

Universität Potsdam  
Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultät  
Institut für Physik und Astronomie

# Hochsensitive Pump-Probe-Spektroskopie an Übergittern

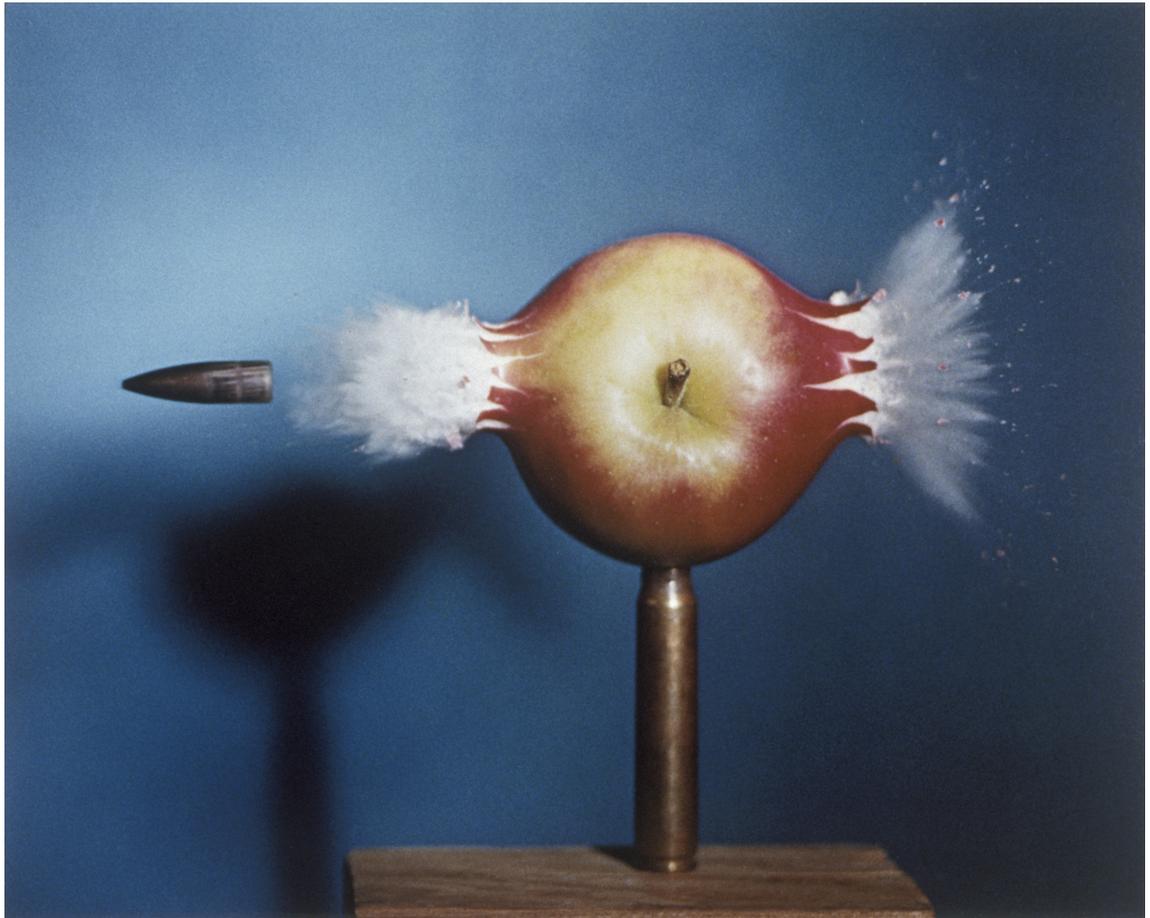
Diplomarbeit

von

**André Bojahr**

geboren am 8. September 1983

Gutachter:	Prof. Dr. Matias Bargheer
Zweitgutachter:	PD. Dr. Oliver Rader
Matrikelnummer	725755



Fotografie von Harold E. Edgerton (1964): Immer kürzere Belichtungszeiten erhellen die Geheimnisse schnellster Ereignisse.

# Inhaltsverzeichnis

<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>III</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2 physikalische Grundlagen</b>	<b>4</b>
2.1 Physik im Festkörper . . . . .	4
2.1.1 Elementare Anregungen des Festkörpers . . . . .	4
2.1.1.1 Elektronische Inter/Intrabandübergänge . . . . .	4
2.1.1.2 Exzitonzustände . . . . .	8
2.1.1.3 Phononen . . . . .	9
2.1.1.3.1 Phononendispersionsrelation . . . . .	9
2.1.1.3.2 Mini-Brillouin Zone eines Übergitters . . . . .	11
2.1.2 Anregungsmechanismen & Relaxationsprozesse . . . . .	12
2.1.2.1 Zwei Temperaturen Modell . . . . .	13
2.1.2.2 Anregung von Phononen . . . . .	14
2.2 Optik . . . . .	17
2.2.1 q-Parameterformalismus für Gaußstrahlen . . . . .	17
2.2.1.1 Strahlmatrixen . . . . .	17
2.2.1.2 q-Parameter . . . . .	18
2.2.2 Doppelbrechung . . . . .	19
2.2.3 Nichtlineare Effekte der Optik . . . . .	20
2.3 Pump-Probe Spektroskopie . . . . .	21
<b>3 Experimente und Resultate</b>	<b>23</b>
3.1 Pulscharakterisierung . . . . .	23
3.1.1 Pulslänge . . . . .	23
3.1.1.1 Aufbau und Funktionsweise der Autokorrelation . . . . .	23
3.1.1.2 Messung der Pulslänge . . . . .	26
3.1.2 Spektrum der Pulse . . . . .	26
3.2 Messverfahren . . . . .	28
3.2.1 Reflektivitätsmessung mit Chopper im Aufbau . . . . .	28

3.2.1.1	Aufbau . . . . .	28
3.2.1.2	Messmethodik . . . . .	29
3.2.1.3	Messungen . . . . .	30
3.2.2	Pump-Probe mit einem Shaker im Aufbau . . . . .	33
3.2.2.1	Aufbau . . . . .	33
3.2.2.2	Messmethodik . . . . .	34
3.2.2.3	Messungen . . . . .	36
3.2.3	Messung der Ableitung der Reflektivitätsänderung . . . . .	39
3.2.3.1	Aufbau . . . . .	39
3.2.3.2	Messmethodik . . . . .	39
3.2.3.3	Messungen . . . . .	40
<b>4</b>	<b>Diskussion</b>	<b>44</b>
4.1	Messungen an der Gallium-Arsenid-Probe . . . . .	44
4.2	Halbleiterübergitter aus GaAs und $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ . . . . .	47
4.3	STO/SRO-Übergitter . . . . .	50
4.4	LSMO-Übergitter . . . . .	55
4.5	Vergleich der benutzten Messverfahren . . . . .	59
<b>5</b>	<b>Zusammenfassung &amp; Ausblick</b>	<b>61</b>
<b>6</b>	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>63</b>

# Abbildungsverzeichnis

2.1	Bänderbildung durch Zusammenbringen mehrerer Atome . . . . .	5
2.2	direkter und indirekter Bandübergang . . . . .	6
2.3	Energieniveauschema des Wannier-Mott-Exzitons . . . . .	9
2.4	Zweiatomige lineare Kette . . . . .	9
2.5	Verlauf der Phononendispersion einer zweiatomigen, linearen Kette . .	11
2.6	Mini-Brillouin Zone im Übergitter . . . . .	12
2.7	Relaxationsprozess der optischen Anregung am Beispiel eines Metalls	13
2.8	Vergleich von DECP und Ramananregungen . . . . .	16
2.9	ABCD-Formalismus . . . . .	19
2.10	Prinzipieller Aufbau eines Pump-Probe-Experiments . . . . .	22
3.1	Aufbau der Nichtkollinearen Autokorrelation mittels Frequenzverdopp- lung . . . . .	24
3.2	Messkurve der Autokorrelation . . . . .	27
3.3	Spektrum der Laserpulse . . . . .	27
3.4	Optischer Aufbau des 1. Pump-Probe-Experiments . . . . .	29
3.5	Pump-Probe-Spektrum von GaAs über 300 ps . . . . .	30
3.6	Pump-Probe-Spektrum von GaAs über 5 ps Delay für ausgewählte Wel- lenlängen zwischen 795 nm und 855 nm . . . . .	31
3.7	Pump-Probe-Spektrum von GaAs über 5 ps Delay für ausgewählte Wel- lenlängen zwischen 865 nm und 895 nm . . . . .	32
3.8	Optischer Aufbau des 2. Pump-Probe-Experiments . . . . .	33
3.9	Kalibrierung der Zeitskala des Pump-Probe-Experiments mit Shaker .	34
3.10	Korrektur des Pump-Probe-Signals durch Abziehen des Hintergrunds	35
3.11	Pump-Probe-Spektrum eines GaAs-Al <sub>0.4</sub> Ga <sub>0.6</sub> As-Übergitters . . . . .	37
3.12	Pump-Probe-Spektren eines GaAs-AlAs Übergitters . . . . .	37
3.13	Pump-Probe-Spektrum eines STO/SRO-Übergitters . . . . .	38
3.14	Messung der Ableitung . . . . .	40
3.15	Ableitung der relativen Reflektivitätsänderung eines GaAs-Al <sub>0.4</sub> Ga <sub>0.6</sub> As- Übergitters . . . . .	41

---

3.16	relativen Reflektivitätsänderung eines GaAs-Al <sub>0.4</sub> Ga <sub>0.6</sub> As-Übergitters durch Integration der gemessenen Ableitungskurve . . . . .	42
3.17	Ableitung der relativen Reflektivitätsänderung des LSMO-Übergitters	42
3.18	relative Reflektivitätsänderung des LSMO-Übergitters durch Integration der gemessenen Ableitungskurve . . . . .	43
4.1	Dielektrischen Funktion $\epsilon(\omega)$ von GaAs . . . . .	45
4.2	Elektronische Bandstruktur von GaAs . . . . .	46
4.3	Ableitungskurve der relativen Reflektivitätsänderung des GaAs-AlGaAs Übergitters mit und ohne elektronischen Anteil . . . . .	47
4.4	Amplitude der Fourierkomponenten der Reflektivitätsmodulation des Pump-Probe-Spektrums vom GaAs-AlGaAs Übergitter . . . . .	48
4.6	oszillierender Anteil des Pump-Probe-Spektrums des STO/SRO-Übergitters	51
4.7	schematische Darstellung des Aufbaus und der Anregung des STO/SRO-Übergitters . . . . .	52
4.8	Pump-Probe-Spektren des STO/SRO-Übergitters für hohe und niedrige Pumpfluenzen . . . . .	53
4.9	Reflektivitätsmodulationen der Pump-Probe-Spektren des STO/SRO-Übergitters für hohe und niedrige Pumpfluenzen . . . . .	54
4.10	Aufbau der Einheitszelle des LSMO-Übergitters . . . . .	55
4.11	Pump-Probe-Spektrum des LSMO-Übergitters bei hohen Fluenzen . .	56
4.13	Pump-Probe-Spektrum des LSMO-Übergitters bei hoher und niedriger Fluenz abzüglich des elektronischen Untergrunds im Frequenzraum . .	58

# 1 Einleitung

Sehr schnelle Vorgänge, wie etwa das Aufprallen einer Gewehrkugel, das Zerbersten eines Gegenstandes nach einer Explosion oder die Schwingungen von Atomen in einem Festkörper sind mit den menschlichen Sinnen nicht direkt erfassbar. Erst durch technische Kniffe ist es möglich, einen zeitaufgelösten Eindruck dieser Vorgänge zu erlangen. Mit der Erfindung der Fotografie war ein Verfahren geboren, Momente der Wirklichkeit in einem Bild festzuhalten. Mit fortschreitender Entwicklung kam man bald an einen Punkt, bei dem das abgelichtete Zeitintervall eines Bildes kleiner war als die Wahrnehmung des menschlichen Auges. Erste damals sehr beeindruckende Bilder präsentierte Eadweard Muybridge 1872 der Öffentlichkeit und entschied gleichzeitig einen bis dahin jahrelang andauernden Streit, ob Pferde im Galopp nun immer eine Huf auf dem Boden haben oder ob es im Galopp Momente gibt, in den sie keinen Bodenkontakt besitzen. Er verblüffte die Öffentlichkeit mit Fotos in dem ein Pferd scheinbar über der Aschenbahn schwebte.

Mit weiterer Reduktion der Belichtungszeit pro Bild werden dann auch die Schließmechaniken der Kameras zu träge. Eine Lösung bot hier das von Harold Edgerton 1931 erfundene Blitzlicht-Stroboskop. Dabei wurde die Belichtungszeit nicht mehr durch die Schließmechanik der Kamera, sondern durch die Länge des Lichtblitzes festgelegt.

Doch nicht nur in der makroskopischen Welt gibt es Vorgänge, die in ihrem zeitlichen Ablauf untersucht werden wollen. Ein Kristall beispielsweise besteht aus vielen regelmäßig angeordneten Atomen, die nur einige zehntel eines milliardstel Meters<sup>1</sup> von einander entfernt sind. Die Festkörperphysik untersucht die Verbindung der makroskopischen Eigenschaften eines Gegenstandes zu dessen mikroskopischen, welche durch die Anordnung verschiedenster Atome, deren Elektronen und Wechselwirkungen zwischen ihnen gegeben ist. Dabei ist von besonderem Interesse, wie und mit welcher Geschwindigkeit Energie zwischen den unterschiedlichen Subsystemen des Festkörpers, beispielsweise des Gitters, der Elektronen oder des Spinsystems, transferiert wird. Die Kopplungszeiten dieser Subsysteme liegen typischerweise im Bereich von einigen Pikosekunden ( $10^{-12}$  s). Um diese Prozesse stroboskopisch abzulichten, sind demnach Lichtblitze von

---

<sup>1</sup> $10^{-10}$  m = 1 Å = 100 pm (pm steht für Pikometer)

Nöten, deren Länge im Subpikosekundenbereich<sup>2</sup> liegen.

Der Bau des ersten LASERs 1960 [32] legt dabei den Grundstein für die benötigte Lichtquelle. Die speziellen Eigenschaften des Laserlichts, wie die Kohärenz [33], Monochromie sowie die definierte Ausbreitungsrichtung, machen es möglich, dass mittels heutiger Lasertechnik, im speziellen der Güteschaltung [34], der Modenkopplung [28] und der Kerr-Linse [49], kommerzielle Lasersysteme mit Pulslängen im Subpikosekundenbereich zu haben sind.

Diese Femtosekunden-Laser-Pulse stellen das Werkzeug der Pump-Probe-Spektroskopie<sup>3</sup> dar. Dabei sorgt der anregende Puls (Pump) durch Bestrahlen eines Objekts für eine Dynamik in jenem und der abfragende Puls (Probe) „fotografiert“ die Dynamik an einem Zeitpunkt nach der Anregung. Durch Wiederholung des Experiments und „fotografieren“ an anderen Zeitpunkten, kann man die gesamte Dynamik „ablichten“. Auf diese Weise kann z.B. die Kopplung des elektronischen und phononischen Systems oder gar ein kohärentes Übergitterphonon, d. h. eine phasenfeste Schwingung einer übergeordneten Kristallstruktur, nach Anregung mit dem Pumpstrahl sichtbar gemacht werden. Letzteres lässt sich mittels zeitaufgelöster Röntgenbeugung [4] direkt oder wie in der vorliegenden Arbeit über die Kopplung an die optischen Eigenschaften indirekt sichtbar machen.

Diese Arbeit hat das Ziel, ein hochsensitives optisches Pump-Probe-Experiment mittels eines durchstimmbaren Ti:Sapphir Lasers, mit Repetitionsrate von 80 MHz, zu entwickeln, zu charakterisieren und einige Festkörperproben mit jenem zu untersuchen. Dabei ist die eigentliche Herausforderung dadurch gegeben, dass innerhalb der Arbeitsgruppe bisher nur kHz-Lasersysteme für die Pump-Probe-Spektroskopie verwendet werden. Die Pulse dieser System haben eine etwa zehntausend mal höhere Pulsenergie und sorgen dementsprechend für eine größere Dynamik in der zu untersuchenden Probe. Bei MHz-Lasersystemen ist dagegen Sorge zu tragen, dass die viel kleineren relativen Änderungen gemessen werden können, indem die hohe Repetitionsrate für ein besseres Signal zu Rauschverhältniss genutzt wird.

Dabei ist die Arbeit in drei große Abschnitte aufgeteilt. Im ersten Teil werden physikalische Grundlagen dargelegt, die für diese Arbeit von Bedeutung sind. Dabei werden die elementaren Anregungen eines Festkörpers und mögliche Anregungsmechanismen dieser besprochen. Außerdem wird kurz auf Teile der Optik sowie auf die Funktionsweise der Pump-Probe-Spektroskopie eingegangen. Der zweite Teil behandelt die drei Aufbauten der während der Arbeit entstandenen optischen Pump-Probe-Experimente. Dabei wird jeweils der Aufbau, die Messmethodik und die Messungen an den Proben

---

<sup>2</sup>unterhalb einer Pikosekunde

<sup>3</sup>zu deutsch: Anrege-Abfrage-Spektroskopie

genauer erörtert. Im dritten Teil wird dann näher auf die einzelnen Messergebnisse und ihren physikalischen Hintergrund eingegangen. Im letzten Kapitel ist eine Zusammenfassung dieser hier vorliegenden Arbeit zu finden, wobei abschließend auf die nächsten Schritte eingegangen wird, die im Rahmen dieser Arbeit keinen Platz finden konnten.

# 2 physikalische Grundlagen

## 2.1 Physik im Festkörper

### 2.1.1 Elementare Anregungen des Festkörpers

Die optische Anregung, also das einfache Bestrahlen eines Festkörpers mit einem ultrakurzem Lichtpuls verändert im Allgemeinen die optischen Eigenschaften, wie Reflektion und Transmission, des Materials. Dabei sorgt das elektrische Feld  $\vec{E}$  des Pulses für eine Polarisation  $\vec{P}$  des Festkörpers, welche dann zum abgestrahlten elektrischen Feld beiträgt. Dieser Beitrag ist durch die im Allgemeinen tensorielle, komplexwertige und frequenzabhängige dielektrische Funktion  $\epsilon(\omega)$  des Materials gegeben. Sie verknüpft das elektrische Feld mit der Polarisation. Verschiedenste elementare Anregungen haben Einfluss auf die dielektrischen Eigenschaften des Festkörpers. Hier sollen einige näher besprochen werden, die für diese Arbeit von größerer Bedeutung sind:

- Elektronische Inter-/Intrabandübergänge
- Exzitonen
- Gitterschwingungen (Optische Phononen)

#### 2.1.1.1 Elektronische Inter-/Intrabandübergänge

Wie aus der Quantenmechanik bekannt ist, haben die Elektronen von Atomen nur die Möglichkeit, Zustände diskreter Energien einzunehmen. Das Zusammenbringen mehrerer Atome führt zu einer Aufspaltung dieser Energieniveaus. Das einfachste akademische Beispiel ist das  $\text{H}_2^+$  Molekül [46]. Der Grenzfall des Zusammenbringens mehrerer Atome ist der unendlich ausgedehnte Festkörper. Bei diesem führt die Aufspaltung der Energieniveaus schlussendlich zur Ausbildung von Bändern, wie Abb. 2.1 näher bringt. Aus den diskreten Energien, wird ein Kontinuum. Die fermionische Eigenschaft

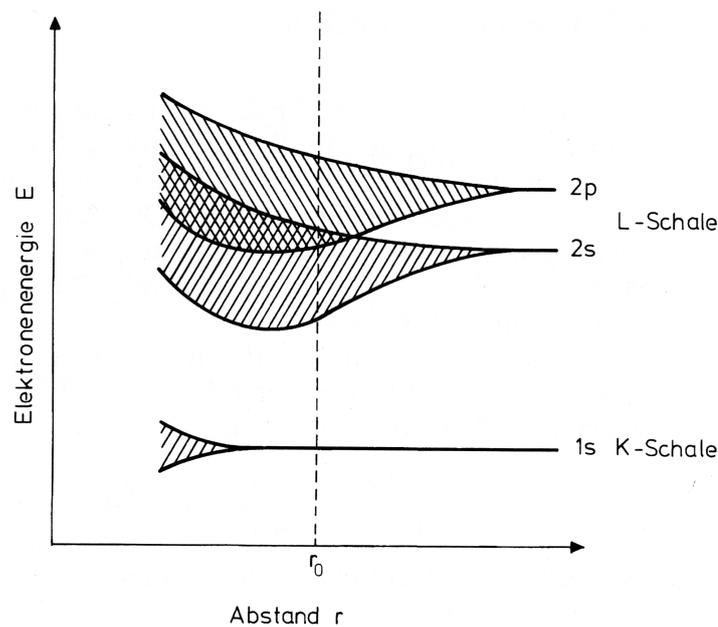


Abb. 2.1: Schematische Darstellung der Aufspaltung der Energieniveaus durch Zusammenbringen vieler gleicher Atome auf den Abstand  $r$ . Die Gleichgewichtslage der chemischen Bindung soll hier durch  $r_0$  beschrieben werden. Tiefer liegende Energieniveaus spalten weniger auf und behalten mehr oder weniger ihren diskreten Charakter. Quelle: Ibach [21]

der Elektronen, sorgt für eine Besetzung der quasikontinuierlichen Zustände die dem Pauliprinzip folgt [48, 40].

Eine Möglichkeit, in einem Festkörper Energie zu deponieren und damit die dielektrischen Eigenschaften zu ändern, ist die Besetzung der Energiebänder des Festkörpers zu verändern. Hier kann man im Allgemeinen zwischen zwei Szenarien unterscheiden. Zum einen der **Interbandübergang**. Hiermit sind alle elektronischen Übergänge gemeint, bei denen Elektronen von einem Band in ein anderes überführt werden. Dabei kann der Übergang indirekt oder direkt sein (Abb. 2.2).

Zum Anderen können aber auch **Intrabandübergänge** an der Besetzungsveränderung beteiligt sein. Hierbei handelt es sich um elektronische Übergänge, die innerhalb eines Bandes stattfinden. Dabei sind diese Übergänge grundsätzlich indirekt. Damit die Impulserhaltung erfüllt ist, muss also immer ein Phonon vernichtet oder erzeugt werden. Auf Grund dessen hängen diese Vorgänge von der Besetzungszahl der Phononen in den jeweiligen Zuständen ab und diese ist wiederum temperaturabhängig.

Indirekte Bandübergänge besitzen durch diesen Mechanismus eine niedrigere Wahrscheinlichkeit stattzufinden als direkte, was beispielsweise bei indirekten Halbleitern wie z.B. Silizium zu einer schlechteren Quantenausbeute als bei direkten Halbleitern wie z.B. GaAs führt.

Es ist naheliegend, dass all diese Anregungen zu einer direkten Änderung der dielek-

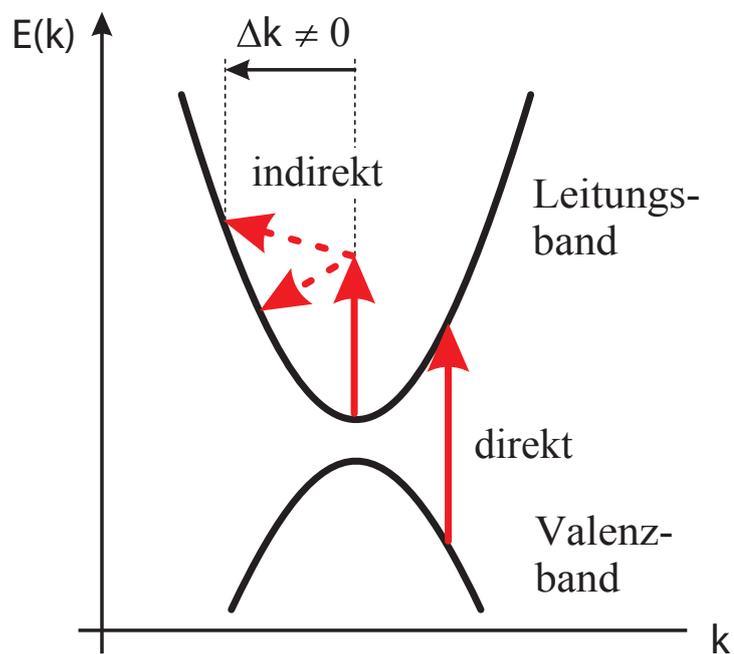


Abb. 2.2: Bei einem direkten Bandübergang bleibt der Impuls quasi erhalten, er erscheint also in der Bandstruktur  $E(k)$  als ein senkrechter Übergang. Beim indirekten Übergang muss der Impuls des Elektrons verändert werden, damit es in das andere Niveau übergehen kann. Deshalb muss an diesem Anregungsprozess noch mindestens ein drittes Teilchen neben dem Photon und dem Elektron teilnehmen, da Impuls und Energieerhaltung erfüllt sein müssen. In der Regel sind dies Phononen, die dabei vernichtet oder erzeugt werden.

trischen Eigenschaften, und damit zu einer Änderung der Reflektivität führt, die die eigentliche Messgröße in den weiter unten beschriebenen Aufbauten (Kapitel 3) ist. Eine optische Anregung von Elektronen, also die Absorption der Energie des Lichtes durch Elektronen des Festkörpers, sorgt seien es nun Inter- Intradbandübergänge oder Besetzungen von Exzitonenzuständen (2.1.1.2) für eine Änderung der Beweglichkeit der Ladungsträger im Festkörper. Daraus folgt eine Änderung der Polarisierbarkeit  $\underline{\alpha}$  des Festkörpers, welche ein Maß für die Trennbarkeit von Ladungen im Festkörper darstellt. Eine geänderte Polarisierbarkeit führt direkt zur Änderung der Stärke des Dipolmoments  $\vec{p}_i$ , das auf Grund des lokalen elektromagnetischen Feldes  $E_{lok}^{\vec{}}$  im Festkörper induziert wird.

$$\vec{p}_i = \underline{\alpha} E_{lok}^{\vec{}} \quad (2.1)$$

Im einfachen Fall der isotropen und unpolaren Medien ist der Tensor der Polarisierbarkeit durch ein Skalar ( $\underline{\alpha} = \alpha$ ) und das gesamte Dipolmoment durch das induzierte gegeben. Da die Polarisation eines Festkörpers gerade der Dipoldichte entspricht, folgt aus der Änderung der Polarisierbarkeit direkt die Änderung des induzierten Dipolmoments und damit eine Polarisationsänderung. Für den Fall eines homogen angelegten Feldes erhält man die Clausius-Mossotti-Beziehung [19]:

$$\frac{\epsilon_r - 1}{\epsilon_r + 2} = \frac{N_V \alpha}{3\epsilon_0} \quad (2.2)$$

Hierbei ist  $\epsilon_r$  die Dielektrizitätszahl des Festkörpers,  $\epsilon_0$  die Dielektrizitätskonstante und  $N_V$  die Teilchenzahldichte.

Diese Gleichung beschreibt eine Abhängigkeit der optischen Eigenschaften von der Polarisierbarkeit. Über die mikroskopische und quantenmechanische Struktur der Polarisierbarkeit gibt sie keine Auskunft. Jedoch macht sie eines klar; die Änderung der Polarisierbarkeit  $\alpha$  führt zu einer Änderung der optischen Eigenschaften, die sich bei der Clausius-Mossotti-Beziehung in der komplexen und frequenzabhängigen dielektrischen Funktion  $\epsilon(\omega)$  widerspiegeln.

Die genaue theoretische Beschreibung des elektronischen Anteils der dielektrischen Eigenschaften eines Festkörpers bei gegebener elektronischer Konfiguration wird durch Ehrenreich und Cohen [14, 35] beschrieben. Die komplexwertige dielektrische Funktion in Abhängigkeit von der Frequenz  $\omega$  und dem Wellenvektor  $\mathbf{q}$  ist durch Gleichung 2.3 gegeben.

$$\epsilon(\mathbf{q}, \omega) = 1 - \frac{4\pi e^2}{q^2 \Omega} \lim_{\alpha \rightarrow 0} \sum_{\mathbf{k}, l, l'} \frac{|\langle \mathbf{k}, l | e^{-i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r})} | \mathbf{k} + \mathbf{q}, l' \rangle|^2 [n_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}(l') - n_{\mathbf{k}}(l)]}{E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}, l'} - E_{\mathbf{k}, l} - \hbar\omega + i\hbar\alpha} \quad (2.3)$$

Hierbei sind  $\mathbf{q}$  und  $\omega$  der Wellenvektor und die Frequenz der elektromagnetischen Welle,  $\Omega$  das Volumen des Festkörpers und  $n_{\mathbf{k},l}$  die Besetzungszahl der Fermistatistik für ein elektronisches Niveau mit dem reduzierten Wellenvektor  $\mathbf{k}$  im Band  $l$ .  $|\mathbf{k}, l\rangle$  ist die Wellenfunktion einer Blochwelle, die die Schrödingergleichung  $\hat{H}|\mathbf{k}, l\rangle = E_{\mathbf{k},l}|\mathbf{k}, l\rangle$  erfüllt, und  $\hat{H}$  der Hamiltonoperator des ungestörten periodischen Gitters.

Um also eine theoretische Aussage über das Responseverhalten eines Festkörpers in Bezug auf ultrakurze Laserpulse zu machen, ist eine genaue Kenntnis der Bandstruktur sowie eine komplizierte Rechnung nötig. Jedoch ist es möglich, qualitativ einige Responseeigenschaften mittels dieser Formel zu erklären. Beispielsweise konnten Auston u. a. [3] einen Vorzeichenwechsel im Responseverhalten der Reflektivitätsänderung von GaAs durch eine Vereinfachung von Formel 2.3 mit der Temperatur der Ladungsträger in Verbindung bringen.

### 2.1.1.2 Exzitonzustände

Eine weitere elektronische Anregung eines Festkörpers ist ein Exziton [26]. Hierbei handelt es sich um z. B. durch optische Anregung entstehende Elektronen und Löcher, bei denen es zu einer nicht völlig wechselwirkungsfreien Trennung kommt. Sie existieren also nicht unabhängig von einander. Zwischen ihnen gibt es eine nicht zu vernachlässigende Coulomb-Anziehung. Dieses Elektron-Loch-Paar bezeichnet man als Exziton. Man unterscheidet zwei Grenzfälle von Exzitonen:

- schwach gebundenen Wannier-Mott-Exzitonen
- stark gebundene Frenkel-Exzitonen

**Wannier-Mott-Exzitonen** [53] haben gewisse Ähnlichkeiten mit Wasserstoffatomen. Hierbei entspricht der positive Atomkern dem Defektelektron (Loch) und das Hüllenelektron dem des Kristallelektrons. Nach diesem Model besitzen Exzitonen wasserstoffähnliche Energieniveaus, die aber auf Grund der möglichen Translationsenergie der Exzitonen in Exzitonenzonen aufspalten (siehe Abb. 2.3).

Des Weiteren gibt es auch nicht wasserstoffähnliche Exzitonen, die einen viel kleineren Exzitonenzonenradius (räumlicher Abstand von Defektelektron und Kristallelektron) haben. Elektron und Loch sitzen dann meist beim selben Atom. Diese Exzitonen werden als **Frenkel-Exzitonen** [15] bezeichnet und beschreiben im wesentlichen Exzitonanzregungen einzelner Atome, welche die Fähigkeit besitzen von einem Atom, zum nächsten zu wandern.

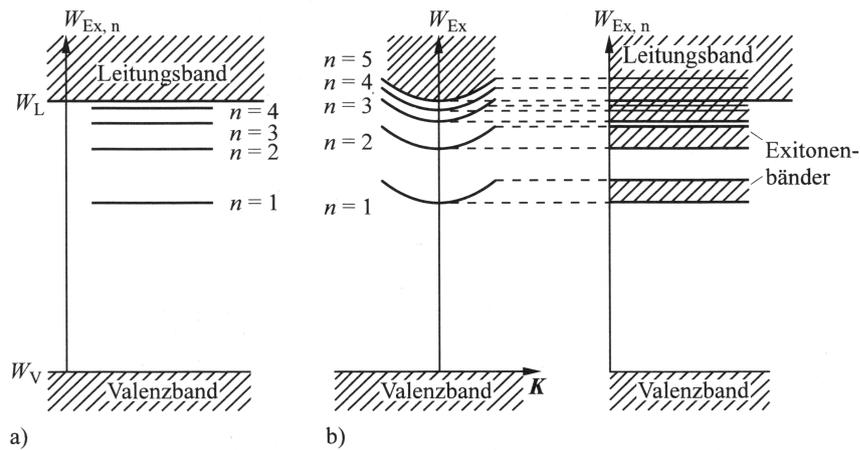


Abb. 2.3: Energieniveauschema des Wannier-Mott-Exzitons a) bei Vernachlässigung der Abhängigkeit vom Wellenvektor b) unter Berücksichtigung der üblichen quadratischen Dispersionsrelation von massebehafteten Teilchen sowie die daraus folgende Bänderbildung (Quelle [19])

### 2.1.1.3 Phononen

Ein anderer Freiheitsgrad eines Festkörpers, in dem man Energie deponieren kann, ist das Gitter. Hierbei sorgt man für eine Besetzung von Phononenmoden. Phononen sind kollektive Gitterschwingungen des Kristalls [26]. Die Grundschwingungen des Festkörpers werden als Moden bezeichnet. Wie genau die Moden aussehen, hängt von der Struktur des Gitters, sowie von den Federkonstanten und Massen des Festkörpers ab.

#### 2.1.1.3.1 Phonondispersionsrelation

Einer der einfachsten und akademisch ergiebigsten Fälle ist die zweiatomige lineare Kette (Abb. 2.4). Dieses System wird durch  $N$  Differentialgleichungen (2.4, 2.5) beschrieben. Unter der Annahme des Hookschen Gesetzes  $f(x) = C \cdot x$ , also dass die

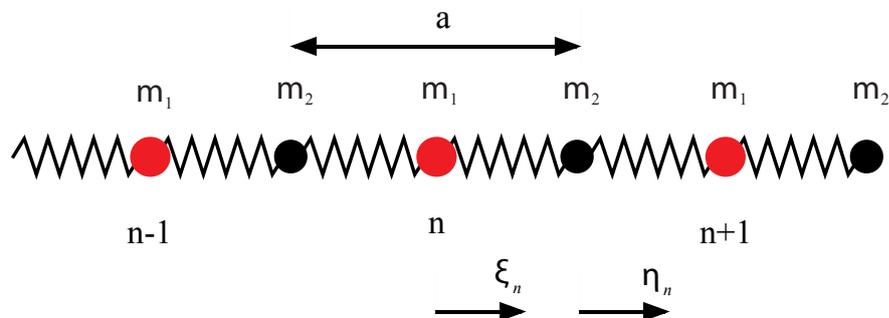


Abb. 2.4: Zweiatomige lineare Kette mit unterschiedlichen Massen  $m_1$  und  $m_2$  und Auslenkungen  $\xi$  und  $\eta$ .  $n$  nummeriert die Atome gleicher Masse durch und läuft von 1 bis  $N/2$ .  $N$  ist die Anzahl der Teilchen in der Kette. Quelle: teilweise aus Schönenberger [45].

Kraft proportional zur Auslenkung ist, und einen Ansatz für die zeitliche und räumliche Abhängigkeit von  $\xi_n$  und  $\eta_n$  in Form eines „Exponential-Ansatzes“ (2.6, 2.7) wird das System linearer Differentialgleichungen zweiter Ordnung in ein homogenes, lineares Gleichungssystem (2.8, 2.9) überführt.

$$m_1 \frac{d^2 \xi_n}{dt^2} = f(\eta_n + \eta_{n-1} - 2\xi_n) \quad (2.4)$$

$$m_2 \frac{d^2 \eta_n}{dt^2} = f(\xi_n + \xi_{n+1} - 2\eta_n) \quad (2.5)$$

$$\xi_n = \xi \exp(inKa) \exp(-i\omega t) \quad (2.6)$$

$$\eta_n = \eta \exp(inKa) \exp(-i\omega t) \quad (2.7)$$

Dieses hat nur dann eine nichttriviale Lösung wenn die Determinante der Koeffizienten der Auslenkungen  $\xi$  und  $\eta$  verschwindet.

$$-\omega^2 m_1 \xi = C\eta[1 + \exp(-iKa)] - 2C\xi \quad (2.8)$$

$$-\omega^2 m_2 \eta = C\xi[1 + \exp(iKa)] - 2C\eta \quad (2.9)$$

$$(2.10)$$

Durch Auflösen der Gleichung der Koeffizientendeterminante nach  $\omega^2$  erhält man:

$$\omega^2 = \frac{C(m_1 + m_2) \pm \sqrt{C(m_1 + m_2)^2 - 2m_1 m_2 C^2 + 2m_1 m_2 C^2 \cos(Ka)}}{m_1 m_2} \quad (2.11)$$

Die Wurzel der Gleichung 2.11 ist die Dispersionsrelation des linearen, zweiatomigen Gitters. Sie verknüpft die Wellenzahl  $K$  mit der Kreisfrequenz  $\omega$ . In Abb. 2.5 wurde die Wurzel für einen Fall (gesetzte Konstanten  $m_1, m_2, C$ ) in Abhängigkeit von  $K$  in Einheiten von  $\pi/a$  aufgetragen. Wie man erkennt, existieren zwei Zweige. Diejenige Kurve, die bei  $K = 0$  von 0 verschieden ist, nennt man longitudinal-optischen-Zweig. Die andere Kurve, welche um  $K = 0$  einen linearen Anstieg besitzt, wird als longitudinal-akustischer-Zweig bezeichnet.

Für einen beliebig komplizierteren Fall etwa in 3 Dimensionen und mit mehr Atomen in der primitiven Einheitszelle verändern sich die grundlegenden Ergebnisse nicht. Jedoch verändert sich die Anzahl der Zweige. Mit  $p$  Atomen in der Einheitszelle kommt man in 3 Dimensionen auf  $3p$  Zweige. Dabei fallen immer 3 von ihnen auf die akustischen Zweige. Diese sind ein longitudinal-akustischer und zwei transversal-akustische Zweige. Der Rest also  $3p - 3$  sind optische Zweige.

Ein optischer Zweig muss aber nicht zwangsläufig optisch aktiv sein. Der Name ist et-

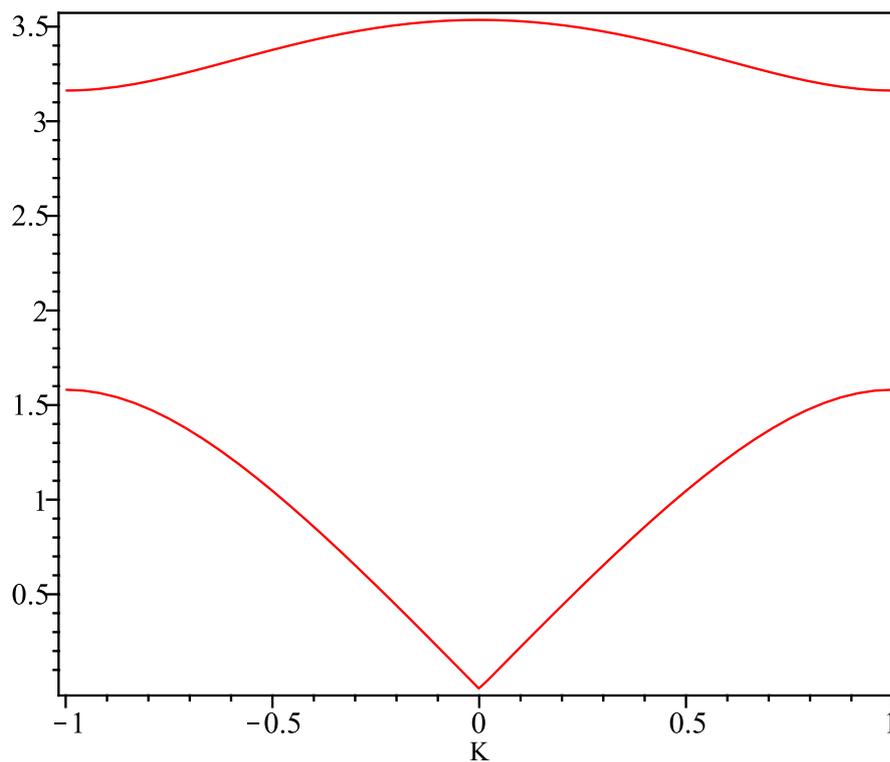


Abb. 2.5: Verlauf der Phononendispersion einer zweiatomigen, linearen Kette für  $m_1 = 4/5C$ ,  $m_2 = 1/5C$  und  $C=1$ .  $K$  ist in Einheiten von  $\pi/a$

was irreführend. Er ist historisch bedingt, und kommt daher, dass im Ionenkristall (z.B. GaAs) die Schwingung optischer Moden zu einer Änderung des Dipolmoments führt, was dafür sorgt, dass ein elektromagnetisches Feld diese anregen kann. Man nennt dies auch infrarot-aktiv [20].

Optische Zweige kommen auch in gleichatomigen Kristallen vor. Voraussetzung ist lediglich, dass es in der primitiven Einheitszelle mehr als ein Atom gibt. Beispielsweise kristallisieren Germanium und Silizium [38, 39] in der Zinkblendenstruktur, welche auf Grund ihres Aufbaus aus einer primitiven Einheitszelle mit zwei Atomen besteht. So sind im Falle von Germanium und Silizium zwar beide Atome die gleichen, jedoch lässt sich die Struktur nur durch eine zweiatomige primitive Einheitszelle abbilden. Dies sorgt dafür, dass es auch in diesen Materialien optische Zweige gibt.

### 2.1.1.3.2 Mini-Brillouin Zone eines Übergitters

Bei Aufbau eines Festkörpers mit einer übergeordneten Struktur durch alternierendes Übereinanderschichten von zwei kristallinen Materialien kommt es zu einer Rückfaltung der Phononendispersionsrelation. Abb. 2.6 veranschaulicht die Faltung einer akus-

tischen Phononenmode  $k = g_{SL}$  des „bulks“ zu einem optischen Phonon (ZFLAP)<sup>1</sup> mit  $k = 0$  im Übergitter (SL)<sup>2</sup>. Übergitter besitzen eine Mini-Brillouin Zone im reziproken Raum, welche durch die Übergitterperiode  $d_{SL}$  bestimmt ist.

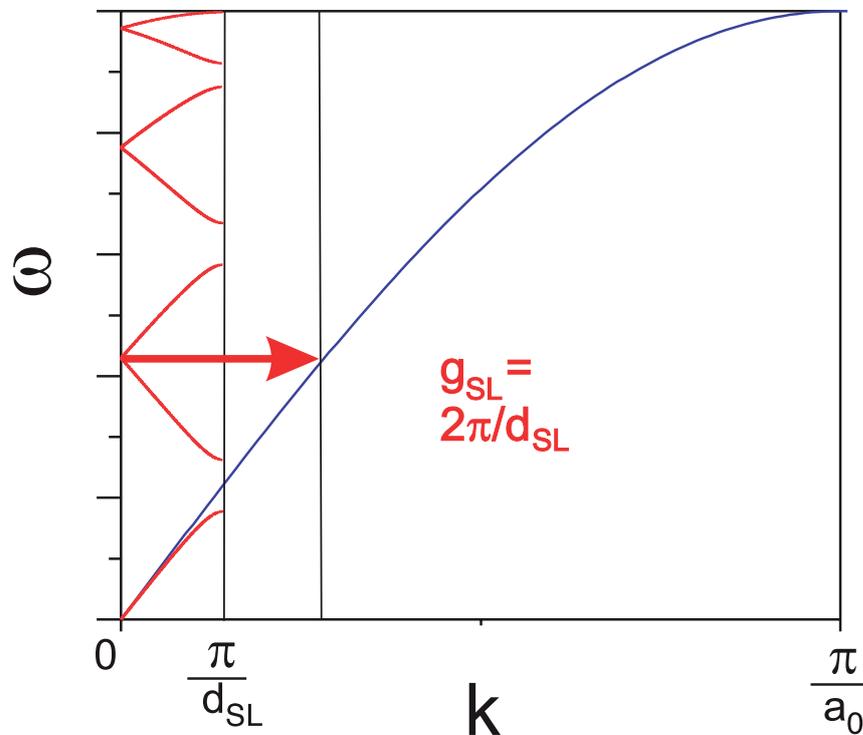


Abb. 2.6: Rückfaltung der Dispersionskurve einer LA-Mode des Bulks im Übergitter der Periode  $d_{SL}$ , hierbei wird die Phononenmode  $k = g_{SL}$  auf  $k = 0$  zurückgefaltet. Die Abbildung wurde etwas verändert aus Bargheer u. a. [4] entnommen.

### 2.1.2 Anregungsmechanismen & Relaxationsprozesse

Bei ultraschneller Anregung von Materie mittels eines Laserpulses, drängt sich sofort eine Frage auf. Welcher Bestandteil des Festkörpers nimmt Energie auf, wohin fließt diese und wie schnell? In diesem Kapitel soll diese Frage etwas beleuchtet werden. Dabei wird der Fokus auf zwei Teilsysteme des Festkörpers gelegt. Zum einen das elektronische und zum Anderen das phononische System.

<sup>1</sup>Zone-Folded Longitudinal Acoustic Phonon

<sup>2</sup>Superlattice

### 2.1.2.1 Zwei Temperaturen Modell

In Metallen hat man relativ leicht verständliche physikalische Verhältnisse. Im unangeregten Zustand sind Elektronen nach der Fermi-Dirac-Statistik und die Phononen nach der Bose-Einstein-Statistik mit der Temperatur  $T_0$  thermalisiert. Nach Anregung mittels eines ultrakurzen Laserpulses absorbieren die „freien“ Elektronen im Metall dieses Licht. Die Elektron-Elektron-Streuung sorgt nun für eine Thermalisierung der Elektronen. Da das elektronische System nach der Anregung aber eine höhere Gesamtenergie besitzt, thermalisiert das System zu einer höheren Temperatur  $T_e$ . Nun besitzt das elektronische System eine höhere Temperatur als das Phononische ( $T_p$ ). Die thermalisierten Elektronen streuen an Phononen und geben Energie an diese ab, bis beide Temperaturen gleich groß sind ( $T_p = T_e$ ). Abbildung 2.7 stellt das geschilderte bildhaft dar. Sobald nach Anregung beiden Subsystemen eine Temperatur zugeordnet werden

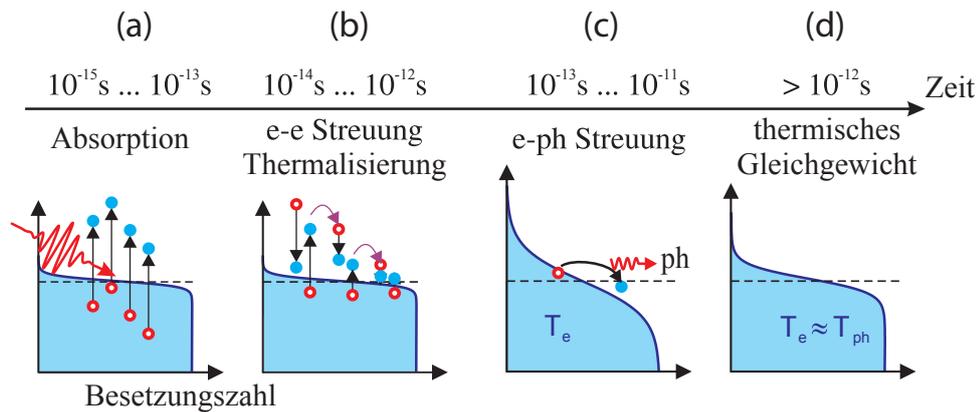


Abb. 2.7: a) Elektronen werden durch das Pumplicht des Lasers zu höheren Energien angeregt b) Elektron-Elektron-Streuung sorgt für eine Thermalisierung des Systems d.h. Fermi-Dirac-Verteilung ist wieder eingenommen c) Elektronen streuen an Phononen und geben Energie an jene ab d) Elektronengas und Phononengas haben selbe Temperatur, es herrscht thermisches Gleichgewicht. Quelle [52]

kann, lässt sich nach Anisimov und Khokhlov [1] dieser Relaxationsprozess mit zwei gekoppelten Wärmereservoirs beschreiben. Mathematisch wird dies durch zwei gekoppelte Differentialgleichungen ausgedrückt:

$$\begin{cases} c_e \partial T_e / \partial t = \partial / \partial z (\kappa \partial T_e / \partial z) - \alpha (T_e - T_p) + Q(t) \\ c_p \partial T_p / \partial t = \alpha (T_e - T_p) \end{cases} \quad (2.12)$$

Hier sind  $c_e$  und  $c_p$  die Wärmekapazitäten pro Volumeneinheit der elektronischen und phononischen Subsysteme des Festkörpers.  $\alpha$  beschreibt die Rate des Energieaustauschs.

ches der beiden Systeme.  $\kappa$  ist die Wärmeleitfähigkeit<sup>3</sup> des elektronischen Subsystems. Die Wärmeleitung des phononischen Systems wurde vernachlässigt, da sie bei „guten“ Metallen viel kleiner als die des elektronischen ist.

Mit diesem Modell lässt sich die elektronische Relaxationsdynamik in Metallen gut beschreiben. Es macht aber die Annahme, dass die Phononen nicht am Anregungsprozess beteiligt sind. Bei relativ hohen Anregungsenergien kann es durchaus zu einer Erzeugung von inkohärenten Phononen [29] kommen, welche dann für ein nichtthermalisiertes Phononensystem sorgen. Dies geschieht zwar auch über die Anregung von Elektronen, die aber auf sehr kurzen Zeitskalen heiße „heiße Phononen“ erzeugen. Ein nicht thermalisiertes Phonongas hat dann zu Folge, dass Temperaturen sich nicht definieren lassen und damit das Zweitemperaturenmodell nicht anwendbar ist. Um das Zweitemperaturenmodell auf Halbleiter anzuwenden, gibt es unterschiedlichste Varianten, beispielsweise wurde das Modell auf drei Wärmereservoirs erweitert und für Elektronen und Löcher unterschiedliche Temperaturen angenommen.

### 2.1.2.2 Anregung von Phononen

Phononen, die auf Grund der Relaxation von mit Licht angeregten Elektronen oder Löchern entstehen, sind angesichts der statistischen Relaxationsprozesse im Prinzip inkohärent, da es keine feste Phasenbeziehung zwischen ihnen gibt.

Ob bei diesem Relaxationsprozess nun eher akustische oder optische Phononen entstehen, hängt im wesentlichen von der Temperatur und der möglichen Kopplung der Elektronen mit dem Gitter ab. Im Bereich der Raumtemperatur oder weniger gilt für nicht allzu stark polare Kristalle in der Regel, dass die Relaxation der Ladungsträger durch Streuung an akustischen Phononen bestimmt ist. Dabei ist die Kopplung im Wesentlichen<sup>4</sup> auf die Wechselwirkung der Gitterdeformation mit der Bandstrukturveränderung<sup>5</sup> zurückzuführen. Bei polaren Kristallen können Streuprozesse mit optischen Phononen wahrscheinlicher sein. Dies ist bedingt durch die starke Fröhlichwechselwirkung [16] und die relativ zur Streuung an akustischen Phononen kürzere Streuzeit [57]. Das Anregen von inkohärenten optischen Phononen kann durch den sehr schnellen Aufbau eines hohen phononischen Drucks zu einer kohärenten Anregung von akustischen Phononen führen. Dabei bezeichnet man Phononen als kohärent, wenn das Zeitintervall

---

<sup>3</sup>Nach [1] gilt für  $T_e \ll E_F/k_B$  dass  $\kappa = \kappa_0 T_e/T_p$ . Hierbei ist  $\kappa_0$  die thermische Leitfähigkeit der Elektronen im thermischen Gleichgewicht des Festkörpers.

<sup>4</sup>In Kristallen ohne Inversionszentrum gibt es zusätzlich eine kurzreichweitige Kopplung durch den piezoelektrischen Effekt.

<sup>5</sup>Deformation Potential Theorem [43, 57]

der Anregung viel kleiner als die Länge der Phononperiode ist.

Phononen können aber auch auf andere Art und Weise erzeugt werden. Etwa ist es möglich mittels Infrarotphotonen im Bereich der Reststrahlenbande des Festkörpers Phononen direkt durch Absorption von Licht zu erzeugen. Neben dieser Variante ist es auch möglich, kohärente Phononenoszillationen mittels impulsiver stimulierter Ramanstreuung (ISRS<sup>6</sup> [56]) anzuregen. Dabei geht man davon aus, dass die Stimulation der kohärenten Phononen durch die Differenzfrequenz zweier elektromagnetischer Wellen, die im Spektrum des kurzen Laserpulses enthalten sind, zu Stande kommt. In Ähnlicher Weise lässt sich durch Überlagerung von zwei phasenfesten Laserpulsen ein kohärentes Phonon-Polariton mit ausgewähltem  $\vec{k}$  erzeugen [56]. Experimente mit opaken Medien zeigten jedoch, dass die Phase der angeregten Phononen in einigen Materialien nicht sinusförmig war, was einer Ramananregung widersprach, denn die Bewegung der kohärenten Gitterschwinung muss dort in der Ruhelage beginnen (Abb. 2.8). Die Erklärung dieses Phänomens liefert die Theorie der displaziven Anregung kohärenter Phononen (DECP<sup>7</sup> [58]). Sie besagt, dass durch eine Absorption von Photonen Ladungsträger erzeugt werden, sowie die Elektronentemperatur verändert wird, wodurch sich impulsiv die Ruhelage der Kristallgitterbausteine verschiebt, was für einen kosinusförmigen Beginn der Oszillation sorgt (Abb. 2.8).

In III-V Halbleitern hat man eine gänzlich andere Vorstellung des Anregungsmechanismus. Bei der Anregung von LO-Phononen spielen die Oberflächenladungen von III-V Halbleitern eine wichtige Rolle. Für GaAs wurde gezeigt, dass durch andere Bindungsverhältnisse nahe der Grenzflächen es dort zur Veränderung der Bandstruktur des Halbleiters kommt. Zwischen dem eigentlichen Valenz- und Leitungsband gibt es an der Grenzfläche lokalisiert weitere Niveaus. Die Fermienergie befindet sich zwischen diesen. Diese Niveaus sorgen für ein Festsetzen („pinning“ [36]) der Fermikante, was im Wesentlichen zu einer Bandverbiegung vom Bulk zur Grenzfläche führt. Auf Grund dessen besitzt GaAs eine Änderung des Potentials vom Rand ins Bulk hinein, was für ein elektrisches Feld sorgt. Durch Anregung mittels eines Laserpulses werden Elektron-Loch-Paare erzeugt, welche für eine schnelle Abschirmung des intrinsisch vorhandenen Feldes sorgen [13, 12]. Damit wird die Polarisierung des GaAs an der Oberfläche schlagartig verändert was zu einer kohärenten Anregung des LO-Phonons führt [11].

---

<sup>6</sup>Impulsive Stimulated Raman Scattering

<sup>7</sup>Displacive Excitation Of Coherent Phonons

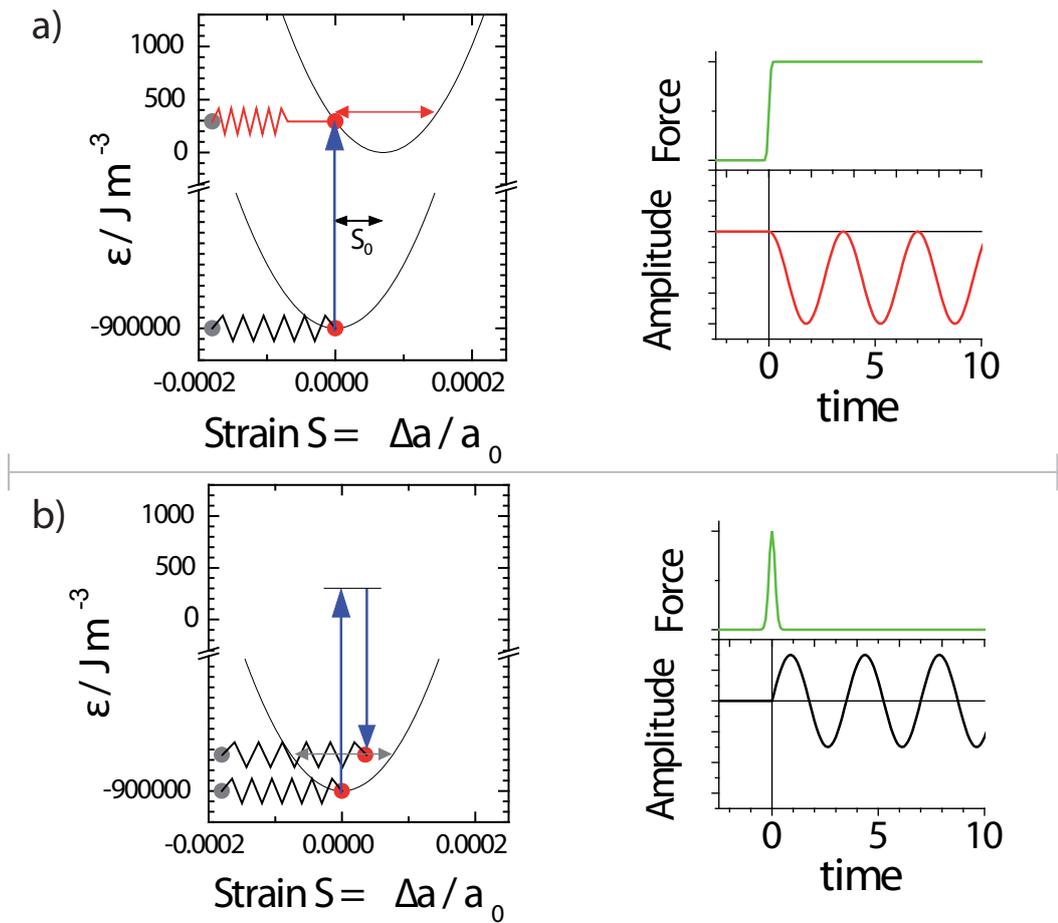


Abb. 2.8: a) Eine DECP-Anregung, bei der sich die Ruhelage der Phononoszillation verschiebt. Die Oszillation beginnt im Maximum der Auslenkung, was einem Cosinus entspricht. b) Eine Ramananregung, bei der die Ruhelage des Gitters nicht verschoben wird. Die Oszillation beginnt bei der Auslenkung Null, was einem Sinus entspricht.

## 2.2 Optik

Da ein wesentlicher Teil dieser Arbeit darin besteht, einen funktionierenden optischen Aufbau zu realisieren, sind optische Grundlagen von entscheidender Bedeutung. Damit es einfacher ist, die richtigen optischen Komponenten für die verschiedenen Teleskope in den Aufbauten zu wählen, sowie die Strahldurchmesser in den Foci abzuschätzen, wurde ein Programm in Matlab geschrieben, welches den q-Parameterformalismus für Gaußstrahlen für verschiedene optische Komponenten anwendet. Hier sollen kurz die wichtigsten Methoden und Begriffe dargelegt werden, die für dieses Programm nötig waren.

### 2.2.1 q-Parameterformalismus für Gaußstrahlen

Laser besitzen ein charakteristisches transversales Intensitätsprofil, meist ein Gaußprofil (TEM00 Mode) [37]. Dies trifft auch auf den Laser zu, welcher für die optischen Aufbauten dieser Arbeit benutzt wird. Um vor dem Aufbau der optischen Komponenten eine Vorstellung der Strahldurchmesser, sowie der Konvergenz bzw. Divergenz zu bekommen, behilft man sich mit der Gaußschen Strahlenoptik. Sie stellt eine Erweiterung der normalen Strahlenoptik dar.

#### 2.2.1.1 Strahlmatrizen

Die Propagation von Licht lässt sich mit Matrizen beschreiben. Jede Matrix steht für ein Element des optischen Setups. Die beiden wichtigsten sind die Matrizen für die Propagation durch eine dünne Linse mit der Brennweite  $f$  sowie die der freien Propagation über eine Strecke  $d$  [17].

**Matrix für Strahlpropagation durch eine dünne Linse mit Brennweite  $f$**

$$L = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{1}{f} & 1 \end{pmatrix} \quad (2.13)$$

**Matrix für die freie Strahlpropagation über eine Strecke d**

$$P = \begin{pmatrix} 1 & d \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (2.14)$$

Durch Multiplikation dieser beiden Matrizen mit unterschiedlichen Strecken  $d$  und Brennweiten  $f$  kann man eine beliebig komplexes optisches Setup durch eine Matrix darstellen. Da die Matrixmultiplikation nicht kommutativ ist, ist die richtige Reihenfolge der Elemente zu beachten. Hierbei ist das erste Element ganz rechts und das letzte links.

$$\begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} = \dots P_3 L_3 P_2 L_2 P_1 L_1 \quad (2.15)$$

**2.2.1.2 q-Parameter**

Um den Strahlmatrixformalismus auf den Gaußstrahl zu übertragen, wird der  $q$ -Parameter definiert.

$$q(z) = z + iz_r \quad (2.16)$$

Hierbei ist  $z$  der Abstand zur Strahltaile und  $z_r$  die Rayleigh-Länge des Gaußstrahls, also der Abstand zur Talle, bei dem sich der Strahlradius um den Faktor  $\sqrt{2}$  vergrößert hat. Wenn man also diese beiden Größen vor dem eigentlichen optischen Setup kennt, kann mit Hilfe der ABCD-Regel 2.17 (Abb. 2.9) der neue  $q$ -Parameter hinter dem Setup bestimmt werden:

$$q_2 = \frac{Aq_1 + B}{Cq_1 + D} \quad (2.17)$$

Mittels der Gleichung 2.18 lässt sich leicht durch Bildung von Realteil und Imaginärteil der Krümmungsradius  $R$ , bzw. der Strahlradius  $w$  am Orte  $z$  bestimmen.

$$\frac{1}{q(z)} = \frac{1}{R(z)} - i \frac{\lambda}{\pi w^2(z)} \quad (2.18)$$

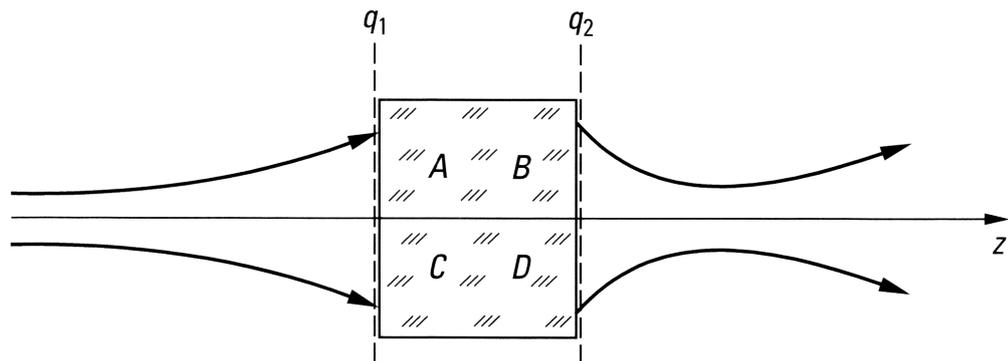


Abb. 2.9: Die ABCD-Matrix repräsentiert den optischen Aufbau, und überführt mittels der ABCD-Formel 2.17 den alten q-Parameter  $q_1$  in den neuen  $q_2$ .

Hier ist  $\lambda$  die Wellenlänge des Laserlichts.

### 2.2.2 Doppelbrechung

Seit Maxwell ist bekannt, dass Licht sich als transversal schwingende Welle beschreiben lässt [23]. Hierbei schwingen das elektrische ( $\vec{E}$ ) sowie das magnetische Feld ( $\vec{B}$ ) senkrecht zur Ausbreitungsrichtung. Da die Orientierung der Feldvektoren  $\vec{E}$  und  $\vec{B}$  in der Ebene senkrecht zur Ausbreitungsrichtung beliebig ist, unter der Einschränkung dass sie zueinander senkrecht stehen, kann man verschiedene Polarisationsrichtungen angeben. Diese sind durch die jeweilige Schwingungsrichtung des elektrischen Feldes definiert. Im Allgemeinen kann man drei unterschiedliche Fälle der Polarisation unterscheiden. Diese sind unpolarisiert, linear polarisiert und elliptisch polarisiert. Bei unpolarisiertem Licht überlagern sich beliebig viele elektromagnetische Wellen mit verschiedenen Polarisationsrichtungen. Dadurch ergibt sich keine Vorzugsrichtung. Bei linear polarisiertem Licht schwingt das elektrische Feld fest auf einer Geraden senkrecht zur Ausbreitungsrichtung. Elliptisch polarisiertes Licht hat die Eigenschaft, dass das elektrische Feld in der Ebene senkrecht zur Ausbreitungsrichtung rotiert.

Um die Polarisation des Lichtes zu messen oder zu manipulieren benutzt man oft doppelbrechende Materialien [37]. Diese haben die Eigenschaft, dass es auf Grund der Anisotropie des Materials unterschiedliche Brechzahlen für verschiedene Schwingungsrichtungen der elektromagnetischen Welle gibt. Diese Eigenschaft kann man sich zu Nutze machen, um beispielsweise verschiedene Polarisierungen relativ zum doppelbrechenden Medium zu trennen, was man dann als Polarisator bezeichnet. Andererseits ist es durch die unterschiedlichen Brechungsindizes auch möglich, verschiedene Polarisationsrichtungen relativ zueinander zu verzögern, was als Verzögerungsplatte bezeichnet

wird.

Hier unterscheidet man in der Regel zwei Gruppen von Verzögerungsplatten. Zum einen die  $\lambda/4$ -Platte, welche die eine Polarisationsrichtung relativ zur anderen um eine viertel Wellenlänge verzögert. Damit ist es möglich aus linear polarisiertem Licht, elliptisch polarisiertes zu erzeugen. Und zum anderen die  $\lambda/2$ -Platte, welche die Polarisationsrichtung relativ zur anderen um eine halbe Wellenlänge verzögert, was einer Drehung der Polarisation des Lichtes entspricht.

### 2.2.3 Nichtlineare Effekte der Optik

Im Zuge der Entwicklung des Lasers, wurden immer größere Peakintensitäten möglich. Auf Grund dieses Fortschritts wurde ein ganzer „Zoo“ an neuen optischen Effekten entdeckt, die darauf basieren, dass die Polarisation von Materialien nicht mehr linear mit dem elektromagnetischen Feld des bestrahlten Lichtes skaliert. Höhere Ordnungen, in erster Linie quadratische und kubische Terme des elektromagnetischen Feldes tragen zur Polarisation des Materials bei. In dieser Arbeit wird zur Pulscharakterisierung der nichtlineare Effekt der Frequenzverdopplung (SHG<sup>8</sup>) verwendet. Dabei wird die Frequenz des eingestrahnten Laserlicht in einem BBO-Kristall verzweifacht. Dies ist ein nichtlinearer Effekt zweiter Ordnung, d. h. er skaliert mit dem Quadrat des elektrischen Feldes.

Die Konversionseffizienz (Gleichung 2.19) [8] dieses nichtlinearen Prozesses hängt direkt von der Phasenfehlanpassung  $\Delta k$  der Lichtstrahlen ab.  $I_{SHG}$  ist hierbei die Intensität der frequenzverdoppelten Welle und  $L$  die Länge des Kristalls.

$$I_{SHG} = I_{SHG}^{max} \left[ \frac{\sin(\Delta k L / 2)}{\Delta k L / 2} \right]^2 \quad (2.19)$$

Erst durch eine Anpassung der Phase, also  $\Delta k = 0$ , wird eine effiziente Konversion ermöglicht. Um diese Anpassung zu gewährleisten, nutzt man die Doppelbrechung (2.2.2) eines BBO-Kristalls, welcher optisch zweiachsig ist. Das bedeutet, dass er eine optische Achse besitzt, bei der jede elektromagnetische Welle (gleiche Frequenz vorausgesetzt), dessen elektrisches Feld senkrecht zu dieser schwingt, den selben Brechungsindex „sieht“. Ein Lichtstrahl, der dieses Schwingungsverhalten besitzt, wird als „ordentlicher“ Strahl bezeichnet. Alle anderen Strahlen, die folglich nicht senkrecht zur optischen Achse schwingen, bezeichnet man in einem doppelbrechenden Kristall als „außerordentliche“ Strahlen. Der Brechungsindex für diese Strahlen hängt vom Winkel  $\theta$  zwischen Propa-

---

<sup>8</sup> Second Harmonic Generation

gationsrichtung und optischer Achse ab.

Die Phasenanpassung bei der SHG ist gegeben durch [37]:

$$2k_o(\lambda) = k_{ao}(2\lambda) \Rightarrow n_{ao}(2\omega, \theta) = n_o(\omega) \quad (2.20)$$

Die Winkelabhängigkeit des Brechungsindex des außerordentlichen Strahls ist durch den Indexellipsoid gegeben [37]:

$$\frac{1}{n_{ao}^2(2\omega, \theta)} = \frac{\sin^2(\theta)}{\tilde{n}_{ao}^2(2\omega)} + \frac{\cos^2(\theta)}{n_o^2(2\omega)} \quad (2.21)$$

Hierbei sind  $\tilde{n}_{ao}$  und  $n_o$  die frequenzabhängigen Brechungsindizes der Hauptachsen des Kristalls, welche über deren Sellmeier Koeffizienten und der Sellmeier Gleichung gegeben sind [24]. Nach Einsetzen von Gleichung 2.20 in Gleichung 2.21 und unter Berücksichtigung die Sellmeier Gleichung ergibt sich für den kolliniaren Einfall des Lichtes von 800 nm für die Frequenzverdopplung auf 400 nm ein Kippwinkel von  $\theta = 29,2^\circ$ .

## 2.3 Pump-Probe Spektroskopie

Um ultraschnelle Phänomene im Subpikosekundenbereich zu beobachten, sind Zeitaufösungen nötig, die auch mit sehr schneller Elektronik nicht mehr zu erreichen sind. Um trotzdem solch schnelle Abläufe beobachten zu können, behilft man sich mit einer stroboskopähnlichen Technik, der Pump-Probe(Anrege-Abfrage)-Spektroskopie [54]. Das Grundprinzip besteht im Wesentlichen darin, einen kurzen Lichtpuls in zwei Pulse aufzuteilen (Abb. 2.10). Dabei erhält einer von beiden Pulsen (Pumppuls) den Großteil der Gesamtenergie während der andere Puls (Probepuls) weniger Energie in sich „trägt“. Dann werden beide Pulse zeitversetzt auf ein zu untersuchendes Objekt geschickt, und die Änderung der Intensität des Probepulses in Abhängigkeit des Zeitversatzes zwischen Pump- und Probepuls wird gemessen. Hierbei ist die Idee, dass der stärkere Pumppuls eine Dynamik im zu untersuchenden Objekt auslöst und damit die physikalischen Eigenschaften des Objektes beeinflusst, was sich dann z. B. in der Veränderung der Intensität des Probepulses widerspiegelt. Das kleinste Fenster der erreichbaren Zeitauflösung ist hierbei durch die zeitliche Breite der Lichtpulse gegeben. Durch repetitives Messen der Intensität des reflektierten Probepulses bei unterschiedlich eingestelltem Zeitversatz lässt sich die Relaxationsdynamik des Materials nach Anregung mittels eines Laserpulses stroboskopisch rekonstruieren.

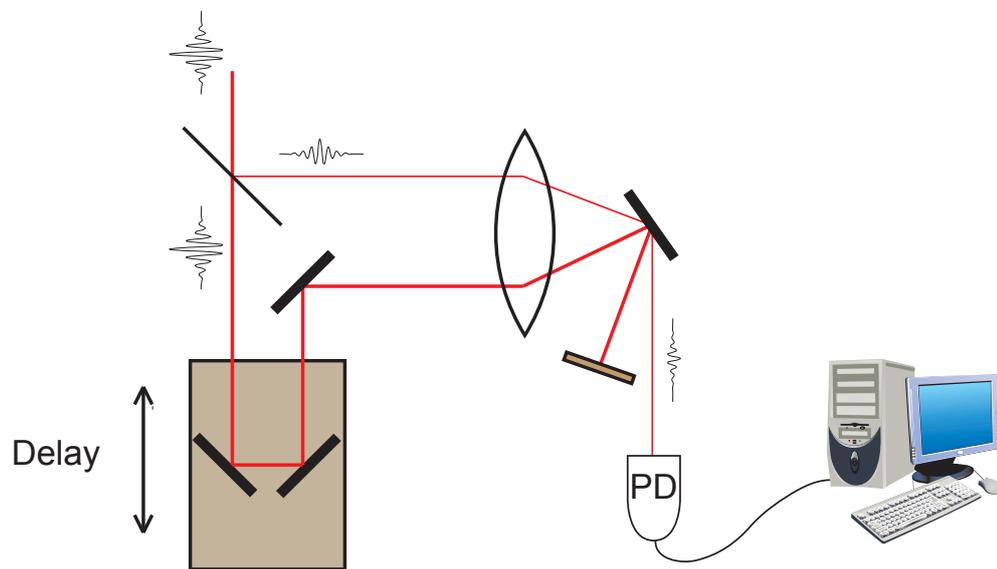


Abb. 2.10: Der Femtosekundenpuls wird in in zwei Pulse aufgeteilt, welche unterschiedliche Wege bis zu einer Linse laufen, in der sie auf eine Probe fokussiert werden. Die Wegdifferenz wird durch eine Verschiebestrecke (Delay) eingestellt. Danach wird das Reflektivitätssignal mittels einer Photodiode (PD) aufgenommen und vom Rechner ausgewertet.

# 3 Experimente und Resultate

## 3.1 Pulscharakterisierung

Das wesentliche Werkzeug der Pump-Probe-Spektroskopie sind kurze Laserlichtpulse, die sich in verschiedenster Weise charakterisieren lassen. Hier soll auf einige Eigenschaften eingegangen werden.

### 3.1.1 Pulslänge

Die zeitliche Breite des Laserlichtpulses bestimmt in einem Pump-Probe-Experiment die erreichbare Zeitauflösung. Die in der vorliegenden Arbeit verwendete Messmethode soll im folgenden Abschnitt näher erläutert werden.

#### 3.1.1.1 Aufbau und Funktionsweise der Autokorrelation

Zur Analyse der Länge der Laserlichtpulse des verwendeten MAI-TAI Lasers von Spectra-Physics wurde ein optischer Aufbau (Abb. 3.1) erstellt.

Dabei wird das Laserlicht über Spiegel auf einen 50/50 Strahlteiler geschickt. Der eine Teil läuft danach über eine einstellbare Delaystrecke und der andere über einen festen Strahlweg. Beide werden dann nichtkollinear in einen BBO-Kristall fokussiert, wo durch Frequenzverdopplung (SHG) aus dem 800 nm Laserlicht 400 nm Laserlicht entsteht. Dieser Prozess kann nur bei zeitlichen und räumlichen Überlapp der beiden Pulse im BBO-Kristall stattfinden. Um eine hohe Effizienz der Frequenzverdopplung zu erreichen, muss die Phasenanpassung (2.2.3) erfüllt sein. Die Nichtkollinearität führt zu einer schlechteren Effizienz und zu einem leicht verschobenen Phasenanpassungswinkel,

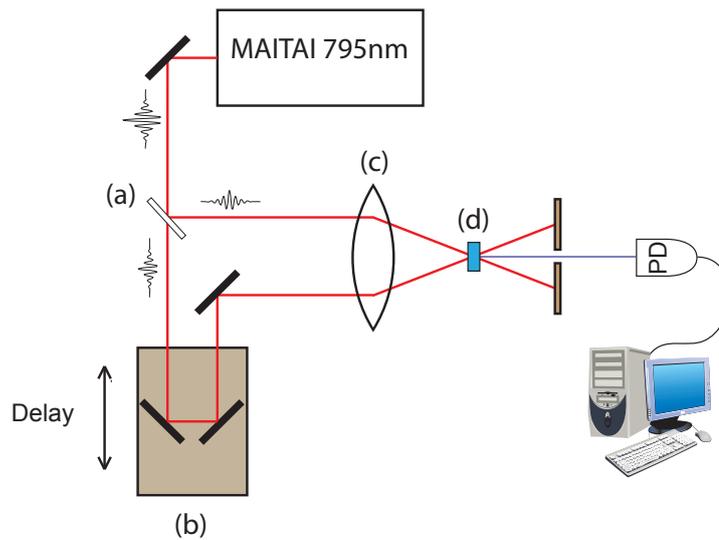


Abb. 3.1: Der Laserpuls wird im Beamsplitter (a) aufgeteilt. Ein Teil läuft über die Verschiebestrecke (b). Beide Strahlen werden durch eine Linse (c) in den BBO (d) fokussiert, in welchem Der SHG-Prozess (Second-Harmonic-Generation) abläuft.

sorgt aber für eine räumliche Trennung des eingestrahnten und SHG konvertierten Laserlichts. Das elektrische Feld  $E_{SHG}$  des frequenzverdoppelten Signals ist proportional zum Produkt der eingestrahnten elektrischen Felder (Gl. 3.1) [8]:

$$E_{SHG} \sim E(t) \cdot E(t - \tau) \quad (3.1)$$

Hierbei ist  $E(t)$  das elektrische Feld eines eingestrahnten Laserpulses.  $E(t - \tau)$  ist das Feld des anderen Laserpulses, welches räumlich identisch aber zeitlich versetzt ist. Der Zeitversatz sei durch  $\tau$  festgelegt. Das elektrische Feld sei folgendermaßen definiert:

$$E(t) = A(t)e^{i\omega t} \quad (3.2)$$

Die Ortsabhängigkeit sei hier nicht berücksichtigt, da sie für die Berechnung keine Rolle spielt.  $A(t)$  aus Gleichung 3.2 ist durch die Pulsform bestimmt. Bei Annahme eines Gaußpulses  $A(t) = E_0 \exp(-t^2/2\sigma_t^2)$  ergibt sich aus Gleichung 3.2:

$$E(t) = E_0 e^{-\frac{1}{4}\frac{t^2}{\sigma_t^2}} e^{i\omega t} \quad (3.3)$$

Die Intensität des SHG-Signals ist proportional zum Produkt der Intensitäten der eingestrahlten Felder und wird mit Gleichung 3.3 [44] zu:

$$I_{SHG} \sim I(t) \cdot I(t - \tau) = \text{Re}(E(t))^2 = E_0^4 e^{-\frac{1}{2\sigma_t^2} [t^2 + (t-\tau)^2]} \cdot \cos^2(2\omega t - \omega\tau) \quad (3.4)$$

Aus Gleichung 3.4 ergibt die zeitlich gemittelte Intensität bei ausgeführter Mittelung über eine Oszillationsperiode zu:

$$\langle I_{SHG}(\tau) \rangle \sim \langle e^{-\frac{1}{2\sigma_t^2} [t^2 + (t-\tau)^2]} \rangle \quad (3.5)$$

Die Mittelung über einen Puls wird hierbei durch eine Integration ausgeführt.

$$\langle I_{SHG}(\tau) \rangle \sim \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left(-\frac{1}{2\sigma_t^2} [t^2 + (t - \tau)^2]\right) dt \quad (3.6)$$

Nach geeigneter quadratischer Ergänzung und Substitution erhält man als zeitlich gemittelte Leistung (Abb. 3.6), welche proportional zur zeitlich gemittelten Intensität ist und von einem handelsüblichen Photodetektor gemessen wird, folgenden funktionalen Verlauf in Abhängigkeit vom Zeitversatz  $\tau$ :

$$\langle P_{SHG}(\tau) \rangle \sim \langle I_{SHG}(\tau) \rangle \sim \exp\left(-\frac{\tau^2}{4\sigma_t^2}\right) \quad (3.7)$$

Dies ist das Autokorrelationssignal eines Gaußpulses. Wie aus Gleichung 3.7 ersichtlich ist, handelt es sich hierbei ebenfalls um eine Gaußglocke, welche jedoch einen anderen RMS-Wert als das Intensitätsprofil des Pulses aufweist. Der RMS-Wert  $\sigma_t$  wurde so definiert, dass er dem RMS-Wert des Intensitätsprofils eines Laserpulses entspricht. Wie man aus Gleichung 3.7 entnehmen kann, ist der RMS-Wert  $\sigma_{korr}$  der Autokorrelation gegeben durch:

$$\sigma_{korr} = \sqrt{2}\sigma_t \quad (3.8)$$

Die eigentliche Länge des Laserpulses ist also um den Faktor  $1/\sqrt{2}$  kleiner als die Breite der Autokorrelation. Dies gilt auch für FWHM<sup>1</sup>-Werte der Gaußglocke.

---

<sup>1</sup> Full Width Half Maximum

### 3.1.1.2 Messung der Pulslänge

Der Messaufbau entspricht schematisch der Abb. 3.1. Als Laserlichtquelle wurde das schon oben erwähnte durchstimbare „Mai Tai Laser System“ der Firma Spectra-Physics verwandt. Der Laser hat eine Repetitionsrate von 80 MHz und eine Ausgangsleistung von ca. 1.6 W. Im Normalbetrieb beträgt die Zentralwellenlänge 795 nm. Als Photodetektor wurde die UPD-200-SP der Firma Alphas verwendet. Dabei handelt es sich um eine sehr schnelle Photodiode, welche Abklingzeiten von unter 2 ns gewährleistet und keinen eingebauten Verstärker besitzt. Der Photostrom wird direkt durch den Spannungsabfall am Abschlusswiderstand der Messkarte des PCs gemessen. Die Messkarte NI PCI-5122 der Firma National Instruments wurde mittels eines 80 MHz Signals getaktet (clock), welches von einer zweiten Diode aufgenommen wurde. Das bedeutet, dass sie 80 Millionen Messwerte pro Sekunde aufnimmt, und zwar phasenstabil zum Laser. Durch entsprechende Kabellängen wurde das Messsignal der UPD-200-SP so verzögert, dass die Messung des Signals genau im Maximum erfolgt. Durch Mittelung mehrerer Millionen Messwerte bei einem Delay und sukzessive Verschiebung des Delays um 10fs wurde die Autokorrelation aufgenommen. Abbildung 3.2 zeigt die gemessene Kurve. Von ihr wurde ein konstanter Hintergrund abgezogen. Die Kurve wurde auf ihr Maximum normiert, und mit einer Gaußglocke gefittet.

Wie man sieht (Abb. 3.2), hat der Gaußfit einen FWHM-Wert von  $207.0 \pm 0.8$  fs, was nach Gleichung 3.8, die auch für FWHM-Werte gilt, einer Pulsbreite von  $146.0 \pm 0.6$  fs entspricht.

### 3.1.2 Spektrum der Pulse

Neben der Länge der Pulse wurde zusätzlich das Spektrum des Laserlichts untersucht. Dieses spielt zum einen für die Anregung der Proben eine wichtige Rolle, da abhängig vom Spektrum besser oder schlechter absorbiert wird und zum Anderen legt die spektrale Breite die untere Grenze der möglichen Pulslänge fest. Wie in Abb. 3.3 zu sehen ist, erhält man für die Halbwertsbreite  $\Delta\lambda$  des durch Regression angenäherten Gaußprofils  $9.7 \pm 0.2$  nm. Mittels der Energie-Zeit-Unschärferelation<sup>2</sup>  $\Delta\nu\Delta t \geq 2\ln(2)/\pi$  lässt sich die minimale Pulsdauer bei gegebener spektraler Breite  $\Delta\nu$  bestimmen. Als spektral limitierte Pulsbreite erhält man hierbei  $\Delta t = 121 \pm 3$  fs. Der Vergleich mit der Pulslänge aus Abschnitt 3.1.1.2 zeigt, dass das die zeitliche Breite der Laserpulse relativ nahe am spektralen Limit ist. Des Weiteren weist der Unterschied der gemessenen Pulslänge und  $\Delta t$  auf einen Frequenzchirp [44] der Pulse hin, welcher zum Einen durch den

---

<sup>2</sup> Dabei sind  $\Delta\nu$  und  $\Delta t$  die Halbwertsbreiten (FWHM) der Gaußprofile [44]

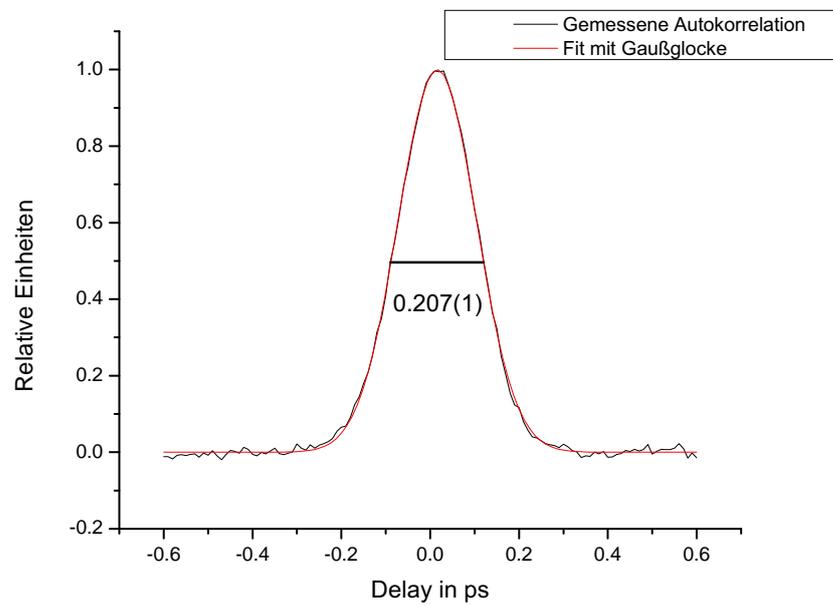


Abb. 3.2: Die gemessene Autokorrelation, normiert auf ihr Maximum und abzüglich eines konstanten Hintergrunds

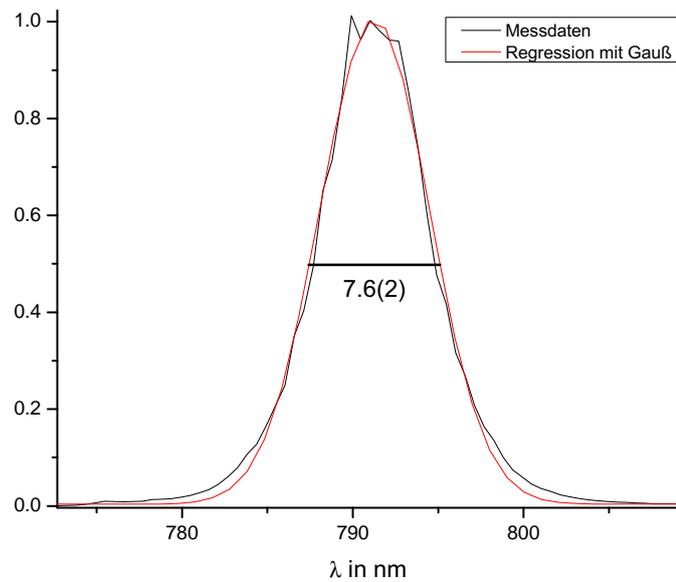


Abb. 3.3: Das aufs Maximum normierte Spektrum der Laserpulse in Abhängigkeit von der Wellenlänge  $\lambda$  in nm

Laser bedingt ist und zum Anderen auf die Dispersion der optischen Komponenten zurückzuführen ist. Das Spektrum zeigt an den Rändern eine leichte Abweichung vom Gaußprofil.

## 3.2 Messverfahren

Im Laufe dieser Arbeit sind auf Grund der heuristischen Arbeitsmethodik, drei unterschiedliche Verfahrensweisen zur Messung der Reflektivitätsänderung nach Anregung mittels eines Laserpulses getestet worden.

Beim ersten handelt es sich um die in der Arbeitsgruppe etablierte Methode eine relative Reflektivitätsänderung zu messen. Dabei werden die Pumppulse mittels eines optischen Choppers mit einer festen Frequenz geblockt bzw. durchgelassen. Dies ermöglicht auf kurzen Zeitskalen die gepumpte und ungepumpte Reflektivität zu messen, und sorgt damit für eine bessere „Wegnormierung“ der Laserschwankungen.

Die zweite Verfahrensweise basiert darauf, die Laserschwankungen nicht durch Normierung zu unterdrücken, sondern durch schnelles Durchfahren des Delays (shaken) die Pumpleistung pro Durchlauf „quasikonstant“ zu halten.

In der dritten Variante wird die Ableitung der relativen Reflektivitätsänderung mittels einer schnell oszillierenden Delayänderung zwischen Pump- und Probestrahl gemessen. Diese drei Verfahren sollen hier nun vorgestellt werden. Dabei wird sich jeweils auf den Aufbau und die Messmethodik bezogen, sowie gemessene Kurven an Festkörperproben besprochen. Die Vor- und Nachteile der einzelnen Messverfahren werden neben der Auswertung und Interpretation der gemessenen Daten im Diskussionskapitel dargelegt.

### 3.2.1 Reflektivitätsmessung mit Chopper im Aufbau

#### 3.2.1.1 Aufbau

Beim ersten Messaufbau (Abb. 3.4) wurden die Laserpulse über einen Strahlteiler (a) in einen Pump- und einen Probestrahl aufgeteilt.

Dabei laufen die Pumppulse über eine verstellbare Wegstrecke (Delay) und passieren einen Chopper (b), welcher mit einer eingestellten Frequenz die Pumpintensität rechteckförmig moduliert. Danach durchläuft der Pumpstrahl eine  $\lambda/2$ -Platte, welche die Polarisation des Lichtes um  $90^\circ$  dreht. Ein folgender Polarisator (c) sorgt für eine definierte Polarisation senkrecht zur Tischebene. Darauf folgend durchquert der Strahl ein

Teleskop und wird dann mittels einer Linse auf die Probe fokussiert. Durch Einstellung des Linsenabstandes des Teleskops kann der Querschnitt des Pumpstrahls auf der Probe festgelegt werden.

Der abfragende Probestrahl durchläuft die gleiche Wegstrecke, jedoch auf einem anderen nicht verstellbaren Pfad. Der am Strahlteiler transmittierte Teil wird als Referenz verwendet und geht direkt durch einen einstellbaren Graufilter (e) auf den Detektor (BPD). Der am Strahlteiler reflektierte Teil wird hingegen auf eine fokussierende Linse geschickt, im Fokus an der zu untersuchenden Probe reflektiert und danach durch einen senkrecht zur Polarisation des Pumpstrahls eingestellten Polarisator (f) auf den Detektor gelenkt. Der „Balanced Photodetector“ (BPD) gibt ein Signal proportional zur Differenz der Intensitäten beider Teilstrahlen aus. Durch Regelung des Graufilters (e) ist es möglich, beide Strahlintensitäten abzugleichen.

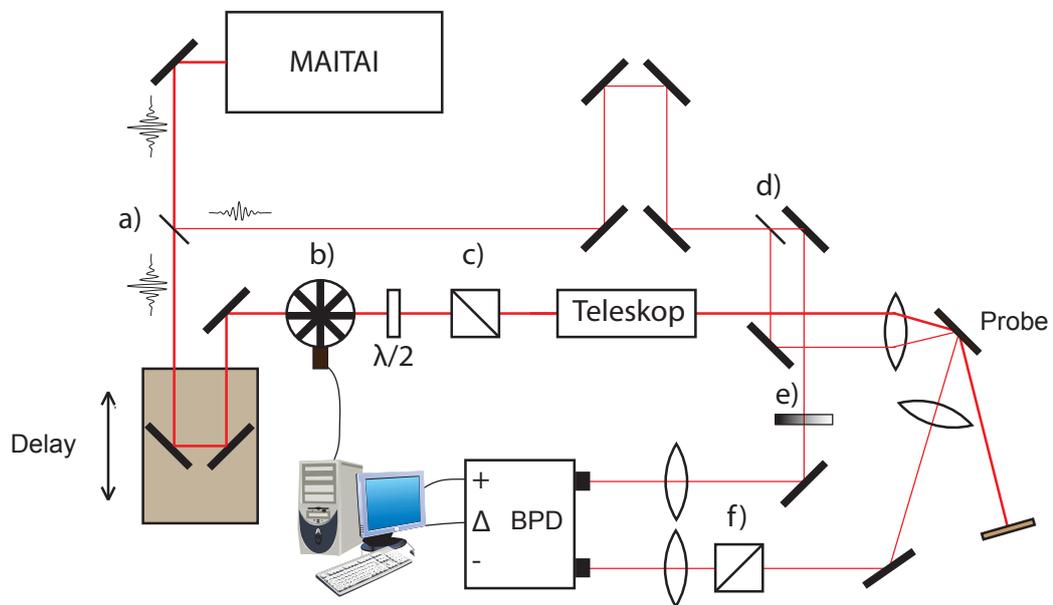


Abb. 3.4: Erklärung: siehe Abschnitt 3.2.1.1

### 3.2.1.2 Messmethodik

Zur Bestimmung der relativen Reflektivitätsänderung  $\Delta R/R_0$  für unterschiedliche Zeitdifferenzen zwischen dem Pump- und dem Probepuls, wird  $\Delta R$  (in Abb. 3.4 mit  $\Delta$  gekennzeichnet) und  $R_0$  (in Abb. 3.4 mit  $+$  gekennzeichnet) mittels des Choppersignals als Trigger für einen festen Zeitversatz gemessen. Diese Messkurven werden durch einander dividiert, und aus der resultierenden Datenkurve die Fourier-Komponente der Chopperfrequenz bestimmt. Diese entspricht gerade der gesuchten Größe  $\Delta R/R_0$ . Durch

sukzessive Änderung des Zeitversatzes  $\tau$  zwischen Pump- und Probestrahl kann dann  $\Delta R/R_0$  über diesen gemessen werden.

### 3.2.1.3 Messungen

Mit Hilfe des beschriebenen Aufbaus, wurde eine GaAs-Probe untersucht. Als erstes wurden Untersuchungen mit einer Wellenlänge von 795 nm und variierenden Zeitdelay bis 300 ps durchgeführt (Messkurve Abb. 3.5). Für Zeiten größer als etwa 25 ps weist die Response einen exponentiellen Abfall  $\tau$  auf. Dieser wurde mittels einer Regression durch eine exponentiell abfallende Funktion ( $\sim \exp(-t/\tau)$ ) bestimmt. Als nächstes

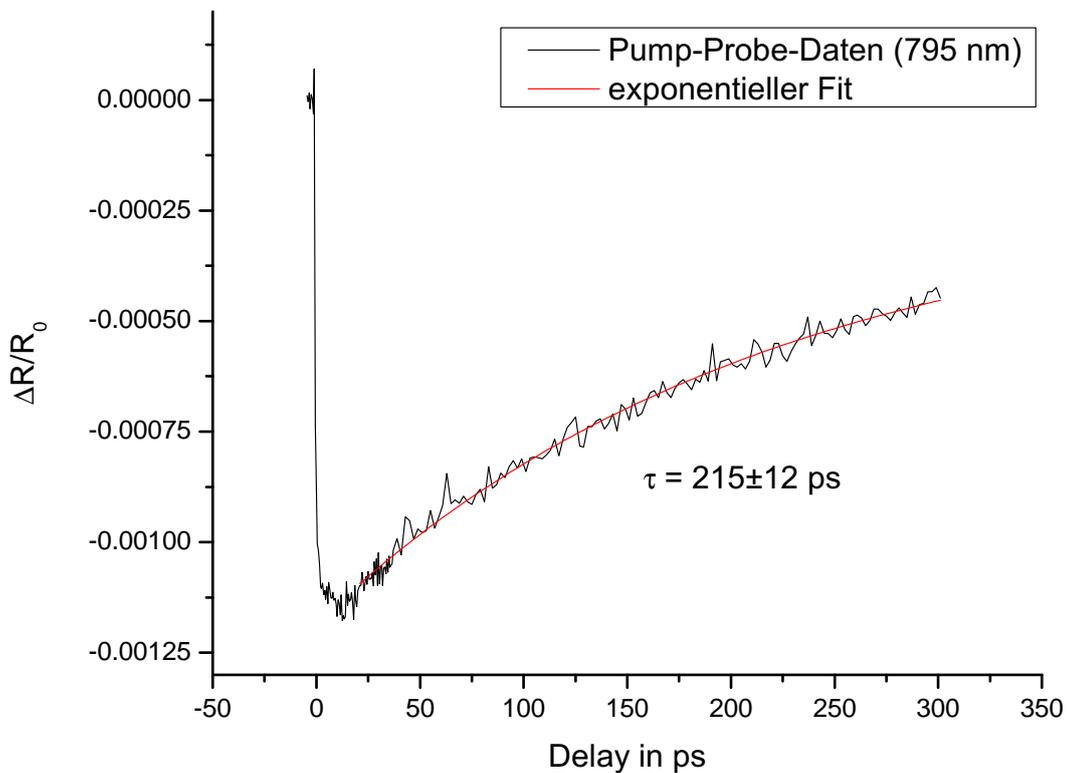


Abb. 3.5: **schwarze Kurve:** gemessenes Pump-Probe-Spektrum von GaAs mit Pump- und Probewellenlänge von 795 nm bis zu einem Delay von ca. 300 ps, **rote Kurve:** Regressionskurve für Zeiten größer als 25 ps unter Annahme eines exponentiell abklingenden Verhaltens ( $\sim \exp(-t/\tau)$ )

wurde das GaAs auf kürzeren Zeitskalen nach der Anregung untersucht (max. 5 ps). Dabei wurde die Wellenlänge des Lasers variiert, und damit die Farbe vom Pump- und Probestrahl verändert. Die gemessenen Kurven sind in Abb. 3.6 für ausgewählte

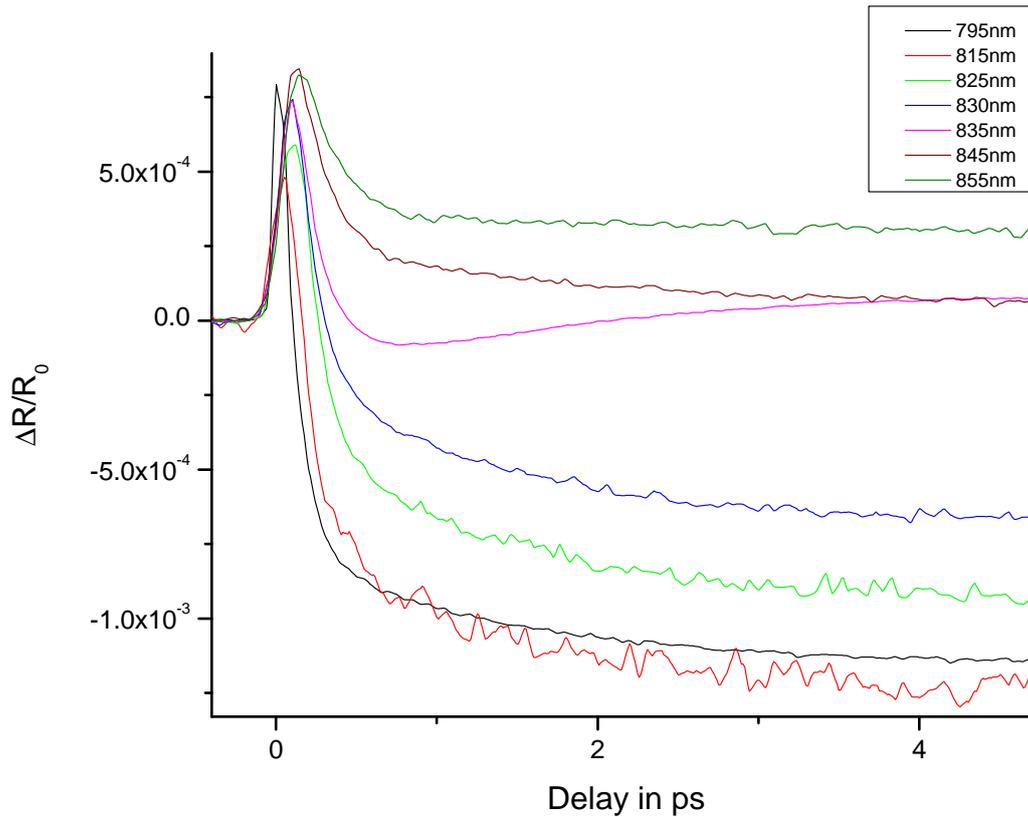


Abb. 3.6: Pump-Probe Spektren von GaAs für für ausgewählte Wellenlängen zwischen 795 nm und 855 nm von Pump- und Probestrahl

Wellenlängen zwischen 795 nm und 855 nm aufgetragen.

Zu Untersuchung des Responseverhaltens in der Nähe der Bandkante von GaAs ( $E_g = 1.42 \text{ eV} \hat{=} 873 \text{ nm}$ ), wurde eine weitere Messreihe mit Wellenlängen zwischen 865 nm und 895 nm für Pump- und Probestrahl durchgeführt. Die gemessenen Änderungen der relativen Reflektivität in Abhängigkeit vom Zeitversatz von Pump- und Probestrahl sind in Abb. 3.7 für den genannten Wellenlängenbereich aufgetragen.

Die Pumpfluenz liegt bei allen Messreihen im Bereich von  $20 \frac{\mu\text{J}}{\text{cm}^2}$  (795 nm), variiert jedoch leicht mit der gewählten Wellenlänge, da der Laser bei längeren Wellenlängen relativ zu 795 nm eine geringere Ausgangsleistung hat, welche sich bei 875 nm in etwa halbiert.

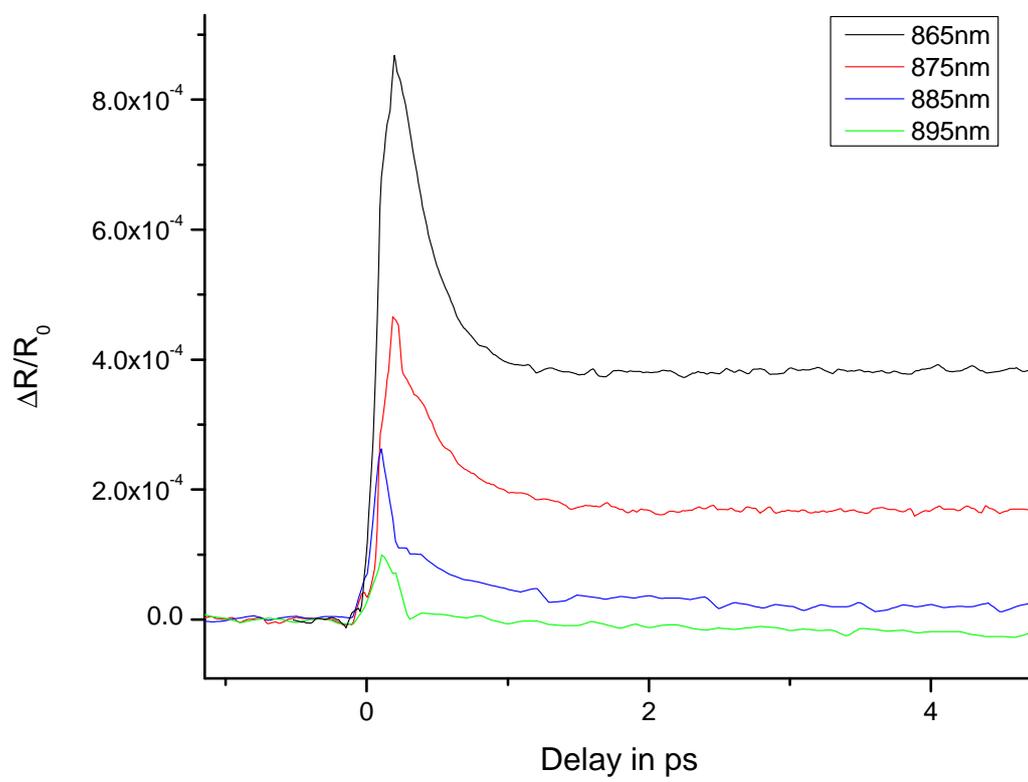


Abb. 3.7: Pump-Probe Spektren von GaAs für für ausgewählte Wellenlängen zwischen 865 nm und 895 nm von Pump- und Probestrahl

## 3.2.2 Pump-Probe mit einem Shaker im Aufbau

### 3.2.2.1 Aufbau

Als Variation des ersten optischen Pump-Probe-Aufbaus wurde ein Shaker in den Aufbau eingebracht (Abb. 3.8). Dieser ersetzt die Delaystage und den Chopper im Strahlengang des Pumpstrahls vom 1. Aufbau (Abb. 3.4). Um eine hohe Variabilität der Wegstreckendifferenz von Pump- und Probestrahl beizubehalten, wurde eine verstellbare Delaystrecke in den Strahlengang des Probestrahls implementiert. Das von einem Frequenzgenerator erzeugte Sinussignal wird vom Shaker in eine Sinusoszillation des darauf montierten Retroreflektors überführt. Diese Oszillation sorgt direkt für eine Modulation der Wegstreckendifferenz von Pump- und Probestrahl. Dadurch ist es möglich ein festes Delayfenster ( $\approx 15$  ps) relativ schnell repetitiv ( $\approx 30$  Hz) abzufahren. Durch Änderung der Position der Spiegel auf der Delaystrecke im Probestrahl lässt sich dieses „Fenster“ nach belieben verschieben.

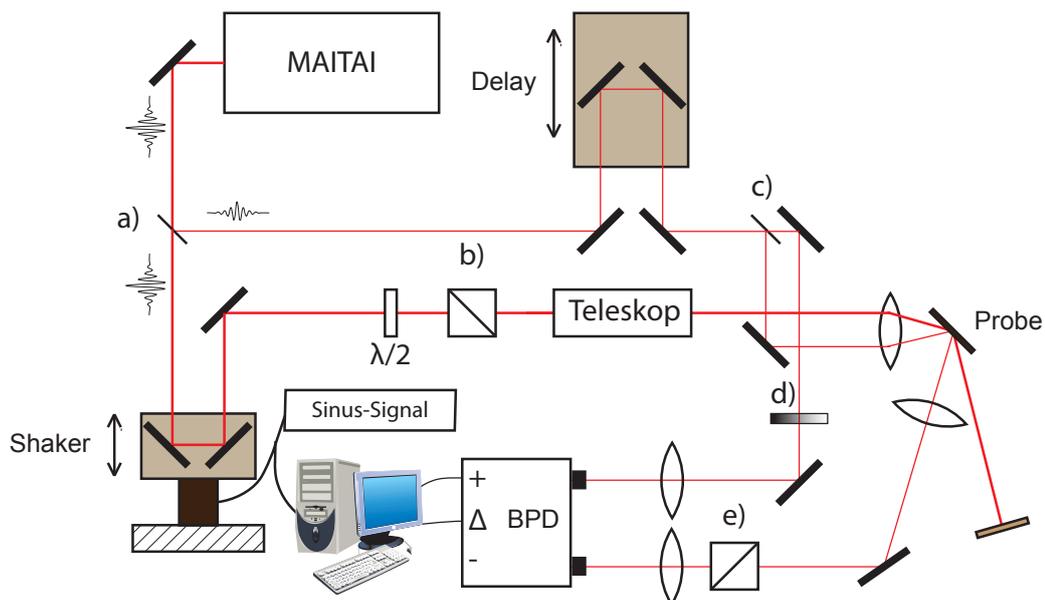


Abb. 3.8: Das Laserlicht wird durch Reflexion an einem Fenster a) in Pump- und Probestrahl aufgeteilt. Der Pumpstrahl läuft über einen Shaker (oszillierender Retroreflektor) durch eine  $\lambda/2$ -Platte was zu einer  $90^\circ$  Drehung der Polarisation führt. Darauf folgend durch einen Polarisator wodurch das Licht linear polarisiert wird, dann durch ein Teleskop und passiert schlussendlich eine Linse, durch die der Strahl auf die Probe fokussiert wird. Der Probestrahl läuft über eine verschiebbare Delaystrecke (Delay) durch eine 50/50-Strahlteiler (c), wobei der transmittieren Teil als Referenz durch einen Graufilter (d) direkt auf den Detektor geht. Der am Strahlteiler (c) reflektierte Teil wird durch eine Linse auf die Probe geschickt und darauf folgend mittels eines Spiegels durch einen senkrecht zu b) polarisierenden Polarisator (e) auf die andere Diode der BPD geführt.

### 3.2.2.2 Messmethodik

Nach Positionierung der Stage im Probestrahl und gegebener Oszillation des Shakers, lässt sich die relative Reflektivitätsänderung  $\Delta R/R_0$  für verschiedene Shakerpositionen messen. Dabei wird die Messkarte NI PCI-5122 auf das Eingangssignal des Shakers getriggert. Die Abtastrate der Messkarte bestimmt hierbei die Anzahl der Messwerte pro Shakerperiode. Je höher die Samplingrate ist, desto feiner wird das Pump-Probe-Signal abgerastert. Dabei werden ähnlich wie im ersten Aufbau  $\Delta R$  (in Abb. 3.8 mit  $\Delta$  gekennzeichnet) und  $R_0$  (in Abb. 3.8 mit  $+$  gekennzeichnet) gemessen und durcheinander dividiert. Dadurch erhält man eine Messkurve der relativen Reflektivitätsänderung  $\Delta R/R_0$  in Abhängigkeit von der Samplenummer nach dem Triggerevent. Da aber  $\Delta R/R_0$  in Abhängigkeit vom zeitlichen Versatz (Delay) von Interesse ist, muss außerdem der funktionale Zusammenhang zwischen Samplenummer und Delay hergestellt werden. Da die Samples einen zeitlich festen Abstand zu einander haben, und der Shaker eine Sinusschwingung in Abhängigkeit von der Zeit ausführt, besteht auch ein sinusförmiger Zusammenhang zwischen Samplenummer und Shakerposition.

Um jedem Sample nach dem Triggerevent einen Delay zuzuweisen, wurde die relati-

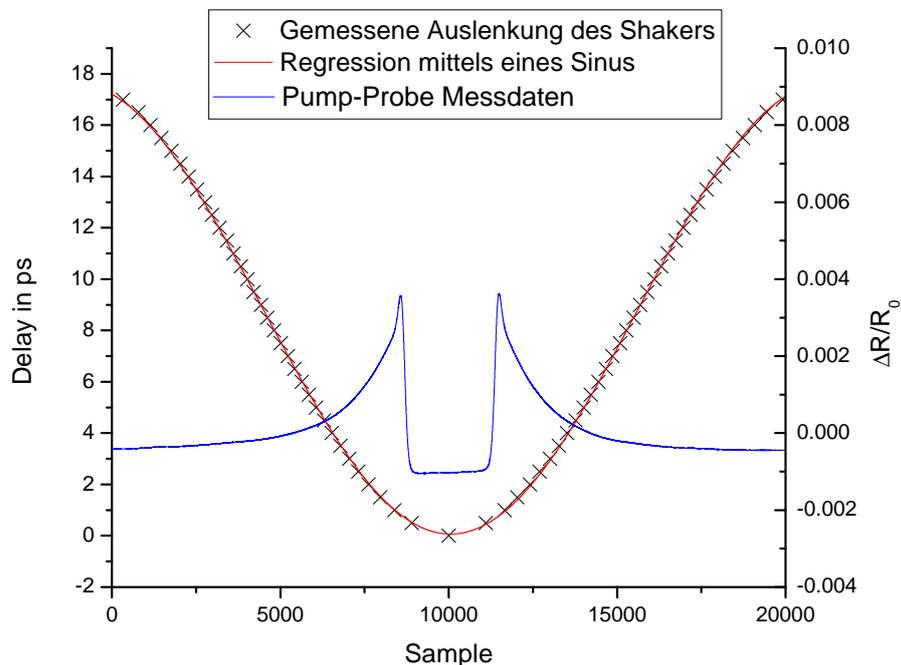


Abb. 3.9: **blaue Kurve:** gemessenes Pump-Probe-Signal des GaAs-AlAs-Übergitters für eine Stageposition, **Kreuze:** Gemessene Position des elektronischen Peaks des GaAs-AlAs-Übergitters für verschiedene Stagepositionen, **rote Kurve:** nichtlineare Regression der Messwerte mittels einer Sinuskurve

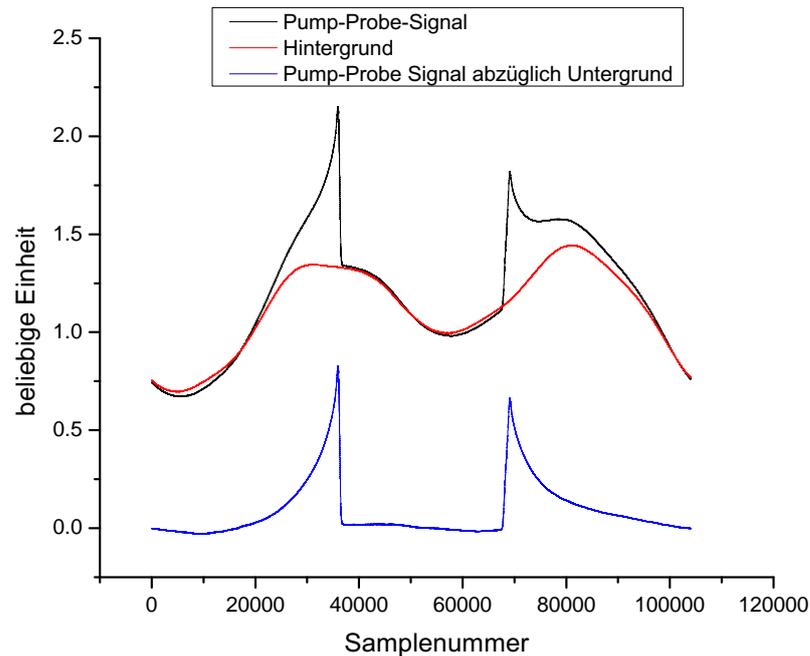


Abb. 3.10: Das Pump-Probe-Signal (schwarz) wird durch Subtraktion der Hintergrundmessung (rot) korrigiert (blau).

ve Reflektivitätsänderung  $\Delta R/R_0$  eines GaAs-AlAs Übergitters mittels dieses Aufbaus gemessen. Dabei erhält man bei fest eingestelltem Delay des Probestrahls einen charakteristischen elektronischen Peak des Übergitters (blaue Kurve Abb. 3.9). Da der Shaker in einer Periode zweimal den gleichen Delay durchläuft, wird ein zum Umkehrpunkt des Shakers symmetrisches Signal gemessen. Der elektronische Peak ist folglich zweimal pro Umlauf des Shakers zu sehen. Durch notieren der Positionen des elektronischen Peaks für verschieden eingestellte Verzögerungsstrecken des Probestrahls (Kreuze Abb. 3.9) erhält man den gemessenen Zusammenhang zwischen Zeitdifferenz von Pump- und Probestrahl und Samplenummer. Mittels einer nichtlinearen Regression dieser Messwerte durch eine Sinuskurve erhält man einen funktionalen Zusammenhang mit dem man jedem Sample einen Delay zuordnen kann (rote Kurve Abb. 3.9).

Das schnelle Abscannen des Delaybereichs führt jedoch zu einer störenden Abhängigkeit des Hintergrundsignals von der Shakerposition. Um dies aus den Messdaten herauszurechnen, wird vor jeder Messung eine Hintergrundmessung durchgeführt. Dazu wird der Delay des Probelichts soweit verändert, dass der Scannbereich des Shakers einige

Pikosekunden vor dem eigentlichen Zeitnullpunkt<sup>3</sup> liegt. Dort wird dann eine Messung über den ganzen Scannbereich durchgeführt. Das gemessene Pump-Probe-Signal kann dann durch abziehen des Hintergrunds korrigiert werden (Abb. 3.10).

### 3.2.2.3 Messungen

Als erstes zu untersuchendes Objekt wurde ein GaAs-Al<sub>0.4</sub>Ga<sub>0.6</sub>As-Übergitter benutzt. Dabei handelt es sich um ein aus 2000 Schichten bestehendes Übergitter, welches mittels Molekularstrahlepitaxie [10] gewachsen wurde. Dieses Übergitter ist alternierend aus zwei unterschiedlichen kristallinen Materialien aufgebaut, einer 8 nm dicken GaAs und einer 8 nm dicken Al<sub>0.4</sub>Ga<sub>0.6</sub>As Schicht.

Die Messungen wurden bei einer Wellenlänge von 795 nm und einem Einfallswinkel von 6° zum Lot der Probe durchgeführt. Die Pumpfluenz betrug ca.  $25 \frac{\mu\text{J}}{\text{cm}^2}$ . Abb. 3.11 zeigt die zeitaufgelöste Reflektivitätsänderung des GaAs-Al<sub>0.4</sub>Ga<sub>0.6</sub>As-Übergitters.

Als zweite Probe wurde ein GaAs-AlAs Übergitter benutzt. Dabei wurde mit 2 verschiedenen Wellenlängen des Pump- und Probelichts gemessen. Die gemessenen Daten sind in Abbildung 3.12 aufgetragen. Die Geometrie und Fluenz der Messung dieses Übergitters entsprechen den Einstellungen des vorhergehenden. Als drittes Versuchsobjekt wurde ein STO/SRO-Übergitter verwendet. Dieses besteht aus 30 Doppellagen, davon sind jeweils 9 nm STO und 5 nm SRO. Da der Shaker an den Rändern des Messfensters, also an den Umkehrpunkten ein leicht anharmonisches Verhalten zeigt, wurden mehrere Messkurven mit versetztem Messfenster aufgenommen. Danach wurden die mittleren Bereiche der einzelnen Messkurven zusammengesetzt. Die daraus resultierende Kurve wurde nachträglich mit einer Gaußfunktion der Halbwertsbreite von 100fs geglättet. Dadurch erhält man dann das in Abb. 3.13 gezeigte Pump-Probe-Spektrum. Die Pumpfluenz betrug hierbei etwa  $55 \frac{\mu\text{J}}{\text{cm}^2}$ . Der Probestrahl wurde unter einen Einfallswinkel von ca. 20° zum Lot der Oberfläche der Probe auf das Übergitter geschickt.

---

vor Zeitnullpunkt  $\hat{=}$  Probepuls trifft Probe zeitlich vor dem Pumpimpuls  
<sup>3</sup> Zeitnullpunkt  $\hat{=}$  Pump- und Probepuls treffen gleichzeitig auf die Probe  
nach Zeitnullpunkt  $\hat{=}$  Pumpimpuls trifft Probe zeitlich vor dem Probepuls

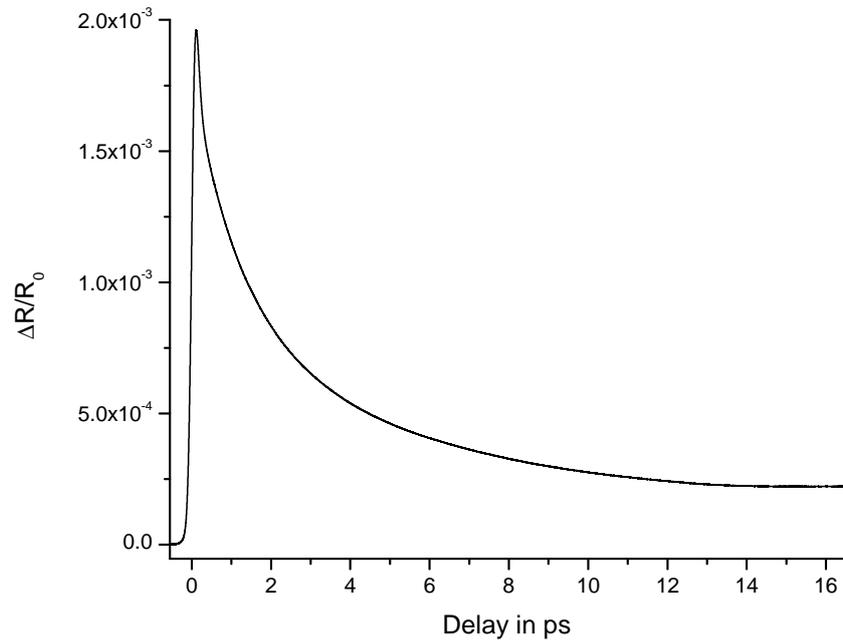


Abb. 3.11: Relative Reflektivitätsänderung des Probestrahls in Abhängigkeit zum Zeitversatz zwischen Pump- und Probepulse des GaAs-Al<sub>0,4</sub>Ga<sub>0,6</sub>As-Übergitters

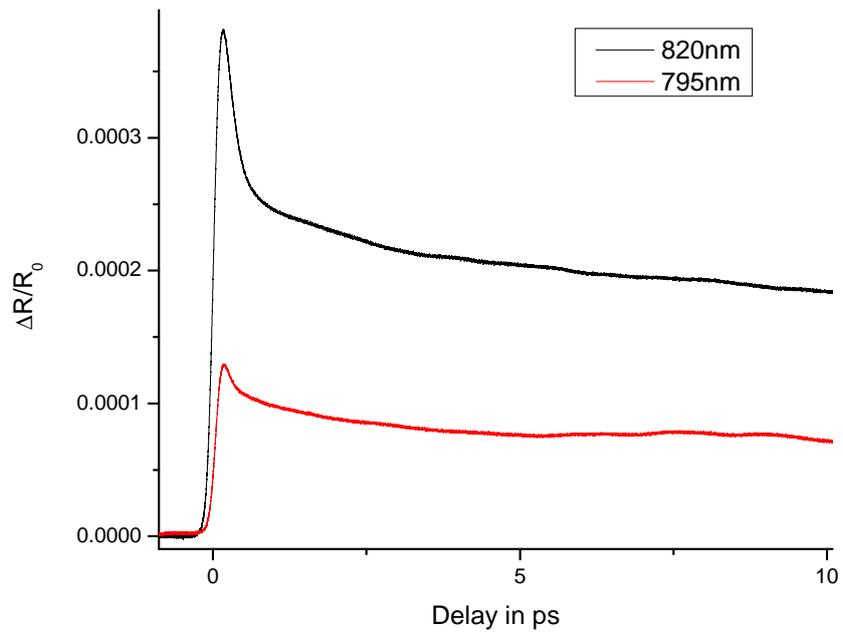


Abb. 3.12: Pump-Probe-Spektren eines GaAs-AlAs Übergitters bei zwei verschiedenen Wellenlängen von Pump- und Probestrahl

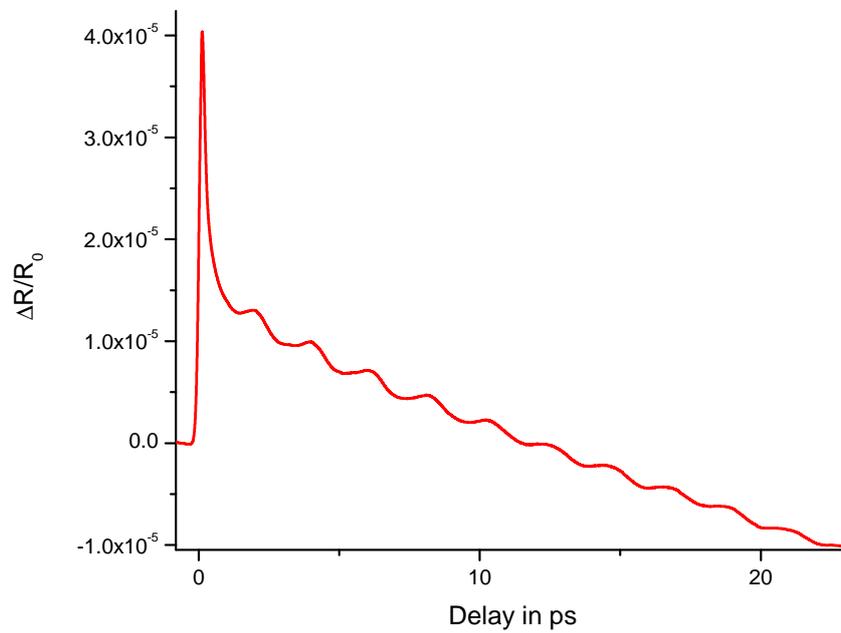


Abb. 3.13: Pump-Probe-Spektrum eines STO/SRO-Übergitter mit Pump- und Probewellenlänge von 795 nm

### 3.2.3 Messung der Ableitung der Reflektivitätsänderung

#### 3.2.3.1 Aufbau

Neben dem üblichen Verfahren der direkten Messung der relativen Reflektivitätsänderung  $\Delta R/R_0$  ist es auch möglich deren Ableitung über den Delay zu messen. Um dies zu realisieren, wurde der Aufbau aus Abb. 3.8 vollständig übernommen, jedoch wurden andere Einstellungen vorgenommen. Dabei wurde die Zeitversatz-Amplitude des Shakers auf ca. 2 Pulslängen eingestellt. Um dies zu ermöglichen, wurde vor der eigentlichen Messung anstatt der Probe ein BBO-Kristall zur Autokorrelation in den räumlichen Überlapp des Pump- und Probestrahls gebracht. Ähnlich wie in Abbildung 3.9 gibt es zwei Punkte in der Oszillationsperiode des Shakers, an denen Pump- und Probe zeitlich überlagern und dadurch ein Autokorrelationssignal entsteht. Diese beiden (Zeit)Punkte wurden dann durch Einstellung der Stage an die beiden äußeren Umkehrpunkte des Shakers gesetzt (3.9 ganz links und ganz rechts vom Sinus). Außerdem wurde durch Regulation der Maximalspannung des Sinus für den Shaker die Auslenkung so eingestellt, dass der Abstand der beiden Autokorrelationssignale in etwa 2 Pulslängen entspricht. Nach dieser Prozedur wurde der BBO Kristall durch die eigentlich zu untersuchende Probe ersetzt.

#### 3.2.3.2 Messmethodik

Durch das Abscannen eines sehr kleinen Delayintervalls mit einer festen Oszillationsfrequenz ist es nun möglich, die Ableitung der relativen Reflektivitätsänderung  $\Delta R/R_0$  nach dem Delay zu messen. Abb. 3.14 beschreibt dabei die Grundidee des Messverfahrens. Durch eine kleine Modulation des Delays um  $\Delta t$  bei einem Delay  $t$  wird eine Modulation  $\Delta(\Delta R/R_0)$  der gleichen Frequenz im Reflektivitätssignal erzeugt. Durch Messung der Amplitude und der Phase der Shakerfrequenz im Reflektivitätssignal erhält man für genügend kleine Oszillationen des Shakers die Ableitung der relativen Reflektivitätsänderung. Zur Messung von Amplitude und Phase wurde ein Lock-In Verfahren [50] angewandt. Dabei wurde die selbe Messkarte wie in den anderen Aufbauten benutzt, und die Datenanalyse durch ein eigens in Software implementiertes Lock-In Verfahren durchgeführt.

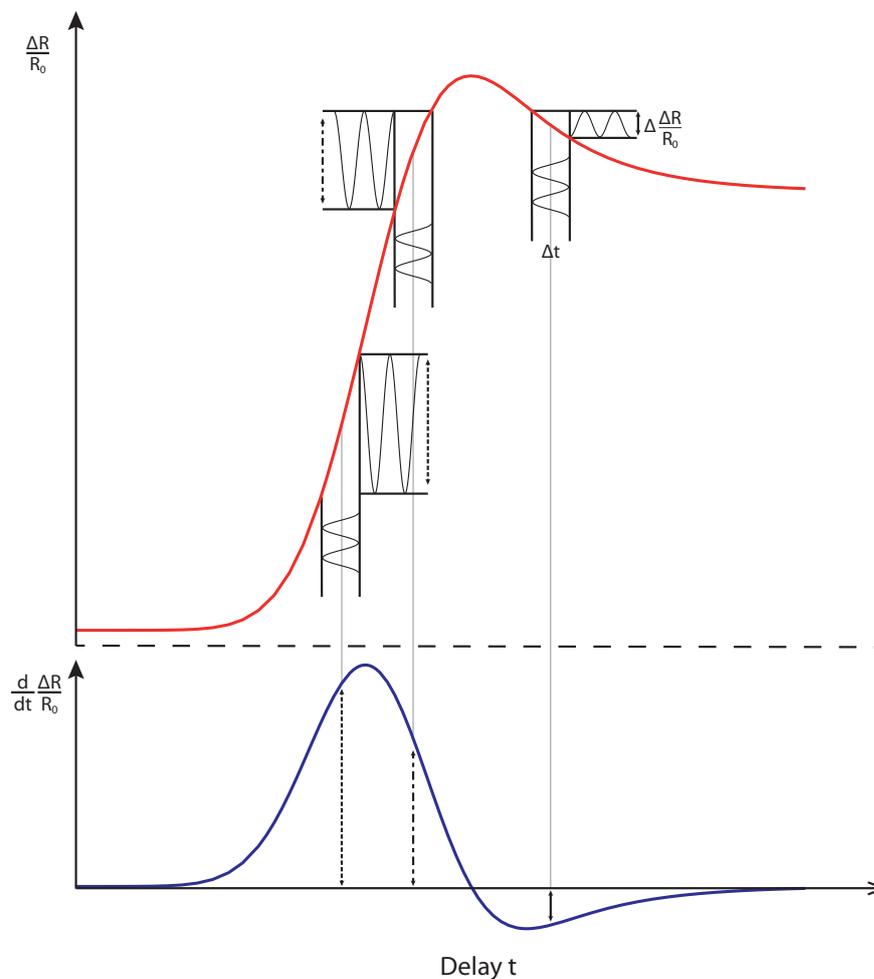


Abb. 3.14: Die **rote Kurve** sei ein beliebiges Reflektivitätssignal in Abhängigkeit vom Delay. Die horizontal oszillierenden Schwingungen sollen hier das repetitive Abfahren der Delayintervalle durch den Shaker schematisch darstellen. Die vertikalen Schwingungen geben das daraus resultierende zeitliche Verhalten der Reflektivität wieder. Die **blaue Kurve** ist die Fourier-Komponente der Shakerfrequenz im Reflektivitätssignal multipliziert mit dem Cosinus der Phase (zwischen Shakeroszillation und Reflektivitätssignal), was der Ableitung der roten Kurve entspricht.

### 3.2.3.3 Messungen

Mit diesem Aufbau wurden zwei Proben mit einer Pump- und Probewellenlänge von 795 nm vermessen.

Bei der ersten Probe handelt es sich um das GaAs-Al<sub>0,4</sub>Ga<sub>0,6</sub>As-Übergitter welches schon in Abschnitt 3.2.2.3 besprochen wurde. Die gemessene Ableitung der relativen Reflektivitätsänderung ist in Abb. 3.15 aufgetragen. Der Einfallswinkel des Probestrahls liegt bei etwa 6° zum Lot der Probenoberfläche. Die numerisch aufintegrierte Kurve der Messung ist in Abb. 3.16 zu finden. Sie entspricht der relativen Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit vom Zeitversatz zwischen Pump- und Probestrahl.

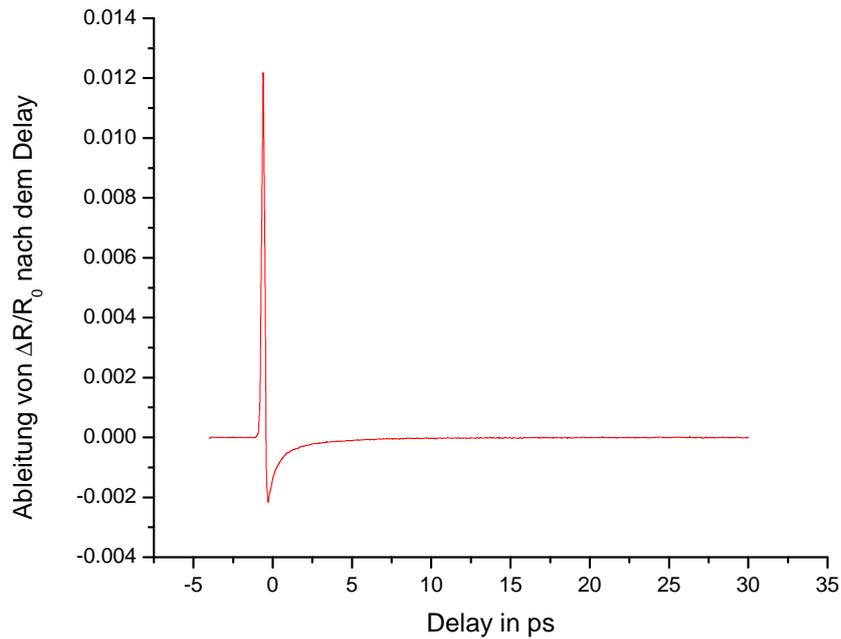


Abb. 3.15: Ableitung der relativen Reflektivitätsänderung eines GaAs-Al<sub>0.4</sub>Ga<sub>0.6</sub>As-Übergitters aufgetragen über den Delay zwischen Pump- und Probestrahl

Als zweites Objekt wurde ein LSMO-Übergitter<sup>4</sup> benutzt. Diese Probe gehört zu den Ruddlesden-Popper Serien [7], und besitzt auf Grund seiner kristallinen Struktur eine intrinsische Übergitterperiode. Die gemessene Ableitung der relativen Reflektivitätsänderung ist in Abb. 3.17 aufgetragen. Das daraus durch numerische Integration gewonnene Pump-Probe-Spektrum ist in Abb. 3.18 zu finden.

<sup>4</sup>(La<sub>n-nx</sub> Sr<sub>1+nx</sub>)Mn<sub>n</sub>O<sub>3n+1</sub> mit der Anzahl der Einheitszellen n=3, und einem Wert  $x = 0.35$ , welcher den mittleren Anteil von Strontium von allen Strontium- und Lanthanatomen in der Einheitszelle festlegt

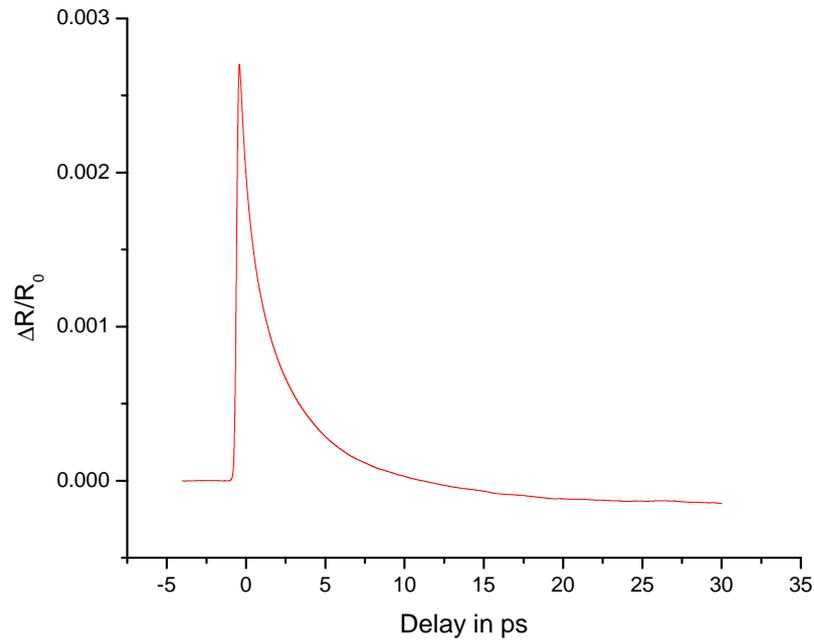


Abb. 3.16: relative Reflektivitätsänderung eines GaAs-Al<sub>0,4</sub>Ga<sub>0,6</sub>As-Übergitters aufgetragen über den Delay zwischen Pump- und Probestrahl, welche durch Integration der gemessenen Ableitung (Abb. 3.15) ermittelt wurde

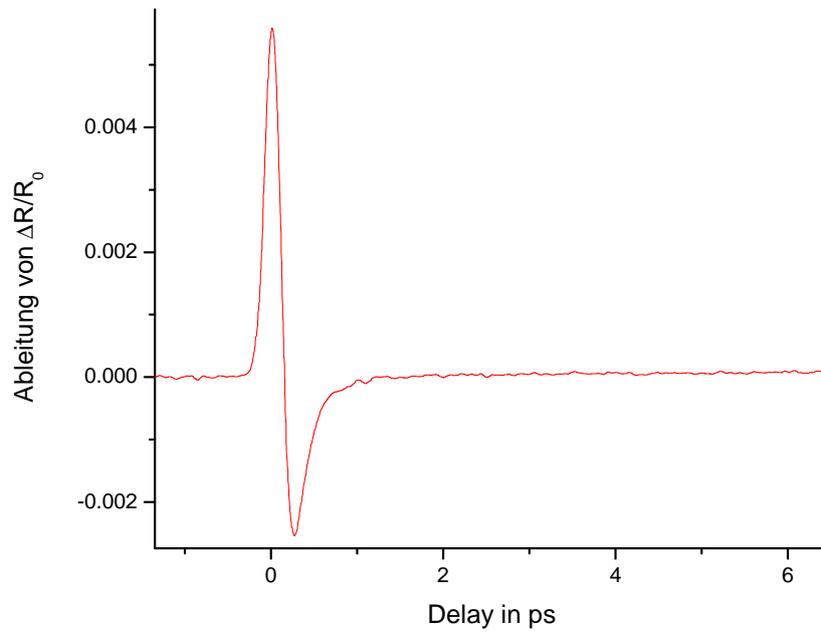


Abb. 3.17: Ableitung der relativen Reflektivitätsänderung des LSMO-Übergitters aufgetragen über den Delay zwischen Pump- und Probestrahl

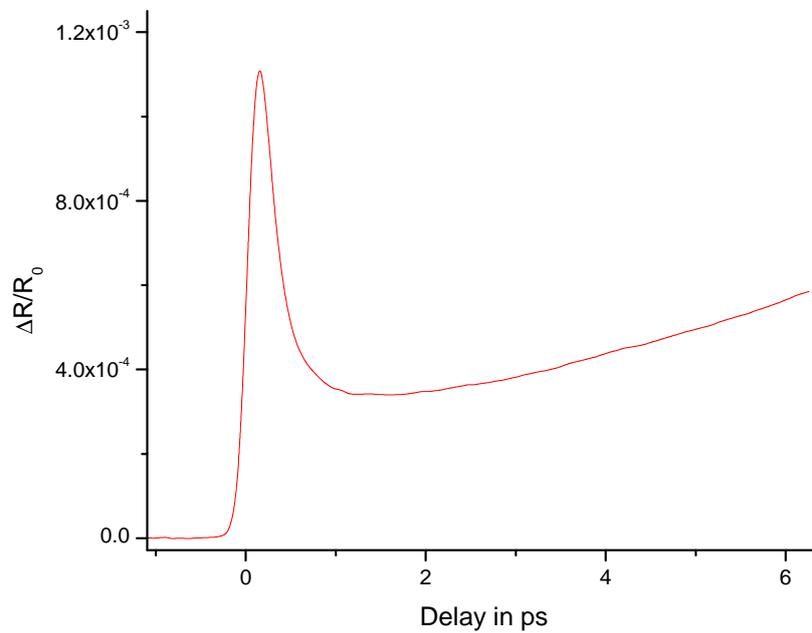


Abb. 3.18: Ableitung der relativen Reflektivitätsänderung des LSMO-Übergitters aufgetragen über den Delay zwischen Pump- und Probestrahl

# 4 Diskussion

In diesem Abschnitt sollen die gemessenen Daten aus dem Kapitel Experimente (3) einer physikalischen Betrachtung unterzogen werden. Dabei soll den wesentlichen Merkmalen der einzelnen Messkurven eine physikalische Ursache zugeordnet werden. Es wird zunächst auf die Gallium-Arsenid-Probe eingegangen. Danach folgt eine Analyse der Messdaten des STO/SRO-Übergitters, des GaAs-AlGaAs Übergitters, sowie des LSMO-Übergitters. Zum Ende dieses Kapitels werden die drei unterschiedlichen Messverfahren der relativen Reflektivitätsänderung gegenübergestellt und Vor- sowie Nachteile der einzelnen diskutiert.

## 4.1 Messungen an der Gallium-Arsenid-Probe

Die gemessenen relativen Reflektivitätsänderungen von GaAs (Abb. 3.6 auf Seite 31 und 3.7 auf Seite 32) bei verschiedenen Pump- und Probewellenlängen auf kurzen Zeitskalen nach der Anregung durch den Pumpstrahl (bis 5 ps) besitzen alle ein ähnliches Verhalten. Nach der Anregung nimmt die Reflektivität rasch zu und fällt dann langsamer ab.

Der wesentliche Grund der Reflektivitätsänderung ist in der Umverteilung der Elektronen durch den Pumpimpuls aus dem Valenzband in das Leitungsband des GaAs zu finden. Diese Umverteilung hat einen Einfluss auf die dielektrische Funktion von GaAs (Abb. 4.1). Nach Gleichung 2.3 auf Seite 7 lässt sich die dielektrische Funktion allgemein bestimmen. Diese kann in einen Realteil  $\epsilon_r(\omega)$  und einen Imaginärteil  $\epsilon_i(\omega)$  zerlegt werden. Dadurch lässt sich  $\epsilon_i(\omega)$  folgendermaßen ausdrücken [3]:

$$\epsilon_i(\omega) = \frac{2\pi e^2 \hbar^2}{m^2 \omega^2} \sum_{nn'} \int \frac{d^3k}{4\pi^3} \{f(E_n) - f(E_{n'})\} |p_{nn'}|^2 \delta(\hbar\omega - (E_{n'} - E_n)) \quad (4.1)$$

Dabei sind  $m$  die freie Elektronenmasse,  $n$  und  $n'$  die Bandindizes,  $f$  die energetische Verteilungsfunktion der Ladungsträger und  $|p_{nn'}|^2$  die Übergangswahrscheinlichkeit des

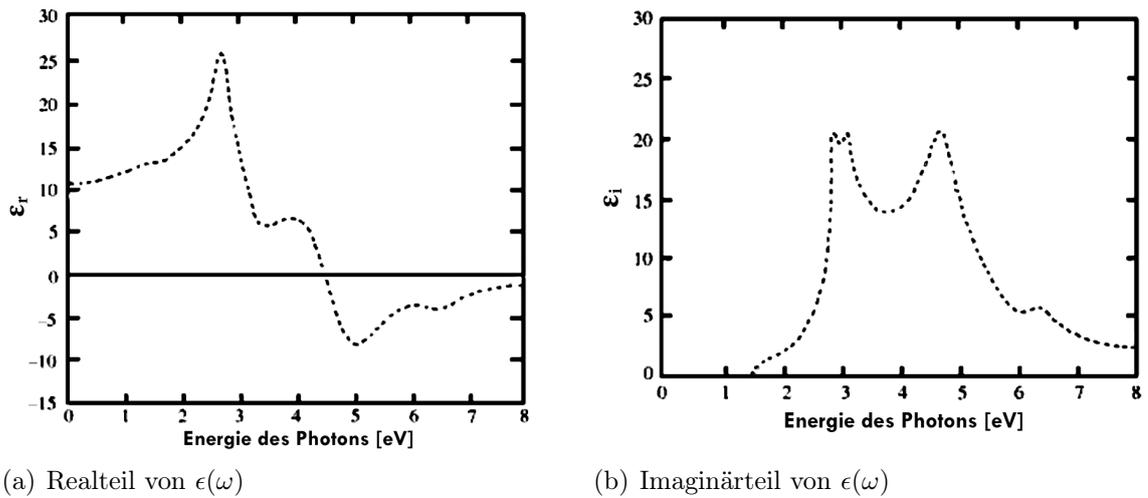


Abb. 4.1: Die dielektrische Funktion von GaAs: (a) Realteil der dielektrischen Funktion von GaAs; (b) Imaginärteil der dielektrischen Funktion von GaAs; Quelle: [57]

jeweiligen Übergangs.

Laserlicht mit einer Wellenlänge von 795 nm, entsprechend einer Photonenergie von 1.56 eV, liegt energetisch etwas über der Bandlücke von GaAs (1.42 eV siehe. Abb. 4.2). Das Einstrahlen des Pumpimpulses hat demnach eine Absorption des Laserlichts und damit eine Erzeugung von Elektron-Loch-Paaren zu Folge. Dies ändert die Besetzung des Valenz- und Leitungsbandes und damit die Funktion  $f$  dieser Bänder aus Gleichung 4.1. Nach schneller Thermalisierung der Ladungsträger führt die Besetzungszahländerung für Energien etwas größer als die der Bandlücke zu einer Verminderung des Integrals aus Gleichung 4.1 und damit zu einer Verminderung der dielektrischen Funktion im Bereich dieser Energien. Real- und Imaginärteil der dielektrischen Funktion sind über die Kramers-Kronig-Relationen [57] verknüpft. Mit jenen folgt aus der Verminderung des Imaginärteils der dielektrischen Funktion für die Energien nahe der Bandlücke eine Verminderung des Realteils für Energie kleiner als diese und eine Erhöhung des Realteils für Energien viel größer als die der Bandlücke. Die Reflektivität für verschiedene Energien des Lichtes ist durch die Fresnel'schen Formeln [23] gegeben, wobei sich der komplexe Brechungsindex durch die Wurzel der dielektrischen Funktion ergibt.

Das Probelicht erfährt demnach abhängig von seinen spektralen Anteilen unterschiedliche Reflektivitätsänderungen. Diese sind jedoch auf nichttriviale Weise mit der Besetzung der Bänder verknüpft. Einige qualitative Aussagen sind dennoch möglich.

Das Abklingverhalten kurz nach der Anregung in allen Wellenlängenbereichen des Probelichts wird im Wesentlichen durch die Kopplung der Elektronen und Löcher an die Phononen hervorgerufen, wobei sich die Abklingzeit von einigen 100 fs mit den Angaben von Kim und Yu [25] deckt. Dabei ist der Temperaturengleich zwischen den Ladungs-

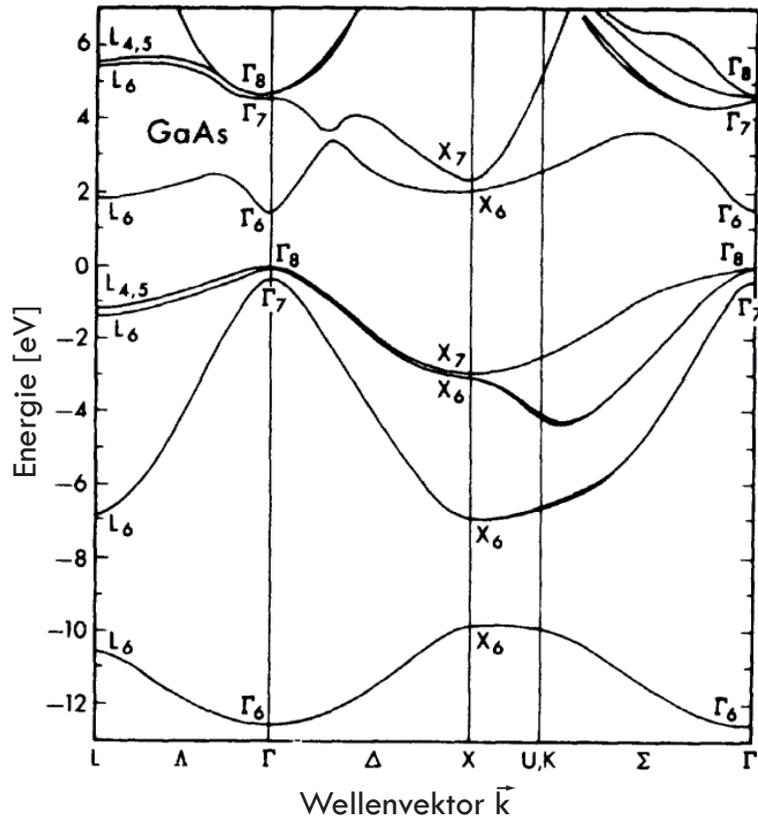


Abb. 4.2: Elektronische Bandstruktur von GaAs; Quelle: [9]

trägern und dem Phononengas innerhalb der ersten 4 ps abgeschlossen.

Im thermischen Gleichgewicht angekommen, befinden sich Elektronen und Löcher in einer relativ langlebigen Position. Erst nach sehr langen Zeiten relaxiert das System in den eigentlichen Ausgangszustand vor der Anregung zurück. Wie man aus Abb. 3.5 entnehmen kann, handelt es sich dabei um eine Abklingzeit von ca. 210 ps. Der hauptsächliche Beitrag dieses Abklingens wird durch die Rekombination der Elektron-Loch-Paare und der damit einhergehenden Photolumineszenz verursacht. Bei Bestrahlung mit Pumplicht der Wellenlängen 865 nm bis 895 nm und der Bandlücke des GaAs von 1.42 eV was 873 nm entspricht, regt man nahe bzw. unterhalb der Bandkante des Leitungsbandes an. Dabei kann man in Abb. 3.7 auf Seite 32 gut erkennen, wie das Responseverhalten zu längeren Wellenlängen hin abnimmt. Andererseits, kann man bei einer Zentralwellenlänge von 895 nm, was abzüglich der spektralen Breite der Laserpulse ca. 30 meV unter der Bandkante liegt, ein Responseverhalten erkennen, welches einerseits auf eine Absorption unterhalb der vermeidlichen Bandkante oder andererseits auf eine Ramananregung des Materials hindeuten könnte.

## 4.2 Halbleiterübergitter aus GaAs und $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$

Das an dem GaAs-AlGaAs gemessene Pump-Probe-Spektrum aus dem Shaker-Aufbau (Abb. 3.11 auf Seite 37) sowie die numerisch aufintegrierte Ableitungskurve (Abb. 3.16 auf Seite 42) welche mit dem Lock-In-Verfahren gemessen wurde, zeigen beide einen charakteristischen elektronischen Peak welcher ähnlich wie beim reinen GaAs mit der Absorption der Photonen und der Erzeugung von Elektron-Loch-Paaren verbunden ist. Bei genauerer Analyse der Ableitungsdaten, werden jedoch noch kleine Modulationen der Reflektivität sichtbar. Nach Abzug des elektronischen Verhaltens von der Ableitung der relativen Reflektivitätsänderung (rote Kurve in Abb. 4.3), erhält man nach Mittelung über einige benachbarte Messwerte die schwarze Kurve in Abb. 4.3. Nach

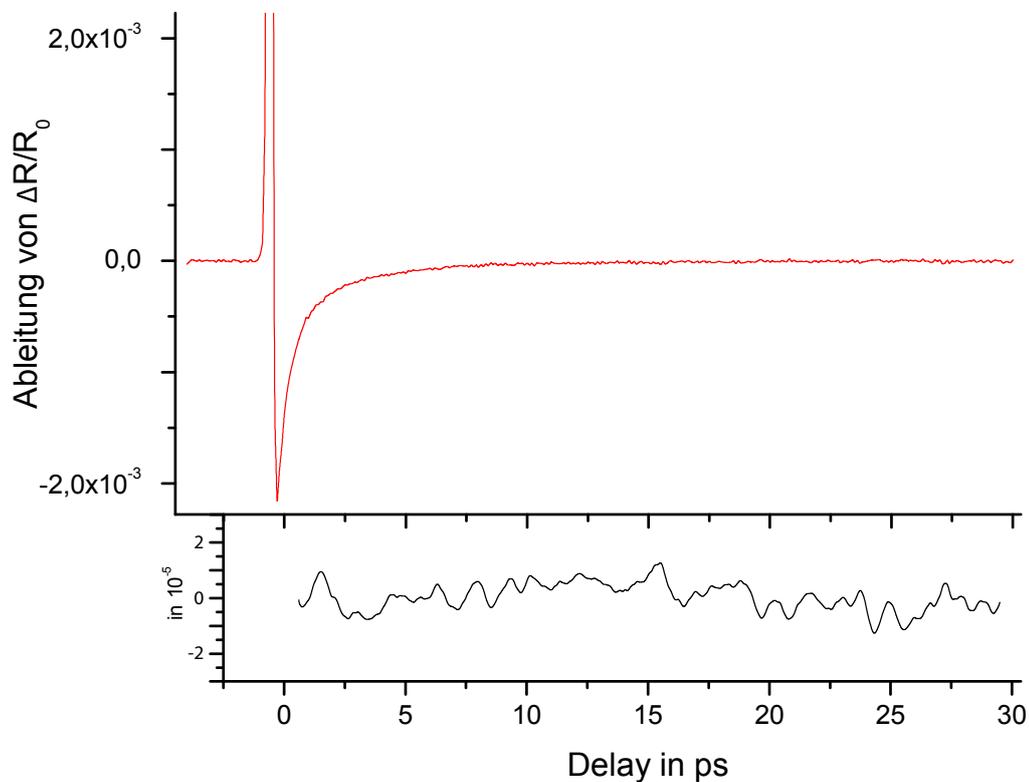


Abb. 4.3: **rote Kurve**: Ausschnitt der Ableitung der relativen Reflektivitätsänderung des GaAs-AlGaAs Übergitters; **schwarze Kurve**: die Ableitung der relativen Reflektivitätsänderung des GaAs-AlGaAs Übergitters abzüglich des elektronischen Anteils

Multiplikation mit einem Hanning-Fensters und anschließender FFT<sup>1</sup> erhält man die Amplitude der einzelnen Frequenzkomponenten, welche in Abb. 4.4 aufgetragen sind. Dabei ist der mit den Punkten markierte Peak von besonderer Bedeutung. Höchstwahrscheinlich handelt es sich hierbei um die Schwingung des Übergitterphonons. Das

<sup>1</sup>Fast Fourier Transformation

ermittelte Maximum (roter Punkt) liegt bei 0.31 THz, was einer Schwingungsperiode von 3.2 ps entspricht.

Um den Anregungsmechanismus dieses Übergitterphonons nachzuvollziehen, muss zu-

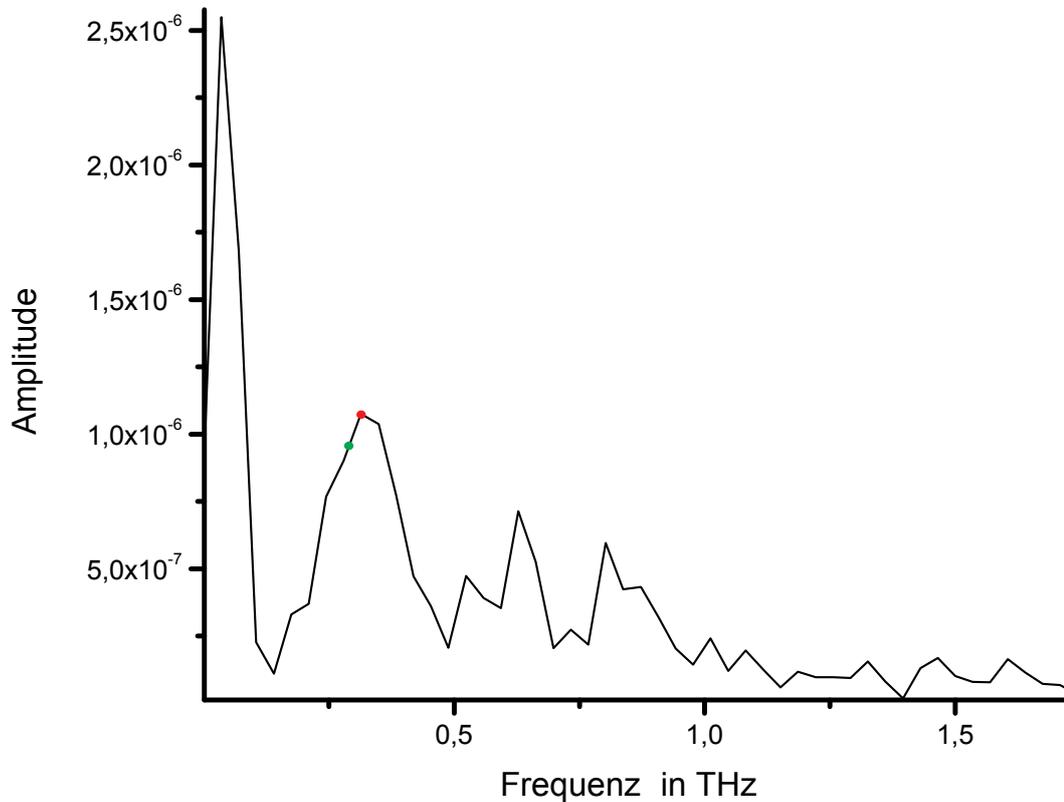


Abb. 4.4: Amplitude der Fourierkomponenten der Reflektivitätsmodulation des Pump-Probe-Spektrums vom GaAs-AlGaAs Übergitter; **roter Punkt**: markiert bestimmten Schwerpunkt des Peaks; **grüner Punkt**: markiert von Bargheer u. a. [4] gemessene Frequenz

nächst der Aufbau des Übergitters beleuchtet werden. Bei GaAs und AlGaAs handelt es sich um zwei Halbleiter, wobei wie zuvor besprochen das GaAs eine Bandlücke von 1.42 eV besitzt.  $\text{Al}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$  hingegen hat abhängig von der Verteilung  $x$  also dem Anteil von Gallium zur Gesamtmenge an Aluminium und Gallium eine Bandlücke zwischen 1.42 und 2.67 eV. Bei der benutzten Probe ist  $x=0.6$  was in etwa einer Bandlücke von 2.17 eV entspricht [47]. Durch das alternierende aneinandersetzen von GaAs und AlGaAs sitzen die Elektronen des GaAs am Rand vom Valenz- und Leitungsband in einem Potentialtopf. In diesem Potentialtopf können Elektronen nur diskrete Energieniveaus besetzen, was im Falle des Übergitters zur Ausbildung von Subbändern führt. Die Anregung des Halbleiterübergitters mittels eines Femtosekunden-Laser-Pulses sorgt für eine impulsive Erzeugung von Elektron-Loch-Paaren im niedrigsten Subband der GaAs-Potentialtöpfe<sup>2</sup> (siehe Abb. 4.5(a)). Der Transfer der Elektronen vom Valenz-

<sup>2</sup>In der Literatur oft als Quantumwells bezeichnet

(bindende Zustände) ins Leitungsband (anti-bindende Zustände) sorgt für eine Abschwächung der Bindungskräfte zwischen den Atomen des GaAs. Dies führt zu einer Ausdehnung der Potentialtöpfe und daraus folgend zu einer Stauchung der AlGaAs Barrieren.

Von Bargheer u. a. [4] wurde die selbe Probe mittels Femtosekunden Röntgendiffrakti-

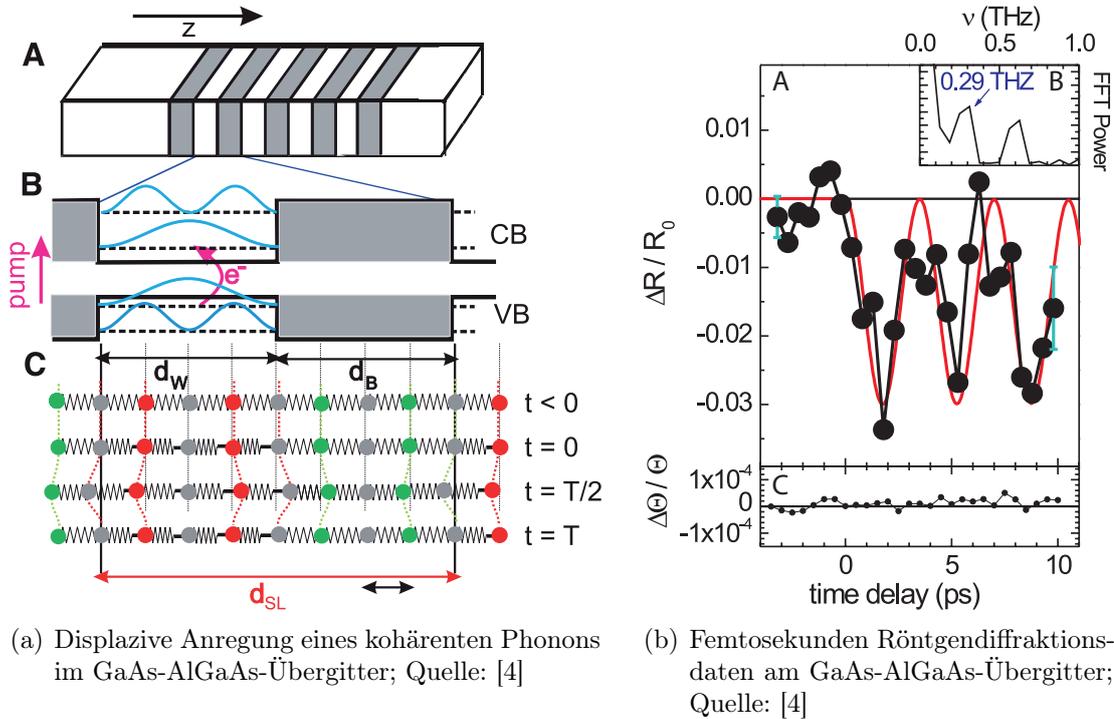


Abb. 4.5: (a) **A** Das Halbleiterübergitter besteht aus GaAs Potentialtöpfen (weiß) und AlGaAs Barrieren (grau). **B** Der Transfer eines Elektrons aus dem obersten Subband des Valenzbandes (VB) in das unterste Subband des Leitungsbandes (CB), welcher zu einer Änderung der Bindungsverhältnisse im GaAs führt und damit ein kohärentes Phonon displaziv anregt. Die blauen Kurven geben die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen entlang der z-Achse (001) in den Subbändern an. **C** Das Model einer linearen Kette, welches den Verlauf der Übergitterphononenoszillation über eine Periode  $T$  darstellt. Dabei beschreibt  $d_w$  die Dicke des Quantumwells,  $d_B$  die der Barrieren und  $d_{SL}$  die Dicke des gesamten Übergitters. Die Farben der Kügelchen sind folgendermaßen definiert: rot=Ga; grün=Al; grau=As

on untersucht. Die gemessenen Daten sind in Abb. 4.5(b) zu finden. Dabei wurde eine Frequenz des Übergitterphonons von 0.29 Thz festgestellt. Diese Frequenz wurde in Abb. 4.4 mit dem grünen Punkt gekennzeichnet. Wie man der Abbildung entnehmen kann, liegt sie etwas unterhalb der hier bestimmten Frequenz des Übergitterphonons. Jedoch lässt die Fouriertransformation aus Abb. 4.4 unter Umständen keine so genaue Aussage über die exakte Phononenoszillationsfrequenz zu, da die Peakbreite größer als die gefundene Diskrepanz zwischen der hier gemessenen und der von Bargheer u. a. [4] bestimmten Oszillationsfrequenz ist.

Eine möglicherweise längere Oszillationsperiode lässt sich dennoch damit erklären, dass

die Pumpfluenz bei der zeitaufgelösten Röntgendiffraktionsmessung etwa 100 mal größer ist als die, die in Rahmen dieser Diplomarbeit für die Messungen am GaAs-AlGaAs-Übergitter benutzt wurde. Der zugrunde liegende Anregungsprozess des Phonons mittels Anregung von Elektronen ins Leitungsband erniedrigt bei hohen Pumpfluenzen die interatomaren Bindungskräfte auf Grund der starken Besetzung anti-bindender Orbitale. Dies führt im Wesentlichen zu einem „Weichwerden“ der Übergitterphononenmode bei höheren Pumpfluenzen und damit zu längeren Oszillationsperioden.

Neben der eben besprochenen Übergitterphononoszillation werden offenbar auch höhere Ordnungen angeregt. Wie man Abb. 4.4 entnehmen kann, gibt es neben der 0.3 THz-Oszillation auch die doppelte Frequenz im Spektrum. Dieser Verhalten deckt sich mit dem gemessenen Daten von Bargheer u. a. [4] (siehe Abb. 4.5(b)).

Wie man den Messdaten (Abb. 4.3) entnehmen kann, ist das Signal zu Rausch Verhältnis der Oszillation sehr gering. Wie von Yamamoto u. a. [55] und Bartels u. a. [5] gezeigt wurde hängt die Sensitivität der Reflektivität auf die Auslenkung des Übergitterphonons sehr stark von der Probewellenlänge ab. Dieses Verhalten wurde an GaAs-AlAs Übergittern beobachtet, sollte aber direkt auf die hier verwendete Probe übertragbar sein. Dabei geht man davon aus, dass die Sensitivität der optischen Eigenschaften auf die Auslenkung des Übergitterphonons durch das Deformationspotential gegeben ist. Eine Änderung der Auslenkung der Gitteratome hat demnach, ähnlich wie in Abb. 2.1 auf Seite 5, eine Änderung der Bandstruktur zufolge. Diese sorgt für eine Änderung der optischen Eigenschaften und damit für eine Veränderung der Reflektivität. Es ist also zu vermuten, dass andere Zentralwellenlängen des Probelichts und die Benutzung eines sehr schmal einstellbaren Bandpassfilters vor der Detektion die Empfindlichkeit des Messprozesses auf die Übergitterphononen stark erhöhen könnte.

### 4.3 STO/SRO-Übergitter

Die am STO/SRO-Übergitter (Abb. 3.13 auf Seite 38) gemessene Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit vom Zeitversatz zwischen anregenden und abfragenden Laserpuls weist neben einem exponentiell abklingenden Verhalten eine Modulation auf. Nach Abzug des exponentiell abklingenden Teils erhält man die in Abb. 4.6 aufgetragene Kurve. Diese Reflektivitätsänderung ist auf die kohärente Erzeugung eines Phonons mit der Wellenlänge einer Übergitterperiode zurückzuführen. Das Übergitter besteht wie schon zuvor erwähnt aus abwechselnd übereinander gewachsene STO- und SRO-Schichten. Dabei weist STO im Bereich von Photonenenergien unterhalb der Bandlücke

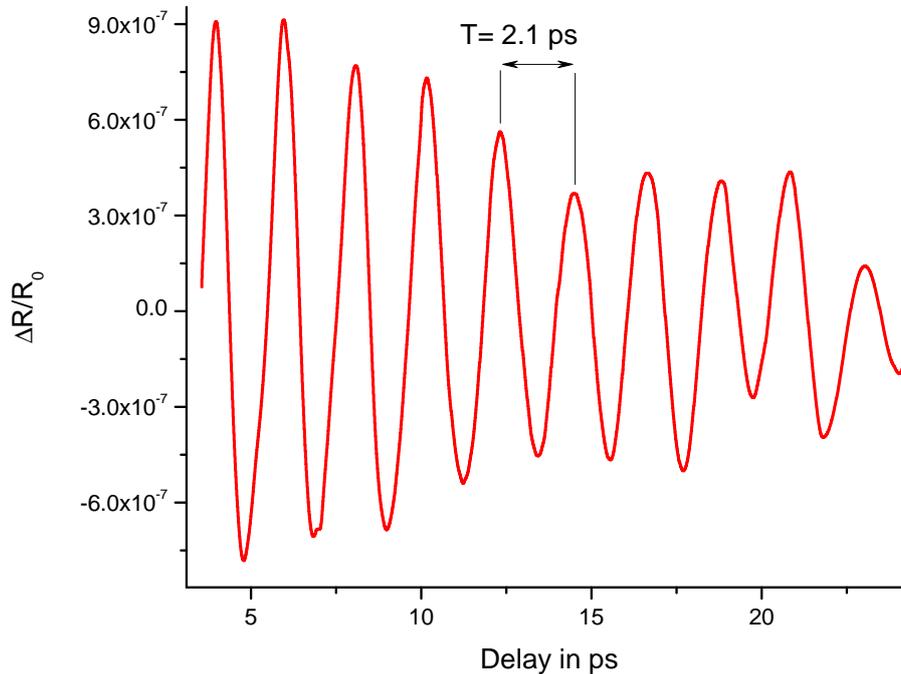


Abb. 4.6: Nach Abzug des exponentiellen Anteils der Reflektivitätsänderung nach dem Zeitnullpunkt aus Abb. 3.13 erhält man die gezeigte Kurve

von 3.25 eV [6] Eigenschaften eines Isolators auf und ist somit für den Pump- und Probenpuls ( $\lambda = 795$  nm) transparent. SRO hingegen ist ein Metall und absorbiert das Pumplicht. Die Eindringtiefe<sup>3</sup> des Lichts der Wellenlänge von 795 nm beträgt in SRO ca. 52 nm, damit werden bei der Dicke von 5 nm pro Schicht gut 10 SRO-Schichten vom Laserlicht durchdrungen und angeregt.

Abb. 4.7 beschreibt den Aufbau der Probe sowie den Anregungsmechanismus schematisch. Nach Anregung der Probe mittels des Laserpulses absorbieren die SRO-Schichten das Laserlicht. Dabei nehmen die Elektronen des SROs die Energie des Lichts auf und gehen in eine nicht-thermische Energieverteilung über. Durch Streuung an Elektronen thermalisiert das Elektronengas. Das exponentiell abklingende Verhalten der Reflektivität ist im Wesentlichen durch die Abbildung des Temperaturausgleichs von Elektronen- und Phononengas auf die Änderung der optischen Eigenschaften gegeben. Durch den Temperaturanstieg des Phononengases kommt es, bedingt durch die Anharmonizität der potentiellen Energie der Gitteratome, zu einer Ausdehnung der SRO-Schichten [2]. Durch die Anregung vieler SRO-Schichten führt die Ausdehnung dieser zu einer Stauung der dazwischen liegenden, isolierenden STO-Schichten. Auf diese Weise wird

<sup>3</sup>Bestimmt aus Reflektions- und Transmissionsdaten von Kostic u. a. [27].

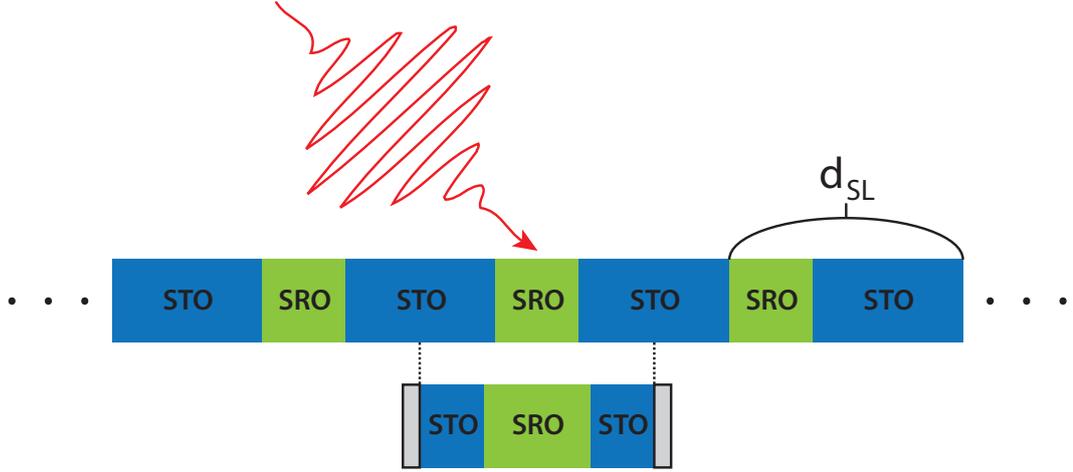


Abb. 4.7: Das Übergitter besteht aus 30 Doppellagen STO und SRO auf einem STO-Substrat, wobei jede STO-Schicht 9 nm und jede SRO-Schicht 5 nm dick ist.  $d_{\text{SL}}$ , die Länge der Übergitterperiode ist durch die Summe der beiden Einzeldicken gegeben. Nach Absorption des Pumpulses kommt es zu einer kollektiven Ausdehnung der SRO-Schichten, und damit zu einer Stauchung der dazwischen liegenden STO-Schichten. Dieser displazive Anregungsprozess sorgt mittels hinreichend homogener Absorption für die selektive Anregung eines kohärenten Übergitterphonons mit  $\vec{k} = 0$  (stehende Welle).

impulsiv ein kohärentes Übergitterphonon (ZFLAP siehe Abschnitt 2.1.1.3.2) der Periode  $T = 2.1$  ps (Abb. 4.6) angeregt.

Die Änderung der Reflektivität mit der Phononenoszillation ist auf die Dehnungsmodulation des Übergitters und die damit in Verbindung stehende Modulation des Brechungsindex zurückzuführen [51]. Nach Thomsen u. a. [51] ist die Reflektivitätsänderung durch ein Integral des Dehnungsprofils  $\eta_{33}$  in Abhängigkeit von Ort und Zeit gewichtet mit einer „Sensitivitätsfunktion“  $f(z)$ , welche den Beitrag der Dehnung zur Reflektivitätsänderung bei verschiedenen Tiefen  $z$  festlegt, gegeben <sup>4</sup>:

$$\Delta R = \int_0^{\infty} f(z) \eta_{33}(z, t) dz \quad (4.2)$$

$$f(z) = f_0 \left[ \frac{\partial n}{\partial \eta_{33}} \sin \left( \frac{4\pi n z}{\lambda} - \phi \right) + \frac{\partial \kappa}{\partial \eta_{33}} \cos \left( \frac{4\pi n z}{\lambda} - \phi \right) \right] e^{-z/d} \quad (4.3)$$

Dabei sind  $n$  und  $\kappa$  Real und Imaginärteil des Brechungsindex bei der Wellenlänge  $\lambda$ , sowie  $c$  die Lichtgeschwindigkeit,  $\omega$  die Kreisfrequenz des Lichts und  $d$  die Eindringtiefe des Lichts, welche durch  $d = c/2\omega\kappa$  gegeben ist. Anhand erster Simulationen innerhalb der Arbeitsgruppe mit diesem Modell lassen sich von der Wellenlänge abhängige Schwabungen in der Reflektivitätsozillation des Übergitterphonons erklären.

<sup>4</sup>  $f_0 = 8 \frac{\omega [n^2(n^2 + \kappa^2 - 1)^2 + \kappa^2(n^2 + \kappa^2 + 1)^2]^{1/2}}{c[(n+1)^2 + \kappa^2]^2}$        $\tan \phi = \frac{\kappa(n^2 + \kappa^2 + 1)}{n(n^2 + \kappa^2 - 1)}$

Die selbe Probe wurde von einem Mitarbeiter innerhalb der Arbeitsgruppe mittels eines Pump-Probe-Experiments, welches auf einem Kilohertz-Lasersystem basiert, untersucht [18]. Dabei wurden in etwa tausendfach höhere Pumpfluenzen verwendet als bei der hier durchgeführten Untersuchung. Die Zentralwellenlängen des Pump- und Probestrahl lagen bei 795 nm und sind damit gut vergleichbar. Abb. 4.8 zeigt beide relative Reflektivitätsänderungen im Vergleich. Dabei fällt als erstes der große Unterschied im

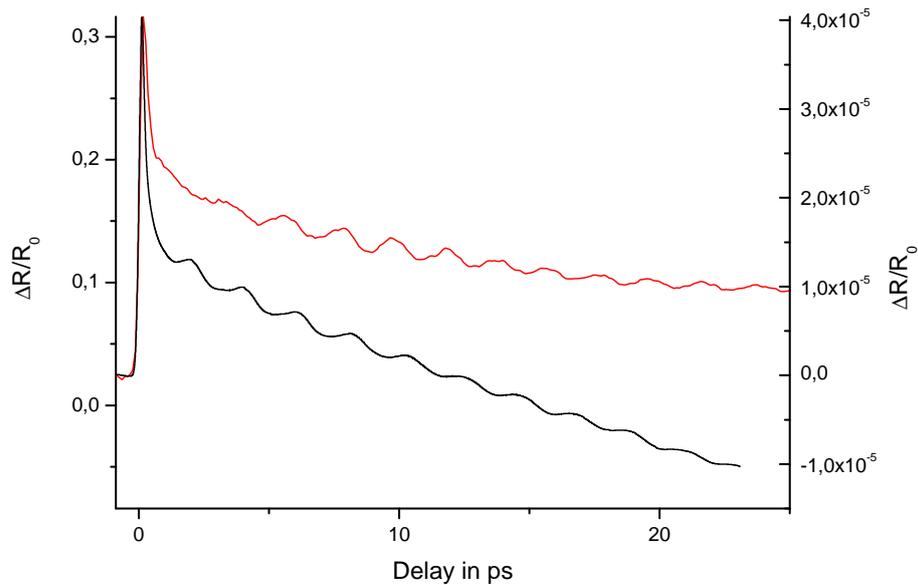


Abb. 4.8: **Schwarze Kurve:** im Laufe dieser Arbeit gemessenes Pump-Probe-Spektrum des STO/SRO-Übergitters bei kleinen Pumpfluenzen ( $55 \frac{\mu\text{J}}{\text{cm}^2}$ ) [rechte Skala im Graph]; **Rote Kurve:** innerhalb der Arbeitsgruppe gemessenes Pump-Probe-Spektrum von STO/SRO bei einer etwa 1000 mal höheren Pumpfluenz [18][linke Skala im Graph]

Abklingverhalten beider Kurven auf. Hierbei könnte es sich zum einen um eine andere Relaxationsdynamik handeln und zum Anderen, die wohl eher wahrscheinlichere Variante, um einen systematischen Messfehler der im Hochpassverhalten der Elektronik oder in der Überlappmodulation des Shakers begründet ist. Beim Vergleich der Oszillationen (Abb. 4.9) der beiden Spektren, fällt ein anfänglicher Phasenunterschied der Reflektivitätsmodulation auf. Dabei sieht es so aus, als ob die Reflektivitätsmodulation bei niedriger Pumpfluenz etwa 500 fs später einsetzt. Zum einen könnte die Ursache eine phasenverschobene Reflektivitätsänderung relativ zur Phononenoszillation und zum Anderen ein späteres Anschalten des Übergitterphonons sein. Bei beiden Möglichkeiten bedarf es weiterer Untersuchung mittels Pump-Probe-Spektroskopie bei hohen und niedrigen Fluenzen. Neben der Phasenverschiebung zeigt das stark angeregte STO/SRO-Übergitter eine leicht erhöhte Oszillationsfrequenz, was möglicherweise eine Folge des nichtlinearen Verhaltens der Übergitterschwingung bei starker Anregung

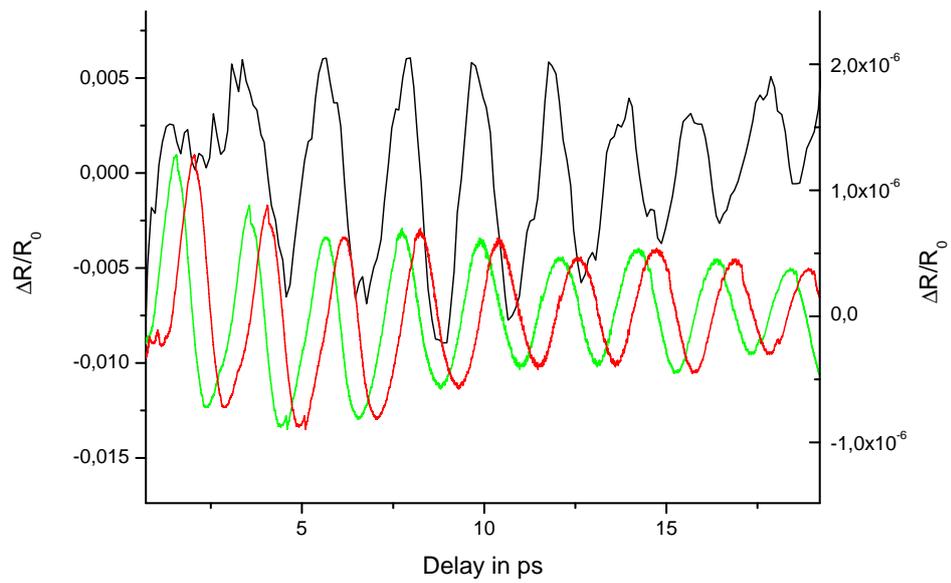


Abb. 4.9: **Schwarze Kurve:** Reflektivitätsmodulation des Pump-Probe-Spektrums mit hoher Pumpfluenz [linke Skala im Graph]; **Rote Kurve:** Reflektivitätsmodulation des Pump-Probe-Spektrums mit niedriger Pumpfluenz [rechte Skala im Graph]; **Grüne Kurve:** Rote Kurve um 500 fs nach links verschoben [rechte Skala im Graph]

ist. Dabei sorgt die starke Anregung für eine Auslenkung der Atome die möglicherweise schon durch ihre Nachbaratome beeinträchtigt ist. Die Pauliabstoßung der Elektronen sorgt dann dafür, dass das Material bei stärkerer Anregung härter wird und damit die Oszillationsfrequenz des Übergitterphonons höher.

## 4.4 LSMO-Übergitter

Als letztes wurde mit der Untersuchung der Übergitteroszillation an einem Übergitter durchgeführt, welches zur Ruddleden-Popper Serie gehört. Dazu wurde das LSMO-Übergitter gewählt. Eine Einheitszelle besteht dabei aus einer Abfolge von 2 mal 3 LSMO-Einheiten, die durch Sr-Oxidschichten getrennt sind. Die LSMO Lagen haben bei Raumtemperatur metallische Eigenschaften und durch ihre isolierenden Trennschichten sollte sich, ähnlich wie beim STO/SRO-Übergitter, ein Übergitterphonon anregen lassen. Da die Trennschichten sehr dünn sind, ist damit zu rechnen, dass die Oszillationen sehr klein sind. Im Zuge der Auswertung wurde der elektronische Untergrund von der Messkurve (Abb. 3.17 auf Seite 42) abgezogen. Als Vergleich wurde eine Messung bei hohen Pumpfluenzen (bei 538 nm Pump/Probe) einer Mitarbeiterin der

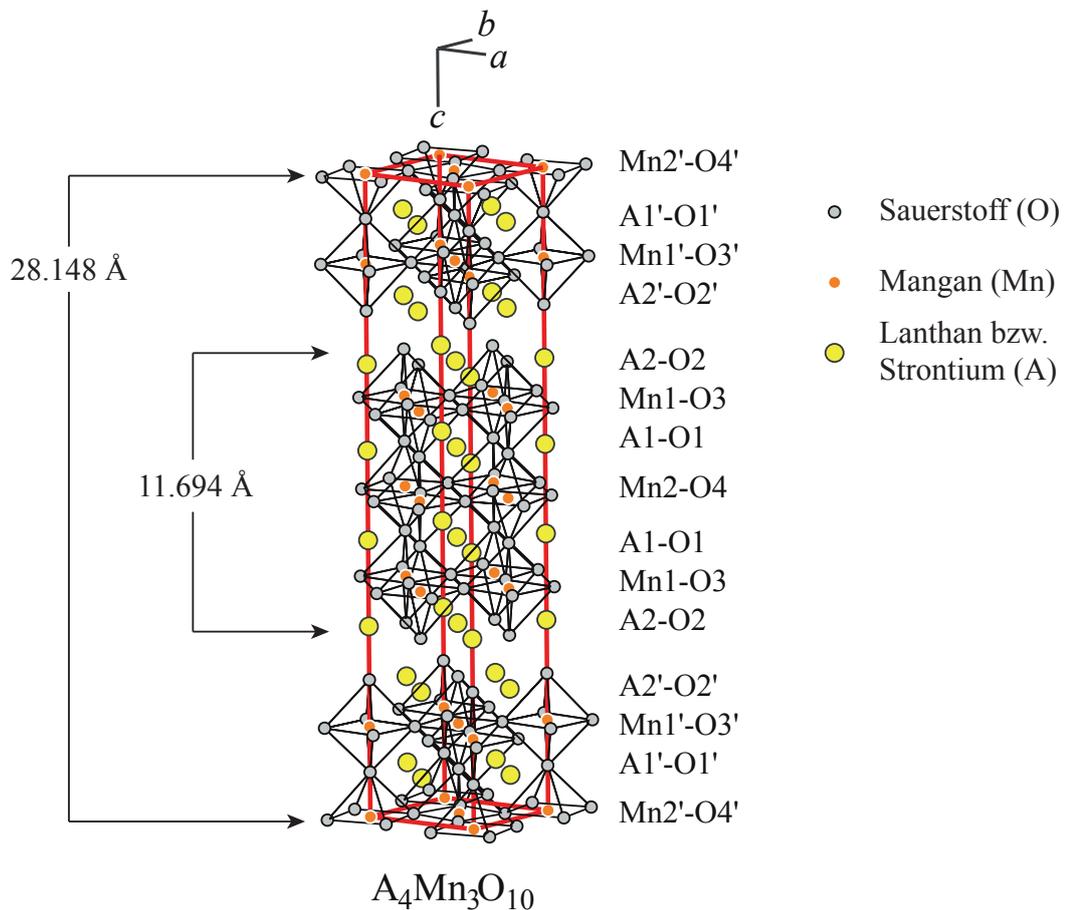


Abb. 4.10: Das LSMO-Übergitter gehört zu den  $n=3$  Übergittern der Ruddleden-Popper-Serie und besteht damit aus 2 zueinander versetzten und durch Oxidschichten getrennte Lagen. Jede Lage besteht dabei aus 3 LSMO-Einheitszellen in Perovskitstruktur. Die angegebenen Werte sind von Mahesh u. a. [31] entnommen, wobei sich die Breite der 3 Einheitszellen aus der dort entnommenen Breite der einzelnen Einheitszelle ergibt. Teile der Abbildung wurden von Iliev u. a. [22] entnommen.

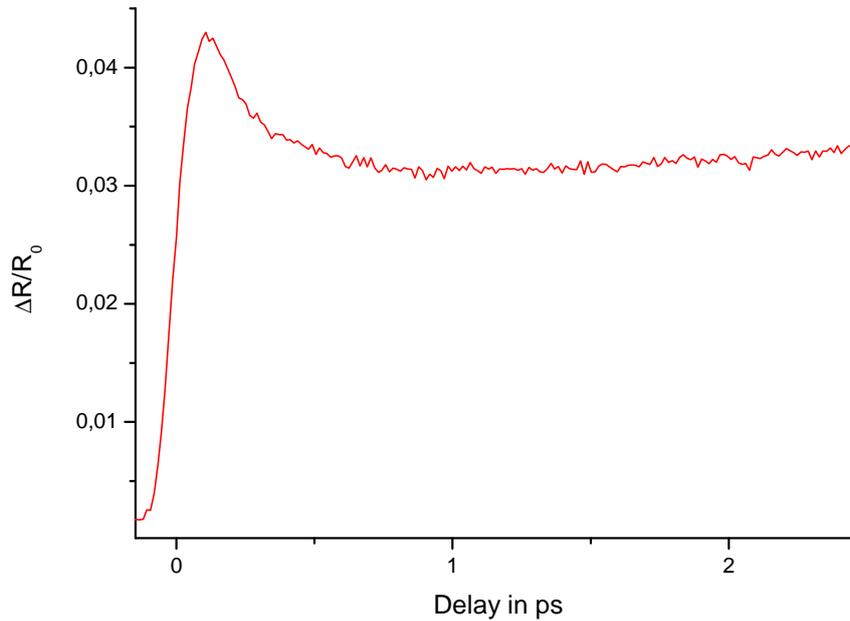
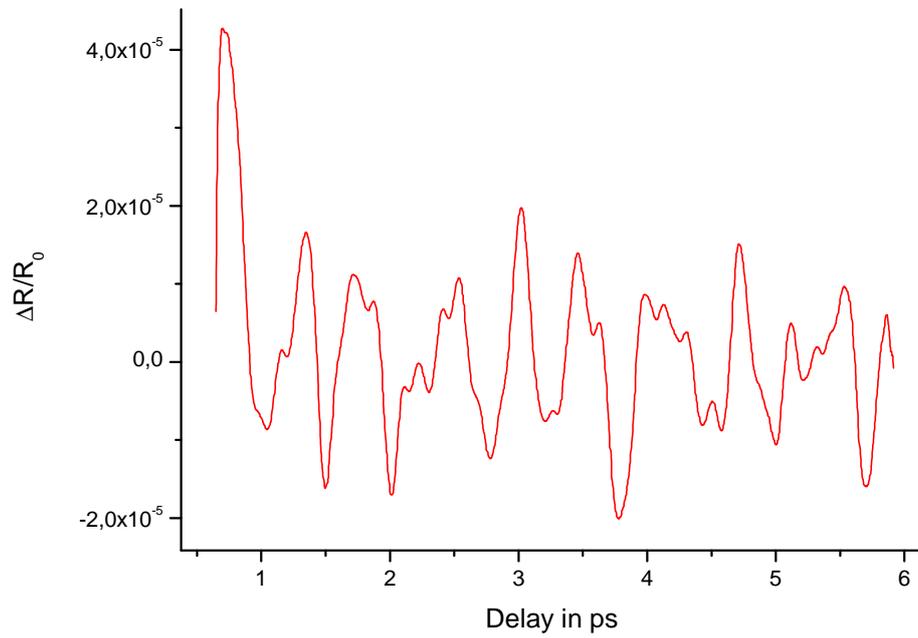


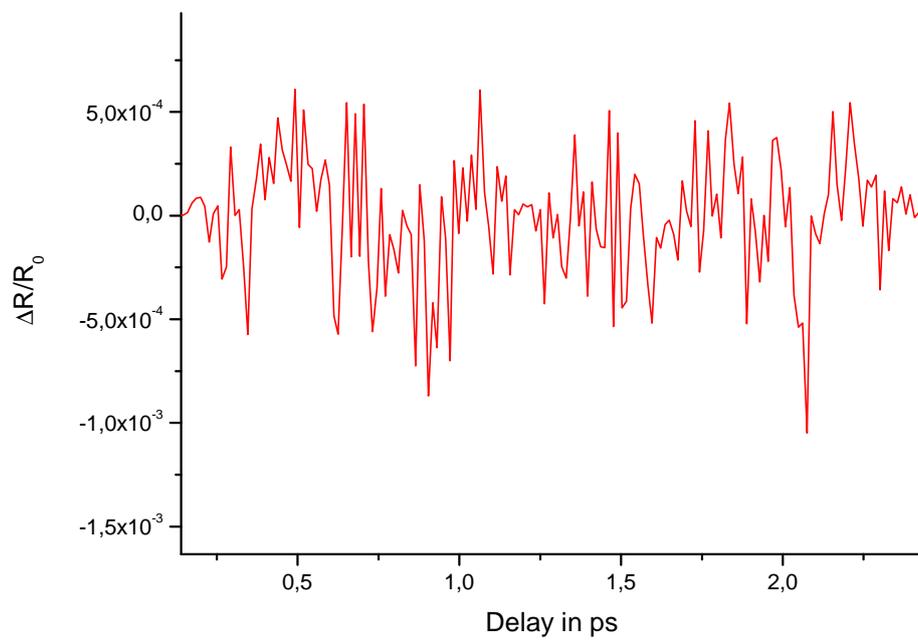
Abb. 4.11: Relative Reflektivitätsänderung des Laserlichts der Wellenlänge von 538 nm in Abhängigkeit des Zeitversatzes zwischen Pump- und Probepuls (Pumpfluenz  $\approx 1 \frac{\text{mJ}}{\text{cm}^2}$ ); Quelle: [30]

Arbeitsgruppe herangezogen (Abb. 4.11 [30]). Bei dieser wurde ebenfalls der elektronische Untergrund entfernt. Die resultierenden Kurven sind in Abb. 4.12 zu finden. An beiden wurde dann eine FFT durchgeführt. Das Ergebnis ist in Abb. 4.13 aufgetragen. In den Abbildungen ist erkennbar, dass es in beiden Spektren bei ca. 1.7 THz einen Peak gibt, der eindeutig über dem Rauschlevel liegt. Da die Schallgeschwindigkeit entlang der c-Achse des LSMO-Übergitters ( $n=3$ ) zwischen der  $n=2$  ( $3.8 \frac{\text{nm}}{\text{ps}}$  [41]) und der  $n=\infty$  ( $6.5 \frac{\text{nm}}{\text{ps}}$  [42]) Variante des LSMOs liegt, schränken sich die möglichen Varianten der Länge des angeregten Phonons (1.7 THz Peak) durch die Kenntnis der Struktur stark ein. Eine Erklärung für den 1.7 THz Peak liefert das Festlegen der Phononperiode auf die Länge der gesamten Einheitszelle von  $28 \text{ \AA}$ . Damit ergibt sich eine Schallgeschwindigkeit von  $4.76 \frac{\text{nm}}{\text{ps}}$ , die innerhalb des zuvor definierten Intervalls liegt. Andere Längen, die die Symmetrie des Übergitters beachten, würden zu einer Schallgeschwindigkeit außerhalb des Intervalls führen und sind damit unrealistisch.

Daraus lässt sich schlussfolgern, dass wahrscheinlich nicht die halbe Übergitterperiode die am stärksten angeregte Phononperiode ist, sondern die Ganze, obwohl naiv betrachtet die elektronische Periodizität durch die halbe Länge der Übergitterperiode gegeben ist.

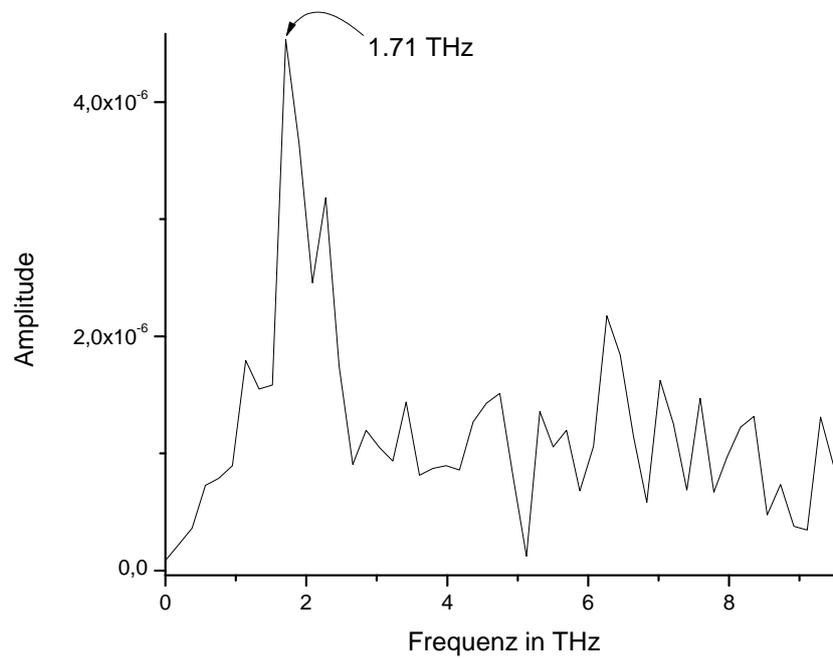


(a) Pump-Probe-Spektrum des LSMO-Übergitters bei hoher und niedriger Fluenz abzüglich des elektronischen Untergrunds

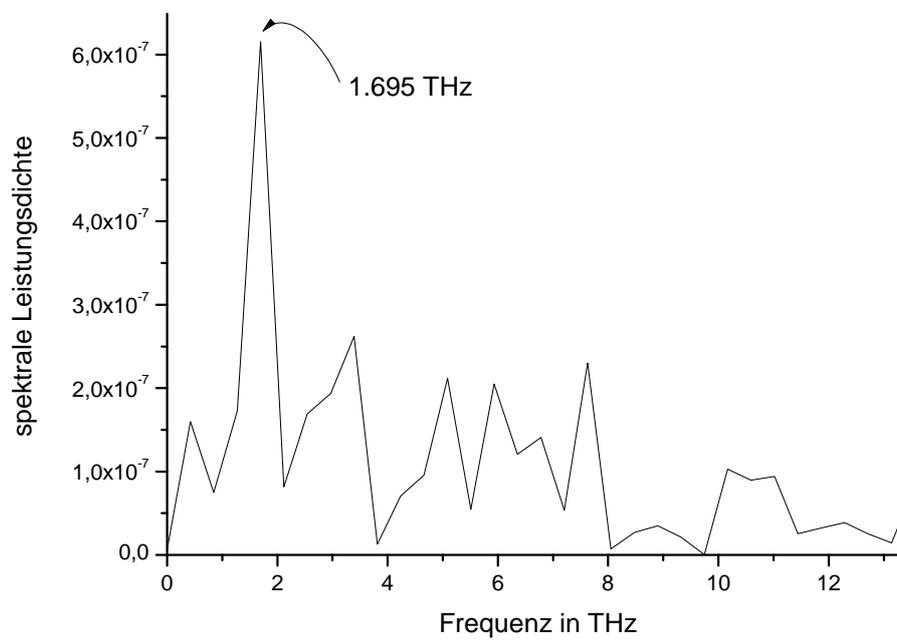


(b)

Abb. 4.12: (a) Pump-Probe-Daten aus Abb. 3.17 abzüglich des elektronischen Anteils; (a) Pump-Probe-Daten aus Abb. 4.11 abzüglich des elektronischen Anteils [30]



(a)



(b)

Abb. 4.13: (a) FFT der Daten aus 4.12(a); (b) FFT der Daten aus 4.12(b) [30]

## 4.5 Vergleich der benutzten Messverfahren

Im Rahmen dieser Diplomarbeit wurden drei unterschiedliche Varianten zur Messung der relativen Reflektivitätsänderung in Bezug auf ihre Nutzbarkeit für MHz-Lasersysteme getestet. Wie schon zuvor erwähnt, besteht die einfachste Methode die Reflektivitätsänderung zu messen in einem diskreten Ablauf. Dabei wird zunächst der Zeitversatz zwischen Pump- und Probepuls eingestellt und dann die Reflektivität an diesem Punkt ermittelt. Dies funktioniert bei der Benutzung von kHz-Lasersystemen recht gut. Dabei wird in der Regel ein Chopper verwendet um bei fest eingestellten Zeitversatz zusätzlich eine Information über die ungepumpte Reflektivität zu erhalten. Die Chopperfrequenz bestimmt dabei auf welcher Zeitskala die Schwankungen rausnormiert werden können. Puls zu Puls Messungen sind aufgrund der gängigen Chopperfrequenzen von max. 6 kHz bei kHz-Lasersystemen kein Problem. Die Pulsenergie wird dabei in der Regel mittels eines Boxcar-Integrators bestimmt.

Um dieses Verfahren optimal auf MHz-Lasersysteme zu übertragen, muss die Chopperfrequenz enorm erhöht werden. Dabei ist die ideale Chopperfrequenz gerade durch die halbe Repetitionsrate des Lasers gegeben. Dies führt zu technischen Schwierigkeiten, denn mechanisch lassen sich solche hohe Frequenzen nicht realisieren. Als Ersatz müssen dann teure akusto-optische oder elektro-optische Intensitätsmodulationssysteme herhalten, die für diese Arbeit nicht zur Verfügung standen. Diese bieten neben ihrem hohen Preis unter Umständen einen schlechten Kontrast zwischen „an“- und „aus“-Zustand. Die Messung erfolgt in diesem Fall nicht durch einen Boxcar-Integrator sondern durch eine sehr schnelle auf die Laserfrequenz getaktete Messkarte. Alternativ, sind auch niedrigere Chopperfrequenzen beispielsweise von 100 kHz möglich. Dabei sollte die Messung der Reflektivität durch einen Lock-In-Verstärker mit der Referenzfrequenz des Choppers erfolgen.

Ein wesentlicher Nachteil dieser Methode besteht darin, dass die mittels des Choppers durchgeführte Normierung bei Langzeitdrifts des optischen Aufbaus, also leichte Schwankungen im Strahlverlauf oder im Überlapp von Pump- und Probelicht, nicht funktioniert. Dies führt im Wesentlichen dazu, dass diese leichten Änderungen von einem Messpunkt zum nächsten zu Drifts in den Messdaten führt. Um dieses Problem zu lösen, gibt es zwei verschiedene Ansätze, die im Rahmen dieser Arbeit verfolgt wurden. Der Erste Ansatz besteht bei dem so genannten „rapid scanning“ darin den Zeitversatz zwischen Pump- und Probestrahl mit einer Frequenz einiger 10 Hz zu modulieren. Für alle Schwankungsfrequenzen des Lasers, die kleiner als die Modulationsfrequenz des Zeitversatzes sind, sorgt dies für eine „quasikonstante“ Pumpfluenz pro Zeitversatzperiode. Die Messung der Reflektivität erfolgt hierbei durch das schnelle Abtasten mittels

einer Messkarte. Die Abtastrate legt dabei die mögliche Zeitauflösung fest. So ist es möglich, in kürzester Zeit über mehrere Pump-Probe Spektren des gesamten Zeitbereichs zu mitteln, was für eine Ausnutzung der hohen Repetition der Laserpulse sorgt und damit für eine gute Statistik.

Beim zweiten Ansatz wird die Ableitung der Reflektivität durch eine kleine Modulation des Zeitversatzes und Detektion mittels eines Lock-In-Verfahrens bestimmt. Diese Variante ist vom Gesichtspunkt des Signal zu Rauschverhältnisses pro Messzeit aus betrachtet zwischen den beiden vorher genannten anzusiedeln, denn die hohe Repetition der Laserpulse kann nur bei hohen Oszillationsfrequenzen des Shakers ausgenutzt werden. Andererseits sorgt die direkte Messung der Ableitung für eine höhere Sensitivität von schnellen Änderungen, es können durch die große Verschiebestrecke beliebig große Zeitintervalle abgescannt werden und die Anforderung an die technischen Merkmale des Shakers sind nicht so hoch, denn die nötigen Auslenkungen sind viel kleiner.

## 5 Zusammenfassung & Ausblick

Im Rahmen dieser Diplomarbeit wurden Erkenntnisse gesammelt, auf welche Art und Weise man MHz-Lasersysteme direkt für die Pump-Probe-Spektroskopie verwenden kann. Die hohen Repetitionsraten und niedrigen Pulsenergien machten es notwendig, andere Messverfahren als die in der Arbeitsgruppe etablierten zu verwenden. Das „rapid scanning“ bietet dabei ein gutes Werkzeug schnell und hochsensitiv Pump-Probe-Spektroskopie zu betreiben. Das entwickelte optische Pump-Probe-Experiment in dem eine Scanvorrichtung (Shaker) für das schnelle Durchfahren des Zeitversatzes zwischen Pump- und Probepuls sorgt, erwies sich als überaus zweckdienlich beim Erreichen hoher Genauigkeiten. Messungen an einem STO/SRO-Übergitter zeigten, dass mit dieser Methode Genauigkeiten der relativen Reflektivitätsänderung von ca.  $10^{-9}$  erreichbar sind. Desweiteren wurde eine Phasenverschiebung der Schwingung des Übergitterphons des STO/SRO-Übergitters zwischen starker und schwacher Anregung festgestellt. Messungen an einem Halbleiterübergitter zeigten im Wesentlichen die von Bargheer u. a. [4] vorausgesagte Übergitteroszillation. Die hiermit ersten publizierten Messungen von Übergitterphononen an einem LSMO-Übergitter der Ruddlesden-Popper-Serie geben erste Hinweise auf das optische Anregungsverhalten der Übergitterphononen in diesem Material.

Jedoch sind noch einige Veränderungen an dem optischen Aufbau nötig. Es zeigte sich, dass die „rapid scanning“-Methode große Anforderungen an die technischen Merkmale des Shakers stellt. Im speziellen sei dabei die Wiederholbarkeit der Bewegung, sowie die Richtungsunabhängigkeit des Laserstrahls von der Auslenkung des Shakers hervorgehoben. Unerwünschte Nebeneffekte wie die Modulation des Überlapps zwischen Pump- und Probestrahl oder das Aussetzen des Shakers, was unter Umständen zur Beschädigung führt, sind die Folge eines Shakers der den technischen Anforderungen nicht genügt. Zu diesem Zweck wurde bereits eine besseren Scanvorrichtung bestellt. Sollten diese technischen Schwierigkeiten ausgeräumt sein, werden Messungen des GaAs-AlGaAs-Übergitters bei anderen Wellenlängen folgen, bei denen die Sensitivität auf die Übergitterphononen möglicherweise stärker ist. Zuvor wären statische Messungen der

Reflektivität und Transmission für den optischen Bereich an diesem Übergitter angebracht, um die optimale Wellenlänge zu bestimmen.

Als zweites steht die Weiterentwicklung des optischen Aufbaus in Hinsicht seiner vielfältigen Einsetzbarkeit im Vordergrund. Dabei könnte Weißlicht in einer Glasfaser erzeugt werden, um dann spektral breitbandig zu Proben. Spektrometer sind für diesen Zweck leider ungeeignet, da sie zu langsam sind. Jedoch wäre der Einsatz eines Monochromators möglich, was leider zu Folge hat dass verschiedene Wellenlängen nicht gleichzeitig gemessen werden können.

In physikalischer Hinsicht gibt es noch einige interessante Effekte, die mittels Femtosekunden Pump-Probe-Spektroskopie untersucht werden können. Die hier erprobte Spektroskopie mit MHz-Lasersystemen kann wegen des guten Signal-zu-Rausch-Verhältnisses insbesondere einen Erkenntnisgewinn bei sehr niedrigen Anregungsfluenzen liefern. Diese sind den kHz-Systemen nicht zugänglich, da die Sensitivität für die kleinen Änderungen zu gering ist. Ein anderes aber auch sehr interessantes Anwendungsgebiet wäre die Beobachtung von Anregungsprozessen unterhalb sowie oberhalb von Bandkanten, um den Übergang von stimulierter Ramanstreuung zur Absorption zu untersuchen. Andererseits wäre es denkbar, optische Phononen kohärent von Bulk-Materialien anzuregen und diese zu untersuchen. Dafür sind jedoch kürzere Pulse von Nöten. Desweiteren wäre ein Untersuchung von ultraschnellen magnetischen Effekten mittels des hochsensitiven Messaufbaus interessant. Dabei wären beispielsweise Messungen des Ruddlesden-Popper LSMO-Übergitters  $n=2$  von großem Interesse, um das Verhalten der Magnetostruktion im Bereich der Curietemperatur zu untersuchen.

## 6 Literaturverzeichnis

- [1] ANISIMOV, S. ; KHOKHLOV, V.: *Instabilities in laser-matter interaction*. CRC Press, 1995
- [2] ASHCROFT, N. D.: *Festkörperphysik*. 3., verb. Aufl. München : Oldenbourg, 2007. – ISBN 978-3-486-58273-4
- [3] AUSTON, D.H. ; MCAFEE, S. ; SHANK, C.V. ; IPPEN, E.P. ; TESCHKE, O.: Picosecond spectroscopy of semiconductors. In: *Solid-State Electronics* 21 (1978), Nr. 1, S. 147 – 150. – URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/B6TY5-46X9DB8-1G/2/ccdacfb2c06d0045a5d9ef34383f81dc>. – ISSN 0038-1101
- [4] BARGHEER, M. ; ZHAVORONKOV, N. ; GRITSAI, Y. ; WOO, J. C. ; KIM, D. S. ; WOERNER, M. ; ELSAESSER, T.: Coherent Atomic Motions in a Nanostructure Studied by Femtosecond X-ray Diffraction. In: *Science* 306 (2004), Nr. 5702, S. 1771–1773. – URL <http://www.sciencemag.org/cgi/content/abstract/306/5702/1771>
- [5] BARTELS, Albrecht ; DEKORSY, Thomas ; KURZ, Heinrich ; KÖHLER, Klaus: Coherent Zone-Folded Longitudinal Acoustic Phonons in Semiconductor Superlattices: Excitation and Detection. In: *Phys. Rev. Lett.* 82 (1999), Feb, Nr. 5, S. 1044–1047
- [6] BENTHEM, K. van ; ELSASSER, C. ; FRENCH, R. H.: Bulk electronic structure of SrTiO<sub>3</sub>: Experiment and theory. In: *Journal of Applied Physics* 90 (2001), Nr. 12, S. 6156–6164. – URL <http://link.aip.org/link/?JAP/90/6156/1>
- [7] BEZNOSIKOV, B. ; ALEKSANDROV, K.: Perovskite-like crystals of the Ruddlesden-Popper series. In: *Crystallography Reports* 45 (2000), S. 792–798. – URL <http://dx.doi.org/10.1134/1.1312923>. – 10.1134/1.1312923. – ISSN 1063-7745
- [8] BOYD, Robert W.: *Nonlinear optics*. 3. ed. Amsterdam : Elsevier/Academic Press, 2008. – ISBN 978-0-12-369470-6

- [9] CHELIKOWSKY, James R. ; COHEN, Marvin L.: Nonlocal pseudopotential calculations for the electronic structure of eleven diamond and zinc-blende semiconductors. In: *Phys. Rev. B* 14 (1976), Jul, Nr. 2, S. 556–582
- [10] CHO, A.Y. ; ARTHUR, J.R.: Molecular beam epitaxy. In: *Progress in Solid State Chemistry* 10 (1975), Nr. Part 3, S. 157 – 191. – URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/B6TX3-48J00WR-15/2/3d7ab2c2e608a77dc5c74f2f8bf35091>. – ISSN 0079-6786
- [11] CHO, G. C. ; KÜTT, W. ; KURZ, H.: Subpicosecond time-resolved coherent-phonon oscillations in GaAs. In: *Phys. Rev. Lett.* 65 (1990), Aug, Nr. 6, S. 764–766
- [12] DEKORSY, T. ; CHO, G. C. ; KURZ, H.: *Light Scattering in Solids VIII, Coherent Phonons in Condensed Media*. M.Cardona, G.Grüntherodt, 2000
- [13] DEKORSY, T. ; PFEIFER, T. ; KÜTT, W. ; KURZ, H.: Subpicosecond carrier transport in GaAs surface-space-charge fields. In: *Phys. Rev. B* 47 (1993), Feb, Nr. 7, S. 3842–3849
- [14] EHRENREICH, H. ; COHEN, M. H.: Self-Consistent Field Approach to the Many-Electron Problem. In: *Phys. Rev.* 115 (1959), Aug, Nr. 4, S. 786–790
- [15] FRENKEL, J.: On the Transformation of light into Heat in Solids. I. In: *Phys. Rev.* 37 (1931), Jan, Nr. 1, S. 17–44
- [16] HAUG, Stephan W.: *Quantum theory of the optical and electronic properties of semiconductors*. 5. ed. New Jersey [u.a.] : World Scientific, 2009. – ISBN 978-981-283-883-4 ; 981-283-883-X ; 978-981-283-884-1 ; 981-283-884-8
- [17] HERING, Ekbert ; MARTIN, Rolf: *Photonik : Grundlagen, Technologie und Anwendung*. Berlin, Heidelberg : Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2006. – ISBN 978-3-540-29708-6
- [18] HERZOG, Marc: *Messdaten: relative Reflektivitätsmessung zum 30 Doppellagen STO/SRO-Übergitter mittels 800 nm Pump-Probe-Spektroskopie*. unveröffentlicht
- [19] HÄNSEL, Werner: *Physik Moleküle und Festkörper*. Heidelberg [u.a.] : Spektrum, Akad. Verl., 1996
- [20] HUNKLINGER, Siegfried: *Festkörperphysik*. München : Oldenbourg, 2007. – ISBN 978-3-486-57562-0

- [21] IBACH, Hans: *Festkörperphysik : Einführung in die Grundlagen; mit 17 Tafeln und 100 Übungen*. 6. Aufl. Berlin : Springer, 2002 (Springer-Lehrbuch). – ISBN 3-540-42738-4
- [22] ILIEV, M.N. ; POPOV, V.N. ; LITVINCHUK, A.P. ; ABRASHEV, M.V. ; BÄCKSTRÖM, J. ; SUN, Y.Y. ; MENG, R.L. ; CHU, C.W.: Comparative Raman studies of Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub>, Sr<sub>3</sub>Ru<sub>2</sub>O<sub>7</sub> and Sr<sub>4</sub>Ru<sub>3</sub>O<sub>10</sub>. In: *Physica B: Condensed Matter* 358 (2005), Nr. 1-4, S. 138 – 152. – URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/B6TVH-4FDMYKR-5/2/df457e7e536e8b2ebe762e9f706c530d>. – ISSN 0921-4526
- [23] JACKSON, John D.: *Classical electrodynamics*. 3. ed. New York : Wiley, 1999. – ISBN 978-0-471-30932-1 ; 0-471-30932-X
- [24] KATO, K.: Second-Harmonic Generation to 2048Å in Beta-Bariumborat. 22 (1986), Nr. 7, S. 1013–1014
- [25] KIM, Dai-sik ; YU, Peter Y.: Hot-electron relaxations and hot phonons in GaAs studied by subpicosecond Raman scattering. In: *Phys. Rev. B* 43 (1991), Feb, Nr. 5, S. 4158–4169
- [26] KITTEL, Charles ; HUNKLINGER, Siegfried (Hrsg.): *Einführung in die Festkörperphysik*. 14., überarb. und erw. Aufl. / [die 14. dt. Ausg. wurde neu bearb. und aktualisiert von Siegfried Hunklinger]. München : Oldenbourg, 2006. – Aus dem Engl. übers.. – ISBN 3-486-57723-9 ; 978-3-486-57723-5
- [27] KOSTIC, P. ; OKADA, Y. ; COLLINS, N. C. ; SCHLESINGER, Z. ; REINER, J. W. ; KLEIN, L. ; KAPITULNIK, A. ; GEBALLE, T. H. ; BEASLEY, M. R.: Non-Fermi-Liquid Behavior of SrRuO<sub>3</sub>: Evidence from Infrared Conductivity. In: *Phys. Rev. Lett.* 81 (1998), Sep, Nr. 12, S. 2498–2501
- [28] KUIZENGA, D. ; SIEGMAN, A.: FM and AM mode locking of the homogeneous laser—Part I: Theory. 6 (1970), Nr. 11, S. 694–708
- [29] LINDE, D. von der ; KUHLE, J. ; KLINGENBERG, H.: Raman Scattering from Nonequilibrium LO Phonons with Picosecond Resolution. In: *Phys. Rev. Lett.* 44 (1980), Jun, Nr. 23, S. 1505–1508
- [30] MAERTEN, Lena: *Messdaten: relative Reflektivitätsmessung zum LSMO-Übergitter (n=3 Ruddleston-Popper) mittels 538 nm Pump-Probe-Spektroskopie*. unveröffentlicht

- [31] MAHESH, R. ; MAHENDIRAN, R. ; RAYCHAUDHURI, A. K. ; RAO, C. N. R.: Effect of Dimensionality on the Giant Magnetoresistance of the Manganates: A Study of the  $(\text{La, Sr})_{n+1}\text{MnO}_{3n+1}$  Family. In: *Journal of Solid State Chemistry* 122 (1996), Nr. 2, S. 448 – 450. – URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/B6WM2-45MGPT8-5G/2/8c758a4df8ae08a27856ae557c71b168>. – ISSN 0022-4596
- [32] MAIMAN, T. H.: Stimulated Optical Radiation in Ruby. In: *Nature* 187 (1960), August, S. 493–494
- [33] MANDEL, L. ; WOLF, E.: Coherence Properties of Optical Fields. In: *Rev. Mod. Phys.* 37 (1965), Apr, Nr. 2, S. 231–287
- [34] MCCLUNG, F. J. ; HELLWARTH, R. W.: Giant Optical Pulsations from Ruby. In: *Journal of Applied Physics* 33 (1962), Nr. 3, S. 828–829. – URL <http://link.aip.org/link/?JAP/33/828/1>
- [35] MILCHEV, A.: Frequency- and wave-vector-dependent dielectric function of a model semiconductor. In: *Physica Status Solidi (b)* 90 (1978), Nr. 2, S. 679–688. – URL <http://dx.doi.org/10.1002/pssb.2220900229>
- [36] MÖNCH, Winfried: *Semiconductor surfaces and interfaces*. 3. ed. Berlin : Springer, 2001 (Springer series in surface sciences ; 26)
- [37] NIEDRIG, Hans-Joachim: *Bergmann Schaefer, Lehrbuch der Experimentalphysik*. Bd. 3: Optik : Wellen- und Teilchenoptik. 10. Aufl. Berlin : de Gruyter, 2004
- [38] NILSSON, G. ; NELIN, G.: Phonon Dispersion Relations in Ge at 80 °K. In: *Phys. Rev. B* 3 (1971), Jan, Nr. 2, S. 364–369
- [39] NILSSON, G. ; NELIN, G.: Study of the Homology between Silicon and Germanium by Thermal-Neutron Spectrometry. In: *Phys. Rev. B* 6 (1972), Nov, Nr. 10, S. 3777–3786
- [40] PAULI, W.: The Connection Between Spin and Statistics. In: *Phys. Rev.* 58 (1940), Oct, Nr. 8, S. 716–722
- [41] REDDY, Y.S. ; RAMANA REDDY, M.V. ; VEERASOMAIAH, P. ; VISHNUVARDHAN REDDY, C.: Elastic properties of double layered manganite  $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8-x}\text{Ca}_x\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $x = 0.0 - 0.4$ ). In: *Materials Science-Poland*, 25 No. 3 (2007), S. 619–626

- [42] REN, Y. H. ; TRIGO, M. ; MERLIN, R. ; ADYAM, Venimadhav ; LI, Qi: Generation and detection of coherent longitudinal acoustic phonons in the La<sub>0.67</sub>Sr<sub>0.33</sub>MnO<sub>3</sub> thin films by femtosecond light pulses. In: *Applied Physics Letters* 90 (2007), Nr. 25, S. 251918. – URL <http://link.aip.org/link/?APL/90/251918/1>
- [43] RIDLEY, Brian K.: *Quantum processes in semiconductors*. 4. ed. Oxford [u.a.] : Clarendon Press, 1999
- [44] RULLIÈRE, Claude: *Femtosecond laser pulses : principles and experiments*. 2. ed. New York;[Heidelberg] : Springer, 2005. – ISBN 0-387-01769-0 ; 978-0-387-01769-3
- [45] SCHÖNENBERGER, Christian: *Physik der Kondensierten Materie I&II - Gitterschwingungen*. lecture notes (online). March 1998. – URL <http://pages.unibas.ch/phys-meso/Education/Teaching/KOMA/KOMA-3.pdf>
- [46] SCHWABL, Franz: *Quantenmechanik : (QM I); eine Einführung; mit 16 Tabellen u. 127 Übungsaufgaben*. 7. Aufl. Berlin : Springer, 2007 (Springer-Lehrbuch). – ISBN 978-3-540-73674-5
- [47] SHAH S., R. Laha Kalghatgi A. T. Krupanidhi S. B.: *Detection Wavelength Tuning and Dark current modeling for GaAs/AlGaAs Quantum Well Infrared Photodetectors using MATLAB and Synopsys ISE TCAD*. – URL <http://www.phy-astr.gsu.edu/qwip2006/Presentations/Detection%20Wavelength%20Tuning%20and%20Dark%20Current%20Modelling%20-%20Sam.pdf>
- [48] SOMMERFELD, A.: Zur Elektronentheorie der Metalle. In: *Naturwissenschaften* 16 (1928), Mai, Nr. 21, S. 374–381. – URL <http://dx.doi.org/10.1007/BF01508000>
- [49] SPENCE, D. E. ; KEAN, P. N. ; SIBBETT, W.: 60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser. In: *Opt. Lett.* 16 (1991), Nr. 1, S. 42–44. – URL <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-16-1-42>
- [50] TEMPLE, Paul A.: An introduction to phase-sensitive amplifiers: An inexpensive student instrument. In: *American Journal of Physics* 43 (1975), Nr. 9, S. 801–807. – URL <http://link.aip.org/link/?AJP/43/801/1>
- [51] THOMSEN, C. ; GRAHN, H. T. ; MARIS, H. J. ; TAUC, J.: Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses. In: *Phys. Rev. B* 34 (1986), Sep, Nr. 6, S. 4129–4138

- [52] VOLKMANN, Konrad: *Ultraschnelle Relaxationsdynamik über Phononen-Wechselwirkungen in Festkörpersystemen*, Freie Universität Berlin, Dissertation, 2010
- [53] WANNIER, Gregory H.: The Structure of Electronic Excitation Levels in Insulating Crystals. In: *Phys. Rev.* 52 (1937), Aug, Nr. 3, S. 191–197
- [54] WEINER, Andrew: *Ultrafast Optics*. WILEY, 2009
- [55] YAMAMOTO, Aishi ; MISHINA, Tomobumi ; MASUMOTO, Yasuaki ; NAKAYAMA, Masaaki: Coherent Oscillation of Zone-Folded Phonon Modes in GaAs-AlAs Superlattices. In: *Phys. Rev. Lett.* 73 (1994), Aug, Nr. 5, S. 740–743
- [56] YAN, Y. X. ; GAMBLE, E. B. ; NELSON, K. A.: Impulsive stimulated scattering - General importance in femtosecond laser pulse interactions with matter, and spectroscopic applications. In: *JCP* 83 (1985), Dezember, S. 5391–5399
- [57] YU, Manuel: *Fundamentals of semiconductors : physics and materials properties; with 52 tables and 116 problems.* 3., rev. and enl. ed., 3., corr. print. Berlin : Springer, 2005. – ISBN 3-540-25470-6
- [58] ZEIGER, H. J. ; VIDAL, J. ; CHENG, T. K. ; IPPEN, E. P. ; DRESSELHAUS, G. ; DRESSELHAUS, M. S.: Theory for displacive excitation of coherent phonons. In: *Phys. Rev. B* 45 (1992), Jan, Nr. 2, S. 768–778

## Eidesstattliche Erklärung

Ich erkläre hiermit an Eides statt, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Quellen und Hilfsmittel angefertigt habe.

Die aus fremden Quellen direkt oder indirekt übernommenen Gedanken sind als solche kenntlich gemacht.

Diese Arbeit wurde in gleicher oder ähnlicher Form noch keiner anderen Prüfungsbehörde vorgelegt und auch noch nicht veröffentlicht.

Potsdam, 15. November 2010

André Bojahr