



ULTRASCHNELLE DYNAMIK IN KONDENSIRTER MATERIE
UNIVERSITÄT POTSDAM

BACHELORARBEIT

**Breitbandige zeitaufgelöste Brillouin-Streuung
an transversalen Phononen**

Autorin:

Jasmin JARECKI

Erster Gutachter:

Prof. Dr. Matias BARGHEER
Universität Potsdam

Zweiter Gutachter:

Prof. Dr. Markus GÜHR
Universität Potsdam

Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultät
Institut für Physik und Astronomie
19. November 2020

Kurzfassung

Diese Arbeit behandelt die zeitlich aufgelöste Detektion akustischer Phononen in Galliumarsenid mit Fokus auf die transversalen Phononen. Dafür wird eine [311]-orientierte GaAs-Probe in einem Anrege-Abfrage-Experiment mittels eines Femtosekundenpulses direkt angeregt, sodass aufgrund der Orientierung zwei Hyperschallwellen erzeugt werden: eine starke quasilongitudinale und eine schwache quasitransversale. Diese bewirken eine Modulation der Reflektivität eines breitbandigen Weißlichtlaserpulses, die somit Rückschlüsse auf die Eigenschaften der Schallwellen auf ultrakurzen Zeitskalen zulässt.

In einem ersten Schritt wird theoretisch und experimentell gezeigt, dass die Anregung mit 400 nm-Laserpuls ein Phononenspektrum erzeugt, dass gut mit sichtbarem Licht zu detektieren ist. Im Weiteren werden dann die Messsignaturen, die aufgrund der propagierenden Schallwellen zeit- und abfragewellenlängenabhängige Oszillationen aufweisen, näher analysiert, wobei erst die Fouriertransformation zeigt, dass es zwei Oszillationsfrequenzen gibt.

Die Bestimmung der Dispersionsrelationen und der zugehörigen Schallgeschwindigkeiten identifizieren die auftretende Dynamik eindeutig als die Propagation der schnelleren quasilongitudinalen und die der langsameren quasitransversalen kohärenten akustischen Phononen. Die Frequenzen der auftretenden Schallwellen liegen im Bereich von 40 GHz bzw. 20 GHz, wobei die Longitudinalen höherfrequent als die Transversalen sind. Ebenfalls wird die lineare Dispersion der Hyperschallwellen dieses Frequenzbereiches verifiziert.

Im letzten Teil werden der Einfluss der Eigenschaften des Galliumarsenid und der der experimentellen Bedingungen näher untersucht. Der Vergleich der beobachteten Dämpfung mit vorigen Arbeiten zeigt gewisse Diskrepanzen für bandlückennahe Abfragewellenlängen. Es zeigt sich, dass die Phononendetektion durch die Eindringtiefe des Abfragelichts limitiert ist und so der überwiegende Bereich des verfügbaren optischen Spektrums nicht ausgenutzt werden kann, um die intrinsische Lebensdauer der Phononen zu bestimmen.

Es werden zwei Verfahren zur Bestimmung der Dämpfung verglichen, wobei mit dem ersten die Lebensdauern in der Zeitdomäne und mit dem zweiten über den Zusammenhang zur spektralen Breite im Frequenzraum bestimmt werden. Ein Vergleich der Lebensdauern der beiden Zweige ist jedoch mit keiner der beiden Methoden möglich. Die transversalen Phononen zeigen im Frequenzraum zwar eine separate Signatur, doch sind die Peaks zu schmal für die Minimalfrequenzauflösung des Experiments.

Neben einer Abnahme ist auch eine anfängliche Zunahme der Oszillationsamplitude zu beobachten, deren Ursprung mittels Modellierungen identifiziert. Ein einfaches Modell, dass die zeitabhängige Änderung des Brechungsindex in den ersten paar 100 Nanometern und insbesondere an der Probenoberfläche und die damit zeitlich variierende Reflektivität an den einzelnen Grenzflächen berücksichtigt, kann sowohl die beobachtete Fluenz- als auch die Wellenlängenabhängigkeit erklären.

INHALTSVERZEICHNIS

1	Einleitung	1
2	Theoretische Grundlagen	3
2.1	Longitudinale und transversale akustische Phononen	3
2.2	Erzeugung kohärenter akustischer Phononen	5
2.3	Brillouin-Streuung	7
3	Experiment	9
3.1	Probe	9
3.2	Anrege-Abfrage-Experiment	10
3.3	Experimenteller Aufbau	10
3.4	Weißlicht	12
4	Ergebnisse und Diskussion	15
4.1	Vergleich zwischen 400 nm- und 800 nm-Anregung	15
4.2	Dispersionsrelation	18
4.3	Phononendämpfung	22
4.4	Zunahme der Oszillationen	28
5	Zusammenfassung und Ausblick	33
	Literaturverzeichnis	V

KAPITEL EINS

Einleitung

Wird im Allgemeinen von Schallwellen gesprochen, assoziiert man diese zunächst mit dem, was man im Alltag als Geräusche wahrnehmen kann. Der Begriff Schall beschreibt aber im allgemeinsten Sinne Dichtewellen in einem elastischen Medium. Entsprechen die Frequenzen wenigen Hertz bis ein paar Kilohertz, so kann das menschliche Gehör diese wahrnehmen.

Dieser Frequenzausschnitt macht aber, ähnlich wie bei sichtbarem Licht, einen nur relativ schmalen Anteil des akustischen Spektrums aus. Während man mit piezoelektrischen Kristallen Frequenzen bis zu einem Gigahertz erschloss, ermöglichte die Entwicklung von Laserquellen mit ultrakurzen Pulsen die gezielte Erzeugung von sogenannten Hyperschallwellen mit Frequenzen bis in den Terahertzbereich. Durch Anregung eines Materials mit diesen wenige 100 fs-langen Pulsen können kohärente akustische Phononen, die Schwingungsquanten im Teilchenbild, erzeugt werden, die als Schallpuls weiterpropagieren [1].

Seit dem Beginn der Forschung auf diesem Gebiet haben sich einige Eigenschaften aufgezeigt, die auf fundamentaler Ebene als auch für Anwendungen von großem Interesse sind. Wegen der kurzen Wellenlängen des Schallpulses zum Beispiel eignet er sich, um Nanostrukturen zerstörungsfrei zu untersuchen [2, 3]. Zudem ist es möglich, aufgrund der Kopplung des phononischen Systems an das elektronische oder das Spin-System eines Festkörpers die ultrakurzen Schallpulse als Schalter für Phasenübergänge [4] oder magnetische Ordnungen zu nutzen [5, 6].

Während die Erzeugung kohärenter, longitudinal akustischer Phononen mit Frequenzen bis zu einigen Terahertz und deren Eigenschaften bereits in vielen Arbeiten untersucht worden sind [7, 8], sind die oftmals schwerer anzuregenden transversal akustischen Phononen nicht so gut studiert. Dennoch scheint es vielversprechend, diese Mühen auf sich zu nehmen, da die Eigenschaften der Schallwellen für die transversalen Phononen anders ausgeprägt sind. Untersuchungen haben beispielsweise gezeigt, dass transversale Phononen deutlich effizienter die Magnetisierung eines Materials beeinflussen als die Longitudinalen [6].

Die laserinduzierte Anregung hochfrequenter, transversaler Schallwellen erfordert eine speziellere experimentelle Anordnung und Sorgfalt. Eine der am besten erprobten und effizientesten Möglichkeiten ist die Orientierung der Probe bezüglich der Oberfläche so zu wählen, dass ein Symmetriebruch auftritt [9]. Die schräge Orientierung bewirkt, dass bei Erzeugung einer ebenen Welle diese sowohl eine Longitudinal- als auch eine Scherkomponente besitzt, die mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten auseinander propagieren.

Galliumarsenid ist in dieser Hinsicht eine gern genutzte Probe, da es gut in verschiedenen Orientierungen wächst, zudem ein bekanntes und gut charakterisiertes Material ist. Es wurde schon in verschiedenen Arbeiten zuvor gezeigt, dass die quasitransversalen (QTA) neben den longitudinalen (QLA) akustischen Phononen in GaAs (311) kohärent angeregt und detektiert werden können. Die Anrege-Abfrage-Experimente wurden dabei aber häufig mithilfe eines optoakustischen Wandlers auf der Probe [10] oder bei direkter Anregung des Galliumarsenids nur mit verhältnismäßig kleinen Fluenzen im $\mu\text{J}/\text{cm}^2$ -Bereich [11] durchgeführt.

Auch in den hier beschriebenen Experimenten wird Galliumarsenid mit [311]-Orientierung ver-

wendet. Im Gegensatz jedoch zu den meisten anderen Messungen wird die Probe direkt und mit hohen Fluenzen über 1 mJ/cm^2 angeregt und die Dynamik außerdem breitbandig detektiert. Der besondere Fokus besteht darin, die Scherwellen effizient mit möglichst hoher Amplitude zu erzeugen, womit die Grundlage dafür geschaffen werden soll, die Effekte, dieser Schallwellenpolarisation zu untersuchen, wie zum Beispiel die Kopplung an das Spinsystem eines Materials oder nichtlineare Wechselwirkungen [12]. Die Weißlichtdetektion ermöglicht es hier einen Ausschnitt der Dispersionsrelation aufzunehmen und frequenzabhängige Analysen durchzuführen [13].

Diese Arbeit ist in verschiedene Abschnitte strukturiert: Nachdem zunächst auf die physikalischen Grundlagen eingegangen wird, die Erzeugung und Detektion von Hyperschallwellen betreffend, werden die experimentelle Methodik und der Aufbau näher beschrieben. Nachfolgend werden die Messdaten und Ergebnisse präsentiert. Dabei wird als erstes die Erzeugung eines Phononenspektrums unter verschiedenen Anregungsenergien besprochen und die Messresultate auf die angeregte Dynamik analysiert. Im zweiten Teil wird die Entwicklung des Messsignals in Zusammenhang mit der Phononenentwicklung, aber auch mit der Detektion gebracht. Zum Abschluss werden die erzielten Erkenntnisse zusammengefasst und ein Ausblick darüber gegeben, was in künftigen Experimenten weiter betrachtet werden kann.

KAPITEL ZWEI

THEORETISCHE GRUNDLAGEN

In diesem Kapitel werden die für diese Arbeit relevanten grundlegenden Hintergründe erläutert. Dafür werden zunächst die Gitterschwingungen allgemein näher beschrieben, im Anschluss dann die Erzeugung von Schallwellen erklärt, bis am Ende auf die Wechselwirkung von Phononen mit Licht eingegangen wird.

2.1 Longitudinale und transversale akustische Phononen

In dieser Arbeit geht es um die Reaktion eines Kristallgitters, nachdem eine äußere Kraft auf dieses gewirkt hat. Wird Energie in das Gitter eingebracht, erhöht man damit die Besetzung der Phononen. Phononen stellen die Schwingungsquanten dar und bilden gemeinsam die Gitterschwingungen. In dem kommenden Abschnitt wird nun die Dispersionsrelation der Phononen in einem Festkörper hergeleitet.

In der einfachsten Variante kann man sich ein Kristallgitter als eine lineare Kette von Massen, die über Federn verbunden sind, vorstellen. Die Massen entsprechen in dieser Vorstellung den Atomen, während die Federn das interatomare Potential darstellen, welches durch die Bindungskräfte der Atome hervorgerufen wird.

Man betrachte nun ein Kristallgitter mit einer zweiatomigen Basis. Für das Masse-Feder-Modell braucht man also eine Kette von insgesamt $2N$ Atomen, in der die beiden Atomsorten als unterschiedliche Massen m , M abwechselnd auftreten und über Federn mit gleichen Federkonstanten verbunden werden (s. Abbildung 2.1).

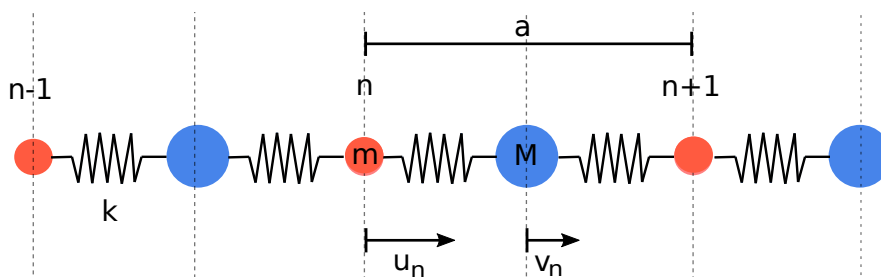


Abbildung 2.1: Lineare Kette mit zwei Atomsorten der Massen m und M , Federn mit Federkonstante k und der Gitterkonstante a .

Für diese Kette kann man nun $2N$ Differentialgleichungen formulieren, die den Bewegungsgleichungen der einzelnen Atome entsprechen unter der Annahme, dass die Kraft proportional zur relativen Auslenkung benachbarter Massen ist. Als Lösung dieser Gleichungen wird ein Exponentialansatz

gewählt (s. Gln. (2.3), (2.4)).

$$m \frac{d^2 u_n}{dt^2} = k(v_n - u_n) + k(v_{n-1} - u_n) \quad (2.1)$$

$$M \frac{d^2 v_n}{dt^2} = k(u_n - v_n) + k(u_{n+1} - v_n) \quad (2.2)$$

$$u_n = U \cdot \exp(iQan - i\omega t) \quad (2.3)$$

$$v_n = V \cdot \exp(iQan - i\omega t) \quad (2.4)$$

Durch Einsetzen des Lösungsansatzes in die Gleichungen (2.1, 2.2) erhält man ein homogenes lineares Gleichungssystem, dessen nicht-triviale Lösung die Dispersionsrelation der Phononen ist.

$$\omega^2 = \frac{k(m+M) \pm \sqrt{k(m+M)^2 - 2mMk^2 + 2mMk^2 \cos Qa}}{mM} \quad (2.5)$$

Das Ergebnis dieses Problems liefert also eine Dispersionsrelation mit zwei Zweigen, die in Abbildung 2.2 gezeigt sind. Man unterscheidet im Fall einer zweiatomigen Basis zwischen akustischen und optischen Phononen, wobei Erstere in Phase und Letztere gegenphasig schwingen.

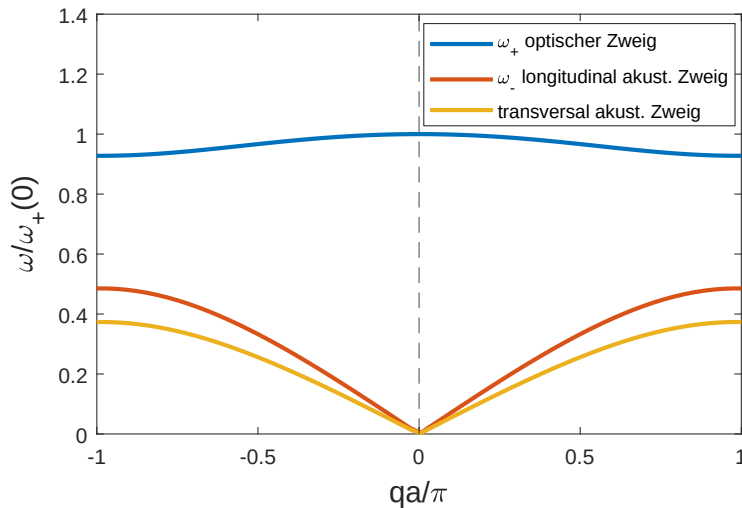


Abbildung 2.2: Die zwei resultierenden Zweige einer 1D-linearen Kette alternierender Massen (blau und rot) in der ersten Brillouinzone. Die zusätzliche, gelbe Linie zeigt exemplarisch eine transversale Mode des akustischen Zweiges, die in mehr Dimensionen hinzukommen.

Tatsächlich sind in drei Dimensionen drei voneinander unabhängige Auslenkungsrichtungen möglich, sodass jeder Zweig nochmal in drei Moden aufgeteilt werden kann. Die Gitterschwingungen entlang der Ausbreitungsrichtung entsprechen den longitudinalen und die zwei möglichen senkrechten Polarisationen entsprechen den transversalen Phononen.

Man betrachte nun den Fall kleiner Wellenvektoren $Q \rightarrow 0$ für die Dispersionsrelation der akustischen Phononen ω_- . Es zeigt sich, dass sie in dieser Region linear mit einer konstanten Schallgeschwindigkeit v_{Schall} ansteigt. Für akustische Phononen lässt sich also folgende und später sehr nützliche Näherung im Zentrum der Brillouinzone vornehmen:

$$\omega = v_{\text{Schall}} \cdot Q \quad (2.6)$$

Die transversal akustischen Phononen haben im Allgemeinen eine flachere Dispersionsrelation als die longitudinalen (s. Abbildung 2.2). Aus diesem Grund und unter Berücksichtigung der Gleichung

(2.6) ist zu erwarten, dass die Scherwelle langsamer ist.

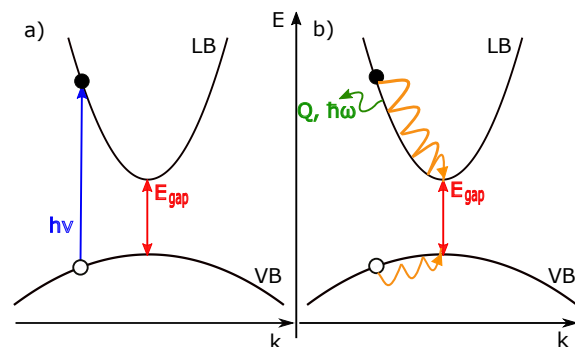
Bei einer beliebigen Anregung ist es grundsätzlich möglich, alle drei akustischen Moden anzuregen. Um die transversalen Phononen jedoch effektiv zu erzeugen, ist ein Symmetriebruch im Kristall erforderlich.

2.2 Erzeugung kohärenter akustischer Phononen

Der Erzeugung kohärenter akustischer Phononen in einem Festkörper können einige Mechanismen zu Grunde liegen, wobei die Eigenschaften der Probe und die experimentellen Bedingungen entscheidenden Einfluss nehmen. Im folgenden Abschnitt werden die für diese Arbeit relevanten Prozesse beschrieben, die zur Anregung einer Schallwelle in einem Halbleiter führen. Im zweiten Teil wird zudem auf die unterschiedlichen Moden, die dabei eine Rolle spielen können, eingegangen.

Trifft ein ultrakurzer Laserpuls mit einer Pulsdauer um die 100 fs auf ein Material, propagiert ein Teil des Lichts in die Probe hinein. Ist die Photonenenergie hinreichend groß, absorbieren die Elektronen aus dem Valenzband die eingestrahlte Energie gemäß dem Lambert-Beerschen-Gesetz bis zu einer wellenlängenabhängigen Eindringtiefe ξ und gelangen dadurch in das Leitungsband, wo sie sich zunächst in einer Nicht-Gleichgewichtsverteilung befinden. Durch Elektron-Elektron-Stöße equilibrieren diese typischerweise in wenigen 10 fs [14], sodass sie durch eine Fermi-Verteilung mit erhöhter Temperatur beschrieben werden können (s. Abbildung 2.3a). Analoges passiert im Valenzband mit den Löchern.

Abbildung 2.3: a) Die Elektronen aus dem Valenzband werden durch Absorption der Photonen $h\nu$ des anregenden Lichts in das Leitungsband gehoben. b) Unter Emission thermischer Phononen relaxieren die angeregten Elektronen zum Minimum des Leitungsbandes, die Löcher zum Maximum des Valenzbandes.



Nun gibt es zwei Effekte, die für die Erzeugung kohärenter Phononen verantwortlich und die in dieser Arbeit von Bedeutung sind: der Deformationspotential-Mechanismus und der thermoelastische Effekt. Obwohl typischerweise das Deformationspotential die Erzeugung von Schall in Halbleitern bestimmt, dominiert ab einer gewissen eingestrahnten Fluenz der thermoelastische Effekt [7]. Da die Experimente in dem höheren Fluenzregime durchgeführt werden, wird nur letzterer Mechanismus näher betrachtet. Er beruht darauf, dass sich das Volumen des Festkörpers aufgrund seiner Erwärmung ändert.

Unter Emission inkohärenter Phononen relaxieren die Elektronen (die Löcher) bis zum Minimum des Leitungsbandes (Maximum des Valenzbandes), was zur Erwärmung des Gitters führt (s. Abbildung 2.3). Die Zeitskala ist durch die Wechselwirkung der Elektronen bzw. Löcher und den Phononen bestimmt, welche typischerweise einige 100 Femtosekunden bis wenige Picosekunden betragen (z. B. in GaAs etwa 1-2 ps [14, 15]).

Die plötzliche Temperaturzunahme des Gitters führt zu einer Spannung (engl. stress) entlang der angeregten Tiefe der Probe [16]

$$\sigma_{TE} = -3B\beta\Delta T_G \quad (2.7)$$

mit dem Bulk-Modul B , dem linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten β und der Temperaturänderung des Gitters ΔT_G .

Die Spannung σ ist über die elastischen Konstanten eines Materials mit der Dehnung η (engl. strain) in Form des Hookschen Gesetzes verknüpft. Auf die eingebrachte Spannung reagiert der Kristall also mit einer schnellen Ausdehnung, die im Anschluss als Schallwelle von der Probenoberfläche wegpropagiert.

Außerdem ist eine Änderung des mittleren Atomabstandes, was die Ausdehnung effektiv bedeutet, nur möglich, wenn das interatomare Potential anharmonisch ist.

Allgemein kann diese Ausdehnung in Form einer relativen Volumenänderung $\delta V/V$ auftreten. Da allerdings der Durchmesser des Strahlprofils des anregenden Pulses auf der Probe deutlich größer ist als die angeregte Probentiefe, kann man diese Volumenänderung auf eine Längenänderung in zur Probenoberfläche senkrechte Richtung vereinfachen. Es wird also eine ebene Schallwelle erzeugt, die aus einem Spektrum kohärenter akustischer Phononen besteht.

Die Form und das Spektrum dieses Schallpulses hängen stark von dem nach der Anregung resultierenden Spannungsprofil ab. Dieses wiederum kann mit den verschiedenen Eigenschaften des Festkörpers variieren, aber auch mit denen des Laserpulses. Eine entscheidende Rolle spielen hier die absorbierte Fluenz und die Eindringtiefe des anregenden Lichtes, da diese Größen die anfängliche Energiedichteverteilung bestimmen.

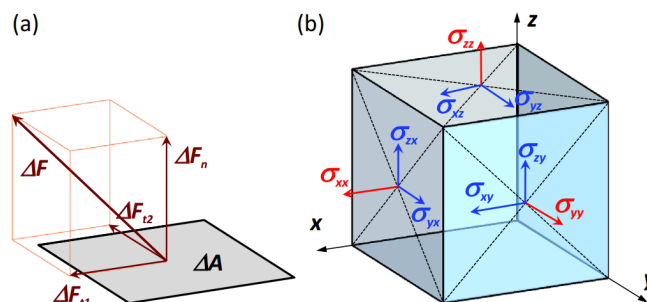
Aber auch die freien Ladungsträger, im Fall eines Halbleiters sind es die Elektronen und Löcher, beeinflussen die Verteilung der Energie. Durch Diffusion in die Tiefe der Probe, kann die Spannung σ entlang deutlich größerer Längen entstehen als der bloßen Eindringtiefe des Lasers.

Eine allgemeine Formulierung des Hook'schen Gesetztes berücksichtigt die Dreidimensionalität eines Festkörpers. Die Spannung σ und die Dehnung η sind in diesem Fall Tensoren zweiter Stufe und hängen über einen Tensor vierter Stufe zusammen, der die richtungsabhängigen elastischen Konstanten enthält.

$$\sigma_{ij} = \sum_{k=1}^3 \sum_{l=1}^3 C_{ijkl} \eta_{kl} \quad (2.8)$$

In Abbildung 2.4b ist dieser richtungsabhängige Spannungstensor veranschaulicht, wobei die Indizes 1,2,3 durch x,y,z vertauscht sind. Gezeigt wird, dass an jeder Fläche eines Körpers je drei Spannungskomponenten wirken können.

Abbildung 2.4: a) Die an einem Flächenelement ΔA angreifende Kraft, kann in drei Komponenten zerlegt werden: in eine Normal- und zwei Tagentialkomponenten. b) Für jede Fläche eines Kristalls kann eine Spannung entlang dreier Richtungen anliegen. (Bild: [17] S. 155)



Die Orientierung des Kristallgitters bezüglich der Probenoberfläche spielt für die Erzeugung des Phononenspektrums auch eine Rolle. Bei Auslenkungen entlang von Hochsymmetrierichtungen werden nur longitudinale Gitterschwingungen angeregt. Wirkt dagegen eine Kraft beispielsweise, wie in Abbildung 2.4a gezeigt, in eine Richtung, entlang dieser der Kristall nur eine schwache Symmetrie aufweist, so kann man diese in drei Komponenten zerlegen. Auf atomarer Ebene bedeutet das, dass die Atombewegungen sowohl entlang der Ausbreitungsrichtung als auch senkrecht

zu dieser stattfinden. Es werden somit also longitudinale und transversale Schwingungsmoden angeregt.

Im Fall der Schallwellenerzeugung kann dies dazu führen, dass mehrere Schallwellen mit zueinander senkrechten Polarisierungen angeregt werden. Diese propagieren im Allgemeinen mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten können aufgrund ihrer Orientierung auch in voneinander abweichende Richtungen auseinander laufen ähnlich wie bei der Doppelbrechung von Licht.

2.3 Brillouin-Streuung

Die Dispersionsrelation, die die Informationen über die charakterisierenden Eigenschaften der Phononen enthält, lässt sich in inelastischen Streuexperimenten messen. Betrachtet man die inelastische Streuung von Photonen an akustischen Phononen, so nennt man das Brillouin-Streuung.

Unter Erzeugung oder Vernichtung eines Phonons der Energie $\hbar\omega_Q$ und dem Wellenvektor Q wird das einfallende Photon mit Energie E und Wellenvektor k am Kristallgitter gestreut. Eine grundsätzliche Bedingung bei solchen Prozessen ist die Energie- (2.9a) und Impulserhaltung (2.9b):

$$E' - E = \hbar\omega_Q \quad (2.9a)$$

$$\vec{k}' - \vec{k} = \vec{G} \pm \vec{Q} \quad (2.9b)$$

wobei E' und $\vec{k}'$ die Energie und der Wellenvektor des Photons nach der Streuung und $\vec{G}$ ein reziproker Gittervektor sind.

Der Impulsübertrag bei so einem Streuprozess liegt nur im Bereich von $10^{-4} - 10^{-3} \text{ \AA}^{-1}$, sodass man bei einer Brillouinzoneausdehnung von etwa $1 \text{ \AA}^{-1}$ auf einen schmalen Bereich um das Zentrum beschränkt ist [17].

Wegen des sehr kleinen Impulsübertrags kann man die Streuung als quasi-elastisch betrachten ($|\vec{k}| \approx |\vec{k}'|$) an dem Gittervektor $\vec{G} = 0$, sofern es Photonen aus dem sichtbaren und nahinfraroten Spektrum sind. Gleichung 2.9b entspricht dann der Laue-Bedingung für Streuung an einem Phonon. Dies ist auch in Abbildung 2.5a veranschaulicht. Durch die Äquivalenz von Laue- und Braggbedingung kann Gleichung 2.9b mit $\vec{G} = 0$ auch in folgender Form beschrieben werden:

$$\lambda_{\text{Licht}} = 2 \cdot \lambda_{\text{Phonon}} \cos \theta \quad (2.10)$$

Im Wellen- statt Teilchenbild betrachtet, ist Brillouin-Streuung also die Reflexion einer elektromagnetischen Welle mit Wellenlänge λ_{Licht} an einer periodischen Brechungsindexänderung, die durch die propagierende Schallwelle induziert wird [13].

Der Beugungswinkel θ ist, wie in der Optik üblich, der Winkel zwischen dem zur Probenoberfläche senkrechten Lot und der Propagationsrichtung des einfallenden Lichts in der Probe (s. Abbildung 2.5b). Deswegen ändert sich auch der Faktor $\sin \theta'$ im Bragg-Gesetz zu $\cos \theta$.

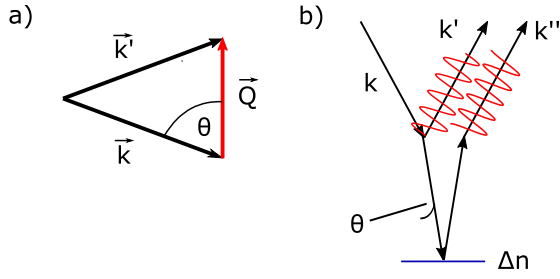


Abbildung 2.5: Veranschaulichung der Brillouin-Streuung a) im Teilchenbild. Ein Photon wird unter Erzeugung eines Phonons gestreut. b) Die Reflexion an der Oberfläche interferiert mit der an der Brechungsindexänderung durch die Schallwelle. Die beiden Komponenten haben einen zeitabhängigen Phasenversatz durch die Propagation der Schallwelle.

Auf diese Weise sieht man direkt, dass man mit den Photonen einer bestimmten Wellenlänge λ_{Licht} jeweils auf nur eine Schwingungsmode mit Wellenlänge λ_{Phonon} sensitiv ist. Mithilfe des Zusammenhangs zwischen Photonenwellenlänge und Phononenwellenvektor $Q = 2\pi \cdot n(\lambda_{\text{Licht}}) / \lambda_{\text{Licht}}$ kann man die Gleichung (2.10) umformen, sodass man die Wellenvektoren der Phononen, an denen gestreut wird, berechnen kann.

$$Q(\lambda_{\text{Licht}}) = \frac{4\pi}{\lambda_{\text{Licht}}} n(\lambda_{\text{Licht}}) \cos \theta \quad (2.11)$$

Mit dem wellenlängenabhängigen Brechungsindex n berücksichtigt man die Propagation des Lichts durch das Medium.

Die Reflexion an einer Probe, in der eine Schallwelle propagiert, besteht also aus der Interferenz zweier Komponenten: der Reflexion an der Oberfläche E_1 mit der Amplitude e_1 und der an der Schallwelle E_2 mit e_2 (s. Abbildung 2.5b). Durch die Propagation der Schallwelle ändert sich die Phase $\phi = 2\pi f_{\text{Licht}} v_{\text{Schall}} \cdot t / c_m$ zwischen den beiden interferierenden Komponenten zeitabhängig, sodass die reflektierte Intensität $R(t)$ ebenfalls zeitlich moduliert wird. Die Frequenz dieser Modulation entspricht dann der Frequenz des Phonons ω_{Phonon} , an dem gestreut wird.

$$R(t) = |E_1 + E_2|^2 = |E_1|^2 + |E_2|^2 + 2e_1 e_2 \cdot \cos(\omega_{\text{Phonon}} t) \quad (2.12)$$

Streut man also sichtbares Licht an einer Probe, in der man eine Schallwelle erzeugt hat, und misst die Reflektivität zeitlich aufgelöst, erhält man alle nötigen Größen, um die Dispersionsrelation der Phononen im Bereich des BrillouinzoneNZentrums zu bestimmen.

KAPITEL DREI

EXPERIMENT

In diesem Kapitel wird das experimentelle Vorgehen beschrieben. Dafür wird zunächst die Probe vorgestellt und die wichtigsten materialspezifischen Parameter angegeben. Im Weiteren wird die Messmethode und der dafür nötige experimentelle Aufbau näher erläutert.

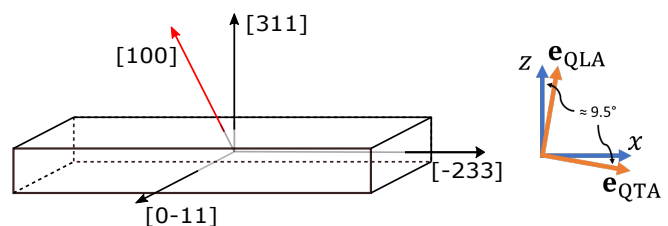
3.1 Probe

Das primäre Ziel dieser Arbeit ist es, eine transversale Schallwelle zu erzeugen und diese zu detektieren. Wie im vorigen Kapitel erläutert wird, spielen die Eigenschaften des angeregten Festkörpers hierbei eine entscheidende Rolle.

Die verwendete Probe ist ein Galliumarsenid-Substrat, das etwa 1 cm breit, 0,5 cm hoch und 300 μm dick ist. GaAs ist ein direkter Halbleiter mit einer kubischen Kristallstruktur. Diese besteht aus zwei um ein Viertel der Raumdiagonale der Einheitszelle ineinander verschobenen fcc-Gittern aus Gallium- und Arsenatomen. Die Bandlücke bei 300 K beträgt $E_{\text{gap}} = 1,43 \text{ eV}$ und ändert sich wie für Halbleiter typisch mit Änderungen der Temperatur [18]. Die zu dieser Energie entsprechende Wellenlänge beträgt $\lambda_{\text{gap}} = 873 \text{ nm}$. Weitere materialspezifische Parameter, die im Experiment von Bedeutung sind, werden in der Tabelle 3.1 am Ende dieses Abschnittes angegeben.

Den für die Anregung transversaler Phononen nötigen Symmetriebruch erreicht man durch die Orientierung der Probe, die so gewählt ist, dass die $[311]$ -Achse senkrecht zur Probenoberfläche steht (s. Abbildung 3.1). Wird nun beispielsweise eine thermoelastische Spannung σ entlang der $[311]$ -Orientierung erzeugt, erfahren die Atome sowohl Normal- als auch Scherkräfte.

Abbildung 3.1: Probenorientierung in $[311]$ -Richtung (links). Die Polarisationen der Phononen sind nicht genau parallel bzw. senkrecht zur Ausbreitungsrichtung. Aus dem Grund nennt man die Phononen quasilongitudinal (QLA), -transversal (QTA).



In dieser Geometrie werden nur zwei Phononenmoden angeregt: die quasilongitudinale und die quasitransversale. Die Orientierung bewirkt, dass die Phononen nicht exakt bezüglich der Ausbreitungsrichtung, im Weiteren z-Richtung genannt, polarisiert sind (s. Abbildung 3.1). In einem solchen Fall nennt man die Polarisation, die am nächsten zur z-Achse steht, quasilongitudinal und die dazu senkrechten Polarisationen quasitransversal [19]. Der Einfachheit halber, werden die Phononenmoden im weiteren Verlauf dennoch als longitudinal und transversal bezeichnet.

Die zwei erzeugten Schallwellen propagieren mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten durch das Material. Während die Wellenvektoren beider Polarisationen stets senkrecht zur Oberfläche sind, zeigt der Poyntingvektor entlang verschiedener Richtungen. Der Energiefluss der longitudinalen Phononen breitet sich in einem Winkel von $11,8^\circ$ zur z-Achse und der der transversalen unter einem Winkel von $-22,5^\circ$ aus [10].

Bandlücke (300 K) [eV]	1,43 [18]
Schallgeschwindigkeit QLA in [311]-Richtung [nm/ps]	5.1 [20]
Schallgeschwindigkeit QTA in [311]-Richtung [nm/ps]	2.9 [20]
Gitterkonstante [$\text{\AA}$]	5,65 [21]
Dichte [g/cm^3]	5,31 [22]
Wärmekapazität (300 K) [$\text{mJ}/(\text{g K})$]	327 [21]
Wärmeleitfähigkeit [$\text{W}/(\text{m K})$]	54 [23]
lin. thermischer Ausdehnungskoeffizient [K^{-1}]	$4,84 \cdot 10^{-6}$ [23]
Debye-Temperatur [K]	344 [24]
Eindringtiefe (400 nm) [nm]	15 [25]
Eindringtiefe (800 nm) [nm]	694 [25]

Tabelle 3.1: Unterschiedliche Materialgrößen, die im Experiment und in der Analyse verwendet werden.

3.2 Anrege-Abfrage-Experiment

Die Messungen zu dieser Arbeit werden als ein sogenanntes Anrege-Abfrage-Experiment (engl. Pump-Probe-Experiment) durchgeführt. Diese experimentelle Methode ermöglicht es, den Verlauf eines Systems von einem Anfangs- zu einem Endzustand zeitlich aufzulösen.

Allgemein unterliegt dieses Experiment dem folgenden Prinzip: Im ersten Schritt habe man ein Probensystem, in dem man eine Änderung provoziert. Als zweites prüft man zeitlich versetzt zu dieser Anregung den Zustand, in dem sich das System nun befindet. Diese beiden Schritte werden beliebig oft wiederholt, wobei der zeitliche Versatz zwischen Anregung (engl. pump) und Abfrage (engl. probe) variiert wird, sodass man die Entwicklung des System zeitlich verfolgen kann.

Eine wichtige Voraussetzung hierbei ist, dass der angeregte Prozess umkehrbar und vor allem reproduzierbar ist. Der Anfangszustand muss bei jeder Anregung der Gleiche sein und auch der angestoßene Ablauf muss stets unverändert bleiben.

In dieser Arbeit wird eine Dynamik mittels eines ultrakurzen Laserpulses mit einer Pulsdauer von 150 fs in einer GaAs(311)-Probe induziert. Gemessen wird die relative Reflektivitätsänderung eines zweiten, zeitlich versetzten Laserpulses.

3.3 Experimenteller Aufbau

Wie bereits im Abschnitt zuvor erklärt, werden die Messungen in dieser Arbeit als Anrege-Abfrage-Experimente durchgeführt. Die Abbildung 3.2 zeigt schematisch den experimentellen Aufbau.

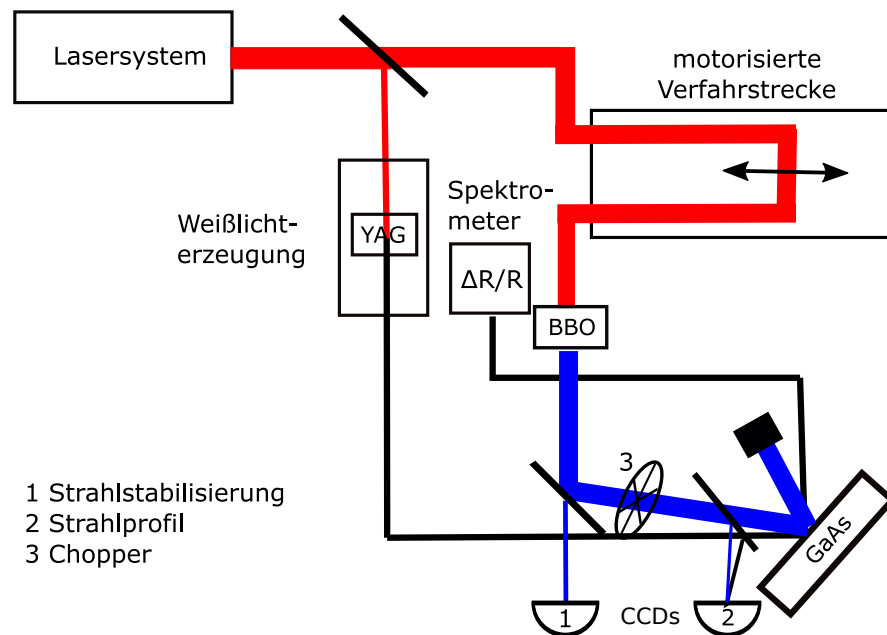


Abbildung 3.2: Schematischer experimenteller Aufbau. Die erzeugten Laserpulse werden in Anrege- und Abfragepulse aufgeteilt, welche dann unterschiedliche Optiken durchlaufen. Über die Verfahsstrecke kann die Ankunftszeit des Anregungspulses gegenüber der Abfrage variiert werden.

Das Lasersystem, bestehend aus einem Oszillator, einem Pumplaser und einem Verstärker, erzeugt ultrakurze, horizontal-polarisierte Laserpulse mit einer Wiederholungsrate von 5 kHz. Die Pulslänge beträgt 150 fs und die Zentralwellenlänge des Spektrums 800 nm. Die Pulse werden mithilfe von Spiegeln und anderen Optiken zur Probe geleitet, was als nächstes näher erläutert wird.

Über einen Strahlteiler wird der generierte Laserpuls zunächst in einen Anrege- und einen deutlich schwächeren Abfragepuls aufgeteilt.

Nach dem Strahlteiler läuft der Anregepuls über eine motorisierte Verfahsstrecke, mit der der Zeitunterschied zwischen der Anregung und der Abfrage an der Probe über das Messprogramm gesteuert werden kann. Die Länge der Wegstrecke wird während der Messung schrittweise verkürzt, sodass die Abfrage zu immer späteren Zeitpunkten passiert.

Im weiteren Verlauf ist ein BBO-Kristall auf der Wegstrecke der Anregung eingebaut. Unter Ausnutzung der doppelbrechenden Eigenschaft des Kristalls wird die Wellenlänge der Laserpulse von 800 nm auf 400 nm verkürzt. Da die Polarisation des 400 nm-Lichts um 90° gegenüber der einfallenden Polarisation gedreht wird, befindet sich eine $\lambda/2$ -Platte vor dem BBO. Zudem kann die Leistung des Pulses mithilfe eines Polarisators vor der Wellenplatte eingestellt werden.

Der BBO-Kristall ist auf einem umklappbaren Halter montiert, sodass die Wellenlänge des anregenden Laserpulses zwischen 400 nm und 800 nm einfach gewechselt werden kann.

Im letzten Abschnitt wird der Pump-Puls unter einem Winkel $\theta \approx 45^\circ$ auf die Probe fokussiert. Der Durchmesser kann dabei mithilfe zweier aufeinander folgenden Linsen, die gemeinsam ein Teleskop bilden, variiert werden.

Der sich drehende Chopper blockt jeden Zweiten der ankommenden Pulse, um die Differenz der Reflektivität einer angeregten und einer nicht angeregten Probe bestimmen zu können. Die Rotationsfrequenz und der Messzeitpunkt des Spektrometers sind hierfür genau auf die Ankunft der Laserpulse abgestimmt.

Nach der Anregung der Probe wird die Reflexion dauerhaft geblockt.

Der Abfragepuls durchläuft einen gleichbleibenden Pfad. Dieser führt zunächst über einige Spiegel

über den Lasertisch, damit der Weg eine gewisse Länge erhält. Diese ist aufgrund der hohen Lichtgeschwindigkeit nötig, damit eine Auflösung im Pikosekundenbereich unter dem gegebenen Aufbau möglich ist.

Bevor der Laserpuls auf die Probe fokussiert wird, durchläuft dieser das Weißlichtelement, welches das Spektrum des 800 nm-Pulses über einen großen Teil des sichtbaren Spektrums verbreitert. Details zu diesem Prozess werden im nächsten Abschnitt näher erläutert.

Der Weißlichtpuls trifft ebenfalls unter einem Winkel von $\theta \approx 45^\circ$ auf die Probe. Die Reflexion wird im Anschluss in ein Spektrometer geleitet.

Es ist wichtig, dass der Abfragepuls auf eine möglichst homogen angeregte Probe trifft. Aus diesem Grund ist sein Strahldurchmesser deutlich kleiner. Dieser beträgt etwa $90 \mu\text{m}$.

Zur Messung des Strahldurchmessers ist vor der Probe ein weiterer Spiegel eingebaut, den man bei Bedarf in den Strahlengang umklappen kann. Von dort wird ein Teil der Intensität auf eine CCD-Kamera gelenkt, die das Strahlprofil abbildet. Mithilfe dessen und der Messung der Leistung ist es außerdem möglich, die eingestrahlte Fluenz der Anregung zu berechnen.

Durch die Bewegung der Spiegel auf der Verfahrstrecke kann der Anregepuls jedoch, selbst nach sorgfältiger Justierung, auf der Probe verschoben werden. Dieser Verschiebung wird entgegengewirkt, indem der Laser mithilfe eines Programms und eines motorisierten Spiegels auf einen Referenzpunkt zurückgelenkt wird.

3.4 Weißlicht

Für die Abfrage werden die 800 nm-Pulse spektral verbreitert, sodass das Spektrum der Phononenwellenvektoren, auf das man nach Gleichung (2.11) sensitiv ist, einen kleinen Ausschnitt der Dispersionsrelation in der Nähe der Brillouinzone ausmacht.

Ein Superkontinuum, wie das weiße Spektrum eines Lasers auch genannt wird, wird erzeugt, indem das Licht ein nichtlineares Medium durchläuft, wobei das resultierende Spektrum abhängig von dessen Eigenschaften und denen der zu verbreiternden Laserpulse ist. Insbesondere die Intensität und die Pulsdauer spielen bei nichtlinearen Effekten eine entscheidende Rolle.

In diesem Fall wird ein YAG-Kristall als nichtlineares Medium verwendet. In diesem führt der Effekt der Selbstfokussierung und der Selbstphasenmodulation zu einer deutlichen Verbreiterung des Spektrums. Der Vorteil des YAG-Kristalls im Vergleich zu anderen gängigen Materialien ist, dass das erzeugte Spektrum eine vergleichsweise hohe Intensität im nahinfraroten Spektralbereich aufweist [26]. Dies ist sehr günstig bezüglich der Abfrage der Dynamik in GaAs, dessen Transparenz aufgrund seiner Bandlücke, die einer Wellenlänge von $\lambda = 873 \text{ nm}$ entspricht, für Wellenlängen kleiner als 900 nm stark abnimmt.

Der Effekt der Selbstphasenmodulation führt zu der gewünschten spektralen Verbreiterung. Es handelt sich um eine Nichtlinearität dritter Ordnung, wofür ein intensitätsabhängiger Brechungsindex $n(I) = n_0 + n_3 \cdot I$ nötig ist. Der Koeffizient n_3 ist im Allgemeinen sehr klein, weswegen der Effekt erst bei hohen Intensitäten deutlich auftritt. Durchläuft ein Laserpuls ein Medium mit dieser Eigenschaft wird die Phase an einem Ort z zeitlich verändert und so auch die Momentanfrequenz $\omega(t)$ des Pulses [27].

$$\omega(t) = -\frac{\partial \phi(z, t)}{\partial t} = \omega_0 - \frac{2\pi n_3 z}{\lambda_0} \frac{\partial I(t)}{\partial t} \quad (3.1)$$

Aufgrund des Gauß'schen Profils des Laserpulses wird also der voranlaufende Teil rot- und der nachfolgende Teil blauverschoben. Der zweite Term in Gleichung (3.1) zeigt außerdem, dass die Breite des erzeugten Spektrums auch stark von der Pulsdauer abhängt, denn je kürzer der Puls ist, desto mehr kann das Spektrum mithilfe des nichtlinearen Kristalls verbreitert werden.

Zur Regulierung der eintreffenden Intensität befindet sich ein Filter vor der Linse, die das Licht in den Kristall fokussiert. Für ein möglichst konstantes Superkontinuum-Weißlicht dürfen die

Intensitäten auch nicht zu hoch sein, da sonst Multifilamente auftreten, sodass durch Interferenzen das Weißlichtspektrum instabil wird [26].

In Abbildung 3.3 ist das Spektrum des in den Messungen verwendeten Weißlichts gezeigt. Da den größten Anteil des Spektrums immer noch der 800 nm-Peak ausmacht, muss dessen Intensität vor dem Auftreffen auf die Probe stark verringert werden. Der verwendete Filter (RG850) unterdrückt dabei aber auch alle niedrigeren Wellenlängen, die der YAG-Kristall erzeugt, weswegen das Spektrum nur von 780 nm bis etwa 980 nm reicht.

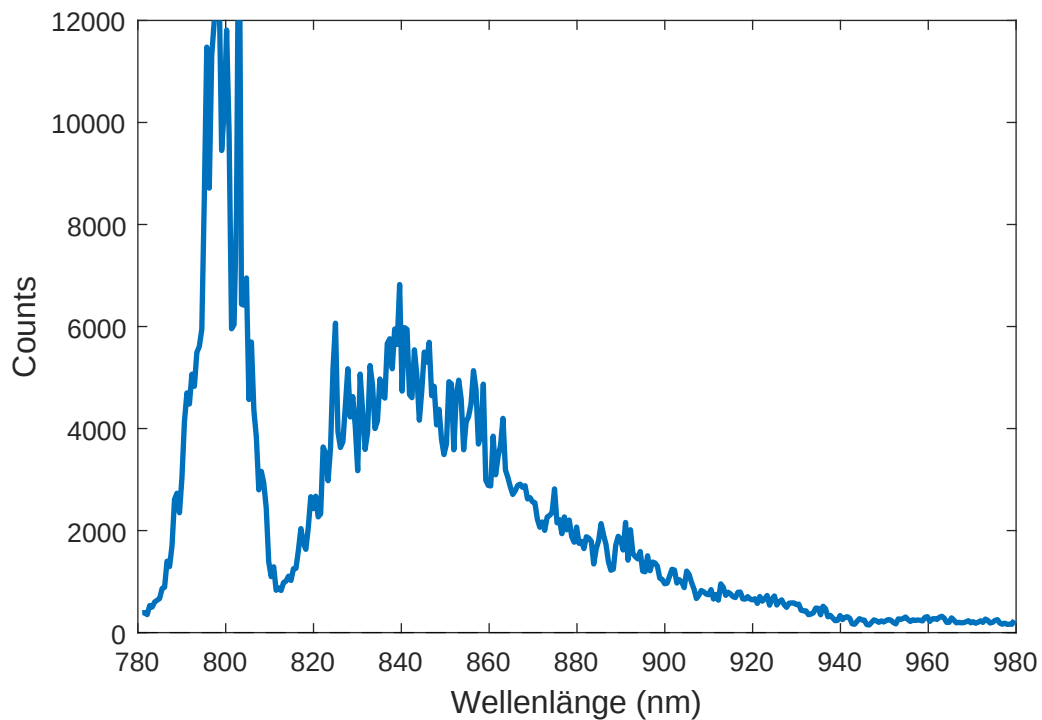


Abbildung 3.3: Spektrum des Abfragelichts unter Verwendung des Filters, der die hohe 800nm-Intensität drückt. Das tatsächliche Weißlichtspektrum des YAG-Kristalls reicht etwa von 450nm, die der RG850-Filter ebenfalls nicht durchlässt.

In der Auswertung der Daten ist im Allgemeinen zu beachten, dass für die spektralen Komponenten kein einheitlicher Zeitnullpunkt besteht, an dem die Anregung und die jeweilige Abfragewellenlänge gleichzeitig an der Probe ankommen. Innerhalb des verwendeten Spektrums ist dieser Zeitversatz jedoch im Vergleich mit den betrachteten Zeitskalen sehr klein und kann aus diesem Grund vernachlässigt werden.

KAPITEL VIER

ERGEBNISSE UND DISKUSSION

Nachdem im vorigen Kapitel das Experiment vorgestellt wurde, werden in diesem Teil die Messergebnisse gezeigt und analysiert. Dabei wird zunächst auf das Phononenspektrum unter verschiedenen Anregungsenergien eingegangen. In den folgenden Abschnitten werden dann die Phononen selbst näher auf ihre Eigenschaften untersucht.

4.1 Vergleich zwischen 400 nm- und 800 nm-Anregung

In einem Pump-Probe-Experiment zur Untersuchung einer Dynamik sind die Anregung und Detektion unmittelbar miteinander verknüpft. Ob man die in diesem Fall erzeugte Schallwelle in dem gewählten Abfragewellenlängenbereich detektieren kann, hängt maßgeblich von der Energie bzw. der Wellenlänge des anregenden Lichts ab. Im Folgenden wird beschrieben, wie sich das erzeugte Phononenspektrum mit der Pumpenergie verhält, indem zwei Messungen mit einer 400 nm-Anregung und einer 800 nm-Anregung verglichen werden.

Zunächst einmal betrachte man erneut die Erzeugung eines Schallpulses mithilfe des Lasers: Durch die Laseranregung nimmt die Temperatur der Probe über eine charakteristische Tiefe deutlich zu, was dazu führt, dass sich der erhitzte Teil der Probe ausdehnt. Die Ausdehnung führt zu einer Kompression der tieferen Schichten. Diese elastische Dynamik propagiert dann immer tiefer in das Material hinein mit der vorauslaufenden Kompression und nachfolgenden Expansion. Dies nennt man einen bipolaren Schallpuls [2].

Trifft der Laserpuls auf die Probe, dringt das Licht nur bis zu einer gewissen Tiefe ein, welche von der Wellenlänge des Lichts abhängt. Definiert wird diese Eindringtiefe über das Lambert-Beer-Gesetz, also ist es die Länge, auf der die Lichtintensität auf einen Faktor $1/e$ abnimmt. In Galliumarsenid gilt, je kleiner die Wellenlänge, desto kürzer kann auch das Licht des verwendeten Spektrums in das Material propagieren.

Diese endliche Eindringtiefe wirkt sich entscheidend auf die Länge des erzeugten Schallpulses aus, da nur der entsprechende Bereich der Probe erwärmt wird und dieser sich im Anschluss ausdehnt. In Abbildung 4.1a sind die mithilfe der udkm1Dsim Toolbox [28] modellierten Schallpulse für eine 400 nm und eine 800 nm-Anregung mit einer absorbierten Fluenz von $2,25 \text{ mJ/cm}^2$ zu sehen. Die kurze Eindringtiefe, des 400 nm-Lichts, die etwa 15 nm beträgt, spiegelt sich direkt in der Länge des Schallpulses wieder, dessen Amplitude ungefähr nach dieser Länge auf $1/e$ abfällt - analog für 800 nm.

Außerdem bedeutet diese unterschiedliche Eindringtiefe, dass bei gleicher eingestrahelter Fluenz eine unterschiedliche Energiedichtevertielung in der Probe vorliegt. Die Energiedichte ist deutlich geringer, wenn man mit 800 nm anregt im Vergleich zu einer 400 nm-Anregung. Dies führt dazu, dass es zu einem geringeren Temperaturanstieg in der 800 nm-Messung kommt, was wiederum zur Folge hat, dass sich das Material weniger stark ausdehnt. Dies kann man an der deutlich geringeren Amplitude des Schallpulses nach der Anregung mit 800 nm sehen.

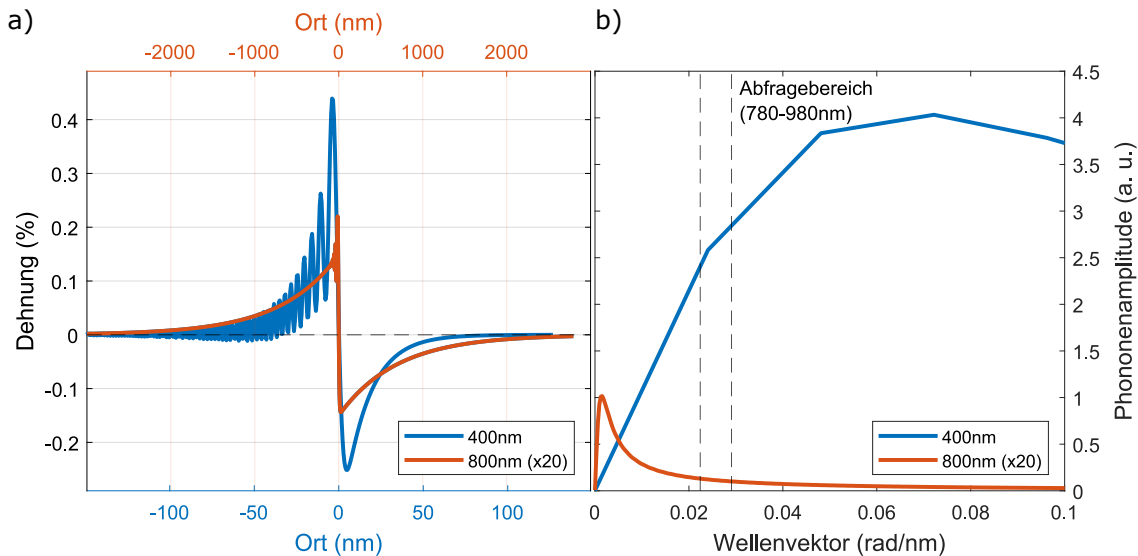


Abbildung 4.1: Schallwellen unter verschiedener Probenanregung. a) Die zwei mit der Toolbox modellierten Schallpulse für 400 nm-Anregung in blau und 800 nm-Anregung in rot sind aufgrund ihrer unterschiedlichen Länge auf verschiedenen Ortsachsen in der entsprechenden Farbe dargestellt. Die maximale Ausdehnung des mit blau angeregten Schallpulses ist um mehr als einen Faktor 20 größer. Dargestellt sind die Schallpulse nach einer Propagation über 50 ps (400 nm) bzw. 2 ns (800 nm). b) Die FFT der Schallpulse liefert die zugehörigen Phononenspektren. Bei gleicher absorbierten Fluenz ist die Amplitude des 400 nm-Spektrums deutlich größer und insbesondere im Abfragebereich (gestrichelte Linien) sind in den 800 nm-Messungen keine messbaren Oszillationen zu erwarten.

Die entsprechenden Phononenspektren (s. Abb. 4.1b), die Aufschluss darüber geben, welcher Detektionsbereich in Bezug auf die Anregung der Sinnvollste wäre, erhält man über eine schnelle Fouriertransformation (FFT). Wie bereits bei den erzeugten Schallpuls zu beobachten war, ist auch hier das Maximum des durch 800 nm-Licht erzeugten Spektrums über eine Größenordnung kleiner als das andere. Bereits dies zeigt schon, dass man mit einer 400 nm Anregung deutlich effektiver hochfrequente, kohärente Phononen erzeugt. Um ein ähnlich hohes Spektrum mit 800 nm-Pumplicht zu erzeugen, sind deutlich höhere Fluenzen nötig, die allerdings in diesem Experiment zu Schädigungen an der Probe geführt haben.

Nun ist außerdem der Wellenvektorbereich eingezeichnet, auf den man mit dem verwendeten Weißlichtspektrum des Abfragelichts nach Gleichung (2.11) sensitiv ist. Dieser Wellenvektorbereich liegt tatsächlich ziemlich nah am Maximum des von dem energetisch höheren Licht erzeugten Phononenspektrums. Im Gegensatz dazu haben die von dem roten Licht am stärksten erzeugten Phononen deutlich kleinere Wellenvektoren.

In den Messdaten in Abbildung 4.2 kann man Folgendes beobachten: Sehr kurz nach dem Zeitnullpunkt nimmt die Reflektivität stark ab, nimmt kurz darauf aber ebenso schnell wieder zu. Nachdem sie einen Maximalpeak erreicht hat, folgt zunächst eine Abnahme auf einer Zeitskala von 100 ps, die im Weiteren noch etwas gebremst wird. Dies ist in den Messdaten beider Anregungen in unterschiedlicher Ausprägung zu beobachten. Verursacht wird diese Signatur durch die inkohärente Dynamik der laserangeregten Ladungsträger und inkohärente Gitterdynamik, also das heiße Kristallgitter.

Die durch 400 nm-Licht angeregte Probe aber weist nach wenigen Pikosekunden deutliche Oszillationen in der aufgenommenen relativen Reflektivitätsänderung auf, welche mit abnehmender Wellenlänge immer kurzlebiger sind (vgl. Abb. 2a). Im Vergleich dazu ist dies bei der 800 nm Anregung nicht zu beobachten, was unter Berücksichtigung der zuvor gemachten Betrachtungen genau so zu erwarten ist.

Die wellenlängenabhängige Abnahme der Oszillationen wird in einem späteren Abschnitt näher

diskutiert.

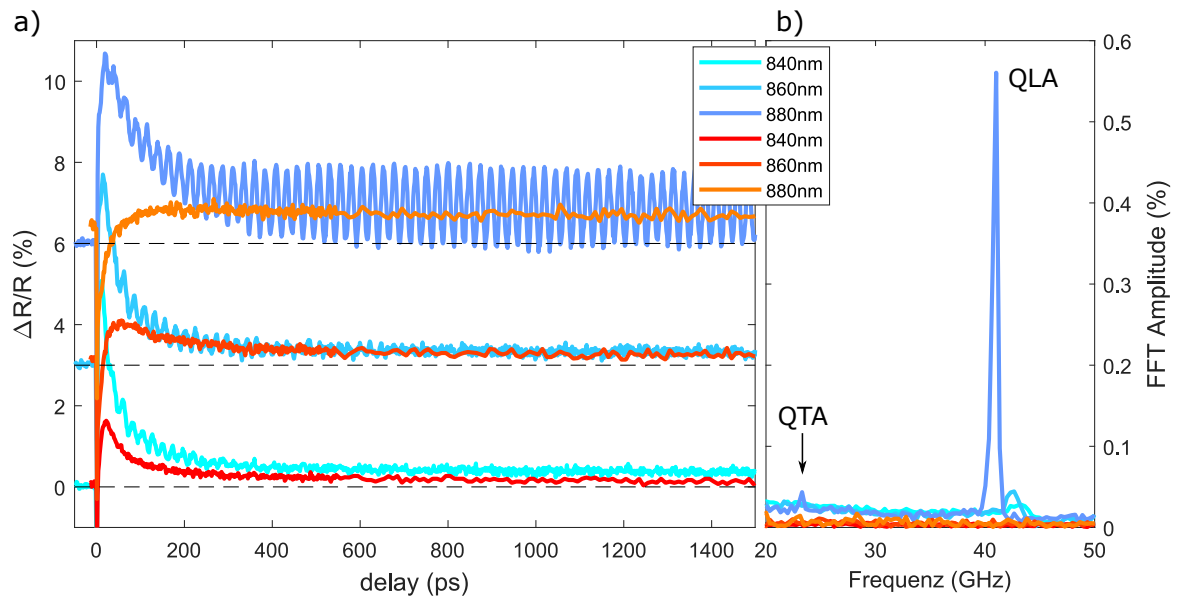


Abbildung 4.2: Messsignaturen für verschiedene Abfragewellenlängen im Real (a)- und Frequenzraum (b), in rot: nach 800 nm-Anregung, in blau: nach 400 nm-Anregung. a) Die relative Reflektivitätsänderung oszilliert nur nach der 400 nm-Anregung, da die verantwortlichen Phononen von dem blauen Licht stark genug angeregt werden. Die roten Kurven weisen nur die inkohärente Dynamik auf. b) Die FFT liefert die den Phononen zugehörigen Frequenzen. Die hochfrequenten, longitudinalen Phononen (~ 40 GHz) sind besonders stark angeregt, während man die transversalen Phononen (~ 23 GHz) nur bei einem sehr starken und lang andauernden Messsignal detektieren kann. Nur das 400 nm-Licht erzeugt die Phononen, auf die man mit dem Abfragelicht sensitiv ist, effizient genug.

Das Betragsquadrat der komplexwertigen Fouriertransformation der Messdaten liefert das Amplitudenspektrum für die jeweilige Abfragewellenlänge. In Abbildung 4.2b sind diese für einige Wellenlängen exemplarisch zu sehen. Die Spektren der 800 nm-Messung zeigen keine Peaks, die auf kohärente Phononen hindeuten. Währenddessen kann man in dem 400 nm-Spektrum für jede Wellenlänge mindestens einen Peak um die 40 GHz sehen. Insbesondere der 880 nm-Schnitt zeigt einen sehr großen Peak verglichen mit den anderen und außerdem einen zweiten, deutlich schwächeren bei etwa 23 GHz.

Die Frequenzen, bei denen diese Peaks auftreten kann man den Oszillationen in der Reflektivität zuordnen, die durch die Propagation der Schallwelle hervorgerufen werden. Obwohl man das in den Schnitten nicht direkt erkennen kann, zeigt die FFT außerdem, dass es sich hierbei um zwei propagierende Schallwellen handelt.

Wie im nächsten Abschnitt gezeigt wird, sind diese Signaturen auch bei größeren Abfragewellenlängen für 400 nm-Anregung zu sehen. Der Vergleich der Resultate für 400 nm- und 800 nm-Anregung beschränkt sich allerdings auf den in Abbildung 4.2 gezeigten Spektralbereich, da in den Messungen ein Spektralfilter verwendet wurde, der oberhalb von 890 nm intransparent ist.

Theorie und Experiment zeigen also, dass für den gegebenen Abfragebereich die Anregung mit 400 nm-Licht deutlich besser geeignet ist, um die Schallwelle möglichst effizient zu erzeugen. Für noch größere Wellenvektoren als die des gegebenen Abfragebereichs sind nach der Modellierung des Phononenspektrums in Abbildung 4.1b sogar noch größere Amplituden zu erwarten. Doch obwohl die zugehörigen Wellenlängen Teil des erzeugten Weißlichtspektrums sind, nimmt die Detektionseffizienz durch die stark zunehmende Absorption des GaAs in dem Bereich rapide ab, was im Abschnitt 4.3 noch näher erklärt wird. Deswegen ist ein Abfragebereich ab etwa 800 nm

für das GaAs unter 400 nm-Anregung eine gute Wahl.

4.2 Dispersionsrelation

Nachdem also im vorigen Abschnitt gezeigt wurde, dass die gewünschten Signaturen, die Oszillation der relativen Reflektivitätsänderung, nur unter einer 400 nm-Anregung gemessen werden können, werden im Folgenden nur diese Messungen näher analysiert.

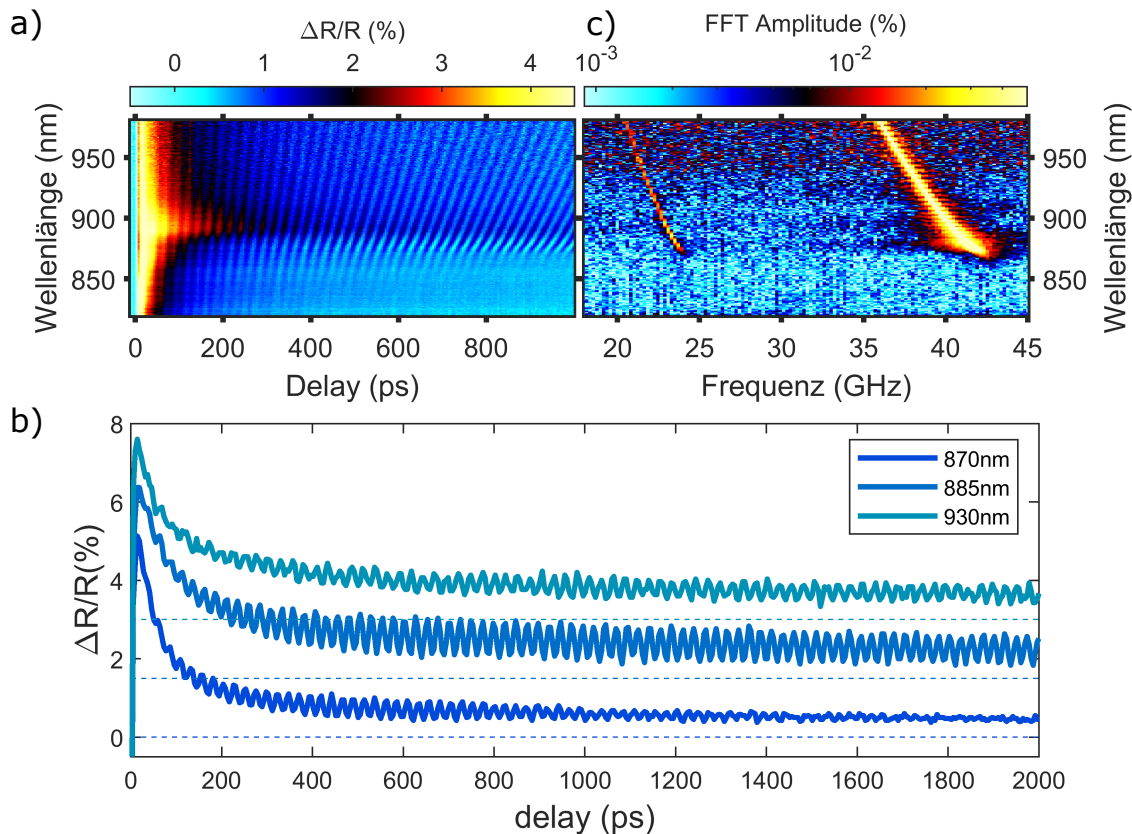


Abbildung 4.3: Zeitabhängig gemessene relative Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Abfragewellenlänge und das Signal im Fourierraum. a) Gemessen wird die zeitlich aufgelöste relative Reflektivitätsänderung mit einem kontinuierlichen Abfragespektrum zwischen 780 und 980 nm, welche eine langlebige Oszillation zeigt. Die Wellenfronten verkippen mit der Zeit, was an der zunehmenden Phononenfrequenz für kleinere Abfragewellenlängen liegt. b) Die sinusförmigen Oszillationen sind in den exemplarischen Schnitten für bestimmte Wellenlängen zu sehen, allerdings beeinflussen die transversalen Phononen das Messsignal nicht merklich. Zur Anschaulichkeit sind die Plots vertikal zueinander verschoben; die gestrichelten Linien zeigen in der jeweiligen Farbe das zugehörige Nullniveau. c) Die unterschiedlichen Frequenzen und insbesondere die ebenfalls auftretende transversale Mode sind in der FFT der Messdaten direkt zu sehen.

In der gemessenen relativen Reflektivitätsänderung sieht man über die gesamte Breite des Detektionsfensters die charakteristische Signatur einer Oszillation bzw. mehrerer Oszillationen mit unterschiedlichen Frequenzen, wie man an dem sogenannten „Fächer“, wie er in Abbildung 4.3a zu sehen ist, erkennt. Tatsächlich oszilliert die relative Reflektivitätsänderung sinusförmig; erkennbar ist allerdings in den beispielhaften Wellenlängenschnitten der Rohdaten in Abbildung 4.3b nur eine Frequenz. Erst die Fouriertransformation (s. Abbildung 4.3c) beweist, dass es pro Abfragewellenlänge eine weitere Komponente gibt. Gemäß den Erwartungen werden die stark auftretenden

höheren Frequenzen den longitudinalen und die schwachen, niederfrequenten Komponenten den transversalen akustischen Phononen zugeordnet. Letztere sind nur bei einem wirklich guten Signal-zu-Rausch-Verhältnis über das gesamte spektrale Kontinuum zu messen.

Die im Folgenden genauere Betrachtung der Frequenzspektren und ihr Verhalten in Abhängigkeit von der Abfragewellenlänge können die Vermutung, dass die Signaturen auf die akustischen Phononen zurückzuführen sind, bestätigen. Die Dispersionsrelation im longitudinalen als auch transversalen Zweig akustischer Phononen ist in der Nähe des BrillouinzoneNZentrums im Allgemeinen linear und die Steigung der Dispersionsrelation entspricht der Schallgeschwindigkeit in dem Material. Auf diese Weise kann man die zugehörigen Phononen leicht identifizieren.

Man kann bereits in den Rohdaten sehen, dass die Phononen nicht alle mit der gleichen Frequenz oszillieren, sondern, dass diese sich mit abnehmender Abfragewellenlänge zu größeren Frequenzen verschiebt (s. Abbildung 4.3c). Dieses Verhalten schließt optische Phononen, die in GaAs ebenfalls angeregt werden können, aus, da ihre Dispersionsrelation deutlich flacher ist und so innerhalb des Detektionsfensters keine Frequenzänderungen aufweisen sollten.

Wie in Abschnitt 2.3 bereits gezeigt, ist man mit den Photonen des Weißlicht einer Wellenlänge auf je ein Phonon des entsprechenden Wellenvektors sensitiv, wodurch man die Abfragewellenlängen mithilfe der Gleichung (2.11) direkt in die Wellenvektoren der Phononen umformen kann. Der hierzu nötige wellenlängenabhängige Brechungsindex $n(\lambda_{\text{Licht}})$ des GaAs ist in früheren Arbeiten bestimmt worden [29].

Die zugehörigen Phononenfrequenzen werden mithilfe einer Anpassung der einzelnen Wellenlängenschnitte im Fourierraum bestimmt (für Details s. Abschnitt Phonondämpfung S.25). Die Fits enthalten die jeweilige Trägerfrequenz der Oszillationen, sodass man letztlich die beiden Dispersionsrelationen in Abbildung 4.4 erhält.

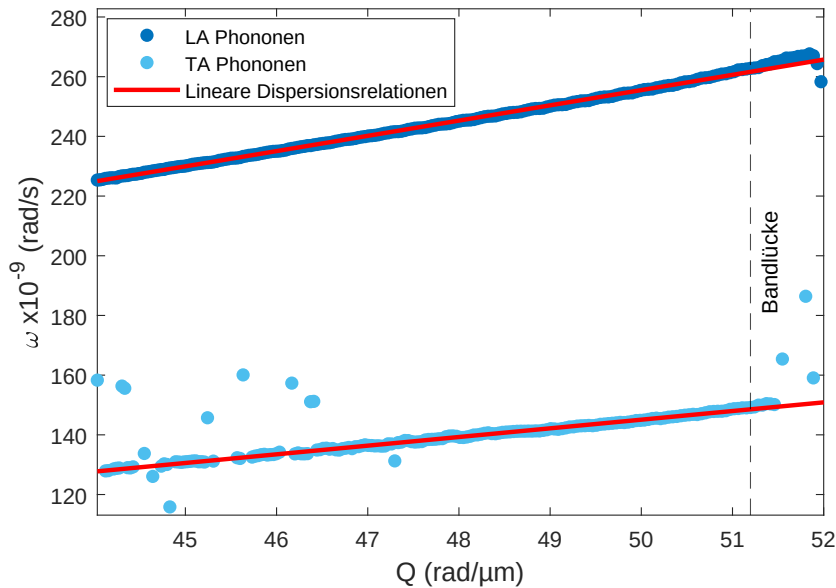


Abbildung 4.4: Dispersionsrelationen der beiden Phononenzweige. In rot ist die jeweilige erwartete lineare Dispersionsrelation mit der aus den Daten berechneten Schallgeschwindigkeit zu sehen. Diese beträgt 5,1 nm/ps für die longitudinalen und 2,9 nm/ps für die transversalen Phononen. Es kommt zu etwas auffälligeren Abweichung für Wellenvektoren, die größer dem der entsprechenden Bandlückenwellenlänge (gestrichelte Linie) sind.

Wie erwartet, steigen beide linear an. Die berechneten Schallgeschwindigkeiten, die 5,1 nm/ps (dunkelblau) und 2,9 nm/ps (hellblau) betragen, bestätigen durch den Vergleich mit zuvor gemachten Experimenten [10, 20], dass die auftretenden Modulationen der Reflektivität durch Reflexion an

den schnelleren longitudinal akustischen (dunkelblau) und den langsameren transversal akustischen Phononen (hellblau) verursacht werden.

Die Steigung der linearen Beziehung (Gleichung (2.6)) zwischen Kreisfrequenz und Wellenvektoren der akustischen Phononen mit der Schallgeschwindigkeit v_{Schall} als Proportionalitätskonstante, die nur in der Nähe des Brillouinzonen-zentrums gilt, ermöglicht es, die Geschwindigkeit der Schallausbreitung zu berechnen. Die zuvor angegebenen Werte stellen arithmetische Mittel über ausgewählte Bereiche der Dispersionsrelationen dar, die die stark abweichenden Werte ausschließen. Die verhältnismäßig kleine Amplitude der transversalen Phononen wird durch das schwache Signal-zu-Rausch-Verhältnis, aufgrund der geringen Intensität des Abfragelichts im Bereich von 900-980 nm, zusätzlich beeinträchtigt. Dies verursacht die verstärkte Streuung der Daten um die erwartete Dispersionsrelation.

Obwohl der Abfragebereich von 780 nm bis 980 nm reicht, endet die Darstellung der Dispersionsrelation schon kurz nach der Bandlücke, die bei 873 nm liegt. Für Abfragewellenlängen allerdings, die kleiner als ungefähr 870 nm sind, weisen die beobachteten Oszillationen eine starke Dämpfung auf, sodass die Fouriertransformation keine vom Hintergrundrauschen zu unterscheidenden Signaturen ergibt (vgl. Abbildung 4.3a,c) und die Dispersion nicht weiter bestimmt werden kann.

Unter genauerer Betrachtung und nach dem Vergleich mit weiteren Messungen weisen die Dispersionsrelationen eine systematische Abweichung von einem linearen Verlauf insbesondere für Wellenvektoren ab $51 \text{ rad}/\mu\text{m}$ auf. Besonders deutlich ist das in der Steigung über den entsprechenden Wellenvektoren zu erkennen. Entgegen der Erwartung einer konstanten Schallgeschwindigkeit, nimmt die Steigung mit zunehmenden Wellenvektoren zunächst leicht ab bis plötzlich im Bereich der Bandlücke ein verhältnismäßig großer Anstieg auftritt. Diese Abweichung ist gleichermaßen in den Dispersionsrelationen der longitudinalen als auch der transversalen Phononen zu beobachten. Setzt man die Gleichung 2.11, die Beziehung zwischen den Wellenvektoren und den Abfragewellenlängen, in die Näherung der linearen Dispersionsrelation ein, sieht man, dass der Brechungsindex der wahrscheinlichste Faktor ist, der diese Abweichung von einer konstanten Schallgeschwindigkeit erklären kann. Die Winkel θ ändert sich nämlich während der Messung nicht und geht somit als systematischer Fehler ein. Zudem wurde das Spektrometer vor der Messung kalibriert, sodass ein Wellenlängenfehler ebenfalls nicht zu erwarten ist. Mit dem Brechungsindex aus der Literatur ist es hier nicht möglich, den Wellenlängen die entsprechenden Wellenvektoren einwandfrei zuzuordnen, um eine lineare Dispersion zu erhalten.

$$\omega = v_{\text{Schall}} \cdot \frac{4\pi}{\lambda_{\text{Licht}}} n(\lambda_{\text{Licht}}) \cos \theta \quad (4.1)$$

Begründen kann man das damit, dass der in der Auswertung verwendete Brechungsindex nach S. Ozaki und S. Adachi [29] für eine nicht angeregte Probe bestimmt wurde. Dadurch ist dieser nur bedingt repräsentativ für den Brechungsindex des GaAs in den Experimenten dieser Arbeit. Die Anregung der Probe verursacht einige Prozesse, die insbesondere lokal starke Unterschiede in den optischen Eigenschaften zwischen einer nichtangeregten und einer angeregten Probe induzieren können. Aufgrund der Propagation des Abfragelichts durch die verschiedenen Bereiche wirken variierende Brechungsindizes auf das Licht.

Setzt man statt dem Brechungsindex die wohlbekannte, konstante Schallgeschwindigkeit (s. Tabelle 3.1 in Kap. 2) in Gleichung (4.1) ein, ist es möglich den effektiven Brechungsindex des GaAs in Abhängigkeit von der Abfragewellenlänge zu berechnen, wie das Licht ihn während der Propagation durch das Medium erfährt. Die erhaltenen Werte sind in Abbildung 4.5a dargestellt. Zusätzlich ist der Brechungsindex aus der Literatur als Referenz in rot abgebildet.

Die Daten der jeweiligen Phononenzweige stimmen sehr gut miteinander überein. Im Vergleich mit dem Brechungsindex aus der Literatur kommt es aber zu stärkeren Abweichungen der gemessenen Daten in Bandlückennähe, was ebenfalls auftritt, wenn man andere Quellen zum Vergleich hinzuzieht [25, 30].

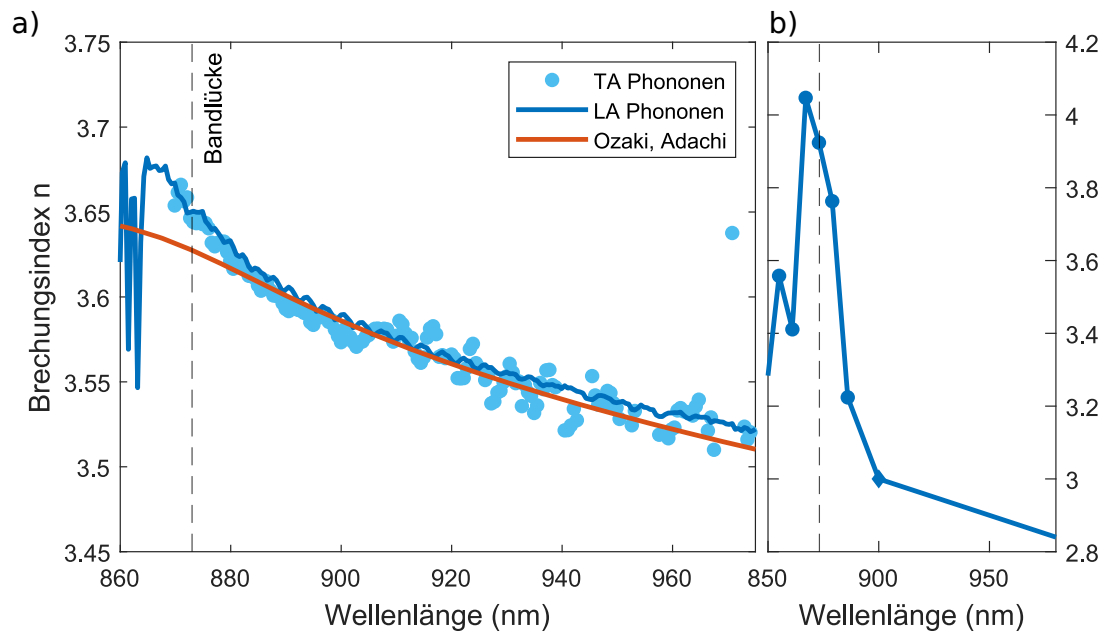


Abbildung 4.5: a) Wellenlängenabhängiger Brechungsindex von GaAs. Der Unterschied zwischen den gemessenen Brechungsindizes (in blau) und denen aus der Literatur (rot)) nimmt mit abnehmender Wellenlänge zu. b) Auch die temperaturabhängige Brechungsindexänderung aus anderen Experimenten ist im Bereich der Bandlücke am stärksten. Hier ist eine Interpolation der Datenpunkte aus der Literatur abgebildet: Kreise [31], Raute [32]

Wie bereits erwähnt, propagiert das Licht durch Regionen mit leicht variierenden Brechungsindizes, die durch die übrigen Dynamiken neben den Schallwellen verursacht werden, da diese die optischen Eigenschaften des GaAs beeinflussen. Einer der Unterschiede zu einer unangeregten Probe ist zum Beispiel die Probentemperatur. Durch die Anregung erhöht sich die Temperatur des GaAs zunächst in den oberen Schichten sehr stark. Im Anschluss wird die Wärme weiter in die Tiefe der Probe transportiert bis der Temperaturgradient innerhalb der Probe verschwunden ist und ein Gleichgewicht besteht.

Bereits vorangegangene Untersuchungen zeigen, dass der Brechungsindex von GaAs von der Temperatur abhängt [31, 32], woraus die ermittelte Änderung pro Kelvin in Abhängigkeit von der Wellenlänge in Abbildung 4.5b dargestellt ist. Wie auch in den Daten zu sehen, ist keine konstante Zunahme zu erwarten; insbesondere um die Bandlücke herum wurden größere Änderungen gemessen.

Um den Effekt dieser Temperaturabhängigkeit zu beurteilen, benötigt man allerdings Informationen über den Temperaturanstieg nach der Laseranregung. Hierzu wird die Temperatur zeit- und ortsabhängig mit der udkm1Dsim toolbox [28] in einem GaAs-Substrat nach einer 400 nm-Anregung simuliert. Die Temperatur wird darin in einem Ein-Temperatur-Modell berechnet. Das heißt, dass unter anderem die mögliche Umverteilung der absorbierten Energie aufgrund der freien Ladungsträger, die nicht auf den angeregten Bereich lokalisiert bleiben, vernachlässigt wird. Hinzu kommt, dass die Wärmekapazität als konstant angenommen wird, obwohl diese Näherung erst bei der Debye-Temperatur von $\theta_D = 344$ K gilt. Die resultierenden Temperaturen werden auf diese Weise etwas überschätzt, auf den betrachteten Zeitskalen sind es dennoch akzeptable Näherungen. Die übrigen in der Simulation verwendeten Parameter sind in der Tabelle 3.1 im Kapitel 3 angegeben.

Man nähere nun die Änderung der errechneten Probentemperatur mit der Differenz der über die wellenlängenabhängige Eindringtiefe des Abfragelichts gemittelten Temperatur und der Raumtemperatur. Somit berücksichtigt man, dass das Abfragelicht unterschiedlich weit und so auch

durch Bereiche unterschiedlicher Temperatur propagiert. Diese Mittelung ergibt allerdings, dass das Licht auf eine Probe trifft, die sich nur um wenige Kelvin erwärmt hat. Berücksichtigt man nun die Größenordnung der Brechungsindexänderung, die 10^{-4} 1/K beträgt, wird offenkundig, dass diese simple Betrachtung den Unterschied in den Brechungsindexdaten nicht erklärt. Insbesondere wenn man bedenkt, dass die simulierten Temperaturen aufgrund der angenommenen konstanten Wärmekapazität überschätzt sind.

Auch die Fluenzserie, die im Rahmen dieser Fragestellung gemacht wurde, stützt die These, dass man mit der Brillouinstreuung in diesem Experiment sensitiv auf den Brechungsindex einer kalten Probe ist und dass kein Zusammenhang zwischen der Abweichung des Brechungsindex und der Proben temperatur besteht.

Ob der ausgeprägtere Unterschied in der Nähe der Bandlücke im Vergleich zu Literaturdaten nun auf die Anregung der Probe zurückzuführen ist oder ob es andere Gründe hierfür gibt, kann im Rahmen dieser Arbeit jedoch nicht beantwortet werden.

4.3 Phononendämpfung

Betrachtet man die zeitliche Entwicklung der Oszillationen genauer, stellt man fest, dass sich die Abklingzeit der Phononen im Bereich der Bandlücke stark zu ändern scheint (s. Abbildung 4.3). Für große Abfragewellenlängen sind die charakteristischen Oszillationen relativ lange zu beobachten, während sie deutlich abklingen, sobald die Probe-Wellenlängen kleiner als 890 nm werden.

Um dieses wellenlängenabhängige Verhalten näher zu untersuchen, kann man die abnehmenden Oszillationen des Messsignals mit folgender Funktion (s. Gleichung 4.2) fitten

$$\frac{\Delta R}{R}(t) = A_0 \cdot e^{-t/\tau_B} + A_1 \cdot \sin(\omega_0 t + \phi) \cdot e^{-t/\tau_{\text{Sign}}}, \quad (4.2)$$

dabei beschreibt der zweite Summand die exponentiell abfallende Schwingung, die mit einer Abklingzeit von τ_{Sign} gedämpft wird. Die übrigen Parameter sind die jeweilige Kreisfrequenz ω_0 , die Amplitude A_1 der ungedämpften Schwingung und ϕ die Anfangsphase.

Der erste Summand berücksichtigt den in dem betrachteten Zeitbereich exponentiell abnehmenden Hintergrund durch die inkohärente Dynamik, der hier aber nicht näher betrachtet wird.

Der Ausdruck beschreibt die Messdaten erst ab einem Zeitversatz zwischen Anregung und Abfrage von etwa 700 ps. Auf diese Weise muss das starke Signal der inkohärenten Dynamik in dem frühen Zeitintervall nicht angepasst werden, was den Fit vereinfacht.

In der folgenden Abbildung 4.6 sind exemplarisch einige der modellierten Oszillationen mit den zugehörigen Messdaten dargestellt. Fits und Daten stimmen weitestgehend sehr gut miteinander überein.

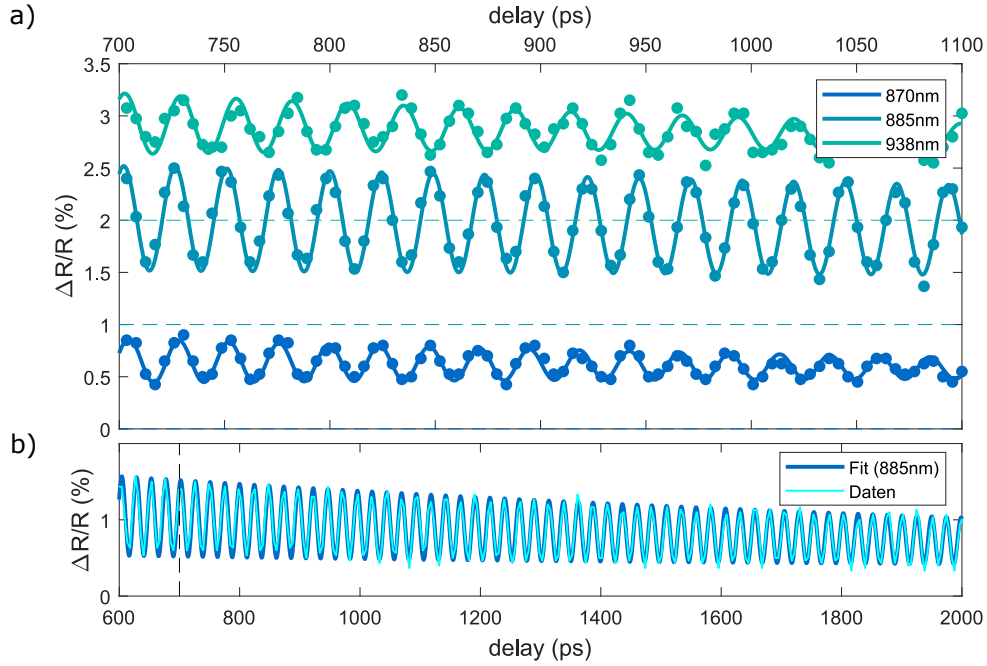


Abbildung 4.6: Bestimmung der Dämpfung anhand Fits der einzelnen Wellenlängenschnitte. a) Innerhalb des zeitlichen Ausschnitts von 400 ps stimmen Daten (Punkte) und Fits (Linien) gut miteinander überein. Die gestrichelten Linien geben die zugehörige Nulllinien an, da die Schnitte in vertikaler Richtung zueinander verschoben sind. b) Die gestrichelte Linie markiert den Zeitpunkt, ab dem die Anpassung gemacht wird. Auch über längere Zeiten gibt es eine gute Übereinstimmung. Die Amplitude nimmt der Messung entsprechend ab.

Die Lebensdauern τ_{Sign} der Oszillationen kann man den Anpassungskurven direkt entnehmen. Der Zusammenhang zwischen der in Abbildung 4.7 ortsbezogenen Dämpfungskonstante der Schallwellen und der Abklingzeit ist der Folgende:

$$\alpha = \frac{1}{v_{\text{Schall}} \cdot \tau_{\text{Sign}}} \quad (4.3)$$

wobei v_{Schall} die Schallgeschwindigkeit der longitudinalen Phononen in [311]-Richtung ist.

Obwohl die Änderung der Reflektivität sowohl durch die longitudinalen als auch die transversalen Phononen verursacht wird, werden an dieser Stelle vereinfachend nur die longitudinalen Phononen berücksichtigt, da die Amplitude der transversalen um mehr als eine Größenordnung kleiner ist und ihr Einfluss für die detektierte Reflektivitätsänderung kaum eine Rolle spielt.

Neben der natürlichen Lebensdauer der Phononen kann es noch weitere, experimentelle Faktoren geben, die zur Dämpfung des Oszillationen beitragen. Unter der Annahme, dass alle Dämpfungskomponenten einem exponentiellen Gesetz folgen, ergibt sich die gemessene Dämpfung aus der Summe der einzelnen Koeffizienten. Um den Verlauf der blauen Datenpunkte in Abbildung 4.7 zu verstehen, muss man den Effekt der einzelnen möglichen Beiträge näher untersuchen.

Die phononische Dämpfung wird im Allgemeinen im Bereich kleiner Frequenzen < 1 GHz durch das Akhiezer Modell und im Bereich hoher Frequenzen durch inelastische Phonon-Phonon-Streuprozesse beschrieben. Das durch die Abfragewellenlängen begrenzte Frequenzintervall liegt im Übergangsbereich zwischen den beiden Modellen, wo die Dämpfung unabhängig von der Phononenfrequenz ist [8]. Sie ist aber temperaturabhängig und beträgt bei 300K etwa $0.038 \mu\text{m}^{-1}$ [33]. Da, wie im vorigen Abschnitt bereits erklärt, sich die Temperatur nur an der Oberfläche stark ändert und in der übrigen Probe nicht ändert, ist es realistisch diesen Wert im Bereich der Schallwellenpropagation anzunehmen.

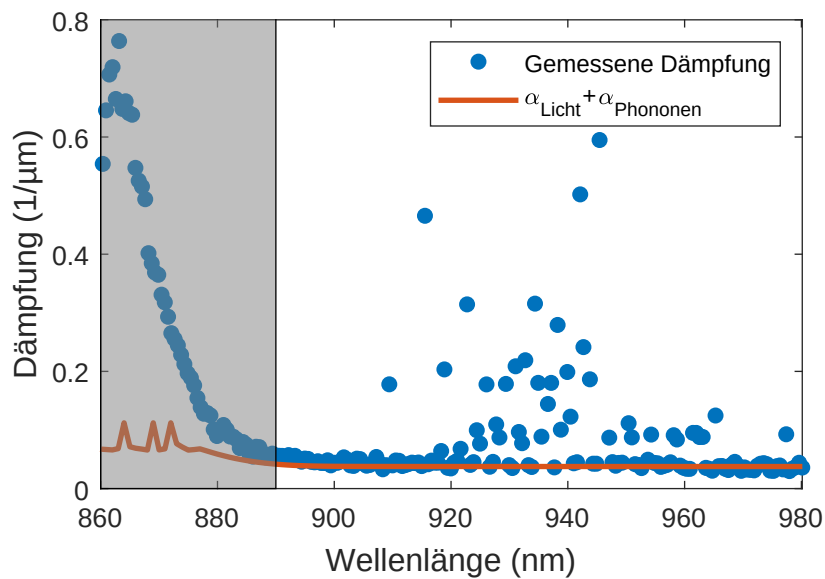


Abbildung 4.7: Abfragewellenabhängige Dämpfungskonstanten der longitudinalen Phononen, deren Dämpfung über ein exponentielles Gesetz beschrieben wird (vgl. Gl. 4.2, 2. Summand). Die gemessene, scheinbare Abnahme ist in blau abgebildet. Die rote Kurve zeigt die theoretische effektive Dämpfung des Messsignals unter Berücksichtigung der konstanten Phononendämpfung und der zunehmenden Absorption des Abfragelichts. Die Diskrepanz zwischen Messung und Theorie in der Nähe der Bandlücke (grauer Bereich) ist auf den unzureichenden Informationsgehalt über die Absorption von GaAs aus der Transmissionsmessung zurückzuführen. Tatsächlich ist die Phononendämpfung im gesamten Abfragebereich frequenzunabhängig.

Entgegen dieser Erwartung ergibt die Messung jedoch unterschiedliche Dämpfungskonstanten mit einer starken Zunahme in der Nähe des Bandübergangs, was bedeutet, dass die Detektion durch andere Faktoren beeinträchtigt werden muss.

Die starke Änderung in der Bandlückenregion ist ein klares Indiz für Absorption des Abfragelichts als Ursache. Da die ellipsometrischen Daten aus der Literatur im Bereich der Bandlücke stark unterschiedliche Absorptionskoeffizienten zeigen, wurde eine Transmissionsmessung an der GaAs-Probe in einem Absorptionsspektrometer gemacht, aus der die wellenlängenabhängigen Absorptionskoeffizienten bestimmt werden. Addiert man die konstante phononische Dämpfung hinzu, erhält man die rote Kurve in Abbildung 4.7.

Allein die Berücksichtigung der endlichen Eindringtiefe neben der Phononendämpfung scheint den Verlauf der Messdaten in Bandkantenähe allerdings nicht zu erklären, da die Messpunkte aus der Brillouinstreuung mit der theoretischen Linie nicht übereinstimmen. Dies ist allerdings in der Bestimmung der Absorptionskoeffizienten des Lichts begründet, die auf der Transmissionsmessung an der 300 μm -dicken Probe beruht. Diese zeigt, dass das GaAs sehr transparent für Wellenlängen über 900 nm ist, was bedeutet, dass das Licht ohne nennenswerte Absorption innerhalb des maximalen Zeitversatzes zwischen der Probenoberfläche und dem Ort der Schallwelle hin und wieder zurück propagieren kann. Hier misst man also die tatsächliche Dämpfung der Phononen, die wie erwartet konstant ist. Kommt man jedoch in die Nähe der Bandlücke, nimmt die Transmission sehr schnell ab und es ist in dem Bereich nicht mehr möglich, die transmittierte Intensität genau genug zu messen. Und spätestens sobald kein Licht mehr die Probe mit einer Dicke von 300 μm durchquert, können die exakten Absorptionskoeffizienten mit dieser Methode nicht mehr berechnet werden. Stattdessen nimmt die Absorption weiter exponentiell zu, die Eindringtiefe des Abfragelichts also ab, und auch die zugehörigen Absorptionskoeffizienten wachsen weiter, was die rote Kurve nicht zeigt. Die bestimmten Dämpfungskonstanten aus dem eigentlichen Experiment weisen diesen

Trend jedoch auf, was trotz allem den Schluss erlaubt, dass die Detektion der Oszillationen bei abnehmender Transparenz durch die Eindringtiefe des Abfragelichts limitiert wird, da eine Änderung der optischen Konstanten aufgrund der Anregung, wie oben gezeigt (Abschnitt 4.2), auch eher auszuschließen ist. Es handelt sich demnach um keine reale Dämpfung der Phononen, stattdessen wird die Amplitude des Lichts immer weiter geschwächt bis das Licht den Phononen nicht tiefer ins Material folgen kann.

An dieser Stelle zeigt sich aber auch einer der in der Einleitung erwähnten Stärken der erzeugten Schallpulse. Die Bestimmung der optischen Absorption eines Materials ist sowohl in Reflektivitäts- als auch in Transmissionsmessungen im Bereich von Absorptionskanten schwierig, was die Ergebnisse recht unzuverlässig macht und zu breiter Streuung führt, was auch der Vergleich verschiedener Quellen für Brechungsindex und Absorptionseffizienten deutlich macht. Die breitbandige zeitaufgelöste Brillouin-Streuung scheint hingegen eine gute Methode zur Bestimmung der Absorption im Grenzbereich zwischen Transmissions- und Reflektionsmessung zu sein. Die Streuung an den erzeugten akustischen Phononen, ermöglicht eine Sensitivität auf verschiedene Tiefen der Probe, wodurch die Änderungen der Lichtintensität genau verfolgt werden kann, wie die Daten in Abbildung 4.7 auch zeigen.

Alternativ zu dem zuvor beschriebenen Verfahren kann man auch die spektralen Signaturen der Oszillationen im Frequenzraum untersuchen, um die Lebensdauern der Phononen zu bestimmen. Die obige Methode erlaubt keine Aussagen zu den transversalen Phononen, da es aufgrund ihrer schwachen Amplitude nicht möglich ist, die ihnen zugehörige Messsignatur separat auszulesen. Im Fourierraum jedoch kann man die beiden Zweige gut unterscheiden und separat analysieren. Da allerdings, wie später näher erläutert wird, für eine aussagekräftige Analyse stark ausgeprägte Signaturen im Fourierraum erforderlich sind, wird ein anderer Datensatz als zuvor in der folgenden Auswertung verwendet. Dieser zeigt zwar vergleichsweise sehr hohe Oszillationsamplituden, beinhaltet jedoch keine Daten für Wellenlängen über 890 nm.

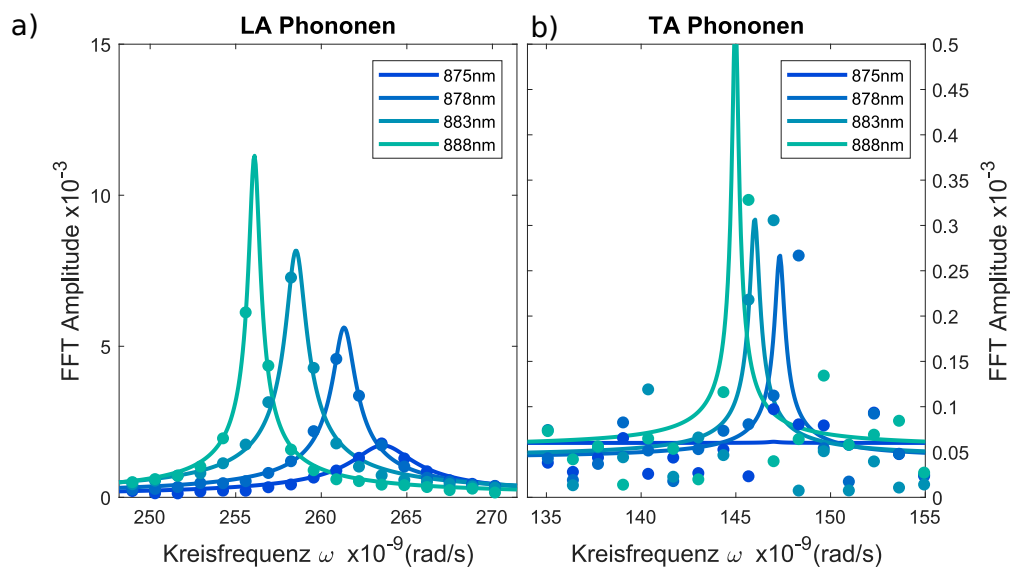


Abbildung 4.8: Die Frequenzspektren einiger Wellenlängenschnitte (Punkte) und die zugehörigen Fits nach Gleichung 4.4 (Linien) sind abgebildet. Die Lebensdauern der transversalen Phononen (b) lassen sich, im Gegensatz zu denen der longitudinalen Phononen (a), unter den gegebenen experimentellen Bedingungen nicht auflösen. Da nur wenige Punkte die Frequenzpeaks bilden, ist kein guter Fit möglich, sodass die nötige Breite nicht genau genug bestimmt werden kann.

Wie in Abbildung 4.8 zu sehen, ist das fouriertransformierte Messsignal ein Peak bei der zugehörigen Trägerfrequenz. Da es sich um gedämpfte Schwingungen handelt, ist die Form der Frequenzpeaks mit einer Lorentzkurve zu beschreiben, die durch die Fouriertransformation des zweiten Summanden der Gleichung 4.2 gegeben ist, der die abnehmenden Schwingungen beschreibt.

$$f(\omega) = \frac{A_1}{\sqrt{(\omega^2 - \omega_0^2)^2 + \gamma^2 \omega^2}} + f_0 \quad (4.4)$$

Hierbei ist ω_0 die entsprechende Trägerfrequenz, also die Position des Maximums*, γ die halbe Halbwertsbreite (HWHM), A_1 erneut die Oszillationsamplitude, und f_0 eine Verschiebung in vertikaler Richtung, die dem breiten Hintergrund Rechnung tragen soll.

Der Zusammenhang zwischen der Peakbreite und der Lebensdauer, die man beide direkt aus den jeweiligen Fits erhält, ist über die folgende Gleichung 4.5 gegeben.

$$\tau_{\text{Sign}} = \frac{2}{\gamma} \quad (4.5)$$

Aus den so ermittelten Lebensdauern werden wieder die entsprechenden Dämpfungskoeffizienten berechnet, welche als rote Punkte in Abbildung 4.9 dargestellt sind. Wie schon zuvor ist die bestimmte Dämpfung nicht konstant, sondern weist eine starke Zunahme im Bereich der Bandlücke auf, deren Ursache zuvor schon diskutiert wurde.

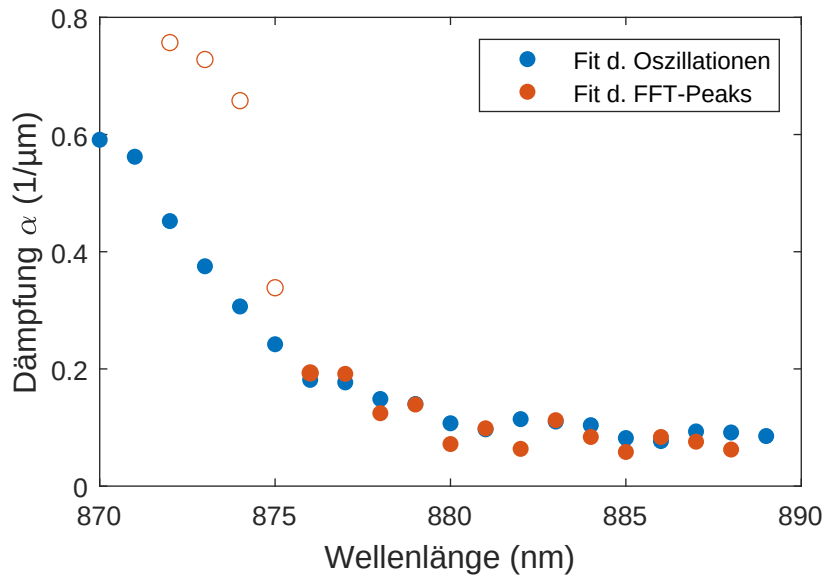


Abbildung 4.9: Es sind die Dämpfungskonstanten, die aus dem direkten Fit der oszillierenden Reflektivitätsänderung (in blau) und der Breite der Frequenzpeaks (in rot) bestimmt wurden, dargestellt. Auch die zweite Methode eignet sich zur Bestimmung der Lebensdauern. Es sind jedoch ausreichend große Oszillationsamplituden nötig, da der Fit durch das zunehmende Gewicht des Hintergrunds zu breit wird, wodurch die Dämpfung überschätzt wird (rote Kreise).

Die obige Abbildung 4.9 zeigt also die mit beiden Methoden bestimmten Dämpfungskonstanten α für die longitudinal akustischen Schallwellen. Im Bereich der dominierenden Phononendämpfung stimmen die Daten recht gut miteinander überein. Allerdings kommt es für Abfragewellenlängen, wo die Dämpfung durch die begrenzte Eindringtiefe des Lichts eine Rolle spielt, zu größeren Abweichungen zwischen den unterschiedlich berechneten Werten. Die Ergebnisse aus den Peakbreiten

*Eigentlich sind die Frequenz am Maximum und die Eigenfrequenz bei gedämpften Schwingungen nicht identisch. Aber bei dem sehr hohen Gütefaktor (Q factor) der Oszillationen ist die Abweichung sehr marginal.

zeigen eine deutlich stärkere Dämpfung.

Die Bestimmung der Lebensdauern bzw. Dämpfung über die Breite der Peaks im Fourierraum erfordert eine gute Auflösung und ein entsprechend starkes Signal. Das bedeutet, die Oszillationen im Realraum müssen neben einer ausreichend hohen Amplitude bzw. einem guten Signal-zu-Rausch-Verhältnis über einen ausreichend großen Zeitversatz gemessen werden können. In diesem Experiment treten zwei limitierende Faktoren auf: die endliche Eindringtiefe des Abfragelichts und der maximale zeitliche Versatz zwischen Anregung und Abfrage. Bereits bei der Modellierung der abnehmenden Oszillationen im Realraum nahm die Eindringtiefe des Lichts ab einer gewissen Wellenlänge starken Einfluss auf die Qualität des Ergebnisses, sodass nur Zeitkonstanten für Wellenlängen ab etwa 860 nm bestimmt werden konnten. In der zweiten Methode ist dieser Effekt noch verstärkt. Die Oszillationen werden für bandlückennahe Abfragewellenlängen sehr stark gedämpft, weswegen das fouriertransformierte Signal sehr schwach ist. Der Hintergrund, der kaum kleiner ist als der Peak selbst, dominiert den Fit, sodass dieser sehr breit wird, was also in einer berechneten starken Dämpfung resultiert. Es wird jedoch nicht das tatsächliche Verhalten durch die Anpassung widergegeben; erst ab Wellenlängen, die größer als 875 nm sind, passen Fits und Daten gut zueinander.

Den Einfluss der Länge des zeitlichen Messfensters erfährt man allerdings auch. Transversale Phononen erwartet man als noch langlebiger als die longitudinalen Phononen [34], was noch schmalere Peaks im Frequenzraum bedeutet. Tatsächlich ist es mit der maximalen Auflösung im Frequenzraum, die der Versuchsaufbau durch die endliche Verfahrstrecke mit sich bringt, und der schwachen Phonenamplitude unmöglich die genauen Parameter der Peakform der Transversalen zu bestimmen (s. Abbildung 4.8b). Da der entsprechende Frequenzpeak oftmals von nicht mehr als zwei Punkten gebildet wird und die Amplitude verhältnismäßig klein ist, kann man keine Anpassung finden, die eindeutig auf die Datenpunkte passt, wie in Abbildung 4.8b zu sehen ist.

Es bestätigt sich zwar, dass die natürliche Lebensdauer transversaler Phononen größer ist als die der longitudinalen Phononen, jedoch lässt sich unter den gegebenen experimentellen Bedingungen keine quantitative Aussage treffen.

Im zweiten Teil dieses Abschnitts wurden also zwei Methoden gezeigt, mit denen man die Lebensdauern der erzeugten Phononen bestimmen kann. Die erste besteht darin, dass man die gemessene, relative Reflektivitätsänderung mithilfe einer Fitfunktion in der Zeitdomäne anpasst. Die in der Abbildung 4.6 dargestellten Beispiele stimmen sehr gut mit den Messdaten überein, woraus man schließen kann, dass auch die so bestimmten Lebensdauern wahrheitsgetreu sind.

Als zweites wurden die Lebensdauern aus dem fouriertransformierten Messsignal bestimmt. Die Abbildungen 4.8 und 4.9 zeigen, dass auch diese Methode geeignet ist, um die Dämpfung der longitudinalen Phononen zu bestimmen. Dies gilt allerdings nur, solange die Oszillationsamplitude groß genug ist. Die Änderungen in der Reflektivität sind in dem für diese Auswertung betrachteten Datensatz besonders groß, ließen sich jedoch kein weiteres Mal in ähnlicher Weise reproduzieren. Die langlebigen Phononen haben sehr schmale Peaks im Fourierraum, sodass diese oft nur durch wenige Datenpunkte beschrieben werden, besonders wenn die Amplitude deutlich kleiner ist. Aus diesem Grund ist es hier viel schwieriger eine gute Anpassung zu finden, wie man sehr gut an den transversalen Phononen sieht (s. Abbildung 4.8b).

Für ein verbessertes Ergebnis ist eine bessere Frequenzauflösung erforderlich, welche man durch eine längere Verfahrstrecke erreichen könnte. Der auf diese Weise vergrößerte Zeitversatz zwischen Anregung und Abfrage würde im reziproken Raum zu einer feiner aufgeteilten Frequenzachse führen.

4.4 Zunahme der Oszillationen

Sieht man sich die ersten paar 100 ps der wellenlängenabhängigen Reflektivitätstransienten genauer an, ist in den Messungen vor der Abnahme der Oszillationsamplitude zunächst eine Zunahme wie in Abbildung 4.10a zu beobachten. Die relative Reflektivitätsänderung ist hier ohne den Hintergrund durch die inkohärente Dynamik dargestellt, indem die niedrigen Frequenzen bis 10 GHz bei der Rücktransformation der zuvor fouriertransformierten Daten unterdrückt wurden.

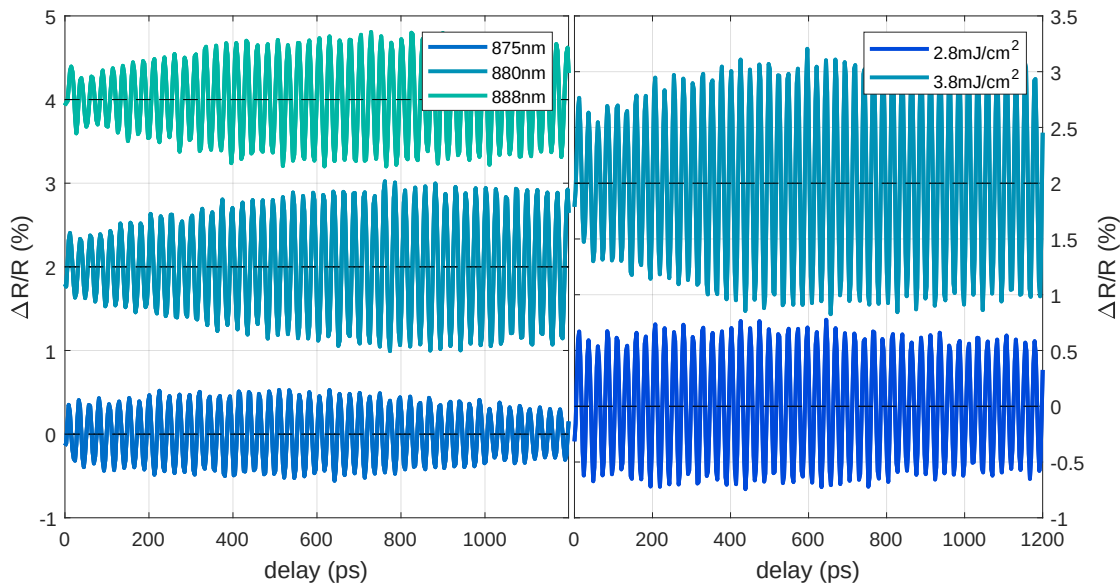


Abbildung 4.10: In den ersten paar 100ps ist eine Zunahme der Oszillationen zu beobachten. a) Die Oszillationen ohne den Hintergrund weisen unterschiedliche Zunahmen in der Amplitude für verschiedene Wellenlängen auf. In der Nähe der Bandlücke wirkt dem Anstieg der Oszillationsamplitude die starke Intensitätsabnahme des Abfragelichts entgegen. Die gestrichelten Linien zeigen erneut die vertikal verschobenen Nulllinien. b) Auch eine Fluenzabhängigkeit ist erkennbar. Die dargestellten Oszillationen gehören beide zu einer Abfragewellenlänge von 883 nm.

Diese Zunahme tritt auf Zeitskalen von einigen 100 ps auf und zeigt ein fluenzabhängiges Verhalten (s. Abbildung 4.10b). Mit zunehmender Fluenz erhöht sich die Amplitude und die Dauer der Zunahme merklich. Zudem scheint dieser Effekt verstärkt in der Nähe der Bandlücke aufzutreten. Allerdings wirkt in dieser Region die stark abnehmende Intensität des Abfragelichts durch die kurze Eindringtiefe dem Anstieg entgegen, sodass die Zeitintervalle der Zunahme und die maximale Oszillationsamplitude kleiner zu werden scheinen.

Die Frage ist nun, ob diese Erscheinung eine tatsächliche Zunahme der Phononen ist oder ein Effekt, der durch die Detektion hervorgerufen wird. Im ersten Fall könnte ein nichtlinearer Prozess während der Propagation des Schallpulses eine Änderung des Phononenspektrums bewirken [12]. Aufgrund der beobachteten Abhängigkeiten jedoch, insbesondere dem wellenlängenabhängigen Wachstum der Phononenamplitude, ist eine tatsächliche Zunahme der Phononen eher auszuschließen. Stattdessen muss die Messmethodik dieses Verhalten verursachen.

Im Abschnitt 2.3 zur Brillouin-Streuung wird die Ursache des Messsignals sehr vereinfacht dargestellt. Die gemessene Reflektion besteht aus der Interferenz der reflektierten Intensität an der Probenoberfläche und der an der Brechungsindexänderung aufgrund der Schallwelle. Tatsächlich aber kommt es zu geradezu kontinuierlichen Brechungsindexänderungen insbesondere unterhalb der Oberfläche, die zeitlich abhängig sind und an denen weitere Reflexionen auftreten.

Im Abschnitt zur Dispersionsrelation ist bereits präsentiert worden, dass sich der Brechungsindex mit der Temperatur ändert. Die zu Anfang deponierte Wärme verbleibt nicht an der Probenoberfläche, sondern wird weiter in die Tiefe der Probe transportiert. Dies führt zu einer immensen Änderung der Probentemperatur an der Oberfläche, aber auch zu Änderungen innerhalb der Probe, auf die der Brechungsindex reagiert. Mit der sich zeitlich ändernden Brechzahl variiert auch die Reflektivität, was ausschlaggebend für die Amplitude des Messsignals ist.

Um die Auswirkung dieser Dynamik zu untersuchen, wird die relative Reflektivitätsänderung zeitabhängig in einem einfachen Modell simuliert. Dieses Modell beruht auf folgenden Annahmen: Zunächst wird eine Schicht der Dicke d , mit der erhöhten Temperatur T und dem Brechungsindex N eingeführt. Der Brechungsindex N dieser Schicht ist temperaturabhängig:

$$N(t) = n_0 + dn/dT \cdot \Delta T(t) \quad (4.6)$$

mit $\Delta T = T - T_0$ und dem wellenlängenabhängigen Temperaturkoeffizienten des Brechungsindex dn/dT , welcher der Literatur entnommen wird [31, 32].

Die Temperatur T in der Schicht nimmt mit der Zeit ab, da die an der Oberfläche deponierte Wärme tiefer in die Probe transportiert wird. Die restliche Probe wird als kalte Probe angesehen mit dem entsprechenden Brechungsindex n_0 bei Raumtemperatur $T_0 = 300$ K.

Nun besteht die gemessene Reflexion aus drei interferierenden Komponenten: der Reflexion an der Oberfläche, der an der Grenzfläche zwischen warmen und kalten GaAs und der an der Schallwelle. In Abbildung 4.11a ist dies nochmal veranschaulicht.

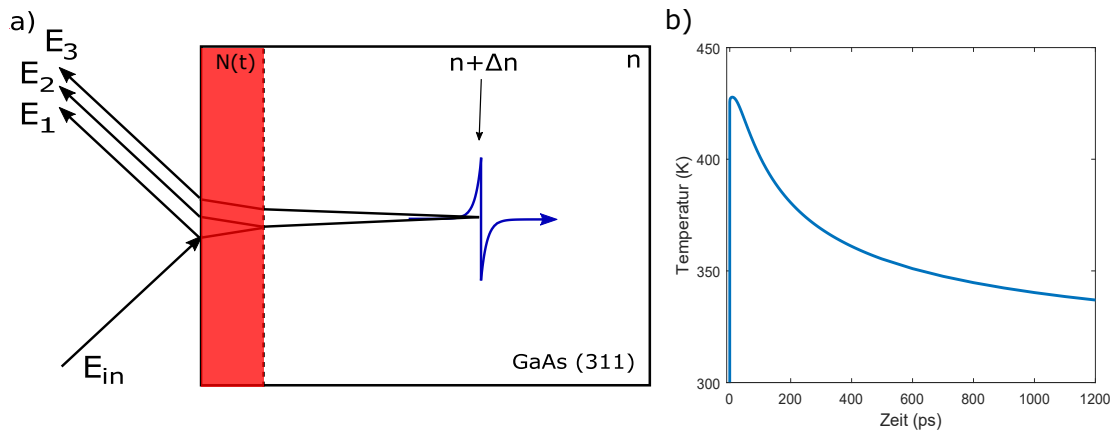


Abbildung 4.11: Simulation des Anrege-Abfragesignals. a) Die Probe wird in einen heißen und einen kalten Bereich unterteilt, wodurch ein weiterer Reflex hinzukommt. b) Zudem ändert sich die Temperatur innerhalb der Schicht zeitabhängig. Das gezeigte Profil der errechneten Probentemperatur ist die über 100nm gemittelte Temperatur, welche für eine 400nm-Anregung bei einer absorbierten Fluenz von $2,25 \text{ mJ/cm}^2$ simuliert ist.

Die elektrischen Felder dieser drei Reflexionen werden durch die Gleichungen (4.7, 4.8, 4.9) beschrieben. Über die Fresnelschen Formeln wird die Reflektivität und die Transmission an jeder Grenzfläche zeitabhängig berechnet, mithilfe derer die Amplituden e_1, e_2, e_3 der einzelnen Reflexe skaliert werden. Zusätzlich erhalten die Reflexionen innerhalb der Probe entsprechende Phasen, die den Wegunterschieden bezüglich dem Weg der direkt reflektierten Welle entsprechen.

$$E_1 = e_1 \cdot e^{i\omega t} \quad (4.7)$$

$$E_2 = e_2 \cdot e^{i\omega(t-2d/c_m)} \quad (4.8)$$

$$E_3 = e_3 \cdot e^{i\omega(t-2v_{\text{Schall}}t/c_m)} \quad (4.9)$$

Die übrigen Parameter sind die Kreisfrequenz ω des Lichts im Medium, die Schichtdicke, die zweimal durchquert wird, die Schallgeschwindigkeit v_{Schall} und die Lichtgeschwindigkeit c_m im

Medium.

Für die Abschätzung der zeitabhängigen Temperatur wird erneut die Temperatur-Simulation mit der udkm1Dsim Toolbox hinzugezogen, welche die Entwicklung des ortsabhängigen Temperaturprofils mit der Zeit liefert. In Abbildung 4.11b ist das genäherte Resultat, das für die weiteren Simulationen des Messsignals verwendet wird. Es stellt die errechnete Temperatur der heißen Schicht nach einer 400 nm-Anregung mit einer absorbierten Fluenz von $2,25 \text{ mJ/cm}^2$ dar, wofür die Temperatur aus der Toolbox-Simulation für jeden Zeitschritt über eine Tiefe von 100 nm gemittelt ist.

Die Brechungsindexänderung durch die Schallwelle wird auf etwa einen Prozent gesetzt, was grob mithilfe des druckabhängigen Koeffizienten dn/dP [35] abgeschätzt wurde.

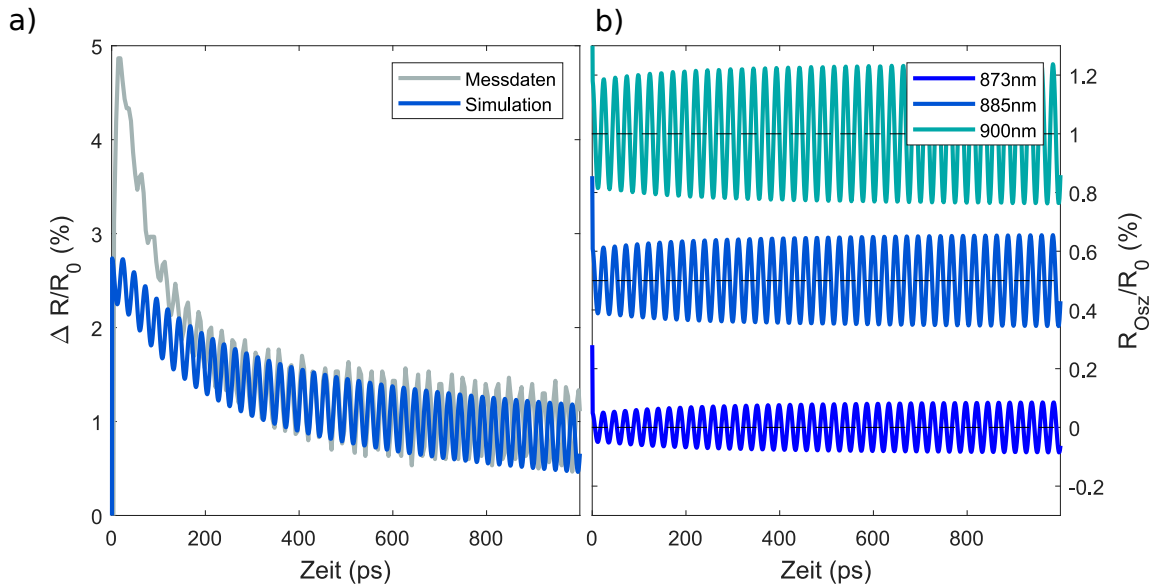


Abbildung 4.12: a) Die simulierte relative Reflektivitätsänderung über dem tatsächlichen Wellenlängenschnitt von 885nm zeigt eine im Ansatz eine qualitative Übereinstimmung. Eine realistischeres Temperaturmodell und die Berücksichtigung der Ladungsträgerdynamik in der Simulation würde den Gesamtverlauf besser annähern. b) Der oszillierende Term der Simulation zeigt deutlich das wellenlängenabhängige Anwachsen der Amplitude mit der Zeit. Dies sind klare Indizien, dass die Zunahme tatsächlich aufgrund der zeitabhängigen Reflektivität an der Oberfläche auftritt.

Die Abbildung 4.12 zeigt nun die unter diesen Vereinfachungen erzielten Ergebnisse. Links ist die relative Reflektivitätsänderung $\Delta R/R_0 = (R(t) - R_0)/R_0$ für eine Abfragewellenlänge von 885 nm über dem tatsächlichen Messsignal dargestellt. R_0 ist hier die Reflektivität einer unangeregten Probe, die ebenfalls mithilfe der Fresnelformeln berechnet wurde und $R(t)$ ist die zeitabhängige reflektierte Intensität der angeregten Probe.

$$R(t) = |E_1 + E_2 + E_3|^2 = C(t) + 2e_1 e_3 \cdot \cos\left(\omega \cdot \frac{2v_{\text{Schall}} \cdot t}{c_m}\right) \quad (4.10)$$

In dem zweiten Summanden steckt die gesamte Entwicklung der Oszillationen, welche auch in Abbildung 4.12b für verschiedene Abfragewellenlängen gezeigt wird. Der Kosinus-Term erklärt die Oszillationen, die durch die sich zeitlich ändernde Phase entstehen. Mit dem zeitabhängigen Brechungsindex variieren nun aber auch die Amplituden der drei Reflexe. Nimmt die Reflektivität an der Oberfläche mit abnehmender Temperatur ab, so wächst die Amplitude der Reflexion an der Schallwelle. Zudem spielt auch die Transmission des Lichts durch die Grenzfläche zwischen heißer und kalter Probe eine entscheidende Rolle für die Oszillationsamplitude, da hier ebenfalls

eine Teil reflektiert wird, also nicht zur Schallwelle gelangt und außerdem auf dem Rückweg nicht durchlässt. Auch diese Reflexion nimmt mit der Temperatur ab und lässt dafür die Amplitude der dritten Reflexionskomponente E_3 zunehmen.

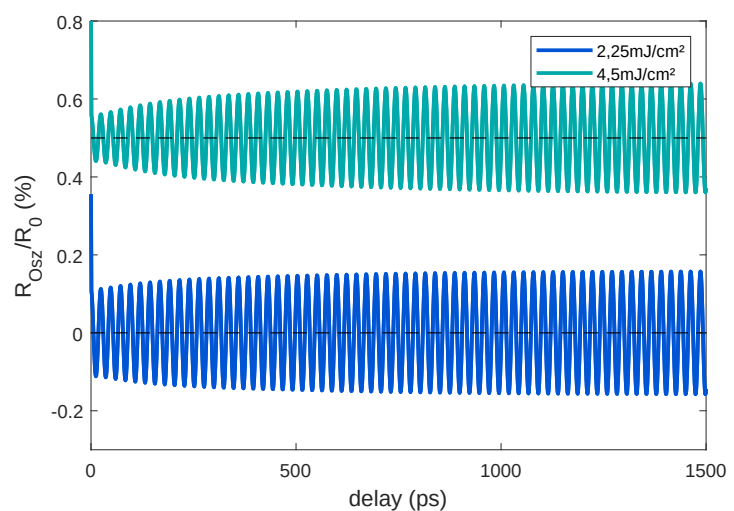
In der in Gleichung (4.10) auftretenden Funktion $C(t)$ sind die übrigen Terme zusammengefasst, die den Hintergrund des Messsignals beschreiben.

Die Modellierungen ergeben ein Bild, dass insgesamt ziemlich gut mit der gemessenen relativen Reflektivität übereinstimmt. Mithilfe dieses relativ einfachen Modells ist es also möglich, den Verlauf der Messdaten und insbesondere den ungewöhnlichen Anstieg der Oszillationen zu erklären. Der zusätzlich hinzukommende Phasenterm der Reflexion an der heißen Schicht spielt keine große Rolle. Aus diesem Grund funktioniert die Näherung einer heißen Schicht mit gleicher Temperatur über die gesamte Breite überhaupt so gut.

Um dem tatsächlichen Zustand in der Probe näher zu kommen, wäre es nötig, die Probe in deutlich mehr Schichten zu unterteilen, denen jeweils eine Temperatur entsprechend dem zeitlichen und örtlichen Temperaturprofil zugeordnet werden kann. Dann würde an jeder der entstehenden Grenzflächen ein Teil der in das Material propagierenden Intensität reflektiert werden. Da der Wegunterschied der interferierenden Komponenten aus dieser Region sehr gering ist, beeinflussen er das Messsignal kaum merklich und die einzelnen Reflexe können in einem Reflex zusammengefasst werden. Der genauere Einbezug des Temperaturprofils würde aber die Hintergrunddynamik sicherlich deutlich besser beschreiben.

Die Beobachtungen, die am Anfang dieses Abschnittes beschrieben sind, können nun alle gut erklärt werden. Die verstärkte Zunahme im Bereich der Bandlücke beispielsweise, hängt mit der höheren Brechungsindexänderung in diesem Wellenlängenbereich zusammen. Dies sieht man besonders, wenn man die Simulation für den 873 nm-Wellenlängenschnitt mit der für 900 nm in Abbildung 4.12b vergleicht.

Abb. 4.13: Simulierte Oszillationen des Messsignals (885 nm) ohne den Hintergrund für zwei verschiedene Fluenzen. Die Amplitude nimmt für die höhere Fluenz stärker zu, auch wenn die Amplitude insgesamt etwas kleiner ist, was daran liegt, dass die Brechungsindexänderung durch die Schallwelle in der Simulation konstant ist.



Die Fluenzabhängigkeit ist ebenfalls eine logische Konsequenz, da eine höhere Energiedichte zu einem größeren Temperaturanstieg, also auch einer größeren Brechungsindexänderung, führt. Dies zeigt auch der Vergleich in Abbildung 4.13, die die simulierten Daten für zwei Fluenzen zeigt. Der einzige Unterschied in den Simulation ist das Temperaturprofil, das für die Messung auf die gleiche Weise bestimmt ist unter Verwendung einer Temperatursimulation nach einer Anregung mit der entsprechenden Fluenz. Da die Brechungsindexänderung aufgrund der Schallwelle nicht auf die höhere Fluenz angepasst wurde, nimmt die Oszillationsamplitude bei späten Zeiten insgesamt nicht zu, was im wahren Experiment jedoch zu erwarten ist.

Ein weiterer Aspekt, den die Untersuchungen an dem theoretischen Messsignal aufgezeigt haben,

ist die hohe Sensitivität der Oszillationsamplitude auf den Einfallswinkel. Die Simulationen zeigen, dass geringfügige Änderungen von 1° zu starken Variationen in der Amplitude führen können. Dies würde die ausgeprägten Unterschiede in den Messungen erklären, da solche Winkeländerung an dem Aufbau leicht auftreten können und die Winkelbestimmung relativ ungenau ist.

Tatsächlich könnte einer genauere Analyse der Abhängigkeit des Messsignals von dem Einfallswinkel an diesem Modell, eine gute Prognose liefern, welche Winkel gut für die Messungen geeignet sind. Dies könnte vor allem einen großen Vorteil in Bezug auf die Detektion der transversalen Schallwelle mit sich bringen.

KAPITEL FÜNF

ZUSAMMENFASSUNG UND AUSBLICK

Diese Arbeit behandelt die Detektion akustischer Phononen und deren Eigenschaften in Galliumarsenid. Dabei war das vorangehende Ziel, neben den longitudinalen Phononen den transversal akustischen Zweig sichtbar zu machen. In einem Anrege-Abfrage-Experiment wurde ein [311]-orientiertes Galliumarsenid-Substrat mithilfe eines ultrakurzen Laserpulses direkt angeregt. Die Detektion der erzeugten Dynamik erfolgte mittels der Messung der relativen Reflektivitätsänderung über ein breitbandiges Abfragespektrum für einige Nanosekunden. Bereits vorige Arbeiten konnten zeigen, dass die gewählte Orientierung es ermöglicht, sowohl die quasilongitudinale als auch die gewünschte quasitransversale Mode anzuregen [10, 20].

Im ersten experimentellen Schritt ist untersucht worden, wie sich die Photonenenergie des Anregelichts auf das erzeugte Phononenspektrum auswirkt und wie auch die Detektion von dieser abhängt. Der Vergleich zwischen Simulationen einer 400 nm- und einer 800 nm-Anregungen haben gezeigt, dass im Fall der Brillouin-Streuung mit einem sichtbaren Abfragespektrum das höherenergetische Licht ein besser messbares Phononenspektrum erzeugt. Dies bestätigten auch die Messdaten, in denen man die charakteristischen Oszillationen der relativen Reflektivitätsänderung nur nach der 400 nm-Anregung beobachten konnte.

Nachdem dies festgestellt wurde, sind die nachfolgenden Messungen für die weiteren Analysen nur noch unter einer 400 nm-Anregung durchgeführt worden.

In dem rohen Messsignal ist, wie erwartet, eine Oszillation zu beobachten, welche eine sich entlang des Abfragewellenlängenspektrums ändernde Periodendauer aufweist. Allerdings erst die Fouriertransformation zeigt, dass es zwei oszillierende Komponenten gibt, da ein stark ausgeprägter Peak im Bereich von 40 GHz und ein deutlich schwächerer im Bereich von 20 GHz auftritt.

Indem jeder Abfragewellenlänge ein entsprechender Wellenvektor und die Maximalfrequenzen der zwei auftretenden Frequenzpeaks zugeordnet wurden, konnten zwei Dispersionsrelation bestimmt werden, die beide linear aber unterschiedlich stark zunehmen. Die Bestätigung, dass diese den quasilongitudinalen und -transversalen akustischen Phononen zuzuordnen waren, erhielt man durch die Berechnung der Schallgeschwindigkeiten unter der Annahme einer linearen Dispersionsrelation zu $v_{\text{QLA}} = 5,1 \text{ nm/ps}$ und $v_{\text{QTA}} = 2,9 \text{ nm/ps}$. Dabei propagieren die quasitransversalen Phononen weniger schnell und mit den niedrigeren Frequenzen durch das Galliumarsenid und ihre Amplitude ist deutlich schwächer.

Am Verlauf der beiden Dispersionsrelationen ist aufgefallen, dass sie die gleichen Abweichungen in der Nähe der Bandlücke von einer linearen Dispersion aufweisen. Der Vergleich des wellenlängenabhängigen Brechungsindex aus der Messung, den man unter der Annahme einer konstanten Schallgeschwindigkeit berechnen kann, mit verschiedenen Quellen aus der Literatur zeigt immer eine verstärkte Abweichung in Bandlückenregion. Der Grund dafür konnte jedoch nicht in dieser Arbeit festgestellt werden.

Im letzten Teil wird die zeitliche Entwicklung der Oszillationen untersucht, da ein abfragewellenlängenabhängiges Verhalten auftritt, das, wie im Verlauf der Auswertung klar wurde, hauptsächlich mit der Detektion zusammenhängt. Zunächst wurde die weniger überraschende

zeitabhängige Abnahme der Oszillationsamplitude analysiert, was auf zwei verschiedene Weisen durchgeführt wurde.

Das stark ausgeprägte Signal der quasilongitudinalen akustischen Phononen konnte im Zeitraum gefittet und daraus die Dämpfungskonstante direkt bestimmt werden. Entgegen der Erwartung einer in diesem Intervall frequenzunabhängigen Phononendämpfung, nimmt diese im Bereich der Bandlücke plötzlich sehr stark zu. Der Vergleich mit einer Transmissionsmessung an der Probe erklärt diese scheinbare Zunahme der Dämpfung jedoch, die auf der rapide abnehmenden Eindringtiefe des Abfragelichts beruht. Unter Berücksichtigung dessen wurde die phononische Dämpfung übereinstimmend mit dem zweiten Verfahren zu $\alpha = 0,038\mu\text{m}^{-1}$ bestimmt.

Die zweite Methode beruht auf der Anpassung des Signals im Fourierraum, da die Peakbreite des Spektrums der Oszillationen mit der Lebensdauer verknüpft ist. Dies sollte ermöglichen, auch die Lebensdauer der quasitransversalen Phononen zu bestimmen, die im Frequenzraum eine klar separierte Signatur aufweisen. Die limitierte Auflösung erlaubte dies allerdings nicht. Für einen genauen Vergleich der Lebensdauern der beiden Phononenzweige wären weitere Untersuchungen mit wenigstens einem größeren maximalen Zeitversatz zwischen Anregung und Abfrage nötig, da dies die minimale Frequenzauflösung steigern würde.

Dennoch zeigte sich an dieser Stelle eine nützliche Eigenschaft der erzeugten Schallwelle, da durch die Streuung an ihr die Absorptionskoeffizienten der Probe gut für Licht bestimmt werden können, was beispielsweise mittels Ellipsometrie schwieriger ist.

Zuletzt werden die Oszillationen in Bezug auf ihre überraschende Zunahme der Oszillationsamplitude in den ersten paar 100 ps analysiert. Die Simulationen des Messsignals in einem simplen Modell, das den zeitlich variierenden Brechungsindex aufgrund des sich ebenfalls zeitlich ändernden Temperaturprofils in der Probe berücksichtigt, zeigen, dass insbesondere die stark zunehmende Reflektivität an der Oberfläche direkt nach der Anregung und die anschließende Abnahme die Oszillationsamplitude im Messsignal anwachsen lassen.

Dabei spielt die Reflexion an der Oberfläche eine entscheidende Rolle, aber auch die Reflexion innerhalb der Probe aufgrund der Temperaturänderungen ist erforderlich, um die beobachtete Zeitskala zu erklären.

Fortführende Experimente, die sich auf die starke Abhängigkeit auf den Einfallswinkels des Abfragelichts in der Simulation stützen, könnten aufzeigen, dass andere Geometrien deutlich besser geeignet sind, um die Oszillationen zu detektieren. Dies könnte besonders in Bezug auf die quasitransversalen Phononen erhebliche Vorteile mit sich bringen.

Aufgrund der einsetzenden Absorption des Galliumarsenids war es auch nicht möglich, einen recht großen Teil des Abfragespektrums, das zudem deutlich höhere Intensitäten aufweist, auszunutzen. Die Durchführung des Experiments unter tiefen Temperaturen hätte unter anderem den Vorteil, dass die Bandlücke sich zu größeren Energien, also kleineren Wellenlängen, verschieben würde. Unter solchen experimentellen Bedingungen könnte das verfügbare Spektrum besser ausgenutzt werden. Außerdem würde die transversalen Phononen unter diesen Bedingungen zwar nicht stärker angeregt, ihre Signatur im Messsignal jedoch verbessert werden.

Zudem könnte eine polarisationssensitive Detektion, wie im MOKE-Experiment, helfen, die QTA Phononen besser zu detektieren. Diese bewirken eine Drehung der Polarisation des schräg einfallenden, an ihnen reflektierten Abfragelichts [36], sodass eine Messung, die selektiv auf die Phononenpolarisation ist, möglich wäre.

LITERATURVERZEICHNIS

- [1] C Thomsen, J Strait, Z Vardeny, Humphrey J Maris, J Tauc, and JJ Hauser. Coherent phonon generation and detection by picosecond light pulses. *Physical Review Letters*, 53(10):989, 1984.
- [2] C Thomsen, Holger T Grahn, Humphrey J Maris, and Jan Tauc. Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses. *Physical Review B*, 34(6):4129, 1986.
- [3] H-N Lin, RJ Stoner, HJ Maris, and J Tauc. Phonon attenuation and velocity measurements in transparent materials by picosecond acoustic interferometry. *Journal of applied physics*, 69(7):3816–3822, 1991.
- [4] Ia A Mogunov, F Fernández, S Lysenko, AJ Kent, AV Scherbakov, AM Kalashnikova, and AV Akimov. Ultrafast insulator-metal transition in vo 2 nanostructures assisted by picosecond strain pulses. *Physical Review Applied*, 11(1):014054, 2019.
- [5] AV Scherbakov, AS Salasyuk, AV Akimov, X Liu, M Bombeck, C Brüggemann, DR Yakovlev, VF Sapega, JK Furdyna, and M Bayer. Coherent magnetization precession in ferromagnetic (ga, mn) as induced by picosecond acoustic pulses. *Physical review letters*, 105(11):117204, 2010.
- [6] M Bombeck, JV Jäger, AV Scherbakov, T Linnik, DR Yakovlev, X Liu, JK Furdyna, AV Akimov, and M Bayer. Magnetization precession induced by quasitransverse picosecond strain pulses in (311) ferromagnetic (ga, mn) as. *Physical Review B*, 87(6):060302, 2013.
- [7] ESK Young, AV Akimov, RP Campion, AJ Kent, and V Gusev. Picosecond strain pulses generated by a supersonically expanding electron-hole plasma in gaas. *Physical Review B*, 86(15):155207, 2012.
- [8] AA Maznev, Felix Hofmann, Adam Jandl, Keivan Esfarjani, Mayank T Bulsara, Eugene A Fitzgerald, Gang Chen, and Keith A Nelson. Lifetime of sub-thz coherent acoustic phonons in a gaas-alas superlattice. *Applied Physics Letters*, 102(4):041901, 2013.
- [9] Thomas Pezeril. Laser generation and detection of ultrafast shear acoustic waves in solids and liquids. *Optics & Laser Technology*, 83:177–188, 2016.
- [10] D Srikanthreddy, BA Glavin, Caroline Louise Poyser, M Henini, D Lehmann, Cz Jasiukiewicz, Andrey V Akimov, and AJ Kent. Piezoelectric response to coherent longitudinal and transverse acoustic phonons in a semiconductor schottky diode. *Physical Review Applied*, 7(2):024014, 2017.
- [11] O Matsuda, OB Wright, DH Hurley, VE Gusev, and K Shimizu. Coherent shear phonon generation and detection with ultrashort optical pulses. *Physical review letters*, 93(9):095501, 2004.

- [12] Andre Bojahr, Matthias Gohlke, Wolfram Leitenberger, J Pudell, Matthias Reinhardt, Alexander von Reppert, Matthias Roessle, Mathias Sander, Peter Gaal, and Matias Bargheer. Second harmonic generation of nanoscale phonon wave packets. *Physical review letters*, 115(19):195502, 2015.
- [13] Andre Bojahr, Marc Herzog, Steffen Mitzscherling, Lena Maerten, Daniel Schick, J Goldshteyn, Wolfram Leitenberger, R Shayduk, P Gaal, and Matias Bargheer. Brillouin scattering of visible and hard x-ray photons from optically synthesized phonon wavepackets. *Optics express*, 21(18):21188–21197, 2013.
- [14] WZ Lin, LG Fujimoto, EP Ippen, and RA Logan. Femtosecond carrier dynamics in gaas. *Applied physics letters*, 50(3):124–126, 1987.
- [15] Jelena Sjakste, Nathalie Vast, and Valeriy Tyuterev. Ab initio method for calculating electron-phonon scattering times in semiconductors: Application to gaas and gap. *Physical review letters*, 99(23):236405, 2007.
- [16] Pascal Ruello and Vitalyi E Gusev. Physical mechanisms of coherent acoustic phonons generation by ultrafast laser action. *Ultrasonics*, 56:21–35, 2015.
- [17] Rudolf Gross and Achim Marx. *Festkörperphysik*. Walter de Gruyter GmbH & Co KG, 2018.
- [18] MB Panish and HC Casey Jr. Temperature dependence of the energy gap in gaas and gap. *Journal of Applied Physics*, 40(1):163–167, 1969.
- [19] Daniel Royer and Eugene Dieulesaint. *Elastic waves in solids I: Free and guided propagation*. Springer Science & Business Media, 1999.
- [20] Jasmin Viktoria Jäger. *Picosecond acoustics in giant magnetostrictive Galfenol*. PhD thesis, Technische Universität Dortmund, 2015. Kapitel 5.
- [21] JS Blakemore. Characteristics of gaas. *J. Appl. Phys*, 53(10), 1982.
- [22] William M Haynes. *CRC handbook of chemistry and physics*. CRC press, 2014.
- [23] RO Carlson, GA Slack, and SJ Silverman. Thermal conductivity of gaas and gaas_{1-x}p_x laser semiconductors. *Journal of Applied Physics*, 36(2):505–507, 1965.
- [24] EF Steigmeier. The debye temperatures of iii-v compounds. *Applied Physics Letters*, 3(1):6–8, 1963.
- [25] Sadao Adachi. Optical dispersion relations for gap, gaas, gasb, inp, inas, insb, al_xga_{1-x}as, and in_{1-x}ga_xas y p_{1-y}. *Journal of Applied Physics*, 66(12):6030–6040, 1989.
- [26] Maximilian Bradler, Peter Baum, and Eberhard Riedle. Femtosecond continuum generation in bulk laser host materials with sub-μj pump pulses. *Applied Physics B*, 97(3):561, 2009.
- [27] Prof. Dr. Rudolf Gross. Physik iii optik und quantenphänomene, 2003. Vorlesungsskript WS 2002/2003. Online erhältlich unter <https://www.wmi.badw.de/teaching/LectureNotes/>; abgerufen am 18.10.2020.
- [28] Daniel Schick, Andre Bojahr, Marc Herzog, Roman Shayduk, Clemens von Korff Schmising, and Matias Bargheer. udkm1dsim—a simulation toolkit for 1d ultrafast dynamics in condensed matter. *Computer Physics Communications*, 185(2):651–660, 2014.
- [29] Shunji Ozaki and Sadao Adachi. Spectroscopic ellipsometry and thermorefectance of gaas. *Journal of applied physics*, 78(5):3380–3386, 1995.

- [30] Aleksandar D Rakić and Marian L Majewski. Modeling the optical dielectric function of gaas and alas: extension of adachi's model. *Journal of applied physics*, 80(10):5909–5914, 1996.
- [31] SR Kisting, PW Bohn, E Andideh, I Adesida, BT Cunningham, GE Stillman, and TD Harris. High precision temperature-and energy-dependent refractive index of gaas determined from excitation of optical waveguide eigenmodes. *Applied physics letters*, 57(13):1328–1330, 1990.
- [32] Mario Bertolotti, Victor Bogdanov, Aldo Ferrari, Andrei Jascow, Natalia Nazorova, Alexander Pikhtin, and Luigi Schirone. Temperature dependence of the refractive index in semiconductors. *JOSA B*, 7(6):918–922, 1990.
- [33] Wei Chen, Humphrey J Maris, Zbigniew R Wasilewski, and Shin-Ichiro Tamura. Attenuation and velocity of 56 ghz longitudinal phonons in gallium arsenide from 50 to 300 k. *Philosophical Magazine B*, 70(3):687–698, 1994.
- [34] ED Palik and Ralph Bray. Brillouin-scattering analysis of phonon interactions in acoustoelectric domains in gaas. *Physical Review B*, 3(10):3302, 1971.
- [35] Marc Kastner. Pressure dependence of the refractive index of amorphous lone-pair semiconductors. *Physical Review B*, 6(6):2273, 1972.
- [36] Osamu Matsuda and Oliver B Wright. Theory of detection of shear strain pulses with laser picosecond acoustics. In *Analytical Sciences/Supplements Proceedings of 11th International Conference of Photoacoustic and Photothermal Phenomena*, pages s216–s218. The Japan Society for Analytical Chemistry, 2002.

Danksagung

Zum Schluss ist es mir noch ein Anliegen, den Personen zu danken, die Anteil an der Entstehung dieser Arbeit haben und mir dabei Vorbild und Stütze waren.

Zunächst möchte ich mich bei der gesamten udkm-Gruppe bedanken unter der Leitung von Prof. Dr. Matias Bargheer, der diese Arbeit erst möglich gemacht hat. Es hat mir unheimlich viel Spaß gemacht, zur Uni zu kommen und an dem Projekt zu arbeiten, woran Ihr großen Anteil habt. Ich bin sehr dankbar für die freundliche und offene Aufnahme und für all die Erfahrung, die Ihr mit mir geteilt habt.

Mein ganz besonderer Dank gilt Marc Herzog, der mich über das gesamte Projekt unterstützt und mich beraten hat und auch Alexander von Reppert, der stets offen für meine zahlreichen Fragen war und diese mehr als ausführlich beantwortet hat. Dank Euch habe ich so viel lernen und das alles schaffen können.

Zuletzt möchte ich meiner Familie aus tiefstem Herzen danken: Ihr glaubt an mich und gebt mir das Gefühl, dass ich alles schaffen kann, was ich will.

SELBSTSTÄNDIGKEITSERKLÄRUNG

Hiermit versichere ich, dass die vorliegende Bachelorarbeit selbstständig und ohne Hilfe Dritter verfasst habe. Andere als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel wurden nicht verwendet. Die den benutzten Quellen wörtlich oder inhaltlich entnommenen Abschnitte sind als solche kenntlich gemacht. Diese Bachelorarbeit hat in gleicher oder ähnlicher Form noch keiner Prüfungsbehörde vorgelegen und wurde auch nicht veröffentlicht.

Potsdam, 19.11.2020

(Jasmin Jarecki)