

Kapitel 1

Einleitung

„Warum verwenden Sie solch kurze Laserimpulse für Ihre Experimente?“ Dies ist eine typische Frage, die zu mindest einmal während jeder Laborführung gestellt wurde. Die Antwort auf diese Frage ist aus rein physikalischer Sicht einfach zu beantworten, bringt den Fragesteller jedoch oft nicht weiter. Eine sehr anschauliche Antwort aus klassischer Sicht bringt die Besucher der Thematik oft schnell näher. So wird der optische Tisch in einem Gedankenexperiment zu einem Billardsalon umgebaut. Dabei ist der Billardtisch der Halbleiterkristall, die Kugeln stellen die Elektronen dar, der Filzbezug ist eine Art „Bad“ (z.B. Phononen) und der Queue, mit dem die Kugel angestoßen wird, kann als kurzer optischer Impuls betrachtet werden. Die oft verwendete Triangel entspricht der Präparation der Ausgangsbedingungen. Der Ablauf des Spiels ist nicht weiter von Belang, interessant ist für uns die Frage, was zwischen und während den Stößen passiert. Auf dem ersten Blick scheinen die Stöße zweier Kugeln unendlich kurz zu sein, sie sind nicht mit den menschlichen Sinnen aufzulösen. Das System ließe sich dann durch eine Stoßrate beschreiben, in der es nur eine charakteristische Zeit, die Zeit zwischen den Stößen, geben würde. Diese Beschreibung führt in einer physikalischen Beschreibung zur Boltzmannkinetik, in der es nur eine charakteristische Zeit, die Zeit zwischen zwei Stößen, gibt. Soll der Stoßprozess selbst untersucht werden, so bedarf es einiger technischer Hilfsmittel, beispielsweise einer Kamera mit einer sehr kurzen Belichtungszeit. Eine Abfolge von Momentaufnahmen würde uns den Eindruck vermitteln, dass der Stoß in der Tat nicht unendlich schnell abläuft, sondern eine gewisse Zeit benötigt. Es handelt sich somit um eine zweite Zeit, die Zeit die der Stoßprozess benötigt, um als abgeschlossen zu gelten. Diese Situation entspricht der Beschreibung der Streuprozesse im quantenkinetischen Regime. Die Untersuchung dieses Regimes am Halbleiter Galliumarsenid (GaAs) und Cadmiumtellurid (CdTe) ist Gegenstand dieser Arbeit. Die kurzen Laserimpulse haben zum einen den Zweck, die ultraschnellen Prozesse im quantenkinetischen Regime am System Halbleiter untersuchen zu können und zum anderen eine genügend hohe zeitliche Auflösung zu erreichen.

Nachdem ein Halbleiter mit einem kurzen Lichtimpuls aus dem Grundzustand angeregt wurde, durchläuft er verschiedene zeitliche Regime, bevor er in den Ausgangszustand zurückkehrt. Die zeitlichen Regime können in mehrere Bereiche unterteilt werden [1]. Zur

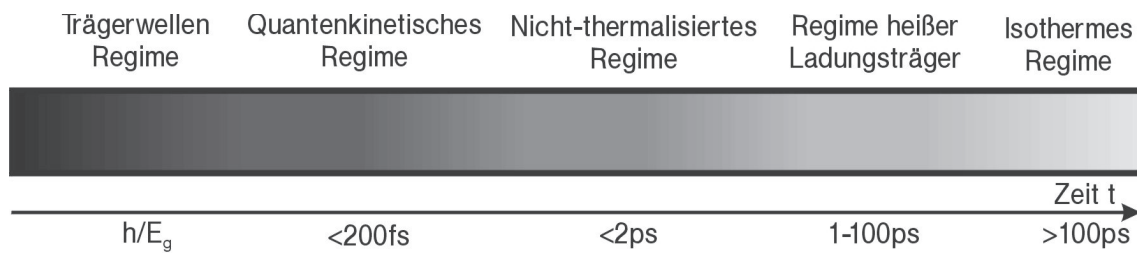


Abbildung 1.1: Schematische Darstellung der verschiedenen zeitlichen Regime im Halbleiter. Die Zeitbereiche sind nicht scharf voneinander getrennt und sind auch vom Halbleitermaterial abhängig.

besseren Verständlichkeit sollen hier die verschiedenen zeitlichen Regime in umgekehrter zeitlicher Reihenfolge erläutert werden, siehe Abbildung 1.1. Es können fünf zeitliche Regime voneinander unterschieden werden. Lange Zeiten nach der optischen Anregung gelangt der Halbleiter wieder in den Grundzustand, indem er sein thermodynamisches Gleichgewicht erreicht. In diesem isothermen Regime rekombinieren die Ladungsträger im Halbleiter. Für Zeiten kleiner als etwa $t = 100\text{ ps}$ befindet sich der Halbleiter im Regime heißer Ladungsträger, in dem die Energie und der Impuls der Ladungsträger im Wesentlichen durch die Wechselwirkung mit akustischen Phononen und anderen Ladungsträger ausgetauscht wird. Die Verteilung der Ladungsträger kann mit einer Temperatur beschrieben werden. Für Zeiten kürzer als etwa $t = 2\text{ ps}$ befindet sich der Halbleiter noch in einem nicht-thermalisierten Zustand, die Verteilung der Elektron-Loch Paare kann noch nicht durch eine Temperatur charakterisiert werden. In dieser Arbeit wird der optisch hochangeregte Halbleiter im kohärenten Regime untersucht, dies gilt für Zeiten, die kürzer sind als etwa $t = 200\text{ fs}$. Der Halbleiter befindet sich kurz nach der Anregung in einem extremen Nichtgleichgewichtszustand. Die angeregten Nichtgleichgewichtszustände besitzen in diesem Regime noch eine wohl definierte Phasenbeziehung zum anregenden Lichtfeld. Insbesondere Streumechanismen durch die Wechselwirkung von Ladungsträgern mit longitudinal optischen Phononen und die Wechselwirkung der Ladungsträger untereinander zerstören die angeregte Kohärenz im Halbleiter. Für noch kürzere Zeiten, vergleichbar mit der inversen Bandlücke des Halbleiters, können Effekte der schnell oszillierenden Trägerwelle untersucht werden [2]. Jedes dieser Regime hat eines gemeinsam. Die Impulsdauer des Lasers muss zur Untersuchung der entsprechenden Effekte vergleichbar bzw. deutlich kürzer sein als die charakteristische Zeitdauer der vorherrschenden Mechanismen.

Den Zugang zu den beiden letztgenannten zeitlichen Regimen ermöglichte die Entwicklung leistungsstarker Festkörperlaser mit einer hohen Repetitionsrate von etwa 100 MHz und von Impulsdauern von circa 10 fs [3] sowie die sukzessive Weiterentwicklung, um Laserimpulse mit weniger als zwei optischen Zyklen bei circa 5 fs Impulsdauer zu erzeugen [4].

In den vergangenen Jahren entstanden viele Arbeiten auf dem Gebiet der nichtlinearen Halbleiterspektroskopie. So wurden Untersuchungen zur Kohärenz der angeregten Ladungsträger und der Zerfall dieser Kohärenz untersucht. Dabei konnte die beobachtete Oszillation

der Interbandpolarisation als Überlagerungszustände der elektronischen Zustände identifiziert werden [5, 6, 7, 8, 9, 10, 11]. Experimente im quantenkinetischen Regime ermöglichen es, die endliche Dauer der Wechselwirkungsprozesse zu untersuchen. Dabei treten die quantenmechanischen Effekte wie die Energie-Zeit Unschärfe und die Welleneigenschaften der Teilchen zu Tage. Die endliche Dauer der Streuprozesse äußert sich in einer kohärenten Oszillation beispielsweise einer kombinierten Elektron-LO-Phonon Kohärenz, indem die Anregung für eine kurze Zeitspanne, der Gedächtniszeit, zwischen System und Bad hin und her oszilliert. Entsprechende Experimente zur Elektron-LO-Phonon Quantenkinetik am Halbleiter GaAs im Regime der schwachen Fröhlich-Kopplung [12] konnten die dem exponentiellen Zerfall überlagerte Oszillation im Vierwellenmischsignal eindeutig als einen quantenkinetischen Effekt identifizieren. Mittels Kohärente Kontrolle konnte außerdem gezeigt werden, dass gezielt Anfangsbedingungen im Halbleiter präpariert werden und bereits begonnene Streuprozesse rückgängig gemacht werden können [13, 12, 14].

Bisher gab es nur wenige Experimente an hochangeregten Halbleitern im quantenkinetischen Regime, in dem die Ladungsträger-Ladungsträger Wechselwirkung die Ladungsträger-LO-Phonon Wechselwirkung dominiert. Zum einen liegt das an den benötigten kurzen Laserimpulsen, zum anderen war es bis vor kurzem nicht möglich, dieses quantenkinetische Regime adäquat durch eine Theorie beschreiben zu können. Eine weitere Problematik bestand in der Differenzierung zwischen dem angeregten System und dem Bad. Dies ist im Fall der Ladungsträger-Ladungsträger-Wechselwirkung nicht sofort ersichtlich. Das aus der Trennung von System und Bad resultierende nicht-Markovsche Verhalten wurde in verschiedenen Arbeiten untersucht [15, 16]. Diese und auch frühe Experimente am Volumenhalbleiter GaAs und GaAs-Vielfachquantenfilmstrukturen [17, 18] wurden unter der Annahme eines bereits abgeschirmten Coulomb-Potentials untersucht [19]. Es wurde die wichtige Bedeutung des Aufbaus der Abschirmung zwar erkannt, aber dennoch wurden die Ergebnisse durch ein nicht abgeschirmtes Coulomb-Potential erklärt [16]. Erst durch die sukzessive Weiterentwicklung der Coulomb-Quantenkinetik, unter Berücksichtigung der Ladungsträger-LO-Phonon Wechselwirkung und des Aufbaus der Abschirmung für Zeiten, die kürzer sind als die inverse Plasmafrequenz, war es möglich, die hier gezeigten Experimente auch aus theoretischer Sicht zu erklären.

Die Arbeit ist wie folgt in vier Kapitel gegliedert. Zunächst wird auf die Eigenschaften der Halbleiter und auf die grundlegende quantenkinetische Beschreibung eingegangen. Danach werden der experimentelle Aufbau und die wesentlichen Komponenten erläutert. Anschließend werden die experimentellen Ergebnisse am Halbleiter GaAs vorgestellt und diskutiert. Dabei werden diese Ergebnisse teilweise mit Ergebnissen einer quantenkinetischen Theorie verglichen, die in der Arbeitsgruppe um Prof. Haug (Universität Frankfurt) entstand. Im abschließenden Kapitel werden zusätzliche Experimente am Halbleiter CdTe vorgestellt und diskutiert.