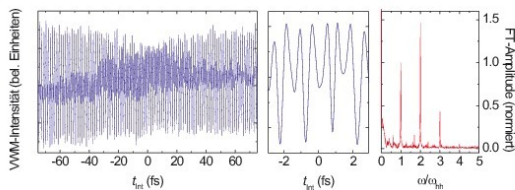




Hans Georg Breunig (Autor)
**Einfluss optischer Nichtlinearitäten auf die
kohärente Kontrolle von exzitonischen Anregungen
in ZnSe-Quantentrögen**

Hans Georg Breunig

**Einfluss optischer Nichtlinearitäten
auf die kohärente Kontrolle von exzitonischen
Anregungen in ZnSe-Quantentrögen**



Cuvillier Verlag Göttingen

<https://cuvillier.de/de/shop/publications/3158>

Copyright:
Cuvillier Verlag, Inhaberin Annette Jentsch-Cuvillier, Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen,
Germany
Telefon: +49 (0)551 54724-0, E-Mail: info@cuvillier.de, Website: <https://cuvillier.de>

1 Einleitung

Die Untersuchung der kohärenten Dynamik in Halbleitern bietet die Möglichkeit fundamentale quantenmechanische Prozesse in Festkörpern zu studieren. Um Prozesse dieser Art nicht nur experimentell zu beobachten, sondern darüber hinaus gezielt manipulieren zu können bedarf es der Kontrolle über Amplitude und Phase der quantenmechanischen Wellenfunktion. Die Methodik dieser kohärenten Kontrolle beruht darauf, dass eine optisch induzierte Anregung während des sogenannten kohärenten Zeitregimes die Phase des anregenden Lichtfeldes beibehält. Solange diese Phaseninformation erhalten bleibt, kann ein zweiter Laserpuls, mit der vom ersten Puls induzierten Anregung wechselwirken. Auf diese Weise ist es möglich optische Anregungen um Größenordnungen schneller zu verstärken oder auszulöschen als dies durch Relaxationsprozesse geschehen würde.

Die Technik der optischen kohärenten Kontrolle von Anregungen findet bereits in ganz unterschiedlichen Bereichen wie physikalische Chemie, Atom-, Molekül- [1–5] und Halbleiterphysik Anwendung. In Halbleitern spielt der exzitonischen Zustand – eine elementare Kristallanregung, welche die optischen Eigenschaften von Halbleitern in der Nähe der Bandkante maßgeblich bestimmt [6] – eine herausragende Rolle. Mit der Entwicklung von Lasersystemen, die Pulse mit Pulsdauern im Femtosekundenbereich und damit weit unterhalb der Dephasierungszeit von Exzitonen erzeugen [7], ist die Voraussetzung dafür geschaffen worden, quantenmechanische Zustände in Halbleitern aktiv zu kontrollieren und gezielt einzustellen. Bereits bei den ersten Untersuchungen zur kohärenten Kontrolle der Besetzung von exzitonischen Zuständen [8] und von Spinzuständen [9] war dabei die Frage nach der Anwendbarkeit der Methode für rein optische Schalter von Interesse.

Die ersten grundlegenden Experimente zur kohärenten Kontrolle von Anregungen in Halbleitern [8–11], insbesondere der exzitonischen Polarisierung, waren hauptsächlich an der Demonstration der grundlegenden Effekte interessiert, weniger an dem für diese Experimente als störend empfundenen Einfluss von Korrelationseffekten [12]. In optisch angeregten Halbleitern sind jedoch die durch die Anregungen induzierten Ladungsträger durch die Coulomb-Wechselwirkung miteinander korreliert [13–15]. Eine vollständige mikroskopische Beschreibung solcher Vielteilchensysteme ist nicht möglich. Näherungsweise kann so ein System mit dem Modell eines mittleren Hintergrundfeldes, das auf jeden Ladungsträger gleichermaßen wirkt, beschrieben werden. Jedoch spielen Coulomb-Korrelationen zwischen wenigen angeregten Ladungsträgern für die Antwort auf optische Anregungen eine entscheidende Rolle, die durch ein mittleres Hintergrundfeld nicht berücksichtigt werden kann [16]. So wechselwirken Exzitonen untereinander und können gebundene Zustände (Biexzitonen)

bilden. Vor diesem Hintergrund erhebt sich die Frage, wie die Korrelationseffekte auf die kohärente Kontrolle der Anregungen wirken und ob darüber hinaus diese selbst Gegenstand der Kontrolle sein können. Die Problematik der Wirkung der Korrelationseffekte wird noch dadurch verstärkt, dass die Experimente im allgemeinen bei möglichst geringen Anregungsleistungen durchgeführt werden, um optische Nichtlinearitäten zu minimieren. Unter diesen Bedingungen kann sich jedoch, da nicht genügend viele Streuprozesse stattfinden können, kein mittleres Feld aufbauen, wodurch der relative Einfluss der Coulomb-Korrelationen noch verstärkt wird [16].

Die Auswirkungen von Korrelationseffekten auf die kohärente Kontrolle von Anregungen in Halbleitern wurde bisher bei experimentellen Arbeiten kaum beachtet. Diese Auswirkungen zu untersuchen steht im Mittelpunkt der vorliegenden Arbeit, wobei die kohärente Kontrolle der exzitonischen Polarisation und die Rolle, die in diesem Zusammenhang die Korrelationen spielen, im Vordergrund stehen.

Es ist bei experimentellen Untersuchungen in dieser Richtung vorteilhaft, Materialien mit besonders ausgeprägten Resonanzen zu verwenden. Hier bieten sich Halbleiter-Nanostrukturen an, die mit großer Genauigkeit und höchster Reinheit hergestellt werden können. In diesen als Quantentrögen bezeichneten Strukturen werden exzitonische Effekte durch die laterale Eingrenzung der Elektron- und Lochwellenfunktionen verstärkt [17]. Um für die Untersuchungen ein möglichst einfaches Modellsystem zu haben, wurden für die vorliegende Arbeit qualitativ hochwertige Halbleiterquantentröge aus dem Verbindungshalbleiter ZnSe eingesetzt. Dieser Halbleiter ist wegen seiner direkten Bandlücke, seiner vergleichsweise hohen Exzitonbindungsenergie und der großen Oszillatorstärke der entsprechenden Resonanz für die Versuche besonders geeignet.

Für die Untersuchungen der kohärenten Dynamik werden Pump-Abfrage- und Wellen-Misch-Experimente benutzt und mit der Technik der kohärenten Kontrolle kombiniert. Die Pump-Abfrage-Spektroskopie [18] wird verwendet, um das dynamische Verhalten der exzitonischen Polarisation zu untersuchen. Dieses Verfahren eignet sich insbesondere zum Abfragen einer inkohärenten Exzitonendichte, die aus der Kontrolle der Polarisation im kohärenten Zeitregime entstanden ist. In Wellen-Misch-Experimenten [18] wird in der ersten und zweiten Beugungsordnung ein Signal untersucht, das als unmittelbare Folge der in der Probe angeregten kohärenten Polarisation entsteht. Da die Wellen-Misch-Signale zum einen direkt mit der kohärenten Polarisation verknüpft sind und zum anderen in eine hintergrundfreie Richtungen emittiert werden, sind sie besonders geeignet den Beitrag von Nichtlinearitäten auf den Signalverlauf zu untersuchen. Durch umfangreiche systematische Messungen mit verschiedenen Anregungsintensitäten und verschiedenen Polarisationszuständen gelingt es insbesondere den Beitrag bestimmter Korrelationen, wie der biexzitonischen Polarisation, deren Erzeugung Spinauswahlregeln unterliegt, zu identifizieren. In diesem Zusammenhang wird auch die separate kohärente Kontrolle der exzitonischen und biexzitonischen Polarisation demonstriert. Wichtige Hinweise auf den spezifischen Einfluss einzelner Korrelationen ergeben sich durch den Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit mikroskopischen Rechnungen auf verschiedenen Verfeinerungsstufen, die auf der Me-

thode des dynamisch kontrollierten Abbruchs der Gleichungshierarchien (engl. Dynamics-controlled truncation, DCT) [19, 20] basieren. Diese Rechnungen wurden von V. M. Axt durchgeführt.

Darüber hinaus wird der Einfluss der biexzitonischen Polarisation auf den Polarisationswinkel des zeitlich integrierten Vier-Wellen-Misch-Signals zweier linear polarisierter Anregungspulse studiert. Die Ergebnisse werden mit theoretischen Rechnungen, die auf phänomenologisch erweiterten Blochgleichungen für das Exziton-Biexziton-System beruhen, verglichen. Durch die Kombination der experimentellen und theoretischen Untersuchungen gelingt es den unterschiedliche Einfluss von Beiträgen dritter und höherer Ordnung im elektrischen Feld auf das Signal zu bestimmen.

2 Theoretische Grundlagen

2.1 Optische Eigenschaften von Halbleitern

Dieses Kapitel gibt einen Überblick über die theoretische Beschreibung der Wechselwirkungen zwischen elektromagnetischer Strahlung und einem Halbleitersystem, soweit diese zur Interpretation der experimentellen Ergebnisse notwendig ist. Dabei wird besonderer Wert auf die Beschreibung der Vorgänge im kohärenten Regime gelegt. Der Begriff des kohärenten Regimes bezieht sich auf das Zeitregime während und unmittelbar nach einer optischen Anregung durch einen ultrakurzen Laserpuls, in dem die optischen Anregungen eine feste Phasenbeziehung untereinander und in Bezug auf das anregende Lichtfeld haben.

Eine vollständige quantenmechanische Beschreibung der Wechselwirkung zwischen elektromagnetischer Strahlung und dem Halbleiter ist aufgrund der Natur des Vielteilchenproblems nicht möglich. Die Beschreibung kann nur durch geeignete Näherungen gelingen. Ein erster Schritt das Problem zu vereinfachen, besteht in einer halbklassischen Beschreibung, in der das anregende optische Feld klassisch und das Ladungsträgersystem quantenmechanisch behandelt wird. Die klassische Beschreibung des Lichtfeldes ist unter der Voraussetzung, dass der Laserpuls eine große Anzahl von Photonen enthält, gerechtfertigt. In dieser semiklassischen Beschreibung koppelt das äußere Feld durch die Dipolwechselwirkung an das System. Die optische Anregung führt im kohärenten Regime zur Bildung einer makroskopischen Polarisation P . Diese wirkt in den Maxwellgleichungen als Quellterm und beschreibt die lineare und nichtlineare optische Antwort des Systems. Es gilt:

$$P = \chi(E)E \quad (2.1)$$

Der Suszeptibilitätstensor χ ist selbst eine Funktion der Feldstärke E . Er beschreibt die Materialeigenschaften und ist mit dem Brechungsindex und dem Absorptionskoeffizienten verknüpft [21]. Ziel einer theoretischen Beschreibung ist die Bestimmung von P beziehungsweise $\chi(E)$.

In atomaren Systemen lässt sich die Wechselwirkung zwischen einem zeitlich veränderlichen Lichtfeld und einem optischen Übergang durch die optischen Blochgleichungen beschreiben. Dabei ist es, insbesondere bei resonanter Anregung eines einzelnen atomaren Übergangs möglich, das Problem auf die Anregung eines reinen Zwei-Niveau-Systems zu reduzieren.

Die elektronischen Zustände im Halbleiter sind ungleich komplizierter als im Atom, jedoch ähneln die exzitonischen Zustände in einem Halbleiter in sehr grober Näherung einem