichtfeld hängt somit von der Topographie der Oberfläche ab und existiert für eine nahezu beliebige Strukturierung oder Rauigkeit der Grenzfläche. Alle Raumfrequenzen \vec{G} führen zu einem Zurückfalten und damit einer Kopplung zwischen Oberflächenplasmon und Photon.

Zunächst könnte man glauben, dass die Oberflächenplasmonen nur einen kleinen Beitrag zur optischen Transmission durch eine Apertur liefern. Die Oberflächenplasmonen müssen auf der einen Seite der Metallschicht erzeugt werden, durch die Apertur propagieren und auf der anderen Seite wieder strahlend zerfallen. Dieser Prozess ist jedoch keineswegs vernachlässigbar. Im Gegenteil, er liefert oft den wesentlichen Beitrag zur Transmission. Ebbesen und Koautoren haben gezeigt, dass die Transmission von metallischen Aperturen um ein Vielfaches höher sein kann als nach der Bethe-Lösung erwartet [7, 73, 74]. Abbildung 3.8 zeigt das Transmissionsspektrum durch eine periodische Anordnung von Aperturen mit einem Durchmesser von 150 nm. Die Herstellung der Löcher in einem 200 nm dicken Silberfilm auf einem Quarzsubstrat erfolgt mittels fokussierter Ionenstrahlen. Der Abstand im quadratischen Gitter beträgt 600 nm. Die Linien markieren die Position der Moden \vec{k}_{photon} für die Grenzfläche Metall-Luft und Metall-Quarz. Bei diesen Wellenlängen erfolgt eine effektive Kopplung zwischen Photonen und Oberflächenplasmonen und damit eine maximale Transmission. Die Moden können aus der Kombination von Gleichung (3.34) und (3.35) für

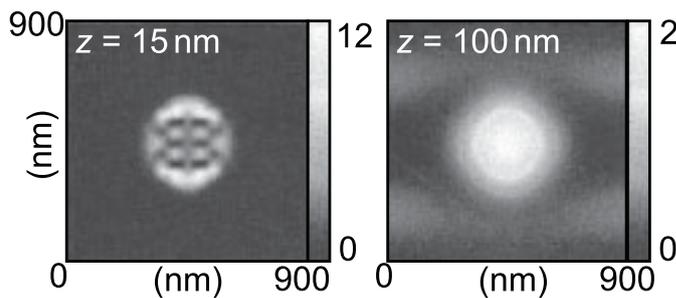


Abbildung 3.9: Laterale Intensitätsverteilung unter einer 300 nm-Apertur in einem 20 nm dicken Ag-Film für verschiedenen Abstände z bei $\lambda = 800 \text{ nm}$. Die Aperturen liegen auf einem periodischen 900 nm-Raster [78].

verschiedene Werte von n und m berechnet werden. Die Maxima der Transmission stimmen halbwegs mit den berechneten Moden überein. Dies zeigt, dass der Energietransport durch die Aperturen im wesentlichen durch Oberflächenplasmonen erklärt werden kann. Ganz besonders erstaunlich ist die absolute Transmission von 10% bei bestimmten Wellenlängen, obwohl die Löcher nur 5% der Fläche bedecken. Eine Transmissionseffizienz von $T = 2$ bedeutet, dass mehr Licht durch die Löcher gelangt als eigentlich auf die Fläche der Löcher einfällt. Die Oberflächenplasmonen wirken wie ein Trichter für Photonen bestimmter Wellenlänge. Die Transmission ist bis zu einem Faktor 1000 größer als nach der Bethe-Lösung erwartet. Numerische Berechnungen anderer Gruppen an metallischen Gitterstrukturen bestätigen den Mechanismus der Transmissionserhöhung durch Oberflächenplasmonen [75]. In neuesten Veröffentlichungen von Martín-Moreno und Mitarbeitern [76, 77] sowie Salomon und Mitarbeiter [78] werden auch berechnete Intensitätsverteilungen an periodisch angeordneten metallischen Aperturen unter Berücksichtigung der Oberflächenplasmonen vorgestellt. Abbildung 3.9 zeigt die laterale Intensitätsverteilung unter einer 300 nm-Apertur in einem 20 nm dicken Ag-Film auf Quarz für verschiedenen Abstände z unter der Apertur. Die Wellenlänge beträgt 800 nm. Die Aperturen liegen auf einem periodischen 900 nm-Raster. Die linke Grafik zeigt oben und unten an den Rändern der Apertur die Beiträge infolge der Nahfelderhöhung an den Kanten senkrecht zum Vektor des elektrischen Feldes. Die Strukturen in der Intensitätsverteilung sind eine Folge der Oberflächenplasmonen. In größerem Anstand zur Apertur (Abbildung rechts) sind diese Beiträge zum evaneszenten Nahfeld bereits nicht mehr zu erkennen.

Eine elegante Möglichkeit, die räumliche Dynamik der Oberflächenplasmonen zu studieren, bietet sich mit einem optischen Nahfeldmikroskop. Das evaneszente Feld der Glasfaser Spitze kann lokal zur Anregung von Oberflächenplasmonen genutzt werden. Es ist sogar möglich, über das Einstellen der Polarisation die Oberflächenplasmonen in bestimmte Richtungen loslaufen zu lassen [79]. Befindet sich in dieser Richtung eine Apertur im untersuchten Metallfilm, so kann eine erhöhte Transmission gemessen werden [80].

Eine Problematik für die lokale Anregung des Halbleiters in unseren Experimenten liegt in der Ausbreitung der Oberflächenplasmonen hinter der Apertur. Dies könnte zu einem unerwünschten größeren räumlichen Bereich der Anregung führen. Experimente mittels optischer Nahfeldmikroskopie an Aperturen zeigen eine maximale Transmission direkt unter der Apertur. Eine wesentliche Verbreiterung der Intensitätsverteilung ist in den Experimenten nicht zu erkennen. Es wird nur eine relativ kleiner Beitrag mit einer größeren räumlichen

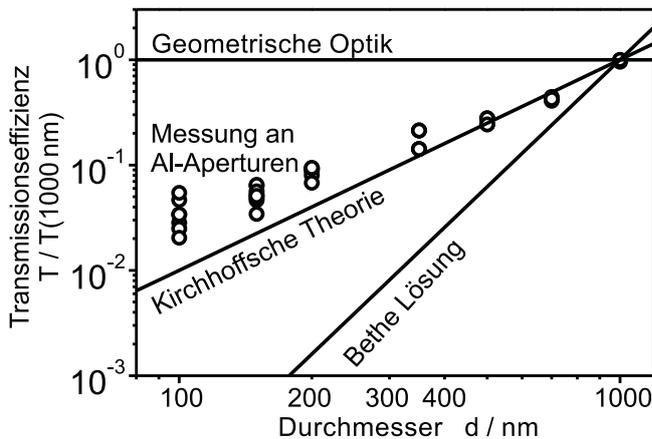


Abbildung 3.10: Gemessene Transmissionseffizienz an einzelnen Aperturen in einem 100 nm dicken Aluminiumfilm als Funktion des Durchmessers bei $\lambda = 800 \text{ nm}$. Die durchgezogenen Linien zeigen das Skalieren nach verschiedenen Theorien.

Ausdehnung im Bereich von $1 \mu\text{m}$ beobachtet [80]. Die Rechnungen an den periodisch angeordneten Metallaperturen zeigen ebenfalls eine Intensitätsverteilung, die auf den Bereich hinter der Apertur beschränkt ist (siehe Abb. 3.9).

Eine Anwendung der periodisch angeordneten Metallaperturen liegt in der Verwendung als variabler Spektralfilter oder optischer Schalter. In Flüssigkristallen kann der Brechungsindex durch Anlegen eines äußeren elektrischen Feldes variiert werden. Die Kombination mit einem Raster von Metallaperturen ermöglicht das Verschieben der Moden der Oberflächenplasmonen an der Grenzfläche Metall-Flüssigkristall. Die Transmission bei bestimmten Wellenlängen durch eine periodische Anordnung von Aperturen im Metallfilm kann somit über einen angelegte Spannung variiert werden [81].

Abbildung 3.10 zeigt im Rahmen dieser Arbeit gemessene Transmissionseffizienzen an einzelnen Aperturen in einem 100 nm dicken Aluminiumfilm als Funktion des Durchmessers. Die transmittierte Intensität bei einer Wellenlänge von 800 nm wurde dividiert durch die Fläche der Apertur. Für große Aperturen sollte der Limes der geometrischen Optik $T = 1$ erreicht werden. Wegen des endlichen Aufsammelwinkels ist es sehr schwierig, absolute Transmissionen zu messen. Die Transmissionseffizienz ist deshalb relativ zur Messung bei der $1 \mu\text{m}$ -Apertur dargestellt. Die Kirchhoffsche Theorie beschreibt nur scheinbar das Verhalten relativ gut. Dies liegt an der Vernachlässigung von Effekten, die sich in diesem Fall gerade zufällig kompensieren. Das Feld in den Aperturen wird durch das einfallende Lichtfeld ersetzt. In der Realität ist das Feld jedoch geringer, da die Randbedingungen an der Metalloberfläche erfüllt werden müssen. Die vernachlässigten Oberflächenplasmonen erhöhen hingegen die Transmission. Die Bethe-Lösung liefert eine viel zu kleine Transmission. Infolge der Oberflächenplasmonen wird im Experiment eine viel höhere Effizienz beobachtet. Im Falle der 100-nm-Aperturen liegt die gemessene Transmission mehrere Größenordnungen über der Theorie von Bethe. Erst dieses Verhalten ermöglicht die Messungen an solch kleinen Aperturen. Wäre dies nicht der Fall, so würde bei einem Laserfokus von $1 \mu\text{m}$ auf einem 100 nm dicken Aluminiumfilm die Transmission durch eine 100 nm-Apertur ($\lambda \approx 800 \text{ nm}$) nur einen sehr kleinen Beitrag zur gesamten Transmission durch den Film liefern. In den durchgeführten Messungen hingegen liegt der Untergrund, verursacht durch die endliche

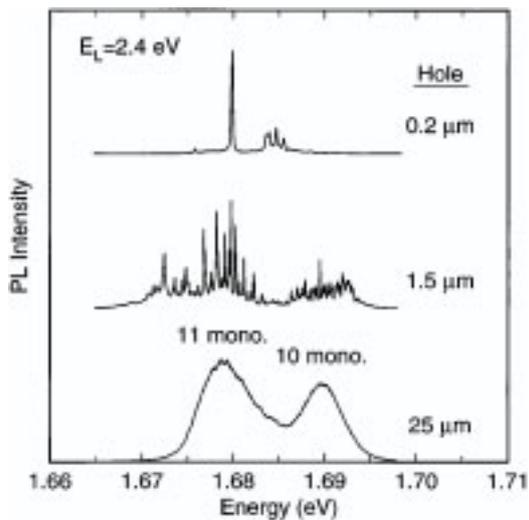


Abbildung 3.11: Photolumineszenzspektren an einem 2.8 nm dicken GaAs-Quantenfilm gemessen durch verschieden große Aperturen in einem darüber liegenden Aluminiumfilm. [83]

Transmission des Film, bei nur wenigen Prozent der Transmission der 100 nm Löcher.

3.3.2 Halbleiteroptik unter Nanoaperturen

Im vorherigen Abschnitt ging es um die optischen Eigenschaften der Metallaperturen an sich. Die Anwendung der Aperturen in der Spektroskopie an Halbleitern soll jetzt vorgestellt werden. Oftmals sind die Eigenschaften der Halbleiterproben nicht räumlich homogen, sondern weisen auf einer Nanometerskala deutliche Unterschiede auf. Beispielsweise können Exzitonen in lateralen Fluktuationen der Dicke einer Halbleiterschicht und dem damit verbundenen Unordnungspotential lokalisiert werden [82]. Die konventionelle Fernfeldoptik kann diese Fluktuationen nicht auflösen und zeigt nur die räumlich gemittelten Eigenschaften der Probe. Daraus lassen sich jedoch nur begrenzt Informationen über die Physik dieser Lokalisierung gewinnen. Die Erhöhung der Auflösung in optischen Experimenten ermöglicht das Studieren einzelner Lokalisierungszentren, oft auch als Quantenpunkte bezeichnet.

Abbildung 3.11 zeigt im unteren Teil ein Photolumineszenzspektrum an einem 2.8 nm dicken GaAs-Quantenfilm mit geringer räumlicher Auflösung [83]. Die beiden Maxima korrespondieren zu Bereichen mit einer mittleren Dicke von 10 bzw. 11 Monolagen GaAs. Aus einem solchen Spektrum kann nicht auf die Ursache der Verbreiterung geschlossen werden. Denkbar ist eine homogene Verbreiterung einer Linie aufgrund der Lebensdauer des Zustandes oder ein inhomogenes Ensemble von Leuchtzentren mit jeweils unterschiedlichen Übergangsenergien. Die Messungen an den kleineren Aperturen zeigen charakteristische, sehr scharfe Linien. Die Lokalisierung in einem Potentialminimum führt zu diskreten Energieniveaus, ähnlich zu dem Verhalten eines Elektrons in einem Atom [84]. Die Verbreiterung im unteren Spektrum ist damit eindeutig auf die Inhomogenität des Quantenfilms zurückzuführen. Dieses Beispiel zeigt wieder sehr deutlich, dass sich nicht alle Eigenschaften eines solchen Systems aus makroskopischen Beobachtungen ableiten lassen. Unter Verwendung von Metallaperturen können gezielt Messungen an einzelnen Exzitonen durchgeführt werden. Beispielsweise kann die Lumineszenz unter resonanter Anregung der diskreten

Zustände studiert werden [85]. Die Energie- und Phasenrelaxation wurde mittels kohärenter nichtlinearer Spektroskopie untersucht [86]. Warburton und Koautoren experimentierten mit einzelnen Quantenringen unter Metallaperturen [87]. Das Auffüllen der Zustände mit Elektronen analog zur Hundschen Regel im Atom konnte beobachtet werden. In ähnlichen Experimenten wurde das Auffüllen von Quantenpunkten und die Auswirkungen von magnetischen Feldern untersucht [88, 89, 90, 91]. CdSe-Quantenpunkten zeigen zwei unterschiedlich gebundene Zustände, deren Lebensdauer sich um eine Größenordnung unterscheidet [92]. Spektroskopie an Metallaperturen kann auch verwendet werden, um lokale Unterschiede in der Zusammensetzung von ternären Halbleiterverbindungen zu bestimmen [93].

3.4 Experimenteller Aufbau

3.4.1 Beschreibung

In diesem Abschnitt wird der experimentelle Aufbau und die verwendeten Komponenten beschrieben. Besondere Aufmerksamkeit liegt vor allem auf den speziellen Komponenten dieses Aufbaus zur Messungen der zeitaufgelösten differentiellen Transmission an Halbleiterproben mit metallischen Aperturen bei tiefen Temperaturen. Abbildung 3.12 zeigt schematischen den experimentellen Aufbau. Mit kleinen Modifikationen können auch Lumineszenzexperimente durchgeführt werden.

Der **Titan-Saphir-Laser** der Firma Spectra-Physics (Modell: Tsunami) wird durch einen Argonionenlaser mit ca. 8 W um 500 nm Wellenlänge gepumpt. Der passiv modengekoppelte Ti:Sa-Laser liefert im Femtosekundenbetrieb Impulse mit einer Dauer von 100 fs und einer Repetitionsrate von 82 MHz bei einer mittleren Leistung von 1,4 W. Die Zentralwellenlänge lässt sich zwischen 700 nm und 1100 nm durchstimmen.

Die Impulse durchlaufen dann ein modifiziertes **Michelson-Interferometer**. Zunächst wird der Strahl an einem Goldstrahlteiler in Anrege- und Abfrageimpuls aufgeteilt. Im Arm des Interferometers mit dem Anregeimpuls befindet sich ein schrittmotorgesteuerter Verschiebetisch. Der Retrospiegel auf dem Verschiebetisch verhindert, dass sich mögliche kleine Schlingerbewegungen beim Verfahren des Tisches auf die Richtung des reflektierten Strahls übertragen. Dies ist besonders wichtig, da sich eine Richtungsänderung direkt auf den räumlichen Überlapp zwischen Anrege- und Abfragestrahl auf der Probe und damit auf das Messsignal auswirkt. Da der Retrospiegel die lineare Polarisierung nicht erhält, befindet sich danach ein Polarisator im Strahlengang. Im Arm für den Abfragestrahl wird durch eine $\lambda/2$ -Platte die Polarisierung um 90° gedreht, außerdem kann durch Graufilter die Intensität relativ zum Anregeimpuls abgeschwächt werden. Bei Messungen der differentiellen Transmission verwenden wir normalerweise ein Intensitätsverhältnis von 10:1 zwischen Anrege- und Abfragestrahl. Beide Strahlen durchlaufen dann noch getrennt einen mechanischen Lichtmodulator (In der Abbildung nur schematisch dargestellt). Dieser moduliert die Strahlen mit der Frequenz f_1 bzw. f_2 . Ein Strahlteiler vereinigt die beiden Strahlen wieder auf eine Achse. Die folgenden Linsen weiten den Strahldurchmesser um einen Faktor drei auf, um die

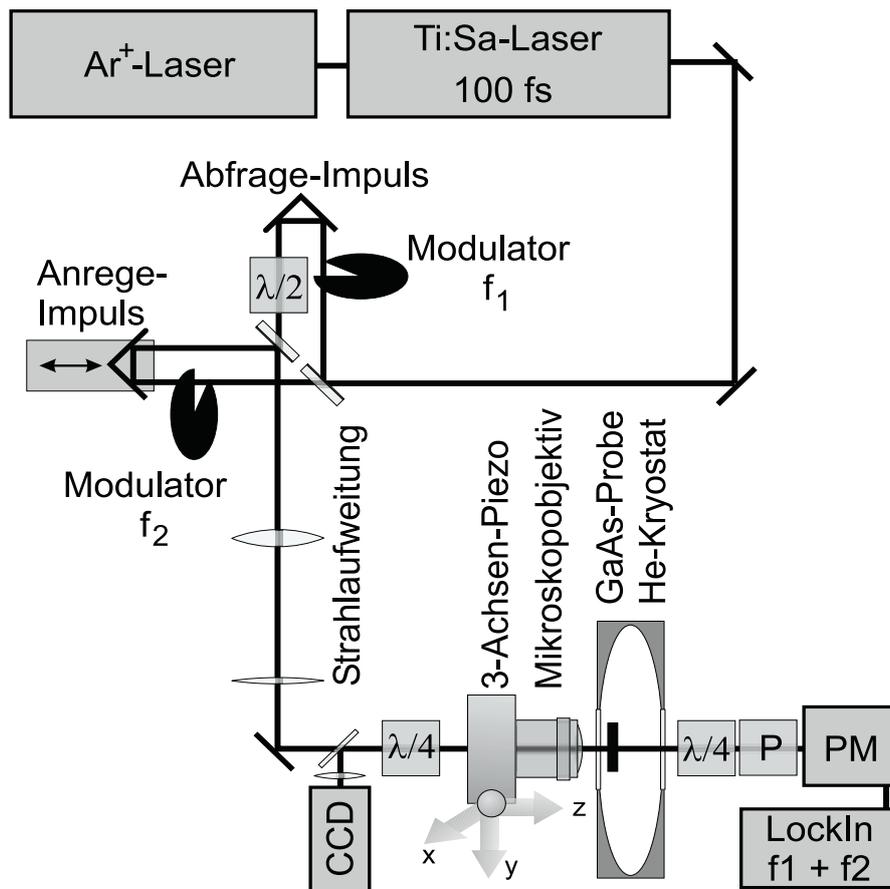


Abbildung 3.12: Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus zur Durchführung der Anrege-Abfrage-Experimente.

Apertur des Mikroskopobjektives von 6 mm voll auszuleuchten. Ein Strahlteiler vor dem Objektiv ermöglicht es, die Probenoberfläche und den Fokus des Lasers mit einer Videokamera zu beobachten. Ein weiterer Strahlteiler (nicht eingezeichnet) ermöglicht es die Probe mit einer Halogenlampe zu beleuchten. Die $\lambda/4$ -Platte vor dem Kryostaten verwandelt die gekreuzt lineare Polarisation in eine rechts- und linkszirkuläre Polarisation auf der Probe. Die Rotationssymmetrie der Apertur gilt damit auch für die Intensitätsverteilung. Die $\lambda/4$ -Platte danach liefert dann wieder gekreuzt lineare Polarisation, sodass der anschließende Polarisator nur den Abfrageimpuls transmittieren lässt.

Zur nanometergenaue Positionierung des Laserfokuses auf eine Apertur der Probe wird das Mikroskopobjektiv auf einen **3-Achsen-Piezo** mit mittlerer Öffnung montiert. Das Piezosystem erlaubt das Verfahren des Objektivs um insgesamt $100 \mu\text{m}$ in jede Raumrichtung durch Anlegen einer Spannung. Wird die transmittierte Intensität beobachtet, so können auch kleine Aperturen angefahren werden, die in Reflexion mit der Videokamera nicht mehr zu erkennen sind.

Zur Fokussierung verwenden wir ein **Mikroskopobjektiv** der Firma Zeiss (LD Achro-

plan, Vergrößerung 20x, numerische Apertur $NA = 0.4$, Arbeitsabstand 10.2 mm, Deckglaskorrektur 0–1.5 mm). Für die Auswahl dieses Typs sind im wesentlichen drei Punkte entscheidend. Erstens: Da sich die Probe in einem Kryostaten befindet, sollte der Abstand zwischen Objektivende und Probe (Arbeitsabstand) möglichst groß sein. Ein zu großer Arbeitsabstand verkleinert aber i. a. die numerische Apertur. Zweitens: Durch das 1 mm dicke Kryostatfenster verursachte Abbildungsfehler müssen korrigiert werden. Das Objektiv muss deshalb über eine variable Deckglaskorrektur verfügen. Drittens: Die numerische Apertur NA sollte so groß wie möglich sein. Sie definiert den Fokaldurchmesser $2w_0$ bei dem die Intensität auf $1/e^2$ abgefallen ist.

$$2w_0 = \frac{2\lambda}{\pi \arcsin NA} \quad 2w_0 (\lambda = 800 \text{ nm}, NA = 0.4) = 1.24 \mu\text{m}$$

Der verwendete heliumgekühlte **Durchflusskryostat** der Firma CryoVac verwendet einen symmetrisch aufgebauten und gehalterten Wärmetauscher, umgeben von einem Strahlungsschild. Im Vergleich zu sonst üblichen Kaltfingerkryostaten ist die Drift der Probenhalterung beim Abkühlen und im kalten Zustand ($< 1 \mu\text{m}/\text{h}$) erheblich reduziert. Dies ist besonders für längere Messungen an einer Probenposition unerlässlich. Desweiteren kann die Probe beliebig nahe an das Kryostatfenster gebracht werden. Dies ermöglicht erst die Verwendung von Objektiven mit hoher numerischer Apertur und deshalb kleinem Arbeitsabstand. Von Nachteil ist jedoch, dass die Probe damit in einem relativ großen Raumwinkel eine Temperatur von 300 K sieht. Um die Probe dennoch auf Temperaturen unter 10 K abzukühlen, ist auf einen sehr guten thermischen Kontakt zwischen Probe und Wärmetauscher zu achten. Insbesondere sollte wegen der schlechten thermischen Leitfähigkeit kein Glas (0.15 W/mK bei 10 K) als Probenträger verwendet werden. Wir verwendeten für unsere Proben Saphir (3000 W/mK bei 10 K) mit einer Wärmeleitfähigkeit, die bei tiefen Temperaturen selbst Kupfer übertrifft (800 W/mK bei 10 K) [31].

Zur Detektion des schwachen Signals wird ein **Sekundärelektronenvervielfacher** mit GaAs(Cs)-Kathode verwendet. Die Quanteneffizienz bei 820 nm Wellenlänge liegt bei 8%. Für die erwarteten kleinen Intensitäten bestimmt das Schrotrauschen das Signal zu Rausch Verhältnis, sodass eine hohe Quanteneffizienz bei der Auswahl des Detektors an erster Stelle steht. Der Detektor wird über einen Strom-Spannungs-Wandler an einen Lock-In-Verstärker angeschlossen. Der Signalbeitrag bei der Frequenz $f_1 + f_2$ wird an die Analog-Digital-Wandlerkarte des Messrechners weitergeleitet.

Durch kleine Veränderungen am Aufbau können auch Mikrophotolumineszenzexperimente durchgeführt werden. Es kann nach dem Interferometer ein Helium-Neon-Laser eingekoppelt werden. Die Lumineszenz kann mit Hilfe eines Gitterspektrometers mit anschließender CCD-Kamera spektral aufgelöst gemessen werden. Dies kann in Transmissionsgeometrie oder mit zusätzlichem Strahlteiler vor dem Kryostaten auch in Reflexionsgeometrie erfolgen.

3.4.2 Charakterisierung

Zunächst werden die Methoden zu Bestimmung experimenteller Parameter vorgestellt. Diese sind vor allem der Fokusbereich, die Impulsdauer und die Anregungsdichte. Die genaue Bestimmung des Fokusbereichs ist insbesondere für die Experimente ohne Aperturen mit variablem Anfangsdurchmesser sehr wichtig. Die Impulsdauer kann durch dispersive Effekte, vor allem im Mikroskopobjektiv, verlängert werden. Diese Effekte sollen kurz diskutiert werden. Im letzten Abschnitt soll noch auf die Problematik der Experimente bei niedrigen Anregungsdichten eingegangen werden.

Die Bestimmung des Fokusbereichs wurde auf zwei unabhängige Arten durchgeführt. Die Veränderung des Durchmessers erfolgt im Experiment durch Schließen einer kreisförmigen Blende vor dem Mikroskopobjektiv. Die radiale Abhängigkeit der Intensität im Fokus wird durch die Bessel-Funktion erster Ordnung J_1 gegeben. Das Verhältnis des Durchmessers des n -ten Beugungsmaximums zur vollen Halbwertsbreite des zentralen Maximums kann berechnet werden. Die Beugungsringe auf der Probe können mit der Kamera in Reflexion abgezählt und vermessen werden. Der Fokusbereich lässt sich dann leicht berechnen. Eine zweite sehr zuverlässige Methode ist die direkte Vermessung mittels Nanoapertur. Der Laserfokus wird durch Verschieben des Mikroskopobjektivs auf dem 3-Achsen-Piezo über eine kleine Apertur gerastert.

Die Eichung des Fahrwegs ist relativ leicht über den definierten Abstand der Löcher auf einer Probe möglich. Die Messung der Transmission liefert das Profil der Intensität im Laserfokus über eine Dynamik von mehr als drei Größenordnungen mit einer Auflösung im 100 nm-Bereich. Dieses Verfahren eignet sich hervorragend um den Laserfokus sehr genau zu vermessen. Abbildung 3.13 zeigt eine Messung der transmittierten Intensität als Funktion des lateralen Abstandes zwischen Fokus und Apertur. Die volle Halbwertsbreite des Laserfokus beträgt ca. $1.3 \mu\text{m}$. Beide beschriebenen Messmethoden liefern eine sehr gute Übereinstimmung bei der Bestimmung des Fokusbereichs. Die Abweichungen liegen im Bereich von 5%.

Die Anregungsdichte $n_{e,h}$ einer Probe mit einer Absorption $\alpha l \ll 1$ kann für eine Anregung mit Impulsen deren Dauer viel kleiner ist als die Lebensdauer der Ladungsträger leicht berechnet werden.

$$n_{e,h} = \frac{W \cdot \alpha l}{E_g \cdot \pi r^2 \cdot l} \quad (3.36)$$

Relevante Größen sind die Impulsenergie W , der Fokusradius r , die Dicke der Probe l und die Bandlücke E_g . Die Absorption α an der Bandkante beträgt bei GaAs 10^4 cm^{-1} . Bei einer Dicke von 100 nm ergibt sich $\alpha l = 0.1$. Da nur die Hälfte des Laserspektrums über der Bandlücke liegt wird ein Wert von $\alpha l = 5\%$ bei resonanter Anregung verwendet. Diese Bestimmung der Anregungsdichte ist jedoch nur bei Messungen mit verschiedenen Fokusbereichen und nicht bei Verwendung von Aperturen gerechtfertigt. Die Anregungsdichte unter den Aperturen kann aufgrund von Nahfeldverstärkungseffekten erhöht sein oder durch die geringe Transmissionseffizienz auch niedriger ausfallen. Die Transmissionsänderung bei

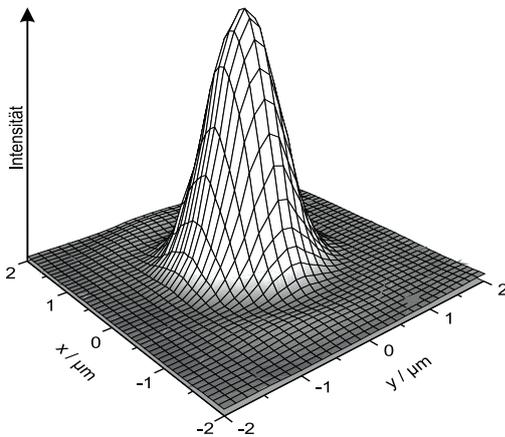


Abbildung 3.13: Bestimmung des Intensitätsprofils im Laserfokus. Die Abbildung zeigt die Messung der transmittierten Intensität durch eine 200 nm-Apertur als Funktion des lateralen Abstandes zwischen Fokus und Apertur.

der Zeitverzögerung null wird jedoch durch die Anregungsdichte definiert. In erster Ordnung ist die relative Transmissionsänderung $\Delta T/T$ proportional zur Anregungsdichte. Dies ist eine Konsequenz der besetzten Zuständen im Leitungsband und leerer Zustände im Valenzband. Eine Anregung in diese Zustände ist wegen des Pauli-Prinzips nicht mehr möglich. Die Absorption ist reduziert. Effekte wie Bandkantenrenormierung, Zweiphotonenabsorption oder Aufheizen des Phononenbads sollen vernachlässigt werden. Eine weitere Problematik steckt in der räumlich inhomogenen Anregung durch den gaußförmigen Strahlquerschnitt. Der Abfragestrahl mittelt über diese Verteilung. Es kann leicht gezeigt werden, dass unter der Annahme gleicher maximaler Intensität, die relative Transmissionsänderung für Gaußprofile nur halb so groß ist, wie die Änderung bei homogener Intensitätsverteilung. Diese Diskussion zeigt, dass es im Experiment relativ schwierig ist in verschiedenen Messungen an Aperturen eine zumindest gleiche mittlere Anregungsdichte einzustellen. Aus diesem Grund wird in den Experimenten wie folgt vorgegangen. In einer Messung mit gaußförmigem Strahl wird über Gleichung (3.36) die Anregungsdichte berechnet. Die Leistung des Lasers wird in den Messungen an den Aperturen jeweils so gewählt, dass sich die gleiche relative Transmissionsänderung zum Zeitnullpunkt ergibt. Dies ist die beste Methode gleiche Anregungsdichten in allen Messungen zu realisieren.

Eine Schwierigkeit der Messungen besteht in der geringen Leistung des transmittierten Abfragestrahls durch eine 100 nm Apertur. Auf dieser kleinen Intensität muss zusätzlich noch eine geringe Änderung detektiert werden. Die kleinsten Dichten, die experimentell zugänglich waren, liegen im Bereich von 10^{17} cm^{-3} oder umgerechnet 79 Elektron-Loch-Paaren im 100 nm dicken GaAs-Film hinter einer 100 nm-Apertur. Diese ändern die Transmission um ca. 1%. Eine solche Dichte kann mit 1580 Photonen im Anregeimpuls hinter der Apertur angeregt werden. Der typischerweise zehnfach schwächere Abfrageimpuls enthält 158 Photonen. Es muss somit eine Änderung von durchschnittlich 1.6 Photonen pro Laserimpuls gemessen werden. Die kleinen Aperturen beugen das Licht in den gesamten Halbraum. Der endliche Aufsammelwinkel von 50° im Kryostaten bewirkt einen Verlust um den Faktor acht. Die Quanteneffizienz des Sekundärelektronenvervielfachers liegt bei 8% bei 820 nm. In der Sekunde erhält man somit $N = 80 \cdot 10^6$ Ereignisse. Bei einer relativen Transmissi-

onsänderung von 1% beträgt das Verhältnis von Signal $\frac{1}{100} \cdot N$ zu Schrotrauschen \sqrt{N} in einer Sekunde allein durch die Statistik 90 : 1. Im Experimente kommen weitere Rauschquellen wie beispielsweise das Dunkelstromrauschen des Sekundärelektronenvervielfachers hinzu. Elektrisches Rauschen kann vor allem das schwache Signal vor dem Vorverstärker beeinflussen. Mechanische Vibrationen der Probe führen aufgrund der Apertur zu Signalfluktuationsen, die sich ebenfalls auf die Qualität des Messsignals auswirken. Eine Messung mit typischerweise 1000 Messpunkten benötigt mit den obigen Zahlenwerten ca. 1000 s für eine 100 nm-Apertur. Das Problem bei Messungen mit kleineren Anregungsdichten liegt darin, dass nicht nur die Intensität des Abfragestrahls reduziert wird, sondern zusätzlich auch das relative Signal $\Delta T/T$ kleiner wird. Anregungsdichten um 10^{15} cm^{-3} , die typischerweise als gering erachtet werden, sind in dieser Art von Experimenten sicher nicht zugänglich. Eine solche Anregungsdichte würde gerade mal ein Elektron-Loch Paar hinter einer 100 nm-Apertur erzeugen. Zusätzlich muss dann auch noch die Transmissionsänderung verursacht durch dieses einzelne Paar gemessen werden. Allein diese Argumentation macht die Problematik von niedrigen Dichten in diesen Experimenten sehr deutlich.

An dieser Stelle soll die Verlängerung der Impulsdauer durch dispersive Effekte beim Fokussieren von Femtosekundenimpulsen diskutiert werden. Die erste Ableitung des Brechungsindex nach der Wellenlänge bestimmt den Unterschied zwischen Phasen- und Gruppengeschwindigkeit. Für eine einfache Linse beträgt die Verzögerung zwischen Phasen- und Pulsfront ΔT_{PTD} für einen Teilstrahl mit Abstand r zur optischen Achse

$$\Delta T_{\text{PTD}}(r) = \frac{r_0^2 - r^2}{2cf(n-1)} \left(-\lambda \frac{dn}{d\lambda} \right)$$

mit dem Linsenradius r_0 , der Brennweite f und dem Brechungsindex n . Dieser Propagationszeit-Unterschied (propagation time difference PTD) ist proportional zu $dn/d\lambda$. Es kann gezeigt werden, dass im Falle eines Achromaten $df/d\lambda = 0$ dieser Zeitunterschied verschwindet [94].

In zweiter Ordnung muss jetzt die Gruppengeschwindigkeitsdispersion (group-velocity dispersion GVD) des Mediums berücksichtigt werden. Da die Strecke des Strahls durch das Medium der Linse $l(r)$ vom Abstand zur optischen Achse r abhängt, liefert auch die Gruppengeschwindigkeitsdispersion einer einfachen Linse eine abstandsabhängige Zeitverzögerung ΔT_{GVD}

$$\Delta T_{\text{GVD}}(r) = \frac{c}{\lambda} \frac{d^2n}{d\lambda^2} \Delta\lambda l(r)$$

mit der spektrale Breite $\Delta\lambda$. Eine solche Dispersion kann nicht wie gewohnt, durch eine Prismen- oder Gittersequenz kompensiert werden. Erfreulicherweise fällt aber gerade diese radiale Abhängigkeit bei Betrachtung eines Achromaten wieder heraus, sodass alle Teilstrahlen die gleiche Dispersion zweiter Ordnung erfahren, die nun kompensiert werden kann [94]. Höhere Ordnungen in der Dispersion spielen bei den hier betrachteten 100 fs-Impulsen noch keine Rolle.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass sich bei Verwendung eines achromatischen Objektivs eine Dispersion zweiter Ordnung ergibt, die jedoch leicht mit einer Prismenanordnung kompensiert werden kann. Diese Vorhersagen decken sich auch mit den experimentellen Untersuchungen. Die Intensitätsautokorrelation, gemessen in einem konventionellen Autokorrelator, wurde verglichen mit der gemessenen Feldautokorrelation im Fokus des Objektivs. Selbst ohne zusätzliche Dispersionskompensation wurde die Impulsdauer nur um ca. 10% vergrößert. Für die Experimente konnte deswegen auf eine externe Dispersionskompensation außerhalb des Laserresonators verzichtet werden.

3.5 Ergebnisse und Diskussion

Die raumzeitliche Ladungsträgerdynamik wird in GaAs mit Hilfe der differentiellen Transmission an unterschiedlich großen Aperturen sowie mit verschiedenen Fokaldurchmessern studiert. Die Probe besteht aus einer 100 nm-Volumen-GaAs-Doppelheterostruktur. Die Dynamik des Signals gibt Informationen zur zeitlichen Entwicklung der Dichte im Bereich des Abfrageimpulses. In den Experimenten kann der Anfangsdurchmesser der Ladungsträgerverteilung, die Anregungsenergie, die Ladungsträgerdichte und die Gittertemperatur variiert werden. Kurven mit verschiedenen Anfangsdurchmessern sind relativ gut miteinander vergleichbar, aus diesem Grund sind sie meist in einem Diagramm zusammen aufgetragen. Die Anregungsenergie definiert die Überschussenergie der Ladungsträger und damit den Anfangsimpuls von Elektronen und Löchern. Das Spektrum eines 100 fs-Lasers bei 820 nm Zentralwellenlänge ist ca. 20 meV breit, und für den Fall der resonanten Anregung liegt das Maximum des Spektrum auf der Bandlücke. Die mittlere Überschussenergie liegt somit bei ca. 5 meV, dies entspricht einer Ladungsträgertemperatur von 60 K. Durch Variation der Ladungsträgerdichte können die Auswirkungen der Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung untersucht werden. Bei hohen Dichte kann sich die Dynamik aufgrund der Entartung der Besetzung verändern. Die Variation der Proben temperatur ermöglicht den Einfluss der Phononenstreuung auf den Transport zu studieren.

In Abbildung 3.14 sind vier Messreihen bei einer Proben temperatur von 20 K und einer Anregungsdichte von 10^{18} cm^{-3} dargestellt. Aufgetragen ist die relative Transmissionsänderung über der Zeitverzögerung zwischen Anrege- und Abfrageimpuls. Die Intensität des Abfrageimpulses ist um einen Faktor zehn geringer. Die relative Transmissionsänderung $\Delta T/T$ beträgt bei diesen Messungen ca. 4%. Die einzelnen Messungen weichen zum Teil etwas davon ab, da die Änderung erst nach der Durchführung der Messung bestimmt werden kann. Idealerweise sollte die Anregungsleistung so eingestellt werden, dass die Signalhöhe und damit die mittleren Anregungsdichten immer gleich bleibt. Aus Gründen der Vergleichbarkeit der Abfälle werden die Daten auf die Maxima normiert.

In den Messungen (a) bis (c) erfolgt die Anregung resonant mit 100 fs-Impulsen an der Bandkante des GaAs bei 1.51 eV. Zum einfachen Vergleich der Messkurven kann in einfachster Näherung das Verhalten durch eine typische anfängliche Abfallzeit charakterisiert werden. Dies soll am Ende dieses Abschnitts geschehen. Zuvor sollen die Messungen im

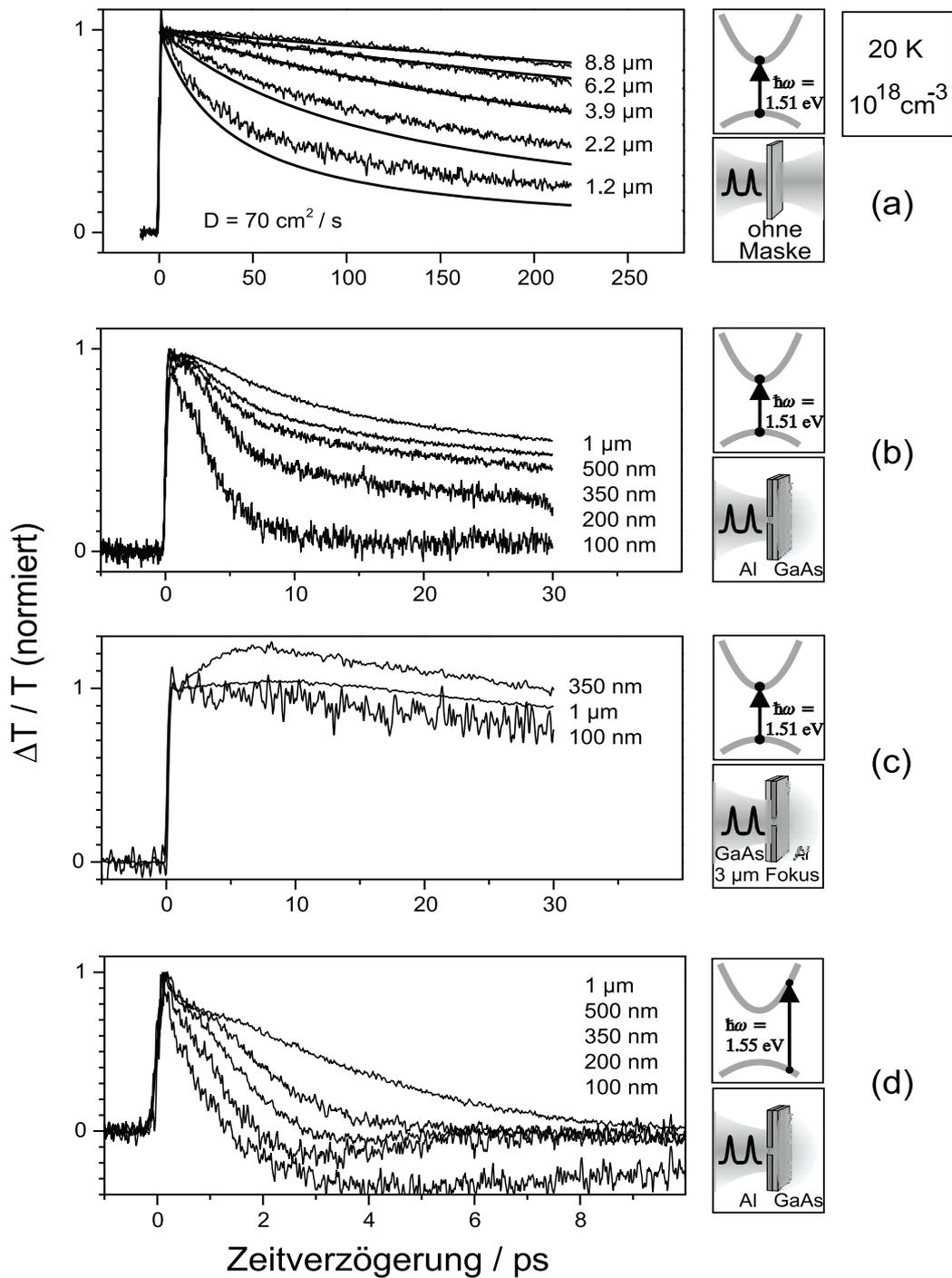


Abbildung 3.14: Die Grafiken zeigen die relative Transmissionsänderung als Funktion der Zeitverzögerung zwischen Anrege- und Abfrageimpuls bei 20 K und $n = 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. Abb. (a)-(c): resonante Anregung. Abb. (d): Anregung 38 meV über der Bandlücke. In Abb. (a) wird der Anfangsdurchmesser über die Variation des Fokus und in Abb. (b) und (d) über unterschiedliche Aperturdurchmesser variiert. Die Testexperimente in Abb. (c) wurden mit gleich großen Anfangsdurchmessern vor verschiedenen Aperturen durchgeführt.

Detail diskutiert werden.

Grafik (a) zeigt Experimente mit verschiedenen Fokusdurchmessern auf einem unstrukturierten Teil der Probe. Die Ladungsträger werden zum Zeitpunkt null angeregt und reduzieren die Absorption. Das Signal steigt innerhalb der Impulsdauer auf einen Maximalwert an und fällt danach wieder langsam ab. Diese Abfälle entsprechen dem lateralen Transport der Ladungsträger aus dem Fokus heraus. Messungen mit einem Fokus von $100\ \mu\text{m}$ Durchmesser, bei dem der Transport vernachlässigt werden kann, zeigen einen Abfall mit einer Zeitkonstanten von $3\ \text{ns}$, verursacht durch die Lebensdauer der Ladungsträger. Dieser Prozess spielt für die hier betrachteten Zeitskalen nur eine untergeordnete Rolle. Die durchgezogenen Linien in der Grafik zeigen die Lösung der Diffusionsgleichung (3.26) mit zusätzlichem exponentiellen Abfall entsprechend der Lebensdauer. In allen Kurven wird die gleiche Diffusionskonstante von $D = 70\ \text{cm}^2/\text{s}$ verwendet. Die relativ gute Übereinstimmung zeigt, dass die Abfälle gut durch ambipolaren Transport beschrieben werden können. Auf diesen Raum- und Zeitskalen liefert die Diffusionsgleichung noch eine gute Beschreibung.

In Teil (b) sind die Ergebnisse für entsprechende Messungen an unterschiedlich großen Aperturen dargestellt. Die Zeitskala geht hier über einen Bereich von nur $30\ \text{ps}$. Schon der Verlauf des Abfalls zeigt, verglichen mit den typischen Lösungen der Diffusionsgleichung in Teil (a), ein ganz anderes Verhalten. Die Kurven beginnen fast horizontal, durchlaufen dann einen Bereich mit schnellerem Abfall und zeigen dann noch eine langsamere Komponente. Die Messung an der $100\ \text{nm}$ -Apertur zeigt als schnellste Komponente einen Abfall mit einer Zeitkonstanten von $3\ \text{ps}$. Die Lösung der Diffusionsgleichung mit gaußförmigem $100\ \text{nm}$ Anfangsdurchmesser sagt eine Abfallzeit von nur $300\ \text{fs}$ voraus. Die Lösung bei homogener kreisförmiger Anregung liefert noch kürzere Zeiten. Die Diskrepanz zwischen dem Experiment und der Beschreibung durch diffusiven Transport liegt bei einem Faktor zehn.

Um sicherzustellen, dass der laterale Transport den Hauptbeitrag zum Messsignal liefert und nicht beispielsweise eine Schädigung der GaAs-Schicht unter den Aperturen, kann mit den selben Proben ein wichtiges Testexperiment durchgeführt werden. Die Probe wird umgedreht, so dass der Laser die eigentliche Rückseite der Probe sieht. Die Impulse treffen jetzt auf den GaAs-Film, der sich nun vor der Metallmaske befindet und erzeugen dort eine großflächige Anregung mit einem Durchmesser von $3\ \mu\text{m}$. Es kann damit eine relativ homogene Ladungsträgerdichte vor verschiedenen großen Aperturen angeregt werden. In dieser Geometrie ist aufgrund des Transports nur ein sehr langsamer Abfall des Signals zu erwarten. Innerhalb des gemessenen Zeitfensters kann dieser vernachlässigt werden. Das Experiment ist somit ein idealer Test, ob sonstige Effekte die Messungen beeinflussen. Diese würden sich in einem schnelleren Anstieg oder Abfall bemerkbar machen.

Abbildung (c) zeigt Messungen mit gleichem Fokusdurchmesser an unterschiedlichen Aperturen mit einem Durchmesser von $100\ \text{nm}$, $350\ \text{nm}$ und $1\ \mu\text{m}$. Die schnellen Abfälle aus Teil (b) sind verschwunden. Dies bedeutet, dass nur bei räumlich eingeschränkter Anregung auf den Bereich der Apertur diese Beiträge zu beobachten sind. Die schnellen Abfälle müssen somit eine Folge des lateralen Transports der Ladungsträger sein. Betrachtet man die Messungen (c) im Detail, so kann neben einem langsamen Abfall sogar ein kleiner Anstieg,

wie beispielsweise bei den 350 nm-Aperturen, beobachtet werden. Der langsame Abfall ist eine Folge der Diffusion der $3 \mu\text{m}$ -Verteilung. Der Anstieg kann nicht ohne weiteres erklärt werden. Die typische Zeitkonstante ist jedoch groß im Vergleich zu den schnellen Abfällen, sodass der Effekt, der den Anstieg verursacht keine wesentlichen Auswirkungen auf den Transport in diesen Experimenten haben sollte. Eine mögliche Erklärung liegt in einer Modifikation des Potentials unterhalb der Aperturen. Diese Problematik wird in Kapitel 4 noch ausführlich behandelt.

Die Modifikation der Eigenschaften scheint sich vor allem auf längeren Zeitskalen bemerkbar zu machen. Aus diesem Grund war es nicht möglich Experimente mit größeren Aperturdurchmessern und dadurch sehr großen Abfallzeiten durchzuführen. In den entsprechenden Testexperimenten mit Anregung von der GaAs-Seite zeigte sich eine Modifikation des Messsignals, die nicht vernachlässigt werden konnte im Vergleich zur Transportdynamik. Aus diesem Grund mussten die Experimente mit größeren Anfangsverteilungen mit Hilfe der Variation des Fokusbereichs durchgeführt werden.

Abbildung (d) zeigt Messungen an Aperturen bei einer Anregung von 38 meV über der Bandkante. Diese Überschussenergie entspricht einer Temperatur von 440 K. Die Messungen unterschieden sich nur durch die Anregungsenergie von den Messungen (b). Aus Gründen der Übersichtlichkeit wurde auch hier wieder die Zeitskala der Auftragung geändert. Die Abfälle in Teil (d) sind deutlich schneller als in Teil (b), außerdem zeigen sie eine andere Kurvenform. Bei den kleinsten Aperturen kann zusätzlich ein negativer Beitrag im Signal beobachtet werden. Dies entspricht einer induzierten Absorption, möglicherweise verursacht durch die Bandkantenrenormierung [43].

Die Interpretation dieser Experimente ist schwieriger im Vergleich zu den Messungen mit resonanter Anregung. Die Überschussenergie ist gleichbedeutend mit einer größeren mittleren Geschwindigkeit der Ladungsträger. Sind die Ladungsträger während des Transports noch nicht thermalisiert, so wird man einen schnelleren Abfall des Signals aufgrund des Transports erwarten. Der Abfrageimpuls besitzt die gleiche Energie und *sieht* in erster Linie somit nur die Ladungsträger um diese Überschussenergie herum. Im Regime des ballistischen Transports können Streuprozesse vernachlässigt werden. Die Ladungsträger können also noch nicht ins Bandminimum relaxiert sein. Da gerade dieses Regime von großem Interesse ist, scheint es naheliegend gleiche Anregungs- und Abfragewellenlängen zu verwenden. Die Problematik dieser Messungen liegt jedoch darin, dass beispielsweise Ladungsträger, die ins Bandminimum relaxiert sind, nicht mehr direkt erfasst werden können. Das Signal kann Beiträge der Energierelaxation und des räumlichen Transports zeigen. Der Vergleich von Messungen an verschiedenen Aperturdurchmessern kann helfen die beiden Beiträge zu trennen. In erster Näherung kann davon ausgegangen werden, dass die Energierelaxation unabhängig von der räumlichen Verteilung ist. Messungen bei gleicher Anregungsdichte mit großem Fokusbereich zeigen keine schnellen Abfälle auf einer Pikosekunden-Zeitskala. Die Abfälle in den Messungen in Abbildung (d) können damit dem räumlichen Transport zugeschrieben werden.

Abbildung 3.15 zeigt Messungen entsprechend Abb. 3.14, jedoch bei einer Probentempe-

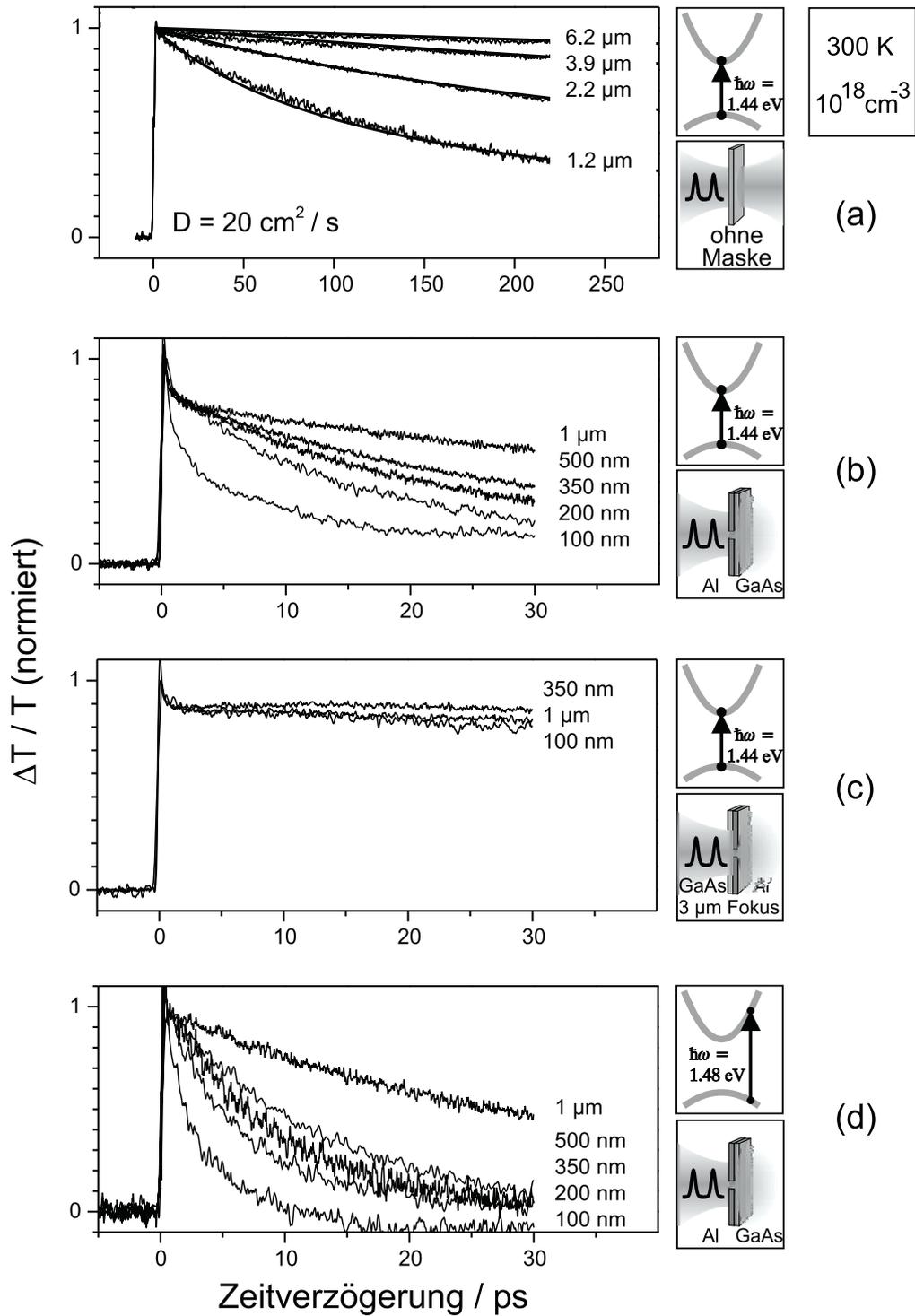


Abbildung 3.15: Die Abbildung zeigt äquivalente Messungen zu Abb. 3.14, allerdings für eine Temperatur von 300 K.

ratur von 300 K. Die Streuung mit akustischen und optischen Phononen kann eine Veränderung in der Transportdynamik bewirken. Während bei einer Proben­temperatur von 20 K nur eine kontinuierliche Abkühlung der Ladungsträger­temperatur erwartet wird, ist in diesen Messungen auch ein Aufheizen möglich. Dieser Prozess sollte vor allem bei der Dynamik der resonant angeregten Ladungsträgern ($T \approx 60$ K) eine wichtige Rolle spielen. Insbesondere sollte auf einer längeren Zeitskala die Ladungsträger­temperatur sich der Gittertemperatur annähern.

In Teil 3.15(a) sind wieder Experimente mit unterschiedlichem Fokus­durchmesser zu sehen. Die Abfälle werden sehr gut durch die Diffusions­gleichung mit einer Diffusions­konstanten von $D = 20 \text{ cm}^2/\text{s}$ beschrieben. Die durchgezogenen Linien des Modells decken sich mit den Messkurven. Die Abnahme der Beweglichkeit und der Diffusions­konstanten mit zunehmender Temperatur ist eine Folge der Streuung mit Phononen. Der entsprechende Zusammenhang ist auch in Abb. 3.6 dargestellt. Teil (b) zeigt die entsprechenden Messungen an Aperturen bei resonanter Anregung. Die Form der Abfälle unterscheidet sich wesentlich von den Messungen bei 20 K, zusätzlich sind die Zeitkonstanten größer. Auch bei kleineren Anfangsdurchmessern scheint die Phononen­streuung die Transportdynamik zu verändern.

Im Testexperiment in Teil (c) wurden wieder mit gleich großen Anfangsdurchmessern über verschieden großen Aperturen durchgeführt. Die Dynamik zeigt keine Auffälligkeiten. Die Ladungsträger werden in einem $3 \mu\text{m}$ Bereich erzeugt und laufen dann langsam auseinander. Dies entspricht dem langsamen Abfall des Signals in Teil (c). Nur die Experimente mit Anregung durch die Apertur zeigen den schnellen Abfall. Auch bei dieser Proben­temperatur kann sichergestellt werden, dass die Messungen im wesentlichen die räumliche Dynamik widerspiegeln. Teil (d) zeigt Experimente wieder bei einer Anregung von 38 meV über der Bandkante bei 300 K. Die Abfälle sind auch hier schneller im Vergleich zur resonanten Anregung bei gleicher Temperatur. Dies bedeutet, dass die Ladungsträger auf den beobachteten Zeitskalen noch nicht im thermischen Gleichgewicht mit dem Phononen­bad sein können.

Abbildung 3.16 zeigt Messungen für ein Fokus­durchmesser von $2 \mu\text{m}$ und Messungen an einer 200 nm-Apertur bei 20 K. In den Experimenten wurde jeweils die Anregungs­dichte um einen Faktor 20 variiert. Die Messkurven zeigen eine nur sehr geringe Abhängigkeit von der Anregungs­dichte. Im Teil (b) ist der anfängliche Abfall nahezu identisch, nach etwa 10 ps fällt das Signal für kleinere Dichten etwas langsamer ab. Insgesamt kann die anfängliche Abfallzeit in den Experimenten jedoch als unabhängig von der Dichte betrachtet werden. Es ist damit auszuschließen, dass eine Dichte­abhängigkeit der Diffusions­konstanten aufgrund des Fermi-Drucks (siehe Abschnitt 3.1.3) in den Experimenten eine Rolle spielt.

An dieser Stelle soll noch der Beitrag der Metallapertur zum Messsignal diskutiert werden. Es stellt sich die Frage, ob nicht eine reine Apertur ohne Halbleitermaterial ebenfalls ein Signal in der differentiellen Transmission zeigt. Zur Untersuchung eines derartigen Artefakts können im Prinzip die gleichen Messungen nochmals an einer Aperturprobe ohne GaAs-Film durchgeführt werden. In der Herstellung ist es jedoch schwierig identische Aperturen auf einem völlig anderen Substrat zu präparieren. Eine weitere Möglichkeit besteht in der Variation der Wellenlänge. Unterhalb der Bandkante ist GaAs transparent, sodass keine

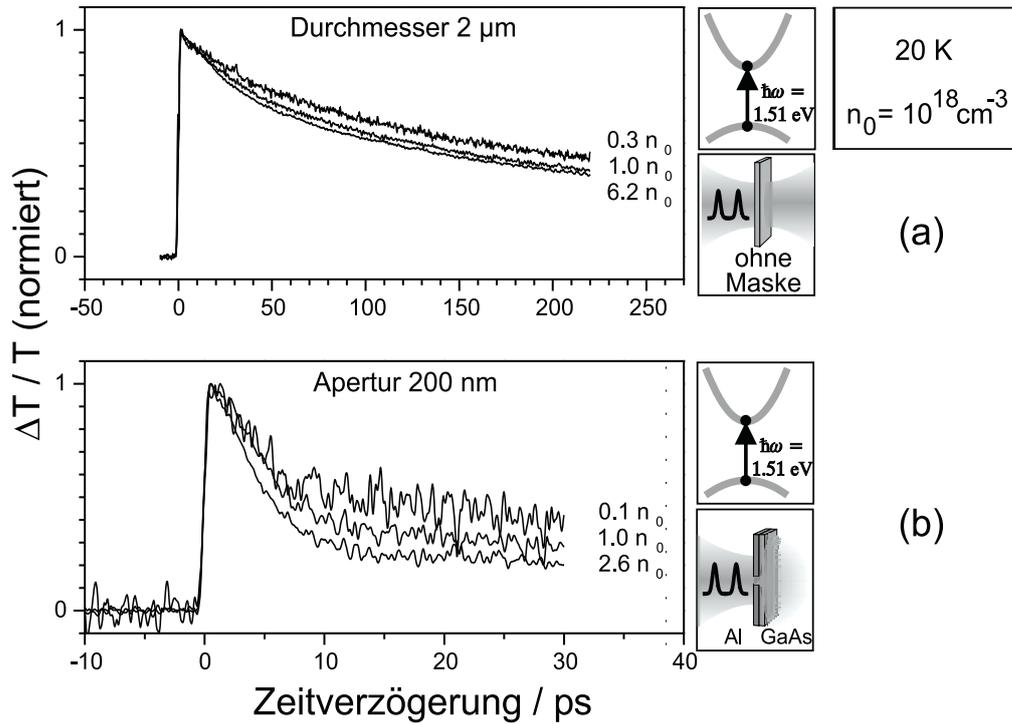


Abbildung 3.16: Variation der Anregungsdichte bei 20 K für Messungen mit einem 2 μm Fokussdurchmesser auf einer unstrukturierten Probe und Messungen durch eine 200 nm-Apertur.

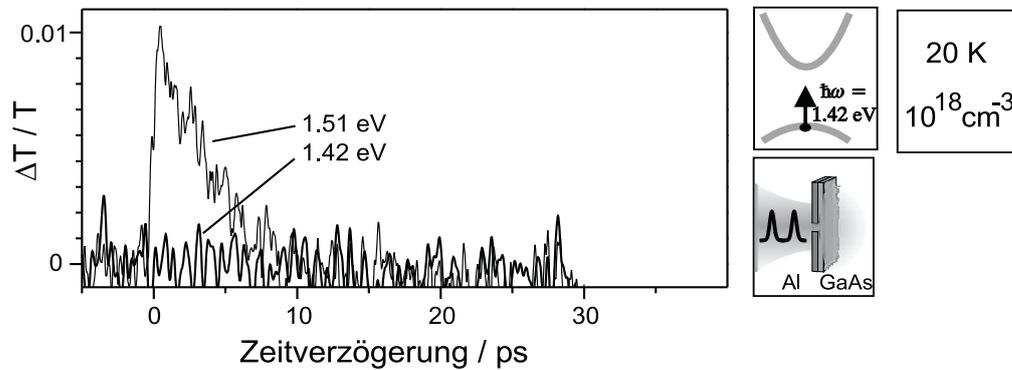


Abbildung 3.17: Messung an einer 100 nm-Apertur bei 20 K für resonante Anregung und für eine Anregung 90 meV unter der Bandkante. Das Experiment zeigt, dass die Aluminiumapertur keinen Beitrag zum Signal liefert.

Transmissionsänderung aufgrund des GaAs im Signal auftritt. Die optischen Eigenschaften des Aluminiums sollten sich hingegen kaum verändern, wenn die Photonenenergie von 1.51 eV auf 1.42 eV reduziert wird. Abbildung 3.17 zeigt zwei Messungen an einer 100 nm-

Apertur bei 20 K. Die Dichte von ca. 10^{18} cm^{-3} entspricht der resonanten Anregung. Die Anregungsintensität wurde in der zweiten Messung beibehalten. Das Signal des GaAs bei 1.51 eV verschwindet völlig bei ein Anregung 90 meV unter der Bandkante. Im Rahmen der Messgenauigkeit ist kein Beitrag der Aluminiumapertur bei diesen Anregungsintensitäten zu erkennen.

Zum direkten Vergleich der verschiedenen durchgeführten Messungen soll eine charakteristische Zeitkonstante aus den Messdaten extrahiert werden. Zu diesem Zweck wird eine anfängliche Abfallzeit aus den logarithmisch aufgetragenen Messkurven abgelesen. Es wird für die Auswertung also nur der schnelle Abfall in den Messungen verwendet. Die Abfälle sind natürlich nicht exponentiell, dies wird auch weder für das Diffusionsmodell noch für das Modell des ballistischen Transports vorhergesagt. Trotzdem lässt sich damit zumindest das Skalierungsverhalten sehr gut vergleichen. Der Fehlerbalken beim Ablesen der Zeitkonstanten ist eine Folge der Kurvenform und weniger der Signalqualität. In manchen Messungen ist es schwierig ein Intervall zu definieren in dem die Abfallzeit bestimmt werden soll. Der daraus resultierende Fehler ist aber nicht größer als ein Faktor zwei. Die Abfallzeiten variieren jedoch um vier Größenordnungen bei den Messungen mit Anfangsdurchmessern zwischen 100 nm und 10 μm , sodass der Fehlerbalken keinen Einfluss auf die wesentlichen Aussagen hat.

In Abbildung 3.18 sind die anfänglichen Abfallzeiten der vorgestellten Messungen bei 20 K über dem Durchmesser der Anfangsverteilung aufgetragen. Anhand dieser Auftragung können die wesentlichen Aussagen der Experimente noch einmal zusammengefasst werden. Die Messungen unter den Aperturen sind in gefüllten Symbolen und die Messungen mit variablem Fokus sind in offenen Symbolen eingezeichnet. Die Quadrate entsprechen der resonanten Anregung, die Kreuze der Anregung 38 meV über der Bandkante. Die hellgrau hinterlegten Geraden entsprechen dem Skalierungsverhalten für rein ballistischen Transport, mit $\tau_{\text{ball.}} = 0.68 d/v$ und Steigung eins, bzw. dem Verhalten für die Diffusion $\tau_{\text{diff.}} = d^2/(D \cdot 8 \ln 2)$ mit Steigung zwei. Die Geraden werden vollständig durch die Zahlenwerte der Diffusionskonstanten bzw. der Geschwindigkeit festgelegt (siehe auch Abb. 3.5).

Zunächst soll nur die resonante Anregung betrachtet werden (Quadrate). Es wird für Anfangsdurchmesser größer 1 μm ein Skalieren gemäß der Diffusion mit $D = 70 \text{ cm}^2/\text{s}$ beobachtet, während das Verhalten für kleinere Durchmesser mit einer charakteristischen Geschwindigkeit von $v = 21 \text{ nm/ps}$ beschrieben werden kann. Die Daten zeigen damit ein signifikantes Abweichen vom diffusiven Transport für Anfangsdurchmesser kleiner 1 μm . Die Diffusion sagt für eine 100 nm-Apertur einen falschen, zehnfach zu schnellen Abfall voraus. Die Vorhersagen im Abschnitt über ballistischen Transport 3.1.4 werden damit im Experiment bestätigt. Die Messungen zeigen das vorhergesagte Abknicken im Skalierungsverhalten vom Bereich der Diffusion zu einem Skalieren gemäß dem Transport mit einer konstanten Geschwindigkeit. Geht man von ballistischen Transport aus, so stimmt sogar die abgeschätzte Geschwindigkeit für schwere Löcher von 23 nm/ps infolge der Überschussenergie überraschend gut mit der gemessenen Geschwindigkeit von 21 nm/ps überein. Die viel größere Geschwindigkeit der Elektronen von 151 nm/ps wird im Experiment nicht beobachtet. Ei-

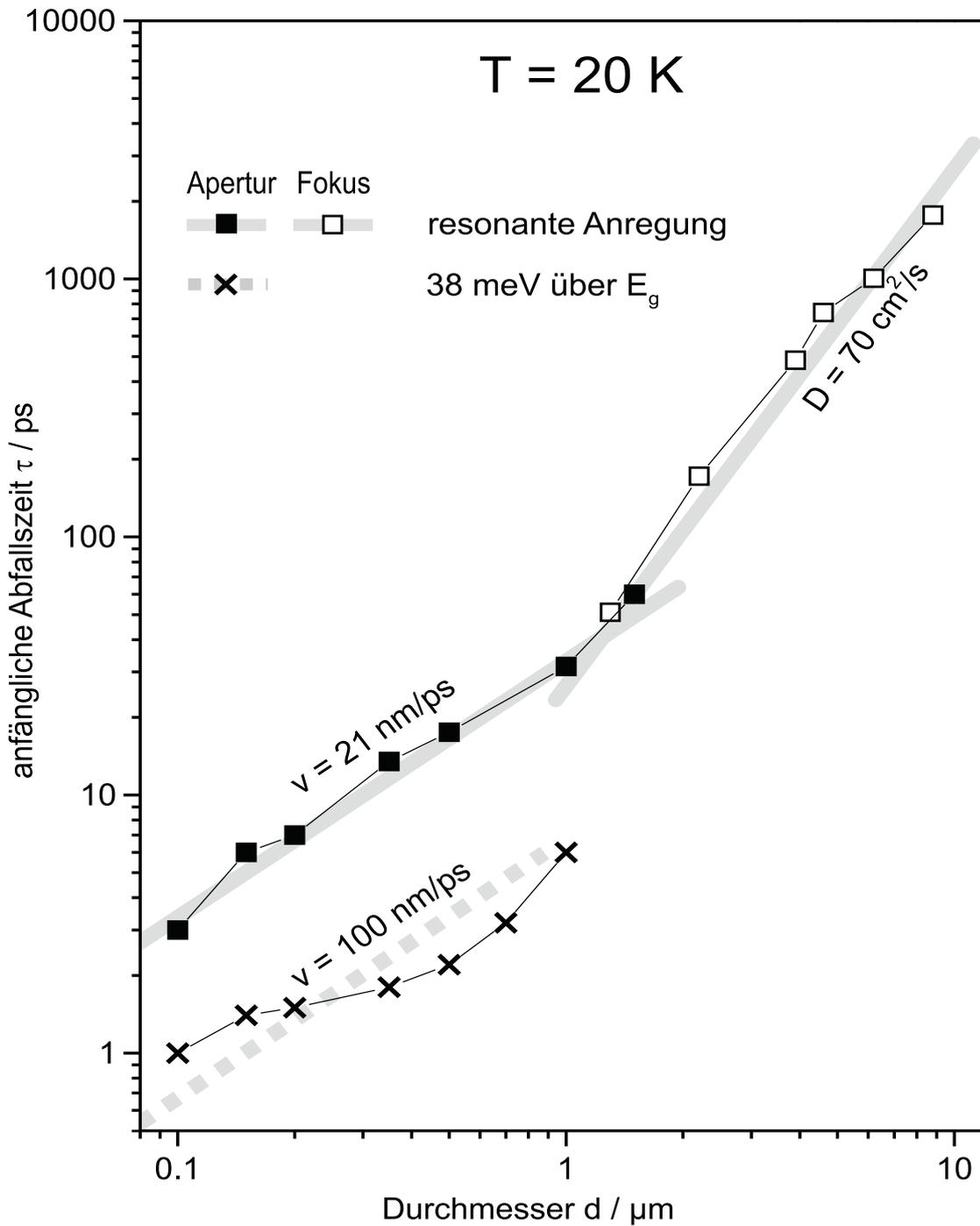


Abbildung 3.18: Anfängliche Abfallszeit τ der relativen Transmissionsänderung als Funktion des Anfangsdurchmessers der Ladungsträgerverteilung bei $T = 20 \text{ K}$. Die Messungen an Aperturen und mit variablem Fokus zu verschiedenen Anregungsbedingungen sind mit unterschiedlichen Symbolen eingezeichnet. Die hellgrauen Geraden entsprechen dem Modell des ballistischen Transports $\tau \propto d$ und dem Diffusionsmodell $\tau \propto d^2$.

ne mögliche Interpretation für dieses Verhalten könnte in der elektrostatischen Kopplung der Elektronen und Löcher liegen. Eine schnellere Expansion der Elektronen würde eine effektiv positive Ladung im Zentrum der Verteilung verursachen. Die relativ leichten Elektronen werden, infolge der daraus resultierenden Anziehung, an einer schnelleren Expansion gehindert. Die schweren Löcher breiten sich jedoch nahezu ballistisch aus. Eine anderen mögliche Erklärung wäre die unabhängige Expansion von Elektronen und Löchern, falls die Löcher den Hauptbeitrag zum optischen Signal liefern. Dennoch muss eine Kopplung über das gemeinsame Potential existieren. Eine höhere Anregungsdichte würde auch die Kopplung verstärken. Dies wiederum sollte sich dann auf den Transport auswirken. Im Experiment wird jedoch keine Abhängigkeit von der Ladungsträgerdichte beobachtet, sodass diese Erklärung relativ unwahrscheinlich ist.

Im weiteren soll jetzt das Verhalten bei einer Anregung ins Band diskutiert werden. In den Messungen (Kreuze) zeigt sich eine Erhöhung der Geschwindigkeit um einen Faktor fünf verglichen mit resonanter Anregung (Quadrate). Das Skalieren kann ungefähr mit einer Geschwindigkeit von 100 nm/ps beschrieben werden. Die Überschussenergie von 38 meV entspricht einer Geschwindigkeit der Elektronen von 417 nm/ps und der schweren Löcher von 62 nm/ps. Die gemessene Geschwindigkeit stimmt somit immerhin bis auf einen Faktor zwei mit der erwarteten Geschwindigkeit der schweren Löcher überein. An sich ganz erstaunlich ist jedoch allein die starke Abhängigkeit der räumlichen Dynamik von der Anregungsenergie. Dies entspricht genau den Erwartungen aufgrund des ballistischen Transports, zumindest legt es jedoch die Interpretation sehr nahe, dass die Ladungsträger auf diesen räumlichen und zeitlichen Skalen noch nicht relaxiert sind. Die größere Geschwindigkeit, mit der die Ladungsträger erzeugt wurden, beeinflusst ganz deutlich die räumliche Dynamik.

Leider konnten bei einer Anregung ins Band keine Messungen für größere Anfangsdurchmesser durchgeführt werden, da auf langen Zeitskalen (> 10 ps) das Abkühlen der erzeugten heißen Ladungsträger den Abfall im Signal dominiert, sodass nicht mehr zwischen Energierelaxation und räumlichem Transport unterschieden werden kann.

In Abbildung 3.19 sind die äquivalenten Messungen bei 300 K aufgetragen. Die Daten zeigen zunächst ein ganz ähnliches Verhalten wie die Experimente bei 20 K. Auch hier ist ein Abknicken des Skalierungsverhalten von einem diffusiven zu einem Transport mit konstanter Geschwindigkeit zu beobachten. Bei einer Anregung von 38 meV über der Bandkante zeigen auch diese Messungen eine Erhöhung der Geschwindigkeit um immerhin einen Faktor 2.5 für Anfangsdurchmesser kleiner 700 nm. Die gefüllten Dreiecke liegen unter den gefüllten Kreisen. Dies stellt einen sehr interessanten Punkt dar, denn die gemessenen Diffusionskonstanten sind in diesen beiden Fällen gleich groß. Die offenen Dreiecke decken sich mit den offenen Kreisen. Die Experimente zeigen also bei unterschiedlichen Anregungsenergien für große Durchmesser gleiches Verhalten, für kleine Durchmesser sieht man hingegen einen deutlichen Unterschied in den Abfallzeiten. Eine naheliegende Interpretation liefert die Thermalisierung der Ladungsträger. Diese bewirkt auf langen Zeitskalen einen diffusiven Transport der unabhängig von der Anregungsenergie ist. Auf kurzen Zeitskalen hinge-

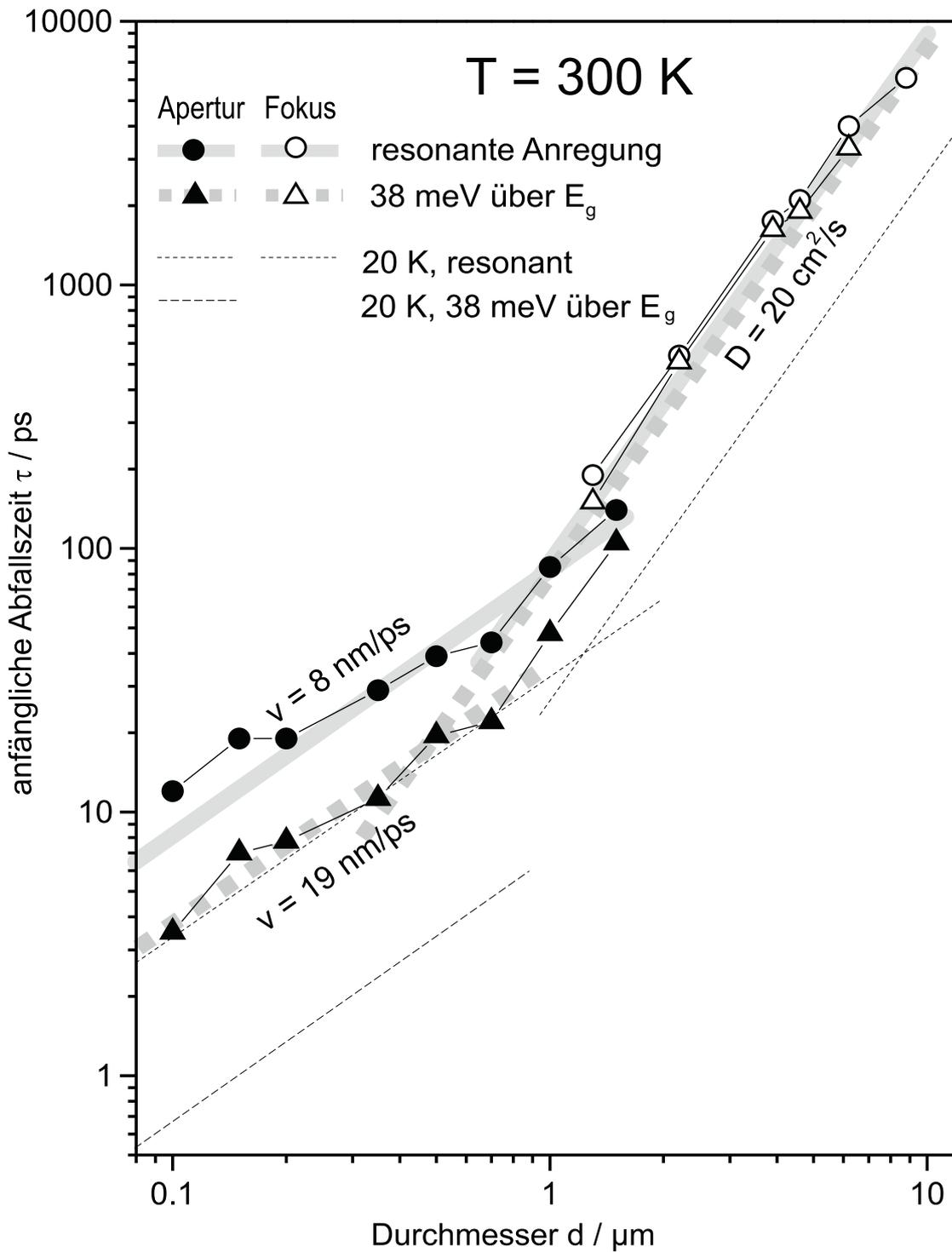


Abbildung 3.19: Die Abbildung zeigt eine Darstellung äquivalent zu Abb. 3.18, jedoch für eine Proben­temperatur von 300 K. Das Skalierungsverhalten für 20 K ist zum Vergleich nochmals dünn eingezeichnet.

gen beeinflusst die Überschussenergie auch die räumliche Dynamik, da die Ladungsträger zumindest teilweise noch ihren größeren Anfangsimpuls besitzen. Dies ist insbesondere bei einer Gittertemperatur von 300 K überraschend, da man hier eine viel schnellere Relaxation aufgrund der Phononenstreuung erwarten würde.

Der Vergleich der Messungen bei 20 K und 300 K zeigt, dass sowohl die Diffusionskonstante als auch die Geschwindigkeiten bei der größeren Temperatur geringer sind. Das Skalieren der Abfallzeit bei 20 K ist in Abb. 3.19 nochmal dünn eingezeichnet. Für die Diffusionskonstante ist diese Abhängigkeit bekannt und in Abb. 3.6 dargestellt. Die Abnahme zu höheren Temperaturen ist eine Folge der Streuung mit Phononen. Der Unterschied in der beobachteten Geschwindigkeit zwischen 20 K und 300 K, bei jeweils resonanter Anregung und damit gleicher Überschussenergie, muss ebenfalls mit der Phononenstreuung zusammenhängen. Für den Fall des reinen ballistischen Transports würde man keine Temperaturabhängigkeit erwarten, da die Ladungsträger sich ohne Stöße durch den Halbleiter bewegen. Somit ist sicher, dass der Transport zumindest bei 300 K nicht rein ballistisch sein kann. Andererseits spricht das Skalieren der Abfallzeit linear mit dem Durchmesser auch gegen einen diffusiven Transport. Die wahrscheinlichste Interpretation liegt darin, dass man sich mit den Experimenten in einem Regime zwischen Diffusion und ballistischem Transport befindet. Die Näherungen, die zur Herleitung der Diffusionsgleichung durchgeführt werden, sind auf den beobachteten Skalen nicht mehr gültig. Die Annahme eines lokalen thermischen Gleichgewichts und die daraus folgende Integration über alle Impulse vernachlässigt wesentliche Aspekte. Die Verteilung der Impulse sollte noch deutlich die ursprüngliche Verteilung infolge der optischen Erzeugung der Ladungsträger widerspiegeln. Stöße beeinflussen zwar die Ausbreitung zumindest bei 300 K, dennoch kann die Dynamik nicht einfach durch die Diffusionsgleichung beschrieben werden. Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die beobachtete Temperaturabhängigkeit gegen, die Abhängigkeit von der Anregungsenergie jedoch für ballistischen Transport spricht [95, 96].

Das beobachtete Skalieren der Abfallzeit gemäß dem Transport mit einer definierten Geschwindigkeit kann prinzipiell auch durch einen anderen Mechanismus verursacht werden. Ein mögliche Ursache ist der Transport der Ladungsträger über eine Kopplung an die Phononen. Diese kohärenten Phononen werden im Fokus durch den Laserimpuls erzeugt und propagieren mit der Schallgeschwindigkeit [97] nach außen. Die Ausbreitung der Ladungsträger kann durch diesen *Phononenwind* getragen werden. Dieser Transportmechanismus wurde in InGaAs-Quantenfilmen bei tiefen Temperaturen beobachtet [98]. Im Umfeld der Bose-Einstein-Kondensation in Cu_2O [99] wird der Phononenwind als alternative Erklärung zu der Propagation des suprafluiden Kondensats diskutiert [100]. Die Schallgeschwindigkeit in GaAs von 3.34 nm/ps für transversale und 4.71 nm/ps für longitudinale Moden [97] ist jedoch viel zu klein, um die gemessenen Geschwindigkeiten (> 8 nm/ps) zu erklären.

Ein sehr überraschendes Ergebnis der raumzeitlichen Transportexperimente ist, dass die Abweichungen vom diffusiven Transport schon bei relativ großen räumlichen Skalen von $1 \mu\text{m}$ und entsprechend langen Zeiten im Bereich von 10 ps beobachtet werden können. Die typischen bekannten Streuzeiten in Halbleitern schließen eigentlich einen ballistischen

Transport auf einer Zeitskala von 10 ps aus. Eine Folge der Streuung ist beispielsweise die Dephasierung von optisch angeregten Elektron-Loch-Paaren. Die Dephasierungszeit liegt in GaAs im Bereich von 100 fs und wird für hohe Anregungsdichten sogar noch kleiner. Es stellt sich die Frage, ob ballistischer Transport überhaupt auf einer Zeitskala beobachtet werden kann, die länger als die typischen Dephasierungszeit ist. Es gibt durchaus Argumente, dass dies möglich sein sollte. Die Experimente in dieser Arbeit wurden bei hohen Dichten durchgeführt, so dass für die Wechselwirkung der Ladungsträger das abgeschirmte Coulomb-Potential betrachtet werden muss. Hier haben Streubeiträge mit großem Impulsübertrag jedoch nur ein kleines Gewicht, verglichen mit den Streubeiträge mit kleinem Impulsübertrag. Klassisch bedeutet dies, dass ein fast zentraler Stoß mit entsprechend großer Ablenkung der Teilchen relativ unwahrscheinlich ist. Zur Dephasierung tragen jedoch alle Streuprozesse bei, da schon ein kleiner Impulsübertrag dafür ausreicht. Für ballistischen Transport sind hingegen nur große Impulsüberträge von Bedeutung, da nur diese eine große Richtungsänderung in der Bewegung der Ladungsträger verursachen. Der ballistische Transport kann also auf einer längeren Zeitskala als der Dephasierungszeit relevant sein. Zusätzlich zu der obigen Überlegung muss auch die Winkelverteilung der Impulse betrachtet werden. Während bei Experimenten zur Dephasierung eine homogene Ladungsträgerdichte betrachtet wird, ist die Anfangsverteilung in unseren Experimenten räumlich stark eingeschränkt. Im Falle des ballistischen Transports zeigen die Impulse der Teilchen nach relativ kurzer Zeit alle radial nach außen. Die Orts- und Impulsvektoren sind fast parallel (siehe auch Abb. 3.4) [64, 65]. Ein zentraler Stoß mit großem Impulsübertrag ist gar nicht mehr möglich, da sich alle Teilchen lokal in die gleiche Richtung bewegen. Ein weiteres Argument hängt mit der Fermistatistik der Ladungsträger zusammen. Bei hohen Dichten sind fast alle Zustände unterhalb der Fermi-Energie besetzt. Zur Streuung tragen nur die Zustände um die Fermi-Energie bei, da ein Streuprozess in einen besetzten Zustand nicht erlaubt ist. Dies reduziert ebenfalls die Streuraten. Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die relevanten Streuzeiten für den ballistischen Transport möglicherweise viel größer sind als die Dephasierungszeit der Ladungsträger im Halbleiter. Leider existieren derzeit keine theoretischen Berechnungen bei hohen Dichten, die direkt mit den Experimenten verglichen werden können.

Kapitel 4

Einfluss der Nanoaperturen auf die optischen Eigenschaften von GaAs

In den bisherigen Kapiteln wurde davon ausgegangen, dass die metallischen Aperturen nicht-invasiv sind, d. h. dass sich der Halbleiter mit Nanoapertur genauso verhält wie ohne Apertur. Bei Charakterisierungsmessungen mit Hilfe der Photolumineszenz an den für die räumliche Ladungsträgerdynamik präparierten Proben sind jedoch überraschende Effekte aufgetreten. Diese ungewöhnlichen Beobachtungen werden hier vorgestellt. Verschiedene Erklärungsmodelle liefern dann Vorhersagen, die an modifizierten Proben in weiteren Experimenten getestet werden können. In den nächsten Abschnitten wird den folgenden zwei Fragen nachgegangen. Erstens: Beeinflusst die Metallschicht an sich die Eigenschaften des darunter liegenden Halbleiters? Zweitens: Kommt es durch das Vorhandensein von Aperturen im Metallfilm zu zusätzlichen Effekten?

4.1 Photolumineszenzexperimente an metallischen Aperturen

Die ersten Experimente zum Einfluss der metallischen Aperturen auf die optischen Eigenschaften von GaAs wurden an den 100 nm-Volumenproben durchgeführt. In Transmissionsexperimenten durch die Aperturen konnte keine exzitonische Absorption bei 7 K beobachtet werden. Der GaAs-Film ohne Metallschicht zeigt hingegen zwei deutliche Absorptionsstrukturen, die dem Leichtloch- und dem Schwerlochexziton zugeordnet werden können. Die Photolumineszenz aus den Aperturen ist spektral stark verbreitert. Zur Vermeidung eines direkten Metall-Halbleiter-Kontakts wurde in weiteren Proben zwischen der Metallmaske und dem Halbleiter eine Isolator-Zwischenschicht aus Magnesiumfluorid (MgF_2) eingebracht. Die großen Aperturen dieser Proben zeigen zumindest noch den Ansatz einer Absorptionsstruktur. Insgesamt sind die Ergebnisse der Messungen an den Volumenproben jedoch sehr undurchsichtig. Dies liegt einerseits daran, dass schon der unbearbeitete GaAs-Film in der Lumineszenz zwei Maxima, entsprechend dem Leichtloch- und dem Schwerlochexziton,

zeigt. Diese Strukturen lassen sich jedoch in den Aperturen nicht mehr getrennt beobachten. Es kann nicht festgestellt werden, ob eine Verbreiterung oder ein Verschieben der Lumineszenz vorliegt. Zum anderen lassen sich nur gemittelte Effekte über die Dicke des GaAs-Films von 100 nm beobachten. Aus diesem Grund wurden weitere Messungen an Quantenfilmproben durchgeführt. Der 20 nm dicke Quantenfilm zeigt, infolge der Aufspaltung der Lochbänder, nur ein Maximum in der Lumineszenz. Die beobachteten Effekte sind hier viel deutlicher zu sehen, sodass im folgenden nur die Experimente an den Quantenfilmproben vorgestellt werden.

Die untersuchten Proben bestehen aus einem 20 nm dicken GaAs-Quantenfilm, 22 nm entfernt von der Oberfläche. Auf diesen Proben wurde zunächst eine homogene 10 nm dünne MgF_2 -Schicht aufgedampft und darauf die 100 nm dicke Metallmaske erzeugt. Die Anregung erfolgt mittels eines Helium-Neon-Lasers bei 633 nm Wellenlänge. Der Laser wird mit Hilfe eines Mikroskopobjektivs auf 1 μm Durchmesser fokussiert. Die Lumineszenz der Probe wird in Reflexion mittels Gitterspektrometer und CCD-Kamera detektiert. Es wurde ebenfalls versucht, mit 100 fs-Impulsen bei 760 nm und 400 nm Wellenlänge anzuregen. Die Ergebnisse sind hier nahezu identisch. Die Anregungsenergie scheint bei den Experimenten keinen wesentlichen Einfluss zu haben. Die Anregungsintensität beträgt bei den Messungen 0.3 μW mit einem Fokusbereich von 1.3 μm . Bei Messungen mit noch kleinerer Anregungsleistung konnte keine Veränderung der Spektren mehr beobachtet werden, sodass man davon ausgehen kann, den Niederdichtelimes in den Experimenten erreicht zu haben.

Abbildung 4.1 zeigt Photolumineszenzspektren der 20 nm GaAs-Quantenfilmprobe für eine Temperatur von 7 K. Die Maske besteht aus einem 100 nm dicken Aluminiumfilm. Das GaAs-Substrat wurde nach dem Aufkleben auf Saphir entfernt. Die Darstellung zeigt Spektren bei Anregung durch die Aperturen und Detektion der Lumineszenz in Reflexionsrichtung. Zum Vergleich wurden auch Spektren vom Quantenfilm ohne Aluminium (oben) und vom Quantenfilm unter einer homogenen Aluminiumschicht (unten) aufgenommen. Einzig die Messungen unter der Aluminiumschicht wurden von der Rückseite der Probe durchgeführt. Wegen der hohen optischen Dichte des Aluminiums und wegen der Vergleichbarkeit der Messungen ist es sehr ungünstig, durch die Aluminiumschicht anzuregen oder zu detektieren. Unter der Aluminiumschicht ist das Spektrum nahezu identisch mit dem Spektrum des Quantenfilms ohne Aluminium. Die sehr kleinen Unterschiede sind bedingt durch die Inhomogenität der Probe, da die Spektren an unterschiedlichen Positionen gemessen werden müssen. An dieser Stelle sollte somit klar sein, dass der Aluminiumfilm an sich keine Veränderung der optischen Eigenschaften der Probe verursacht. Ganz anders verhält es sich bei den Messungen an den Aperturen. Hier zeigt die Photolumineszenz ein Verschieben zu größeren Wellenlängen. Diese Rotverschiebung beträgt bei Aperturen kleiner 500 nm Durchmesser 4 nm oder entsprechend 8 meV. Bemerkenswert ist auch, dass die spektrale Breite der Lumineszenz zwar zunächst etwas größer wird, bei den kleineren Aperturen jedoch sogar etwas kleiner ist als die Breite der Spektren auf dem homogenen Film.

An dieser Stelle soll auf die Abhängigkeit von der Ladungsträgerdichte eingegangen werden. Abbildung 4.2 zeigt das Ergebnis der Experimente bei Variation der Anregungs-

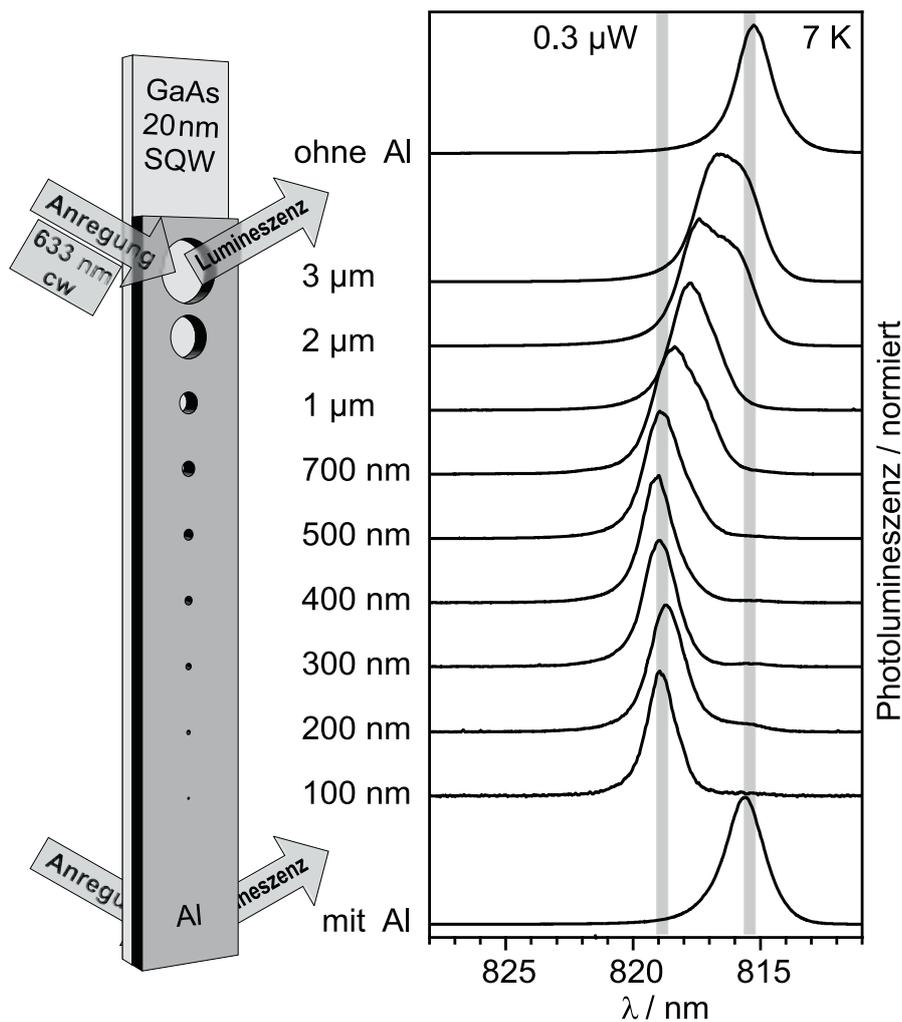


Abbildung 4.1: Photolumineszenzspektren an einer 20 nm dicken GaAs-Quantenfilmprobe bei $T = 7$ K. Die Maske besteht aus einem 100 nm dicken Aluminiumfilm. Zwischen Maske und GaAs befindet sich eine 10 nm dicke MgF_2 -Schicht. Die Anregungsleistung beträgt $0.3 \mu\text{W}$ bei einem Fokusbereich von $1.3 \mu\text{m}$.

leistung über zwei Größenordnungen. Oben und unten dargestellt sind wieder die Messungen am Quantenfilm ohne Aluminium und mit homogener Aluminiumschicht. Hier ist nur eine leichte Verbreiterung der Lumineszenz mit zunehmender Anregungsleistung zu beobachten. Diese entspricht genau dem Effekt, den man bei Erhöhung der Ladungsträgerdichte erwartet. Eine mögliche Ursache liegt in der schnelleren Dephasierung infolge der Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung. Vollständig anders verhalten sich wieder die Messungen an den Aperturen. Die mittlere Abbildung zeigt die Messungen an einer 200 nm-Apertur. Für die anderen Aperturdurchmesser beobachtet man ein äquivalentes Verhalten. Mit zunehmender Leistung taucht wieder der ursprüngliche, nicht verschobene Beitrag in der Lumineszenz auf.

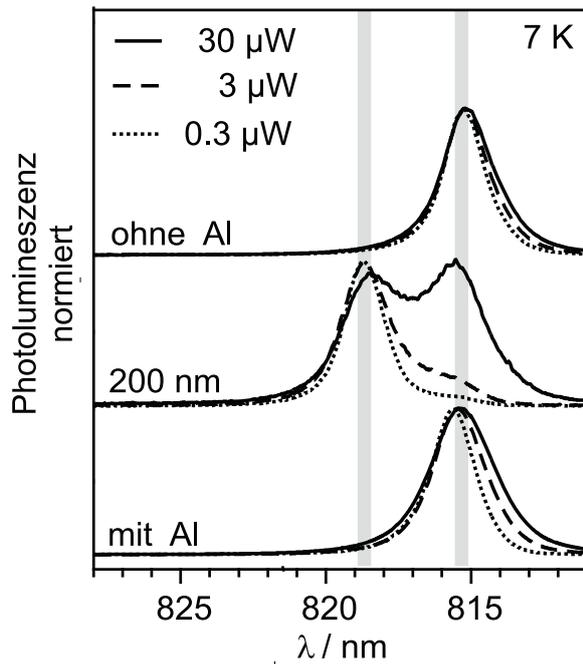


Abbildung 4.2: Abhängigkeit der Photolumineszenz von der Anregungsleistung. Oben: Spektrum am 20 nm dicken GaAs-Quantenfilm ohne Aluminium. Mitte: Messung bei Anregung und Detektion durch die Apertur. Unten: Spektrum mit homogener Aluminiumbedeckung bei Anregung und Detektion von der Seite des GaAs.

Die gewählte Geometrie der Anregung und Detektion durch die Apertur ist die einfachste Geometrie, die gewählt werden kann, da hier nur Ladungsträger innerhalb der Apertur erzeugt werden und auch nur diese zur Lumineszenz beitragen. Es ist selbstverständlich auch eine Anregung von der anderen Probenseite, der Seite des GaAs, möglich. Andererseits kann man ebenso von der Seite der Apertur oder der Seite des GaAs-Films die Lumineszenz detektieren. Somit eröffnen sich vier mögliche Messmodi. Es muss jeweils beachtet werden, ob die beobachtete Lumineszenz aus dem Bereich des Loches stammt und ob die Ladungsträger erst diffundieren bevor die Lumineszenz beobachtet wird. Generell lässt sich sagen, dass in allen Modi das unverschobene sowie das rotverschobene Lumineszenzmaximum beobachtet werden kann. Die spektrale Position der Maxima hängt dabei nicht vom verwendeten Messmodus ab, sondern nur das Verhältnis der beiden Beiträge und deren Abhängigkeit von der Anregungsintensität. Abbildung 4.3 zeigt beispielsweise Spektren bei Anregung durch die Apertur und Detektion der Lumineszenz in Transmissionsrichtung. Hier kann man bei geringen Leistungen beide Linien beobachten. Dies scheint eine Folge der Diffusion zu sein. Ladungsträger, die unter der Apertur angeregt werden, bewegen sich aus diesem Bereich heraus. Beim Rekombinieren in Bereichen außerhalb der Apertur werden Photonen emittiert, die der unverschobenen Lumineszenz entsprechen. Wird die Anregungsleistung nun erhöht, so sättigt der Bereich der Apertur wegen der hohen Anregungsdichte. Die Lumineszenz des Bereiches um die Apertur steigt aber weiterhin an, bis schließlich dieser Beitrag im Spektrum überwiegt. Infolge der normierten Auftragung wird der rotverschobene Beitrag in Abbildung 4.3 mit zunehmende Leistung kleiner.

Der nächsten Abschnitt befasst sich mit der Frage des räumlichen Ursprungs der rotverschobenen Lumineszenz. Dazu muss die Photolumineszenz räumlich aufgelöst gemes-

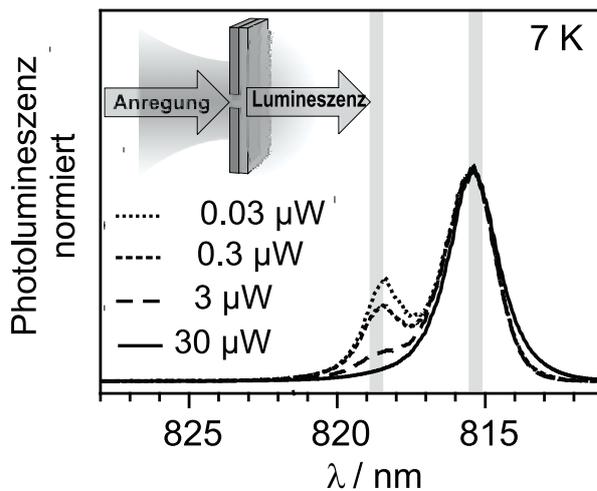


Abbildung 4.3: Abhängigkeit der Photolumineszenz von der Anregungsleistung bei Anregung durch eine 200 nm-Apertur und Detektion in Transmissionsrichtung an einer 20 nm dicken GaAs-Quantenfilmprobe bei $T = 7$ K. Die Maske besteht aus einem 100 nm dicken Aluminiumfilm. Der Fokussdurchmesser beträgt $1 \mu\text{m}$.

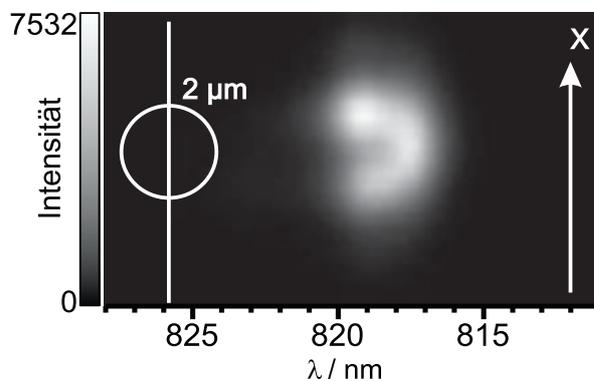


Abbildung 4.4: Intensität der Photolumineszenz als Funktion der räumlichen Position sowie der Wellenlänge. Die Messung zeigt einen Schnitt durch eine $2 \mu\text{m}$ -Apertur. Die sichelförmige Struktur ergibt sich aus der Rotverschiebung der Lumineszenz an den Rändern der Apertur.

sen werden. Da dies für Aperturen unter $1 \mu\text{m}$ mit konventioneller Fernfeldoptik nicht mehr möglich ist, beschränkt man sich zunächst auf das Abbilden von größeren Aperturen. Prinzipiell kann dazu die Probe auf eine kleine Lochblende abgebildet und das transmittierte Licht spektral aufgelöst werden. Das Bild der Probe wird über die Lochblende gerastert, dadurch erhält man eine Photolumineszenzlandkarte der Probe. Diese Messungen sind jedoch relativ aufwendig. Eine einfachere Lösung bietet das vergrößerte Abbilden der Probe auf den senkrechten Eingangsspalt des Spektrometers. Durch Auslesen des gesamten CCD-Chips erhält man in horizontaler Richtung das Spektrum und in der senkrechten Richtung die räumliche Position (als x -Achse bezeichnet). Abbildung 4.4 zeigt eine solche Messung über den Querschnitt einer $2 \mu\text{m}$ -Apertur. Anhand der sichelförmigen Struktur ist deutlich zu erkennen, dass die Spektren im Randbereich der Apertur rotverschoben sind im Vergleich zu den Spektren im Zentrum der Apertur. Daher lässt sich folgern, dass die Rotverschiebung verursacht wird durch die Ränder der Apertur. Diese Beobachtung deckt sich auch mit den Messungen am Quantenfilm unter einer homogenen Aluminiumschicht. Hier existieren keine Ränder, also ist auch keine Modifikation der Lumineszenz zu erwarten.

Hier stellt sich die Frage, ob die Rotverschiebung ein Spezifikum der Aluminiumschichten darstellt, oder ob es generell bei allen Aperturen auftritt. Zu diesem Zweck wurden Proben mit Goldmaske hergestellt. Die Dicke der Goldschicht beträgt ebenfalls 100 nm . Somit

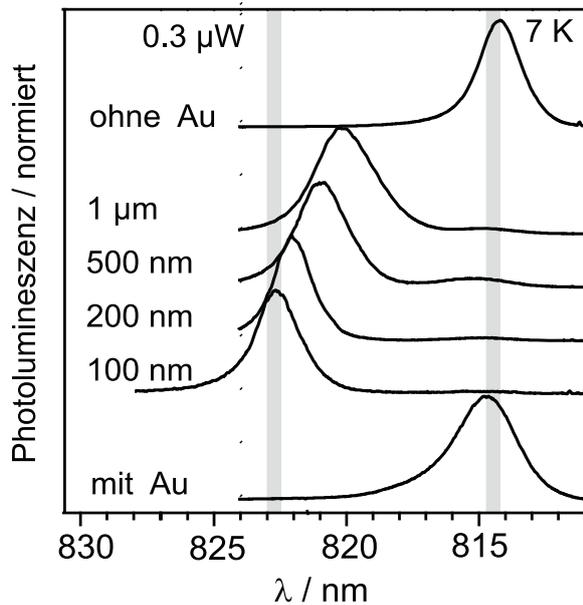


Abbildung 4.5: Photolumineszenzspektren an einer 20 nm GaAs-Quantenfilmprobe bei $T = 7$ K. Die Maske besteht aus einem 100 nm dicken Goldfilm. Zwischen Maske und GaAs befindet sich eine 10 nm MgF_2 Schicht. Die Anregungsleistung beträgt $0.3 \mu\text{W}$ bei einem Fokusbereich von $1 \mu\text{m}$. Bei der untersten Messung wurde durch die Goldschicht angeregt und detektiert, infolge dessen kommt es zu einer leichten Verbreiterung.

ist ein direkter Vergleich mit den Aluminiumaperturen möglich. Die geringere Absorption des Goldes spielt für die Lumineszenzexperimente keine wesentliche Rolle. Abbildung 4.5 zeigt äquivalent zu Abbildung 4.1 die gemessene Photolumineszenz an Goldaperturen, sowie oben und unten den Vergleich mit dem metallfreien Quantenfilm und dem Quantenfilm mit homogener Metallschicht. Bei diesen Messungen ist in sehr ähnlicher Weise eine Rotverschiebung der Lumineszenz an den Aperturen zu beobachten. In zwei Punkten unterscheiden sich die Messungen jedoch. Zum einen ist die Verschiebung mit bis zu 8 nm oder 16 meV ungefähr doppelt so groß wie bei Aluminium, zum anderen nimmt die Verschiebung auch bei den kleinsten gemessenen Aperturen noch zu.

Zur genaueren Analyse des rotverschobenen und unverschobenen Beitrags wurden zeitaufgelöste Photolumineszenzmessungen in Zusammenarbeit mit Sven Wachter und Prof. Dr. Heinz Kalt durchgeführt. Zur Anregung wird in diesen Experimenten ein verdoppelter Ti:Sa-Laser verwendet. Die Wellenlänge beträgt ca. 400 nm bei einer Impulsdauer von ungefähr 100 fs. Die Anregung und Detektion der Lumineszenz erfolgt durch eine Aluminiumapertur von 150 nm Durchmesser auf dem 20 nm dicken GaAs-Quantenfilm (vgl. Abb. 4.1). Die Anregungsleistung wurde so gewählt, dass beide spektralen Beiträge im Signal getrennt zu erkennen waren (vgl. Abb 4.2, $P = 30 \mu\text{W}$). Die Lumineszenz wurde mit einem Gitterspektrometer spektral und anschließend mit einer Streak-Kamera zeitlich aufgelöst. Abbildung 4.6 zeigt die zeitliche Entwicklung der Photolumineszenz für zwei spektrale Bereiche entsprechend der kleinen Teilgrafik. Die Bereiche entsprechen der unverschobenen Lumineszenz (a) und dem rotverschobenen Beitrag (b). Der zeitliche Verlauf einer Referenzmessung auf einem unstrukturierten Teil der GaAs Probe wurde grau unterlegt dargestellt. Es ist gut zu erkennen, dass sich der unverschobene Beitrag aus der Apertur im zeitlichen Verlauf nicht von der Messung ohne Metallapertur unterscheidet. Die rotverschobene Lumineszenz zeigt hingegen eine ganz andere Dynamik. Der Anstieg ist deutlich langsamer, so

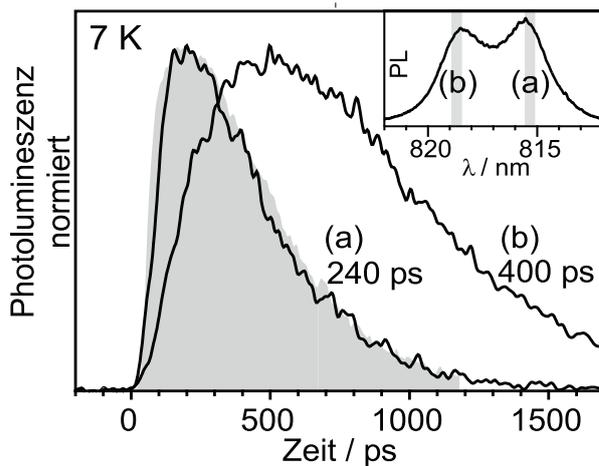


Abbildung 4.6: Zeitliche Entwicklung der Photolumineszenz gemessen durch eine 150 nm-Aluminiumapertur für zwei spektrale Bereiche entsprechend der kleinen Teilgrafik. Die angegebenen Zeiten sind die Abfallzeiten der Messungen. Grau unterlegt ist eine Referenzmessung auf einem unstrukturierten Teil der GaAs-Probe.

dass das Maximum erst nach 500 ps erreicht wird. Die anschließende Abfallzeit ist mit 400 ps fast doppelt so lang wie die Abfallzeit des unverschobenen Beitrags.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass wir bei allen unseren präparierten Proben eine Rotverschiebung der Photolumineszenz an den Aperturen beobachten konnten, sowohl Gold- als auch Aluminiumaperturen zeigen diesen Effekt. Mit Hilfe räumlich aufgelöster Messungen kann die Rotverschiebung dem Bereich der Ränder der Aperturen zugeordnet werden. Dieser Beitrag unterscheidet sich auch in der zeitlichen Dynamik. Die Halbleiterschicht zeigt somit eine ringförmige rotverschobene Lumineszenz unter den Aperturen.

4.2 Diskussion der Rotverschiebung

Dieser Abschnitt diskutiert zunächst die möglichen Ursachen der beobachteten Beeinflussung des Halbleiters durch Metallaperturen. Zwei mögliche Ursachen werden nur am Rande angesprochen, da diese relativ einfach ausgeschlossen werden können. Die nächsten beiden Abschnitten beschäftigen sich dann ausführlich mit zwei weiteren vielversprechenderen Erklärungsmodellen. Die vorgestellten Modelle liefern Vorhersagen, die in weiteren Experimenten überprüft werden.

Die Möglichkeit einer Schädigung der Probe durch die Elektronenstrahlolithographie und das Eindiffundieren des Aluminiums in das GaAs wurden nach dem Beobachten der Rotverschiebung als erstes diskutiert. In beiden Fällen erwartet man einen Unterschied zwischen der Fläche der Apertur und der Fläche unter dem Metall und keine spezifischen Randeffekte. Dies steht im Widerspruch zu den Beobachtungen. Da beide Möglichkeiten aber generell eine Veränderung der Eigenschaften des GaAs bewirken könnten, soll trotzdem kurz darauf eingegangen werden.

Um die mögliche Schädigung durch die Elektronenstrahlolithographie zu untersuchen, wurden Proben hergestellt, bei denen der Photoresist im Elektronenmikroskop nach dem Belichten und Entwickeln nicht mit Metall bedampft wurde. Nach anschließendem Entfernen des GaAs-Substrats zeigte die gemessene Photolumineszenz keine Veränderung in beschrie-

benen Bereichen im Vergleich zu Bereichen, die dem Elektronenstrahl nicht ausgesetzt waren. Eine Schädigung der Probe durch die Bestrahlung mit Elektronen bei 30 keV kann somit ausgeschlossen werden.

Das Eindiffundieren von Metall in GaAs ist prinzipiell möglich. Aluminium kann beispielsweise sehr gut das Gallium auf seinem Gitterplatz ersetzen. Der wesentliche Punkt ist hierbei die Temperatur der Oberfläche der Probe. Während der Probenpräparation ist beim Aufdampfprozess die höchste Temperatur zu erwarten. Die Siedetemperatur des Aluminiums liegt bei kleinen Drücken (10^{-8} mbar) bei 677°C . Dies stellt somit eine obere Grenze für die Oberflächentemperatur dar, wahrscheinlich liegt die Temperatur jedoch deutlich darunter. Die optisch aktive Schicht beginnt erst 22 nm unter der Oberfläche, sodass auch die Diffusionslänge in dieser Größenordnung liegen müsste. Bei eindimensionaler Diffusion wächst die Strecke s über die, die Teilchen im mitteln diffundiert sind wie $s = \sqrt{Dt}$. Für $s = 10$ nm und einer typischen Aufdampfzeit von $t = 100$ s müsste die Diffusionsrate somit $D = 10^{-14}$ cm²/s betragen. Die Literatur [101, 102, 103] gibt erst bei ca. 1000°C solche hohen Diffusionsraten an. Für 700°C ist die Rate schon um fünf Größenordnungen geringer. Das Eindiffundieren von Aluminium in GaAs kann damit für die im Herstellungsprozess vorkommenden Temperaturen ausgeschlossen werden.

In den folgenden beiden Abschnitten sollen zwei vielversprechendere Erklärungsmodelle vorgestellt werden. Zum einen die Auswirkungen des Schottky-Kontakts und damit verbundener elektrischer Felder, zum anderen die Auswirkungen von Verspannungen verursacht durch die Maske.

4.3 Modell des Metall-Halbleiter-Kontakts

4.3.1 Der eindimensionale Fall

Zunächst wird kurz auf die Physik eines Metall-Halbleiter-Kontakts unter homogener Metallisierung eingegangen. Die Austrittsarbeit von Metallen $q\phi_m$ und Halbleitern $q\phi_s$ ist im allgemeinen unterschiedlich. Abb. 4.7(a) zeigt dies beispielhaft für ein Metall und einen n-dotierten Halbleiter [104]. Bringt man diese in Kontakt, so muss im thermischen Gleichgewicht das elektrochemische Potential konstant sein oder entsprechend der Gesamtstrom verschwinden. Drift- und Diffusionsstrom müssen sich gegenseitig kompensieren. Aus diesen Bedingungen ergibt sich der Verlauf von Leitungs- und Valenzband, wie in 4.7(b) dargestellt. Im Bereich der Verarmungszone kommt es zu einer Verbiegung der Bänder. Abbildung 4.7(c) zeigt die Ladungsträgerdichten. Die Barrierenhöhe $q\phi_{Bn}$ ist die Differenz aus Metall-Austrittsarbeit $q\phi_m$ und der Elektronenaffinität des Halbleiters $q\chi$. Die räumliche Ausdehnung der Verarmungszone W ist abhängig von der Barrierenhöhe ϕ_{Bn} und der Dotierungskonzentration N_D .

$$W = \sqrt{\frac{2\epsilon_0\epsilon_s}{qN_D}}\phi_{Bn} \quad \text{mit} \quad \phi_{Bn} = \phi_m - \chi$$

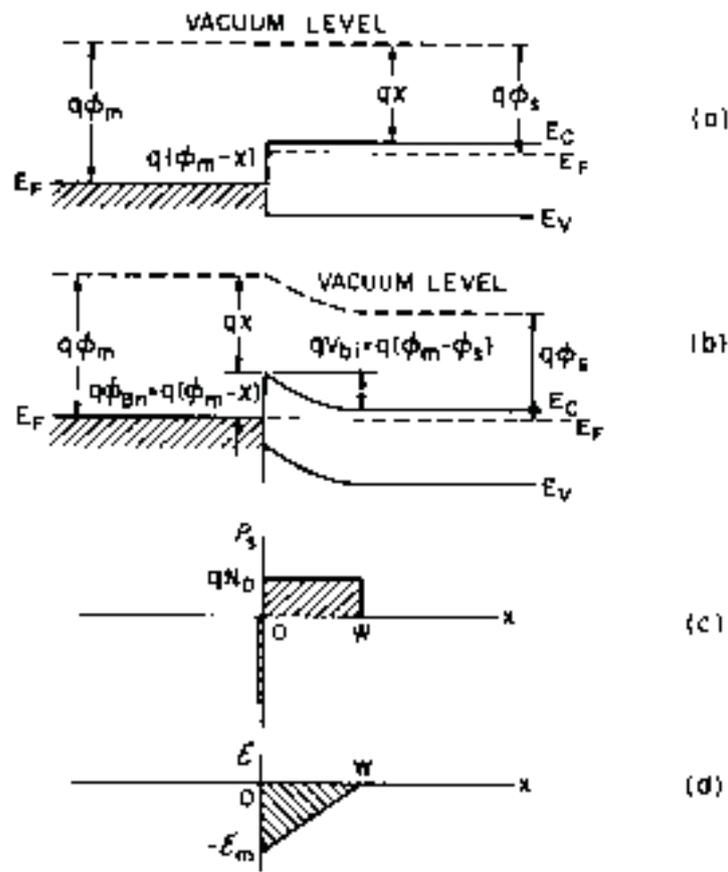


Abbildung 4.7: Bandschemata eines Metall-Halbleiter-Kontakts vor (a) und nach (b) dem Einstellen des thermodynamischen Gleichgewichts. Teil (c) zeigt die Ladungsträgerverteilung und (d) das elektrische Feld [104].

Die Physik des Schottky-Kontakts wird aber im wesentlichen von Oberflächenzuständen dominiert und weicht daher stark vom idealen Kontakt ab. Ungesättigte Oberflächenbindungen, Oxidation oder Verschmutzungen führen zu Oberflächenzuständen und damit zu einem Festhalten der Fermi-Energie an der Oberfläche ungefähr in der Mitte der Bandlücke (fermi-level pinning) [105, 106]. Dies führt dazu, dass die Austrittsarbeit des Metalls nahezu keinen Einfluss mehr auf die Höhe der Barriere hat [107, 108]. Um annähernd ideale Metall-Halbleiter-Kontakte herzustellen [109, 110], wird beispielsweise GaAs im Ultrahochvakuum gespalten und die Spaltfläche sofort mit Metall bedampft [111]. Bei n-dotiertem GaAs liegt die Barriere für nahezu alle Metalle zwischen 0.7 eV und 0.9 eV. Für nominell undotiertes GaAs mit $N_D = 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ erhält man eine Breite der Verarmungszone von ca. $1 \mu\text{m}$.

Das innere elektrische Feld im Bereich der Verarmungszone eines Schottky-Kontakts führt, genau wie extern angelegte Felder, zu einer Veränderung der optischen Eigenschaften des Halbleiters. Dieser Stark-Effekt an Exzitonen wurde schon intensiv untersucht. Für die Erklärung der Experimente in dieser Arbeit ist der Stark-Effekt an sich nicht der wesentliche

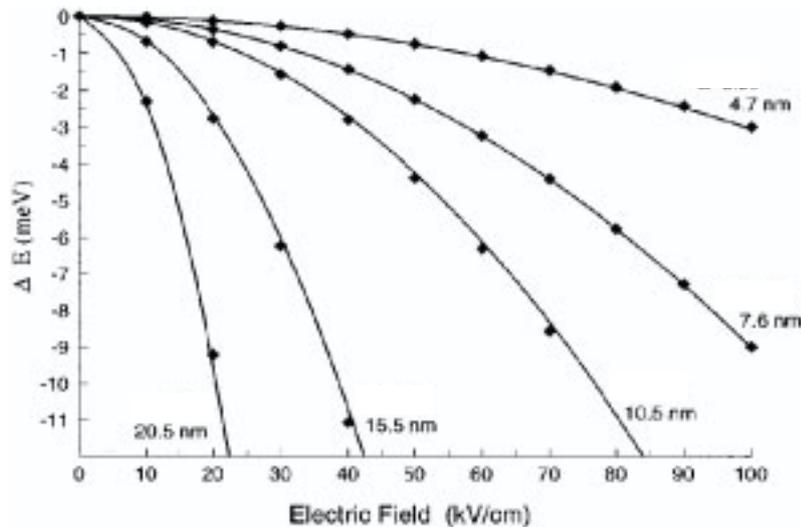


Abbildung 4.8: Verschiebung der Exzitonenübergangsenergie als Funktion des angelegten elektrischen Feldes bei GaAs-Quantenfilmen. Die Punkte zeigen Messungen, die durchgezogenen Linie die quadratische Anpassung für verschieden breite Quantenfilme [113].

Punkt, sodass hier nur ein kurzer Überblick gegeben wird. Eine theoretische Abhandlung zu diesem Gebiet findet man beispielsweise in dem Buch von Haug und Koch [112].

Betrachtet man nur freie Ladungsträger im Volumenhalbleiter, so führt das Anlegen eines elektrischen Feldes zum Franz-Keldysh-Effekt. Die Lösung der Schrödingergleichung führt zu Airy-Funktionen in der Wellenfunktion. Die Absorption zeigt einen Beitrag unter der Bandlücke sowie Oszillationen oberhalb der Bandlücke. Berücksichtigt man jetzt auch die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Ladungsträgern, so führt dies zu gebundenen Zuständen zwischen Elektronen und Löchern, den Exzitonen. Das elektrische Feld verursacht jetzt in zweiter Ordnung Störungsrechnung eine Absenkung der Grundzustandsenergie, die quadratisch im Feld skaliert. Dieser quadratische Stark-Effekt konnte auch für kleine Felder bis 1 kV/cm experimentell bestätigt werden [114, 115]. Bei größeren Feldern wird durch Beimischung von Zuständen des Kontinuums eine Blauverschiebung beobachtet. Die Verschiebungen sind jedoch sehr klein (~ 0.2 meV), sodass sie nur an Proben mit einer relativ schmalen Linienbreite beobachtet werden können. Die Verschiebung ist immer klein gegen die Exzitonenbindungsenergie (4.2 meV bei GaAs). Das Problem bei der Beobachtung dieser Energieänderung liegt in der Ionisierung des Exzitons schon bei relativ kleinen Feldern. Im Experiment wird neben der Änderung der Energie eine schnelle Verbreiterung der Resonanz mit zunehmendem Feld beobachtet. Die Lumineszenz an Volumenproben nimmt schon bei kleinen Feldern infolge der Trennung der Ladungsträger dramatisch ab.

An Quantenfilmen lassen sich die Auswirkungen von elektrischen Feldern senkrecht zur Schicht sehr gut untersuchen. Dies liegt an der Lokalisierung der Ladungsträger im Poten-

tialtopf (~ 0.5 eV), der verglichen mit der Exzitonenbindungsenergie sehr viel tiefer ist. Theoretische Beschreibungen dieses „Quantum-confined Stark Effects“ findet man in den Veröffentlichungen von Miller und Koautoren [116, 117, 118]. Abbildung 4.8 zeigt Messungen, in denen die quadratische Verschiebung der Exzitonenübergangsenergie mit dem elektrischen Feld für verschieden breite Quantenfilme zu sehen ist [113]. Das elektrische Feld senkrecht zum Quantenfilm bewirkt eine Reduzierung des räumlichen Überlapps der Wellenfunktionen von Elektron und Loch. Dadurch kommt es zusätzlich zu einer Erhöhung der Lebensdauer der Ladungsträger [119, 120]. Neben diesen Untersuchungen an zweidimensionalen Systemen wurde auch an Quantendrähten der Einfluss elektrischer Felder studiert [121, 122].

4.3.2 Statisches Potential unter der Apertur

Das Problem des Metall-Halbleiter-Kontakts ist in einer Dimension noch analytisch lösbar. Komplizierter wird der Sachverhalt in mehreren Dimensionen, vor allem auch für kompliziertere Geometrien. Hier können nur numerische Methoden weiterhelfen. Wird eine beleuchtete Apertur auf einem Halbleiterfilm betrachtet, so muss eigentlich die dreidimensionale Drift-Diffusionsgleichung mit zusätzlicher Erzeugung von optisch angeregten Ladungsträgern im Bereich der Apertur selbstkonsistent mit der Poisson-Gleichung gelöst werden. Die verfügbaren Programme konnten jedoch keine solche Geometrie inklusive der Optik berechnen. Aus diesem Grund haben wir uns entschieden, in zwei Schritten vorzugehen. Als erstes wird das statische Problem der räumlichen Potentialverteilung unterhalb der Apertur gelöst. Die Lösung dient als Ausgangspunkt für den zweiten Schritt. In diesem Teil wird in einem eindimensionalen Modell die Dynamik optisch angeregter Ladungsträger im festgehaltenen äußeren Potential betrachtet. Gerechtfertigt wird diese Trennung durch zwei Argumente. Die optisch angeregten Ladungsträger bewegen sich nur in einer Ebene und die Dichte der Ladungsträger soll relativ klein sein. Dies entspricht im Experiment der Anregung im Niederdichtelimes. Eine Variation der Anregungsintensität zeigt keine Veränderung der gemessenen Spektren.

Zunächst zu dem Problem des statischen Potentials unter der Apertur. Die Geometrie ist in Abbildung 4.9 dargestellt. Es handelt sich um eine Schicht aus GaAs, versehen mit einer Metallschicht und einer kreisförmigen Apertur. Die Beschreibung erfolgt in Zylinderkoordinaten. Der Anschaulichkeit halber wird ein Schnitt durch den Ursprung dargestellt. Weit entfernt von der Apertur erwartet man wieder die Lösung für einen eindimensionalen Schottky-Kontakt. Die Frage ist, wie sieht das Potential oder die Ladungsträgerverteilung im Bereich der Apertur aus? Zu diesem Zweck muss die Drift-Diffusionsgleichung selbstkonsistent mit der Poisson-Gleichung gelöst werden. Die numerische Integration in zwei oder drei Dimensionen ist keineswegs trivial. Zur Lösung können jedoch frei verfügbare Softwarepakete zur mehrdimensionalen numerischen Bauelementesimulation verwendet werden. Das von uns verwendete Programm PISCES¹ stammt von der Universität Stanford. Diese Pro-

¹PISCES-II, Integrated Circuits Laboratory, Stanford University, <http://www-tcad.stanford.edu>

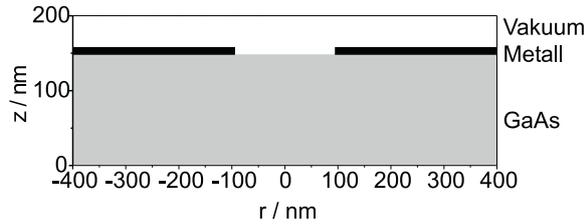


Abbildung 4.9: Zylindersymmetrische Geometrie der Probe mit Schottky-Kontakt

gramme sind sehr ausgereift, alle wesentlichen Materialparameter stehen zur Verfügung, außerdem ist die Konvergenz der Integration leicht zu überprüfen. Das Programm kann darüber hinaus auch weitere Effekte wie beispielsweise Rekombination, Oberflächenrekombination, Auger-Rekombination, heiße Ladungsträger oder Feld- und Temperaturabhängigkeiten der Beweglichkeit berücksichtigen. Die Berücksichtigung dieser Effekte ist jedoch für das hier zu untersuchende Problem nicht notwendig. Das einfachste Modell basiert auf der Drift-Diffusionsgleichung und der Poisson-Gleichung. Diese haben folgende Form (ϕ = elektrische Potential, $n_{e,h}$ Teilchendichte, $\vec{J}_{e,h}$ Teilchenstromdichte):

$$\Delta_r \phi = -\frac{1}{\epsilon \epsilon_0} (en_h - en_e) \quad (4.1)$$

$$\vec{J}_e = \mu_e \left(-\frac{k_B T}{e} \nabla_r n_e + n_e \nabla_r \phi \right) \quad (4.2)$$

$$\vec{J}_h = \mu_h \left(-\frac{k_B T}{e} \nabla_r n_h - n_h \nabla_r \phi \right) \quad (4.3)$$

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = -\nabla_r \vec{J}_e \quad (4.4)$$

$$\frac{\partial n_h}{\partial t} = -\nabla_r \vec{J}_h \quad (4.5)$$

Gleichung (4.1) ist die Poisson-Gleichung für den Fall, dass das Potential allein von den betrachteten Ladungsträgern erzeugt wird (kein äußeres Feld). Der erste Summand in der Gleichung für die Teilchenströme $\vec{J}_{e,h}$ entspricht dem Diffusionsterm, der zweite Summand dem Driffterm. Die Gleichungen (4.4) und (4.5) sind die Kontinuitätsgleichungen. Rekombination wird nicht berücksichtigt, d.h. die Teilchenzahl ist erhalten.

Eine Lösung dieses Gleichungssystems für die beschriebene Geometrie ist in Abbildung 4.10 dargestellt. Die GaAs-Schicht wird als p-dotiert mit einer Konzentration von $n_h = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ angenommen. Die Beweglichkeiten betragen $\mu_e = 8500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und $\mu_h = 400 \text{ cm}^2/\text{Vs}$. Diese beeinflussen jedoch nur die zeitliche Entwicklung und nicht den stationären Zustand. Die Numerik der Software ist nicht für tiefe Temperaturen optimiert und verursacht deswegen Konvergenzprobleme. Für $T = 40 \text{ K}$ war noch eine stationäre Lösung berechenbar. Die Austrittsarbeit des Metalls wurde so gewählt, dass sich bei hohen Dotierungen eine Barrierenhöhe von 0.8 V ergab. Abbildung 4.10 zeigt sehr deutlich ein Minimum des Potentials im Zentrum der Apertur. Dieses Minimum läuft auch in den Halbleiter hinein. Die charakteristische Ausdehnung liegt im Bereich der Größe der Verarmungszone von ca. 380 nm . In einigem Abstand zur Apertur beobachtet man einen Abfall des Potentials in

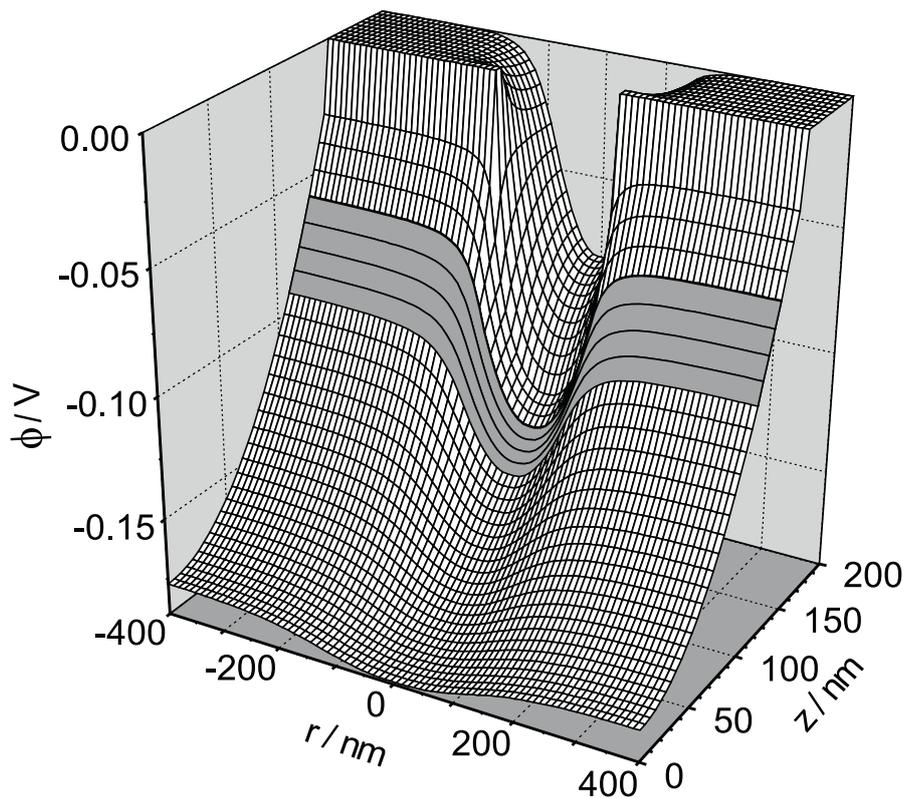


Abbildung 4.10: Elektrisches Potential ϕ im Bereich der Apertur. Parameter: p-dotiertes GaAs, $n_h = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, $n_e = 0$. Der dunkel unterlegte Bereich zeigt die Position an der sich in der Probe der Quantenfilm befindet.

z -Richtung, wie es dem eindimensionalen Schottky-Kontakt entspricht (Vergleich mit Abb. 4.7). Interessant ist vor allem der dunkel unterlegte Bereich ca. 30 nm unterhalb des Metalls. In diesem Teil befindet sich in den Proben der optisch aktive 20 nm dicke Quantenfilm. Für die hier gewählte Dotierungskonzentration ist in diesem Bereich das Potential um ca. 50 meV in radialer Richtung unterhalb der Apertur abgesenkt. Wie stark diese Absenkung ist, hängt von der Größe der Verarmungszone und damit von der Dotierungskonzentration ab. Ist die Dotierung zu hoch, so fällt das Potential auf den ersten wenigen Nanometern im GaAs um die Höhe der Barriere ab. Nur in dieser Schicht variiert das Potential. An der Position des Quantenfilm ist es dann hingegen konstant. Das andere Extremum ist eine zu geringe Dotierung. Die Verarmungszone wird viele Mikrometer breit. Der Potentialabfall in den ersten 50 nm beträgt damit nur einen Bruchteil der 0.8 V. Diese schwache Variation in z -Richtung ist auch mit einer geringen radialen Abhängigkeit verbunden. Somit ist in beiden Extremfällen nur eine sehr geringe Variation des Potentials an der Position, an der sich später der Quantenfilms befindet, vorhanden. Bei Dotierungen um $n_h = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ tritt eine maximale Absenkung auf.

Eine direkte Möglichkeit, die Größe der Absenkung bei einer einzelnen Probe zu vari-

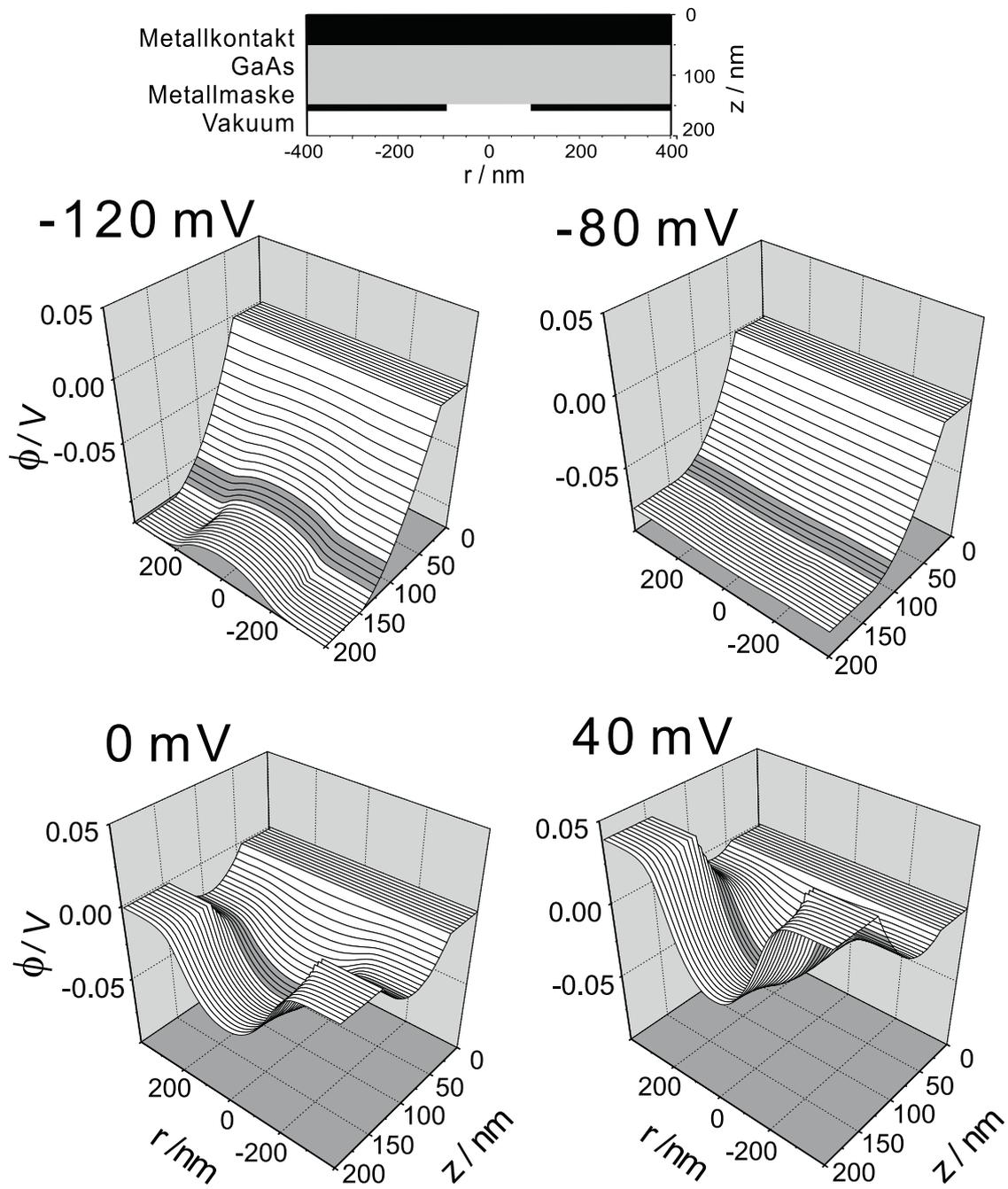


Abbildung 4.11: Elektrisches Potential ϕ im Bereich der Apertur für verschiedene Spannungen zwischen der Metallmaske und dem Metallkontakt. Der unterlegte Bereich zeigt die Position, an der sich in der Probe der Quantenfilm befindet. Parameter: p-dotiertes GaAs, $n_h = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, $n_e = 0$.

ieren, besteht im Anlegen einer Spannung an die Maske bei Verwendung eines geeigneten Rückseitenkontakts. Die Experimente werden im Abschnitt 4.5 beschrieben, zunächst sollen die Auswirkungen im Modell berechnet werden. Zur Untersuchung dieses Aspekts wurde die Geometrie leicht verändert, indem eine weitere homogene Metallschicht eingebaut wurde. Diese dient als Rückseitenkontakt. Abbildung 4.11 zeigt im oberen Teil die Geometrie. Darunter sind die berechneten Potentiallandschaften für verschiedene Spannungen zwischen Maske und Rückseitenkontakt dargestellt. Der grau unterlegte Bereich zeigt wieder die Position an der sich in der Probe der Quantenfilm befindet. Bei Anlegen einer beliebigen Spannung zeigt sich im allgemeinen ein Potentialminimum oder Maximum in der Ebene des Quantenfilms unterhalb der Apertur. Die Spannung kann jedoch auch so gewählt werden (-80 mV), dass das Potential in radialer Richtung konstant ist. In diesem Fall würden keine elektrischen Kräfte in r -Richtung auf Ladungsträger im Quantenfilm wirken. Der Einschluss der Elektronen und Löcher im Quantenfilm bewirkt, dass das Feld in z -Richtung die Ladungsträger nicht trennen kann. Die einzige Auswirkung, die beobachtet werden sollte, ist der Stark-Effekt am Quantenfilm. Dieser tritt jedoch homogen über den gesamten Bereich auf (siehe $U = -80 \text{ mV}$). Es sollten somit keine Veränderungen der optischen Eigenschaften des Quantenfilms im Bereich der Apertur mehr auftreten.

4.3.3 Dynamik optisch angeregter Ladungsträger

In diesem Abschnitt soll die Dynamik optisch angeregter Ladungsträger analysiert werden. Die im obigen Abschnitt berechnete radiale Abhängigkeit des Potentials soll als Ausgangsposition dienen. Im ersten Teil wird das Modell beschrieben und danach die numerische Lösungsmethode für das System aus partiellen Differentialgleichungen kurz erklärt. Im dritten Absatz wird eine Lösung für typische Parameter vorgestellt, deren Abhängigkeiten dann im letzten Punkt diskutiert werden.

Die Ladungsträger werden im Bereich unter der Apertur instantan erzeugt. Infolge der Potentialabsenkung durch die Apertur und der Kopplung der Ladungsträger untereinander über das gemeinsame elektrostatische Potential kommt es zu einer Umverteilung. Im Laufe der Zeit stellt sich eine Gleichgewichtsverteilung ein. Das elektrochemische Potential ist konstant. Dieses Szenario entspricht im Experiment einer Anregung mit kurzen Laserimpulsen. Die Lumineszenzexperimente zeigen jedoch keinen wesentlichen Unterschied zwischen kontinuierlicher und gepulster Anregung. Es kann davon ausgegangen werden, dass die Umverteilung auf kürzeren Zeitskalen abläuft als die Rekombination, sodass im Modell die Gleichgewichtsverteilung dynamisch aus einer gegebenen Anfangsverteilung berechnet werden kann. In erster Näherung kann eine solche Dynamik mit Hilfe der Drift-Diffusionsgleichung und der Poisson-Gleichung berechnet werden. Dabei wird von einem lokalen thermischen Gleichgewicht ausgegangen. Ebenso wird die Fermi-Statistik der Teilchen nicht berücksichtigt. Im folgenden Modell wird eine räumlich und vor allem zeitlich konstante Temperatur angenommen. Das Abkühlen der heiß erzeugten Ladungsträger, mit einer Überschussenergie von ca. 500 meV , wird somit ebenfalls nicht berücksichtigt. In GaAs erfolgt das Abkühlen zunächst überwiegend durch Emission von optischen Phononen. Die-

ser sehr schnelle Prozess reduziert die Ladungsträgertemperatur in wenigen Pikosekunden auf ca. 100 K. Das weitere Abkühlen über akustische Phononen geschieht viel langsamer, auf einer Zeitskala von Nanosekunden [123]. Im Modell gehen wir daher von einer Temperatur von 115 K ($k_B T = 10 \text{ meV}$) für die Ladungsträger aus. Die Beweglichkeit der Elektronen und Löcher spielt für die Gleichgewichtsverteilung wieder keine Rolle, sondern nur für die zeitliche Dynamik. Die Drift-Diffusionsgleichung und die Poisson-Gleichung wurden in Zylinderkoordinaten transformiert. Aufgrund der Symmetrie wird nur eine radiale Abhängigkeit der Größen berücksichtigt. Für die Poisson-Gleichung wurde die Integraldarstellung gewählt. Die Potentialmulde für Elektronen infolge der Apertur wird statisch im Potential ϕ_{ext} berücksichtigt. Wählt man ein Potentialmaximum für Elektronen und damit eine Mulde für Löcher unterhalb der Apertur, so bleibt die statische Lösung bis auf das Vorzeichen dennoch richtig, lediglich die Rolle von Elektronen und Löchern müssen vertauscht werden.

$$\phi = -\frac{1}{\epsilon\epsilon_0} \int_0^r \frac{1}{r'} \int_0^{r'} r'' (en_h - en_e) dr'' dr' \quad (4.6)$$

$$J_e = \mu \left(-\frac{k_B T}{e} \frac{\partial}{\partial r} n_e + n_e \frac{\partial}{\partial r} (\phi + \phi_{\text{ext}}) \right) \quad (4.7)$$

$$J_h = \mu \left(-\frac{k_B T}{e} \frac{\partial}{\partial r} n_h - n_h \frac{\partial}{\partial r} (\phi + \phi_{\text{ext}}) \right) \quad (4.8)$$

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = -\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r J_e) \quad (4.9)$$

$$\frac{\partial n_h}{\partial t} = -\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r J_h) \quad (4.10)$$

Das System partieller Differentialgleichungen wird iterativ in der Zeit gelöst. Die Anfangsverteilung der Elektronen und Löcher $n_e(r)$ und $n_h(r)$ wird im Bereich der Apertur gaußförmig gewählt. An den Rändern des betrachteten Intervalls wurden die Teilchenströme zu Null gesetzt. Bei $r = 0$ ist dies ohnehin physikalisch zwingend. Für den äußeren Rand ergibt sich damit eine unendlich hohe Barriere. Das Intervall im Ort wird jedoch immer so gewählt, dass nur vernachlässigbar viele Teilchen den Rand erreichen. Zur Lösung des Gleichungssystems wird folgendermaßen vorgegangen. Die Poisson-Gleichung (4.6) liefert in diesem Fall durch eindimensionale Integration der Ladungsdichte das Potential. Im zweiten Schritt kann daraus die Teilchenstromdichte $J_{e,h}$ berechnet werden. Infolge der Diskretisierung im Ort wird anstatt der Ableitung der Differenzenquotient aus den beiden Nachbar-elementen verwendet. Im dritten Schritt wird dann die Veränderung der Teilchendichten für ein endliches Zeitintervall ausgeführt. Danach wird wieder über die Poisson-Gleichung das neue Potential berechnet. Das Stabilitätskriterium für die Konvergenz des Algorithmus bei Berechnung einer Diffusionsbewegung lautet $2D\Delta t \leq (\Delta x)^2$ mit $D = k_B T \mu / e$. Dies bedeutet, dass mit Halbierung der räumlichen Schrittweite der Zeitschritt um einen Faktor 4 kleiner gewählt werden muss. Der Rechenaufwand steigt somit um einen Faktor 8.

Abbildung 4.12 zeigt die Anfangsverteilung der Ladungsträger. Die Ladungsträgerdichte im Zentrum ist $n_e = n_h = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ bei einer Tiefe des Potentialtopfs für Elek-

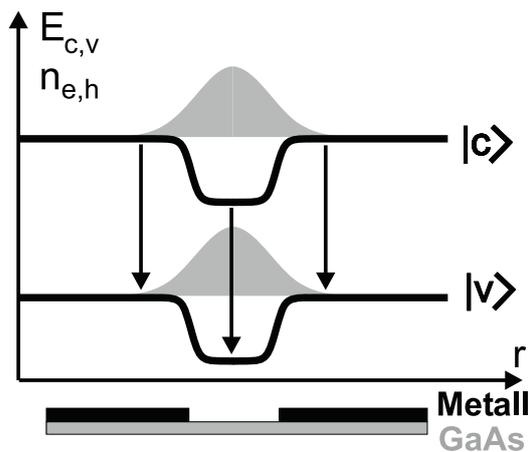


Abbildung 4.12: Anfangsverteilung der Elektronen und Löcher im Bereich der Apertur sowie das angenommene Potential infolge des Schottky-Kontakts. Die Ladungsträgerdichte im Zentrum ist $n_e = n_h = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ bei einer Tiefe des Potentials von 0.5 V

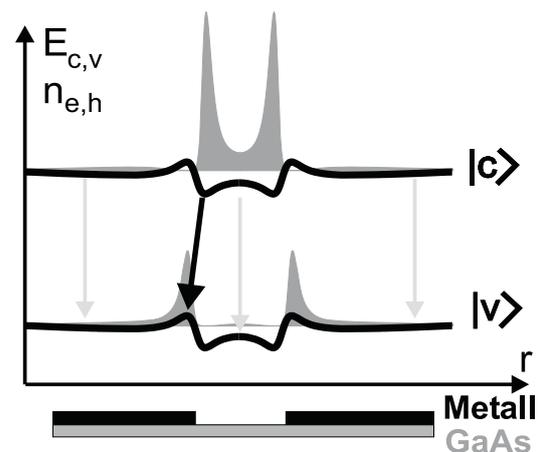


Abbildung 4.13: Lösung der Drift-Diffusionsgleichung selbstkonsistent mit der Poisson-Gleichung nach Einstellen des Gleichgewichts. Räumlich indirekte Übergänge zwischen dem Elektronen- und Löcherring verursachen eine Rotverschiebung in der Lumineszenz (schwarzer Pfeil)

tronen von 0.5 V. Für Elektronen handelt es sich um ein Potentialminimum, Löcher erfahren eine Abstoßung. Der Aperturdurchmesser beträgt 200 nm. Die Beweglichkeit von $\mu = 7000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ bei $k_B T = 10 \text{ meV}$ ergibt einen typischen Diffusionskoeffizienten für GaAs von $D = 70 \text{ cm}^2/\text{s}$. Die Diskretisierung beträgt $\Delta t = 0.1 \text{ fs}$ und $\Delta r = 2 \text{ nm}$ ($r = 0$ bis $2 \mu\text{m}$). Abbildung 4.13 zeigt die Lösung der Drift-Diffusionsgleichung nach 10 ps. In dieser Zeit konnte sich ein Gleichgewicht einstellen. Die Elektronen und Löcher bilden jeweils einen Ring. Der Ring innerhalb der ursprünglichen Potentialmulde besteht aus Elektronen, der äußere Ring aus Löchern. Die Geometrie erinnert an einen Zylinderkondensator. Eine Folge der Umverteilung ist die teilweise Abschirmung der ursprünglichen Potentialmulde im Zentrum. Diese ungewöhnliche Ladungsträgerverteilung erlaubt jetzt bevorzugt räumlich indirekte Übergänge zwischen dem Elektronen- und dem Löcherring. Räumlich direkte Übergänge sind infolge der Separierung der Ladungsträger kaum noch möglich. Die Umverteilung der Ladungsträger im elektrischen Feld des Schottky-Kontakts liefert damit direkt eine ringförmige rotverschobene Lumineszenz.

An dieser Stellen sollen die freien Parameter des Gleichungssystems (4.6) – (4.10) im stationären Zustand, d.h. bei konstantem elektrochemischen Potential ($\Delta_r \eta = 0 \Leftrightarrow J_{e,h} = 0$) betrachtet werden. Dies ist der Fall, wenn sich Driftstrom und Diffusionsstrom gerade kompensieren. Die Beweglichkeit spielt für den stationären Zustand keine Rolle. Die freien Parameter sind die Anfangsverteilung der Ladungsträger n_e und n_h , das externe Potential φ_{ext} und die Temperatur T . Die Anfangsverteilung der Elektronen und Löcher ist bei optischer Anregung identisch. Gibt man auch die Form der Anfangsverteilung und die Form

des Potentials vor, so reduziert sich der Parameterraum auf die drei Parameter n , φ_{ext} und $k_B T$. Normiert man auf einen dieser Parameter, so sind letztlich nur zwei freie Parameter übrig. Zuerst soll die Abhängigkeit von der Ladungsträgerdichte untersucht werden. In Abbildung 4.14 wurde die Anfangsdichte im Zentrum n_0 über drei Größenordnungen variiert. Auf der linken Seite sind grau unterlegt die Anfangsverteilungen dargestellt. In der Abbildung rechts ist gestrichelt das Potential zu Beginn eingezeichnet, dies entspricht auch dem externen Potential. Die stationäre Lösung für Elektronen und Löcher (links eingezeichnet) zeigt Ringe. Die Stärke der Abschirmung hängt von der Ladungsdichte in den Ringen und von der Differenz der Radien ab. Nach oben nimmt die Dichte zu, die Potentialmulde wird zunehmend abgeschirmt. Für eine nahezu komplette Abschirmung ist nur eine bestimmte Ladungsmenge erforderlich. Die Dynamik der restlichen Ladungsträger kann durch einfache Diffusion beschrieben werden. Bei einer Dichte von 10^{19} cm^{-3} beobachtet man im wesentlichen nur die Diffusion der Ladungsträger. Hier stellt sich kein stationärer Zustand mehr ein. Die Mehrzahl der Ladungsträger bildet nach 10 ps einen breiten Untergrund, es werden gerade so viele Ladungsträger im Randbereich *gefangen*, wie für das Abschirmen der Mulde notwendig sind. Die erforderliche Ladungsträgerdichte, die im Bereich der Apertur dafür erzeugt werden muss, kann auch leicht abgeschätzt werden. Die Ladung im Bereich der Apertur beträgt $Q = en_{e,h} \cdot \pi r^2 \Delta z$ (Aperradius r). Nach der Umverteilung ähnelt die Geometrie der eines Zylinderkondensators. Für einen kleinen Plattenabstand d kann dieser durch einen Plattenkondensator genähert werden. Die Potentialdifferenz beträgt demnach $\Delta\varphi = \frac{1}{\epsilon\epsilon_0} \frac{Q}{2\pi r \cdot \Delta z} d$ (Abstand der Ringe d). Die Kombination der Gleichungen liefert die nötige Anfangsdichte $n_{e,h}$ zur späteren Abschirmung der Potentialmulde. Das Ergebnis stimmt mit den numerischen Simulationen aus Abb. 4.14 überein: ($\epsilon = 13.1$, $r = 100 \text{ nm}$, $d = 50 \text{ nm}$, $\Delta\varphi = 0.5 \text{ V}$):

$$n_{e,h} = \frac{\epsilon\epsilon_0}{e} \frac{2\Delta\varphi}{rd} = 1.2 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3} \quad (4.11)$$

Neben der Variation der Anregungsdichte soll noch kurz auf die Abhängigkeit von der Temperatur eingegangen werden. Wird die Ladungsträgertemperatur im Modell erhöht, so werden die räumlichen Strukturen breiter und damit weniger deutlich. Die Erklärung hierfür ist, dass die Temperatur nur in den Diffusionsstrom eingeht. Wird dieser verstärkt, so führt dies zu einem Abbau der großen Dichtegradienten oder einfacher zu einer *Ausschmierung* der Strukturen.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die Metallmaske eine Potentialmulde im Halbleiter induziert. Werden darin optisch Ladungsträger generiert, so kommt es zu einer Umverteilung. Die Ladungsträger ringe schirmen die Mulde ab. Indirekte Übergänge zwischen dem Elektronen- und Löcherring könnten eine Ursache für die beobachtete Rotverschiebung in der Lumineszenz sein. Die Rotverschiebung sollte kleiner werden, falls die Potentialmulde geringer wird. Eine Möglichkeit, die Höhe der Potentialmulde zu variieren besteht im Anlegen einer Spannung bei Verwendung eines geeigneten Rückseitenkontakts. Andererseits sollte auch bei Erhöhung der Ladungsträgerdichte die Potentialmulde zunehmend abgeschirmt werden.

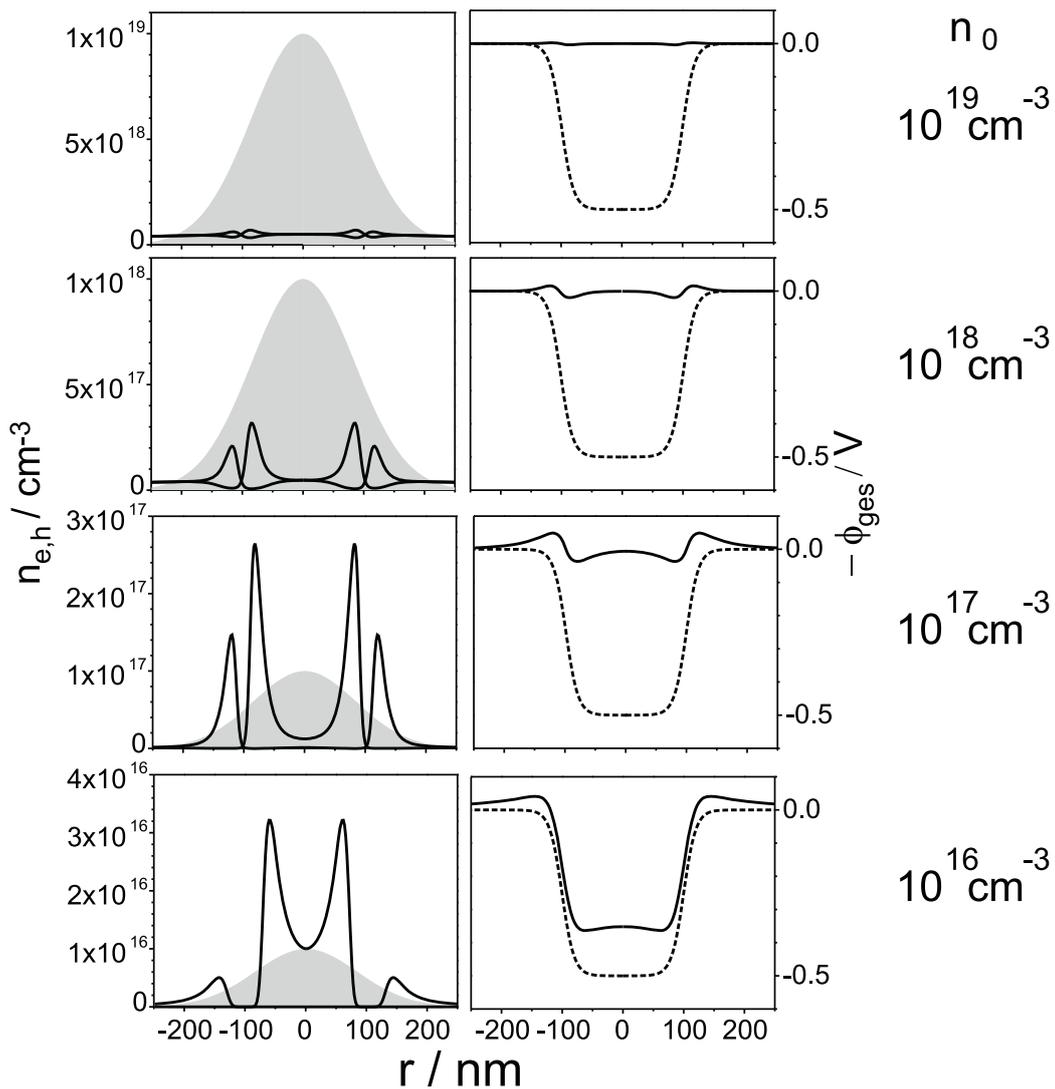


Abbildung 4.14: Die Abbildung zeigt Anfangsbedingung und Lösung der Drift-Diffusionsgleichung bei einer Variation der Dichte. Links: grau unterlegt die Anfangsverteilungen mit maximaler Dichte n_0 , durchgezogen die Verteilungen nach 10 ps. Rechts: gestrichelt eingezeichnet das Potential zu Beginn (=externes Potential), durchgezogen dargestellt das Potential nach 10 ps.

4.4 Modell der Verspannung des Halbleiterfilms

Ein weiterer Erklärungsansatz zur Rotverschiebung der Lumineszenz an den Aperturen liegt in möglichen Verspannungen des Quantenfilms unter den Aperturen. Zunächst soll die Auswirkung der Verspannungen auf die Bandstruktur diskutiert werden. Anschließend wird der spezielle Fall von sogenannten Stressoren dargestellt. Es handelt sich dabei um eine Geometrie, die in gewisser Weise einer invertierten Apertur entspricht. Im letzten Teil soll noch auf die Ursache der Verspannungen eingegangen werden.

Der Hamilton-Operator für räumlich homogene Verspannungen des Kristallgitters wurde von Pikus und Bir [124, 125, 126] formuliert. Unter Vernachlässigung des Spin-Anteils hat der Hamilton-Operator für das Leitungsband \mathcal{H}_c und das Valenzband \mathcal{H}_v beim Wellenvektor $\vec{k} = 0$ die Form

$$\begin{aligned}\mathcal{H}_c &= -a_c(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} + \epsilon_{zz}) \\ \mathcal{H}_v &= -a_v(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} + \epsilon_{zz}) - 3b \left[\left(\mathcal{L}_x^2 + \frac{1}{3} \mathcal{L}^2 \right) \epsilon_{xx} + \text{c.p.} \right] - \frac{6d}{\sqrt{3}} [\{\mathcal{L}_x \mathcal{L}_y\} \epsilon_{xy} + \text{c.p.}]\end{aligned}$$

mit den Komponenten des Verspannungstensors ϵ_{ij} , dem Drehimpulsoperator \mathcal{L} und dem symmetrisierten Antikommutator $\{\mathcal{L}_x \mathcal{L}_y\} = \frac{1}{2}(\mathcal{L}_x \mathcal{L}_y + \mathcal{L}_y \mathcal{L}_x)$. Die Abkürzung c.p. steht für zyklische Permutation der Indizes. Das hydrostatische Deformationspotential

$$a = a_c + a_v = -\frac{C_{11} + 2C_{12}}{2} \frac{dE_g}{dP} \quad (4.12)$$

ist definiert über die Elastizitätsmodule C_{kl} und die hydrostatische Druckabhängigkeit der Bandlücke E_g . Die Parameter b und d beschreiben das Scher-Deformationspotential. Das Γ_6 -Leitungsband erfährt durch den Hamilton-Operator \mathcal{H}_c eine Verschiebung. Das leichte Lochband Γ_7 (lh) und schwere Lochband Γ_8 (hh) erfahren durch den ersten Term ebenfalls eine Schwerpunktsverschiebung und durch den zweiten und dritten Term eine Aufspaltung. Der Pikus-Bir-Hamilton-Operator für das Valenzband \mathcal{H}_v kann in der Basis der Eigenzustände des Drehimpulsoperators $|l, m\rangle$ auch als Matrix angegeben werden. Infolge der Nichtdiagonalelemente mischen die beiden Lochbänder.

$$\mathcal{H}_v = \begin{matrix} & \begin{matrix} |\frac{3}{2}, +\frac{3}{2}\rangle & |\frac{3}{2}, +\frac{1}{2}\rangle & |\frac{3}{2}, -\frac{1}{2}\rangle & |\frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\rangle \end{matrix} \\ \begin{matrix} P+Q & -S & R & 0 \\ -S^* & P-Q & 0 & R \\ R^* & 0 & P-Q & S \\ 0 & R^* & S^* & P+Q \end{matrix} & \end{matrix} \quad (4.13)$$

mit

$$\begin{aligned}P &= a_v(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} + \epsilon_{zz}) \\ Q &= -b \left[\frac{1}{2}(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}) - \epsilon_{zz} \right] \\ R &= -\frac{\sqrt{3}}{2}b(\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}) + id\epsilon_{xy} \\ S &= -id(\epsilon_{xz} - i\epsilon_{yz})\end{aligned}$$

An dieser Stelle soll der spezielle Fall der biaxialen Verspannung in Richtung [100] und [010] betrachtet werden. Für die Komponenten des Verspannungstensors gilt dann folgender Zusammenhang (positives ϵ entspricht kompressiver Verspannung):

$$\begin{aligned}\epsilon_{xx} &= \epsilon_{yy} = -\epsilon \\ \epsilon_{zz} &= \frac{2C_{12}}{C_{11}}\epsilon \\ \epsilon_{xy} &= \epsilon_{yz} = \epsilon_{zx} = 0\end{aligned}$$

Die Nichtdiagonalelemente des Tensors ($\epsilon_{xy}, \epsilon_{yz}, \epsilon_{zx}$) beschreiben eine Scher-Deformation des Gitters. Im Falle der biaxialen Verspannung sind diese gleich Null. Dadurch verschwinden auch die Nichtdiagonalelemente R und S des Hamilton-Operators \mathcal{H}_v . Die Diagonalelemente geben damit direkt die Energieänderung der Valenzbänder an. Die biaxiale Verspannung ϵ liefert im Falle des Zinkblende-Gitters eine Energieänderung der Bänder im Bandminimum.

$$\delta E_c = -2a_c \cdot \frac{C_{11} - C_{12}}{C_{11}} \cdot \epsilon = 7.73 \text{ eV} \cdot \epsilon \quad (4.14)$$

$$\delta E_{v,hh} = \left[-2a_v \cdot \frac{C_{11} - C_{12}}{C_{11}} + b \cdot \frac{C_{11} + 2C_{12}}{C_{11}} \right] \cdot \epsilon = -1.99 \text{ eV} \cdot \epsilon \quad (4.15)$$

$$\delta E_{v,lh} = \left[-2a_v \cdot \frac{C_{11} - C_{12}}{C_{11}} - b \cdot \frac{C_{11} + 2C_{12}}{C_{11}} \right] \cdot \epsilon = 4.51 \text{ eV} \cdot \epsilon \quad (4.16)$$

C_{11}	C_{12}	a_c	a_v	b	d
$11.81 \cdot 10^{10} \text{ Pa}$	$5.38 \cdot 10^{10} \text{ Pa}$	-7.10 eV	-1.16 eV	-1.70 eV	-5 eV

Tabelle 4.1: Zahlenwerte der Elastizitätsmodule und der Deformationspotentiale für GaAs [127].

In Tabelle 4.1 sind die Zahlenwerte der Elastizitätsmodulen und der Deformationspotentiale für GaAs zusammengefasst. Die Änderung der Bandlücke δE_g als Funktion der Verspannung ϵ ist gegeben durch:

$$\delta E_{g,lh} = \delta E_c + \delta E_{v,lh} = 5.74 \text{ eV} \cdot \epsilon \quad (4.17)$$

$$\delta E_{g,hh} = \delta E_c + \delta E_{v,hh} = 12.24 \text{ eV} \cdot \epsilon \quad (4.18)$$

Abbildung 4.15 zeigt diese Abhängigkeit der Exzitonen-Übergangsenergie von der biaxialen Verspannung in Theorie und Experiment [128]. Die experimentellen Werte sind durch Photolumineszenzmessungen bei 5 K bestimmt worden. Die biaxiale Verspannung in GaAs ist verursacht durch die Gitterfehlpassung beim Wachstum auf Silizium mit einer Germanium-Zwischenschicht. Durch Variation der Germanium-Schichtdicke konnten unterschiedlich stark verspannte Proben hergestellt werden. Die Messungen zeigen die Reduktion der Bandlücke mit zunehmender expansiver biaxialer Verspannung, sowie das Aufheben der Entartung für das Leichtloch- und Schwerloch-Exziton.

Abbildung 4.16 zeigt schematisch die Bandstruktur eines typischen Zinkblende-Halbleiters im Zentrum der Brillouin-Zone für expansive (links) und kompressive (rechts)

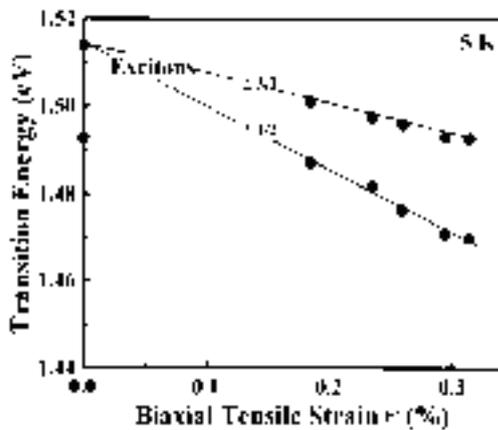


Abbildung 4.15: Verschiebung und Aufspaltung der Übergangsenergie des Schwerloch- und Leichtlochexzitons in GaAs als Funktion der expansiven Verspannung [128].

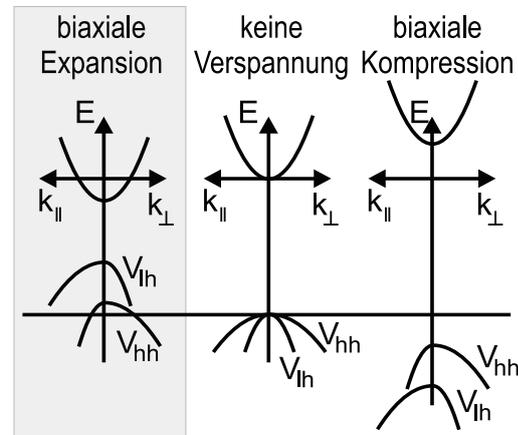


Abbildung 4.16: Bandstruktur eines typischen Zinkblende-Halbleiters im Zentrum der Brillouin-Zone für expansive (links) und kompressive (rechts) biaxiale Verspannung. Die Mitte zeigt den Fall ohne Verspannung [129].

biaxiale Verspannung. Die Mitte zeigt den Fall ohne Verspannung [129]. Durch die Verspannung ändert sich die Energie der Valenzbänder und des Leitungsbandes. Neben der Aufspaltung von Leichtloch- und Schwerloch-Band kommt es auch zu einem Mischen der Bänder. Die Symbole k_{\parallel} und k_{\perp} beziehen sich auf Wellenvektoren parallel und senkrecht zur biaxial verspannten epitaktischen Schicht.

Eine häufige Ursache für biaxiale Verspannung ist die Gitterfehlangepassung beim epitaktischen Wachstum verschiedener Materialien, wie es zur Herstellung von Quantenfilmen notwendig ist [130, 129]. Auch dünne Halbleiterschichten, die man für Transmissionsexperimente oft auf Glas oder Saphir aufklebt, werden infolge der unterschiedlichen thermischen Ausdehnung beim Abkühlen biaxial verspannt [131]. Andererseits kann die Verspannung auch für eine gezielte Manipulation der Bandstruktur verwendet werden. Oftmals wird dazu über dem Quantenfilm noch ein selbstorganisiertes Inselwachstum durchgeführt. Dieses fehlangepasste Material (Stressor) führt zu Verspannungen auch im Quantenfilm und damit beispielsweise zu einer Verringerung der Bandlücke [132, 133, 134]. Eine gezielte Herstellung ist durch lithographische Strukturierung von verspannt aufgewachsenem Halbleitermaterial möglich [135, 136]. Diese verspannungsinduzierte lokale Bandlückenreduzierung wird auch als Quantenpunkt in einem Quantenfilm bezeichnet. Ein Vorteil dieser Quantenpunkte besteht in der Vermeidung einer Oberfläche, welche zu unerwünschter nichtstrahlender Rekombination führt.

Abbildung 4.17 zeigt die Geometrie eines solchen Stressors. Die Verspannungsgeometrie unter diesen Inseln kann mit der Finite-Elemente-Methode zusammen mit der ΔT -Methode berechnet werden [133]. Die Verspannungsenergie wird dabei minimiert. Diese kann in ei-

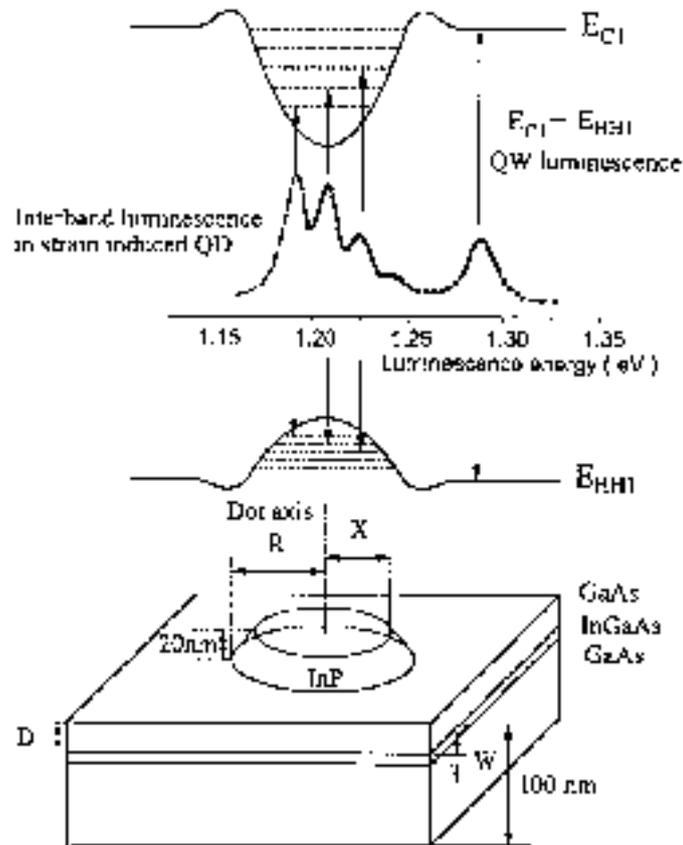


Abbildung 4.17: Schematische Darstellung eines durch Verspannung induzierten Quantenpunktes (typisch Werte: $R = 40\text{ nm}$, $X = 30\text{ nm}$, $D = 6\text{ nm}$, $W = 8\text{ nm}$), Leitungsband und schweres Lochband sowie die gemessene Photolumineszenz nach Tulkki und Koautoren [133].

nem Zinkblende-Gitter durch die elastischen Konstanten C_{11} , C_{12} und C_{44} ausgedrückt werden. Zur Berechnung wird zunächst allen Materialien die gleiche Gitterkonstante zugewiesen, sodass keine Verspannung vorliegt. Die Verspannung wird in dem System über eine künstliche Temperaturabhängigkeit der Gitterkonstanten erzeugt. In der Rechnung wird die Temperatur nun erhöht, bis alle Materialien ihre reale Gitterkonstante erreichen. Die Verspannungsenergie wird unter der Randbedingung minimiert, dass in einem Abstand zum Stressor die Gitterkonstanten festgehalten werden. Unterhalb solcher Stressoren handelt es sich nicht mehr um eine einfache biaxiale Verspannung. Die Verspannung ist zudem räumlich inhomogen. Geht man jedoch davon aus, dass die Variation der Verspannung über viele Gitterperioden erfolgt, so liefert der Pikus-Bir-Hamilton-Operator in guter Näherung den Verlauf des Leitungsbandes und der Valenzbänder. Infolge der Entkopplung von Schwerloch- und Leichtlochband durch Diagonalterme des Hamilton-Operator um 100 meV , ist das Mischen der Zustände durch Nichtdiagonalterme nahe der Bandkante vernachlässigbar. Aus

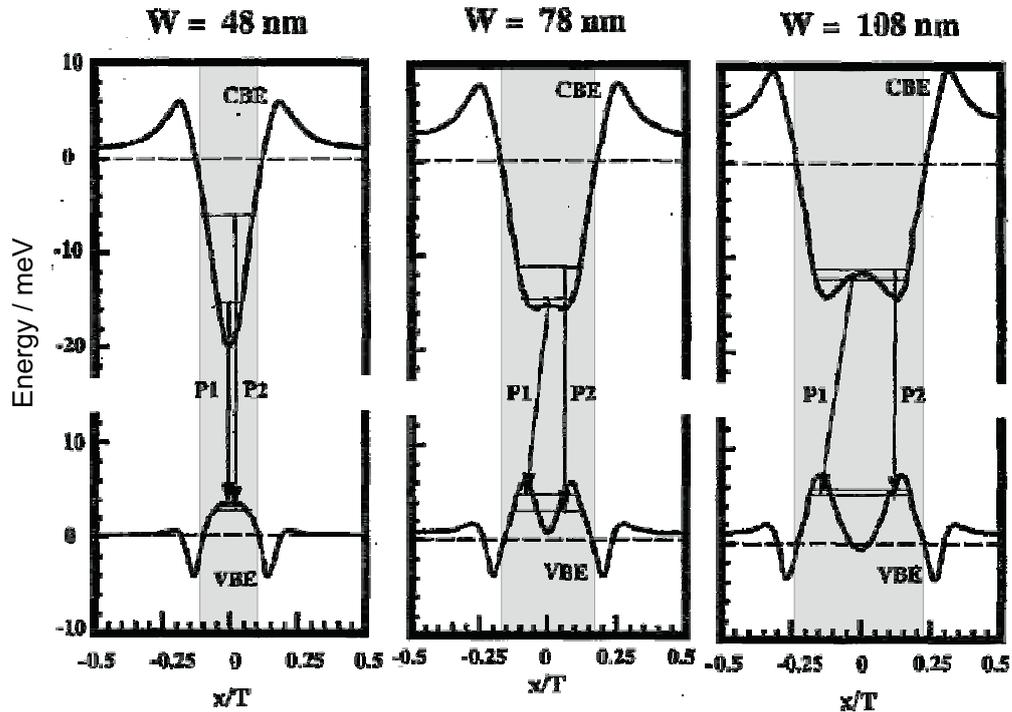
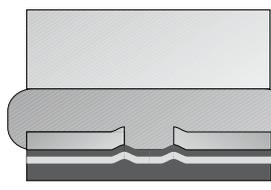


Abbildung 4.18: Räumlicher Verlauf des Leitungs- und Valenzbandes im Quantenfilm 18 nm unterhalb eines streifenförmigen Stressors. Der Bereich des verspannenden Streifens W ist grau hinterlegt. $T = 230$ nm entspricht der Gitterperiode [135].

diesem Grund wird in Abbildung 4.17 nur der Verlauf des Schwerlochbandes dargestellt. Eingezeichnet ist auch die gemessene Photolumineszenz der Übergänge zwischen den diskreten Energieniveaus der lokalisierten Zustände in diesem verspannungsinduzierten Quantenpunkt.

Neben diesen punktförmigen Stressoren existieren auch Untersuchungen zu streifenförmigen Stressoren aus $\text{In}_{0.35}\text{Ga}_{0.65}\text{As}$, angeordnet in einem Gitter über dem Quantenfilm [135]. Diese können durch Lithographie mit Hilfe eines Interferenzgitters aus zwei überlagerten Laserstrahlen und anschließender Übertragung der Lackstruktur durch Ätzen in den Halbleiter hergestellt werden. Der Potentialverlauf senkrecht zu den Streifen innerhalb des Quantenfilms wird in Abhängigkeit der Streifenbreite berechnet. Der Verlauf von Leitungs- und Valenzband ist in Abbildung 4.18 dargestellt. Bei den schmalen Streifen (links) mit einer Breite von 48 nm entspricht der Potentialverlauf qualitativ dem Verlauf unterhalb der Wachstumsinsel aus Abbildung 4.17. Zusätzlich sind die Übergänge der beiden tiefsten lokalisierten Zustände im Potentialtopf eingezeichnet. Im Falle des breiteren Streifens von 108 nm zeigt das Spannungspotential zwei getrennte Minima im Bereich der beiden Ränder eines Streifens. Die Breite dieser Minima kann mit ca. 20 nm abgelesen werden. Zwischen Quantenfilm und Stressor befindet sich 18 nm $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$. Die laterale Ausdehnung der Minima entspricht damit etwa dem Abstand zum Stressor. Eine Korrelation zwischen den



	$10^{-4} / \text{K}$
Saphir	-0.7
UV-Kleber	-2.0
Al	-3.1
GaAs	-0.94

Abbildung 4.19: Thermische Ausdehnungskoeffizienten der verwendeten Materialien bei Raumtemperatur, für anisotrope Materialien ist ein Mittelwert angegeben [31].

beiden Größen kann auch erwartet werden. Eine Potentialabsenkung am Rand von erzeugten Strukturen wird auch in unseren Experimenten an den Aperturen beobachtet. Das Verspannungsmodell liefert somit neben den elektrischen Feldern einen zweiten interessanten Erklärungsansatz.

Ein wesentlicher Unterschied besteht jedoch im Ursprung der Verspannungen. Bei den Stressoren war dies die Gitterfehlanpassung eines kristallin aufgewachsenen Halbleiters. Die Metallschichten, in denen sich die Aperturen befinden, werden im Hochvakuum aufgedampft. Die Rauigkeit der Schichten liegt bei ca. 50 nm. Es werden in dieser Schicht kleine kristalline Bereiche zu finden sein, dennoch ist die Schicht eher als amorph zu bezeichnen. Ein monokristalliner Aufbau wird bei diesem Herstellungsprozess auch nicht erwartet. Es ist demnach mit keiner großen Verspannung unter solchen Metallschichten durch das Aufbringen zu rechnen. Werden die Proben (siehe Abbildung 4.19) abgekühlt, so kann es infolge der unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten zu einer Verspannung kommen. Infolge des großen Ausdehnungskoeffizienten von Aluminium würde man eine kompressive Verspannung im darunter liegenden GaAs erwarten. Dies kann jedoch in den Experimenten nicht bestätigt werden. Wie in Abschnitt 4.1 gezeigt, wird keine Veränderung in der Übergangsenergie zwischen aluminiumfreien und homogen bedeckten Gebieten der GaAs-Probe beobachtet. Die Geometrie der Verspannung scheint komplizierter zu sein. Eine Berechnung über die oben beschriebene Methode ist nur im Falle eines kristallinen Aufbaus der Probe möglich. Die Berechnung über die elastischen Konstanten und thermischen Ausdehnungskoeffizienten der Materialien ist wegen der vielen freien Parameter nicht sehr aussichtsreich. Insbesondere die Hafteigenschaften der Materialien aufeinander und deren Temperaturabhängigkeit sollten starke Auswirkungen auf das Ergebnis haben. Diese Eigenschaften sind jedoch weder bekannt, noch existiert eine einfache Möglichkeit, diese Parameter experimentell zu bestimmen. Eine mögliche Realisierung der Verspannung, die konsistent mit den Experimenten ist, zeigt Abbildung 4.19. Eine leichte Wölbung der Probe an den Rändern der Apertur erzeugt effektiv eine expansive Verspannung des GaAs in diesem Bereich und damit eine Absenkung der Übergangsenergie.

Es existieren somit zwei relativ plausible Modelle zur Erklärung der Rotverschiebung. Zur Unterscheidung zwischen Effekten durch elektrische Felder und Verspannungen wurden weitere Experimente an speziellen Proben durchgeführt. Die Ergebnisse werden in den nächsten drei Abschnitten vorgestellt.

4.5 Experimente mit Variation des Potentials der Metallmaske

Im Abschnitt 4.3.2 über den Schottky-Kontakt wurden Berechnungen zum Potential unter der Maske durchgeführt. Es wurde gezeigt, dass eine Variation des Potentials der Maske auch den Potentialverlauf des darunter befindlichen Halbleiters modifiziert. In diesem Abschnitt werden Photolumineszenzexperimente an Aperturen gezeigt, bei denen durch Aufbringen eines Rückseitenkontakts das Potential der Maske kontinuierlich variiert werden kann. Zu diesem Zweck wurden spezielle Proben hergestellt. Die Metallmaske besteht aus 5 nm Chrom und 100 nm Aluminium. Nach dem Entfernen des GaAs-Substrats werden direkt auf die gesamte Rückseite 5 nm Chrom als Rückkontakt aufgedampft. Die Transmission einer Chromschicht dieser Dicke beträgt noch ca. 50%, so dass die Schicht für viele Experimente als transparent betrachtet werden kann. Das GaAs befindet sich damit zwischen zwei identisch dicken Chromschichten. Eine geeignete Geometrie erlaubt das individuelle Kontaktieren von Maske und Rückseitenkontakt. Durch Verwendung von zwei Kontakten auf jeder Seite kann die Spannung getrennt angelegt und gemessen werden. Der Widerstand zwischen Maske und Rückseitenkontakt beträgt bei Dunkelheit einige Gigaohm, die Kapazität wenige Nanofarad bei einer Fläche von wenigen Quadratmillimetern. Die Strom-Spannungskennlinie ähnelt der einer Photodiode. In Durchlassrichtung (Maske negativ geladen) steigt der Strom exponentiell an, in Sperrichtung (Maske positiv geladen) kann nur ein Strom bei Beleuchtung der Probe beobachtet werden. Der Grund für diese Asymmetrie bei symmetrischer Kontaktierung muss im Probenaufbau der gewachsenen Schichten liegen. Die optisch aktive Schicht aus GaAs ist von unterschiedlich dicken Schichten aus $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ umgeben. Die angelegte Gleichspannung wird im wesentlichen über den Bereich des größten Widerstandes abfallen. Im Fall der Quantenfilmprobe konnte keine Beeinflussung der Photolumineszenz bei Anlegen einer Gleichspannung beobachtet werden. Möglicherweise fällt die Spannung über einer Zwischenschicht oder einer Oxidschicht ab, denn für Wechselspannung konnte eine Verschiebung der Lumineszenz beobachtet werden. Das Potential ist jedoch dadurch während einer Messung nicht konstant, sodass die Resultate schwer zu interpretieren sind. Aus diesem Grund wurde eine 100 nm GaAs-Volumenprobe für die folgenden Experimente verwendet. Diese Probe zeigt eine deutliche Abhängigkeit der Intensität der Lumineszenz von der angelegten Gleichspannung.

Abbildung 4.20 zeigt Photolumineszenzmessungen an Aperturen mit $8 \mu\text{m}$ Durchmesser bei einer Probentemperatur von 7 K. Die Anregung erfolgt großflächig durch den 5 nm dicken Chrom Rückseitenkontakt. Die Lumineszenz wird in Reflexion detektiert. Es ist somit möglich, die Lumineszenz unter der Apertur und der Maske zu beobachten. Die Verwendung einer solchen großen Apertur erlaubt die räumliche Trennung von Beiträgen direkt unter der Apertur und unter dem Randbereich. Messungen an kleineren Aperturen zeigen im wesentlichen das gleichen Verhalten. In der Grafik sind Schnitte durch die Apertur aufgetragen über der Wellenlänge der Lumineszenz. In manchen Abbildungen ist die Intensität überhöht dargestellt, der Faktor ist rechts unten angegeben. Die gepunkteten Linien zeigen

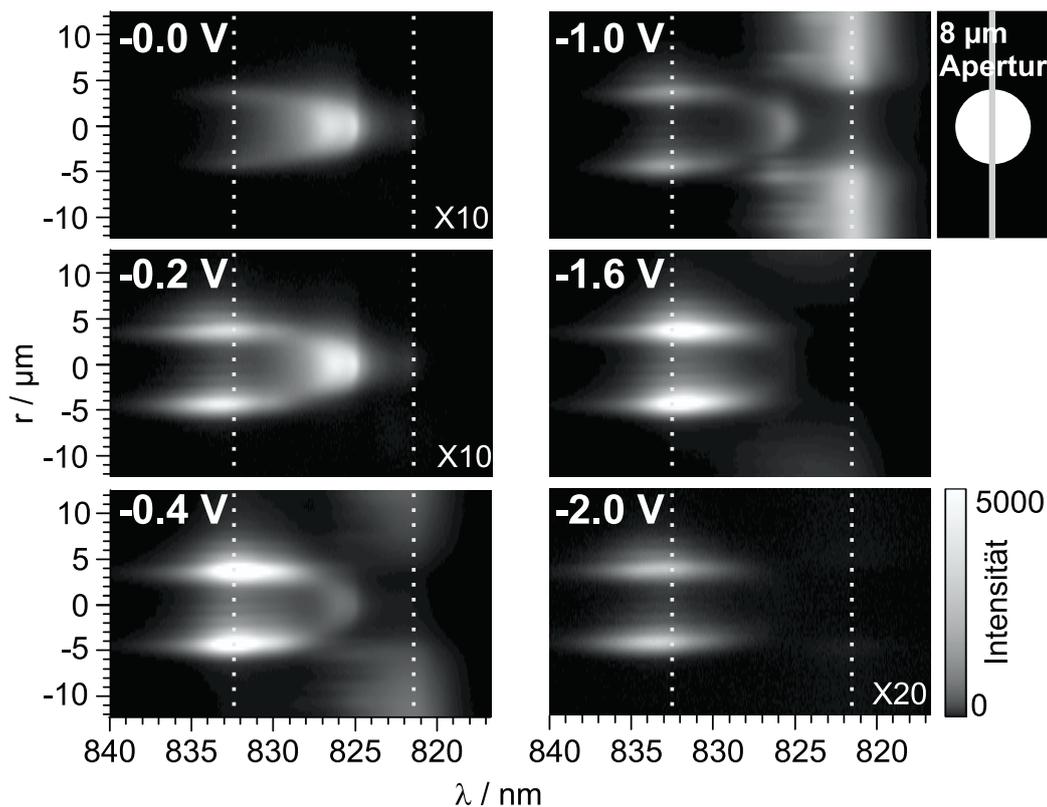


Abbildung 4.20: Photolumineszenzmessungen an einer $8 \mu\text{m}$ -Apertur bei 7 K. Aufgetragen ist die Intensität bei einem Schnitt durch die Apertur über der Wellenlänge. Die Spannung zwischen Maske und Rückseitenkontakt wurde variiert.

die spektrale Lage der Lumineszenz des GaAs unterhalb der Maske bei 822 nm und die bekannte Rotverschiebung an den Ränder bei ca. 832 nm. Betrachtet man zunächst die Spannungsabhängigkeit dieser beiden Beträge, so scheint diese halbwegs symmetrisch zu sein bezüglich $U = -1.0$ V. Die Lumineszenz unter der Maske (822 nm) zeigt ein Maximum bei -1.0 V und fällt dann zu größeren und kleineren Spannungen sehr schnell ab. In diesen linearen Darstellungen ist der Beitrag bei einer Veränderung der Spannung um ± 0.6 V nicht mehr zu sehen. Die Bänder scheinen bei -1.0 V in z -Richtung flach zu verlaufen, sodass keine Trennung der Ladungsträger auftritt, folglich ist die Lumineszenz maximal. In den Randbereichen der Apertur ist das Verhalten komplizierter. Hier zeigen sich zwei Maxima bei -0.4 V und -1.6 V, während bei -1.0 V die Lumineszenz deutlich geringer ist. Dieser Effekt hängt möglicherweise mit der Drift der Ladungsträger zusammen. Bei Variation des Potentials werden die Ladungsträger in unterschiedliche Bereiche gedrängt, in denen sie dann rekombinieren. Das Verhalten ist dennoch im Detail nicht vollständig verstanden. In den Messungen ist auch zu sehen, dass die spektrale Position ein wenig variiert, dies scheint jedoch eher ein Effekt der Ladungsträgerdichte und dem damit verbundenen Auffüllen des Bandes zu sein. Für Spannung bei der die Lumineszenzintensität sehr groß ist, scheint die Rotverschiebung etwas weniger stark ausgeprägt zu sein. Sehr ungewöhnlich verhält sich

auch die Lumineszenz aus dem Zentrum der Apertur. Die spektrale Position liegt zwischen Rand- und Maskenbereich. Die Intensität dieses Bereichs ist zwischen 0.0 V und -1.0 V nahezu konstant. Infolge der unterschiedlichen Skalierung der Grafiken ist dies nur schwer zu erkennen. Da die Lumineszenz aus den Randbereichen bei 0.0 V schon sehr stark reduziert ist, leuchtet das Zentrum der Apertur bei dieser Spannung am hellsten. Das symmetrische Verhalten bezüglich -1.0 V ist für das Zentrum nicht mehr zu beobachten. Neben diesen Details der Messungen sollen zum Schluss die Vorhersagen aus dem Modell des vorherigen Kapitels diskutiert werden. Es wird erwartet, dass mit Variation der Spannung die Potentialmulde und damit die Rotverschiebung variiert und sogar beseitigt werden kann. Diese Erwartungen werden vom Experiment definitiv nicht bestätigt. Durch Variation des Potential lässt sich nur eine Konfiguration erreichen, in der zumindest alle räumlichen Bereiche im integrierten Spektrum ungefähr gleich stark leuchten. Dies ist bei Spannungen um $U = -1.0$ V der Fall.

4.6 Experimente zum Einfluss des Materials in den Aperturen

In den bisherigen Experimenten zur Untersuchung der Rotverschiebung an den Aperturrändern konnte die Frage nach der Ursache nicht vollständig geklärt werden. Es war nicht möglich, die Beeinflussung durch eingebaute elektrische Felder und Verspannungen getrennt zu untersuchen. Aus diesem Grund wurden Proben hergestellt, bei denen die Metallmaske durch eine Maske aus dem Isolator Magnesiumfluorid ersetzt wurde. Magnesiumfluorid ist transparent im sichtbaren Spektralbereich mit einem Brechungsindex von $n = 1.39$. Es bildet beim Aufdampfen unter Hochvakuum glatte, gut haftende Schichten und ist deshalb für die Nanostrukturierung mittels Lift-Off-Prozess gut geeignet. Die hergestellten Strukturen sind natürlich nicht als optische Nahfeldmasken geeignet, da die Schichten transparent sind. Dennoch kann der Einfluss dieser Masken auf die optischen Eigenschaften von GaAs sehr gut untersucht werden. Der wichtigste Punkt ist hierbei, dass kein Metall-Halbleiter-Kontakt und die damit verbundenen elektrischen Felder die Proben beeinflussen. Eine mögliche Ursache der Rotverschiebung kann somit eliminiert werden.

Abbildung 4.21 zeigt Photolumineszenzspektren an MgF_2 -Aperturen bei 7 K zu verschiedenen Prozessschritten der Probenherstellung. Es handelt sich um einen 20 nm dicken GaAs-Einzelquantenfilm. Das oberste Spektrum zeigt jeweils die Lumineszenz des GaAs ohne MgF_2 -Schicht, das unterste die Lumineszenz unter einer homogenen Schicht. Auch bei diesen Proben kann kein Einfluss der homogenen Schicht auf die optischen Eigenschaften des GaAs beobachtet werden. Die Messungen an den MgF_2 -Aperturen zeigen wie die Messungen an den Metallaperturen eine Rotverschiebung der Lumineszenz. Der unverschobene Beitrag ist in allen Spektren zu beobachten, da auch die Lumineszenz aus dem Bereich um die Apertur immer eingesammelt wird. Unter der sehr wahrscheinlichen Annahme, dass hinter der Rotverschiebung in der Photolumineszenz bei Metall- und Isolatormasken die gleiche

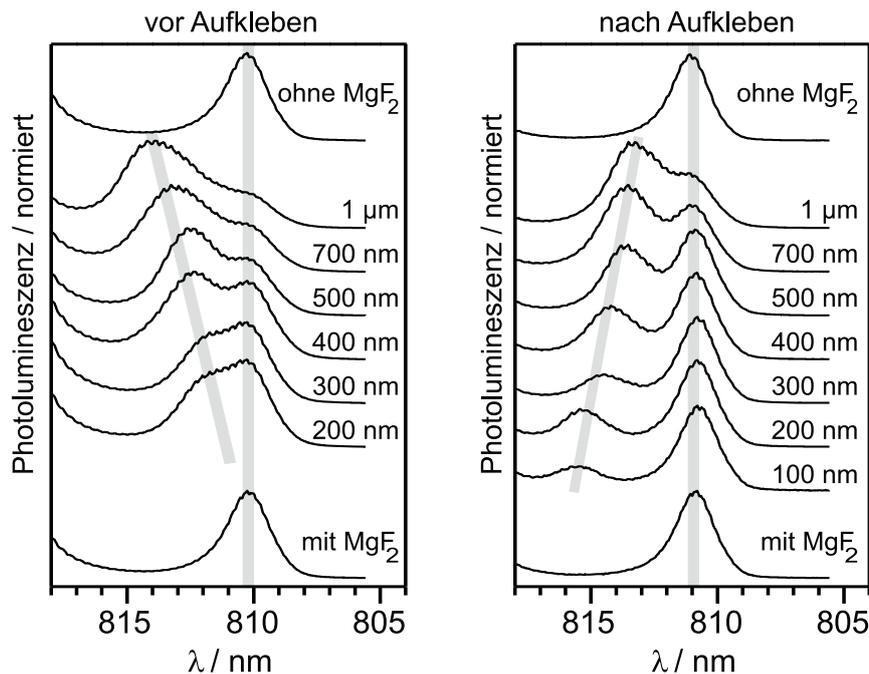


Abbildung 4.21: Photolumineszenzspektren an MgF_2 -Aperturen bei 7 K, an einem 20 nm dicken GaAs-Einzelquantenfilm. Links: Probe vor dem Aufkleben auf Saphir. Rechts: Probe nach dem Aufkleben, so dass die Aperturen mit Optikkleber aufgefüllt sind. Die oberste Kurve zeigt die Lumineszenz an einer Probenstelle ohne MgF_2 -Schicht und die unterste Kurve mit homogener MgF_2 -Schicht. Dazwischen befinden sich Messungen an Aperturen mit verschiedenen Durchmessern.

physikalische Ursache steckt, können nur Verspannungen für diese ungewöhnlichen Beobachtungen verantwortlich gemacht werden.

Eine weitere Bestätigung dieser Erklärung liefert auch der Vergleich der Messungen im linken und rechten Teil der Abbildung 4.21. Die linke Messreihe wurde direkt nach der Herstellung der Maske aufgenommen, die Probe besteht somit nur aus dem eigentlichen GaAs-Wafer und der aufgetragenen Maske. In den Messungen rechts ist die Probe mit Optikkleber bereits auf ein Saphirplättchen aufgeklebt. Die Aperturen sollten also mit dem Kleber aufgefüllt sein. Sehr interessant ist das Verhalten des rotverschobenen Beitrags in der Lumineszenz. Vor dem Aufkleben ist die Verschiebung für größere Aperturen am stärksten, zu kleinen Aperturen nimmt sie ab. Im Gegensatz dazu beobachtet man nach dem Aufkleben der Probe eine geringere Verschiebung bei der $1\ \mu\text{m}$ -Apertur, mit abnehmendem Aperturdurchmesser wächst die Verschiebung jedoch stark an. Ein solches Verhalten ist als Folge von elektrischen Feldern nicht erklärbar. Der Optikkleber in den Aperturen wird jedoch mit Sicherheit die auftretenden Verspannungen beim Abkühlen der Probe modifizieren. Es kann zwar nicht im Detail geklärt werden, wie es zu der jeweiligen Abhängigkeit vom Aperturdurchmesser kommt, dies liegt jedoch wahrscheinlich an der Komplexität der Geometrie und den mechanischen Eigenschaften der unterschiedlichen Materialien.

4.7 Lumineszenzexperimente mittels Rasternahfeldmikroskop

Die Verspannungen, die zu einer Potentialabsenkung im Quantenfilm führen, sollen in diesem Abschnitt mit Hilfe eines optischen Nahfeldmikroskops (SNOM scanning near-field optical microscope) genauer untersucht werden. An dieser Stelle werden nur die Spezifika des Nahfeldmikroskops erläutert, die speziell in den durchgeführten Messungen von Belang waren. Eine allgemeine Beschreibung ist in den Diplomarbeiten von Clemens Rabenstein und Marcus Mikolaiczky zu finden [137, 138]. Die Messungen in diesem Abschnitt wurden von Markus Deubel und Georg v. Freymann durchgeführt. Die Software zur Erstellung der Grafiken aus den Messdaten stammt von Ulrich Neuberth.

Die Herstellung der Glasfaserspitzen für das Nahfeldmikroskop geschieht durch einen zweistufigen Ätzprozess in Flusssäure. Der Öffnungswinkel ist mit ca. 90° relativ groß. Dies bewirkt ein Führen der Lichtmode bis kurz vor die Spitze. Die Glasfasern werden nicht mit Metall bedampft. Im verwendeten Abbildungsmodus wird durch die Glasfaser angeregt und die Photolumineszenz in Reflexion ebenfalls durch die Glasfaser aufgesammelt. Bei diesem Abbildungsmechanismus spielt die Nahfeldverstärkung unterhalb der Spitze eine entscheidende Rolle. Diese Verstärkung erhöht lokal die Anregungsdichte, andererseits wird die lokale Lumineszenz auch effektiv in die Faser eingekoppelt. Die experimentell bestimmte Auflösung liegt zwischen 200 nm und 300 nm und damit unter der halben Wellenlänge der Anregung. Im Nahfeldmikroskop wird die Glasfaserspitze über die Halbleiterprobe gerastert, die sich auf einer Temperatur von 10 K befindet. Die Anregung erfolgt bei 633 nm mit einer Leistung von 100 nW in der Faser. In den Messungen werden jeweils 1600 Spektren in einem Raster von 40×40 Punkten aufgenommen. Die Integrationszeit pro Spektrum beträgt 0.5 s. Die Lumineszenz wird von einer stickstoffgekühlten CCD-Kamera mit hoher Quanteneffizienz detektiert.

Der Effekt der Potentialabsenkung durch Verspannung kann für eine gewünschte Veränderung des Potentials im Halbleiter ausgenutzt werden. In diesem Zusammenhang ist die Frage zu untersuchen, ob weitere Effekte existieren, die zu einer Schädigung des Halbleitermaterials führen. Dies könnte sich in einer Reduzierung der Photolumineszenzausbeute oder in einer Verbreiterung der Lumineszenzlinie bemerkbar machen. Die Breite der Lumineszenz der bisher verwendeten 20 nm dicken GaAs-Quantenfilmprobe liegt bei 3 meV. Viel besser geeignet scheint eine nur 3.5 nm dicke Quantenfilmprobe. Der Quantenfilm befindet sich 47 nm unter der Oberfläche, doppelt so tief wie in den bisherigen Proben, trotzdem wird man hoffen, den Effekt noch beobachten zu können. Die Rauigkeit der Grenzfläche im Monolagenbereich zwischen dem GaAs-Quantenfilm und dem umgebenden Übergitter führt zu einem Unordnungspotential. Infolgedessen kommt es zu einer Lokalisierung und dem Auftreten sehr scharfer Linien in der Lumineszenz. Die gemessene Linienbreite lag auflösungsbegrenzt zum Teil bei nur $100 \mu\text{eV}$. Abbildung 4.22 zeigt rechts ein typisches Spektrum (schwarze Kurve), gemessen mit dem Nahfeldmikroskop. Im Falle der Schädigung der Probe würde man auch ein Verschwinden der scharfen Linien erwarten. Die Lokalisierung verhin-

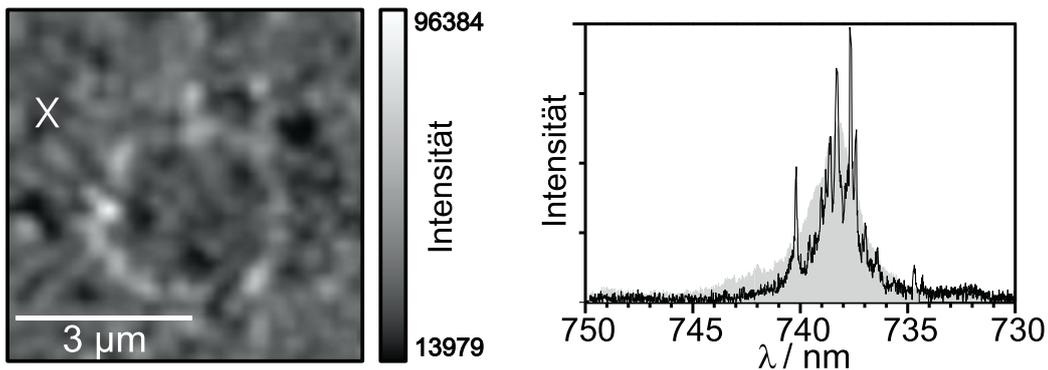


Abbildung 4.22: Photolumineszenzmessungen mit dem optischen Nahfeldmikroskop an der 3.5 nm dicken Quantenfilmprobe mit MgF_2 -Maske bei 10 K. Links: Spektral integrierte Lumineszenz über einer $3 \mu\text{m}$ -Apertur (40×40 Messpunkte). Rechts: Einzelspektrum an der Position des Kreuzes, grau unterlegt das gemittelte Spektrum über alle Messpunkte.

dert auch die räumliche Trennung von Elektronen und Löchern, wie sie in der Erklärung der Rotverschiebung infolge elektrischer Felder notwendig ist. Messungen an der Probe könnten somit neben einer weiteren Bestätigung des Verspannungsmodells gleichzeitig Hinweise auf Schädigungen durch die Verspannungen liefern. Der Nachteil der Probe besteht in der räumlich granularen Struktur der Lumineszenz. Außerdem besitzt die Probe typischerweise Linien über einen spektralen Bereich von 10 meV. Abbildung 4.22 zeigt Photolumineszenzmessungen über einer $3 \mu\text{m}$ -Apertur. Die spektral integrierte Lumineszenz ist als Funktion des Ortes in der linken Grafik aufgetragen. Andeutungsweise ist ein Ring an der Position der Apertur zu erkennen. Ein Beispiel eines Einzelspektrums ist rechts dargestellt, grau unterlegt ist das gemittelte Spektrum über alle Messpunkte. Viel mehr Information können aus den Messdaten gewonnen werden, wenn gezielt spektrale Schnitte dargestellt werden.

Abbildung 4.23 zeigt vier Lumineszenzlandkarten, bei denen über unterschiedliche spektrale Bereiche integriert wurde. Die Bereiche sind in den Spektren rechts jeweils markiert. Zur Orientierung ist gestrichelt die Apertur eingezeichnet. Das Kreuz markiert die Position des gezeigten Einzelspektrums. Die Position liegt in einem Bereich erhöhter Lumineszenz des jeweiligen Energieintervalls. Abbildung (c) und (d) zeigen Intervalle unterhalb des Maximums der gemittelten Lumineszenz, Abb. (b) im Maximum und Abb. (a) oberhalb des Maximums. Abbildung (d) zeigt direkt den rotverschobenen Lumineszenzring am Rand der Apertur. Dieses Verhalten entspricht den Beobachtungen in den Messungen der anderen Quantenfilmproben mit Metall- oder MgF_2 -Masken. Die Körnigkeit des Rings liegt nicht an der Imperfektion der Apertur sondern an den Eigenschaften des Quantenfilms. Das Einzelspektrum (d) im Bereich des Rings zeigt auch eine Rotverschiebung. Es sind immer noch einzelne sehr scharfe Linien zu beobachten. Die Lumineszenzausbeute im Ringbereich ist zudem eher etwas erhöht, keinesfalls jedoch reduziert. Die optischen Eigenschaften geben somit keinen Hinweis auf eine Schädigung des Quantenfilms infolge der Verspannungen. In Abb. (c) ist zu sehen, dass der gesamte Bereich unterhalb der Apertur noch leicht rot-

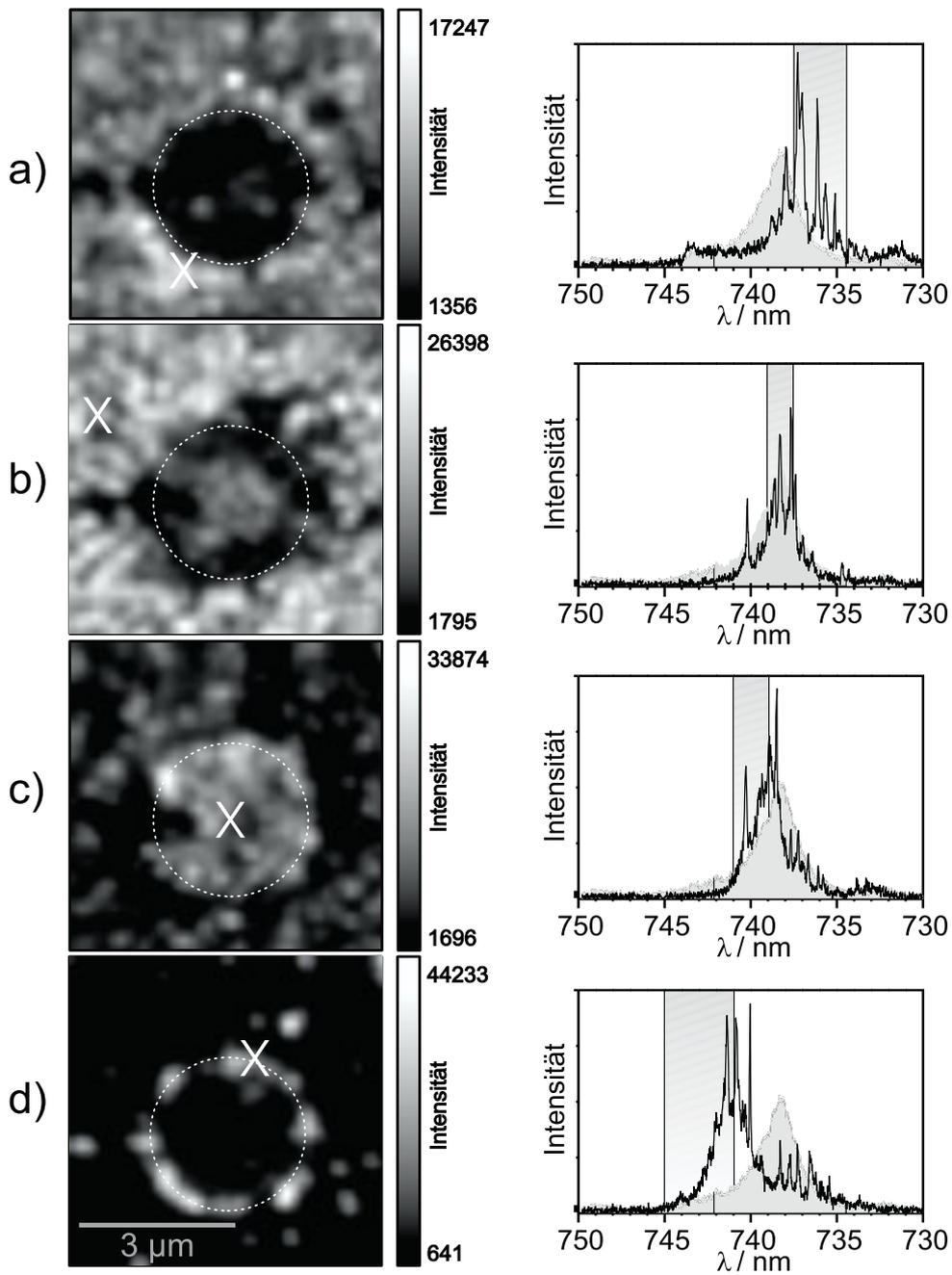


Abbildung 4.23: Photolumineszenzmessungen an einer $3 \mu\text{m}$ -Apertur. Es wurde über verschiedene spektrale Intervalle integriert (rechts eingezeichnet) und diese jeweils als Lumineszenzlandkarten dargestellt. Ein typisches Einzelspektrum an einer beliebigen Position (Kreuz) ist rechts, vor dem grau hinterlegten Mittelspektrum, dargestellt.

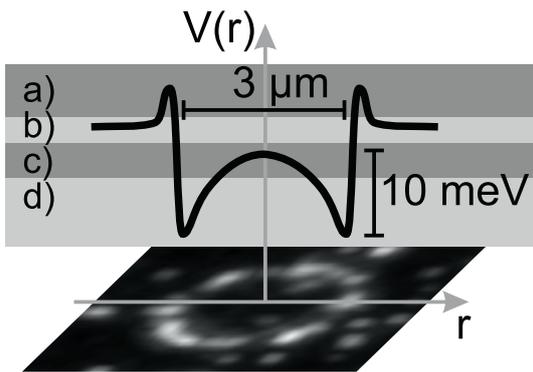


Abbildung 4.24: Räumlicher Verlauf der Modifizierung des Bandabstands veranschaulicht aus den Messungen aus Abbildung 4.23. Ursache ist die Verspannung des Quantenfilms unter einer Apertur im aufgetragenen MgF_2 -Film.

verschoben ist. Abb. (b) zeigt das Leuchten des unbeeinflussten Quantenfilms außerhalb der Apertur. Flächenmäßig ist dies der größte Bereich, sodass im gemittelten Spektrum auch hier das Maximum zu finden ist. Ein Intervall energetisch oberhalb dieses Maximums wird in Abb. (a) dargestellt. Andeutungsweise kann hier ein etwas größerer heller Ring beobachtet werden. Dieser tritt zwar in der gezeigten Messung nicht signifikant stark auf, die Struktur ist dennoch in den meisten Messungen vorhanden.

Aus den spektralen Schnitten kann jetzt versucht werden, auf den Bandabstand und dessen räumlichen Verlauf zurück zu schließen. Einen mit den Messungen verträglichen Verlauf zeigt Abbildung 4.24. Den räumlichen Positionen wurde jeweils die Mitte des Energieintervalls starker Lumineszenz zugeordnet. Es handelt sich nicht um eine strenge Ableitung des Potentialverlaufs aus den Messdaten, sondern vielmehr um eine Interpretation zur Veranschaulichung des Verhaltens. Erstaunlicherweise zeigt dieser Verlauf starke Ähnlichkeiten zum Verlauf des Bandabstands unter Stressoren wie dies im Kapitel 4.4 beschrieben wurde. Dies ist eine weitere Beobachtung, die das Modell der Verspannung zur Erklärung der Rotverschiebung bestätigt.

Sollen diese Verspannungseffekte zur Erzeugung von lateralen Strukturen im Potential genutzt werden, so stellt sich die Frage, wie klein die Strukturen sein können. In den bisherigen Experimenten mit dem Nahfeldmikroskop gibt die Auflösung zum einen und die granulare Struktur der Lumineszenz zum anderen eine Grenze vor. Es wurden auch Messungen an Aperturen mit einem Durchmesser von nur 500 nm durchgeführt. Die Rotverschiebung war auch hier zu beobachten, der *Ring* reduzierte sich allerdings auf nur drei Leuchtzentren. Es ist somit schwierig, eine genaue Aussage über die Breite der Potentialminima zu machen. Eine obere Grenze aus diesen Messungen sollten allerdings 500 nm sein. Weitere Aussagen können aus den Messreihen in Abb. 4.1, 4.5 und 4.21 an verschiedenen Aperturdurchmessern gewonnen werden. Die Breite des Rings, dies ist der Bereich maximaler Verspannung, kann verglichen werden mit dem Aperturdurchmesser. Wird der Durchmesser kleiner als die Breite des Rings, so erwartet man, dass die Verspannungen geringer werden und im Potential nur noch ein einzelnes Minimum existiert. Im Fall, dass der Durchmesser gegen Null geht, muss auch das Minimum verschwinden. Falls keine Reduzierung der Rotverschiebung bei kleinen Aperturen auftritt, lässt sich umgekehrt daraus schlussfolgern, dass die Breite der Potentialabsenkung kleiner ist als der Durchmesser. Dies ist in allen Proben die mit Optikkle-

ber aufgeklebt wurden der Fall. Diese Beobachtung stimmt optimistisch. Die Verspannungen scheinen es zu ermöglichen, das Potential auf einer Skala von 100 nm oder weniger zu modifizieren. Eine untere Grenze wird wahrscheinlich durch den Abstand zwischen Maske und optisch aktiver Schicht definiert.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die ringförmige Rotverschiebung in der Photolumineszenz unter den Rändern der Aperturen bei allen unseren hergestellten Proben zu beobachten war. Die Ursache liegt in Verspannungen, hervorgerufen durch unterschiedliche Ausdehnungskoeffizienten des GaAs und des Maskenmaterials. Die laterale Breite der verspannungsinduzierten Potentialmulde liegt möglicherweise bei nur 100 nm Ausdehnung. Die Methode der Nanostrukturierung von Isolatorfilmen auf Halbleitern kann zur aktiven Modifikation des Potentials in einem Quantenfilm verwendet werden.

Kapitel 5

Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wird die raumzeitliche Dynamik von optisch angeregten Elektron-Loch-Paaren auf einer 100 nm und 100 fs Skala studiert. Die differentielle Transmissionspektroskopie liefert eine Zeitaufösung begrenzt durch die Dauer der verwendeten Laserimpulse von weniger als 100 fs. Dies ist für die Transportexperimente völlig ausreichend. Die hohe Ortsaufösung ist durch Verwendung von metallischen Nahfeldaperturen realisiert worden. Die Herstellung der Metallmasken auf den GaAs-Proben ist mit Hilfe der Elektronenstrahlolithographie möglich. Die Messungen liefern die zeitliche Entwicklung der Ladungsträgerdichte hinter der Apertur, daraus kann auf den lateralen Transport der Elektronen und Löcher zurückgeschlossen werden. Ein wesentlicher Vorteil der verwendeten experimentellen Methode liegt in der Möglichkeit, mittels verschieden großer Aperturen den Anfangsdurchmesser der Ladungsträgerverteilung sehr definiert zu variieren. Von besonderem Interesse sind Aperturen mit sehr kleinen Durchmessern. Diese Messungen zeigen den Transport auf kleinen räumlichen Skalen oder entsprechend sehr kurzen Zeiten nach dem optischen Anregen der Ladungsträger. Liegen diese Zeiten in der gleichen Größenordnung wie typische Streuzeiten zwischen den Ladungsträgern oder mit Phononen, so sollte sich die gesamte Dynamik des Transports dramatisch verändern. Um sicherzustellen, dass die Ergebnisse keine Artefakte beinhalten, wurde im weiteren Verlauf der Arbeit die Auswirkung der metallischen Aperturen auf die optischen Eigenschaften untersucht. Dabei wurden vor allem zwei wesentliche Aspekte diskutiert: zum einen die Auswirkungen durch den Schottky-Kontakt, zum anderen die Folgen möglicher Verspannungen.

Im ersten Teil der Arbeit wird die Herstellung der Nanoaperturen mittels Elektronenstrahlolithographie vorgestellt. Zunächst werden dazu die Halbleiterproben direkt mit einer Photolackschicht versehen. Ein Rasterelektronenmikroskop ermöglicht das Belichten des Lacks mit sehr hoher räumlicher Auflösung. Das anschließende Entwickeln entfernt die unbelichteten Bereiche, sodass die negative Struktur im Lack zurückbleibt. Im folgenden Prozess werden die Proben in einer Hochvakuumkammer mit Metall bedampft. Der Lift-Off-Prozess, bei dem die Probe in Aceton im Ultraschallbad behandelt wird, entfernt die verbliebene Lackstruktur und damit auch das Metall an diesen Stellen. Das Resultat ist ein nun positives Abbild der geplanten Struktur. Der Prozess liefert präzise und reproduzierbare

Aperturen mit einem sehr guten Aspektverhältnis von 1:1 zwischen Durchmesser und Dicke der Metallschicht. Ein weiterer Vorteil der Methode liegt darin, dass die einzelnen Prozessschritte zeitlich viel weniger kritisch sind als bei einem Ätzprozess. Weicht hier die Ätzdauer nur geringfügig ab, so befindet sich entweder noch Metall innerhalb der Aperturen oder es kommt zu Unterätzungen der Lackmaske. Der Lift-Off-Prozess hat zusätzlich den Vorteil, dass nahezu beliebige Materialien strukturiert werden können, während für das Ätzen immer eine entsprechende Ätzlösung benötigt wird.

Im nächsten Schritt wurde die optische Transmission metallischer Nanoaperturen untersucht. Hier zeigte sich, dass die Intensität des transmittierten Lichts wesentlich größer ist, als die Theorie von Bethe vorhersagt. Bethe löst die Maxwell-Gleichungen für die Geometrie einer Apertur in einer Metallschicht mit unendlich hoher Leitfähigkeit unter Berücksichtigung der Anschlussbedingungen. Die beobachtete Erhöhung der Transmission ist eine Folge von Oberflächenplasmonen. Dieser Effekt erst erlaubt die Messungen an 100 nm-Aperturen in einem 100 nm dicken Aluminiumfilm. In den Experimenten kann davon ausgegangen werden, dass bei einem Fokusdurchmesser von $1.3 \mu\text{m}$ eine Anregung des Halbleiters nur unterhalb der Aperturen erfolgt, da die Transmission durch die Apertur sehr viel größer ist als der Beitrag durch den homogenen Aluminiumfilm.

Die raumzeitliche Ladungsträgerdynamik wurde anhand zweier Grenzfälle diskutiert. Der diffusive Transport ist dominiert von Streuprozessen der Ladungsträger, die sich aus diesem Grund im lokalen thermischen Gleichgewicht befinden oder schnell dorthin relaxieren. Die Diffusionsgleichung kann unter der Annahme einer lokalen Fermi-Verteilung der Ladungsträger aus der Boltzmann-Gleichung abgeleitet werden. Die Lösung der Diffusionsgleichung zeigt für eine anfängliche Gaußverteilung, dass das Quadrat der Halbwertsbreite linear in der Zeit wächst. Die Ladungsträgerdichte im Zentrum zerfällt anfänglich mit einer Zeitkonstanten, die quadratisch mit dem Anfangsdurchmesser skaliert. Im anderen Grenzfall, wenn die Stöße der Ladungsträger vernachlässigt werden können, spricht man vom ballistischen Transport. Die Teilchen bewegen sich geradlinig und mit konstanter Geschwindigkeit. Die typische Abfallzeit der Dichte skaliert jetzt linear mit dem Anfangsdurchmesser. In einem Regime zwischen diffusivem und ballistischem Transport ist eine solche einfache Beschreibung der Dynamik nicht mehr möglich. Der Transport muss mit Hilfe der Boltzmann-Gleichung beschrieben werden, da die energetische Relaxation und die räumliche Dynamik nicht getrennt betrachtet werden können.

Die differentiellen Transmissionsexperimente an den GaAs-Proben mit metallischen Aperturen wurden bei resonanter Anregung und für eine Anregung oberhalb der Bandkante durchgeführt. Die gemessene relative Transmissionsänderung ist in erster Näherung proportional zur Ladungsträgerdichte. Zur Untersuchung des Einflusses der Phononenstreuung auf die Transportdynamik erfolgten Messungen bei einer Temperatur von 20 K und bei 300 K. Die Anregungsdichten betragen ca. 10^{18} cm^{-3} . Es konnte keine wesentliche Abhängigkeit bei einer Variation der Dichte um einen Faktor 20 beobachtet werden. Kleinere Dichten als 10^{17} cm^{-3} sind in dieser Art von Experimenten, wegen der geringen transmittierten Intensität des Abfragestrahls, nicht zugänglich. Die Ergebnisse zeigen für Anfangsdurchmesser

größer $1 \mu\text{m}$ ein Skalieren der anfänglichen Abfallzeit des Signals gemäß den Vorhersagen der Diffusionsgleichung. Die Ergebnisse schließen damit an frühere Messungen der Diffusionskonstanten an. Die Messungen an Aperturen kleiner $1 \mu\text{m}$ zeigen dagegen ein ganz anderes Verhalten. Hier ist ein deutliches Abweichen vom diffusiven Verhalten zu beobachten. Die Diffusionsgleichung liefert für 100 nm -Aperturen Abfallzeiten, die sich um einen Faktor zehn vom Experiment unterscheiden. Das Skalierungsverhalten und die Abhängigkeit von der Anregungsenergie stimmen mit den Vorhersagen des ballistischen Transports überein. Die gemessenen Geschwindigkeiten entsprechen ungefähr den Erwartungen für die Geschwindigkeiten der schweren Löcher aufgrund der Überschussenergie.

Neben der Veränderung des Skalierungsverhaltens ist besonders die Abhängigkeit von der Anregungsenergie bemerkenswert. Die Messungen bei 300 K an größeren Anfangsdurchmessern zeigen keine Abhängigkeit von der Überschussenergie. Bei den kleineren Aperturen zeigt sich hingegen eine starke Abhängigkeit. Die Geschwindigkeit des Transports steigt mit zunehmender Anregungsenergie. Dies lässt darauf schließen, dass die Ladungsträger auf den beobachteten kurzen Zeitskalen noch zumindest einen Teil ihrer hohen Anfangsgeschwindigkeit besitzen. Ein wichtiger Punkt, der zumindest für die Messungen bei 300 K gegen ballistischen Transport spricht, ist die Abnahme der Geschwindigkeit mit höherer Gittertemperatur. Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die Experimente zwar nicht den Nachweis des ballistischen Transports im Halbleiter liefern, dennoch ist mit Sicherheit ein Regime erreicht, in dem die Beschreibung durch die Diffusionsgleichung versagt. Die Dynamik des Transports auf dieser Nanometer-Femtosekunden-Skala weicht deutlich vom Verhalten auf einer größeren Skala ab.

Im weiteren Teil der Arbeit wurde der Einfluss der Aperturen auf die optischen Eigenschaften des Halbleiters untersucht. In den Messungen zur raumzeitlichen Dynamik wurde festgestellt, dass Eigenschaften der GaAs-Volumenproben in Gegenwart der Apertur nicht unverändert bleiben. Photolumineszenzexperimente an Quantenfilmproben mit Metallmasken zeigen dann überraschend eine sehr deutliche Rotverschiebung der Emission unterhalb der Ränder der Aperturen, während der GaAs-Film unterhalb einer homogenen Metallschicht keine Veränderungen aufweist. Es wurden zwei mögliche Erklärungen für diesen ungewöhnlichen Effekt diskutiert. Zum einen die Auswirkungen des Schottky-Kontakts und die damit verbundenen elektrischen Felder im Bereich der Verarmungszone, zum anderen die Auswirkungen von Verspannungen, verursacht durch die unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten in Verbindung mit dem Abkühlen der Probe. Weitere Experimente an GaAs-Filmen mit Masken aus dem Isolator Magnesiumfluorid zeigten den gleichen Effekt, sodass die Potentialabsenkung mit Sicherheit eine Folge der Verspannungen und nicht des Schottky-Kontakts ist. Der langsamere Anstieg und die längere Abfallzeit in der Lumineszenz des rotverschobenen Beitrags sind damit durch Relaxationsprozesse von den energetisch höheren Zuständen in energetisch abgesenkte Zustände aufgrund der Potentialmodifizierung zu erklären. Die Beeinflussung wurde in allen unseren Halbleiterproben mit Aperturen beobachtet. Masken aus Aluminium, Gold und Magnesiumfluorid zeigen diesen Effekt. Räumlich aufgelöste Photolumineszenzmessungen, aufgenommen mit Hilfe eines optischen

Rasternahfeldmikroskops, liefern den verspannungsinduzierten Potentialverlauf unterhalb der Aperturen. Generell kann natürlich eine Beeinflussung durch diese Potentialmodifikation auf die raumzeitliche Dynamik der Ladungsträger nicht ausgeschlossen werden. Die Testexperimente an den Volumen-GaAs-Proben mit homogener Anregung vor verschiedenen Metallaperturen bestätigen jedoch, dass die gemessenen anfänglichen Abfälle in den üblichen Experimenten keine Folge der Beeinflussung durch die Metallmaske sind.

Die durchgeführten Experimente decken sich zwar in vielen Punkten mit den Eigenschaften, die für ballistischen Transport erwartet werden, dennoch sind viele Fragen ungeklärt. Für zukünftige Experimente stellt vor allem die Realisierung einer hohen räumlichen Auflösung eine Herausforderung dar. Das Problem liegt in der räumlich definierten Erzeugung und der späteren Detektion der Ladungsträgerverteilung. Mittels Rasternahfeldmikroskopie kann beispielsweise nur einer der beiden Punkte mit hoher Ortsauflösung realisiert werden. Mit neuen Ideen und Techniken sollte dennoch in Zukunft eine Möglichkeit gefunden werden, die jetzigen experimentellen Probleme zu lösen.

Die Ergebnisse dieser Arbeit zeigen, dass durch Verwendung von Maske eine gezielte Modifizierung der Eigenschaften des Galliumarsenids möglich ist. Nanostrukturierte Isolatorfilme könnten in Zukunft zur Herstellung von Potentiallandschaften in Halbleiterquantenfilmen eingesetzt werden. Die Ergebnisse in dieser Arbeit lassen hoffen, dass eine Modifizierung auf einer 100 nm Skala oder darunter möglich sein sollte. Der Einsatz solcher optischer Nanoelemente wird zur Zeit heftig diskutiert. Die quantenmechanischen Eigenschaften von einzelnen oder gar gekoppelten Elementen sind nicht nur von wissenschaftlichem Interesse, sondern eröffnen auch völlig neue Möglichkeiten in der Anwendung, z. B. in der Quanteninformationsübermittlung und -verarbeitung.

Literaturverzeichnis

- [1] Nanotechnologie-Kompetenzzentren (Netzwerke), <http://www.nanonet.de>, Dr. Gerd Bachmann, VDI-Technologiezentrum, Graf-Recke-Str. 84, 40239 Düsseldorf.
- [2] *High-Tech: Chip-Produktion: 0.13 μ m wird neuer Standard*, Physikalische Blätter **1**, 20 (2001).
- [3] G. Binnig, C. Gerber, and C. Quate, *Atomic force microscope*, Phys. Rev. Lett. **56**(9), 930 (1986).
- [4] *Atomare Auflösung auf einem Isolator mittels Rasterkraftmikroskopie [RTM]*, Physikalische Blätter **5**, 435 (1997).
- [5] E. Abbe, *Beiträge zur Theorie des Mikroskops und der mikroskopischen Wahrnehmung*, Arch. mikroskop. Anatom. **9**, 413 (1873).
- [6] D. W. Pohl, W. Denk, and M. Lanz, *Optical stethoscopy: Image recording with resolution $\lambda/20$* , Appl. Phys. Lett. **44**(7), 651 (1984).
- [7] T. W. Ebbesen, H. J. Lezec, H. F. Ghaemi, T. Thio, and P. A. Wolff, *Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays*, Nature **391**, 667 (1998).
- [8] S. W. J. Kuan, C. W. Frank, Y. H. Y. Lee, T. Eimori, D. Allee, R. F. W. Pease, and R. Browning, *Ultrathin polymethylmethacrylate resist films for microlithography*, J. Vac Sci. Technol. B **7**(6), 1745 (1989).
- [9] W. Chen and H. Ahmed, *Fabrication of sub-10 nm structures by lift-off and by etching electron-beam exposure of poly(methylmethacrylate) resist on solid substrates*, J. Vac Sci. Technol. B **11**(6), 2519 (1993).
- [10] J. S. Greeneich, *Time evolution of development contours in poly(methylmethacrylate) electron resist*, J. Appl. Phys. **45**(12), 5624 (1974).
- [11] Z. Nagy, *Herstellung und Anwendung von Nanometeraperturen in Metallfilmen für die optische Nahfeldspektroskopie*, Universität Karlsruhe, Institut für Angewandte Physik (August 1999).

- [12] C. Adelman, J. Hetzler, G. Scheiber, T. Schimmel, M. Wegener, H. B. Weber, and H. v. Löhneysen, *Experiments on the depolarization near-field scanning optical microscope*, Appl. Phys. Lett. **74**(2), 179 (1999).
- [13] A. Brunner, *Nanometeraperturen auf GaAs: Herstellung und optische Experimente zur raumzeitlichen Dynamik*, Universität Karlsruhe, Institut für Angewandte Physik (März 2000).
- [14] F. Ericson, N. Kristensen, J. Schweitz, and U. Smith, *A transmission electron microscopy study of hillocks in thin aluminium films*, J. Vac Sci. Technol. B **9**(1), 58 (1991).
- [15] M. C. Fong, *Surface adsorption–migration kinetics*, J. Vac Sci. Technol. B **9**(2), 207 (1991).
- [16] U. Smith, N. Kristensen, F. Ericson, and J. Schweitz, *Local stress relaxation phenomena in thin aluminium films*, J. Vac Sci. Technol. A **9**(4), 2527 (1991).
- [17] A. Voigt, *Zur Chemie photolytisch generierter Arylnitrene in Polymermatrizen*, HU Berlin (1998).
- [18] D. F. Kyser, *Spatial resolution limits in electron beam lithography*, J. Vac Sci. Technol. B **1**(4), 1391 (1983).
- [19] R. Newman, *Fine line lithography*, North–Holland publishing company, first ed. (1980).
- [20] S. Hosaka, M. Ichihashi, H. Hayakawa, S. Nishi, and M. Migitaka, *Proximity effect in an EB lithographic system using a field emission (FE) electron gun*, Jpn. J. Appl. Phys. **19**(9), 1797 (1980).
- [21] R. J. Hawryluk, H. I. Smith, A. Soares, and A. M. Hawryluk, *Energy dissipation in thin polymer films by electron beam scattering*, J. Appl. Phys. **46**(6), 2528 (1975).
- [22] K. Murata, E. Nomura, K. Nagami, T. Kato, and H. Nakata, *A three–dimensional study of the absorbed energy density in electron–resist films on substrates*, Jpn. J. Appl. Phys. **17**(10), 1851 (1978).
- [23] T. E. Everhart and P. H. Hoff, *Determination of kilovolt electron energy dissipation vs penetration distance in solid materials*, J. Appl. Phys. **42**(13), 5837 (1971).
- [24] M. Hatzakis, *New method of observing electron penetration profiles in solids*, Appl. Phys. Lett. **18**(1), 7 (1971).
- [25] M. Parikh and D. F. Kyser, *Energy deposition functions in electron resist films on substrates*, J. Appl. Phys. **50**(2), 1104 (1979).

- [26] J. J. LePore, *An improved technique for selective etching of GaAs and Ga_{1-x}Al_xAs*, J. Appl. Phys. **51**(12), 6441 (1980).
- [27] G. Bernatz, S. Nau, R. Rettig, H. Jansch, and W. Stolz, *Experimental investigation of structures of interior interfaces in GaAs*, J. Appl. Phys. **86**(12), 6752 (1999).
- [28] N. Peyghambarian, S. W. Koch, and A. Mysyrowicz, *Introduction to semiconductor optics*, Prentice Hall, first ed. (1993).
- [29] J. R. Chelikowsky and M. L. Cohen, *Nonlocal pseudopotential calculations for the electronic structure of eleven diamond and zinc-blend semiconductors*, Phys. Rev. B **14**, 556 (1976).
- [30] P. Y. Yu and M. Cardona, *Fundamentals of Semiconductors*, Springer, first ed. (1996).
- [31] Landolt-Börnstein, *Band IV/b4*, Springer, 6. Auflage ed. (1985).
- [32] W. Schäfer and M. Wegener, *Semiconductor Optics and Transport*, Springer-Verlag, unveröffentlicht.
- [33] W. Hänsch, *The drift diffusion equation and its applications in MOSFET modeling*, Springer-Verlag Wien New York (1991).
- [34] C. Matthes, *Nichtquasistatisches MOS-Transistormodell*, VDI Verlag GmbH (1999).
- [35] J. Jäckle, *Einführung in die Transporttheorie*, Vieweg Verlag, first ed. (1978).
- [36] H. Haug and A. P. Jauho, *Quantum kinetics in transport and optics of semiconductors*, Springer (1996).
- [37] A. D. Polyanin and V. F. Zaitsev, *Handbuch der linearen Differentialgleichungen*, Spektrum, Akademischer Verlag (1996).
- [38] E. Poles, S. Y. Goldberg, B. Fainberg, and D. Huppert, *Super band-gap time-resolved luminescence study of degenerate electronhole plasma in thin GaAs epilayers*, J. Appl. Phys. **80**(9), 5129 (1996).
- [39] R. Ziebold, T. Witte, M. Hübner, and R. G. Ulbrich, *Direct observation of Fermi-pressure-driven electron-hole plasma expansion in GaAs on a picosecond time scale*, Physics Letters **61**(24), 16610 (2000).
- [40] M. Combescot, *Hydrodynamics of dense plasma created during laser annealing pulses*, Physics Letters **85 A**(5), 308 (1981).
- [41] A. Forchel, H. Schweizer, and G. Mahler, *Optical properties of fast-diffusing solid-state plasmas*, Phys. Rev. Lett. **51**(6), 501 (1983).

- [42] K. M. Romanel, H. Nather, J. Fisher, and E. O. Göbel, *Spatial expansion of the electron–hole plasma in GaAs*, J. of Luminescence **24**, 585 (1981).
- [43] H. Kalt, *Optical properties of III-V semiconductors : the influence of multi-valley band structures*, Springer series in solid state sciences ; 120, first ed. (1996).
- [44] C. F. Klingshirn, *Semiconductor Optics*, Springer Verlag, Berlin; Heidelberg (1995).
- [45] M. Combescot, *Time evolution of the electron–hole plasma nucleation: An analytical approach*, Phys. Rev. B **21**(2), 771 (1980).
- [46] H. M. van Driel, *Kinetics of high-density plasmas generated in Si by 1.06– and 0.53– μm picosecond laser pulses*, Phys. Rev. B **35**(15), 8166 (1987).
- [47] H. Kalt, R. Notzel, K. Ploog, and H. Giessen, *Observation of quantum-confined electron-hole droplets*, Solid State Communications **83**(4), 285 (1992).
- [48] M. Combescot, *On the cloud of electron-hole droplet*, Phys. Rev. B **12**(4), 1591 (1975).
- [49] M. Voos, L. K. Shaklee, and J. M. Worlock, *Measurement of the spatial distribution of electron-hole drops in Ge*, Phys. Rev. Lett. **33**(19), 1161 (1974).
- [50] H. Hillmer, S. Hansmann, A. Forchel, M. Morohashi, E. Lopez, H. P. Meier, and K. Ploog, *Two-dimensional exciton transport in GaAs/GaAlAs quantum wells*, Appl. Phys. Lett. **53**(20), 1937 (1988).
- [51] H. Hillmer, A. Forchel, T. Kuhn, G. Mahler, and H. P. Meier, *Optical investigations on the mobility of two-dimensional excitons in GaAs/Al_{1-x}Ga_xAs quantum wells*, Phys. Rev. B **39**(15), 10901 (1989).
- [52] A. Richter, M. Süptitz, D. Heinrich, C. Lienau, T. Elsaesser, M. Ramsteiner, R. Nötzel, and K. H. Ploog, *Exciton transport into a single GaAs quantum wire studied by picosecond near-field optical spectroscopy*, Appl. Phys. Lett. **73**(15), 2176 (1998).
- [53] A. Richter, G. Behme, M. Süptitz, C. Lienau, T. Elsaesser, M. Ramsteiner, R. Nötzel, and K. H. Ploog, *Real-Space Transfer and Trapping of Carriers into Single GaAs Quantum Wires Studied by Near-Field Optical Spectroscopy*, Phys. Rev. Lett. **79**(11), 2145 (1997).
- [54] S. Smith, N. C. R. Holme, B. Orr, R. Kopelman, and T. Norris, *Ultrafast measurement in GaAs thin films using NSOM*, Ultramicroscopy **71**, 213 (1998).
- [55] A. C. Schaefer, J. Erland, and D. G. Steel, *Nondiffusive excitonic transport in GaAs and the effects of momentum scattering*, Phys. Rev. B **54**(16), R11046 (1996).

- [56] M. Vollmer, H. Giessen-H, W. Stolz, W. W. Ruhle, L. Ghislain, and V. Elings, *Ultrafast nonlinear subwavelength solid immersion spectroscopy at $T=8$ K*, Appl. Phys. Lett. **74**(13), 1791 (1999).
- [57] S. Grosse, R. Arnold, G. von Plessen, M. Koch, J. Feldmann, V. M. Axt, t. Kuhn, R. Rettig, and W. Stolz, *Relaxation dynamics of electron-hole pairs studied by spatiotemporal pump and probe experiments*, Phys. stat. sol. (b) **204**, 147 (1997).
- [58] H. W. Yoon, D. R. Wake, J. P. Wolfe, and H. Morkoc, *In-plane transport of photoexcited carriers in GaAs quantum wells*, Phys. Rev. B **46**(20), 13461 (1992).
- [59] H. A. Zarem, P. Sercel, J. A. Lebens, L. E. Eng, A. Yariv, and K. J. Vahala, *Direct determination of the ambipolar diffusion length in GaAs/AlGaAs heterostructures by cathodoluminescence*, Appl. Phys. Lett. **55**(16), 1647 (1989).
- [60] B. A. Nechay, U. Siegner, F. Morier-Genoud, A. Schertel, and U. Keller, *Femtosecond near-field optical spectroscopy of implantation patterned semiconductors*, Appl. Phys. Lett. **74**(1), 661 (1999).
- [61] M. Achermann, B. A. Nechay, F. Morier-Genoud, A. Schertel, U. Siegner, and U. Keller, *Direct experimental observation of different diffusive transport regimes in semiconductor nanostructures*, Phys. Rev. B **60**(3), 2101 (1999).
- [62] H. Hillmer, A. Forchel, T. Kuhn, G. Mahler, and H. P. Meier, *Optical studies of vertical ambipolar transport and interface recombination velocities in GaAs/Al_{0,5}Ga_{0,5}As double-quantum-well heterostructures*, Phys. Rev. B **43**(17), 13992 (1991).
- [63] F. Steininger, A. Knorr, T. Stroucken, P. Thomas, and S. W. Koch, *Dynamic evolution of spatiotemporally localized electronic wave packets in semiconductor quantum wells*, Phys. Rev. Lett. **77**(3), 550 (1996).
- [64] F. Steininger, A. Knorr, P. Thomas, and S. W. Koch, *The influence of electron-phonon scattering on the spatio-temporal dynamics of electronic wavepackets in semiconductor quantum wells*, Zeitschrift für Physik B **103**, 45 (1997).
- [65] A. Knorr, F. Steininger, B. Hanewinkel, S. Kuckenburg, P. Thomas, and S. W. Koch, *Theory of ultrafast spatio-temporal dynamics in semiconductor quantum wells: Electronic Wavepackets and near-field optics*, Phys. stat. sol. (b) **206**, 139 (1998).
- [66] B. Hanewinkel, A. Knorr, P. Thomas, and S. W. Koch, *Near-field dynamics of excitonic wave packets in semiconductor quantum wells*, Phys. Rev. B **60**(12), 8975 (1999).
- [67] H. A. Bethe, *Theory of diffraction by small holes*, Physical Review **66**(7), 163 (1944).
- [68] B. Hanewinkel, A. Knorr, P. Thomas, and S. Koch, *Optical near-field response of semiconductor quantum dots*, Phys. Rev. B **55**(20), 13715 (1997).

- [69] G. v. Freymann, *Simulationen zur optischen Rasternahfeldmikroskopie*, Universität Karlsruhe, Institut für Angewandte Physik (Dezember 1997).
- [70] H. Raether, *Surface plasmons on smooth and rough surfaces and on gratings*, Springer (1988).
- [71] F. Forstmann and R. R. Gerhardt, *Metal optics near the plasma frequency*, Springer Verlag, first ed. (1987).
- [72] D. Heitmann, N. Kroo, C. Schulz, and Z. Szentirmay, *Dispersion anomalies of surface plasmons on corrugated metal-insulator interfaces*, Phys. Rev. B **58**(23), 15419 (1998).
- [73] H. F. Ghaemi, T. Thio, D. E. Grupp, T. W. Ebbesen, and H. J. Lezec, *Surface plasmons enhanced optical transmission through subwavelength holes*, Phys. Rev. B **58**(11), 6779 (1998).
- [74] W. W. Gibbs, *Holey Magic*, scientific american p. 24 (1999).
- [75] U. Schröter and D. Heitmann, *Surface-plasmon-enhanced transmission through metallic gratings*, Phys. Rev. B **58**(23), 15419 (1998).
- [76] L. Martín-Moreno, F. J. García-Vidal, H. J. Lezec, K. M. Pellerin, T. Thio, J. B. Pendry, and T. W. Ebbesen, *Theory of Extraordinary Optical Transmission through Subwavelength Hole Arrays*, Phys. Rev. Lett. **86**(6), 1114 (2001).
- [77] D. Heitmann, *Viel Licht durch kleine Löcher*, Physikalische Blätter **57**(5), 19 (2001).
- [78] L. Salomon, F. Grillot, A. V. Zayats, and F. de Fornel, *Near-field distribution of optical transmission of periodic subwavelength holes in a metal film*, Phys. Rev. Lett. **86**(6), 1110 (2001).
- [79] B. Hecht, H. Bielefeldt, L. Novotny, Y. Inouye, and D. W. Pohl, *Local Excitation, Scattering, and Interference of Surface Plasmons*, Phys. Rev. Lett. **77**(9), 1889 (1996).
- [80] C. Sönnichsen, A. C. Duch, G. Steininger, M. Koch, G. von Plessen, and J. Feldmann, *Launching surface plasmons into nanoholes in metal films*, Appl. Phys. Lett. **76**(2), 140 (2000).
- [81] T. J. Kim, T. Thio, T. W. Ebbesen, D. E. Grupp, and H. J. Lezec, *Control of optical transmission through metals perforated with subwavelength hole arrays*, Opt. Lett. **24**(4), 256 (1999).
- [82] H. F. Hess, E. Betzig, T. D. Harris, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, *Near-Field Spectroscopy of the quantum constituents of a luminescent system*, science **264**, 1740 (1994).

- [83] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer, and D. Park, *Fine structure splitting in the optical spectra of single GaAs Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **76**(16), 3005 (1996).
- [84] D. Gammon, E. S. Snow, and D. S. Katzer, *Naturally formed GaAs dots*, Surface Science **361**(362), 814 (1995).
- [85] D. Gammon, E. S. Snow, and D. S. Katzer, *Excited state spectroscopy of excitons in single quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **67**(16), 2391 (1995).
- [86] N. H. Bonadeo, G. Chen, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, and D. G. Steel, *Nonlinear nano-optics: Probing one exciton at a time*, Phys. Rev. Lett. **81**(13), 2759 (1998).
- [87] R. J. Warburton, C. Schäfflein, D. Haft, F. Bickel, A. Lorke, K. Karral, J. M. Garcla, W. Schoenfeld, and P. M. Petroff, *Optical emission from a charge-tunable quantum ring*, Nature **405**, 926 (2000).
- [88] F. Findeis, A. Zrenner, G. Böhm, and G. Abstreiter, *Phonon-assisted biexciton generation in a single quantum dot*, Phys. Rev. B **61**(16), R10579 (2000).
- [89] F. Findeis, A. Zrenner, G. Böhm, and G. Abstreiter, *Optical spectroscopy on a single InGaAs/GaAs quantum dot in the few-exciton limit*, Solid State Communications **114**, 227 (2000).
- [90] A. Zrenner, M. Markmann, A. Paassen, A. L. Efros, M. Bichler, W. Wegscheider, G. Böhm, and G. Abstreiter, *Spatially resolved magneto-optics on confined systems*, Physica B **256**, 300 (1998).
- [91] D. Hessman, P. Castrillo, M. E. Pistol, C. Pryor, and L. Samuelson, *Excited states of individual quantum dots studied by photoluminescence spectroscopy*, Appl. Phys. Lett. **69**(6), 749 (1996).
- [92] L. M. Robinson, H. Rho, H. E. Jackson, L. M. Smith, S. Lee, M. Dobrowolska, and J. K. Furdyna, *Quantum dot exciton dynamics through a nanoaperture: evidence for two confined states*, Phys. Rev. Lett. **83**(14), 2729 (1999).
- [93] H. Yu, H. Htoon, A. deLozanne, C. K. Shih, P. A. Grudowski, R. D. Dupuis, K. Zeng, R. Mair, J. Y. Lin, and H. X. Jiang, *Dynamics of localized excitons in InGaN/GaN quantum wells*, J. Vac. Sci. Technol. B **16**(4), 2215 (1998).
- [94] Z. Bor, *Distortion of femtosecond laser pulses in lenses*, Opt. Lett. **14**(2), 119 (1989).
- [95] J. Hetzler, A. Brunner, M. Wegener, S. Leu, S. Nau, and W. Stolz, *100 fs carrier dynamics in GaAs under 100 nm diameter apertures*, Phys. stat. sol. (b) **221**(1), 425 (2000).

- [96] J. Hetzler, A. Brunner, M. Wegener, S. Leu, S. Nau, and W. Stolz, *Deviations from Diffusive Transport in 100 nm – 100 fs Spatio-Temporal Pump-Probe Experiments on GaAs*, Proc. 25 th Int. Conf. Phys. Semicond., Osaka, Springer Proceedings in Physics **87**, 190 (2000).
- [97] E. H. E. Boudouti, B. DjafariRouhani, and A. Akjouj, *Resonant guided elastic waves in an adsorbed bilayer: Theoretical analysis of the density of states*, Phys. Rev. B **55**(7), 4442 (1997).
- [98] A. F. G. Monte, S. W. da Silva, J. M. R. Cruz, P. C. Morais, and A. S. Chaves, *Phonon-wind-based transport in InGaAs-InP quantum well under intense optical excitation*, Phys. Rev. B **62**(11), 6924 (2000).
- [99] D. W. Snoke, J. P. Wolfe, and A. Mysyrowicz, *Evidence for Bose-Einstein condensation of excitons in Cu₂O*, Phys. Rev. B **41**(16), 11171 (1990).
- [100] S. G. Tikhodeev, G. A. Kopelevich, and N. A. Gippius, *Exciton transport in Cu₂O: phonon wind versus superfluidity*, Phys. stat. sol. (b) **206**(1), 45 (1998).
- [101] L. L. Chang and A. Koma, *Interdiffusion between GaAs and AlAs*, Appl. Phys. Lett. **29**(3), 138 (1976).
- [102] B. L. Olmsted and S. N. Houde-Walter, *Al–Ga interdiffusion through group III–vacancy second nearest–neighbor hopping*, Appl. Phys. Lett. **63**(4), 530 (1993).
- [103] H. Ono and N. Ikarashi, *Al diffusion into GaAs from monoatomic AlAs layers investigated by localized vibrational modes*, Appl. Phys. Lett. **66**(5), 601 (1995).
- [104] S. M. Sze, *Semiconductor devices physics and technology*, John Wiley and Sons (1985).
- [105] T. J. Drummond, *Schottky barriers on GaAs: Screened pinning at defect levels*, Phys. Rev. B **59**(12), 8182 (1998).
- [106] D. Shoji, M. Shinohara, T. Miura, and M. Niwano, *Effects of surface chemical treatment on the formation of metal GaAs interfaces*, J. Vac Sci. Technol. B **17**(2), 363 (1999).
- [107] A. M. Cowley and S. M. Sze, *Surface States and barrier height of metal–semiconductor systems*, J. of Appl. Phys. **36**(10), 3212 (1965).
- [108] G. Myburg, F. D. Auret, W. E. Meyer, and C. L. M. van Staden, *Summary of Schottky barrier height data on epitaxially grown n- and p-GaAs*, Thin Solid Films **325**, 181 (1998).
- [109] C. Berthod, J. Bardi, N. Binggeli, and A. Baldereschi, *Schottky barrier tuning at Al/GaAs(100) junctions*, J. Vac Sci. Technol. B **14**(4), 3000 (1996).

- [110] M. van Schilfgaarde and N. Newman, *Electronic structure of ideal metal/GaAs contacts*, Phys. Rev. Lett. **65**(21), 2728 (1990).
- [111] N. Newman, M. van Schilfgaarde, T. Kendelwicz, M. D. Williams, and W. E. Spicer, *Electrical study of Schottky barrier on atomically clean GaAs(100) surfaces*, Phys. Rev. B **33**(2), 1146 (1986).
- [112] H. Haug and S. W. Koch, *Quantum theory of the optical and electronic properties of semiconductors*, World Scientific, Singapore, third ed. (1994).
- [113] A. Thilagam, *Stark shifts of excitonic complexes in quantum wells*, Phys. Rev. B **56**(8), 4665 (1997).
- [114] L. Schultheis and K. Köhler, *Energy shift and line broadening of three-dimensional excitons in electric fields*, Phys. Rev. B **36**(12), 6609 (1987).
- [115] L. Schultheis and C. W. Tu, *Influence of a surface electric field on the line shape of the excitonic emission in GaAs*, Phys. Rev. B **32**(10), 6978 (1985).
- [116] D. A. B. Miller, D. S. Chemla, T. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, T. H. Wood, and C. A. Burrus, *Band-Edge Electroabsorption in Quantum Well Structures: The Quantum-Confined Stark Effect*, Phys. Rev. Lett. **53**(22), 2173 (1984).
- [117] D. A. B. Miller, D. S. Chemla, T. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, T. H. Wood, and C. A. Burrus, *Electric field dependence of optical absorption near the band gap of quantum-well structures*, Phys. Rev. B **32**(2), 1043 (1985).
- [118] D. A. B. Miller, D. S. Chemla, and S. Schmitt-Rink, *Relation between electroabsorption in bulk semiconductors and in quantum wells: The quantum-confined Franz-Keldysh effect*, Phys. Rev. B **33**(10), 6976 (1986).
- [119] H. J. Polland, L. Schultheis, J. Kuhl, E. O. Göbel, and C. W. Tu, *Lifetime enhancement of two-dimensional excitons by the quantum-confined Stark effect*, Phys. Rev. Lett. **55**(23), 2610 (1985).
- [120] K. Köhler, H. Polland, L. Schultheis, and C. W. Tu, *Photoluminescence of two-dimensional excitons in an electric field: Lifetime enhancement and field ionization in GaAs quantum wells*, Phys. Rev. B **38**(8), 5496 (1988).
- [121] H. Weman, E. Martinet, M.-A. Dupertuis, A. Rudra, K. Leifer, and E. Kapon, *Two-dimensional quantum-confined Stark effect in V-groove quantum wires: Excited state spectroscopy and theory*, Appl. Phys. Lett. **74**(16), 2334 (1999).
- [122] T. Arakawa, Y. Kato, F. Sogawa, and Y. Arakawa, *Photoluminescence studies of GaAs quantum wires with quantum confined Stark effect*, Appl. Phys. Lett. **70**(5), 646 (1997).

- [123] J. Shah, *Ultrafast spectroscopy of semiconductors and semiconductor nanostructures*, Springer (1996).
- [124] G. L. Bir and G. E. Pikus, *Symmetry and strain-induced effects in semiconductors*, John Wiley and Sons, first ed. (1974).
- [125] G. E. Pikus and G. L. Bir, *Effect of deformation on the energy spectrum and the electrical properties of imperfect germanium and silicon*, Sov. Phys. Solid State **1**, 136 (1959).
- [126] H. Asai and K. Oe, *Energy band-gap shift with elastic strain in $Ga_xIn_{1-x}P$ epitaxial layers on (100) GaAs substrates*, J. Appl. Phys. **54**(4), 2052 (1983).
- [127] Landolt-Börnstein, *Physics of group IV elements and III-V compounds, New Series, Group III*, Springer, volume 17 ed. (1982).
- [128] K. S. Kim, G. M. Yang, H. W. Shim, K. Y. Lim, E.-K. Suh, and H. J. Lee, *Photoluminescence characterization of biaxial tensile strained GaAs*, J. Appl. Phys. **82**(10), 5103 (1997).
- [129] Y.-H. Yeh and J. Y. min Lee, *The calculation and the photoluminescence characterization of energy levels in a strained GaAs/In_{0.2}Ga_{0.8}As/GaAs quantum well heterostructure for the application of light-emitting real-space transfer devices*, J. Appl. Phys. **81**(10), 6921 (1997).
- [130] G. Fishman, *Hole subbands in strained quantum-well semiconductors in [hhk] directions*, Phys. Rev. B **52**(15), 11132 (1995).
- [131] M. J. Joyce and J. M. Dell, *Strain effects in chemically lifted GaAs thin films*, Phys. Rev. B **14**(11), 7749 (1990).
- [132] H. Lipsanen, M. Sopanen, and J. Ahopelto, *Luminescence from excited states in strain-induced $In_xGa_{1-x}As$ quantum dots*, Phys. Rev. B **51**(19), 13898 (1995).
- [133] J. Tulkki and A. Heinämäki, *Confinement effect in a quantum well dot induced by an InP stressor*, Phys. Rev. B **52**(11), 8239 (1995).
- [134] T. Wang and A. Forchel, *Experimental and theoretical study of strain-induced Al-GaAs/GaAs quantum dots using a self-organized GaSb island as a stressor*, J. Appl. Phys. **86**(4), 2001 (1999).
- [135] I.-H. Tan, M. Y. He, J. C. Yi, E. Hu, N. Dagli, and A. Evans, *Theoretical study of subband transitions in strain-induced quantum well wires*, J. Appl. Phys. **71**(2), 546 (1992).

- [136] I.-H. Tan, R. Mirina, V. Jayaraman, S. Shi, E. Hu, and J. Bowers, *Photoluminescence study of strain-induced quantum well dots by wet-etching technique*, Appl. Phys. Lett. **61**(3), 300 (1992).
- [137] C. Rabenstein, *Entwicklung eines optischen Nahfeldmikroskops*, Universität Karlsruhe, Institut für Angewandte Physik (Dezember 1999).
- [138] M. Mikolaiczuk, *Präparation und Einsatz von nahfeldoptischen Sonden in der Tieftemperatur-Raster-Nahfeld-Mikroskopie*, Universität Karlsruhe, Institut für Angewandte Physik (Januar 2000).

Danksagung

An dieser Stelle bleibt mir die angenehme Aufgabe, all denen herzlich zu danken, die mich auf dem Weg zur Promotion unterstützt haben.

Mein erster Dank gilt Herrn Prof. Dr. Martin Wegener für die herausfordernde Themenstellung und die erstklassigen Arbeitsbedingungen. Seine engagierte Betreuung und Diskussionsbereitschaft hat sehr zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen.

Sven Wachter und Herrn Prof. Dr. Heinz Kalt danke ich für das Interesse an meiner Arbeit und die hilfreichen zeitaufgelösten Experimente zur Untersuchung der Eigenschaften der Aperturen. Herrn Prof. Dr. Heinz Kalt gilt besonderen Dank für die Übernahme des Zweitgutachtens.

Vielen Dank an Heiko B. Weber und Herrn Prof. Dr. H. v. Löhneysen für die hilfsbereite Einführung in die Elektronenstrahlolithographie und das Mitbenutzen von Geräten des Physikalischen Instituts. Ohne diese Hilfe bei den ersten Gehversuchen in der Welt der Nanostrukturierung wären wir bestimmt öfter gestolpert. Herrn Peter Pfundstein und Frau Prof. Dr. D. Gerthsen danke ich für die Durchführung der Elektronenstrahlbelichtung.

Herrn Prof. Dr. Th. Schimmel danke ich für die anregenden Diskussionen in unserer SNOM-Sitzung und für die rasterkraftmikroskopische Charakterisierung der Aperturen.

Herrn Siegfried Nau, Frau Simone Leu und Herrn Dr. W. Stolz aus Marburg sowie Frau Prof. Dr. G. Khitrova und Herrn Prof. Dr. H. M. Gibbs aus Tucson danke ich für die Herstellung der verwendeten GaAs-Proben.

Dieter Steinbach hat mit seiner Lebensfreude und mit seinem Humor nicht nur mir den Alltag versüßt. Die Zusammenarbeit mit Markus Wehner während meine Diplomarbeit war die denkbar beste Vorbereitung für die Promotion.

Die Arbeit mit Zoltan Nagy hat mir besonderen Spaß gemacht. Er beherrschte die Kunst der Nanostrukturierung in allen Details und verblüffte mich immer wieder mit seinen hervorragenden Proben. Alexander Brunner durfte ich in die Elektronenstrahlolithographie und Halbleiteroptik einführen und hoffentlich auch begeistern.

Werner Hügel, der mit mir vor $4\frac{1}{2}$ Jahren als Diplomand in der Arbeitsgruppe begonnen hatte, danke ich für seine unkomplizierte Art. Er hatte für jedes praktische Problem immer eine Blitzlösung parat und verblüffte uns des öfteren mit seiner hervorragenden Kenntnis des süddeutschen Dialekts.

Georg v. Freymann und seinem Keksdosen-SNOM danke ich nicht nur für die schönen Bilder der leuchtenden Ringe, sondern vor allem für seine Diskussionsbereitschaft. Außerdem erinnere ich mich sehr gern an unsere Aufenthalte in Osaka und Baltimore. Seiner extrem schnellen Gangart verdanke ich es, selbst in kürzester Zeit alle Sehenswürdigkeiten abgegrast zu haben.

Oliver D. Mücke verblüffte uns alle ständig mit seinem Detailwissen über wissenschaftliche Arbeiten und Personen, von denen man zuvor nicht einmal gehört hatte. Ich danke Ihm für seine kameradschaftliche Art und seinen Humor, auch wenn ich diesen zugegebenermaßen nicht immer verstanden habe.

Unserem Altersteilzeitler Günther Scheiber danke ich für die Unterstützung beim Kampf gegen Firmen, die Ultrahochvakuumkomponenten mit Millimeter großer Spaltöffnung ausliefern.

Unserem Nachwuchsdoktoranden Ulrich Neuberth danke ich für die schnelle Fertigstellung der Auswertesoftware und wünsche Ihm viel Erfolg bei seiner Promotion. Dem Rest der Arbeitsgruppe, Markus Deubel, Christian Enkrich, Nicolas Ruchaud und Thorsten Tritschler, unserem Post-Doktoranden Juri Miklaev und unseren Technikern Thorsten Kuhn und Lars Walter wünsche ich einfach weiterhin viel Spaß beim Forschen. Besonderen Dank auch an Wolfgang Seitz und Marcus Mikolaiczky, die Ihre Karriere lieber außerhalb der Angewandten Physik pflegen, aber trotzdem gute Freunde geblieben sind. Die hervorragende Atmosphäre in der Gruppe werde ich mit Sicherheit in Zukunft vermissen.

Bedanken möchte ich mich auch bei den Mitarbeiter der elektronischen und mechanischen Werkstatt, des Sekretariats und der Schreinerei sowie allen anderen Angehörigen des Instituts, die auf ihre Weise zu dieser Arbeit beigetragen haben.

Bei meinem Wegbegleiter seit Beginn des Studiums, Markus Göppert, bedanke ich mich recht herzlich für die vielen gemeinsamen Unternehmungen und Diskussionen.

Besonderen Dank gilt meiner Familie, die mich in all den Jahren immer unterstützt hat, und vor allem meiner Freundin Bernadette, die es immer verstanden hat, mich auf andere Gedanken zu bringen und somit die Dinge aus einem neuen Blickwinkel zu sehen.

