

Gepulste optisch detektierte NMR in GaAs/AlGaAs Quantentöpfen

Dissertation
zur Erlangung des Grades eines Doktors der Naturwissenschaften
des Fachbereichs Physik der Universität Dortmund

vorgelegt von

Marcus Eickhoff

Dortmund, Juli 2003

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	v
Einleitung	1
1 Experimenteller Aufbau	3
1.1 Die Probe	3
1.2 Aufbau zur Photolumineszenz-Messung	4
1.2.1 Laserdioden Systeme	4
1.2.2 Tieftemperatur System	7
1.2.3 Externes Magnetfeld	8
1.2.4 Lumineszenz Detektion	8
1.2.5 Polarisationsdetektion	9
1.3 Spezielle Geräte	10
1.3.1 Licht Modulation	10
1.3.2 RF Anregung	11
1.4 Koordinatensysteme	12
2 Elektron Kern Wechselwirkung	15
2.1 Exzitonen in Quantentöpfen	15
2.2 Der Hanle Effekt	19
2.3 Ladungsträger-Rekombinationszeiten	20
2.4 Der Einfluss von Kernfeldern auf das Hanle Signal	23
2.5 Optisches Pumpen	26
2.5.1 Zeitliches Verhalten während des Pumpens	27
2.5.2 Feldabhängigkeit beim Pumpprozess	32
2.5.3 T1-Relaxation	33
3 Optisch detektierte NMR in schiefen Feldern	35
3.1 Detektion der NMR über die emittierte Lumineszenz	36
3.2 ODNMR bei konstanter RF	37
3.3 ODNMR bei konstantem Magnetfeld	38
3.3.1 Signalform	40
3.3.2 Spektren aller Isotope in GaAs	42

4	Elektrische Feldgradienten	45
4.1	Mechanisch verursachte Quadrupolaufspaltung	46
4.2	Elektrisch verursachte Quadrupolaufspaltung	49
4.3	Einfluss der Kontaktschicht auf die Aufspaltung	51
5	Vollständig optische NMR	55
5.1	Berechnung der RF-Absorptionsraten	58
5.2	Untersuchung der $\Delta m_I = \pm 1$ und $\Delta m_I = \pm 2$ Resonanzen	61
6	Gepulste optisch detektierte NMR	65
6.1	Optische Detektion des zeitlichen Signals	66
6.2	Transformation in den Frequenzraum	68
6.3	Experimenteller Aufbau	71
6.4	Experimentelle Spektren	77
6.4.1	Gepulstes ODNMR Spektrum von Arsen	77
6.4.2	Abhängigkeit von der Größe des Kernfeldes	79
6.4.3	Wellenlängenabhängigkeit der Signale	82
6.4.4	Messung an verschiedenen QW	83
6.4.5	Messungen an verschiedenen Isotopen	84
6.5	Rauschen des Detektionsaufbaus	88
6.6	Pulslängenabhängigkeit	90
6.6.1	Berechnung der Signalamplituden für ein Spin $\frac{3}{2}$ System	91
6.6.2	Messung der Spintemperatur	96
6.7	2D-Spektren	98
6.8	Verspannungsprofil	102
7	Zusammenfassung	105
	Literaturverzeichnis	107
	Danksagung	115

Abbildungsverzeichnis

1.1	Aufbau des Experiments zur PL-Messung	5
1.2	Kühlfinger und Probenhalter	7
1.3	Reflexionskoeffizient des Schwingkreises	12
1.4	Koordinatensystem im Wafer	13
2.1	Leitungsband- und Valenzband-Zustand in einem GaAs QW	17
2.2	Photolumineszenz Spektrum der Probe 1431	18
2.3	Gemessene Hanle-Kurve des 15 nm QW	20
2.4	Abhängigkeit der Ladungsträgerrekombination von der Lichtintensität	22
2.5	Verschobene Hanle-Kurve	26
2.6	Verbreiterung der Hanle-Kurven während des Pump-Prozesses	28
2.7	δ_G der Hanle-Kurven in Abhängigkeit von dem mittleren Kernfeld	29
2.8	Position des mittleren Kernfeldes während des Pump-Prozesses in Abhängigkeit von der Pumpzeit	30
2.9	Linienformen während des Pump-Prozesses	31
2.10	Das mittlere Kernfeld jeweils nach 5000 Sekunden Pumpzeit bei verschiedenen externen Feldern	32
2.11	T1-Relaxation bei 1 T aus der Hanle-Entfaltung	33
2.12	T1-Relaxation bei 1 T aus der Position der Hanle-Kurve	34
3.1	Signalerzeugung der CW-ODNMR bei konstanter RF	38
3.2	CW-ODNMR-Messung bei konstanter RF	39
3.3	Kernfelder während eines adiabatischen Durchfahrens der Resonanz	39
3.4	Kernfelder vor und nach einem nicht-adiabatischen Durchfahrens der Resonanz	40
3.5	Signalerzeugung der CW-ODNMR bei konstantem Magnetfeld	41
3.6	CW-ODNMR Spektrum von ^{75}As	43
3.7	CW-ODNMR Spektrum von ^{69}Ga	44
3.8	CW-ODNMR Spektrum von ^{71}Ga	44
4.1	Linienverschiebung für Spin 3/2 durch die Quadrupolwechselwirkung	45

4.2	Quadrupolaufspaltung von ^{75}As als Funktion des Abstandes zur Oberfläche	52
5.1	Niveau-Schema mit möglichen Übergängen für $\Delta m_I = \pm 1$ und ± 2	55
5.2	CW-ODNMR Übersichtsmessungen mit Intensitäts- und Polarisationsmodulation	56
5.3	Hochauflösende NMR Spektren von verschiedenen Isotopen	57
5.4	Zeitabhängigkeit der PL Polarisation bei der Absorption von RF-Quanten	59
5.5	$\Delta m_I = \pm 1$ RF-Absorption in Abhängigkeit von der Modulationsamplitude	61
5.6	$\Delta m_I = \pm 2$ RF-Absorption in Abhängigkeit von der Modulationsamplitude	62
6.1	Gerechneter zeitlicher Verlauf der PL-Polarisation bei der gepulsten ODNMR eines Spin 1/2	67
6.2	Abgemischtes gerechnetes Zeitsignal für die gepulste ODNMR eines Spin 1/2	68
6.3	Gerechnetes Frequenzspektrum eines Spin 1/2 Systems	69
6.4	Gerechnetes Spektrum eines Spin 3/2 Systems	70
6.5	Gerechnetes Spektrum eines unvollständigen Spin 3/2 Systems	70
6.6	Experimenteller Aufbau für die gepulste ODNMR	72
6.7	Blockschaltbild des Wortgenerator-gesteuerten Modulators	73
6.8	Der Empfänger	74
6.9	Hanle-Messung ohne Monochromator und PEM	76
6.10	Optisch detektiertes Zeitsignal eines einzelnen oFID von quadrupolar aufgespaltenem Arsen	77
6.11	Spektrum des oFID aus Abb. 6.10	78
6.12	Spektrum von ^{75}As nach einer Pumpzeit von 5 s	80
6.13	Amplitude der Zentrallinie aufgetragen gegen die Dauer des optischen Pumpens	81
6.14	Abhängigkeit der Amplitude der ODNMR Signale von der Anregungswellenlänge	82
6.15	Gepulste ODNMR Spektren von fünf verschiedenen QW	83
6.16	Abhängigkeit der Linienbreiten der Resonanzlinien von der Breite der QWs	84
6.17	Gepulste ODNMR von ^{69}Ga in dem 15 nm breiten QW	85
6.18	Gepulste ODNMR von ^{71}Ga in dem 15 nm breiten QW	86
6.19	Rauschspannung in Abhängigkeit von der eingestrahlten Lichtleistung	89
6.20	Konventionell detektiertes ^{75}As Spektrum einer makroskopischen GaAs Probe	91

6.21	Gerechnete Flipwinkelabhängigkeit der Signalamplituden bei einer Spintemperatur von 1 K	95
6.22	Gerechnete Flipwinkelabhängigkeit der Signalamplituden bei einer Spintemperatur von 1 mK	95
6.23	Pulslängenabhängige Messung der Arsen Resonanz	96
6.24	Die Integrale der Signalamplituden der beiden Satellitenlinien in Abhängigkeit von der Pulslänge	97
6.25	Pulslängenabhängige Messung der Arsen Resonanz für Pulsdauern bis 120 μ s	98
6.26	Pulsfolge für ein 2D-Austauschspektrum	99
6.27	2D-Austausch Spektrum von ^{75}As	100
6.28	2D Spektrum von ^{75}As , bei dem die RF nicht resonant mit der zentralen Linie eingestrahlt wurde	101
6.29	Profil der Quadrupolaufspaltung im 15 nm breiten QW in der Ebene des QW	102

Einleitung

Optisch detektierte Kernspinresonanz (ODNMR) wurde in den 70er und 80er Jahren von verschiedenen meist russischen Arbeitsgruppen für Halbleiter Volumenmaterialien theoretisch und experimentell entwickelt[29, 8, 9, 24, 34, 47, 72, 73]. Die optische Detektion hat dabei den Vorteil einer stark erhöhten Empfindlichkeit gegenüber der klassischen Detektion von Kernspinsignalen[1]. Die Anzahl der benötigten Kernspins für ein NMR Signal verringert sich von 10^{18} auf weniger als 10^{11} , da optisches Pumpen die Spintemperatur verringert[59], und die Detektion von Lichtquanten aufgrund deren höherer Energie effizienter ist als die von Radiofrequenz-Quanten. Für niedrig dimensionale Halbleiterheterostrukturen ist es sehr schwer mittels der konventionell detektierten NMR einen gezielten Zugang zu den darin enthaltenen Kernen zu erlangen[6, 5, 50, 67, 66, 21]. Einfachere und eindeutige Messungen an den Kernen in diesen Strukturen konnten mit ODNMR Untersuchungsmethoden durchgeführt werden[35, 36, 48, 54, 55, 56, 81, 82, 12]. Die enorme Effizienz der ODNMR zeigt die Detektion von Signalen aus einzelnen Quantenpunkten[11]. ODNMR Signale wurden im Allgemeinen mit Dauerstrich (CW) Einstrahlung durchgeführt. Dies verursacht meist Artefakte wie zum Beispiel eine Leistungsverbreiterung der Spektren. Von Vorteil ist es, die Kernübergänge gepulst anzuregen, da dann während der Detektion die Kerne in ihrer zeitlichen Entwicklung nicht gestört werden. In der konventionell detektierten NMR wurde deshalb die CW Anregung weitestgehend durch gepulste Techniken ersetzt[30, 31]. Um diese Vorteile auch für die ODNMR zu nutzen wurden bisher Techniken eingesetzt, bei denen das Experiment in Sequenzen von optischem Pumpen, RF-Anregung und optischer Detektion unterteilt wurde[17, 16], oder ein zweiter Kern als Träger benutzt wurde, der so ein Schwebungssignal zwischen diesem Kern und dem Kern von Interesse erzeugt hatte[62, 49]. Die Empfindlichkeit und der Aufwand, der für diese Messungen betrieben werden musste, waren aber nicht zufrieden stellend.

Im Laufe dieser Arbeit wird eine Technik entwickelt, die es ermöglicht, recht einfach gepulste ODNMR Signale zu detektieren, die zudem eine wesentlich größere Empfindlichkeit zeigen und nicht mehr die Faltung mit der Polarisationsabhängigkeit vom Pumplicht aufweisen. Diese Faltung hat in der Vergangenheit die Interpretation von ODNMR-Signalen deutlich erschwert. Diese neue Technik wird in Kapitel 6 präsentiert. Zuvor wird der experimentelle Aufbau in Kapitel 1

erläutert und die physikalischen Grundlagen für die Polarisationsabhängigkeit des emittierten Lichts in Kapitel 2 dargelegt. In Kapitel 3 wird die bisherige Technik der ODNMR in schiefen Feldern präsentiert. Kapitel 4 zeigt dann die Einflüsse von elektrischen Feldgradienten (EFG) auf die beobachteten NMR Spektren auf. In Kapitel 5 werden die Ergebnisse zu der vollständig optischen NMR präsentiert, die im Rahmen dieser Arbeit ebenfalls untersucht wurde.

Kapitel 1

Experimenteller Aufbau

Zur Messung der Photolumineszenz (PL) der Probe und des Polarisationsgrades der PL wird ein grundlegender experimenteller Aufbau benötigt, der hier beschrieben wird. Da sich der Aufbau, der für ein Dauerstrich (CW) ODNMR Experiment benötigt wird, dann nur noch durch die Radiofrequenz-Spulen zur Einstrahlung eines elektromagnetischen Wechselfeldes unterscheidet, wird der Radiofrequenz-Teil hier auch noch behandelt. Der Aufbau für die gepulste ODNMR unterscheidet sich aber deutlich von diesem Aufbau und wird mit all seinen Besonderheiten in Kapitel 6 behandelt, in dem die gepulste ODNMR vorgestellt wird.

1.1 Die Probe

Die Probe, an der alle Messungen dieser Arbeit durchgeführt wurden, ist mittels Molekular Strahl Epitaxie (MBE)[77] in der angewandten Festkörperphysik der Ruhr-Universität Bochum am Lehrstuhl von Prof. Wieck gewachsen worden. Die MBE ermöglicht es, vertikale Strukturen zu erzeugen, deren Auflösung durch die Größe der Einheitszelle bestimmt ist. Eine Schicht, welche die Dicke einer Einheitszelle besitzt, wird auch als Monolage bezeichnet. Mittels der MBE können nun die Mischungsverhältnisse für jede Monolage von dem gewachsenen Material gezielt eingestellt werden. GaAs als Substrat gibt die laterale Größe der Einheitszellen aller auf ihr gewachsenen Verbindungen vor, soweit die Schichtdicke nicht zu groß wird[63]. Die Größe der Basislängen des kubischen GaAs Kristalls beträgt 0,564 nm. Die Symmetriegruppe von GaAs ist T_d ($F4\bar{3}m$ in der internationalen Notation). Aus dieser Symmetriegruppe ergibt sich, wie sich die physikalischen Größen, die an eine Ausrichtung des Kristalls gekoppelt sind, mit einer Verdrehung des Kristalls ändern werden[91].

Das eigentliche Untersuchungsobjekt sind vertikale Strukturen, die aus einer Abfolge von unterschiedlichen Materialzusammensetzungen bestehen. Jedes Halbleitermaterial besitzt eine typische Bandlücke. Eine Abfolge von unterschiedlichen Bandlücken formt Quantentöpfe, in denen die Ladungsträger in Abhängig-

keit von der Breite und Tiefe des Potentialtopfes unterschiedlich stark ihre Energieniveaus verschieben, und eine vorhandene Entartung aufgehoben wird.

Für die hier verwendete Probe wurde eine Abfolge von 13 verschiedenen GaAs-Quantentöpfen auf ein (001) orientiertes und mit Tellur dotiertes Substrat gewachsen. Die Dotierung mit Tellur reduziert den Widerstand der Probe. Dies hat zur Folge, dass das Potenzial, welches an die Rückseite der Probe angelegt wird, sich nicht über dem Substrat verändert. Jede GaAs Lage wird von zwei 30,9 nm dicken AlGaAs Schichten eingefasst, welche die Barrieren des Quantentopfes darstellen. Zwischen dem Substrat und den Quantentöpfen befindet sich ein kurzperiodisches Übergitter (SPS), das Unreinheiten und Kristallfehler aus dem Bereich der Probe mit den Quantentöpfen fernhalten soll. Die Abfolge der Quantentöpfe in der Probe ist 39,3 nm, 19,7 nm, 14,5 nm, 11,7 nm, 10,5 nm, 8,1 nm, 6,8 nm, 5,8 nm, 5,1 nm, 4,3 nm, 3,9 nm, 3,4 nm und 2,8 nm. Als letztes folgt eine Deckschicht aus 13,3 nm GaAs, die das Oxidieren der letzten Barriere verhindert.

Um einen transparenten elektrischen Kontakt zu der Probe herzustellen, wird oftmals eine dünne Schicht Indium Zinn Oxid (ITO) auf die Oberfläche einer Probe aufgebracht. Diese Schicht kann den Bereich der Quantentöpfe mechanisch verspannen oder die elektrischen Potentiale in der Probe verändern. Um diese Einflüsse untersuchen zu können, wurden zwei Stücke eines Wafers (eng.: *Scheibe*), auf den die Quantentöpfe aufgewachsen wurden, untersucht. Das eine Stück Probe wurde, und das andere wurde nicht mit ITO bedampft. Der Einfluss dieser ITO Schicht auf die Probe wird in Kapitel 4 diskutiert.

1.2 Aufbau zur Photolumineszenz-Messung

Der Aufbau zur Messung der PL und deren Polarisationsgrad soll in diesem Abschnitt erläutert werden. Ein Überblick über den Aufbau ist in Abbildung 1.1 dargestellt. Dies ist der grundlegende Aufbau für alle weiteren Messungen. Dazu gehört das Laser System mit Wellenlängenmessung, der optische Kryostat in dem sich die Probe befindet, der Monochromator und der Detektor. Des Weiteren sind noch einige Komponenten in dem Aufbau die zur Manipulation des Lichtes dienen, wie z. B. Linsen, Spiegel, Linearpolarisatoren und Verzögerungsplättchen.

1.2.1 Laserdioden Systeme

Es werden verschiedene Dioden Laser Systeme benutzt, die alle verschiedene Vorteile und Nachteile besitzen und aufgrund der Anforderungen des jeweiligen Experiments eingesetzt wurden.

Das einfachste Dioden Laser System besteht aus einer Laserdiode, dessen emittiertes Licht mit einer Linse kollimiert wird; und einer Temperatur- und Stromregelung, welche die Temperatur und den Strom, der durch die aktive

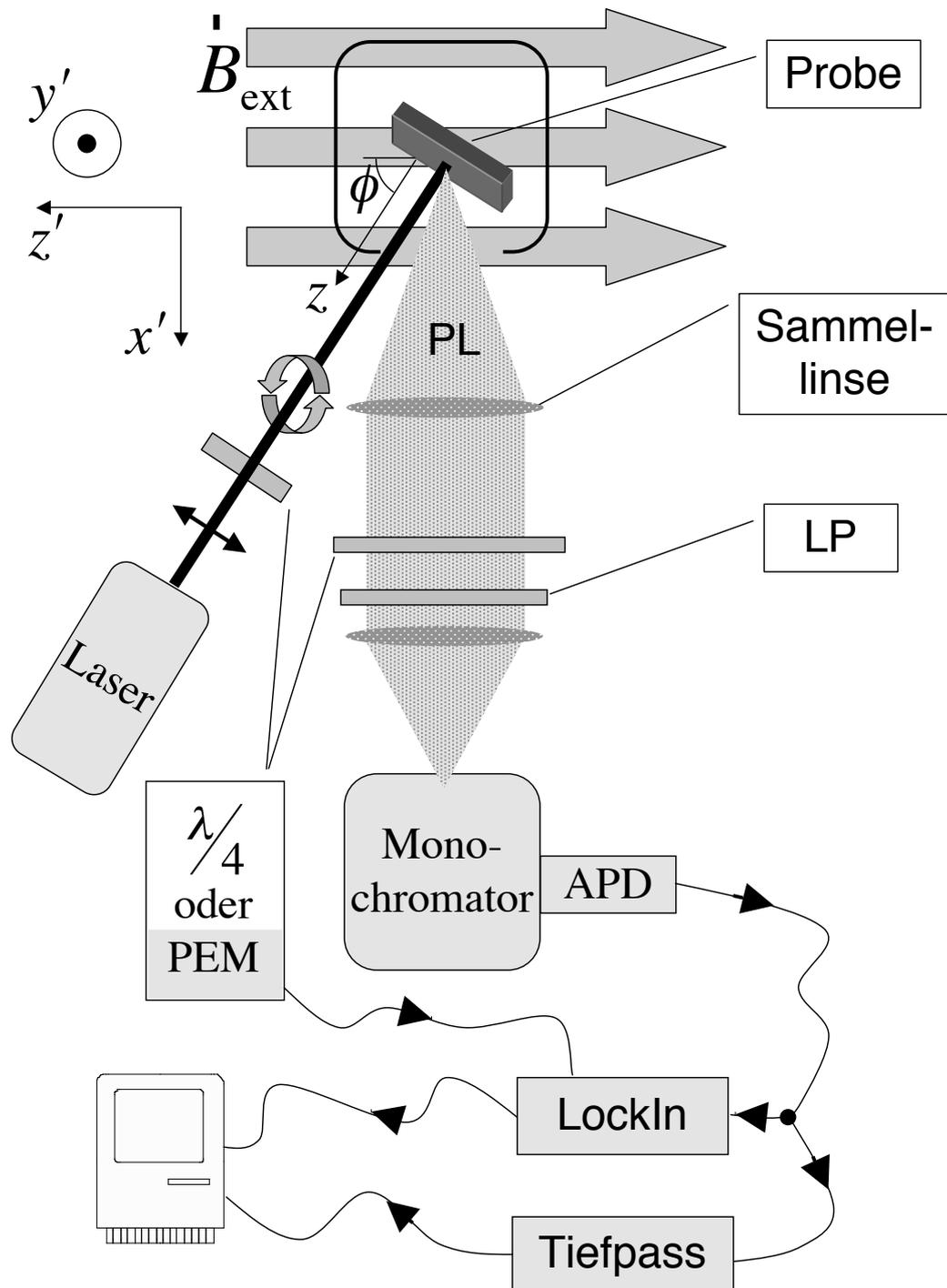


Abbildung 1.1: Experimenteller Aufbau zur Bestimmung des Polarisationsgrades der PL in Abhängigkeit von dem angelegten Magnetfeld. Eine Sättigung der Kernspinübergänge ist mit einer RF-Spule möglich, die hier aus Gründen der Übersichtlichkeit nicht eingezeichnet ist. Die Spule ist entlang y' angebracht und erzeugt ein RF-Feld am Ort der Probe (siehe Abb. 1.2).

Fläche der Diode fließt, konstant hält. Mit den hier zur Verfügung stehenden freilaufenden Laserdioden sind hohe Ausgangsleistungen mit bis zu 100 mW kohärenter Laserstrahlung möglich. Allerdings hängen die Wellenlänge und die Ausgangsleistung stark von der Temperatur und dem Strom in der Photodiode ab. Dies macht es sehr schwer, die gewünschte Wellenlänge in Kombination mit der benötigten Ausgangsleistung einzustellen. Selbst wenn man die Laserdiode in den gewünschten Zustand bekommen hat, kann eine kleine Störung durch Rückstreuung an Oberflächen im Strahl zu einem zufälligen Verstimmen des Lasers führen. Um die freilaufenden Laserdioden vor diesen Rückreflexen zu schützen wird eine optische Diode direkt hinter die Laserdiode gestellt, die das Licht nur in die Vorwärtsrichtung durchlässt und das Licht, das sich in entgegengesetzte Richtung ausbreitet, um 40 dB abschwächt.

Die an diesem Lehrstuhl selbst gebauten, freilaufenden Laserdioden Systeme ermöglichen es, die Temperatur in einem Bereich von -10 bis $+30^\circ\text{C}$ einzustellen. Bei einer typischen Abhängigkeit der Ausgangswellenlänge von der Temperatur von $0,3 \text{ nm}/^\circ\text{C}$ kann somit ein Wellenlängenbereich von bis zu 12 nm abgedeckt werden, sofern die Laserdiode es ermöglicht über einen so weiten Bereich Licht zu emittieren.

Eine wesentlich bessere Methode die emittierte Wellenlänge zu verändern ist die kontrollierte Rückreflexion an einem Gitter. Somit werden Photonen bestimmter Wellenlänge in die aktive Fläche zurückreflektiert, die dort zur stimulierten Emission beitragen. Es standen zwei Systeme zur Verfügung, die zum einen an einem unbeweglich eingebauten Gitter reflektieren und gleichzeitig die erste Beugungsordnung mit einem Retroreflektor wieder auf das Gitter und somit wieder in die Laserdiode zurückschicken (Littman Konfiguration). Die Stellung des Gitters bestimmt hierbei die emittierte Wellenlänge der Laserdiode. Bei dem anderen System wird die erste Beugungsordnung direkt von dem Gitter wieder zurückgeworfen, während über die nullte Ordnung das Licht ausgekoppelt wird (Littrow Konfiguration). Eine Veränderung des Winkels zwischen Gitterachse und k -Vektor des Lichts führt somit zur Änderung der emittierten Wellenlänge der Laserdiode. Allerdings bewegt sich folglich auch der ausgekoppelte Strahl mit dem Gitter und bei einer Wellenlängenänderung muss die Änderung des k -Vektors jedes Mal kompensiert werden. Der Bereich der möglichen Verstimmung beträgt etwa 10 nm für beide Systeme. Der Littrow Resonator ermöglicht aber eine Ausgangsleistung von bis zu 50 mW, im Gegensatz zu dem Littman Resonator mit einer Ausgangsleistung von 15 mW. Deshalb wird der Littrow Resonator in dieser Arbeit bevorzugt verwendet. Zudem zeigt der Littman Resonator sehr viele Modensprünge und Instabilitäten.

Die emittierte Wellenlänge wird von einem Fizeau-Wellenlängen-Messgerät mit einer Genauigkeit von $\pm 0,01 \text{ nm}$ gemessen. Die so ermittelte Wellenlänge des Lichtes kann von dem Messprogramm während der Messung erfasst werden.

Der Pump-Strahl wird mit einer Linse senkrecht auf die Oberfläche der Probe fokussiert, so dass der Rückreflex der Probe nochmals durch die gleiche Linse geht.

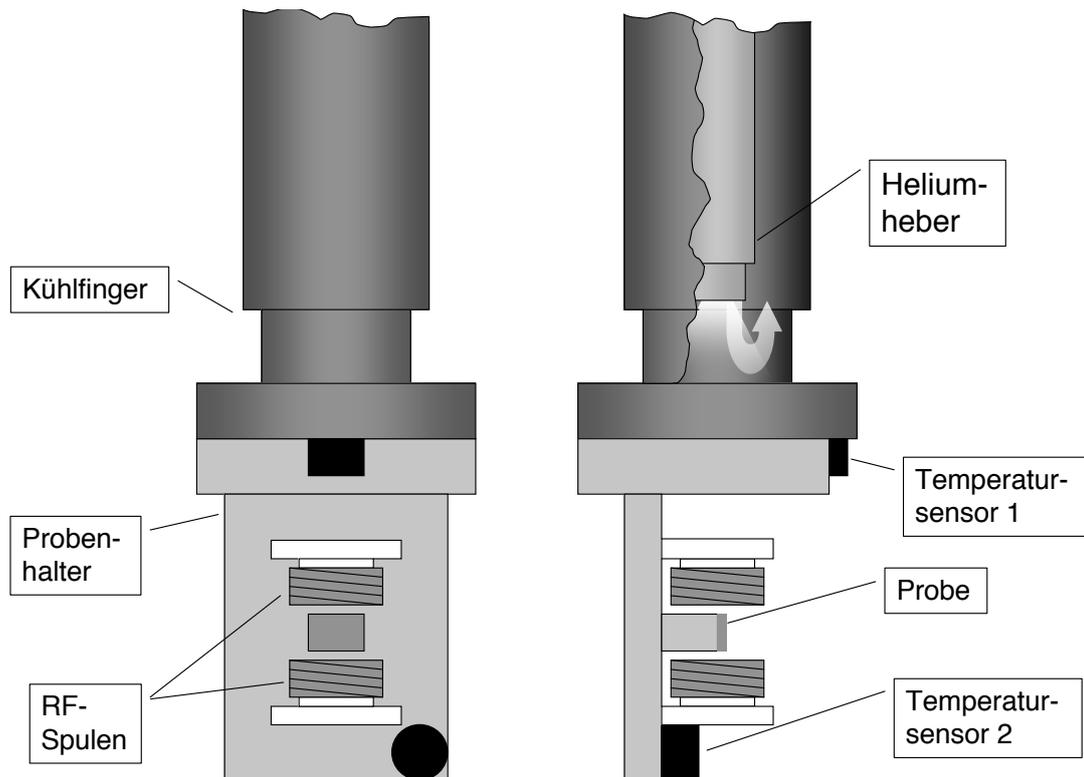


Abbildung 1.2: An dem Kühlfinger, in dem der Heliumheber steckt, ist der Probenhalter aus Kupfer mit Leitsilber angeklebt und angeschraubt. Ebenfalls sitzt dort einer der beiden Temperatursensoren. Auf dem Probenhalter ist die Probe zwischen zwei RF-Spulen, die in Helmholtzkonfiguration angeordnet sind, ebenfalls mit Leitsilber angeklebt. Am unteren Ende des Probenhalters befindet sich der zweite Temperatursensor.

Bringt man vor der Fokussierungslinse und dem $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchen einen polarisierenden Strahlteiler in den parallelen Laserstrahl ein, so kann man den Rückreflex von dem Pumpstrahl trennen. Aus dem Abstand der Probe zu der Linse und dem Abstand des eventuell auftretenden zweiten Fokus im ausgekoppelten Strahl kann man die exakte Brennweite der Linse bestimmen, und somit die Linse richtig positionieren.

1.2.2 Tieftemperatur System

Die Probe wird mittels eines gepumpten Durchfluss-Kryostaten auf Temperaturen im Bereich von flüssigem Helium abgekühlt (siehe Abb. 1.2). Durch das Pumpen wird die Verdampfungstemperatur unter 4 K herabgesetzt. Der Abstand zwischen dem Ende des Helium-Hebers und der Bodenplatte des Kühlfingers wird dabei so eingestellt, dass das Helium gerade an der Bodenplatte verdampft und so

die maximale Kühlwirkung entfaltet. An dem Kühlfinger ist der Probenhalter angeschraubt. Um einen besseren thermischen Kontakt zu gewährleisten, sind die Kontaktflächen von Probenhalter und Kühlfinger mit Leitsilber verklebt. Dieses Leitsilber ist ein Epoxydharz-Kleber der mit Silberpartikeln versetzt ist und so elektrische und thermische Eigenschaften besitzt, ähnlich wie ein Metall. Das Leitsilber wird hier auch benutzt, um die Probe an den Probenhalter anzukleben. Bei Temperaturen des flüssigen Heliums ist die Temperaturdifferenz zwischen Probenhalter und Kühlfinger etwa 1 K, somit liegt es nahe anzunehmen, dass die Temperaturdifferenz zwischen der Probe und dem Probenhalter mindestens auch 1 K beträgt. Die Temperatur wird mit AlGaAs-Temperatursensoren, die unempfindlich gegen magnetische Felder sind, am Boden des Kühlfingers und auf dem Probenhalter gemessen.

1.2.3 Externes Magnetfeld

Das externe magnetische Feld wird mittels eines Bruker Eisenmagneten erzeugt. Dieser Magnet kann Felder bis zu etwa 1,4 T erzeugen. Die parallelen Flächen der Polschuhe des Elektromagneten sind 50 mm voneinander entfernt und haben einen Durchmesser von 180 mm. Die Ansteuerung erfolgt über ein serielles Computer-Interface, das von unserer Werkstatt in die Steuerelektronik des Netzteils eingearbeitet wurde. Um die Restmagnetisierung des Eisens zu überwinden und auch Felder mit umgekehrtem Vorzeichen zu erzeugen, wurden Korrekturspulen an den Polschuhen angebracht. Damit kann ein Gegenfeld von ca. 20 mT erzeugt werden. Das Feld des Magneten wird mit einer Hallsonde gemessen, die etwa 3 cm neben der Probe und außerhalb des Kryostaten angebracht ist. Durch die Hallsonde und einen 10Ω Messwiderstand fließt ein konstanter Strom von 100 mA. Die dabei auftretende Hallspannung wird mit einem digitalen Voltmeter gemessen. Die Auflösung der Hallspannungs-Messung beträgt $1\ \mu\text{V}$, allerdings ist die Genauigkeit der Hallspannung durch die Ungenauigkeit der Stromquelle auf 10^{-4} begrenzt. Um Schwankungen des externen Feldes zu kompensieren, werden permanent die aktuelle Hallspannung und der Strom, der durch die Hallsonde fließt, mit einem digitalen Voltmeter gemessen. Der Rechner liest abwechselnd die Hallspannung und die Spannung aus, die über den 10Ω Widerstand abfällt. Aus dem Strom und der Hallspannung berechnet der Computer im 20 s Takt die Hallspannung, die dem vorgegebenen Feld entspricht. Das Netzteil wird entsprechend nachgeregelt.

1.2.4 Lumineszenz Detektion

Die wichtigsten Elemente der Lumineszenzdetektion sind die Sammellinse, die das Licht der Probe auffängt und in die Richtung der Detektion abbildet, und der Analysator, der aus einem Verzögerungsplättchen und einem Linearpolarisator besteht. Das Verzögerungsplättchen, das typischerweise ein $\lambda/4$ -Plättchen

ist, kann auch durch einen Photoelastischen Modulator (PEM) ersetzt werden. Eine zweite Linse steht dann nach dem Analysator in dem Strahlengang, um das Licht entweder mit einer passenden F-Nummer auf den Eingangsspalt eines Gitter Monochromators (Spex 1704) oder auf die aktive Fläche eines Detektors abbildet. Die F-Nummer Anpassung ist wichtig, damit der Gitter Monochromator bei maximalem Lichtdurchlass das Gitter vollständig ausleuchtet und so die maximale Auflösung erzielen kann. Für eine Wellenlänge von 800 nm beträgt die maximale Auflösung 0,006 nm bei einer minimalen Spaltbreite von 8 μm . Direkt hinter dem Ausgangsspalt des Monochromators wird das Licht dann auf die aktive Fläche des Detektors abgebildet. Es werden zwei verschiedene Arten von Detektoren für diese Arbeit benutzt, zum einen Lawinenphotodioden (eng. Avalanche Photo Diode; APD) und zum anderen ein gekühlter Sekundärelektronenvervielfacher (eng. Photo Multiplier Tube; PMT). Der gekühlte PMT besitzt ein wesentlich geringeres Eigenrauschen als die APD, was ihn deutlich empfindlicher macht. Allerdings liegt auch die Zerstörschwelle deutlich niedriger. So kann man nur Lichtleistungen bis 1 nW mit dem PMT messen. Größere Lichtleistungen würden den PMT beschädigen. Zudem beträgt die Quanteneffizienz „nur“ 20% bei einer Wellenlänge von 800 nm. Dies ist aber schon ungewöhnlich hoch für einen PMT. Die niedrige Quanteneffizienz erhöht allerdings das Rauschen, so dass in der Regel eine APD besser geeignet ist, obwohl der hier benutzte gekühlte PMT ein Dunkelrauschen von nur 4 fW besitzt. Die APDs besitzen ein Dunkelrauschen von 20 bzw. 200 fW/ $\sqrt{\text{Hz}}$. Das geringere Dunkelrauschen besitzt die APD mit einer Bandbreite von 100 kHz, und das höhere Dunkelrauschen besitzt die APD mit einer Bandbreite von 10 MHz. Die APDs verstärken die erzeugten Ladungsträger in der intrinsischen Zone um das 30 fache. Das ist zwar nicht so groß wie beim PMT, der die Elektronenanzahl millionenfach verstärkt, allerdings ist die Zerstörschwelle um einige Größenordnungen größer, so dass mit größeren Lichtleistungen gearbeitet und somit das Schrotrauschen deutlich verringert werden kann.

1.2.5 Polarisationsdetektion

Um den Polarisationsgrad der PL zu bestimmen, wird entweder das emittierte Licht oder das Pumplicht mit einem PEM moduliert. Bei dieser Modulation wechselt der PEM mit einer Frequenz von 50 kHz zwischen positiver und negativer Retardanz, so dass im Pumpstrahl linear polarisiertes Licht entweder zu rechts oder links zirkular polarisiertem Licht wird. Im Detektionszweig wandelt der PEM das zirkular polarisierte Licht abwechselnd in die beiden senkrecht zu einander stehenden Linearpolarisationen um. Die Modulation des Lichtes wird mit einem LockIn detektiert, der den PEM als Referenz benutzt. Zudem wird das Signal noch von einem Tiefpass detektiert. Der Ausgang des LockIns ist proportional zu der Differenz von den Signalanteilen des rechts- und linkszirkular polarisierten Lichts. Der Ausgang des Tiefpasses ist proportional zu der Summe

dieser beiden Anteile.

Die Ausgangssignale werden dann entweder von dem Rechner direkt mittels eines 12 Bit Analog-Digital-Konverters (ADC), oder eines Speicher Oszillographen aufgezeichnet. Alternativ kann das Signal des LockIns auch durch das Signal des Tiefpasses dividiert werden. Dazu besitzt der LockIn einen 14 Bit ADC und die Möglichkeit intern zu dividieren. Die Ausgangssignale des LockIns können zudem auch digital über das GPIB Interface ausgelesen werden. Der vollständige Zeitablauf und die Datennahme wird von einem Apple Macintosh Rechner gesteuert, auf dem zur Datenaufnahme die Software MacExp läuft.

1.3 Spezielle Geräte

Es gibt einige Geräte, die zu Zwecken benutzt werden, die über die reine PL-Detektion hinausgehen. So kann das Anregungslicht in der Phase und Amplitude moduliert, die Probe mit Radiofrequenz (RF) bestrahlt und das Licht von Rechner aus geblockt werden.

1.3.1 Licht Modulation

Für verschiedene Experimente ist eine Lichtmodulation gewünscht. Diese Modulation ist entweder eine Intensitätsmodulation oder eine Polarisationsmodulation. Für eine vollständige Intensitätsmodulation wird ein Strahlblocker benutzt, der mit einem kleinen Elektromagneten in den Strahl gebracht wird. Eine schnelle und einfache Variante ist ein Strahlblocker, der mit der Spule eines Lautsprechers bewegt wird. Dieser kann mit etwa 3 ms Ansprechzeit bewegt werden[83].

Um die Lichtintensität schneller und um beliebige Werte zu ändern, kann man einen Akusto-Optischen Modulator (AOM) benutzen, der mittels eines Piezos eine hochfrequente Schallwelle in einem Kristall erzeugt. Diese Schallwelle erzeugt ein Beugungsgitter in dem Kristall, an dem das Licht reflektiert wird. Die Intensität des reflektierten Strahls hängt dann von der Leistung ab, mit der der Piezo angetrieben wird. Allerdings ändert der Kristall dabei den Polarisationszustand des Lichtes. Diese Effekte können mittels eines Retroreflexionsaufbaus kompensiert werden, so dass bei zweimaligem Durchlaufen des Kristalls die Ausgangspolarisation des Lichtes wieder der Eingangspolarisation entspricht. Mit dem AOM sind Modulationsfrequenzen bis zu 6 MHz möglich und die Effizienz beträgt maximal 70%.

Für noch schnellere Modulationen und die Möglichkeit, das Licht in der Phase zu modulieren, kann man einen Elektro-Optischen Modulator (EOM) verwenden. Bei einem EOM wird mittels eines elektrischen Feldes die Doppelbrechung des Kristalls verändert. Prinzipiell kann man mit solch einem EOM Lichtmodulationen in Intensität oder Polarisation bis zu 100 MHz erzeugen, allerdings nimmt die Verstärkung des hier benutzten Verstärkers so ab, dass er seinen -3dB Punkt

bei 7 MHz hat und nur Modulationen bis zu 14 MHz möglich sind. Die Effizienz ist wesentlich höher als beim AOM und zudem kann der EOM relativ einfach in den Strahl gestellt werden, ohne dass die Strahlparameter deutlich verändert werden.

1.3.2 RF Anregung

Der RF-Kreis besteht aus einer Spule in Helmholtz-Konfiguration mit ca. 40 Windungen und einem Kondensator, der die Resonanzfrequenz dieses Schwingkreises auf eine Frequenz nahe 10 MHz einstellt. Durch Wahl eines Kondensators, dessen Temperaturkoeffizient gerade die temperaturabhängige Änderung der Induktivität der Spule kompensiert, konnte der Schwingkreis bei Raumtemperatur abgestimmt werden und zu 4 K abgekühlt werden, ohne dass sich die Resonanzfrequenz stark verschiebt. Beim ersten Entwurf des Schwingkreises lag die Resonanzfrequenz bei 10,072 MHz, in einer späteren Version lag die Resonanzfrequenz dann bei 9,961 MHz, deshalb können sich die Angaben innerhalb der Arbeit ändern. Angetrieben wird dieser Schwingkreis von einem 100 W Leistungsverstärker. Der Schwingkreis wird hier nur zur Anregung benutzt. Eine saubere Abstimmung des Schwingkreises ist somit nicht unbedingt erforderlich, solange die Reflektionen zurück zu dem Leistungsverstärker nicht zu groß werden. Eine Analyse der Rabi Oszillationen liefert eine Feldstärke des erzeugten RF-Feldes von 6 mT, das von den Kernen gespürt wird. Von dem Schwingkreis werden etwa 35% der Leistung reflektiert (siehe Abb. 1.3) und die Güte des Schwingkreises beträgt 40.

Die RF wird mittels eines Synthesizers generiert, der durch direkte digitale Synthese (DDS) die Signale erzeugt. Dieser DDS Synthesizer basiert auf einer Evaluations-Karte von *Analog Devices* (AD9854-EB), mit der es möglich ist, mit einer Auflösung von 48 Bit beliebige Festfrequenzen bis zu 140 MHz auszugeben. Zudem kann die erzeugte Frequenz in Rampen und Stufen beliebig verändert werden. Die Änderung kann durch einen TTL-Puls ausgelöst werden. Der DDS besitzt zwei Ausgänge, die das gleiche Signal ausgeben. Diese sind allerdings zueinander genau um 90° in der Phase verschoben und deren Ausgangsamplitude kann separat eingestellt werden. Mit Verstärkern wird die Ausgangsleistung beider Kanäle auf +15dBm erhöht. Der Inphase-Ausgang wird des Weiteren mit I bezeichnet und der Quadraturphase-Ausgang mit Q. Sämtliche Betriebszustände des DDS können über ein Interface entweder über den GPIB-Bus vom Rechner aus gesteuert oder über einen Wort-Generator verändert werden. Für einfachere Frequenz-Erzeugungen wurden diverse kommerzielle Funktionsgeneratoren und Synthesizer benutzt.

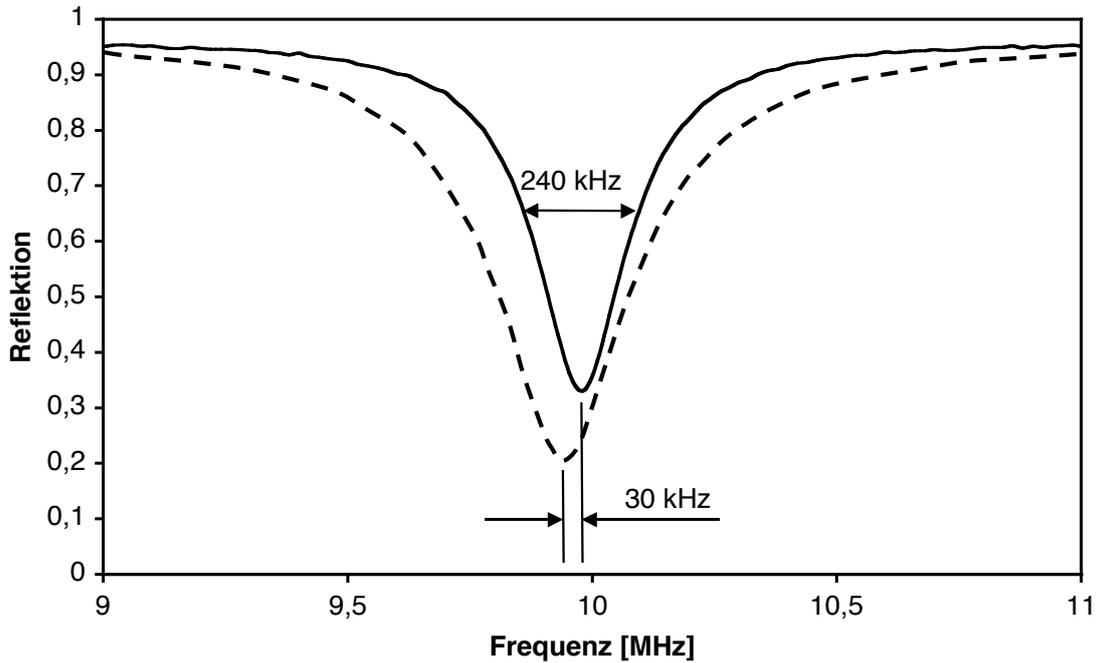


Abbildung 1.3: Reflexionskoeffizient ($P_{\text{in}}/P_{\text{out}}$) des Schwingkreises bei Zimmer-temperatur (gestrichelte Linie) und bei der Temperatur des flüssigen Heliums (durchgezogene Linie). Die Resonanzfrequenz verschiebt sich während des Abkühlens um fast 300 K nur um etwa 30 kHz. Die Breite der Resonanzlinie beträgt 240 kHz, daraus ergibt sich bei einer Resonanzfrequenz von 9,961 MHz eine Güte von etwa 40.

1.4 Koordinatensysteme

In dieser Arbeit werden verschiedene Koordinatensysteme benutzt, die durch die Probe, das externe B_0 Feld und das rotierende B_1 Feld festgelegt werden.

Das Koordinatensystem der Probe ist das wichtigste und wird deshalb ohne irgendwelche Striche bezeichnet. Die Wachstumsrichtung der QW (in [001]-Richtung) zeigt in die z -Richtung, während die Ebene der Quantentöpfe in der xy -Ebene liegt. Die x und y -Richtungen liegen parallel zu den [100] und [010] Kristallachsen. Der vollständige Wafer, von dem unsere Proben nur jeweils kleine Stücke sind, ist in der $[\bar{1}\bar{1}0]$ und $[\bar{1}10]$ Richtung markiert und wurde entlang dieser Achsen geschnitten (siehe Abb. 1.4). Somit sind diese Schnittkanten zufällig entlang der $[\bar{1}\bar{1}0]$, $[\bar{1}10]$, $[110]$ oder $[1\bar{1}0]$ Richtung des Kristalls orientiert.

Das Koordinatensystem relativ zu B_0 ist einfach gestrichen. Die z' -Richtung liegt parallel zu B_0 , x' liegt in Richtung des Gitter-Monochromators und die y' -Richtung ist entsprechend senkrecht zu diesen beiden Richtungen (siehe Abb. 1.1). Das Koordinatensystem der Probe ist bezüglich diesem Koordinatensystem

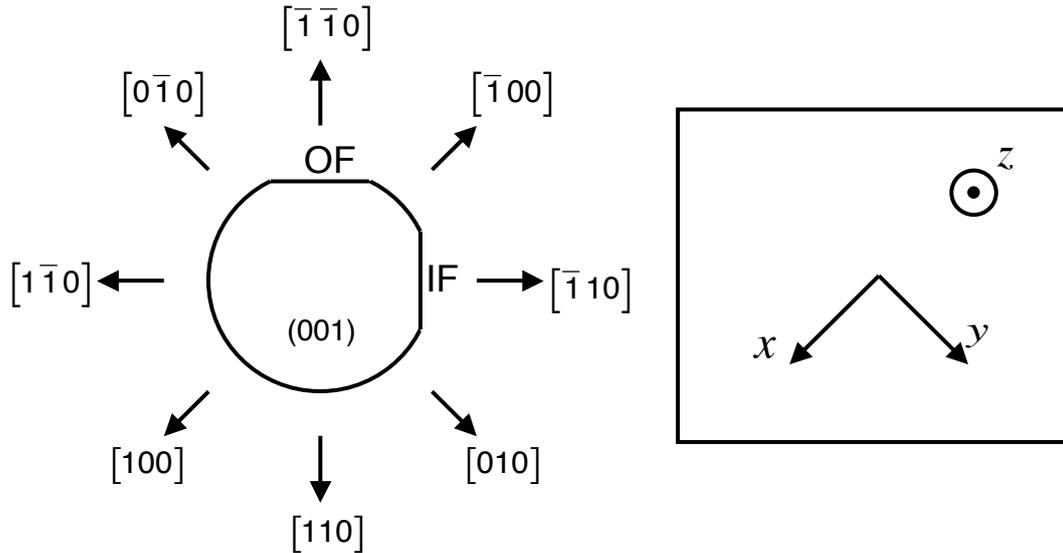


Abbildung 1.4: Darstellung der Kristallachsen und der Orientierungshilfen auf einem Wafer.

verdreht. Um diese Verdrehung zu verdeutlichen, werden im Folgenden die Drehungen beschrieben, die notwendig sind, um die Lage des Koordinatensystems der Probe in dem einfach gestrichenen Koordinatensystem zu beschreiben. Nimmt man an, dass zu Anfang beide Koordinatensysteme deckungsgleich sind, so kann man das Kristallgitter der Probe in die tatsächliche Position durch zwei Drehungen überführen. Die erste Drehung sei eine 45° Drehung um z . Die x und y -Achsen liegen nun als Winkelhalbierende zwischen den x' und y' -Koordinatenachsen. Eine anschließende Drehung um y' um den Winkel ϕ dreht nun die Wachstumsrichtung der Probe in der Ebene, in der B_{ext} und die Detektionsrichtung liegen. Beschreibt man die Drehung der Probe durch Euler-Winkel, so entspricht die 45° Drehung der ersten Drehung mit dem Winkel α und die ϕ Drehung der zweiten Drehung mit dem Winkel β . Die dritte Drehung mit dem Winkel γ wird hierbei nicht durchgeführt [10]. Die Einheitsvektoren der Kristallachsen werden in dem einfach gestrichenem Koordinatensystem des experimentellen Aufbaus folgendermassen dargestellt:

$$\vec{u}'_{[100]} = \begin{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}} \cos \phi \\ -\frac{1}{\sqrt{2}} \\ \frac{1}{\sqrt{2}} \sin \phi \end{pmatrix}, \vec{u}'_{[010]} = \begin{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}} \cos \phi \\ \frac{1}{\sqrt{2}} \\ \frac{1}{\sqrt{2}} \sin \phi \end{pmatrix}, \vec{u}'_{[001]} = \begin{pmatrix} -\sin \phi \\ 0 \\ \cos \phi \end{pmatrix} \quad (1.1)$$

Die Achsen des rotierenden Koordinatensystems sind doppelt gestrichen. z'' ist identisch mit z' , während x'' und y'' in der Ebene senkrecht zu z' liegen und sich dort mit der Radiofrequenz um z' drehen.

Kapitel 2

Elektron Kern Wechselwirkung

2.1 Exzitonen in Quantentöpfen

Wird in einem Halbleitermaterial ein Photon absorbiert, so wird dabei ein Elektron aus dem Valenzband in das Leitungsband des Halbleiters angeregt. Die leere Stelle im Valenzband, die das Elektron dort zurücklässt, kann mit einem Loch beschrieben werden, das eine positive Ladung und eine negative Masse besitzt. Während der Betrag der Ladung erhalten bleibt, hängt der Betrag der effektiven Masse der Ladungsträger von der Krümmung des Bandes ab, in dem sie sich gerade befinden. Von Interesse in dieser Arbeit sind die Valenzbänder von GaAs in denen sich nach der Absorption schwere Löcher (HH) und die Valenzbänder in denen sich leichte Löcher (LH) befinden. Die Spins der Ladungsträger unterscheiden sich für diese beiden Valenzbänder. Der Spin des HH ist $j_z = \pm\frac{3}{2}$ und des LH $j_z = \pm\frac{1}{2}$. Im Zentrum der Brillouin-Zone, dem so genannten Γ -Punkt, sind diese beiden Bänder entartet. Das nächste mögliche Band ist energetisch so weit von dem HH und dem LH entfernt, dass deren Rekombinationswahrscheinlichkeit verschwindet und es zudem hier kaum angeregt wird. Es wird somit in dieser Arbeit nicht weiter beachtet.

Charakteristisch für einen Halbleiter ist die energetische Lücke zwischen Valenzband und Leitungsband. In Halbleitern wird die Temperaturabhängigkeit der Bandlücke durch die empirische Formel

$$E_g(T) = E_g(0) - \frac{\alpha T^2}{T + \beta} \quad (2.1)$$

beschrieben[88]. Für GaAs und AlGaAs haben Allali *et al.* die nötigen Koeffizienten bestimmt (siehe Tab. 2.1)[2]. Daraus erhält man bei der Temperatur des flüssigen Heliums für GaAs eine Bandlücke von 1,519 eV und für $\text{Al}_{0,34}\text{Ga}_{0,66}\text{As}$ eine Bandlücke von etwa 1,997 eV.

Eine Kopplung zwischen dem angeregten Elektron im Leitungsband und dem entstandenem Loch im Valenzband verringert die Anregungsenergie um die Bin-

x	$E_g(0)$ [eV]	α [eV K ⁻¹]	β [K]
0	1,519	$8,95 \cdot 10^{-4}$	538
0,38	2,053	$7,82 \cdot 10^{-4}$	383

Tabelle 2.1: Liste der Koeffizienten, die für die Temperaturabhängigkeit der Bandlücke gemäß Gleichung 2.1 von Allali et al. bestimmt wurden[2].

dungsenergie dieser Kopplung gegenüber einem Elektron, das an kein Loch gebunden ist. Somit wird dieser Zustand bevorzugt angeregt. Solch ein gekoppeltes Elektron-Loch Paar wird als Exziton bezeichnet. Dabei umkreisen sich Elektron und Loch ähnlich wie Elektron und Proton in einem Wasserstoff Atom. Der mittlere Radius dieses räumlichen Gebildes wird als Bohr-Radius des Exzitons bezeichnet und beträgt etwa 11,3 nm [37]. Da das Leitungsband ein s-artiges Band ist und die Valenzbänder p-artig sind, kann der Einfluss der Löcher auf die Kerne gegenüber dem Einfluss der Elektronen vernachlässigt werden. Das Loch kommt nur dann zum Tragen, wenn es an Defekten gefangen wird oder es sich in einem anderen Teil des Halbleiters aufhalten muss als das Elektron. Dies ist z.B. der Fall, wenn das Loch in einem Material einer Heteroverbindung seinen energetisch günstigsten Zustand erreicht, während dies für das Elektron in dem anderen Material der Fall ist. Solche Heteroverbindungen bezeichnet man als 'Typ II'; liegt der energetisch günstigste Zustand aber für beide Bänder im gleichen Material, so ist diese vom 'Typ I'. [91] Bildet man eine Heteroverbindung aus GaAs und Al_xGa_{1-x}As so ist diese vom Typ I für x kleiner als 0,43 und vom Typ II darüber[68]. In dieser Arbeit werden Heteroverbindungen mit $x = 0,34$ behandelt, die folglich vom Typ I sind. Da GaAs eine Bandlücke von 1,519 eV und Al_{0,34}Ga_{0,66}As eine Bandlücke von 1,997 eV besitzt, halten sich Elektronen und Löcher vornehmlich im GaAs auf. Umgibt man nun eine GaAs Schicht auf zwei Seiten mit Al_{0,34}Ga_{0,66}As, so bildet man eine doppelte Heterostruktur. Der Potentialverlauf zeigt nun eine stufenhafte Verringerung der Bandlücke in dem Bereich des GaAs (siehe Abb. 2.1). Es wurde somit ein Potentialtopf gebildet, in dem die Energien der Valenz- und Leitungsbandzustände von der Dicke des Potentialtopfes, L_z , und der Quantenzahl des Bandes, $n_{c,v}$, abhängen. Solch ein Potentialtopf wird in der Literatur, und somit auch hier, als Quantenopf (eng.: quantum well; QW) bezeichnet. Es sind hier bei der Absorption eines Photons nur Übergänge zwischen den Bändern erlaubt, wenn die Quantenzahlen für das Leitungsband, n_c , und das Valenzband, n_v , durch eine einzige Quantenzahl, $n = n_v = n_c$, beschrieben werden können.

$$\hbar\omega_n = E_g^{GaAs} + \frac{\hbar^2\pi^2n^2}{2L_z^2} \left(\frac{1}{m_e} - \frac{1}{m_{hh, lh}} \right) \quad (2.2)$$

Hierbei ist E_g^{GaAs} die Energielücke des Bulk GaAs. Die Ladungsträger-Massen sind $m_e = 0.067 \cdot m_0$ für das Leitungsband und $m_{lh} = -0.082 \cdot m_0$ bzw. $m_{hh} = -0.5 \cdot m_0$ für die Valenzbänder[20]. Alle diese Massen sind für Bewegungen in der

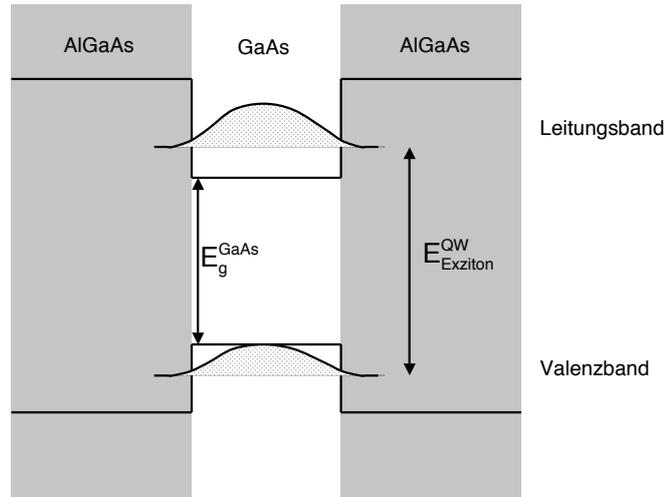


Abbildung 2.1: Leitungsband- und Valenzband-Zustand in einem GaAs QW.

Wachstumsrichtung. Aufgrund der Anisotropie der Massen der Löcher in einem QW sind die Massen für Bewegungen in der Ebene des QW unterschiedlich.

Die Abhängigkeit der Energieniveaus von der Masse der Löcher führt dazu, dass die Entartung des HH und LH Bandes am Γ -Punkt aufgehoben wird. Das Energieniveau des HH ist dabei das bevorzugte, da er den geringeren Abstand vom Fermi-Niveau besitzt und die Ladungsträger immer in dieses Band relaxieren werden. Somit wird die strahlende Rekombination immer zwischen dem Leitungsband und dem HH Valenzband mit $n = 1$ stattfinden. Da die emittierte Strahlung hier nach der Absorption eines Photons entsteht wird sie als Photolumineszenz (PL) bezeichnet, deren Energie in erster Näherung durch die Gleichung 2.2 beschrieben wird. Die Abhängigkeit von der Topfdicke macht somit die QW unterscheidbar, indem die Wellenlänge der emittierten PL selektiert wird. Das PL-Spektrum der in dieser Arbeit benutzten Probe, das bei der Temperatur des flüssigen Heliums aufgenommen wurde, ist in Abb. 2.2 dargestellt. Dieses Bild von eindeutig unterscheidbaren LH und HH Bändern stimmt nur für Ladungsträger, die in der QW-Ebene keinen Impuls besitzen, da die LH und HH Bänder aufgrund eines Anti-Kreuzens der Bänder vermischen. Für niedrige Temperaturen, so wie sie hier benutzt werden, können die Wellenvektoren \vec{k}_x und \vec{k}_y als Null angenommen werden.

Absorption von vollständig zirkular polarisiertem Licht mit der Energie der Bandlücke von HH und Leitungsband erzeugt eine Population des Leitungsbandes mit nur einem bestimmten Spin. Wenn das Licht z.B. einen positiven Drehimpuls überträgt (bezeichnet mit σ^+), sind nur Übergänge von dem HH-Band mit $j_z = -\frac{3}{2}$ zu dem Leitungsband mit $j_z = -\frac{1}{2}$ erlaubt. Alle Ladungsträger in dem Leitungsband sind in dem gleichen Zustand. Relaxationsprozesse lassen

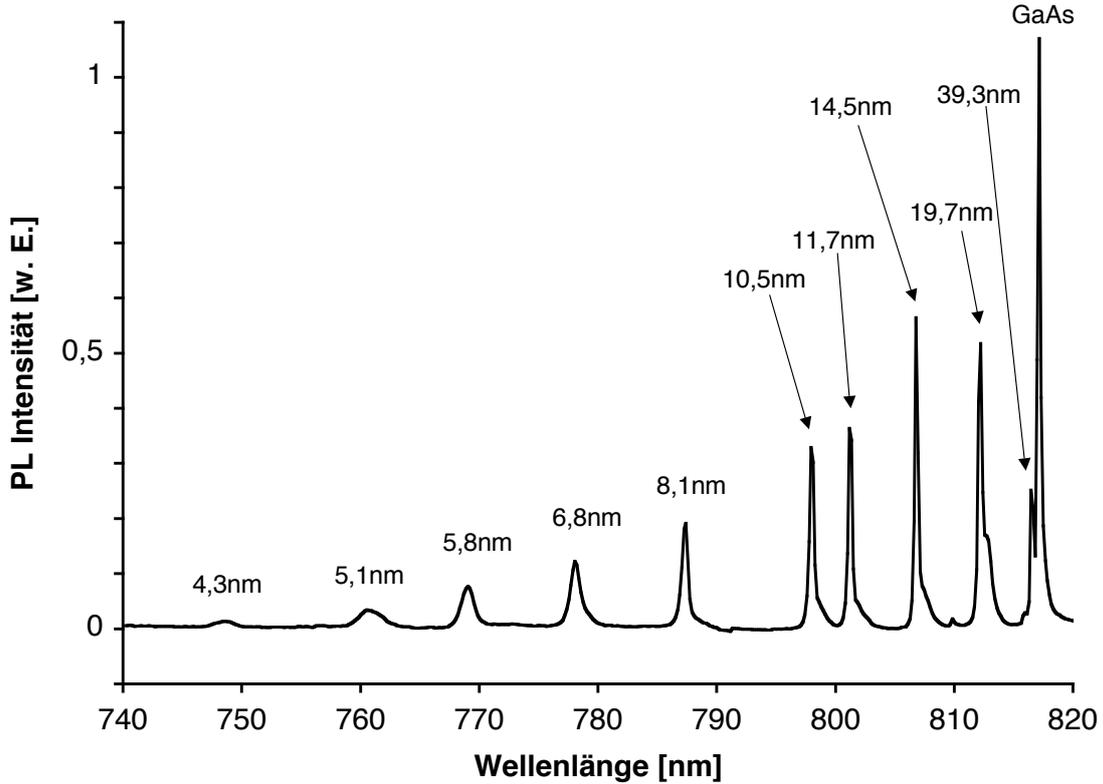


Abbildung 2.2: Photolumineszenz Spektrum der Probe 1431, die in dieser Arbeit benutzt wurde. Es sind die Emissionslinien der $n = 1$ Exzitonen in den jeweiligen QW zu sehen bei einer Anregung mit Licht der Wellenlänge 670 nm.

diese Spinpolarisation mit einer charakteristischen Zeit τ_s zerfallen. Der Ladungsträger bleibt solange in dem Leitungsband, bis es mit einem Ladungsträger im Valenzband rekombiniert. Diese Rekombination findet mit der charakteristischen Zeit τ_{rec} statt.

Bei der Rekombination eines Elektrons aus dem $j_z = -\frac{1}{2}$ Leitungsband trägt das erzeugte Photon einen Drehimpuls von $+1$. Bei einer Rekombination eines Elektrons aus dem $j_z = \frac{1}{2}$ Leitungsband ist der Drehimpuls entsprechend -1 . Die mittlere Polarisation des emittierten Lichtes ist somit gleich der mittleren Polarisation der Ladungsträger im Leitungsband. Die mittlere Polarisation der Ladungsträger wird beschrieben durch

$$P_e = \frac{N_+ - N_-}{N_+ + N_-}, \quad (2.3)$$

mit der Anzahl der Ladungsträger N_+ und N_- , in den $+\frac{1}{2}$ und $-\frac{1}{2}$ Zuständen.

Der Grad der Polarisation der Ladungsträger, und somit des emittierten

Lichts, wird kleiner, wenn die Spinrelaxation an Bedeutung gewinnt.

$$P_0 = \frac{\tau_s}{\tau_s + \tau_{\text{rec}}} \quad (2.4)$$

2.2 Der Hanle Effekt

Wirkt auf die Elektronen während ihrer Lebenszeit ein magnetisches Feld, so kommt es zu einem Vermischen der Zustände im Leitungsband. Dies kann klassisch beschrieben werden als eine Präzession des Elektronenspins um das angelegte magnetische Feld. Dadurch verliert das Elektron seinen Anfangs-Spin und der Polarisationsgrad des emittierten Lichtes verändert sich. Dieser Effekt wurde nach W. Hanle 1924 benannt, der die Abnahme der Polarisation des emittierten Lichts von Quecksilbergas in einem Magnetfeld beobachtet hat.

Der Zusammenhang zwischen dem Polarisationsgrad und dem magnetischen Feld B wird durch eine Lorentz-artige Funktion beschrieben, die eine Halbwertsbreite ΔB besitzt [23, 74, 25, 92, 60].

$$P(B) = P_0 \frac{\Delta B^2 + B^2 \cos^2 \theta}{\Delta B^2 + B^2} \quad (2.5)$$

ΔB hängt von dem effektivem Landé-Faktor g^* , den charakteristischen Zeiten des Ladungsträgers und dem Bohr-Magneton μ_B ab.

$$\Delta B = \frac{\hbar}{\mu_B |g^*|} \left(\frac{1}{\tau_s} + \frac{1}{\tau_{\text{rec}}} \right) \quad (2.6)$$

Für den Winkel θ , der von B und dem anfänglichen Elektronenspin S_0 eingeschlossen wird, gilt:

$$\cos \theta = \frac{\vec{S}_0 \cdot \vec{B}}{|\vec{S}_0| |\vec{B}|} \quad (2.7)$$

\vec{S}_0 ist parallel zu dem k -Vektor des Pumplichtes und somit auch zu der Wachstumsrichtung der Probe z . Wenn B dem externen Feld entspricht, ist θ gleich dem Winkel ϕ um den die Probe gegenüber dem externen Feld verkippt wurde.

Ein typisches Beispiel für eine Hanle-Kurve wird in Abb. 2.3 gezeigt. Der beobachtete Verlauf der Kurve passt allerdings nicht zu dem theoretisch erwarteten Verlauf, der sich bei dem hier gewählten Winkel ergeben sollte. Dieser ist als gestrichelte Kurve in der Abb. 2.3 dargestellt. Um den theoretischen Verlauf gemäß Gleichung (2.5) an den experimentell ermittelten Verlauf anzupassen, muss zusätzlich noch eine Verschiebung der Kurve berücksichtigt werden. Diese Verschiebung kann von detektiertem Streulicht des Lasers herrühren.

Mit den Gleichungen 2.4 und 2.6 ist es möglich, die charakteristischen Zeiten τ_s und τ_{rec} aus dem Hanle-Verlauf zu erhalten, wenn der effektive Landé-Faktor bekannt ist.

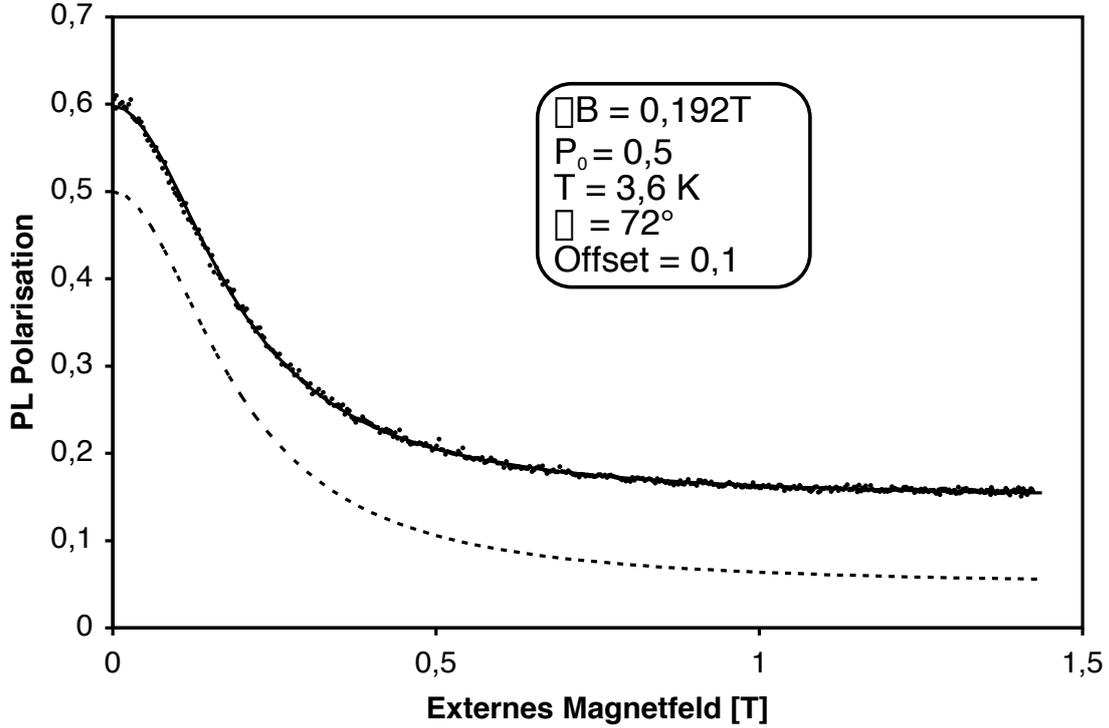


Abbildung 2.3: Magnetfeldabhängigkeit des Polarisationsgrades der PL von dem 15 nm QW bei einem Winkel θ von 72° zwischen B_{ext} und der Wachstumsrichtung. Die Temperatur des Probenhalters beträgt 3,6 K. Es wurde eine Breite der Hanle-Kurve von $\Delta B = 0,192 \text{ T}$ gemessen. Die gestrichelte Kurve stellt den Verlauf gemäß Gl. (2.5) dar. Die durchgezogene und mit den experimentellen Daten deckungsgleiche Linie erhält man, wenn man zu der gestrichelten Linie noch eine vertikale Verschiebung von 0,1 annimmt.

$$\tau_{\text{rec}} = \frac{\hbar}{\mu_{\text{B}}|g^*|} \frac{1}{\Delta B P_0} \quad (2.8)$$

$$\tau_{\text{s}} = \frac{\hbar}{\mu_{\text{B}}|g^*|} \frac{1}{\Delta B(1 - P_0)} \quad (2.9)$$

2.3 Ladungsträger-Rekombinationszeiten

Ändert man die Intensität des Lichtes, das auf die Probe fällt, so sieht man eine Abhängigkeit der Rekombinationszeit von der Lichtintensität (siehe Abb. 2.4). Mit wachsender Intensität wird die Rekombination schneller, die Spinlebenszeit bleibt dabei aber konstant. τ_{rec} und τ_{s} wurden anhand von den Gleichungen 2.8 und 2.9 bestimmt. Dabei wurde der effektive Landé-Faktor eines ungestörten

15 nm QW gewählt, dieser wurde von Snelling *et al.* zu -0,3 bestimmt[86, 85]. Eine Abweichung von diesem Wert ist höchst wahrscheinlich, allerdings führt dies nur dazu, dass die absoluten Werte der ermittelten Zeiten nicht richtig sein werden. Die relativen Änderungen und das Verhältnis der Zeiten untereinander werden allerdings richtig wiedergegeben.

Die Lebenszeit für strahlende Rekombination τ_{rad} für zusätzliche Ladungsträger in Halbleitern ist gegeben durch[76]

$$\tau_{\text{rad}} = \frac{1}{R} \frac{np}{n+p}, \quad (2.10)$$

mit der Rekombinationsrate R und der Ladungsträgerkonzentration der Elektronen (n) und Löcher (p). Nimmt man an, dass nur Exzitonen als zusätzliche Ladungsträger in der Probe vorhanden sind, so ist $n = p$ und damit wird aus Gleichung 2.10

$$\tau_{\text{rad}} = \frac{n}{2R}. \quad (2.11)$$

Die Wahrscheinlichkeit für strahlende Rekombination eines jeden Ladungsträgers ist gegeben durch

$$B = \frac{R}{n^2}. \quad (2.12)$$

Für geringe Verunreinigungen des Halbleiters und zu vernachlässigende nicht-strahlende Auger Rekombination ist B eine Konstante; dies wurde von Wang *et al.* [90] für GaAs/AlGaAs QW gezeigt. Setzt man Gleichung 2.12 in Gleichung 2.11 ein, so erhält man die beobachtete Abhängigkeit der Rekombinationszeit eines jeden Ladungsträgers von der Ladungsträgerdichte

$$\tau_{\text{rad}} = \frac{1}{2 \cdot B \cdot n}. \quad (2.13)$$

Die Potentialbarrieren von den GaAs/AlGaAs QW sind hoch für die Ladungsträger. Es befinden sich somit nahezu alle Ladungsträger innerhalb des QW und keine Ladungsträger halten sich in den Barrieren auf. Es wird folglich nur eine schwache Sättigung der Ladungsträger-Lebenszeit erwartet, so wie es in tiefen InGaAs QW bei hohen Ladungsträgerkonzentrationen ebenfalls der Fall ist[69].

Da bei einer Bestrahlung der Probe mit Licht die Rekombinationszeit und die Ladungsträgerdichte gegenseitig voneinander abhängen, muss man aus der Anzahl der absorbierten Photonen pro Zeiteinheit

$$N_{\text{ab}} = \frac{f_{\text{ab}} \cdot P_{\text{L}}}{E_{\text{ph}}} \quad (2.14)$$

und der Rekombinationszeit die Ladungsträgerdichte berechnen.

$$n = \frac{N_{\text{ab}}}{A_{\text{fokus}} \cdot L_z} \cdot \tau_{\text{rec}} \quad (2.15)$$

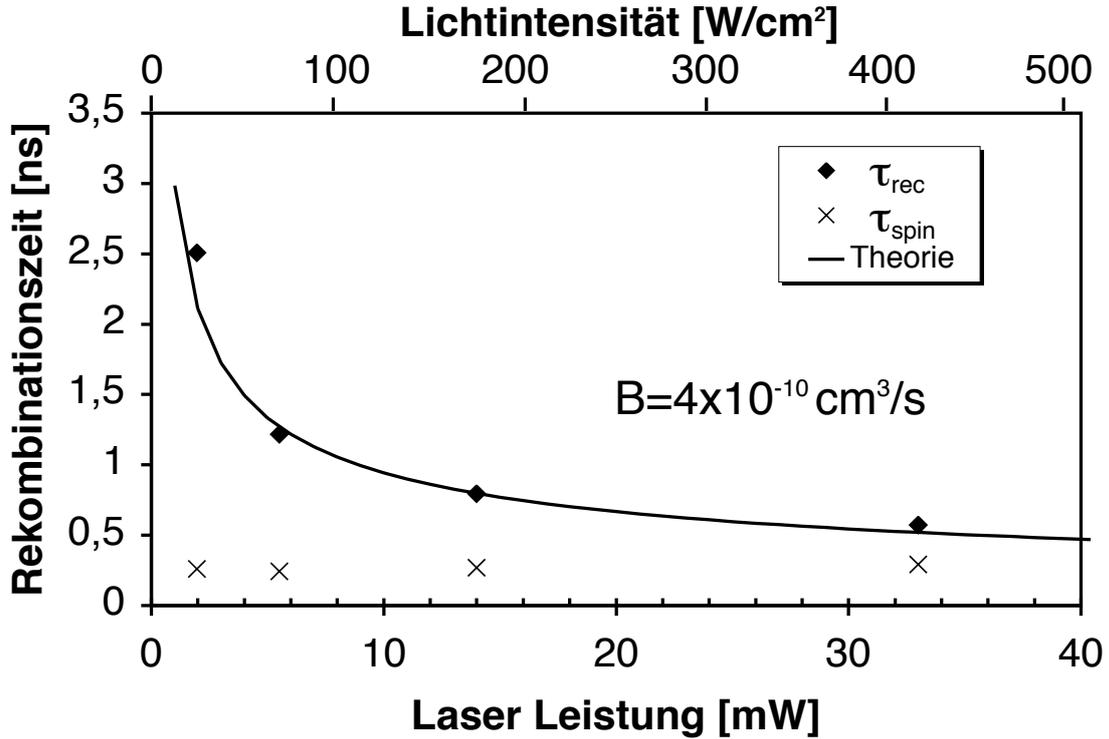


Abbildung 2.4: Abhängigkeit der Rekombinationszeit bei steigender Laser Leistung. τ_{rec} verläuft gemäß Gleichung (2.16) mit einem Durchmesser des Fokus von $50 \mu\text{m}$ und der Energie der Photonen bei 800 nm . Die Zeiten wurden über die Form der Hanle-Kurve der PL des 15 nm breiten QW gemessen. Die Temperatur der Probe betrug 20 K . Der Landé-Faktor wurde als $-0,3$ angenommen. Der Verlauf passt am besten für einen Koeffizient $B = 4 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$, wenn man annimmt, dass das Pumplicht vollständig absorbiert wird ($f_{\text{ab}} = 1$) und keine Verluste der Lichtintensität in der Probe auftreten. Eine systematische Änderung von τ_s für verschiedene Lichtintensitäten ist nicht zu erkennen.

Hierbei ist P_L die Leistung des eingestrahnten Lichts, E_{ph} die Energie eines jeden Photons, f_{ab} der Anteil des absorbierten Lichts und A_{fokus} die Fläche des Fokus auf der Probe.

Verbindet man die Gleichungen 2.13 bis 2.15 miteinander und berücksichtigt man, dass τ_{rec} und τ_{rad} identisch sind, so erhält man die Abhängigkeit der Rekombinationszeit von der Laserleistung.

$$\tau_{\text{rec}} = \sqrt{\frac{E_{\text{ph}} \cdot A_{\text{fokus}} \cdot L_z}{2 \cdot B \cdot f_{\text{ab}} \cdot P_L}} \quad (2.16)$$

Der bei einer Temperatur von 20 K beobachtete Verlauf der Rekombinationszeit von der Laserleistung passt zu einem Koeffizienten $B = 4 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$ (siehe

Abb. 2.4) unter der Annahme von vollständiger Absorption des Pumplichtes in dem QW. Bei einer Temperatur von etwa 4 K ist die Rekombinationszeit kleiner und der Koeffizient B beträgt dann $2 * 10^{-9} \text{cm}^3/\text{s}$. Dies entspricht nicht dem erwarteten Temperaturverhalten der Rekombinationsrate, die bei niedrigeren Temperaturen kleiner werden sollte. Das deutet auf eine erhöhte Ladungsträgerdichte bei niedrigeren Temperaturen hin, die durch ein Einfangen der Ladungsträger an Unebenheiten der QW Grenzflächen verursacht werden können. So führt z. B. eine lokal begrenzte Verbreiterung eines QW zu einer Verringerung der benötigten Energie für das Exziton und somit hält sich das Exziton vermehrt dort auf. Ist die thermische Energie des Exzitons geringer als die so erzeugte Potentialvertiefung, so bleibt das Exziton an dieser Verbreiterung des QW hängen[15]. Bei niedrigen Temperaturen ist somit das Einfangen wesentlich wahrscheinlicher und die Ladungsträgerdichte steigt an diesen Verbreiterungen an.

Die Energieabnahme bei einem 15 nm breiten QW beträgt 2,1 meV pro Monolage. Dies entspricht einer thermischen Energie, die bei ca. 25 K zur Verfügung steht. Somit kann ein Einfangen an Verbreiterungen von einer Monolage zu einer Erhöhung der Ladungsträgerdichte bei Temperaturen unterhalb von 25 K in einem 15 nm breiten QW führen.

2.4 Der Einfluss von Kernfeldern auf das Hanle Signal

Für die Wechselwirkung des magnetischen Moments des Elektrons im s-Zustand mit dem magnetischen Moment eines Kerns kann man den folgenden Wechselwirkungs-Hamiltonoperator ansetzen, der als Fermi-Kontakt-Hyperfein-Wechselwirkung (HFI) bekannt ist [33, 70, 71]:

$$\mathcal{H}_{\text{HFI}} = -\frac{8\pi}{3} \hat{\mu}_e \hat{\mu}_n \delta(\vec{r}) \quad (2.17)$$

Dies entspricht also einer skalaren Kopplung des Spins des Elektrons (\vec{S}) mit dem des Kerns (\vec{I}). Der Hamiltonoperator dieser Wechselwirkung kann man somit auch schreiben als [74]

$$\mathcal{H}_{\text{HFI}} = -a_{n\alpha}(\vec{r}_i) \vec{I} \cdot \vec{S}, \quad (2.18)$$

mit der Kopplungskonstante

$$a_{n\alpha}(\vec{r}_i) = \frac{2}{3} \hbar g_0 \mu_0 \mu_B \gamma_\alpha |\Psi_q(r_i)|^2. \quad (2.19)$$

g_0 ist der g-Faktor des freien Elektrons, μ_0 ist die magnetische Feldkonstante, μ_B das Bohr-Magneton, γ_α das gyromagnetische Verhältnis des Kerns α und $|\Psi_q(r_i)|^2$ die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Elektrons im Zustand q am Kernort. So

unterscheiden sich z.B. die Wellenfunktionen der Elektronen in den unterschiedlichen Bändern. Ein Loch kann somit für die HFI vernachlässigt werden, da das Band, in dem es sich befindet, p-artig ist.

Diese Wechselwirkung kann als zusätzliches magnetisches Feld der Kerne betrachtet werden, welches das Elektron spürt [74].

$$\vec{B}_n^q = - \sum_{\alpha} \sum_i \frac{a_{n\alpha i} \vec{I}_i}{g^* \mu_0 \mu_B} \quad (2.20)$$

Das Elektron interagiert während seiner Lebenszeit mit einer großen Anzahl von Kernen N_{α} des Isotops α . Somit kann man die Summe durch eine N_{α} -fache Wechselwirkung mit dem Erwartungswert von \hat{I}_{α} ersetzen.

$$\vec{B}_n^q = - \sum_{\alpha} \frac{a_{n\alpha} N_{\alpha} \langle \vec{I}_{\alpha} \rangle}{g^* \mu_0 \mu_B} \quad (2.21)$$

Diese Vereinfachung gilt nur, wenn jeder Kern die gleiche Wechselwirkungswahrscheinlichkeit mit einem Elektron hat (das gleiche $a_{n\alpha}$). In einem QW ist dies mikroskopisch betrachtet nicht der Fall, da die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen in der Nähe der Grenzflächen geringer ist als im Zentrum des QW. Zusätzlich kann aufgrund von Einschränkungen in der Bewegungsfreiheit der Ladungsträger noch nicht einmal das gleiche $a_{n\alpha}$ für eine Monolage angenommen werden. Da all diese Wechselwirkungsverteilungen nicht oder nur sehr schwer handhabbar sind, wird hier nur die mittlere Hyperfein-Wechselwirkung betrachtet. Für das mittlere statische Kernfeld, das so von den Elektronen gespürt wird, ist diese Vereinfachung hinnehmbar. Es wird allerdings zu einer Veränderung der Wechselwirkungsstärke kommen.

Da sich in jeder Einheitszelle des GaAs Kristalls vier Arsen und Gallium Atome befinden und das Elektron während seiner Lebenszeit mit Atomen in N_{EZ} Einheitszellen interagiert, kann man Gleichung 2.21 umschreiben zu

$$\vec{B}_n = - \sum_{\alpha} \frac{a_{n\alpha} 4N_{EZ} x_{\alpha} \langle \vec{I}_{\alpha} \rangle}{g^* \mu_0 \mu_B}. \quad (2.22)$$

Hierbei berücksichtigt x_{α} , dass Arsen nur als ^{75}As vorkommt ($x_{75\text{As}} = 1$) und sich Gallium in zwei Isotope aufteilt ($x_{69\text{Ga}} = 0,6$; $x_{71\text{Ga}} = 0,4$). Der Index q wurde weggelassen, da nur die Elektronen im Leitungsband wichtig für die Signalerzeugung sind und für die Löcher diese Wechselwirkung verschwindet.

Dieses Kernfeld ist also entlang des mittleren Kernspins ausgerichtet und überlagert sich dem externen Feld. Es wird ein effektives Feld erzeugt.

$$\vec{B}_{\text{eff}} = \vec{B}_{\text{ext}} + \vec{B}_N \quad (2.23)$$

Durch dieses zusätzliche Feld kann sich auch die Richtung des effektiven Feldes ändern. Der Winkel θ wird somit abhängig von dem Feld der Kerne. Gleichung 2.5 wird durch das zusätzliche Kernfeld modifiziert.

$$P(B_{\text{eff}}) = P_0 \frac{\Delta B^2 + B_{\text{eff}}^2 \left(\frac{\vec{S}_0 \cdot \vec{B}_{\text{eff}}}{|\vec{S}_0| |\vec{B}_{\text{eff}}|} \right)^2}{\Delta B^2 + B_{\text{eff}}^2} \quad (2.24)$$

$$= P_0 \frac{\Delta B^2 + (B_{\text{eff},y'} \sin \phi + B_{\text{eff},z'} \cos \phi)^2}{\Delta B^2 + B_{\text{eff}}^2} \quad (2.25)$$

Im Gleichgewicht sind allerdings keine Komponenten von \vec{B}_N vorhanden die senkrecht zu \vec{B}_{ext} stehen, da diese mit der Spin-Spin-Wechselwirkung sehr schnell zerfallen. Folglich ist $|\vec{B}_{\text{eff}}|$ identisch mit $B_{\text{eff},z'}$. Wie man sieht, liegt die Spitze der Hanle-Kurve bei einem endlichen externen Feld, welches der Größe des Kernfeldes entspricht. Ein Beispiel für eine verschobene Hanle-Kurve ist in Abbildung 2.5 zu sehen. Zusätzlich zu dem breiten Maximum der verschobenen Hanle-Kurve tritt noch ein zusätzliches schmales Maximum auf, wenn das externe Magnetfeld verschwindet und keine Ausrichtung der Kernfelder entlang des externen Feldes möglich ist.

B. Lenzmann [60] hat für die verschieden dicken QW die maximalen Kernfelder berechnet, die bei vollständiger Polarisation der Kerne zu erwarten sind. Für einen 15 nm breiten QW ist dies z. B. ein Feld von -6,55 T. Somit entspricht die Verschiebung der Spitze in Abbildung 2.5 von 1,34 T einer Kernspinpolarisation von 20%.

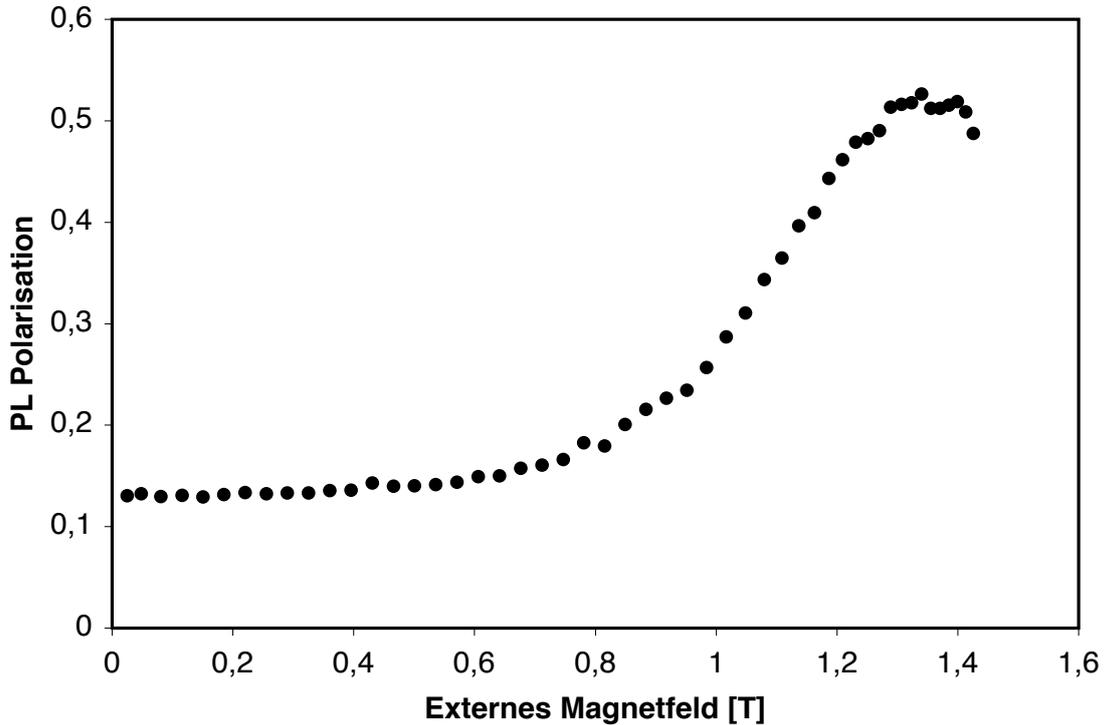


Abbildung 2.5: Vor der Messung wurde bei einem externen Magnetfeld von 1,43 T eine Kernspinpolarisation durch optisches Pumpen mit 38 mW Licht aufgebaut, das resonant mit der Absorptionslinie des 15 nm breiten QW war. Der Polarisationsverlauf wurde in 50 Schritten aufgezeichnet. Zwischen den einzelnen Messpunkten wurde das Licht geblockt und dann das Feld verändert. Die Spitze der verschobenen Hanle Kurve liegt bei 1,34 T.

2.5 Optisches Pumpen

Das optische Pumpen in Halbleitern wurde von D'yakonov und Perel' [24] beschrieben. Sie nehmen dabei an, dass sich die Spintemperaturen der Kerne und der Elektronen angleichen müssen und dies zu einer Polarisation der Kernspins entlang des Pumplichtes führt. Dies ist eine rein statistische Beschreibung der Wechselwirkung zwischen Elektron und Kern und weitestgehend feldunabhängig. Später haben sie gezeigt, dass die erzeugte Kernspinpolarisation vom externen Magnetfeld abhängt und dies in Verbindung mit einer Feldabhängigkeit des Verlustfaktors

$$f = \frac{T_1}{T_1 + T_{1e}} \quad (2.26)$$

gebracht. Dabei beschreibt T_1 die Relaxation in Wechselwirkung mit dem Gitter und T_{1e} die Relaxation aufgrund der Elektronen[26]. Sie weisen aber auch darauf hin, dass diese Abhängigkeit nur dann vernünftige Werte liefert, wenn man

eine Änderung der Spin-Gitter-Relaxation bei Bestrahlung der Probe berücksichtigt. Deren Erklärungsversuch für diese Änderung ist eine zusätzliche Kernspin-Relaxation durch langlebige, optisch erzeugte paramagnetische Zentren, die eine Magnetfeldabhängigkeit zeigen können, wenn diese Zentren durch Phononen an das Gitter koppeln [75]. Eine Magnetfeldabhängigkeit von T_{1e} kann dabei weitestgehend ausgeschlossen werden [75]. Einen Beweis für diese Erklärung konnte bis heute noch nicht erbracht werden.

Für das zu erwartende mittlere Kernfeld unter Berücksichtigung des Verlustfaktors gilt

$$\vec{I}_{av} = (I + 1) \frac{4I\vec{B} \cdot \vec{S}}{3B} f. \quad (2.27)$$

Diese Formel gilt für große Magnetfelder, so dass lokale Felder vernachlässigt werden können.

Farah *et al.*[32] haben diese Feldabhängigkeit des Verlustfaktors in InP gemessen und einen zuerst linearen Anstieg des Verlustfaktors mit dem Feld bestimmt, der bei größeren Feldern leicht abfällt.

Diese Effekte konnten auch in unseren Experimenten beobachtet werden. Die Dynamik der Kernspins bei dem Pumpprozess wird in den nachfolgenden Abschnitten untersucht.

2.5.1 Zeitliches Verhalten während des Pumpens

Eine Möglichkeit, den Polarisationsgrad des Kernspinsystems und somit die Größe der Kernfelder in Abhängigkeit von der Pumpzeit aufzunehmen, besteht darin bei dem angelegten Magnetfeld den Polarisationsgrad der Photolumineszenz gegen die Pumpzeit aufzuzeichnen und anschließend diesen Verlauf von der Hanle-Abhängigkeit zu entfalten. Damit dies möglich ist, muss allerdings die Hanle-Abhängigkeit bekannt sein. Zudem dürfen sich die Parameter dieser zugrunde liegenden Hanle-Kurve nicht oder nur in einer bekannten Art und Weise ändern. Wie die Abb. 2.6 zeigt, ist die Breite der Hanle-Kurve nicht konstant. So verbreitert sich die Hanle-Kurve zu Beginn des Pump-Prozesses zunehmend. Dieser Verbreiterungsprozess, der auf eine Verteilung der Kernfelder hindeutet, ist mit einer Abnahme der maximalen Polarisation dieser verschobenen Hanle-Kurve verbunden. Solch eine Verteilung läge zum Beispiel dann vor, wenn die Hyperfine-Wechselwirkung nur von der Intensität des Pumplichtes abhängt und der Pump Laser ein Gauss-förmiges Strahlprofil besitzen würde. Dies ist hier bekanntlich nicht der Fall, da zum einen der Laserstrahl der hier benutzen Laserdiode kein Gauss-förmiges Strahlprofil besitzt und zum anderen die Hyperfine-Wechselwirkung für die Kerne in einem Quantentopf durch die Wellenfunktion des Elektrons bestimmt wird. Diese ist innerhalb des Quantentopfes kosinusförmig. Somit müsste man, um die Verbreiterung der an sich Lorentz-förmigen Hanle-Kurve zu bestimmen, genau das Strahlprofil und die Wellenfunktion in dem Quantentopf kennen. Für

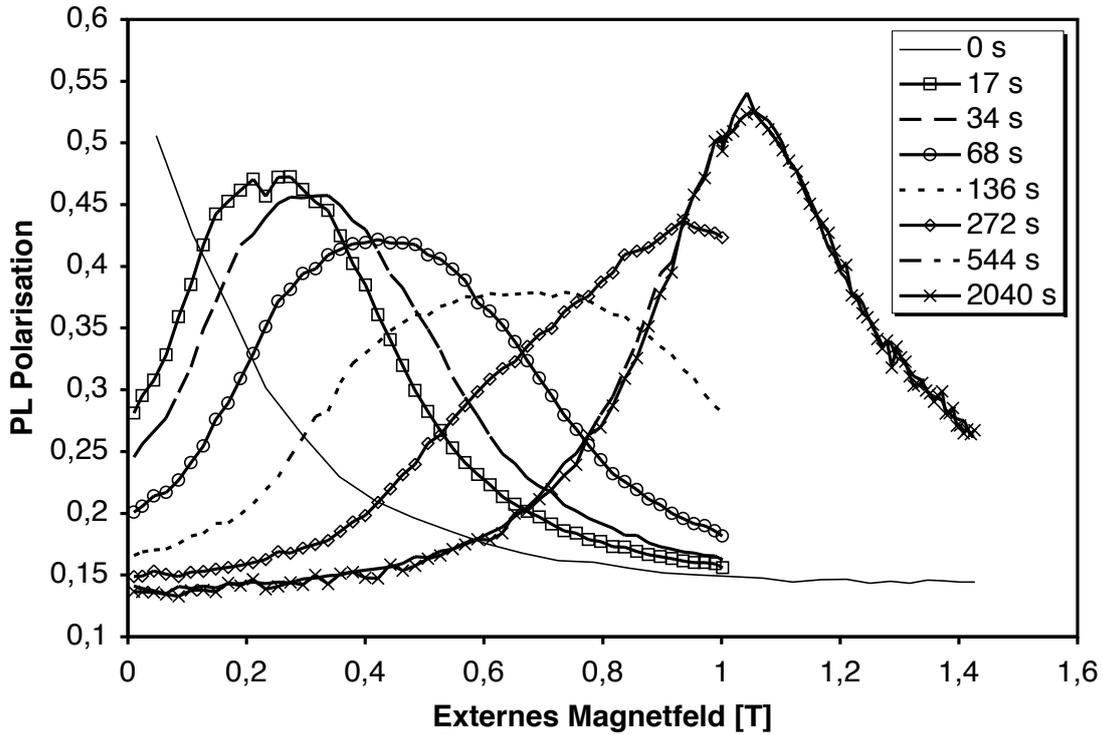


Abbildung 2.6: Verbreiterung der Hanle-Kurven während des Pump-Prozesses. Deutlich ist eine Zunahme der Verbreiterung zu Beginn des Pumpens, die mit einer Abnahme der Amplitude verbunden ist. Zum Ende des Pump-Prozesses hin verschwindet die Verbreiterung wieder und die Amplitude ist vergleichbar mit der Amplitude bei Nullfeld. Der Pump-Prozess fand jeweils bei 1 T externem Feld statt, anschließend wurde die Feldabhängigkeit von dort aus abgetastet. Die letzten beiden Messungen bestehen somit aus jeweils zwei einzelnen Messungen.

die Bestimmung der Linienform wurde als Näherung hier nur eine Gauss-förmige Verteilung angenommen. Wenn diese Verbreiterung auf eine Gauss-förmige Verteilung der Hyperfine-Wechselwirkung zwischen Elektron und Kern zurückzuführen ist, kann die Linienform durch ein Voigt-Profil beschrieben werden. Dies ist eine Faltung einer Lorentz-Kurve mit einer Gauss-Kurve, die allerdings analytisch sehr schwer zu handhaben ist und deshalb durch ein Pseudo-Voigt Profil approximativ beschrieben wird[43]. Diese Verteilung passt zwar nicht vollständig auf die beobachteten Spektren, allerdings soll sie hier nur ein Maß für die Verteilung der verschiedenen Wechselwirkungsstärken darstellen.

Der normierte funktionale Zusammenhang für das Pseudo-Voigt Profil lautet

$$f_{pV}(x) = (1 - \eta)f_G(x; \delta_G) + \eta f_L(x; \delta_L). \quad (2.28)$$

Dabei sind δ_G und δ_L die Halbwertsbreiten der Gauss- und Lorentz-Funktionen.

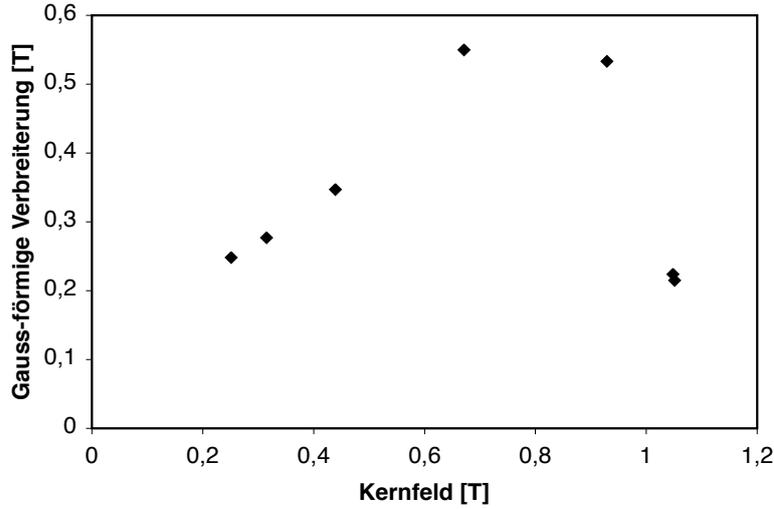


Abbildung 2.7: Abhängigkeit der Verbreiterung δ_G der Hanle-Kurven von dem mittleren Kernfeld. Es ist am Anfang des Pump-Prozesses bei kleinen mittleren Kernfeldern eine Zunahme der Verbreiterung zu sehen, die zum Ende des Pump-Prozesses wieder aufgehoben wird. Die Verbreiterungsverteilung wurde hier als Gauss-förmige angenommen, wodurch sich ein Voigt-Profil für die Hanle-Kurven ergibt, das durch die Gleichung 2.28 angenähert wird.

Für den Parameter η gilt

$$\eta = 1,36603 \left(\frac{\delta_L}{\Gamma} \right) - 0,47719 \left(\frac{\delta_L}{\Gamma} \right)^2 + 0,11116 \left(\frac{\delta_L}{\Gamma} \right)^3, \text{ mit} \quad (2.29)$$

$$\Gamma = \left((\sqrt{\ln 2} \delta_G)^5 + 2,69269 (\sqrt{\ln 2} \delta_G)^4 \delta_L + 2,42843 (\sqrt{\ln 2} \delta_G)^3 \delta_L^2 + 4,47163 (\sqrt{\ln 2} \delta_G)^2 \delta_L^3 + 0,07842 (\sqrt{\ln 2} \delta_G) \delta_L^4 + \delta_L^5 \right)^{1/5} \quad (2.30)$$

Erstaunlich ist bei dem Pumpprozess allerdings die Verringerung dieser Verbreiterung bei langen Pumpzeiten (siehe Abb. 2.7). Dies deutet darauf hin, dass für lange Pumpzeiten das Kernspinsystem in einen Gleichgewichtszustand übergeht, der nicht durch die Hyperfein-Wechselwirkung bestimmt ist. Somit ist die Linienform im Gleichgewicht wieder nahezu Lorentz-förmig. Stellt man die Position des mittleren Kernspinfeldes gegen die Pumpzeit dar (siehe Abb. 2.8), so sieht man, dass sich das Kernspinfeld nahezu exponentiell entwickelt.

Wie deutlich die Änderung der Linienform während des Pumpens den Polarisationsverlauf beeinflusst, kann auch sehr schön für das Beispiel bei 1,42 T Pumpfeld in Abb. 2.9 gezeigt werden. Dort bildet sich sogar eine Stufe aus, die durch die Verschmälerung der Hanle-Kurve während des Pumpens verursacht wird.

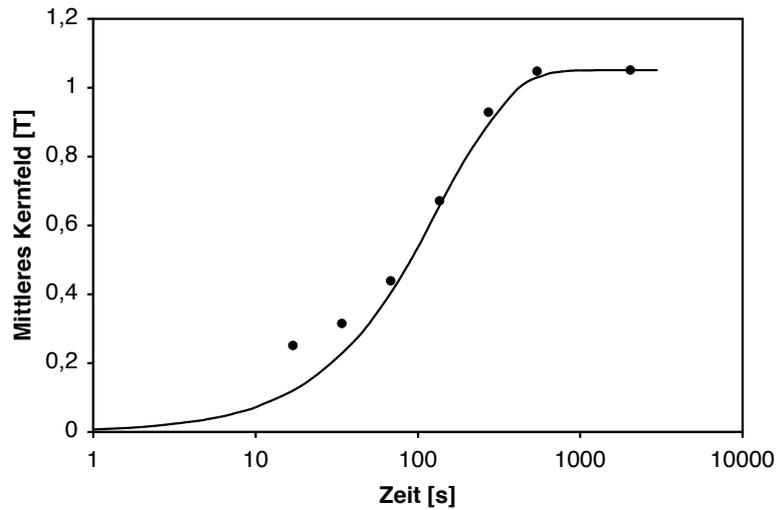


Abbildung 2.8: Position des mittleren Kernfeldes während des Pump-Prozesses in Abhängigkeit von der Pumpzeit. Die durchgezogene Linie entspricht einem exponentiellen Pumpverlauf. Man sieht eine recht gute Übereinstimmung für große Pumpzeiten. Die charakteristische Zeit für diesen exponentiellen Verlauf ist 140 s. Für kleine Zeiten macht sich bemerkbar, dass während der Messung unvermeidbar auch Kernspinpolarisation aufgebaut wird.

Für alle hierfür aufgenommenen Hanle-Messungen wurde immer nur kurzfristig das Licht eingeschaltet, wenn das Feld für einen Messpunkt erreicht wurde. Für die Dauer des Verfahrens des Magnetfeldes wurde dann jeweils das Licht geblockt. Während des Pumpprozesses wurden beide Gallium Isotope gesättigt indem in diesem Zeitraum zwei Synthesizer jeweils Radiofrequenz einstrahlen, die einen Bereich von ± 100 kHz um die Resonanz innerhalb von einer zehntel Sekunde überstreichen.

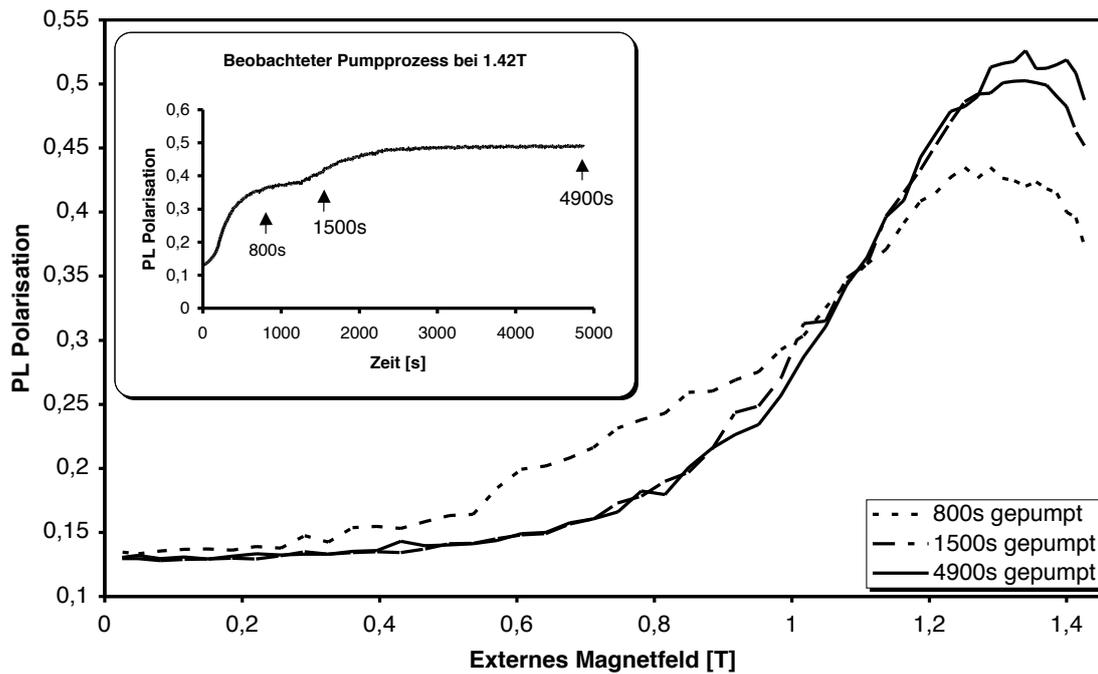


Abbildung 2.9: Linienformen während des Pump-Prozesses bei einem externen Feld von 1,42T. Man sieht eine Veränderung der Linienform in der Flanke der Hanle-Kurve, die bei längeren Pumpzeiten verschwindet. In dem kleinen Graphen ist der Polarisationsverlauf zu sehen, der während des Pump-Prozesses bei 1,42 T aufgezeichnet wurde. Die Stufe in dem Verlauf wird durch die Verschmälerung der Hanle-Kurve während des Pumpprozesses verursacht.

2.5.2 Feldabhängigkeit beim Pumpprozess

Die Gleichgewichtspolarisation des Kernspinsystems zeigt eine deutliche Abhängigkeit vom externen Feld. So sieht man bei kleinen externen Feldern noch ein Feld der Kernspins, das deutlich größer ist als das externe Feld. Ab einem externen Feld von etwa 0,7 T wird das Kernspinfeld im Gleichgewicht eindeutig durch das externe Feld bestimmt. Dies wird durch den linearen Zusammenhang gezeigt, der in Abb. 2.10 deutlich wird.

Für 0,8 und 1 T liegt das Maximum knapp oberhalb des Pumpfeldes, während es für größere Felder dann unterhalb des Pumpfeldes ins Gleichgewicht kommt. Der hier beobachtete Verlauf für Felder größer als 0,7 T deckt sich mit der Abhängigkeit des Verlustfaktors von dem externen Magnetfeld.

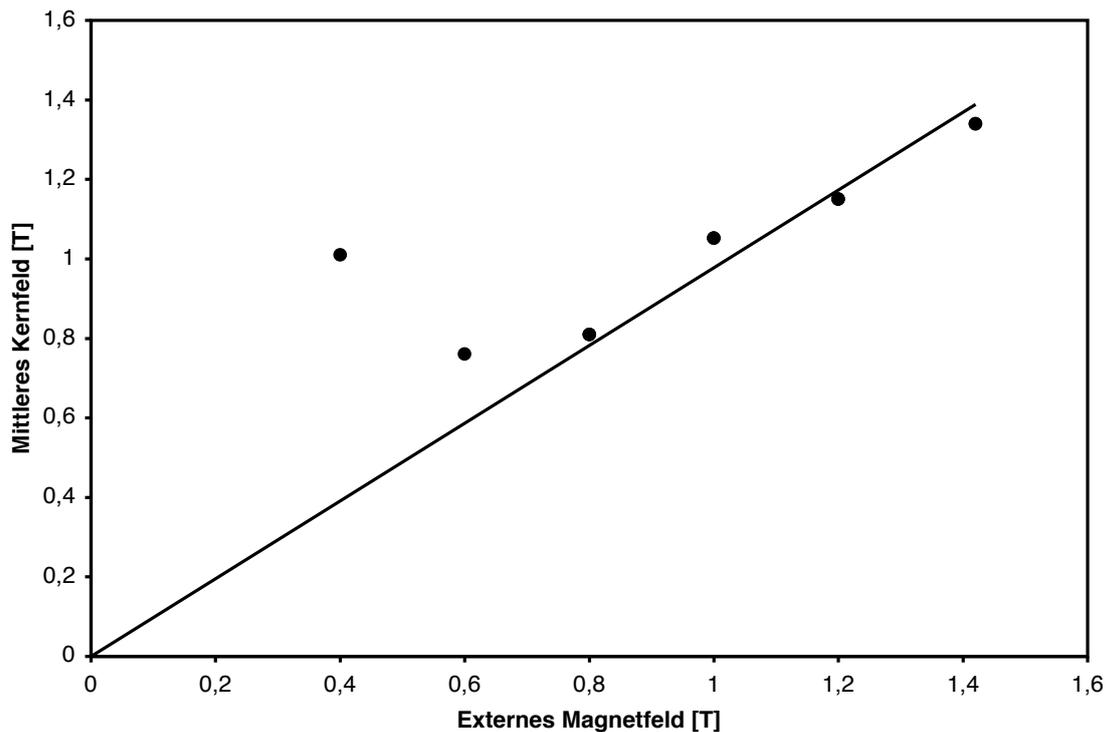


Abbildung 2.10: Das mittlere Kernfeld jeweils nach 5000 Sekunden Pumpzeit bei verschiedenen externen Feldern. Bei großen Feldern sieht man einen deutlichen Zusammenhang zwischen dem Feld, bei dem die Kernspinpolarisation aufgebaut wird und der erzielten Kernspinpolarisation. Dies ist durch die Gerade angedeutet, die durch den Ursprung verläuft.

2.5.3 T₁-Relaxation

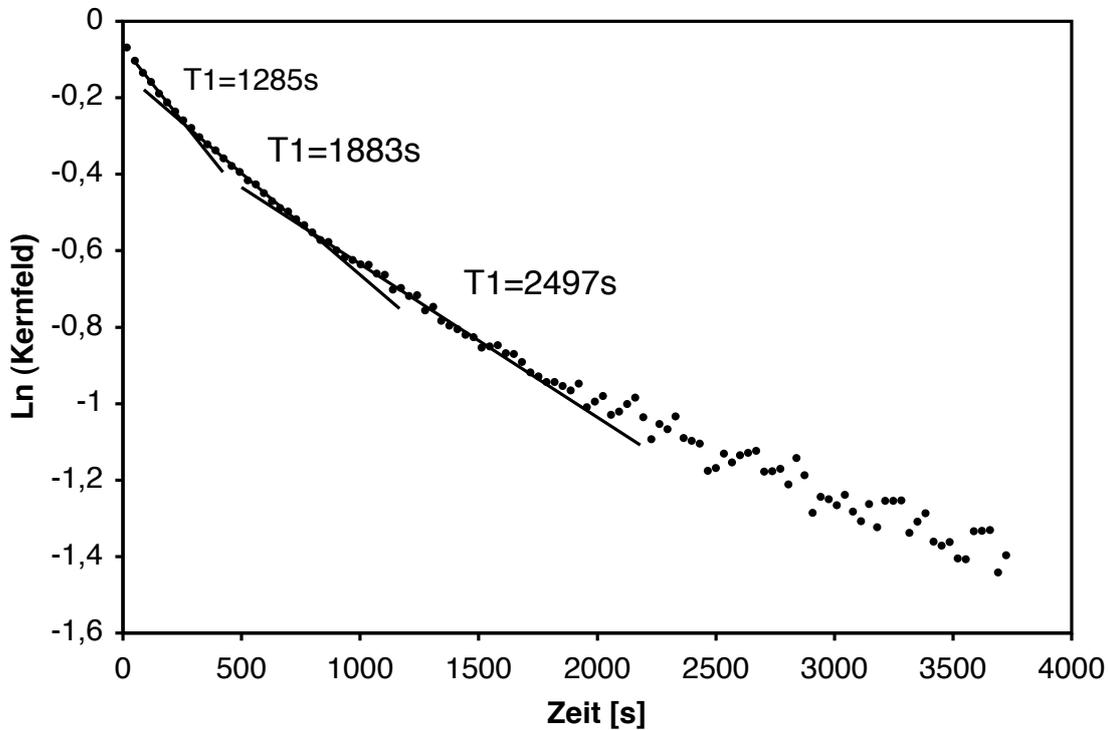


Abbildung 2.11: T_1 -Relaxation bei 1 T, wobei vorher 5000 Sekunden gepumpt wurde. Dabei wurden beide Gallium Isotope gesättigt. Der Kernspinverlauf wurde aus dem Polarisationsverlauf der Lumineszenz entfalten. Dabei wurden die Parameter der unverschobenen Hanle-Kurve benutzt (Nullfeldpolarisation 0,45, Breite 0,191 T, Winkel zwischen Laser und externem Feld 72° und eine instrumentelle Verschiebung von 0,087).

Bei einem Pumpfeld von 1 T ist die Verbreiterung der Hanle-Kurve aufgehoben. Aus dem Polarisationsverlauf der Lumineszenz kann man somit bei der T_1 -Relaxation durch Entfaltung der Hanle-Abhängigkeit den Verlauf des Kernspinfeldes in Abhängigkeit von der Zeit darstellen. Dies ist in Abb. 2.11, welche die T_1 Relaxation des Kernspinsystems zeigt, dargestellt. Ein vergleichbarer Verlauf ist auch zu sehen, wenn man sich die Relaxation in Einzelaufnahmen mittels Hanle-Kurven anschaut, wie es schon für den Pumpprozess durchgeführt wurde (siehe Abb. 2.12).

Beide Messmethoden zeigen deutlich, dass die Relaxation mit mehreren exponentiellen Relaxationsprozessen auf der Zeitskala von 1000 s abläuft. Dies zeigt, dass die Kerne in dem Quantentopf unterschiedliche Umgebungen besitzen müssen. Dies ist zum Beispiel durch eine unterschiedliche Durchmischung mit Aluminium im Bereich der Grenzflächen gegeben oder durch verschiedene

Gebiete in dem Quantentopf mit unterschiedlichen quadrupolaren Störungen, die sowohl elektrischer als auch mechanischer Herkunft sein können.

Die hier gemessenen T_1 Relaxationszeiten in der Größenordnung von 1000 s passen gut zu den von McNeil und Clark experimentell bestimmten T_1 Relaxationszeiten bei Temperaturen in der Nähe des absoluten Nullpunkts[64].

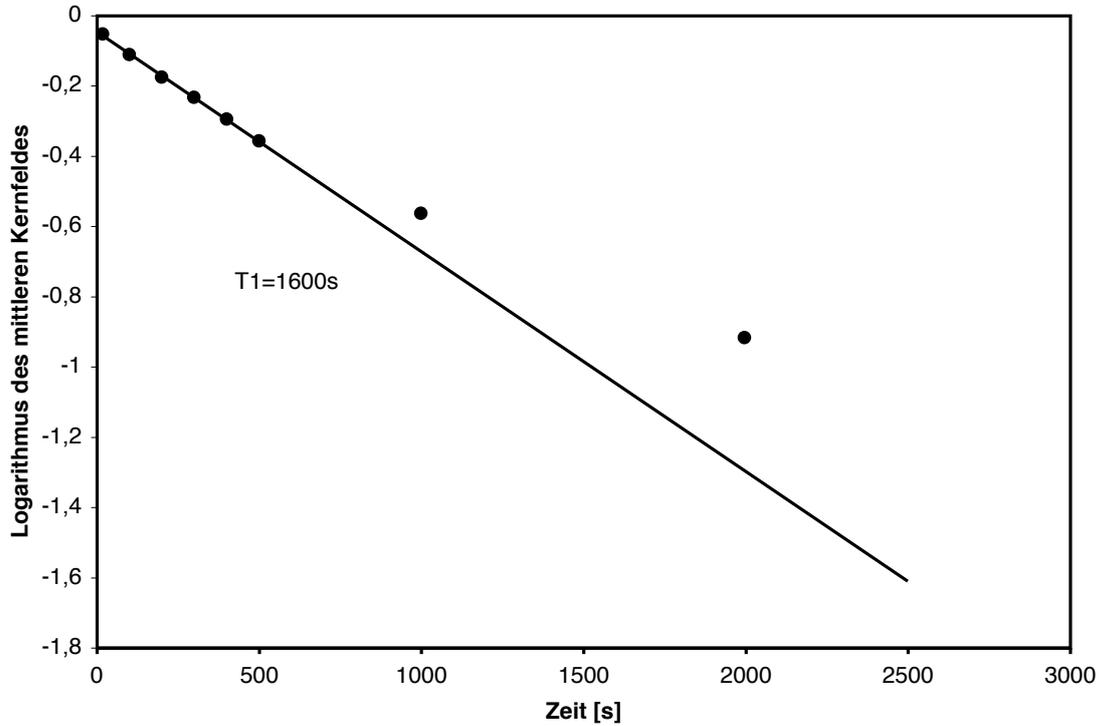


Abbildung 2.12: T_1 -Relaxation bei $1T$, wobei jeweils vorher 2000 Sekunden gepumpt wurde mit gleichzeitigem Sättigen beider Gallium Isotope. Anschließend relaxierte ohne Pumpen das Kernspinfeld für verschieden lange Zeiten. Es ist zu sehen, dass die Kerne, die beobachtet werden, keine homogene Umgebung haben und somit mit unterschiedlich langen Relaxationszeiten relaxieren.

Kapitel 3

Optisch detektierte NMR in schiefen Feldern

Aufgrund der charakteristischen Zeeman Aufspaltung der Kern-Energieniveaus ist jedes Isotop eindeutig über seine Resonanzfrequenz $\omega_{L,\alpha} = \gamma_{\alpha} B_0$ identifizierbar[1]. Die drei Isotope, aus denen ein GaAs Kristall aufgebaut ist, sind ^{75}As , ^{69}Ga und ^{71}Ga . Deren gyromagnetischen Verhältnisse γ_{α} sind in Tabelle 3.1 aufgelistet. Die Energieniveaus des Kerns werden von der Zeeman Wechselwirkung entsprechend ihrer magnetischen Quantenzahl verschoben. Die Wahrscheinlichkeit, dann einen Kern in einem von den möglichen Zuständen vorzufinden, wird durch die Boltzmann-Statistik beschrieben. Die Verteilung kann somit durch die Temperatur des Spinsystems, T_S , beschrieben werden. Im thermischen Gleichgewicht ist T_S gleich der Temperatur des Gitters, T_L . Optisches Pumpen der Kernspins und somit eine Erhöhung der Spinpolarisation führt zu einem T_S , das sich von T_L unterscheidet. Die Spinpolarisation und somit die Magnetisierung des QW kann bis zu sechs Größenordnungen durch optisches Pumpen erhöht werden. Da der Rest der Probe aber aus 10^{10} mal mehr Kernspins besteht als der polarisierte Bereich des QW, kann man keine eindeutige Unterscheidbarkeit vom Rest der Probe erwarten. Möchte man konventionell NMR an den Kernen im QW messen, so muss man den Signalbeitrag der Kerne im QW gegenüber den Kernen im Substrat erhöhen. Eine Möglichkeit, so den Hintergrundbeitrag des Substrats zu unterdrücken, besteht darin, das Substrat zu entfernen [6].

Isotop	$\gamma[10^6(\text{Ts})^{-1}]$	natürliche Häufigkeit
^{75}As	45,817	1,000
^{69}Ga	64,208	0,602
^{71}Ga	81,581	0,398

Tabelle 3.1: Die gyromagnetischen Verhältnisse und die natürlichen Häufigkeiten der drei Isotope, aus denen der GaAs Kristall aufgebaut ist.

Eine andere Art NMR Signale und damit Informationen aus den QW zu erhalten, ist die optische Detektion der NMR (ODNMR). Die QW sind unterscheidbar über ihre Emissions- und Absorptionsenergien (siehe Kapitel 2). Ein QW ist somit selektierbar indem man die Wellenlänge des Lichts auswählt, das auf den Detektor fällt. Exzitonen, die durch optische Absorption in einem QW erzeugt wurden, bleiben während ihrer gesamten Lebenszeit in diesem Quantentopf. Während dieser Zeit interagiert das Exziton mit jedem Kern, der sich innerhalb des Exzitons befindet. Die Stärke der jeweiligen Wechselwirkung ist dabei proportional zu der Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Exzitons an dem jeweiligen Kernort. Die Aufenthaltswahrscheinlichkeit ist durch die Wellenfunktion des Exzitons in dem QW gegeben. Die Polarisation des emittierten Photons bei der Rekombination des Exzitons ist somit beeinflusst durch das zeitliche Mittel über alle diese Wechselwirkungen. Die Anzahl der wechselwirkenden Kerne für ein stationäres Exziton beträgt in einem 20 nm breiten QW nur etwa 10^4 . Wenn das Exziton nicht lokalisiert ist, wird es sich entsprechend seiner thermischen Energie von 0,3 meV bei der Temperatur von flüssigem Helium mit einer maximalen Geschwindigkeit von 10^4 m/s bewegen. Es legt also etwa eine Entfernung von 10 μm zurück. Die Anzahl der Kerne, mit denen das Exziton interagiert, steigt dadurch um etwa drei Größenordnungen. Eine Verbreiterung eines 20 nm breiten QW um eine Monolage bewirkt eine Änderung der Bindungsenergie des Exzitons um 0,8 meV. Eine Verschmälerung der mittleren Breite des QW um eine Monolage stellt also eine nur schwer überwindliche Potentialbarriere für das Exziton dar. Dies führt also dazu, dass sich das Exziton nicht mehr frei bewegen kann. Bilden sich also z.B. Inseln von Verbreiterungen des QW in der Größenordnung des Bohr-Radius des Exzitons aus, so wird das Exziton dadurch lokalisiert [15] und der Einfluss auf die Kerne und ebenso der Anteil dieser Kerne am Gesamtsignal wird drastisch ansteigen. Ebenso werden Exzitonen, die an anderer Stelle erzeugt wurden, von diesen Inseln eingefangen sobald sie sich zufällig in eine Insel hineinbegeben. Die Kerne außerhalb dieser Inseln werden hauptsächlich über Spinndiffusion polarisiert. Diese außerhalb liegenden Kerne tragen dann aber trotzdem nur sehr wenig zum Gesamtsignal bei, da das Exziton nicht direkt mit ihnen interagiert. Ihr Einfluss kann als ein Wärmebad angesehen werden.

3.1 Detektion der NMR über die emittierte Lumineszenz

Wie bereits in Kapitel 2 gezeigt wurde, ist der Polarisationsgrad der PL empfindlich auf die magnetischen Felder externer und interner Herkunft. Die Empfindlichkeit hängt stark von dem Winkel zwischen externem Feld und der Ausrichtung der Elektronenspins bei ihrer Erzeugung ab. Bei der Absorption von zirkular po-

larisierten Lichtquanten ist der Spin parallel zu dem k -Vektor der Lichtquanten ausgerichtet. Auch der Anteil der erzeugbaren Kernspinpolarisation ist von diesem Winkel zwischen externem Feld und dem k -Vektor abhängig. Es gibt zwei Extremfälle für die Ausrichtung:

- In der Faraday Konfiguration – das externe magnetische Feld ist parallel zu dem k -Vektor des Lichts – ist die erzeugbare Kernspinpolarisation maximal. Allerdings verschwindet die Abhängigkeit des Polarisationsgrades der PL von dem Kernspinfeld und man kann nur senkrechte Komponenten detektieren, da dies zu einer Änderung des eingeschlossenen Winkels führt.
- In der Voigt Konfiguration – das externe magnetische Feld ist senkrecht zu dem k -Vektor des Lichts – kann keine Kernspinpolarisation aufgebaut werden. Die Empfindlichkeit auf Änderungen des effektiven magnetischen Feldes ist allerdings maximal.

Wählt man einen Winkel, der zwischen diesen beiden Extremen liegt, so kann man eine große Kernspinpolarisation aufbauen und gleichzeitig deren Änderungen recht empfindlich messen.

3.2 ODNMR bei konstanter RF

Bei der einfachsten Methode ODNMR zu messen, wird zuerst eine Kernspinpolarisation aufgebaut. Anschließend strahlt man ein RF-Feld mit konstanter Frequenz ein, während man die Größe des externen Felds langsam verändert. Wenn die Resonanzbedingung für ein Isotop erfüllt ist, wird sein Beitrag zu dem gesamten Kernfeld schnell gesättigt. Diese Änderung des Kernfeldes führt zu einer stufenartigen Änderung der PL Polarisation (siehe Abb. 3.1). Aus dem Feld, bei dem diese Änderung aufgetreten ist, lässt sich nun bestimmen welches Isotop für die Änderung verantwortlich war. Der Vorteil dieser Methode ist, dass alle Isotope, die zu dem Kernfeld beitragen, ein Signal erzeugen, wenn der Bereich der Feldänderung alle möglichen Isotope abdeckt. Solch ein Spektrum ist in Abbildung 3.2 dargestellt. Hier sind nur Resonanzen von ^{75}As , ^{69}Ga , and ^{71}Ga zu sehen. Der Winkel zwischen dem k -Vektor des Pumplichtes und dem externen magnetischen Feld betrug dabei 72° und die RF war 9 MHz. Das externe magnetische Feld wurde für die Messung von 1,35 T zu 0,5 T sehr langsam verändert. Ein Signal von ^{27}Al konnte hierbei nicht beobachtet werden. Dies zeigt, dass die Wellenfunktion der Ladungsträger nur sehr wenig in die Barrieren eindringt.

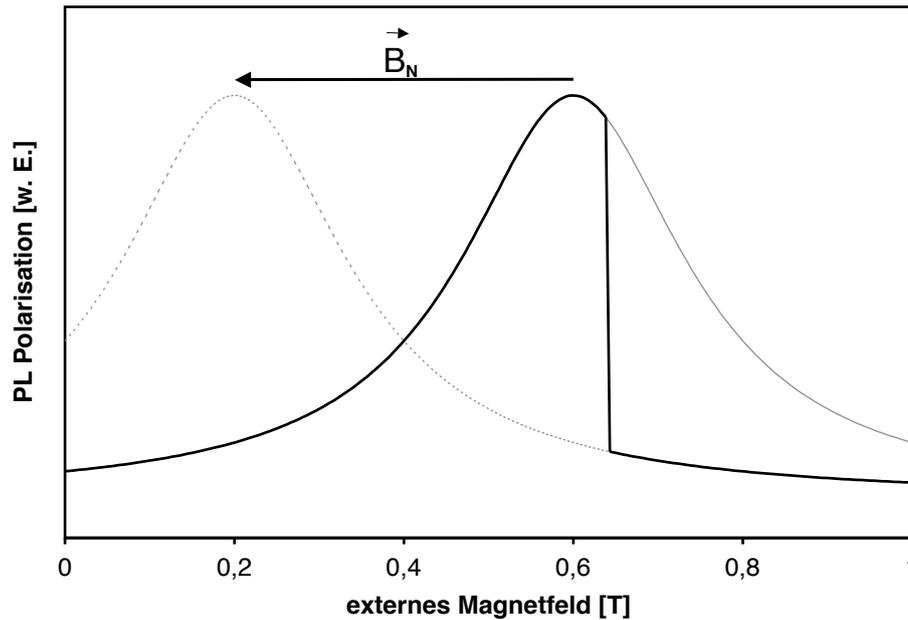


Abbildung 3.1: Der Verlauf der Hanle Kurve, bevor die Kerne resonant waren, ist als graue Linie eingezeichnet. Nach der Resonanz ist der Verlauf als gestrichelte graue Linie dargestellt. Die durchgezogene schwarze Linie gibt den gemessenen Verlauf wieder, den man erhält, wenn man das externe Feld von kleinen zu großen Feldern verändert und dabei konstant eine RF einstrahlt. An der Stelle $B_{\text{ext}} = \omega_L/\gamma$ ist die Resonanz und es bildet sich eine Stufe in der gemessenen PL Polarisation aus.

3.3 ODNMR bei konstantem Magnetfeld

Bei einem ähnlichen Experiment ändert man die Frequenz, während das externe magnetische Feld konstant gehalten wird. Der Informationsgehalt solcher Messungen ist wesentlich höher, da die Frequenzänderung mit einer wesentlich höheren Auflösung und Genauigkeit durchgeführt werden kann. Zudem kann die Geschwindigkeit, mit der die Frequenz verändert wird, auch genauer und über einen größeren Bereich kontrolliert werden. Die Lebenszeit eines Exzitons liegt in der Größenordnung von 1 ns und ist wesentlich kürzer als eine Präzessionsperiode der Larmorpräzession der Kernspins in den erzeugbaren Magnetfeldern. Das Kernspinsystem kann man somit für jedes Exziton als statisch betrachten. Ändert man das Kernspinsystem, so ändert sich auch gleichzeitig die Wechselwirkung mit den Elektronenspins. Die Polarisation der emittierten PL verändert sich also entsprechend zu dem Kernspinsystem.

Tastet man die Resonanz adiabatisch ab – die Kernspins sind ständig entlang der Richtung des effektiven Feldes im rotierenden Koordinatensystem ausgerichtet – so werden die resonanten Kerne mit der RF aus der Gleichgewichtslage her-

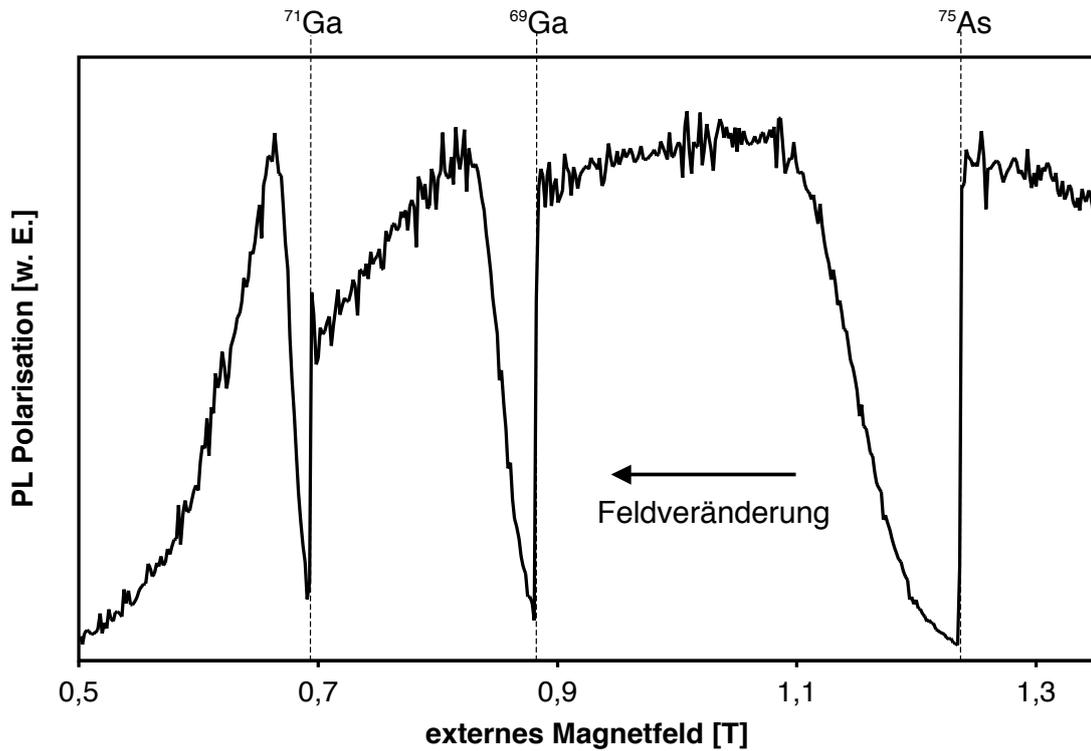


Abbildung 3.2: Bei diesem ODNMR Experiment wurde die RF mit einer konstanten Frequenz von 9 MHz eingestrahlt und dabei die Stärke des externen magnetischen Feldes von 1,35 T zu 0,5 T kontinuierlich verändert. Die Anregung der NMR Übergänge erfolgte hierbei über eine Modulation des Pumplichtes. Dies wird in Kapitel 5 noch näher erläutert.

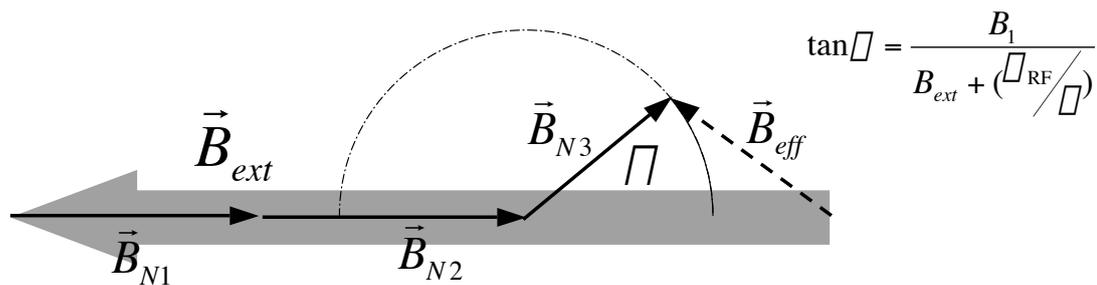


Abbildung 3.3: Orientierung der Kernfelder im rotierenden Koordinatensystem während einer adiabatisch durchfahrenen NMR Resonanz. Das Isotop N3 ist dabei in Resonanz und wird aus seiner Gleichgewichtslage mit dem Durchfahren der Resonanz umgeklappt.

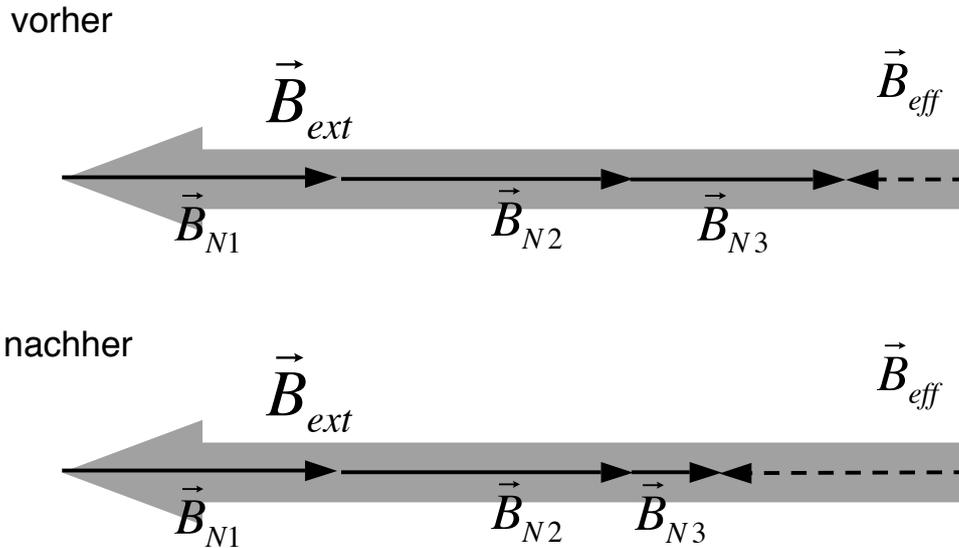


Abbildung 3.4: Hier wurde die RF nicht adiabatisch durch die Resonanz durchfahren. Es wurde angenommen, dass nur ein Teil der Kernspins, die zu B_{N3} beitragen, gesättigt wurden. Diese zeigen aber nach wie vor in die gleiche Richtung. Lediglich deren Größe hat sich geändert.

ausgeklappt. Das Kernspinsystem relaxiert dabei allerdings nicht. Somit ändert sich die Größe und die Richtung des effektiven Feldes, das die Elektronen spüren (siehe Abb. 3.3). Dies ist die typische Detektionsart, wie in der Faraday Konfiguration ODNMR gemessen wird [72, 81, 56, 35, 12]. Aber auch in der schiefen Konfiguration kann man adiabatisch messen, was den Vorteil besitzt, dass man kaum Kernspinpolarisation während der NMR Messung verliert und so wesentlich schneller messen kann[60]. Tastet man die Resonanz nicht adiabatisch ab, so wird die Komponente des Kernfeldes senkrecht zum externen Feld über die Spin-Spin Wechselwirkung sehr schnell verschwinden. Somit wird sich nur die Größe des effektiven Magnetfeldes ändern, während die Richtung die gleiche bleibt (siehe Fig. 3.4).

3.3.1 Signalform

Die zu erwartende Signalform ist somit eine Hanle-Kurve als Funktion des Integrals aller Kernspins, die während des Ab tastens resonant waren, so wie es in Abbildung 3.5 gezeigt ist. Im Falle einer Lorentz-förmigen Resonanzlinie ist dieses Integral ein Arcustangens und bei einer Gauss-förmigen Resonanzlinie die Fehlerfunktion (Errorfunktion)

$$\operatorname{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{-t^2} dt \quad (3.1)$$

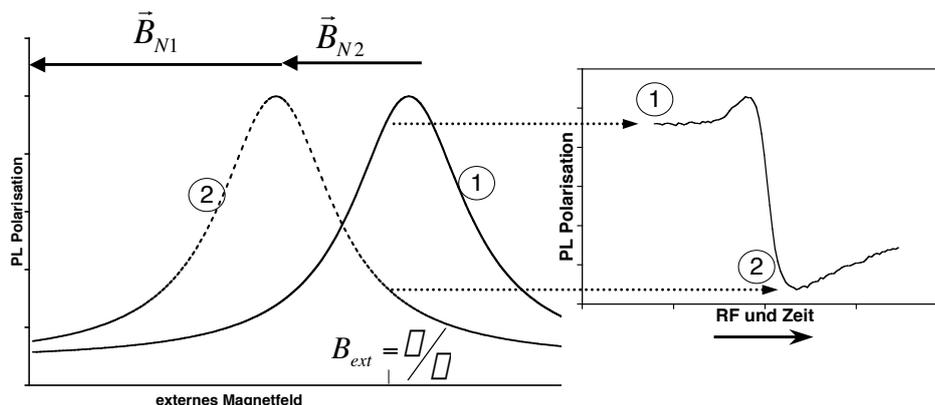


Abbildung 3.5: Hanle Kurven Verschiebung während des Durchfahrens einer Resonanz mit der RF bei konstantem B_{ext} . Vor der Resonanz ist die Hanle Kurve (Pos. 1) um das Kernfeld $B_{N1} + B_{N2}$ verschoben. Sobald die RF die Resonanzbedingung eines Isotops erfüllt, wird durch Sättigung B_{N2} zu Null verringert. Dies verschiebt die Hanle Kurve in Position 2. Die beobachtete Polarisation (s. rechter Graph) durchläuft ein Maximum wenn $B_{N1} + B_{N2} + B_{\text{ext}} = 0$ und nimmt bis zu dem Wert der Hanle Kurve in Position 2 ab. Sobald die RF weit genug von der Resonanz entfernt ist, steigt die Polarisation durch das optische Pumpen an.

mit einem Wertebereich von -1 bis 1 für $x = -\infty$ bis $+\infty$. Diese Resonanzlinienformen beschreiben nur dann das tatsächlich gemessene Signal, wenn mit hinreichend geringer RF-Leistung gemessen wird und keine Leistungsverbreiterung der Resonanzlinien auftritt.

Für die Aufnahme eines ODNMR Spektrums wird die Radiofrequenz ν über die Resonanzfrequenz ν_0 variiert. Während solch einer Messung werden die Kernspins nach und nach gesättigt. Dies führt zu einer frequenzabhängigen Auslöschung des Beitrages dieses Isotops zu dem Gesamtkernfeld $B_{N,\text{ges}}$. Für den Anteil des Kernfeldes das bis zu einem bestimmten Zeitpunkt – somit auch bis zu einer bestimmten Frequenz – im Experiment bereits resonant war gilt

$$B_{N_i,\text{res}}(\nu) = B_{N_i,0} \frac{1}{2} \left(1 + \operatorname{erf} \left(\frac{\nu - \nu_0}{\delta \sqrt{\ln(2)}} \right) \right). \quad (3.2)$$

δ ist hierbei die Halbwertsbreite der zugehörigen Gauss-förmigen Resonanzlinie.

Aufgrund des langsamen Durchfahrens der Resonanz relaxieren die Kernspins schon während der Messung. Die relaxierten Kernspins verringern somit den Anteil der bisher resonanten Kernspins aus Gleichung (3.2). Der Relaxationsprozess startet für jeden einzelnen Kernspin, sobald er nicht mehr von der RF angesprochen wird. Da das Durchfahren der Resonanz aber schneller ist als die Relaxation, wird hier als Vereinfachung angenommen, dass der Relaxationsprozess mit

der Relaxationszeit T_{1f} für alle Kernspins zum Zeitpunkt des Durchfahrens der Resonanzstelle beginnt. Mit dem Verhältnis aus Messzeit t_{mess} zu dem Frequenzbereich, der während der Messung durchfahren wird ν_{mess} und der Differenzfrequenz $\nu - \nu_0$ erhält man den Relaxationsprozess in Abhängigkeit von der aktuellen Frequenz.

$$A_{\text{rlx}}(\nu) = \Theta(\nu - \nu_0) \cdot e^{-\frac{(\nu - \nu_0)}{T_{1f}} \frac{t_{\text{mess}}}{\nu_{\text{mess}}}} \quad (3.3)$$

Das effektive Magnetfeld in Abhängigkeit von der Anregungsfrequenz für eine Gauss-förmige Linie ist somit

$$B_{\text{eff}}(\nu) = B_{\text{ext}} - B_{N,\text{ges}} + B_{N_i,0} \frac{1}{2} \left(1 + \operatorname{erf} \left(\frac{\nu - \nu_0}{\delta \sqrt{\ln(2)}} \right) \right) \Theta(\nu - \nu_0) \cdot e^{-\frac{(\nu - \nu_0)}{T_{1f}} \frac{t_{\text{mess}}}{\nu_{\text{mess}}}}. \quad (3.4)$$

Setzt man dieses frequenzabhängige effektive Magnetfeld in die Polarisationsabhängigkeit des emittierten Lichtes ein, welche durch die Hanle-Abhängigkeit in Gleichung 2.5 gegeben ist, so erhält man den Signalverlauf einer einzelnen Resonanz. Für mehrere Resonanzlinien muss man die Kernfelder überlagern und so die Frequenzabhängigkeit des effektiven Magnetfeldes bestimmen.

3.3.2 Spektren aller Isotope in GaAs

Hochauflösende cw-ODNMR Spektren konnten für alle drei Isotope, die sich in dem QW befinden, beobachtet werden (siehe Abb. 3.6 bis 3.8). Diese hochauflösenden Spektren zeigen, dass jedes Spektrum in drei Resonanzlinien aufgespalten ist. Diese Aufspaltung wird durch die Quadrupolwechselwirkung verursacht (für nähere Erläuterungen zur Aufspaltung der Resonanzlinien durch die Quadrupolwechselwirkung siehe Kapitel 4.).

Für jedes Spektrum wurde das Kernspinsystem für etwa 100 s mit einer Lichtleistung von 8 mW optisch gepumpt. Die Energie der Lichtquanten wurde dabei so eingestellt, dass sie resonant mit der Energie des $n = 1$ HH-Exziton im 19,7 nm breiten QW waren. Detektiert wurde ebenfalls resonant. Dabei wurde die Emissionswellenlänge des Lasers auf 812,12 nm und die Detektionswellenlänge des Gitter-Monochromators auf 812,6 nm eingestellt, während das Maximum der Exziton-Emissionslinie zwischen diesen beiden Wellenlängen lag. Für ^{75}As (siehe Abb. 3.6) und ^{69}Ga (siehe Abb. 3.7) ist die Anpassung der theoretischen Kurve an die gemessenen Daten recht gut. Für die gemessenen Daten von ^{71}Ga (siehe Abb. 3.8) war es nicht möglich, einen plausiblen Satz von theoretischen Werten zu finden, der ähnlich gut zu diesen passt. Einzig die Resonanzfrequenz und die Quadrupolaufspaltung sind eindeutig bestimmbar. Eine genaue Aussage über die Breite der Zentrallinie und der Satelliten kann für ^{71}Ga nicht getroffen werden, da die Linien ineinander übergehen. Die Linienformen können bei dieser Methode nicht eindeutig bestimmt werden und man muss immer die Plausibilität der bestimmten Anpassungsparameter beachten.

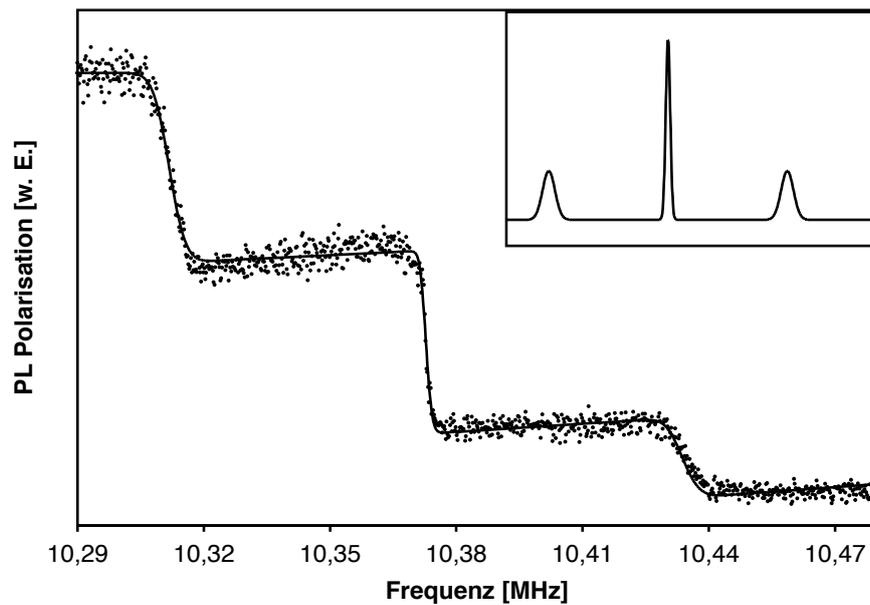


Abbildung 3.6: Für das ^{75}As cw-ODNMR Spektrum wurde zuvor ca. 100 s lang mit einer Lichtleistung von 8 mW optisch gepumpt. Die RF wurde über den Bereich von 10,28 bis 10,48 MHz in 10 s verfahren. B_{ext} betrug 1,42 T, ν_0 10,373 MHz, die Quadrupolaufspaltung zwischen Zentrallinie und Satelliten 61 kHz und die Linienbreiten 1,3 kHz für die Zentrallinie und 3,7 kHz für die Satelliten. In dem kleineren Graphen ist das NMR-Spektrum dargestellt, das der Signalform zugrunde liegt. Eine Faltung mit der Hanle-Abhängigkeit führt zu der Theoriekurve, die den Messdaten überlagert ist.

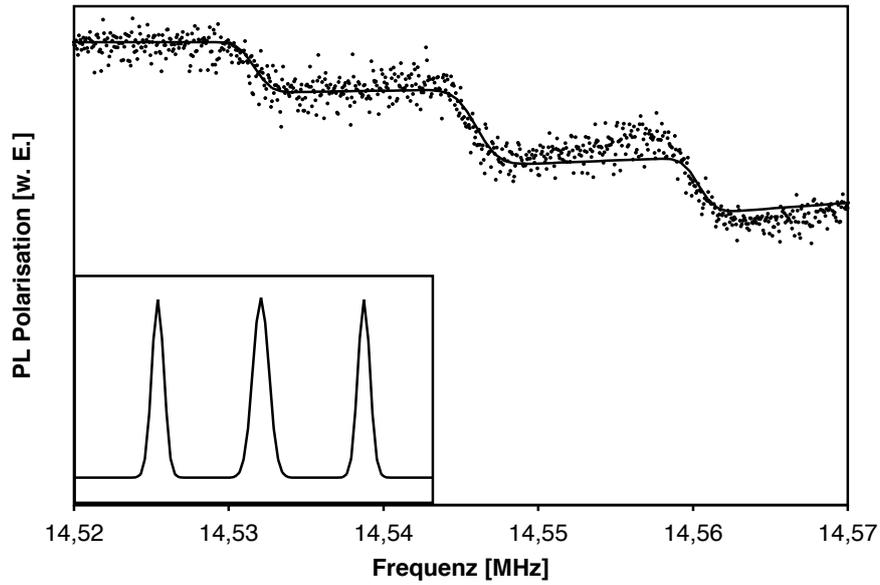


Abbildung 3.7: Für das ^{69}Ga cw-ODNMR Spektrum wurde zuvor ca. 100 s lang mit einer Lichtleistung von 8 mW optisch gepumpt. Die RF wurde über den Bereich von 14,51 bis 14,57 MHz in 10 s verfahren. B_{ext} betrug 1,42 T, ν_0 14,546 MHz, die Quadrupolaufspaltung 14 kHz und die Linienbreiten 1,3 kHz.

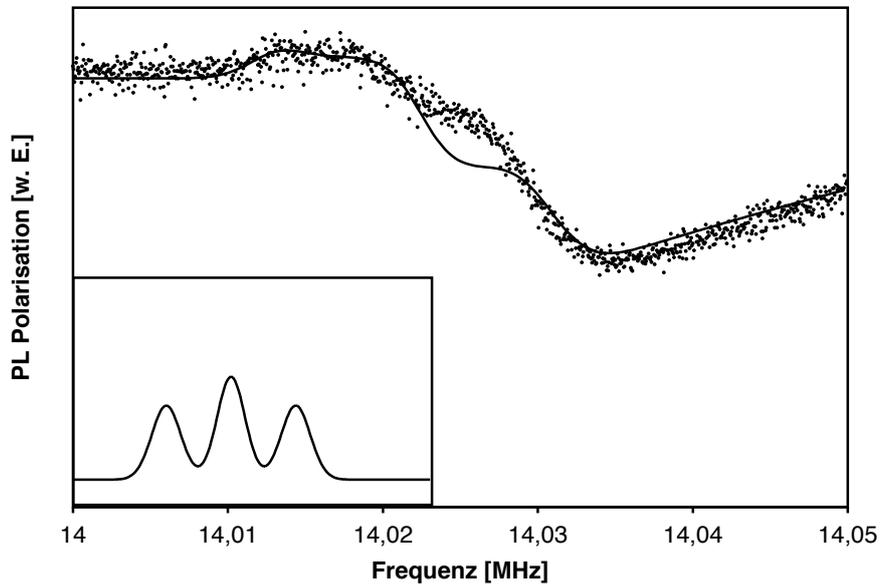


Abbildung 3.8: Für das ^{71}Ga cw-ODNMR Spektrum wurde zuvor ca. 100 s lang mit einer Lichtleistung von 8 mW optisch gepumpt. Die RF wurde über den Bereich von 14 bis 14,05 MHz in 10 s verfahren. B_{ext} betrug 1,08 T, ν_0 14,022 MHz, die Quadrupolaufspaltung 9 kHz und die Linienbreiten 2,3 kHz.

Kapitel 4

Elektrische Feldgradienten

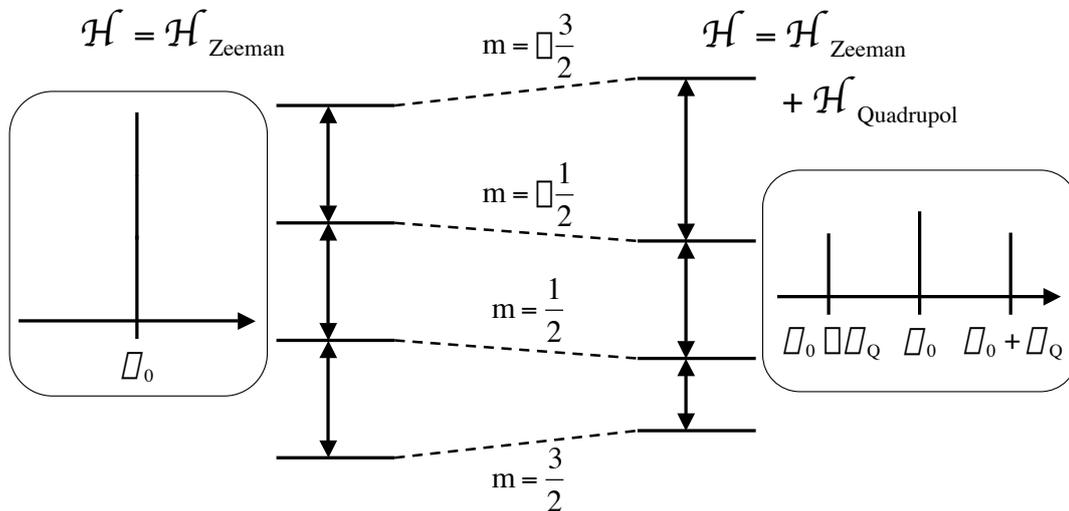


Abbildung 4.1: *Linienverschiebung für Spin 3/2 durch die Quadrupolwechselwirkung.*

Alle Isotope von Gallium und Arsen besitzen einen Gesamtdrehimpuls von $\frac{3}{2}$ und somit vier mögliche Energieniveaus, die durch die Zeeman Wechselwirkung äquidistant aufgespalten sind (siehe Abb. 4.1). Liegt ein elektrischer Feldgradient (EFG) $V_{\kappa\lambda}$ am Kernort vor, so werden diese Energieniveaus entsprechend dem Quadrupol-Hamilton-Operator verschoben [84]

$$\mathcal{H}_Q = \frac{eQ}{4I(2I-1)} [V_{z'z'} (3I_{z'}^2 - I^2) + (V_{x'x'} - V_{y'y'}) (I_{x'}^2 - I_{y'}^2)] . \quad (4.1)$$

Hierbei ist Q das Quadrupolmoment des Kerns. Die Komponenten des EFG Tensors $V_{\kappa\lambda}$ sind die zweimaligen partiellen Ableitungen des elektrischen Potentials

in κ und λ Richtung, mit anderen Worten also der Gradient in λ Richtung der Komponente des elektrischen Feldes, welche in der κ Richtung erzeugt wird. $I_{x'}$, $I_{y'}$ und $I_{z'}$ sind die Kernspin Komponenten in der jeweiligen Richtung im Koordinatensystem des externen magnetischen Feldes. Eine Quelle für den EFG ist der Abfall des Potentials der nächsten benachbarten Kerne. In einem perfekten kubischen Kristall, wie GaAs es ist, hebt sich der Einfluss aller benachbarten Kerne gegenseitig auf und es kann keine Quadrupolaufspaltung beobachtet werden. Jede Änderung der Symmetrie wird allerdings eine Quadrupolaufspaltung verursachen.

4.1 Mechanisch verursachte Quadrupolaufspaltung

Ändert man die Symmetrie des GaAs-Kristalls indem man eine mechanische Verspannung erzeugt, so sieht man eine Quadrupolaufspaltung der Resonanzen. Dies wurde bereits im GaAs Volumenmaterial [18] und in GaAs QW [81, 82, 40] gezeigt. Guerrier und Harley [40] haben dabei einen linearen Zusammenhang zwischen der mechanischen Verspannung und der daraus resultierenden Quadrupolaufspaltung in 5 und 10 nm dicken GaAs QW gemessen. Der Zusammenhang zwischen der in dem QW erzeugten mechanischen Spannung $\varepsilon_{\text{mech}}$ und der Linienaufspaltung ν_{split} zwischen der Zentrallinie und den Satellitenlinien ist linear mit einer Steigung von

$$\frac{\varepsilon_{\text{mech}}}{\nu_{\text{split}}} = 4.7 \times 10^{-6} \frac{1}{\text{kHz}}. \quad (4.2)$$

Da das Exziton eine nanoskopische Sonde für die Verspannungen in der Probe darstellt, ist die ODNMR in QW empfindlich auf lokale Verspannungen auf der Größenskala der Exziton-Wellenfunktion.

Äußere Ursachen für mechanische Verspannungen sind jede Art von Kräften, die auf die Probe einwirken. Hier wirken vornehmlich Kräfte auf die Probe, die durch die Fixierung der Probe auf den Kühlfinger des Kryostaten verursacht werden. Die Probe wurde auf den Kühlfinger bei Raumtemperatur aufgeklebt. Das dafür benutzte Leitsilber besitzt durch die Silberpartikel in der Klebemasse gute elektrische und thermische Leitfähigkeit. Da sich die thermischen Ausdehnungskoeffizienten von der Probe, dem Probenhalter und dem verwendeten Leitsilber unterscheiden, werden sich bei Abkühlung des Systems das Kupfer und die Probe somit unterschiedlich stark zusammenziehen. Folglich wirken Kräfte auf die Probe ein, die über das Leitsilber übertragen werden. Die beim Abkühlen entstehende laterale Kraftverteilung in der Probe wird kaum vorhersagbar sein. Diese laterale Veränderung der Quadrupolaufspaltung wurde auch schon mit Hilfe der ODNMR in QW gezeigt [60, 28].

Es gibt neben den äußeren Ursachen für mechanische Verspannungen in einer

Quantentopf-Probe auch noch innere Ursachen. Zu den inneren Ursachen zählen die Gitterfehlpassung von GaAs und AlGaAs. Wächst man zwei Materialien, deren Einheitszellen fast die gleiche Größe besitzen, perfekt aufeinander, so ist die Größe der Einheitszelle in der Wachstumsebene zuerst identisch mit der des Substrats. Diese neu gewachsene Schicht ist somit verspannt, da es die Veränderung der Einheitszelle in der Wachstumsebene durch eine Veränderung der Einheitszelle in der Wachstumsrichtung kompensieren wird. Diese Verspannung wird allerdings erst ab einer hinreichend großen Schichtdicke durch Gitterfehler abgebaut werden. Für epitaktisch auf GaAs gewachsenes $\text{GaAs}_{0,5}\text{P}_{0,5}$ beträgt diese kritische Dicke etwa 25 nm [63]. Da die Gitterfehlpassung für $\text{Al}_{0,35}\text{Ga}_{0,65}\text{As}$ mehr als 10-mal kleiner ist, sollte die kritische Dicke größer als 250 nm sein. Diese kritische Dicke ist also wesentlich größer als die Dicke der Barrieren. Die Verspannung wird innerhalb der Barrieren nicht durch Gitterfehler relaxieren. Somit werden die GaAs QW mit den Gitterparametern des Substrats gewachsen und die mittleren Bereiche der QW sind in erster Näherung nicht verspannt. Lenzmann [60] hat gezeigt, dass die Verspannungen nur etwa 2,5 nm an jeder Grenzfläche in den QW eindringen. Somit werden die Kerne in den Monolagen in der Nähe der Grenzflächen eine andere Quadrupolaufspaltung zeigen als die Kerne aus der Mitte des QW. Da der QW auf beiden Seiten von dem gleichen Barrierenmaterial umgeben ist, wird das Vorzeichen der Verspannung und somit das Vorzeichen der so erzeugten Quadrupolaufspaltung gleich bleiben. Dies hat zu Folge, dass die Satellitenlinien unsymmetrisch zu einer Seite hin verbreitert werden, während die Position des Maximums der Satellitenlinien durch den zentralen Bereich der QW bestimmt wird. Für nicht ideale Grenzflächen kann sich die Richtung der so erzeugten Verspannung ändern. Die Verbreiterungen der Satellitenlinien werden verschmiert und somit symmetrischer erscheinen.

Die Größe der Quadrupolaufspaltung hängt von der Orientierung der Probe bezüglich dem externem Feld ab. Wie in Kapitel 1 beschrieben sind die Schnittkanten der Probe entlang einer der vier [110]-Richtungen orientiert. Der Tensor muss folglich erst um die z -Achse der Probe um 45° und anschließend um den Winkel ϕ um die y -Achse gedreht werden.

Um die Transformation durchzuführen ist es sinnvoll, die Drehimpuls Operatoren und den EFG Tensor in der sphärischen Tensorbasis darzustellen [19, 65, 49]. Die Tensorbasis der Drehimpuls-Operatoren für die Quadrupolwechselwirkung wird somit durch folgende Tensoren 2ter Stufe dargestellt:

$$T_{20} = \frac{1}{\sqrt{6}} (3I_z^2 - I(I+1)) \quad (4.3)$$

$$T_{2\pm 1} = \mp \frac{1}{2} (I_{z'} I_{\pm} + I_{\pm} I_{z'}) \quad (4.4)$$

$$T_{2\pm 2} = \frac{1}{2} I_{\pm} I_{\pm} \quad (4.5)$$

Der Hamilton Operator in dieser Basis ist

$$\mathcal{H} = \sum_{k=0}^2 \sum_{q=-k}^{+k} (-1)^q A_{kq} T_{k-q}. \quad (4.6)$$

Dabei ist A_{kq} ein sphärischer Tensor k -ter Stufe. Die Quadrupolwechselwirkung wird durch einen Tensor 2ter Stufe dargestellt, somit kann der Hamilton Operator geschrieben werden als

$$\mathcal{H}_Q = \frac{eQ}{2I(2I-1)\hbar} \sum_{q=-2}^{+2} (-1)^q V_{2q} T_{2-q}. \quad (4.7)$$

Die entscheidenden Komponenten des EFG-Tensors unter Berücksichtigung der Laplace-Gleichung sind

$$V_{20} = \frac{1}{\sqrt{6}} [3V_{zz} - (V_{xx} + V_{yy} + V_{zz})] = \sqrt{\frac{3}{2}} V_{zz}, \quad (4.8)$$

$$V_{2\pm 1} = \mp \frac{1}{2} [V_{xz} + V_{zx} \pm \imath (V_{yz} + V_{zy})] \quad \text{und} \quad (4.9)$$

$$V_{2\pm 2} = \frac{1}{2} [V_{xx} - V_{yy} \pm \imath (V_{xy} + V_{yx})]. \quad (4.10)$$

Die Lage der Hauptachsen des EFG-Tensors in der Probe ist im Allgemeinen willkürlich. Hier wird nur der Spezialfall behandelt, dass der größte EFG parallel zu der Wachstumsrichtung der Probe liegt. Dies ist z.B. der Fall für mechanische Spannungen, die durch eine Biegung der Probe verursacht werden. Für diesen Spezialfall, dass die Hauptachsen des EFG-Tensors mit dem Koordinatensystem der Probe übereinstimmen, muss der EFG-Tensor analog zu der Drehung des Kristalls rotiert werden. Dies Drehung wird durch die Transformation

$$A'_{2q} = \sum_{p=-2}^{+2} A_{2p} D_{pq}^{(2)}(\alpha\beta\gamma) \quad (4.11)$$

mit der Wigner Rotationsmatrix $D_{pq}^{(2)}(\alpha\beta\gamma)$ durchgeführt. Dabei sind α , β und γ die Euler-Winkel [27, 93, 10].

Es gilt folglich

$$V'_{20} = \sqrt{\frac{3}{2}} \left[(V_{xy}) \sin^2 \phi + \frac{V_{xz} + V_{yz}}{\sqrt{2}} \sin 2\phi + \frac{V_{zz}}{2} (3 \cos^2 \phi - 1) \right]. \quad (4.12)$$

Bei solch einer Verspannung, die nur in z -Richtung des Kristalls anliegt, gilt in erster Ordnung Störungsrechnung für die Frequenzen der einzelnen Übergänge zwischen m und $m-1$

$$\Delta\nu_m = \frac{3eQV_{zz}(2m-1)}{4I(2I-1)\hbar} \left(\frac{3 \cos^2 \phi - 1}{2} \right). \quad (4.13)$$

4.2 Elektrisch verursachte Quadrupolaufspaltung

Eine Verschiebung der Atome durch Verspannungen oder piezoelektrische Kräfte in dem Kristall wird einen verspannungsverursachten EFG am Ort der Kerne erzeugen, so wie es in dem vorherigen Abschnitt gezeigt wurde. In kubischem ZnS Kristallen, wie sie typisch für alle III-V Verbindungen und somit auch für GaAs sind, kommt ein zusätzlicher Effekt zum Tragen, der etwa 100-mal stärker als der piezoelektrische Beitrag ist [39]. Ein elektrisches Feld, das an eine solche Art von Kristall angelegt wird, erzeugt einen EFG am Kernort, der proportional zu dem angelegten elektrischen Feld ist [58, 3, 13, 14]. Dieser EFG wird durch eine Störung der Elektronen Orbitale durch das angelegte elektrische Feld erzeugt.

Der EFG als Potenzreihe von dem angelegten elektrischen Feld lautet [14]

$$V_{ij} = (V_{ij})_{E=0} + C_{ij,k} E_k + \dots \quad \text{mit} \quad C_{ij,k} = \left(\frac{\partial V_{ij}}{\partial E_k} \right)_{E=0}. \quad (4.14)$$

Der Tensor $C_{ij,k}$ transformiert dabei genauso wie das Kristallgitter. Für einen kubischen Zinkblende Kristall verschwinden somit alle Komponenten des Tensors, bis auf diejenigen, bei denen i , j und k alle unterschiedlich sind. Alle diese Komponenten sind identisch. Zieht man die Indizes j und k zusammen und schreibt sie in der Voigt Notation [89] (11=1; 22=2; 33=3; 23=4; 13=5; 12=6), so sind dies C_{14} , C_{25} und C_{36} , die als gemeinsames Symbol mit C_{14} bezeichnet werden. Der vollständige $C_{ij,k}$ -Tensor ist somit

$$C_{ij,k} = \begin{matrix} & E_x & E_y & E_z \\ \begin{matrix} xx \\ yy \\ zz \\ xy \\ xz \\ yz \end{matrix} & \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \end{pmatrix} & C_{14}. \end{matrix} \quad (4.15)$$

Da das Koordinatensystem dieses Tensors fest an das Kristallgitter gebunden ist, muss dieser Tensor entsprechend gedreht werden, um den Beitrag zum EFG Tensor zu bestimmen. Für die sphärischen Komponenten des durch das elektrische Feld erzeugten EFG gilt nach den erforderlichen Drehungen [49]

$$V'_{20} = \sqrt{\frac{3}{2}} C_{14} \left[\frac{\sin(2\phi)}{\sqrt{2}} (E_x + E_y) + E_z \sin^2 \phi \right] \quad (4.16)$$

$$V'_{2\pm 1} = \mp C_{14} \left[\frac{\cos(2\phi)}{\sqrt{2}} (E_x + E_y) \pm \frac{i \cos \phi}{\sqrt{2}} (E_x - E_y) + E_z \frac{\sin^2 \phi}{2} \right] \quad (4.17)$$

$$V'_{2\pm 2} = \frac{1}{2} C_{14} \left[-\frac{\sin(2\phi)}{\sqrt{2}} (E_x + E_y) \mp \frac{2i \sin \phi}{\sqrt{2}} (E_x - E_y) + E_z (\cos^2 \phi + 1) \right] \quad (4.18)$$

	Q [10^{-29} m^2]	C_{14} [10^{12} m^{-1}]
^{75}As	3 ^a	1,55 ^a
	2,9 ^b	2,93 ^b
	2,9 ^c	3,16 ^c
^{69}Ga	2,318 ^a	1,05 ^a
	1,9 ^b	2,85 ^b
	1,9 ^c	2,72 ^c
^{71}Ga	1,416 ^a	0,9 ^a
	1,2 ^b	2,81 ^b
	1,2 ^c	2,60 ^c

^a Werte von Gill *et al.* (Ref. [39])

^b Werte von Dumas *et al.* Kristall I (Ref. [22])

^c Werte von Dumas *et al.* Kristall II

Tabelle 4.1: Liste der Quadrupolaufspaltungen und der verschiedenen C_{14} . Da die Bestimmung von C_{14} von dem benutzten Q abhängt, sind hier für die verschiedenen Literaturwerte von C_{14} die dazugehörigen Q mit aufgelistet.

Der Teil des Quadrupol-Hamilton Operators, der zu einer Verschiebung der Energieniveaus und somit zu einer Aufspaltung der Resonanzlinien führt ist

$$\tilde{\mathcal{H}}_Q = \frac{eQ}{2I(2I-1)\hbar} V'_{20} T_{20}. \quad (4.19)$$

Die anderen beiden werden in späteren Kapiteln noch benötigt. Wenn angenommen wird, dass aufgrund der Leitfähigkeit der Probe alle Felder in der Wachstumsebene ausgeglichen werden und somit verschwinden, können E_x und E_y vernachlässigt werden. Somit würde sich der Hamiltonoperator vereinfachen zu

$$\tilde{\mathcal{H}}_Q = \frac{eQC_{14}E_z \sin^2 \phi}{4I(2I-1)\hbar} (3I_z^2 - I(I+1)). \quad (4.20)$$

Die Frequenzverschiebung zwischen der Resonanzlinie mit der Quantenzahl m und $m-1$ beträgt dann in erster Ordnung Störungsrechnung

$$\nu_Q = \frac{3eQC_{14}E_z(2m-1) \sin^2 \phi}{4I(2I-1)h}. \quad (4.21)$$

Die Winkelabhängigkeit der elektrisch verursachten Quadrupolaufspaltung und der mechanisch verursachten Quadrupolaufspaltung ist nur unterscheidbar, wenn die Außerdiagonalelemente des mechanisch erzeugten EFG Tensors alle verschwinden und die Annahme zutrifft, dass die Spannungen nur entlang der Wachstumsrichtung auftreten. Da die C_{14} für Gallium und Arsen unterschiedlich sind und die Q für alle drei Isotope verschieden sind (siehe Tabelle 4.1),

kann man sich ein Experiment vorstellen, in dem der Winkel der Probe zum externen Feld verändert wird und für jede Winkeleinstellung die Quadrupolaufspaltungen aller drei Isotope bestimmt werden. Dieses Experiment würde dann eindeutig die Winkelabhängigkeit der elektrisch und mechanisch verursachten Quadrupolaufspaltung liefern und verlässliche Aussagen zulassen, welche dieser beiden Aufspaltungen hier vorliegen. Leider ist der Einstellbereich des Winkels zwischen Wachstumsrichtung und externem Magnetfeld in dem hier verwendeten Aufbau zu gering. Zudem müsste gewährleistet werden, dass die laterale Position des Pumpstrahls während solch einer Messreihe konstant bliebe. Auch dies ist mit diesem Aufbau nicht zu bewerkstelligen. Man würde dafür einen Magneten benötigen, dessen Feld rotiert werden kann, oder einen Aufbau, bei dem der Kryostat fest mit dem Pumpstrahl gekoppelt ist.

4.3 Einfluss der Kontaktschicht auf die Aufspaltung

Die Existenz eines elektrischen Einflusses auf die Quadrupolaufspaltung zeigt die folgende Messreihe, bei der der Einfluss einer Schottky-Barriere auf die QW ausgenutzt wurde. Hierbei wurde die Quadrupolaufspaltung bei einer Reihe von QW in zwei unterschiedlichen Proben gemessen. Beide Proben sind von demselben Wafer, allerdings ist eine der Proben mit einer ITO Schicht bedeckt. Die ITO Schicht besitzt metallische Eigenschaften und bildet zusammen mit der GaAs-Probe einen Metall-Halbleiter Übergang. Durch die unterschiedlichen Fermi-Niveaus entsteht eine Potentialdifferenz. Diese Potentialdifferenz V_b^{ITO} ist für einen Kontakt zwischen GaAs oder AlGaAs und einem Metall etwa 1 V groß [4, 78]. Die dadurch verursachte Ansammlung an Ladungsträgern an dieser Kontaktstelle erzeugt eine Potentialbarriere in dem Halbleitermaterial, die quadratisch mit der Entfernung z von der Kontaktstelle abfällt.

$$V^{ITO}(z) = V_b^{ITO} \left(\frac{z-d}{d} \right)^2 \quad (\text{für } z < d) \quad (4.22)$$

Hierbei ist d die Breite der Schottky Barriere. Das elektrische Feld fällt somit linear mit z ab.

$$E^{ITO}(z) = -\text{grad}V^{ITO}(z) = 2V_b^{ITO} \frac{d-z}{d^2} \quad (4.23)$$

Die Quadrupolaufspaltung wird folglich ebenfalls linear mit dem Abstand zur Grenzfläche ansteigen. Ob ein mechanischer Hintergrund dabei vorhanden ist spielt keine Rolle, solange dieser für alle QW konstant bleibt. Um dies zu gewährleisten wurden die Aufspaltungen für die Reihe der QW an derselben Position der Probe bestimmt. In Abbildung 4.2 sind die Quadrupolaufspaltungen eingezeichnet, die an der Probe mit (\diamond) und ohne (\circ) einer ITO-Beschichtung gemessen

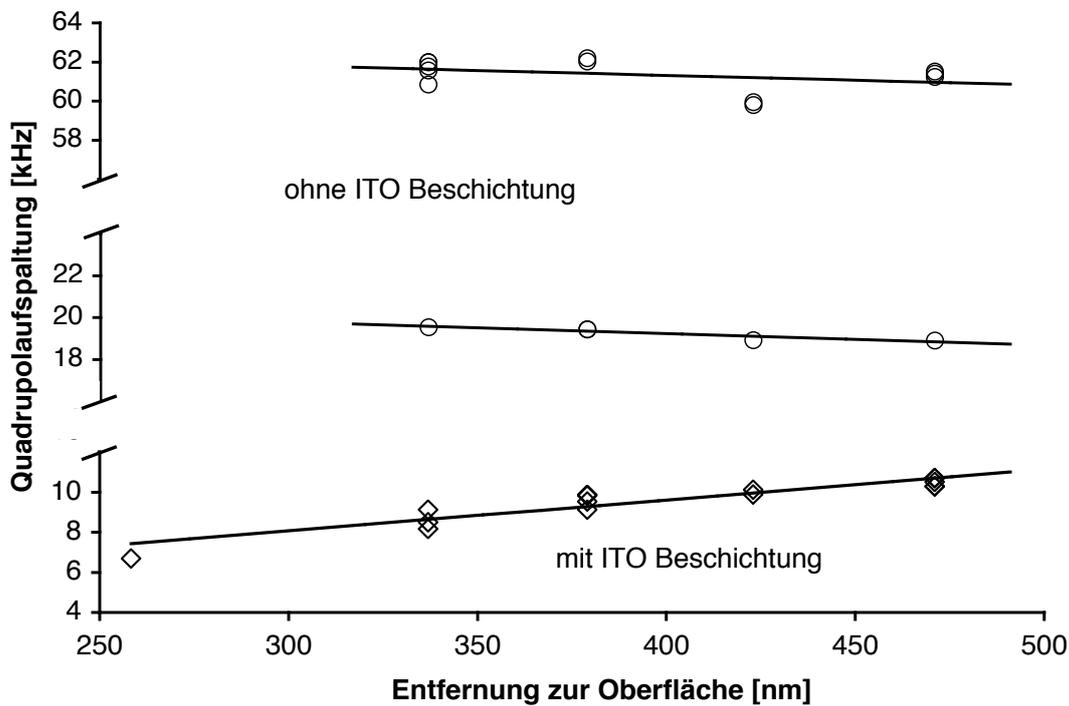


Abbildung 4.2: Quadrupolaufspaltung von ^{75}As als Funktion des Abstandes zur Oberfläche. Die oberen beiden Messreihen sind auf einem Stück Probe ohne ITO Beschichtung und die untere Messreihe ist auf einem Stück Probe mit ITO Beschichtung aufgenommen worden. Alle drei Messreihen sind an unterschiedlichen Positionen der Probe aufgenommen worden.

wurden. Bei der Messreihe ohne ITO-Beschichtung ist keine deutliche Abhängigkeit der Quadrupolaufspaltung von der Entfernung zu der Grenzfläche zu erkennen. Hingegen ist bei der Messreihe mit ITO-Beschichtung eine deutliche lineare Veränderung der Quadrupolaufspaltung zu erkennen. Die Quadrupolaufspaltungen des schmalsten und des breitesten QW, die 210 nm voneinander entfernt sind, unterscheiden sich um 3,2 kHz. Diese Veränderung entspricht einer Änderung des elektrischen Felds von 340 kV/m über die gleiche Distanz.¹ Unter der Annahme, dass die Kontaktspannung 1 V beträgt, ergibt sich eine Breite der Schottky Barriere gemäß Gleichung 4.23 von etwa 1,1 μm . Für die Breite der Schottky Barriere

¹Dieser Wert ist etwas unterschiedlich zu dem in Ref. [28] veröffentlichtem Wert, da dort die Rotation gemäß Ref. [14] durchgeführt wurde. Bei dieser Rotation wurde aber nicht berücksichtigt, dass nur ein Feld in Wachstumsrichtung erzeugt wurde.

gilt [52]

$$d = \sqrt{\frac{2\varepsilon\varepsilon_0 |V_b^{ITO}|}{ne}}. \quad (4.24)$$

Für diese Breite erhält man ebenfalls $1,1 \mu\text{m}$, wenn man die Dielektrizitätskonstante von GaAs, $\varepsilon = 12,53$ und eine Ladungsträgerdichte von $n = 1,1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ annimmt. Allerdings kann man für die Probe ohne ITO Beschichtung nicht vollständig ausschließen, dass dort keine Einfluss durch die elektrischen Felder besteht, da elektrische Felder auch zum Beispiel durch Oberflächenzustände verursacht werden können. Jedenfalls muss der Einfluss gering sein und die ITO Beschichtung erzeugt eine deutliche Veränderung der elektrischen Felder in der Probe.

Kapitel 5

Vollständig optische NMR

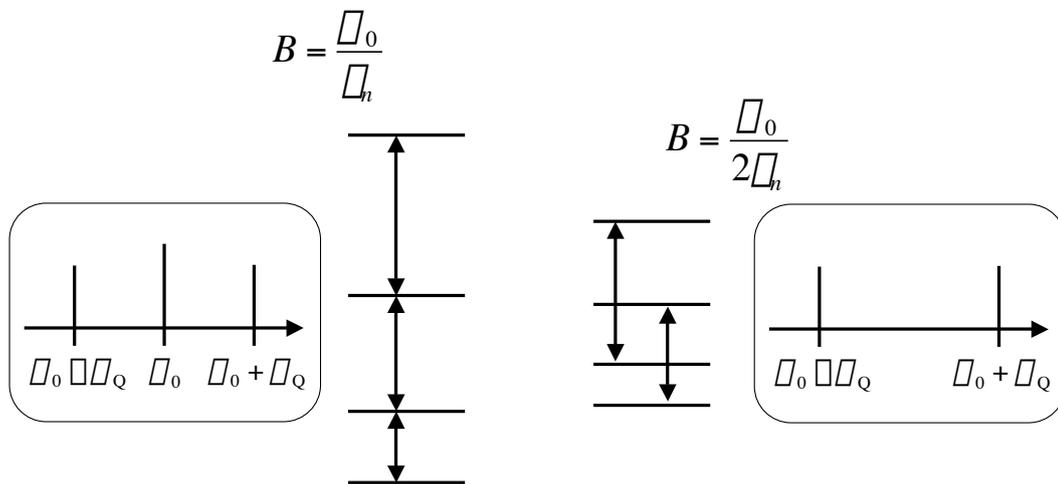


Abbildung 5.1: Bei der Größe des magnetischen Feldes in dem linken Teil der Abbildung werden bei der eingestrahnten RF $\Delta m_I = \pm 1$ Übergänge angeregt. Es entsteht ein Triplet. $\Delta m_I = \pm 2$ Übergänge wären nur bei der gleichzeitigen Absorption von zwei RF-Quanten möglich. Halbiert man, wie im rechten Teil der Abbildung dargestellt, die Größe des magnetischen Feldes, so sind bei gleicher RF nur noch $\Delta m_I = \pm 2$ Übergänge möglich. Es entsteht ein Duplet.

In diesem Kapitel sollen die Kopplungsmechanismen zwischen Kern und Elektron bei einer optischen Anregung der NMR Übergänge untersucht werden. Es wurde bereits 1980 von Kalevich *et al.* die Möglichkeit gezeigt, durch eine Modulation der Polarisation des Pumplichtes ^{31}P Kerne in einem $\text{Ga}_{0,5}\text{In}_{0,5}\text{P}$ Kristall optisch resonant zu kühlen [45]. Ein Jahr später hat er dies dann auch für die Isotope in GaAs durchgeführt [46]. Kurz darauf hat er dann die optische Anregung von NMR und gleichzeitige optische Detektion in GaAs Volumenmaterial

gezeigt [44]. Im Jahr 2000 sind Kikkawa und Awschalom bei zeitaufgelösten Faraday Rotationsexperimenten erneut auf die vollständig optische NMR in GaAs QW gestoßen [51]. Dabei wurde mit Femtosekunden Pulsen die Probe optisch angeregt und dieses mit einer Zeitverzögerung wiederholt. Dieses entspricht dem Prinzip modulierter optischer Anregung, mit der eine präzedierende Magnetisierung erzeugt werden kann [7, 38, 41, 53]. Zu den bis dahin bekannten Resonanzen traten nun aber auch Resonanzen bei der Hälfte des nötigen Feldes auf, was auf Übergänge mit $\Delta m_I = \pm 2$ hindeutet [79] (siehe Abb. 5.1). Diese zeitaufgelösten Faraday Rotationsexperimente liefern aber keine Ergebnisse zur optisch angeregten NMR in (001) orientierten QW, so wie sie hier vorliegen, sondern nur in (110) orientierten QW [80]

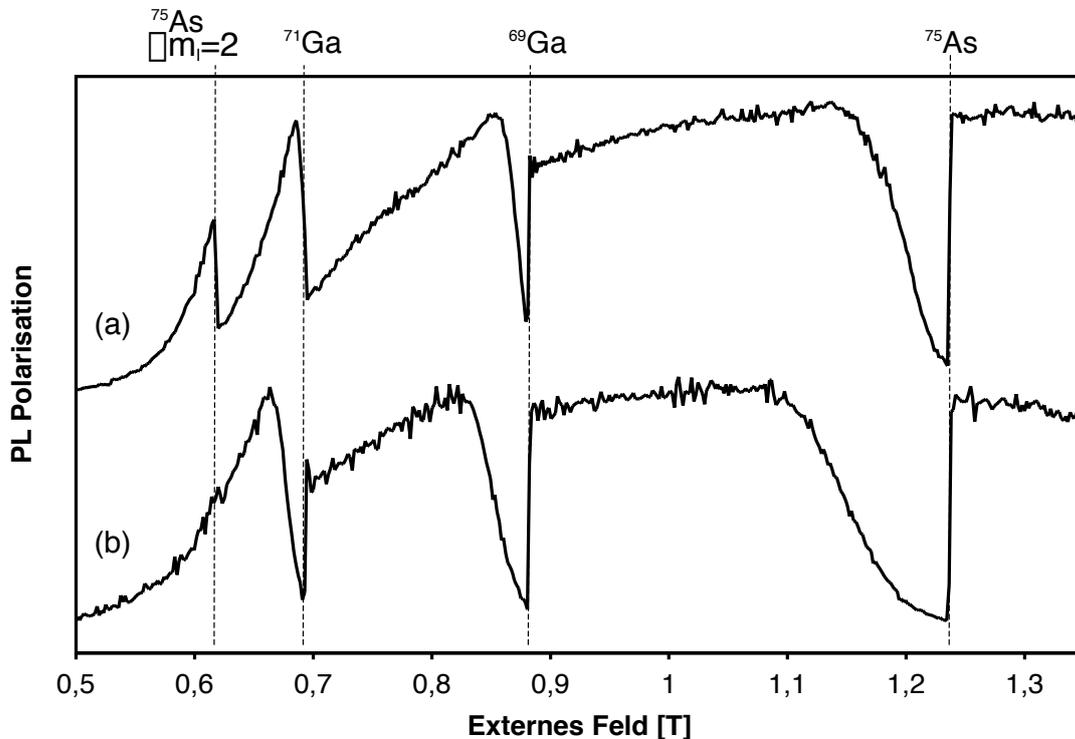


Abbildung 5.2: Vollständig optische NMR Spektren bei konstanter Frequenz von 9 MHz. In (a) wird die Intensität und in (b) wird die Polarisation des Pumpers moduliert. Beide Modulationen werden mit einer Modulationstiefe von 0,5 durchgeführt. Die mittlere Intensität und Polarisation ist in beiden Messungen identisch. Das externe Feld wurde während den Messungen von hohen zu niedrigen Feldern verändert.

Die Anregung von den verschiedenen Resonanzen ist in Experimenten sehr schön zu sehen, bei denen das externe Feld kontinuierlich verändert wird, während

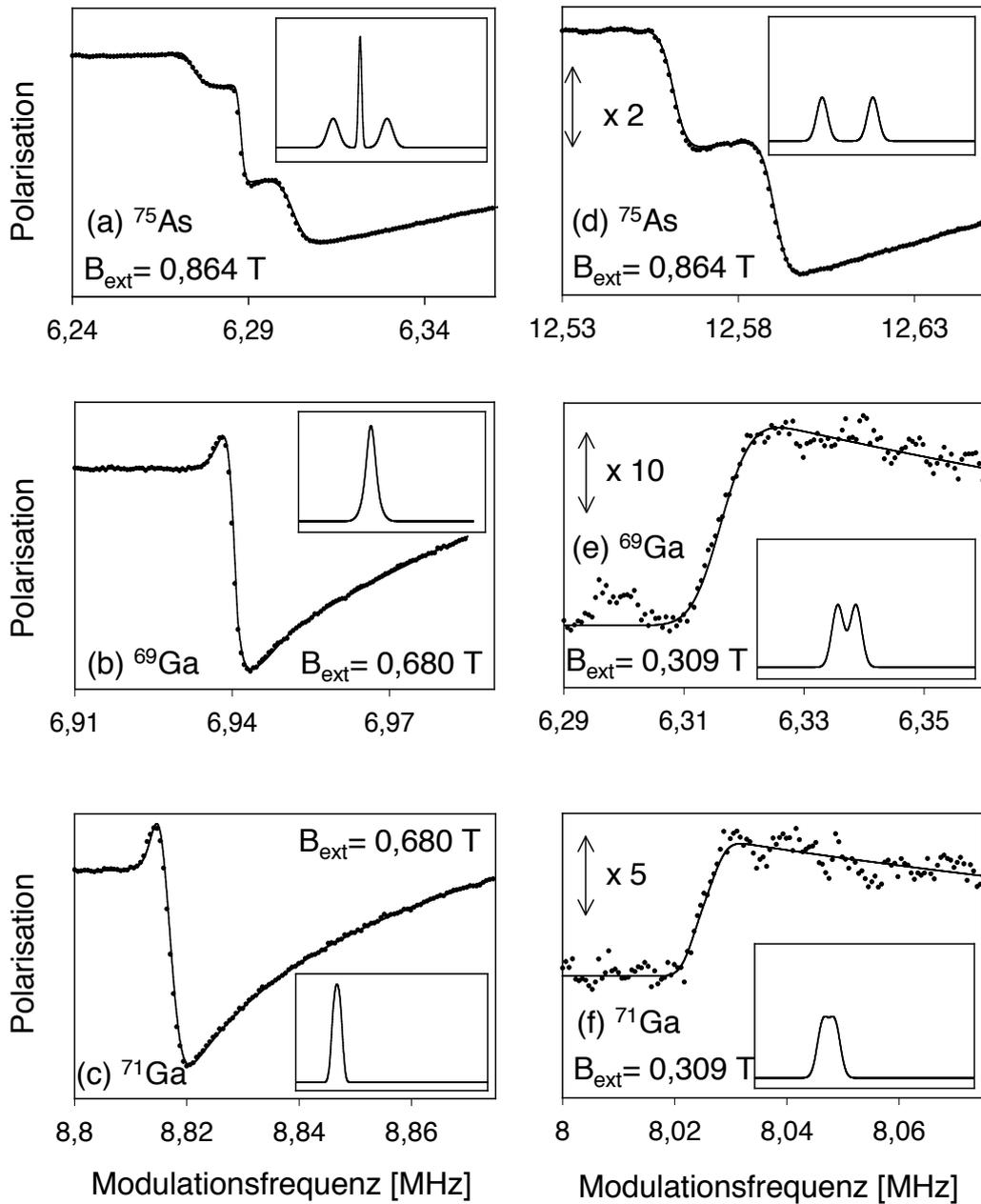


Abbildung 5.3: Hochauflösende NMR Spektren von verschiedenen Isotopen. Gemessen wurden diese mit Intensitätsmodulation bei konstantem Magnetfeld. (a)-(c) sind $\Delta m_I = \pm 1$ und (d)-(f) sind $\Delta m_I = \pm 2$ Übergänge. Die Punkte stellen die experimentellen Daten und die Linien den angepassten theoretischen Verlauf dar. In den kleinen eingefügten Grafen sind die berechneten NMR Spektren dargestellt, die man bei einem konventionellen NMR-Spektrometer ohne die Hanle Abhängigkeit erhalten würde.

die eingestrahlte RF konstant bleibt. In den Messungen in Abbildung 5.2 ist für die Messung (a) die Intensität und für die Messung (b) die Polarisation des Pumplichtes jeweils mit einer Modulationstiefe von 0,5 und einer Frequenz von 9 MHz moduliert worden. Die mittlere Intensität und Polarisation ist bei beiden Messungen identisch. Zur Modulation wurde der EOM benutzt, der die Richtung der Polarisation des linear polarisierten Laserlichts proportional zu der angelegten Spannung verkippt. Platziert man einen Linearpolarisator hinter den EOM, so erzeugt dies eine Intensitätsmodulation. Ohne Linearpolarisator erzeugt die Verkippung der Polarisationsrichtung eine Polarisationsmodulation, da das nachfolgende Verzögerungsplättchen so unterschiedliche Grade von zirkularpolarisiertem Licht erzeugt. Die Anregung und die Detektion waren resonant mit dem $n = 1$ hh-Übergang des 19,7 nm breiten QW. Man erkennt deutlich eine zusätzliche Resonanz in der Messung (a) bei dem halben magnetischen Feld der ^{75}As Resonanz. Die Intensitätsmodulation des Lichtes bewirkt eine Modulation der Ladungsträgerdichte. Dies moduliert das elektrische und magnetische Feld, das die Kerne von den Elektronen spüren. Hingegen bewirkt eine Polarisationsmodulation nur eine Modulation des magnetischen Feldes, das die Kerne von den Elektronen spüren, da die Ladungsträgerdichte konstant bleibt.

Misst man bei den Frequenzen der einzelnen Isotope gemäß

$$\omega_{mod} = \gamma_n B_0 |\Delta m_I| \quad (5.1)$$

hochauflösende NMR Spektren, so wie es in Kapitel 3 gezeigt wurde, so erkennt man deutlich Triplets bei der einfachen Larmorfrequenz und Duplets bei der doppelten Larmorfrequenz (siehe Abb. 5.3). Dies bestätigt die $\Delta m_I = \pm 2$ Übergänge als Ursache für die zusätzlichen Resonanzen. Um die genaue Natur dieser Übergänge zu ergründen ist es notwendig, das Absorptionsverhalten der RF an den einzelnen Resonanzstellen genauer zu betrachten.

5.1 Berechnung der RF-Absorptionsraten

Die Übergangswahrscheinlichkeit für einen Übergang von dem Zustand $|a\rangle$ in den Zustand $|b\rangle$ ist gegeben durch Fermi's goldene Regel

$$W_{ab} = \frac{2\pi}{\hbar^2} |\langle b | \mathcal{H}_{int} | a \rangle|^2 f(\omega), \quad (5.2)$$

mit dem Wechselwirkungshamiltonoperator \mathcal{H}_{int} und der spektralen Dichtefunktion $f(\omega)$. Für eine magnetische Dipol Wechselwirkung im rotierenden Koordinatensystem ist

$$\mathcal{H}_{int} = \mathcal{H}_{rf} = \frac{1}{2} \gamma_n \hbar B_1 I_{\pm}. \quad (5.3)$$

Hierbei ist B_1 die Stärke des RF-Feldes. Für ein quadrupolar aufgespaltenes Spin 3/2 System erwartet man, dass die Kernspinpolarisation gemäß

$$\langle I_z \rangle (t) = \langle I_{zA} \rangle e^{-2W_A t} + \langle I_{zB} \rangle e^{-2W_B t} + \langle I_{zC} \rangle e^{-2W_C t} \quad (5.4)$$

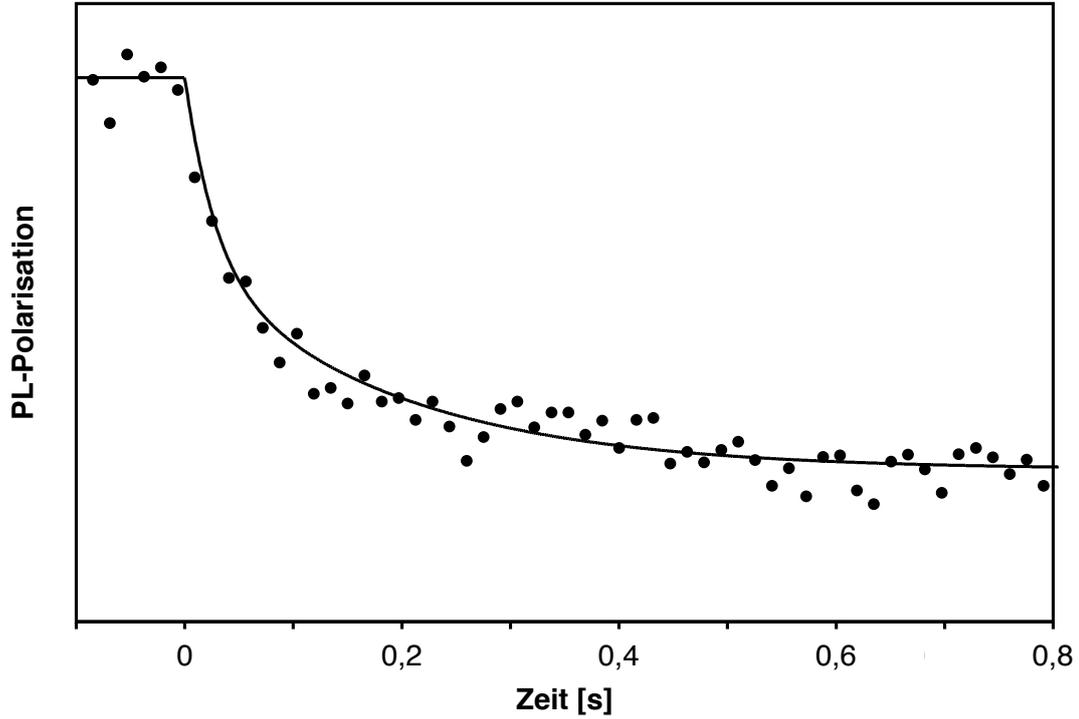


Abbildung 5.4: Zeitabhängigkeit der PL Polarisation bei der Absorption von RF-Quanten. Die Lichtintensität wurde hierbei mit der Larmorfrequenz von ^{75}As moduliert mit einer Modulationsamplitude von 200 W cm^{-2} .

zerfällt. Ein typischer zeitlicher Verlauf einer solchen RF-Absorption ist in Abbildung 5.4 dargestellt. Die Übergangswahrscheinlichkeiten ergeben sich dafür aus Gleichung 5.2 und 5.3 zu

$$W_A = \frac{3}{2}\pi\gamma_n^2 B_1^2 f(\omega - \omega_Q), \quad (5.5)$$

$$W_B = 2\pi\gamma_n^2 B_1^2 f(\omega) \quad (5.6)$$

und

$$W_C = \frac{3}{2}\pi\gamma_n^2 B_1^2 f(\omega + \omega_Q). \quad (5.7)$$

Die Indizes (A, B und C) beziehen sich dabei auf die drei Übergänge ($+\frac{3}{2} \leftrightarrow +\frac{1}{2}$, $+\frac{1}{2} \leftrightarrow -\frac{1}{2}$ und $-\frac{1}{2} \leftrightarrow -\frac{3}{2}$).

Für die elektrische Quadrupolwechselwirkung ergeben sich unterschiedliche Hamilton Operatoren für die Wechselwirkung. Für den Anteil, der in dem rotierenden Koordinatensystem mit der einfachen Larmorfrequenz stationär ist, ist

dies gemäß den Gleichungen 4.4, 4.7 und 4.17 aus Kapitel 4

$$\mathcal{H}_{Q,\pm 1} = \frac{eQC_{14}}{4I(2I-1)\hbar} \left[\frac{\cos(2\phi)}{\sqrt{2}} (E_x + E_y) \pm \frac{i \cos \phi}{\sqrt{2}} (E_x - E_y) + E_z \frac{\sin^2 \phi}{2} \right] \times (I_z' I_{\mp} + I_{\mp} I_z') . \quad (5.8)$$

Da das Feld durch die in erster Näherung kugelförmige Ladungsverteilung des Exzitons erzeugt wird, können alle Feldkomponenten als gleich groß angenommen werden. Für einen Winkel von typischerweise 70° ergibt sich somit für die drei möglichen Übergangswahrscheinlichkeiten

$$W_{A,el} = \frac{0,41}{4} \frac{\pi e^2 Q^2 C_{14}^2 E_z^2}{24\hbar^2} f(\omega - \omega_Q) , \quad (5.9)$$

$$W_{B,el} = \frac{0,41}{3} \frac{\pi e^2 Q^2 C_{14}^2 E_z^2}{24\hbar^2} f(\omega) \quad (5.10)$$

und

$$W_{C,el} = \frac{0,41}{4} \frac{\pi e^2 Q^2 C_{14}^2 E_z^2}{24\hbar^2} f(\omega + \omega_Q) . \quad (5.11)$$

Der Hamiltonoperator für den Anteil, der in einem Koordinatensystem stationär ist, das mit der doppelten Larmorfrequenz rotiert, lautet gemäß den Gleichungen 4.5, 4.7 und 4.18

$$\mathcal{H}_{Q,\pm 2} = \frac{eQC_{14}}{8I(2I-1)\hbar} \times \left[-\frac{\sin(2\phi)}{\sqrt{2}} (E_x + E_y) \mp \frac{2i \sin \phi}{\sqrt{2}} (E_x - E_y) + E_z (\cos^2 \phi + 1) \right] I_{\mp}^2 \quad (5.12)$$

Für einen Winkel von 70° ergeben sich somit folgende Übergangswahrscheinlichkeiten für die Übergänge $+\frac{3}{2} \leftrightarrow -\frac{1}{2}$ (D) und $+\frac{1}{2} \leftrightarrow -\frac{3}{2}$ (E)

$$W_{D,el} = 0,04 \frac{\pi e^2 Q^2 C_{14}^2 E_z^2}{24\hbar^2} f(\omega - \omega_Q) \quad (5.13)$$

und

$$W_{E,el} = 0,04 \frac{\pi e^2 Q^2 C_{14}^2 E_z^2}{24\hbar^2} f(\omega + \omega_Q) . \quad (5.14)$$

Die Übergangswahrscheinlichkeit für einen $\Delta m_I = \pm 2$ Übergang durch die elektrische Quadrupolwechselwirkung ist also bei 70° nur etwa 3-mal kleiner als die Übergangswahrscheinlichkeit des $\Delta m_I = \pm 1$ Übergangs.

5.2 Untersuchung der $\Delta m_I = \pm 1$ und $\Delta m_I = \pm 2$ Resonanzen

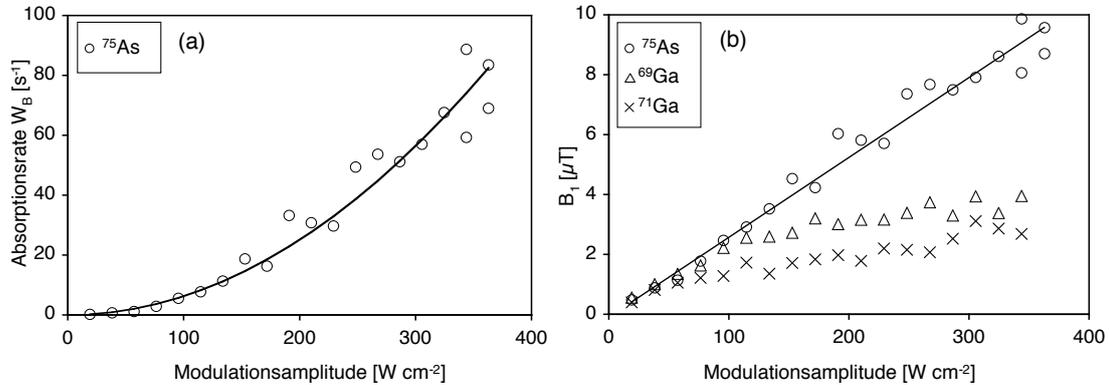


Abbildung 5.5: (a) Abhängigkeit der ^{75}As $\Delta m_I = \pm 1$ Absorptionsrate von der Modulationsamplitude bei Intensitätsmodulation. (b) Die effektiven RF-Feldstärken für alle drei Isotope, die sich aus den Absorptionsraten ergeben.

Eine Veränderung des Modulationsgrades bei konstanter mittlerer Intensität verändert ebenso die Modulation der erzeugten Ladungsträgerdichte und damit die elektrischen und magnetischen Felder, die von den Ladungsträgern am Kernort erzeugt werden. Einflüsse durch die Veränderung der Ladungsträger-Rekombinationszeit und eine dadurch modifizierte Ladungsträgerdichte, wie sie in Kapitel 2 beschrieben wurde, können vernachlässigt werden, da die mittlere Intensität konstant bleibt und damit zumindest bei kleinen Modulationsamplituden die Modulation der Ladungsträgerdichte proportional zu der Modulation des Lichtes sein sollte.

	γ_n [$10^6\ s^{-1}\ T^{-1}$]	δ_B^b [kHz]	W_B^a [s^{-1}]	B_1^a [μT]
^{75}As	45.78 ± 0.03	1.0	6.3 ± 0.4	2.5 ± 0.1
^{69}Ga	64.21 ± 0.04	1.0	7 ± 1	1.9 ± 0.3
^{71}Ga	81.53 ± 0.06	1.5	13 ± 1	2.5 ± 0.1

^a mittlerer Wert bei $100\ W\ cm^{-2}$

^b halbe Breite bei halber Höhe (HWHM) der zentralen Resonanzlinie

Tabelle 5.1: Experimentelle Ergebnisse zu den RF-Absorptionen mit $\Delta m_I = \pm 1$

Bei den Messreihen in den Abbildungen 5.5 und 5.6 wurde die Intensität des Pumpstrahls moduliert. Die mittlere Intensität betrug dabei etwa 400 W cm^{-2} . Die Messreihen in Abbildung 5.5 wurden jeweils bei den $\Delta m_I = \pm 1$ Resonanzfrequenzen der einzelnen Isotope durchgeführt. In Abbildung 5.5(a) wird die quadratische Abhängigkeit der Absorptionsrate des ^{75}As Übergangs mit dem Index B von der Modulationsamplitude gezeigt. In Abbildung 5.5(b) sind die daraus berechneten Feldstärken des B_1 Feldes gegen die Modulationsamplitude dargestellt. Für ^{75}As sieht man den erwarteten linearen Zusammenhang. Für die beiden Gallium Isotope ist ein anfänglich identischer linearer Anstieg zu sehen, der allerdings bei etwa 100 W cm^{-2} abknickt. Diese Abschwächung wird vermutlich durch Spindiffusion verursacht, da sich ein Hineindiffundieren von Kernspinpolarisation von den Kernen, die nicht direkt mit den Exzitonen wechselwirken, der Abnahme an Kernspinpolarisation durch die RF-Absorption überlagert. Da die Spindiffusion für jedes Isotop unterschiedlich ist, erklärt dies das Abknicken bei unterschiedlich großen Modulationsamplituden. Der Verlauf von ^{75}As wird vermutlich jenseits des Messbereichs ebenfalls abknicken. Die Messergebnisse zu den Absorptionen bei einer Modulation mit $\Delta m_I = \pm 1$ sind in Tabelle 5.1 zusammengefasst.

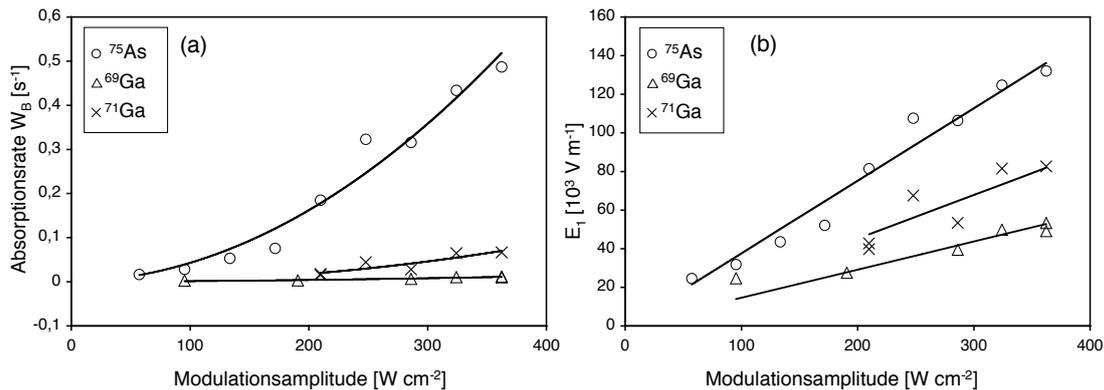


Abbildung 5.6: (a) Abhängigkeit der $\Delta m_I = \pm 2$ Absorptionsraten von der Modulationsamplitude bei Intensitätsmodulation. (b) Die effektiven E -Feldstärken für alle drei Isotope, die sich aus den Absorptionsraten ergeben.

Moduliert man die Intensität des Pumplichtes nun mit der Frequenz für den $\Delta m_I = \pm 2$ Übergang, so sieht man wiederum einen quadratischen Zusammenhang zwischen den Absorptionsraten und der Modulationsamplitude (siehe Abb. 5.6(a)). Berechnet man die benötigten elektrischen Feldstärken für jedes Isotop gemäß Gleichung 5.13, so erhält man Verläufe der elektrischen Felder, die zumindest alle in der gleichen Größenordnung liegen, wie man in Abbildung 5.6(b) sehen kann. Die Streuung der Messergebnisse kommt durch die starke Variation der benutzten Konstanten C_{14} zustande, die bisher nur an vereinzelt Volumenmaterial GaAs Kristallen gemessen wurden [39, 22]. Diese C_{14} wurden allerdings

5.2. UNTERSUCHUNG DER $\Delta M_I = \pm 1$ UND $\Delta M_I = \pm 2$ RESONANZEN 63

nicht unabhängig von Q bestimmt und variieren für unterschiedliche Kristalle sehr stark. Für die Q wurden ebenfalls unterschiedliche Werte benutzt, so dass man bei der Bestimmung der elektrischen Felder unterschiedliche Ergebnisse erhält, wie es in der Tabelle 5.2 dokumentiert ist. Die angegebenen Fehler beziehen sich dabei auf die statistischen Fehler der Ausgleichsgeraden, die sich aufgrund der Streuung der einzelnen Messpunkte einer Messreihe ergeben. Die Streuung der Ergebnisse ist somit deutlich größer als die Fehler der einzelnen Ergebnisse.

Da die Raten bei den $\Delta m_I = \pm 2$ Übergängen um mehr als zwei Größenordnungen kleiner sind als bei den $\Delta m_I = \pm 1$ Übergängen, befindet man sich auf jeden Fall in dem Bereich, der durch die Spindiffusion unbeeinflusst bleibt. $\Delta m_I = \pm 1$ Übergänge, die durch die elektrische Quadrupolwechselwirkung verursacht werden, sind in der gleichen Größenordnung wie die $\Delta m_I = \pm 2$ Übergänge und können somit als Ursache für die Absorption bei Modulationen mit $\Delta m_I = \pm 1$ vernachlässigt werden. Die Messungen haben eindeutig gezeigt, dass die $\Delta m_I = \pm 1$ Resonanzen in erster Ordnung durch die magnetische Dipol-WW und die $\Delta m_I = \pm 2$ Resonanzen durch die elektrische Quadrupolwechselwirkung erzeugt werden.

	W_D^a [s ⁻¹]	δ_D^e [kHz]	Q [10 ⁻²⁹ m ²]	C_{14} [10 ¹² m ⁻¹]	E_1^a [kV m ⁻¹]
⁷⁵ As	0.040 ± 0.004	2.8	3 ^b	1.55 ^b	38 ± 2
			2.9 ^c	2.93 ^c	21 ± 1
			2.9 ^d	3.16 ^d	19 ± 1
⁶⁹ Ga	0.005 ± 0.002	2.2	2.318 ^b	1.05 ^b	23 ± 5
			1.9 ^c	2.85 ^c	10 ± 2
			1.9 ^d	2.72 ^d	11 ± 3
⁷¹ Ga	0.0009 ± 0.0001	1.4	1.416 ^b	0.9 ^b	11 ± 1
			1.2 ^c	2.81 ^c	4, 1 ± 0, 5
			1.2 ^d	2.60 ^d	4, 5 ± 0, 5

^a mittlerer Wert bei 100 W cm⁻²

^b Werte von Gill *et al.* [39]

^c Werte von Dumas *et al.* Kristall I; ^d Kristall II [22]

^e halbe Breite bei halber Höhe (HWHM) der linken Resonanzlinie

Tabelle 5.2: Umwandlung von Pumpraten in effektive elektrische Feldstärken. Die veröffentlichten Werte für die Kopplungskonstanten Q und C_{14} sind aufgelistet und wurden jeweils benutzt, um die beobachteten Übergangsraten in effektive elektrische Felder umzurechnen. Da Q und C_{14} bis jetzt noch nicht unabhängig voneinander bestimmt wurden, müssen jeweils die zusammengehörigen Konstanten benutzt werden. An der starken Streuung der Konstanten für unterschiedliche Kristalle ist zu sehen, dass keine eindeutige Aussage getroffen werden kann.

Kapitel 6

Gepulste optisch detektierte NMR

Die optisch detektierte NMR hat im Gegensatz zu der konventionellen NMR eine stark erhöhte Empfindlichkeit, allerdings können die zeitaufgelösten Techniken der konventionellen NMR bisher nur schwer in nanoskopischen Systemen, wie die hier benutzten QW, angewendet werden. Bei diesen zeitaufgelösten Techniken beobachtet man die zeitliche Antwort des Kernspinsystems – den so genannten freien Induktionszerfall (FID; *engl.: free induction decay*) – auf einen einzelnen oder auf eine Folge von RF-Pulsen [31, 1]. Durch eine geschickte Wahl oder Variation einer Pulsfolge können sehr genaue Aussagen über die Wechselwirkungen und die Dynamik der Kernspins in einer Probe getroffen werden. Da man bei der konventionellen Detektion dieser Zeitsignale die RF-Photonen detektieren muss, kommt man mit den gemessenen Signalen einzelner nanoskopischer Strukturen nicht aus dem Störuntergrund heraus. Um dennoch konventionell detektierte gepulste NMR Messungen an diesen Strukturen durchführen zu können, hat man entweder durch Mittelung über mehrere dieser Strukturen die Anzahl der Kerne innerhalb dieser Strukturen erhöht [67] oder man hat die Kerne in einer einzelnen Struktur gezielt optisch polarisiert [6, 50, 21]. Bei beiden Methoden musste man zusätzlich noch den störenden Hintergrund eliminieren, der von dem Volumenmaterial im Substrat erzeugt wird. Dies macht man am einfachsten, indem man dieses Substrat entfernt. Allerdings ändert man dann die Ausbreitung von Kräften und elektrischen Feldern in dem Bereich, der von Interesse ist. Ein alternativer Weg wurde auch gewählt, indem man ausnutzt, dass sich die NMR Resonanz in einem QW gegenüber der Resonanz im Volumenmaterial durch deren Relaxationszeiten unterscheiden lassen [67, 42]. Allerdings wird die Interpretation der Ergebnisse deutlich erschwert. Optisch detektierte zeitaufgelöste Messungen von NMR Signalen in GaAs QW wurden zuerst von Marohn *et al.* durchgeführt [62]. Allerdings benutzten diese ein zweites Isotop, das während des Experiments permanent präzedierte und somit eine Schwebung der transversalen Kernfeldkomponenten während des FID entstand, die detektiert werden konnte. Die Nachteile

dieser Methode liegen dabei bei der relativ schlechten Empfindlichkeit und der geringen Auflösung. Zusätzlich ist es auch von Nachteil, wenn man ein zweites Isotop benötigt, dessen zeitliche Entwicklung während des Experiments nicht vernachlässigt werden kann.

In diesem Kapitel soll nun eine Messmethode vorgestellt werden, die auf die ODNMR in einem schiefen Feld aufbaut und es ermöglicht, die zeitlich aufgelöste Antwort der Kernspins von einem einzelnen QW aus dem optisch aktivem Bereich zu messen.

6.1 Optische Detektion des zeitlichen Signals

Für einen beliebigen Kernspin kann das resonante Einstrahlen von RF als Rotation des magnetischen Moments um das eingestrahlte magnetische Feld B_1 betrachtet werden. Diese Betrachtung wird vereinfacht, wenn man das Koordinatensystem so wählt, dass B_1 stationär in diesem ist. Das Koordinatensystem rotiert also mit der RF um B_{ext} . Strahlt man die RF für eine definierte Zeit ein, so kann man die Lage der Kernspins im rotierenden Koordinatensystem dementsprechend verändern. Für einen Kernspin $I = \frac{1}{2}$ kann die mathematische Beschreibung dieser Rotation noch argumentativ erfolgen. Für einen größeren Kernspin ist dies so nicht mehr möglich. Wir nehmen an, dass eine Komponente der Kernspins in Feldrichtung und eine Komponente in der Ebene senkrecht zu dem externen Feld liegt. Diese Situation kann durch Einstrahlen eines RF-Pulses erreicht werden, der Kernspins eines Isotops aus der Richtung des externen Feldes um den Winkel ζ herausklappt. Es wird weiter angenommen, dass diese transversalen Kernspins zur Zeit Null in die Richtung y' im Laborsystem zeigen. Sie werden um B_{ext} eine Präzession mit der Larmorfrequenz ω_L ausführen und mit der Zeit $1/\delta$ zerfallen. Dieser Zerfall wird als Gauss-förmig angenommen. Die Zeitabhängigkeit des effektiven Feldes im Laborsystem hat folgende Gestalt:

$$\vec{B}_{\text{eff}} = \begin{pmatrix} B_N \sin \zeta \sin(\omega_L t) e^{-t^2 \ln 2\delta^2} \\ B_N \sin \zeta \cos(\omega_L t) e^{-t^2 \ln 2\delta^2} \\ B_N \cos \zeta + B_{\text{ext}} \end{pmatrix} \quad (6.1)$$

In Kapitel 2 wurde die Abhängigkeit des Polarisationsgrades der PL von einem willkürlich orientiertem Kernfeld diskutiert. Das allgemein gültige Ergebnis für ein beliebiges effektives Feld (Gleichung 2.24) lautete

$$P(B_{\text{eff}}) = P_0 \frac{\Delta B^2 + (B_{\text{eff},y'} \sin \phi + B_{\text{eff},z'} \cos \phi)^2}{\Delta B^2 + B_{\text{eff}}^2}. \quad (6.2)$$

Berücksichtigt man nun die Zeitabhängigkeit von dem effektiven Feld aus Gleichung 6.1, so sieht man, dass der Polarisationsgrad der PL nun zeitabhängig auf der Zeitskala der Larmor Präzession wird.

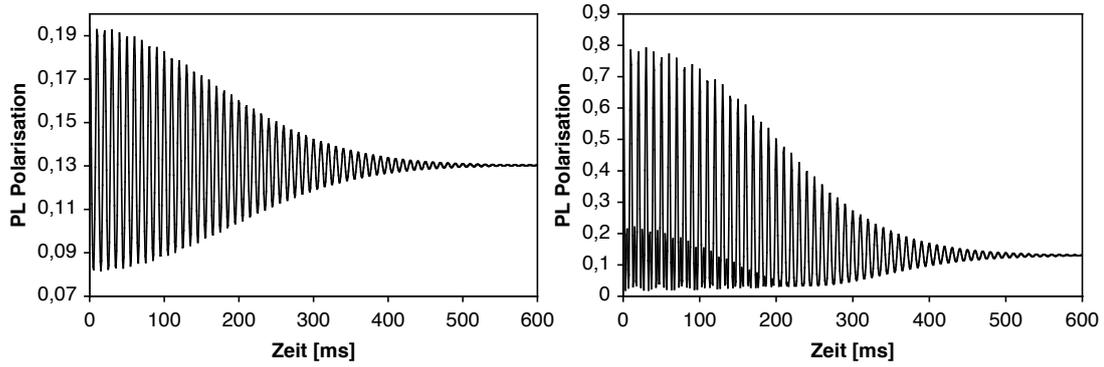


Abbildung 6.1: Gerechneter zeitlicher Verlauf der PL-Polarisation für eine Larmorfrequenz ν_L von 100 kHz gemäß Gleichung 6.3. B_{ext} wurde auf 1 T gesetzt und es wurde ein Winkel ϕ von 70° angenommen. Auf der linken Seite beträgt die transversale Komponente des Kernfeldes $B_N \sin \zeta = 0,1$ T und auf der rechten Seite 1 T. Es wurde des weiteren angenommen, dass die transversale Komponente des Kernfeldes Gauss-förmig mit einer charakteristischen Zeit von $1/\delta = 200 \mu\text{s}$ zerfällt, eine Breite der Hanle-Kurve von $\Delta B = 0,2$ T vorliegt und die Kernspins vollständig transversal sind ($\zeta = 90^\circ$).

$$P(B_{\text{eff}}(t)) = \frac{\Delta B^2 + \left(B_N \sin \zeta \cos(\omega_L t) e^{-t^2 \ln 2 \delta^2} \sin \phi + (B_N \cos \zeta + B_{\text{ext}}) \cos \phi \right)^2}{P_0 \left(\Delta B^2 + B_{\text{eff}}^2(t) \right)} \quad (6.3)$$

In Abbildung 6.1 ist der zeitliche Verlauf des Signals eines fiktiven Spin 1/2 Systems im Laborsystem zu sehen. Hierbei wurde angenommen, dass das externe Feld 1 T, der Winkel ϕ 70° und die maximale Polarisation der PL 1 sei. Zusätzlich wurde angenommen, dass die transversale Komponente des Kernfeldes Gauss-förmig mit einer charakteristischen Zeit von $200 \mu\text{s}$ zerfällt und die Larmorfrequenz 100 kHz beträgt. Das linke Signal wurde für eine transversale Kernfeld-Komponente $B_N \sin \zeta$ von 0,1 T berechnet, wohingegen dem rechten Signal eine transversale Kernfeld-Komponente von 1 T zugrunde lag. Von Interesse sind bei diesem Signal nur die Frequenzkomponenten, die in der Nähe der Larmorfrequenz liegen. Um diese Komponenten herauszufiltern, wird das Zeitsignal mit der RF abgemischt. Somit erhält man den Signalverlauf in einem rotierenden Koordinatensystem, das mit der RF rotiert. Zusätzlich existieren in dem rotierenden Koordinatensystem auch noch Komponenten, die sich mit Harmonischen der Radiofrequenz in diesem Koordinatensystem bewegen. Um diese Komponenten herauszufiltern werden höhere Frequenzen mit einem Tiefpass abgeschnitten. In dem hier verwendeten Aufbau wird das Signal bei 1,9 MHz abgeschnitten.

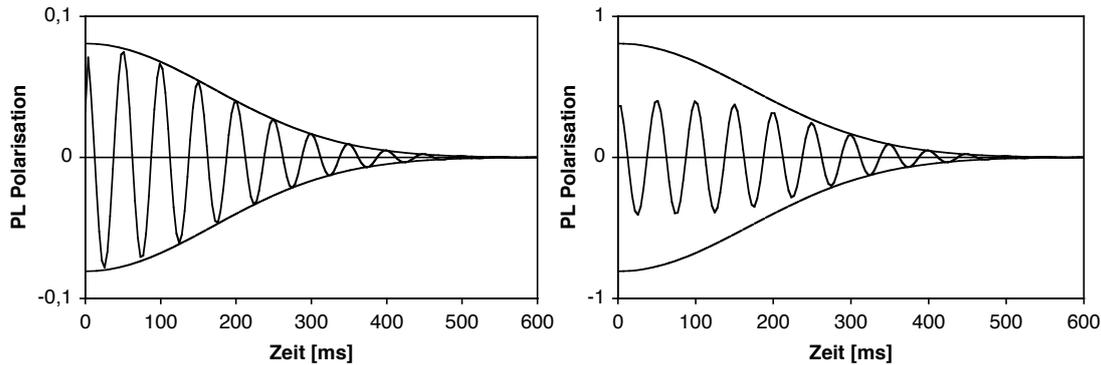


Abbildung 6.2: Zeitsignal abgemischt mit einer RF, die 10 kHz von der Larmorfrequenz dieses Spin 1/2 Systems entfernt ist. Die durchgezogene Linie ist der oFID und die gestrichelte entspricht der Einhüllende des konventionell detektierten FID. Das externe Feld wurde auf 1 T gesetzt und ϕ war 70° . Auf der linken Seite ist das Signal für eine transversale Komponente von 0,1 T und auf der rechten Seite für eine transversale Komponente von 1 T dargestellt.

In Abbildung 6.2 ist der zeitliche Verlauf des Polarisationsignals der PL nach der Filterung im rotierenden Koordinatensystem für kleine und große Signale eingezeichnet. Die Einhüllende zeigt den Verlauf des Zeitsignals, wenn dieses konventionell detektiert würde. Aufgrund der Analogie des optisch erzeugten Signals zu dem konventionell detektierten FID wird dieses Signal des weiteren als optischer FID (oFID) bezeichnet. Für kleine Signale sieht man, dass der oFID dem konventionellen FID entspricht, allerdings ist eine Verformung des oFID bei großen Kernfeldern zu beobachten. Diese Verformung entsteht durch die nicht-lineare Abhängigkeit der erzeugten Oszillationsamplitude von der Größe des transversalen Kernfeldes. Diese Signalform ähnelt der Strahlungsdämpfung, die auch in der konventionellen NMR beobachtet werden kann. Diese tritt auf wenn die Ströme zu groß werden, die in der Detektionsspule fließen [61].

6.2 Transformation in den Frequenzraum

Das Zeitsignal wird mittels einer Fourier-Transformation in den Frequenzraum überführt [30]. Bei kleinen transversalen Komponenten des Kernfeldes erhält man als Fourier-Transformierte eines Gauss-förmig abfallenden Zeitsignals einer gegebenen Frequenz wiederum ein Signal, das einer Gauss-Kurve entspricht. Dieses Signal ist um die Oszillationsfrequenz auf der Frequenzachse verschoben (siehe Abb. 6.3 – als gestrichelte Einhüllende in (a) und gestrichelte Linie in (b)). Bei großen transversalen Komponenten des Kernfeldes tritt eine Abweichung von dem Gauss-förmigen Verlauf auf. Diese Abweichung kann man als überlagertes Signal

mit negativer Amplitude ansehen, die schneller abklingt als das ungestörte Signal. Somit wird ein breiteres Signal mit negativer Amplitude im Frequenzraum erzeugt. Dies ist in Abbildung 6.3 als Verzerrung der Gauss-förmigen Kurve bei der Simulation eines Spin 1/2 Systems dargestellt (durchgezogene Linie).

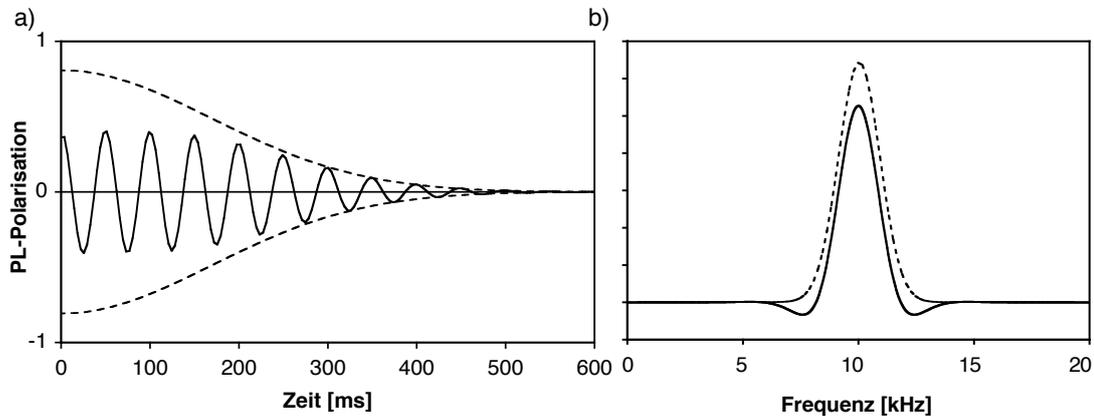


Abbildung 6.3: In (a) ist das gedämpfte Signal eines Spin 1/2 Systems mit einer großen transversalen Kernspinkomponente zu sehen, das mit 10 kHz im rotierenden Koordinatensystem oszilliert. Die Einhüllende stellt das ungedämpfte Signal dar. Das entspricht einem Signal mit kleiner transversaler Kernspinkomponente, das entsprechend skaliert wurde. In (b) sind die Fourier Transformierten der entsprechenden Signale dargestellt. Deutlich sind die Verformungen des Signals mit der durchgezogenen Linie zu sehen.

Erhält man gleichzeitig Signale mit verschiedenen Frequenzen, so treten bei großen transversalen Kernspinkomponenten auch noch harmonische Signalkomponenten auf. So sieht man z.B. bei einem quadrupolar aufgespaltenen Spin 3/2 System eine Verzerrung des Spektrums. Dies ist in Abbildung 6.4 gezeigt. Hier treten zusätzlich zu den Resonanzlinien bei 0 kHz und ± 20 kHz auch noch negative Signalbeiträge bei ± 40 kHz auf.

Simuliert man ein Spektrum, das aus der zentralen Linie und nur einem Satelliten bei -20 kHz besteht, so erkennt man, dass Signalbeiträge bei -40 kHz und +20 kHz entstehen (siehe Abb. 6.5). Die Position und Stärke der Signalbeiträge aufgrund von Mischtermen hängt also von der Position und der Stärke der einzelnen Resonanzlinien ab.

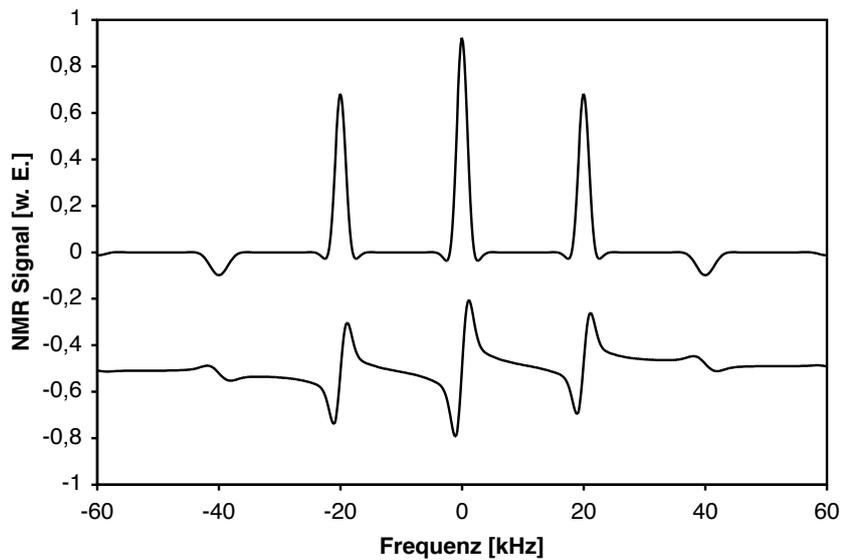


Abbildung 6.4: *Simuliertes Spektrum eines Spin 3/2 Systems. Die Signalstärken der Satelliten betragen dabei $\frac{3}{4}$ der Signalstärke der zentralen Linie. Eine Verzerrung jeder einzelnen Linie und negative Seitenbänder bei der doppelten Aufspaltungsfrequenz sind zu erkennen. Das externe Feld beträgt hierbei 1 T und die gesamte transversale Kernspinkomponente beträgt ebenfalls 1 T.*

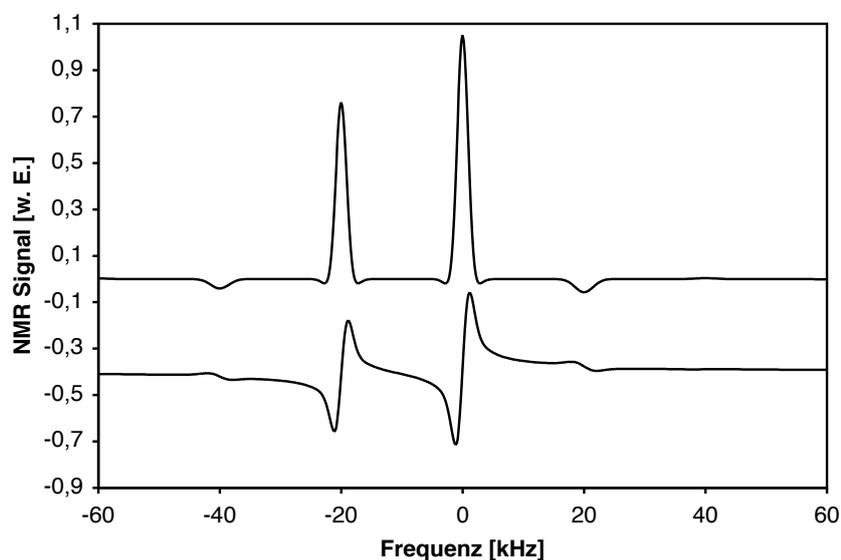


Abbildung 6.5: *Bei dieser Simulation wurde die rechte Linie des Triplets aus Abb. 6.4 weggelassen. Die gesamte Größe des transversalen Kernfeldes teilt sich nun auf diese beiden Linien auf.*

6.3 Experimenteller Aufbau

Der experimentelle Aufbau für die gepulste ODNMR unterscheidet sich von dem allgemeinen Aufbau in einigen wichtigen Punkten. Deshalb wird hier der für diese Messung notwendige Aufbau erläutert und charakterisiert. Der modifizierte Aufbau ist in Abbildung 6.6 zu sehen. Das Anregungslicht wird hierbei genauso erzeugt und manipuliert wie in den bisherigen Experimenten. Es wird hier auch dieselbe Spule benutzt. Allerdings wird die Spule nun mit wesentlich höheren Leistungen betrieben. Dabei ist es wichtig, dass die Spule eine Impedanz in der Nähe von 50Ω besitzt, damit nicht zu viel RF-Leistung an dem Schwingkreis reflektiert wird. Zusammen mit einem Kondensator wurde die Spule somit auf eine Resonanzfrequenz von etwa 10 MHz abgestimmt. Durch die Resonanz wird der Strom, der in der Spule fließt, um die Güte Q (etwa 40) des Schwingkreises erhöht. Aufgrund der nicht perfekten Abstimmung auf 50Ω reflektiert der Schwingkreis etwa 35% der eingestrahlten Leistung. Die Radiofrequenz wird von einem DDS-Synthesizer erzeugt, der über einen Signaleingang zwischen zwei Frequenzen hin und her schalten kann. Die RF wird in den Modulator eingespeist. Mit dem Wortgenerator können in dem Modulator die Phase der RF verschoben, die Amplitude abgeschwächt und rechteckige Pulse geformt werden (siehe Abb. 6.7). Um die Phase zu schalten wird ausgenutzt, dass der DDS-Synthesizer schon die 0° und 90° Phase erzeugt. In dem Modulator wird mit einem RF-Schalter zwischen diesen beiden Phasen gewählt. Mit einem zweiten Schalter wird dann ausgewählt, ob diese Phase nun nochmals um 180° verschoben wird. Somit kann man durch Kombination dieser beiden Schaltvorgänge die Phase um 0° , 90° , 180° oder 270° verschieben. Die Amplitude wird mit einem schaltbaren Abschwächer beeinflusst, mit dem man die Amplitude mit einer Auflösung von 0,5 dB um bis zu 31,5 dB herabsetzen kann. Am Ausgang des Modulators ist ein schneller RF-Schalter angebracht, der die Ausgangsamplitude in einer Zeit von 10 ns um 100 dB verringern kann. In dem Modulator wird die maximale Ausgangsamplitude über eine passende Kombination von Abschwächern und Verstärkern so eingestellt, dass sie bei maximaler Ausgangsamplitude des DDS den nun folgenden Leistungsverstärker nicht außerhalb seines linearen Bereichs betreibt. Dieser Verstärker vergrößert die Leistung um 45 dB mit einer maximalen Ausgangsamplitude von 50 dBm (100 W).

Die von der Probe emittierte PL wird von einer Linse mit einer Brennweite von 100 mm und einem Durchmesser von 50 mm aufgefangen, die in einem Abstand von 120 mm von der Probe angebracht ist. Damit deckt die Linse 1% des Raumwinkels ab. Da GaAs einen Brechungsindex von 3,6 besitzt wird allerdings dann nur ein Bruchteil von $7,7 \times 10^{-4}$ des emittierten Lichts aufgefangen. Die Verluste durch die Analysatoroptik betragen etwa 50%. Somit sollte bei einer vollständigen Absorption des Pumplichts und vollständiger isotroper strahlender Rekombination für jedes Milliwatt Pumplicht etwa $0,4 \mu\text{W}$ PL auf den Detektor

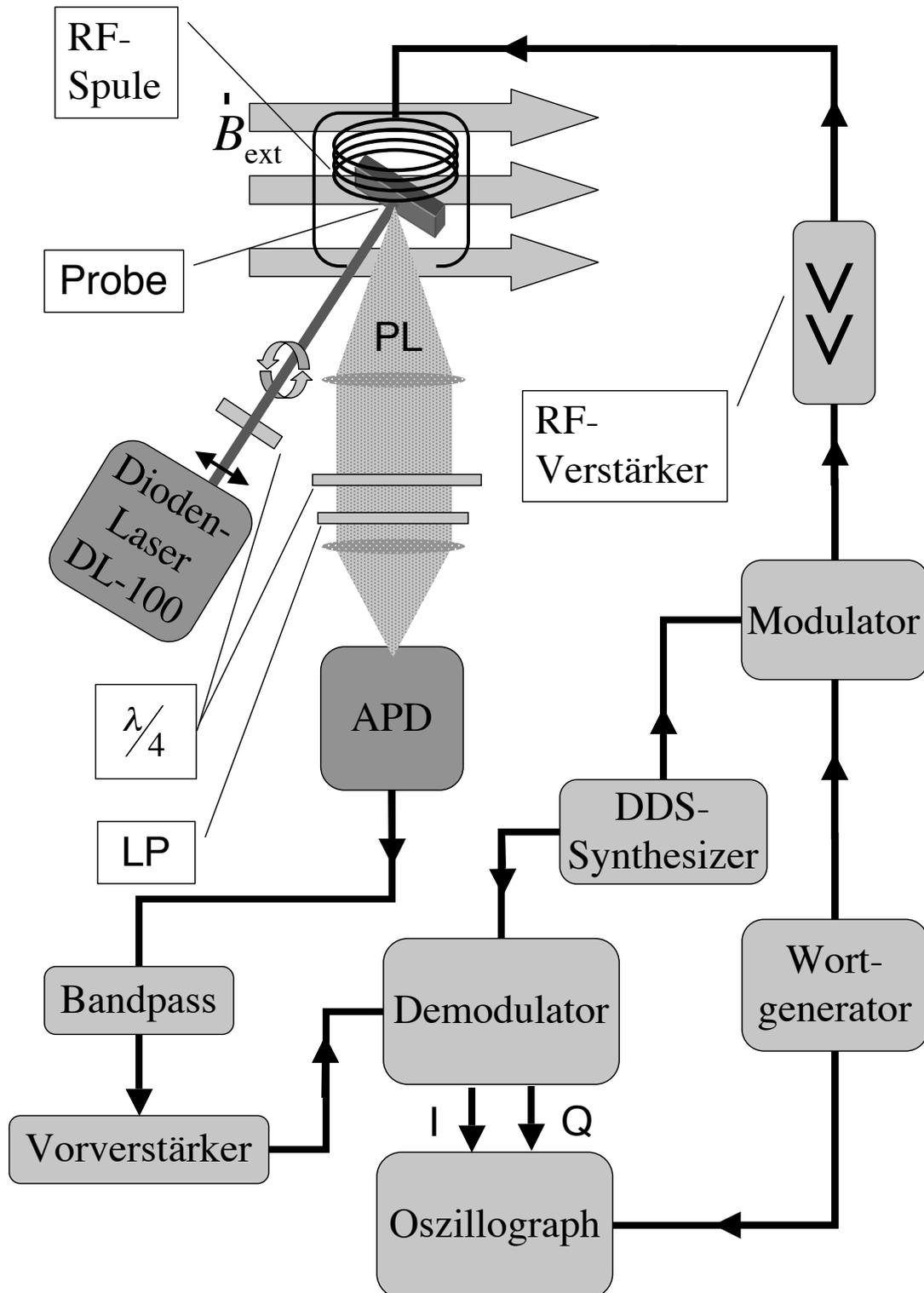


Abbildung 6.6: Experimenteller Aufbau für die gepulste ODNMR

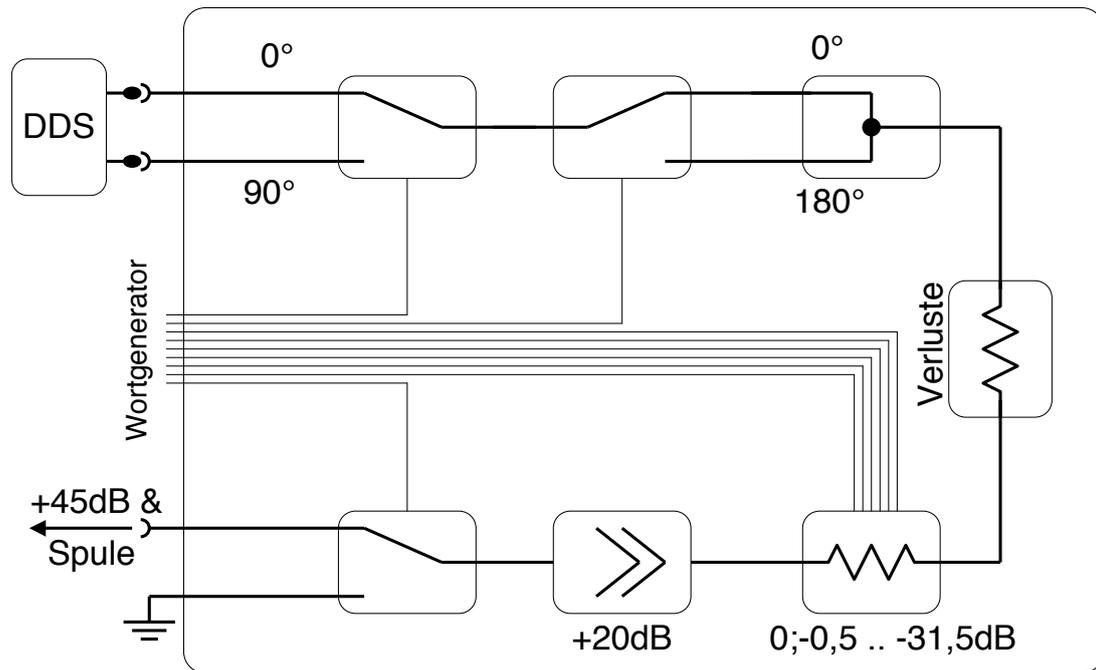


Abbildung 6.7: Blockschaltbild des Wortgenerator-gesteuerten Modulators. Mit den beiden oberen RF-Schaltern und dem 0/180° Kombiniierer wird die Phase der RF in 90° Schritten ausgewählt. Mit dem schaltbaren Abschwächer kann die Ausgangsamplitude um bis zu -31,5 dB herabgesetzt werden. Der Schalter direkt vor dem Ausgang erzeugt die Pulse.

fallen, der im Fokus einer zweiten Linse mit einer Brennweite von 150 mm steht. Bei einer Intensität des Pumplichts von 30 mW, das resonant mit dem 20 nm QW eingestrahlt wird, fallen etwa $2 \mu\text{W}$ des Lichts, das aus PL und Streulicht besteht, auf den Detektor. Man detektiert also bestenfalls 60 nW PL pro Milliwatt Pumplicht. Dieser Wert ist um einen Faktor sechs geringer als erwartet. Für die zusätzlichen Verluste kann es verschiedene Ursachen geben. Am wahrscheinlichsten ist eine nicht vollständige Absorption der Laserstrahlung im QW und starke Reflektionsverluste an den Grenzflächen in der Probe, die durchaus größer als 50% sein können. Die APD, die hier für die gepulsten ODNMR Experimente benutzt wurde, konvertiert die einfallende Lichtleistung mit einem Konversionsfaktor von $1,6 \times 10^6 \text{ V/W}$. Es sollten somit pro Milliwatt Pumplicht etwa 100 mV Signal am Ausgang der APD abgegriffen werden.

Dieses Signal besteht nun aus einem Gleichspannungssignal, das von dem Hintergrundlicht erzeugt wird, und dem eigentlichen Nutzsignal, das mit der Larmorfrequenz der Kerne moduliert ist. Um den großen Gleichspannungsanteil herauszufiltern, wird dieses Signal über einen Blockkondensator, eine gekreuzte Diode gegen Masse und einem 8 bis 12 MHz Bandpass-Filter geleitet, bevor es in

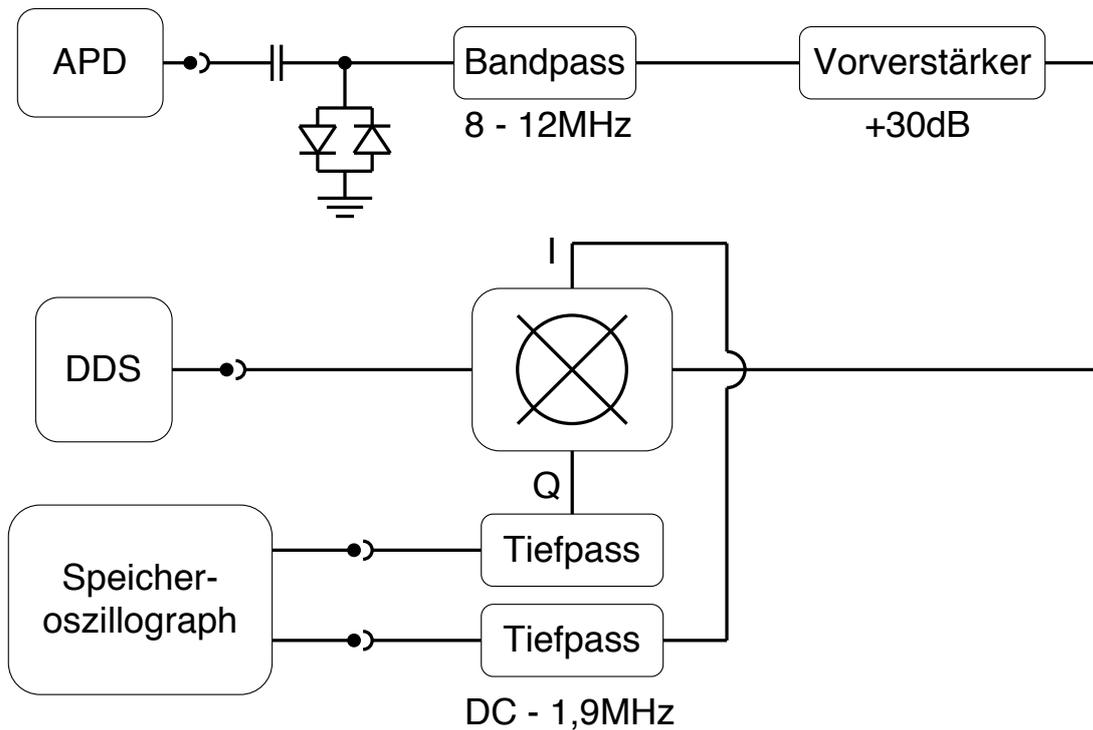


Abbildung 6.8: Der Empfänger zur Demodulation des Signals, das mit der APD gemessen wird. Das Signal der APD wird mit einem Kondensator AC-gekoppelt, mit gekreuzten Dioden werden zu starke Signaländerungen herausgefiltert und mit dem Bandpass wird nur der relevante Teil des Frequenzspektrums durchgelassen. Nach einem Verstärker, der auch zur Impedanzanpassung dient, wird das Signal mit der Larmorfrequenz demoduliert.

den Vorverstärker gelangt (siehe Abb. 6.8). Dieser Vorverstärker (AD604-EB) besteht aus einem Halbleitervorverstärker mit einer hohen Eingangsimpedanz und +14 dB Verstärkung, einem regelbaren Abschwächer von bis zu -48 dB und einem +34 dB differentiellen Ausgangsverstärker, der eine 50 Ω Last treiben kann. Der Verstärker ist allerdings empfindlich gegen Überschreitungen der maximalen Ausgangsamplitude von 2,5 V. Sollte diese überschritten werden, so liefert der Verstärker für ca. 50 μ s kein Signal. Um den Verstärker nicht zu übersteuern, wurde die Gesamtverstärkung auf +30 dB eingeregelt. Um starke Signalschwankungen, die z. B. durch ein Blocken des Lichtes verursacht werden können, auszuschließen, sind vor dem Vorverstärker die Dioden gegen Masse geschaltet. Dieser Verstärker wurde gewählt, da die APD eine kleinere Last als 50 Ω an ihrem Ausgang benötigt. Dies verhindert, dass deren Ausgangsverstärker ansonsten oszilliert.

Das Ausgangssignal des Vorverstärkers wird auf einen Demodulator gegeben

(Mini-Circuits ZFMIQ-10D), der speziell für einen Frequenzbereich von 9 bis 11 MHz konzipiert ist. Zusammen mit einem Referenzsignal liefert dieser Demodulator den inphase (I) und quadraturphase (Q) Anteil des abgemischten Signals. Diese Signale werden mit 1,9 MHz Tiefpass Filtern von den höheren Frequenzen, die bei dem Abmischen zusätzlich erzeugt werden, befreit. Ohne jegliche weitere Verstärkung kann dieses Signal nun von den Eingangsverstärkern des Speicheroszillographen digitalisiert werden. In dem Speicher dieses Oszillographen kann das Signal gemittelt und von dem Rechner ausgelesen werden.

Die Signalumwandlung des Empfängers wurde mit einem Funktionsgenerator überprüft. Dabei wurde ein 9,95 MHz Signal eines Funktionsgenerators mit einer Amplitude von 20 mV auf den Empfänger gegeben. Dieser erzeugte an den I und Q Ausgängen des Demodulators jeweils 300 mV Signale. Der vollständige Empfänger verstärkt also wie erwartet das Eingangssignal um einen Faktor 15 (Faktor 30 durch den Verstärker und ein Faktor 1/2 durch den Demodulator).

Um die Effizienz des Aufbaus weiter zu charakterisieren, wurde das niederfrequente Signal bei einer Änderung des externen Feldes untersucht. Dieses Experiment entspricht im Prinzip den Hanle-Messungen aus Kapitel 2. Allerdings wird nun weder das Pumplicht noch die PL mit einem PEM moduliert und somit kein LockIn-Verstärker benutzt, um die Empfindlichkeit zu erhöhen. Stattdessen wird die Änderung der Elektronenspinpolarisation nur in einer zirkular polarisierten Komponente der emittierten PL untersucht. Zusätzlich wird auch auf jegliche Wellenlängenselektion der PL verzichtet. Auf die Probe wurde hierzu resonant mit der HH-Absorption des 20 nm breiten QW mit einer Leistung von 30 mW eingestrahlt. Die Lichtintensität auf der APD wurde dann mit einem Speicheroszillographen ohne die Empfänger Elektronik aufgezeichnet. Während der Messung, die etwa 20 s dauerte, wurde das externe Magnetfeld, das zu Beginn der Messung eine Feldstärke von 1,4 T besessen hatte, abgeschaltet. Zuvor wurde mehrere Minuten lang eine Kernspinpolarisation bei dem Startfeld aufgebaut. Man erkennt in Abbildung 6.9 eine deutliche Veränderung der gemessenen Lichtintensität entsprechend der Hanle-Abhängigkeit. Dieser sich ändernde Signalbeitrag stellt 10% der Gesamtlichtintensität dar und entspricht einer Lichtleistung von 125 nW bei der hier verwendeten Pumplichtleistung von 30 mW.

Die maximale Lichtmodulation mit 10 MHz, die in späteren Experimenten als Signal bei einer Pumplichtleistung von 30 mW an der APD erzeugt wird, beträgt am Ausgang des Empfängers 600 mV und somit 40 mV am Ausgang der APD. Berücksichtigt man die -3 dB Abschwächung der Empfindlichkeit der APD bei Signalen mit einer Frequenz von 10 MHz, so entspricht dies einer Lichtleistungsmodulation von 50 nW auf der aktiven Fläche der APD. Der zusätzliche Faktor 2 in der Signalamplitude wird vermutlich durch mehrere Faktoren gleichzeitig verursacht. Bei der Demodulation werden die übrigen Frequenzkomponenten des Signals unterdrückt. Das hat zur Folge, dass auch nicht mehr die volle Signalamplitude zur Verfügung steht. Aus den Simulationen ergibt sich dafür eine Abschwächung um 20%. Unterschiedliche Ausgangsimpedanzen der APD und des

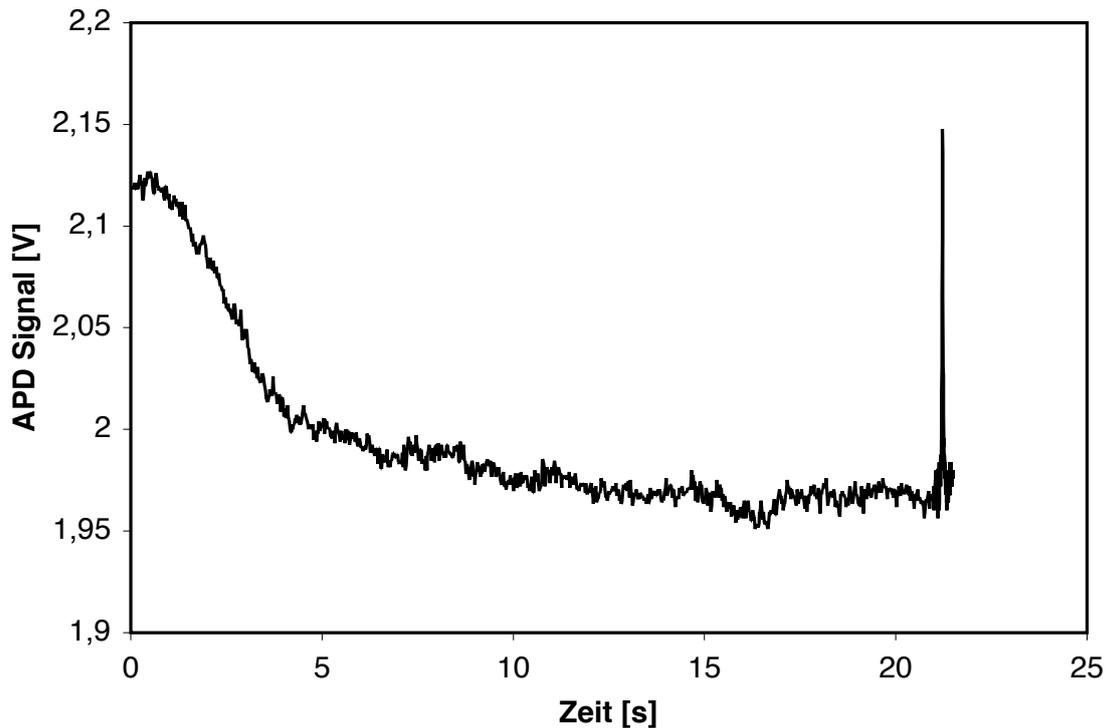


Abbildung 6.9: Änderung der Signalintensität auf der APD während der Veränderung des externen Magnetfeldes. Zu Beginn der Messung wurde die Probe resonant mit dem 20 nm breiten QW optisch gepumpt und dann zum Zeitpunkt 0 das Feld innerhalb von etwa 20 s abgeschaltet. Man erkennt die Hanle-Abhängigkeit und die scharfe Spitze wenn das externe Feld vollständig verschwunden ist. Die Messung wurde mit der Analyseoptik und der APD, aber ohne den Empfänger durchgeführt. Stattdessen wurde das Signal der APD direkt von einem Speicheroszillographen aufgezeichnet.

benutzten Funktionsgenerators als Referenz können zu den zusätzlichen Abweichungen beitragen.

6.4 Experimentelle Spektren

6.4.1 Gepulstes ODNMR Spektrum von Arsen

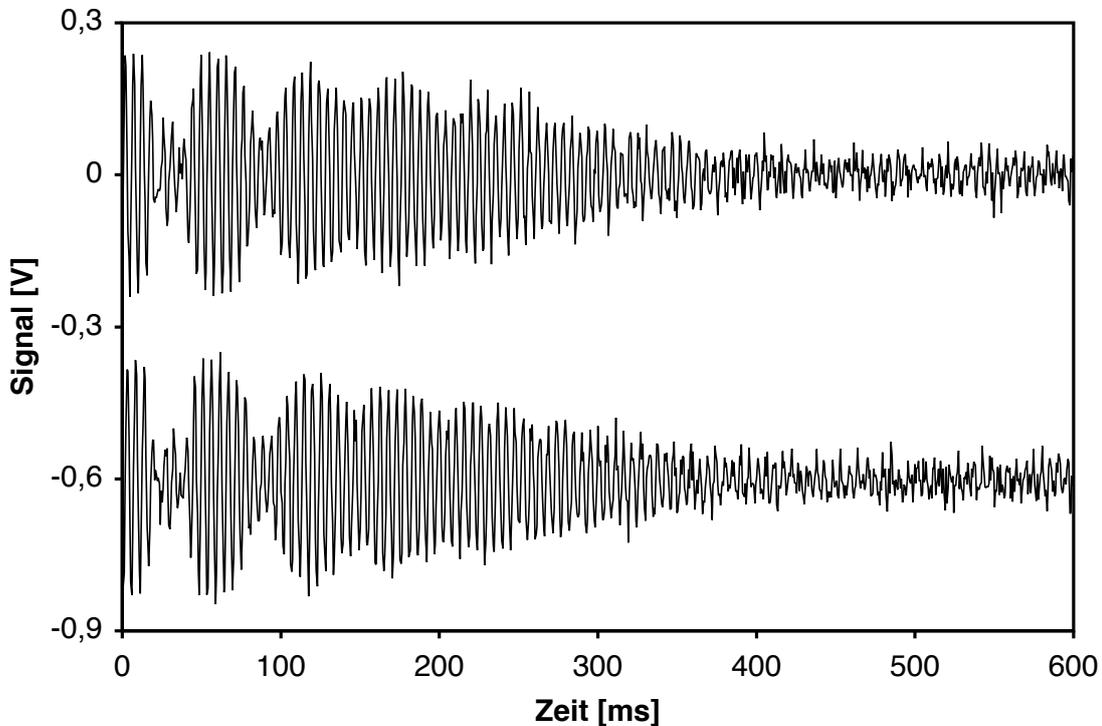


Abbildung 6.10: Optisch detektiertes Zeitsignal eines einzelnen oFID von quadrupolar aufgespaltenem Arsen in einem Feld von 1,38 T als Antwort auf einen 6 μ s Puls. Das Kernspinsystem wurde zuvor 640 s lang mit einer Lichtleistung von 40 mW optisch gepumpt. Das obere Signal ist das inphase Signal und das untere Signal ist das quadraturphase Signal, das wegen der Übersicht um 0,6 V nach unten verschoben wurde.

Um gepulste ODNMR an der QW-Probe durchzuführen wurde diese mit zirkular polarisiertem Laserlicht bestrahlt, das der Absorptionswellenlänge des Exzitons im 15 nm breiten QW entsprach und eine Leistung von etwa 40 mW besaß. Das externe magnetische Feld wurde auf eine Feldstärke von 1,38 T eingestellt. Dieses magnetische Feld entspricht einer Larmor-Frequenz der ^{75}As Kerne von 9,96 MHz auf die der Schwingkreis zuvor abgestimmt wurde. Für eine Zeit von 640 s wurden die Kerne optisch gepumpt. Nach dieser Zeit wurde für 6 μ s ein RF-Feld in die Probe eingestrahlt. Dadurch wurde ein Teil der Kerne aus der Feldrichtung in die Detektionsebene senkrecht zum externen magnetischem Feld geklappt. Am Ende des Pulses wurde die vom DDS-Synthesizer erzeugte Frequenz von der Larmor Frequenz auf die Detektionsfrequenz von 10,15 MHz

umgeschaltet. Dieses Umschalten der Frequenz erfolgt in dem DDS innerhalb weniger Nanosekunden und phasenstarr zu der vorherigen Frequenz. Es erfolgt somit auf der Zeitskala dieses Experiments instantan und mit einem definiertem Bezug auf das rotierende Koordinatensystem der vorher eingestrahlten RF.

Dieses Umschalten hat den immensen Vorteil, dass nun die Signalfrequenzen, die von Interesse sind, weit entfernt von den Gleichspannungssignalen liegen. Da Gleichspannungssignale in dem Detektionsaufbau ebenfalls durch nicht kompenzierte Nullpunktverschiebungen der Verstärker und Detektoren hervorgerufen werden können, werden diese störenden Einflüsse von den Signalen getrennt.

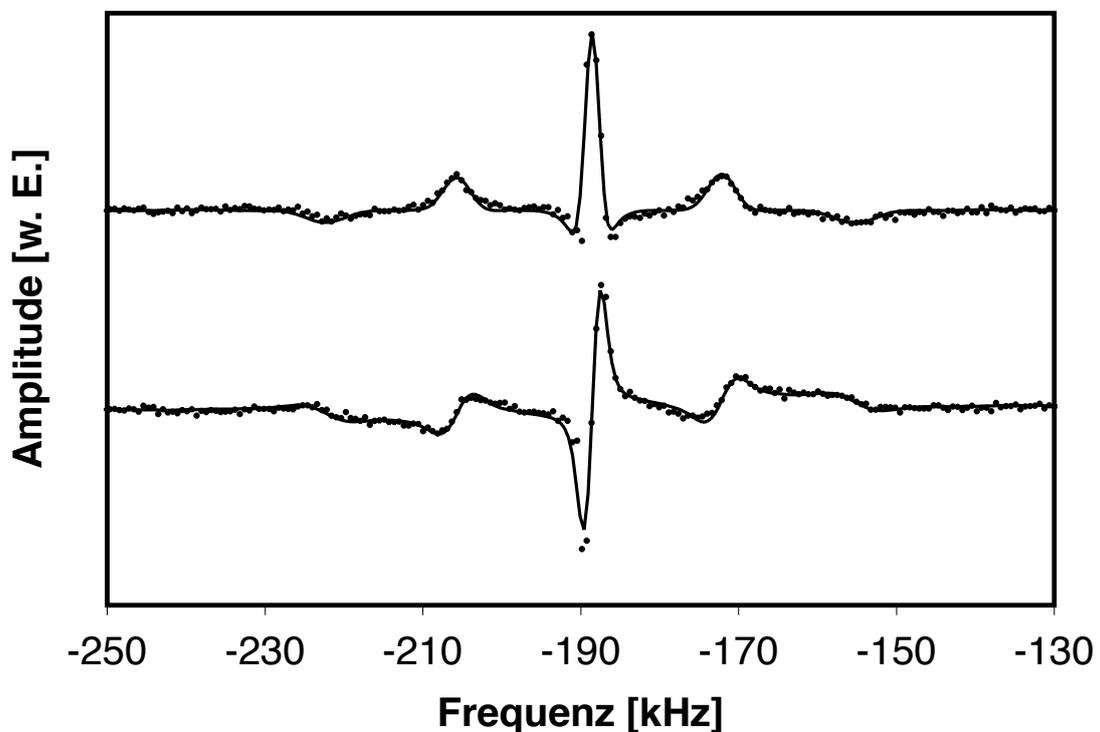


Abbildung 6.11: Fouriertransformierte des Zeitsignals aus Abb. 6.10. Die Punkte sind die experimentellen Daten und die durchgezogenen Linien entsprechen der Theorie, die an diese Daten angepasst wurde. Dazu wurden folgende Werte angenommen: der Winkel zwischen z und z' ist 70° ; ΔB ist $0,2$ T; das externe Feld beträgt $1,38$ T; die Amplituden der Resonanzlinien von links nach rechts sind $0,58$ T, $0,89$ T und $0,62$ T; die Quadrupolaufspaltung beträgt $16,8$ kHz zwischen der Zentrallinie und den Satelliten; die Larmorfrequenz beträgt $9,961$ MHz; die Halbwertsbreite der zentralen Linie beträgt $1,08$ kHz und die der Satelliten betragen $2,27$ kHz. Die Signalamplitude ist bei diesem Spektrum 76 -mal größer als das Rauschen.

In Abbildung 6.10 ist das Zeitsignal im Einzelschuss zu sehen, so wie es von dem digitalen Speicheroszillographen aufgezeichnet wurde. Nach der Fourier-Transformation in den Frequenzraum erhält man das quadrupolar aufgespaltene Spektrum des ^{75}As , so wie es in Abbildung 6.11 dargestellt ist. Die Punkte sind die experimentellen Daten und die durchgezogene Linie entspricht der theoretische Kurve, für die das theoretische Zeitsignal nach Glg. 6.3 ebenfalls in den Frequenzraum transformiert wurde.

Wie man sehr schön sieht entspricht das theoretische Spektrum ziemlich genau den experimentell ermittelten Daten. Die theoretischen Werte wurden hierbei mit der Methode der kleinsten Abstandsquadrate an die experimentellen Daten angepasst. Hierbei wurden folgende Werte ermittelt oder benutzt: Der Winkel zwischen z und z' ist auf 70° gesetzt worden, so wie er in dem Aufbau gemessen wurde. ΔB ist anhand der üblichen Breiten der Hanle-Kurve bei der hohen Lichtintensität auf 0,2 T gesetzt worden. Das externe Feld beträgt 1,38 T und wurde hier als effektives Feld gesetzt. Die Amplituden der Resonanzlinien von links nach rechts ergeben sich aus der Anpassung zu 0,58 T, 0,89 T und 0,62 T. Diese Werte sind offensichtlich zu groß. Wichtig ist hierbei jeweils nur das Verhältnis zu dem effektiven Feld, das für die Anpassung angenommen wurde. Diese größeren Werte bedeuten lediglich, dass die transversale Komponente des Kernfeldes ca. 50% größer ist als die effektive Komponente des Kernfeldes in der Richtung des externen Feldes während der Resonanz. Nur wenn das effektive magnetische Feld vor der Einstrahlung des RF-Pulses verschwindet, sollte die Summe der Resonanzlinien-Amplituden dem vorgegebenen effektiven Feld entsprechen. Trotzdem stellen die so erlangten Werte keine absoluten Größen dar. Die Quadrupolaufspaltung beträgt 16,8 kHz und die Larmorfrequenz beträgt 9,961 MHz. Die Halbwertsbreite der zentralen Linie beträgt 1,08 kHz und die der Satelliten betragen 2,27 kHz. Alle drei Linien sind Gauss-förmig. Die Signalamplitude ist bei diesem Spektrum 76-mal größer als die effektive Rauschspannung in dem Fouriertransformierten Spektrum. Im Weiteren wird dieses Verhältnis als Signal-zu-Rauschen Verhältnis (SNR; *eng. signal to noise ratio*) bezeichnet.

6.4.2 Abhängigkeit von der Größe des Kernfeldes

Verringert man die Zeit, in der das Kernspinsystem optisch gepumpt wird, so nähert sich die Linienform immer mehr der Linienform eines konventionell detektierten NMR-Signals an. In Abbildung 6.12 ist z. B. das Arsen-Spektrum nach einer nur 5 s langen Polarisationszeit zu sehen. Das Spektrum wurde hierfür 1000-mal gemittelt. Da diese Polarisationszeit 128-mal kürzer war als die Polarisationszeit für das Spektrum in Abb. 6.11, das Signal-zu-Rauschen trotz nur 1000 Mittelungen vergleichbar ist und die Amplituden der einzelnen Linien sich nur um einen Faktor 10 verkleinert haben, kann man daraus schließen, dass die Kernspinpolarisation nach 640 s schon fast dessen Sättigungswert erreicht hat.

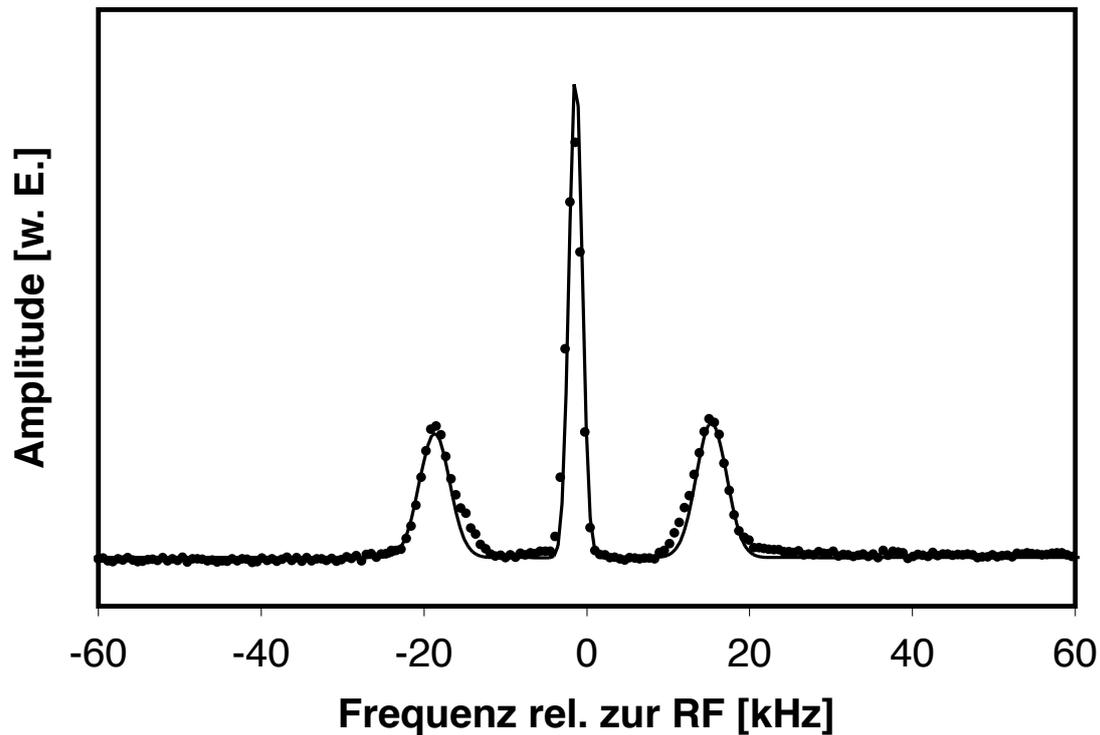


Abbildung 6.12: NMR Spektrum von ^{75}As im 15 nm QW nach einer Pumpzeit von 5 s. Das Spektrum wurde 1000-mal gemittelt. Die Messung wurde unter den gleichen Bedingungen wie die Messung in Abb. 6.11 durchgeführt. Lediglich das externe Feld hat sich ein wenig verändert. Die Frequenz-Achse ist relativ zur eingestrahlten RF des Pulses dargestellt. Die Anpassung der Theoriekurve an die experimentellen Daten liefert: Amplituden der Linien 0,046 T, 0,078 T und 0,050 T; 0,95 kHz Breite der zentralen Linie und 2,18 kHz Breite der Satelliten; Larmor-Frequenz 9,960 MHz und die Quadrupolaufspaltung betrug 17 kHz zwischen der Zentrallinie und den Satelliten. Das SNR ist 271 für die 1000 Mittelungen, also 8,6 im Einzelschuss.

Betrachtet man die Abhängigkeit der Amplitude der zentralen Resonanz von der Zeit, in der das Kernspinsystem optisch gepumpt wurde, so erkennt man eine exponentielle Zunahme der Amplitude mit einer charakteristischen Zeit von 55 s, die nach einer Zeit von 200 s ihren Sättigungswert erreicht hat (siehe Abb. 6.13).

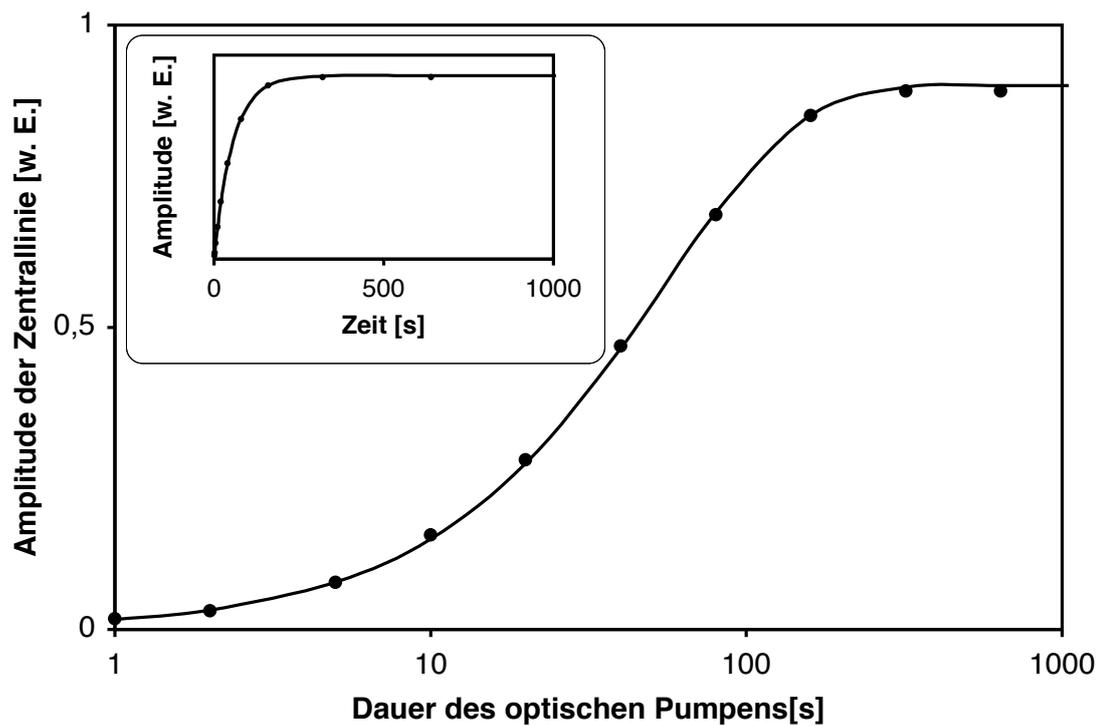


Abbildung 6.13: Amplitude der Zentrallinie aufgetragen gegen die Dauer des optischen Pumpens. Die Amplitude der Zentrallinie und somit die Kernspinpolarisation geht exponentiell gegen den Gleichgewichtswert mit einer Zeitkonstante von 55 s. Durch die exponentielle Darstellung sieht man sehr schön wie gering die Abweichungen von einem exponentiellen Verlauf sind. In dem kleinen eingesetzten Graphen ist der gleiche Verlauf nochmals auf einer linearen Zeitskala dargestellt.

6.4.3 Wellenlängenabhängigkeit der Signale

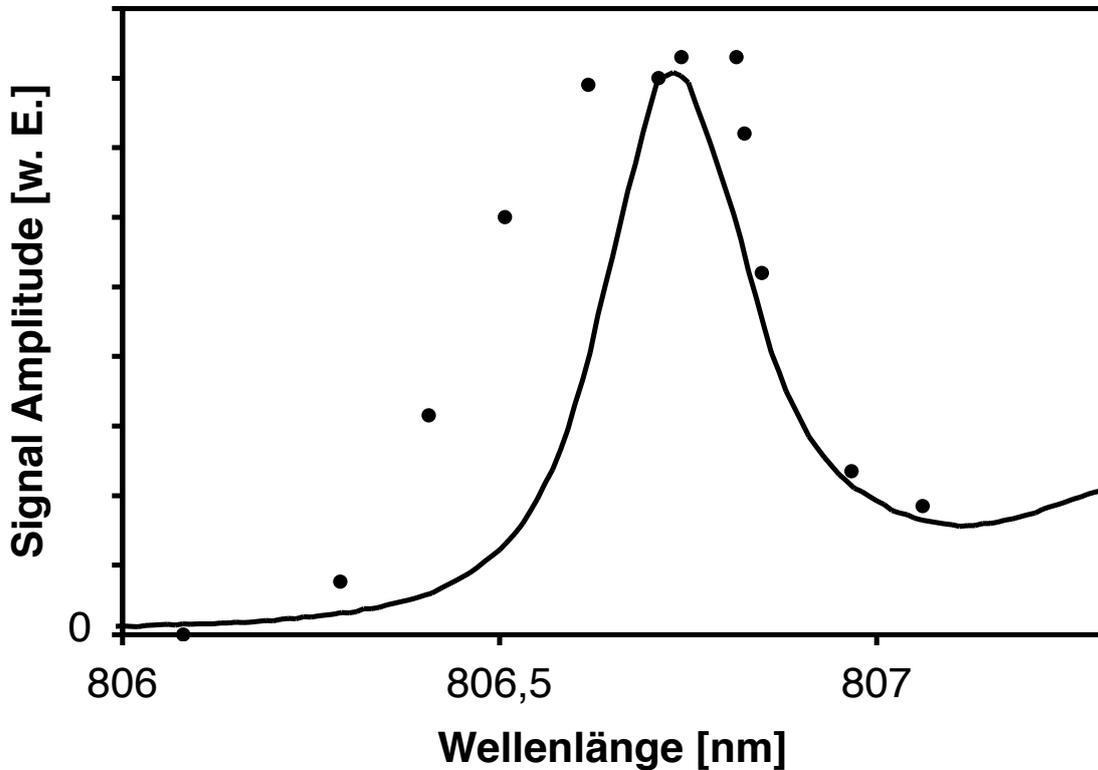


Abbildung 6.14: Abhängigkeit der Amplitude der ODNMR Signale (Punkte) von der Anregungswellenlänge. Für jede Messung wurde das Kernspinsystem bei der jeweiligen Wellenlänge optisch gepumpt und anschließend ein ODNMR Spektrum von ^{75}As aufgenommen. Zum Vergleich ist der Verlauf der PL für diesen QW mit eingezeichnet (Linie). Die ODNMR Signale wurden hierbei ohne Monochromator gemessen. Eine Wellenlängenselektion im Detektionszweig ist somit nicht erforderlich.

Barrett *et al.* hatten für GaAs QW gezeigt, dass das optische Pumpen des QW stark erhöht wird, wenn die Wellenlänge des Pumplichts resonant mit dem hh-Leitungsband Übergang angeregt wird [6]. Zusätzlich zu der selektiven Polarisation der Kernspins in dem QW wird diese Selektivität noch durch verstärkte Emission von PL bei der resonanten Anregung erhöht. Die Selektivität dieser Messmethode wird in der Messung in Abbildung 6.14 gezeigt. Dort ist deutlich die Abhängigkeit der Intensität des ODNMR Signals von der Wellenlänge zu sehen. Zum Vergleich ist das PL-Signal dieses QW noch überlagert. Man sieht eindeutig, dass die Intensität des ODNMR Signals maximal ist, wenn die Absorption des Pumplichts maximal ist. Dies beweist, dass die ODNMR Signale von den verschiedenen QW unterschieden werden können, ohne dass man einen

Monochromator benutzen muss, durch den Lichtintensität verloren gehen würde.

6.4.4 Messung an verschiedenen QW

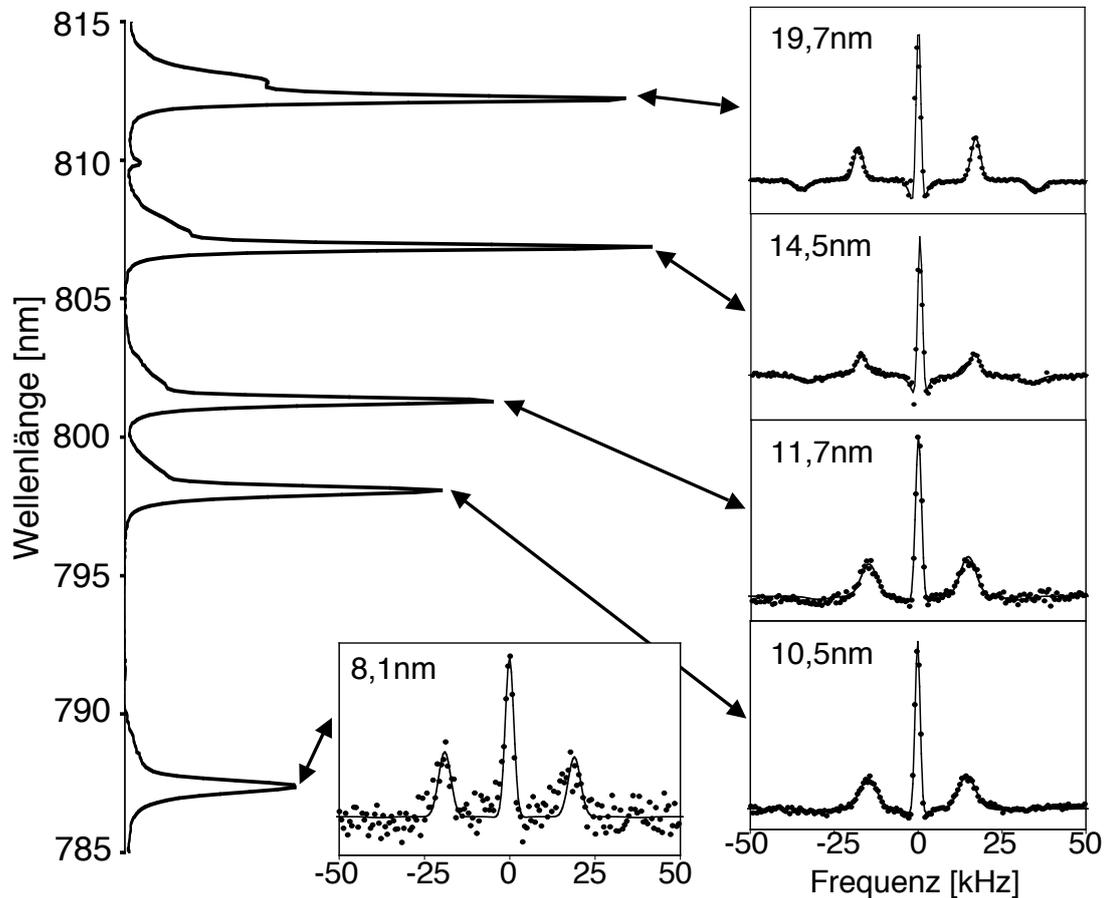


Abbildung 6.15: Gepulste ODNMR Spektren von fünf verschiedenen QW. Alle Messungen wurden an derselben Stelle der Probe durchgeführt. Man erkennt unter anderem eine leichte Änderung der Quadrupolaufspaltung. Auf der linken Seite ist das PL-Spektrum der Probe zu sehen, um die Spektren zuzuordnen.

In Abbildung 6.15 ist eine Reihe von gepulsten ODNMR Messungen dargestellt, bei denen nacheinander die verschiedenen QW resonant gepumpt wurden. Die Position des Lasers auf der Probe wurde dabei beibehalten. Die Quadrupolaufspaltung ändert sich dabei leicht von 14,7 kHz für den 10,5 nm QW zu 17,6 kHz für den 19,7 nm QW. Wie in Abbildung 6.16 zu sehen ist, vergrößert sich darüber hinaus die Verbreiterung der Satellitenlinien von dem 19,7 nm QW zu dem 10,5 nm QW um 75%. Die Breite der Zentrallinie bleibt aber nahezu

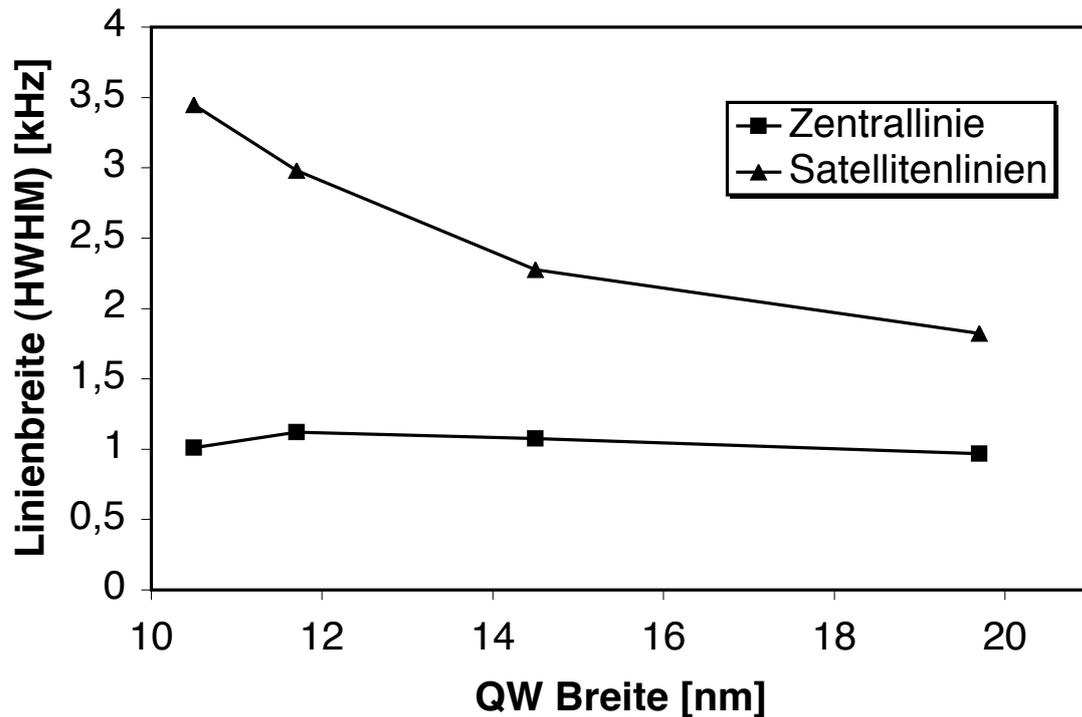


Abbildung 6.16: Abhängigkeit der Linienbreiten der Resonanzlinien von der Breite der QWs. Dargestellt ist hier die halbe Breite bei halber Höhe (HWHM) der Satellitenlinien und der Zentrallinie.

konstant. Diese Änderung der Verbreiterung muss mit einer Abhängigkeit der EFG-Verteilung von der QW-Breite korreliert sein.

6.4.5 Messungen an verschiedenen Isotopen

Die gepulsten ODNMR Spektren von ^{69}Ga (siehe Abb. 6.17) und ^{71}Ga (siehe Abb. 6.18) zeigen eine deutliche Änderung der Quadrupolaufspaltung und der Linienbreite im Vergleich zu den ^{75}As Spektren (siehe z. B. Abb. 6.11). Die Quadrupolaufspaltungen, Linienbreiten, Quadrupolmomente und zugehörigen C_{14} sind in Tabelle 6.1 aufgelistet. Offensichtlich werden die Quadrupolaufspaltungen sowohl durch eine mechanische Verspannung als auch durch einen elektrisch verursachten EFG erzeugt. Wenn man berücksichtigt, dass die mechanischen Verspannungen mit dem Quadrupolmoment Q und die elektrischen Verspannung mit $Q \cdot C_{14}$ skalieren, erhält man aus der Veränderung der Quadrupolaufspaltungen der Isotope die elektrischen und mechanischen Beiträge zu der Quadrupolaufspaltung.

Für die Zusammensetzung der Quadrupolaufspaltungen $\nu_{q,^{75}\text{As}}$ und $\nu_{q,^{69}\text{Ga}}$ von

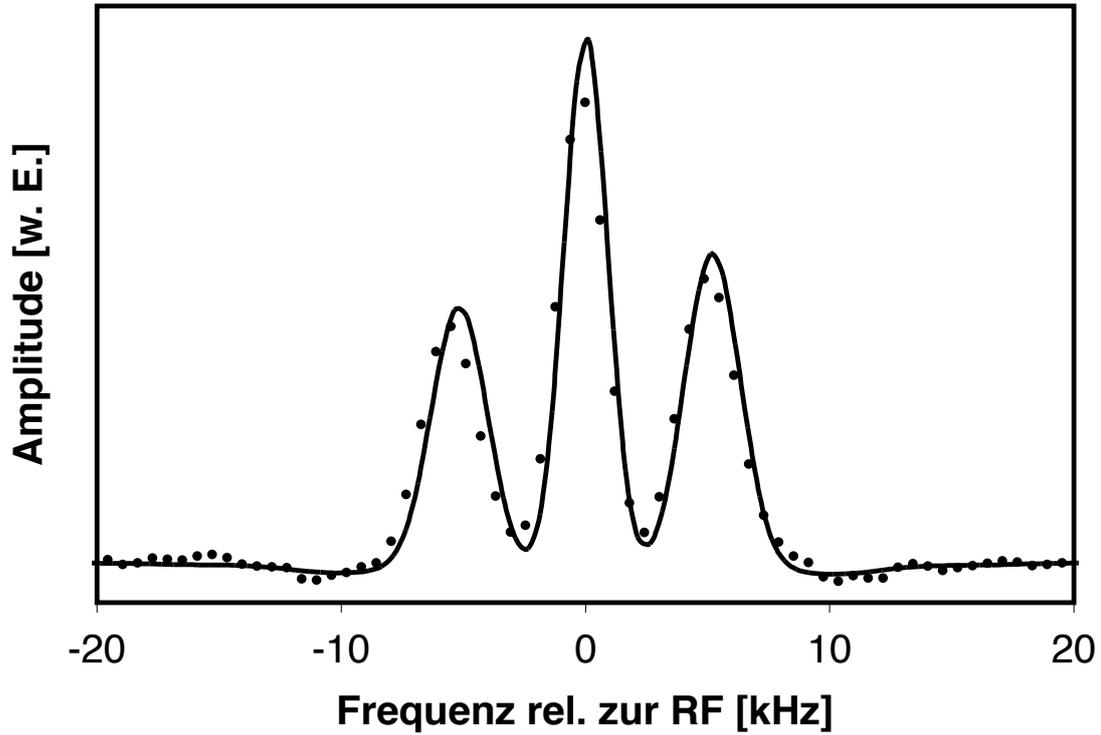


Abbildung 6.17: Gepulste ODNMR von ^{69}Ga in dem 15 nm breiten QW. Für jede Messung wurde das Kernspinsystem zuvor 600 s lang optisch gepumpt. Anschließend wurde mit einem $7\ \mu\text{s}$ langen Puls die Polarisation aus ihrer Gleichgewichtslage herausgeklappt. Das Spektrum wurde dreimal gemittelt. Die Anpassung der Theorie an diese Messdaten lieferte: die Amplituden der Resonanzlinie von 0,11 T, 0,17 T und 0,13 T; die Breite der Zentrallinie von 1,07 kHz; die Breite der Satelliten von 1,36 kHz; die Quadrupolaufspaltung von 5,2 kHz. Das externe Feld wurde auf 0,99 T gesetzt um die Larmor-Frequenz von 9,96 MHz zu erhalten.

^{75}As und ^{69}Ga erhält man folgendes Gleichungssystem

$$\nu_{\text{q},^{75}\text{As}} = \nu_{\text{qmech},^{75}\text{As}} + \nu_{\text{qel},^{75}\text{As}} \quad (6.4)$$

$$\begin{aligned} \wedge \nu_{\text{q},^{69}\text{Ga}} &= \nu_{\text{qmech},^{69}\text{Ga}} + \nu_{\text{qel},^{69}\text{Ga}} \\ &= \frac{Q_{^{69}\text{Ga}}}{Q_{^{75}\text{As}}} \nu_{\text{qmech},^{75}\text{As}} + \frac{Q_{^{69}\text{Ga}} \cdot C_{14,^{69}\text{Ga}}}{Q_{^{75}\text{As}} \cdot C_{14,^{75}\text{As}}} \nu_{\text{qel},^{75}\text{As}} \end{aligned} \quad (6.5)$$

In dem Gleichungssystem aus zwei Gleichungen kommen nur die beiden unbekanntenen mechanisch und elektrisch verursachten Anteile der Quadrupolaufspal-

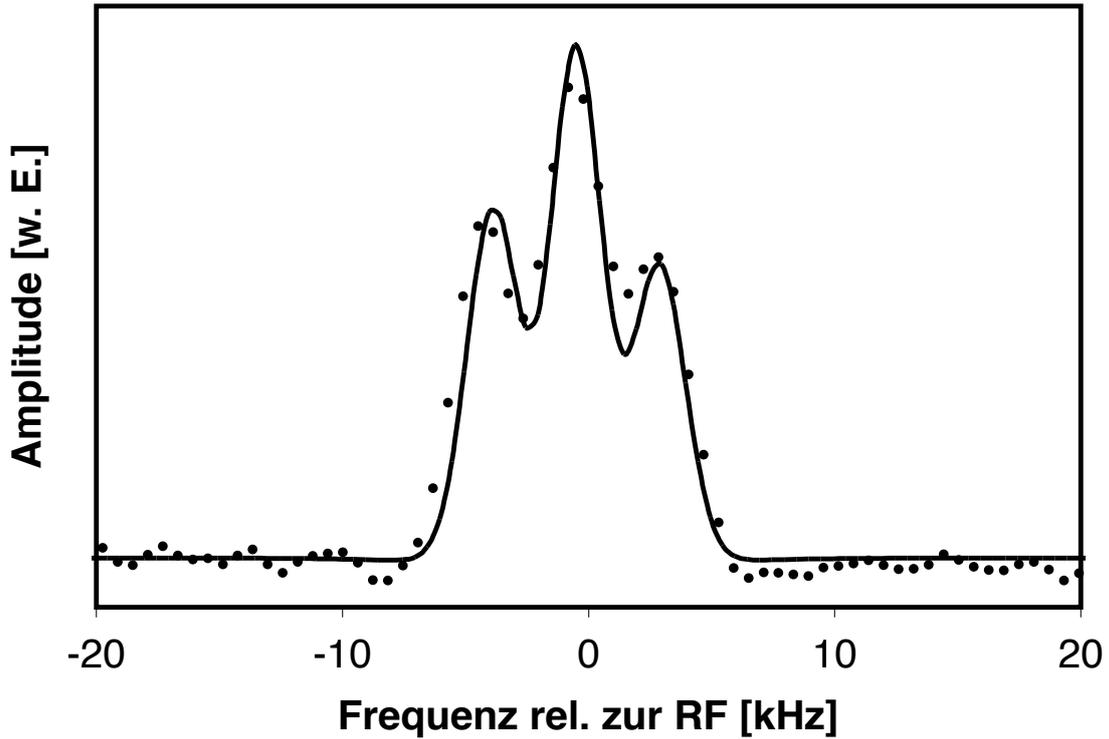


Abbildung 6.18: Gepulste ODNMR von ^{71}Ga in dem 15 nm breiten QW. Für jede Messung wurde das Kernspinsystem zuvor ebenfalls 600 s lang optisch gepumpt. Anschließend wurde mit einem $4 \mu\text{s}$ langen Puls die Polarisation aus ihrer Gleichgewichtslage herausgeklappt. Das Spektrum wurde achtmal gemittelt. Die Anpassung der Theorie an diese Messdaten lieferte: die Amplituden der Resonanzlinie von 0,040 T, 0,057 T und 0,033 T; die Breite der Zentrallinie von 1,23 kHz; die Breite der Satelliten von 1,25 kHz; die Quadrupolaufspaltung von 3,4 kHz. Das externe Feld wurde auf 0,78 T gesetzt.

tung $\nu_{\text{qmech,As}}$ und $\nu_{\text{qel,As}}$ von ^{75}As vor. Man erhält somit

$$\nu_{\text{qmech,As}} = \frac{\nu_{\text{q},^{69}\text{Ga}} - \frac{Q_{^{69}\text{Ga}} \cdot C_{14,^{69}\text{Ga}}}{Q_{^{75}\text{As}} \cdot C_{14,^{75}\text{As}}} \nu_{\text{q},^{75}\text{As}}}{\frac{Q_{^{69}\text{Ga}}}{Q_{^{75}\text{As}}} \left(1 - \frac{C_{14,^{69}\text{Ga}}}{C_{14,^{75}\text{As}}} \right)}. \quad (6.6)$$

Mit der Gleichung 6.4 kann man nun $\nu_{\text{qel,As}}$ berechnen. Die Beiträge für ^{69}Ga ^{71}Ga können aus den Verhältnissen von Q und $Q \cdot C_{14}$ bestimmt werden. Die Ergebnisse hierzu sind ebenfalls in der Tabelle 6.1 zusammengefasst. Die Summe der berechneten Beiträge für ^{71}Ga entspricht nicht ganz der gemessenen Aufspaltung. Dies liegt an den verwendeten Werten für C_{14} und Q , die nicht hinreichend genau genug bekannt sind. Trotzdem bestätigt diese Messung den gemischten Einfluss

	ν_q [kHz]	Q [10^{-29} m^2]	C_{14} [10^{12} m^{-1}]	$\nu_{q,\text{mech}}$ [kHz]	$\nu_{q,\text{elekt}}$ [kHz]
^{75}As	16,8	3	1,55	-8,1	24,9
^{69}Ga	5,2	1,78	1,05	-4,8	10,0
^{71}Ga	3,4	1,12	0,9	-3*	5,4*

Tabelle 6.1: Quadrupolaufspaltung ν_q und deren mechanisch $\nu_{q,\text{mech}}$ und elektrisch $\nu_{q,\text{elekt}}$ verursachten Anteile für alle Isotope, die in dem QW messbar sind. Die mit einem Stern gekennzeichneten Werte für ^{71}Ga wurden aus den Werten für ^{75}As und ^{69}Ga bestimmt. Deren Summe deckt sich in etwa mit dem experimentell bestimmten Wert. Eine Abweichung kann durch die nicht genau bekannten C_{14} verursacht werden.

von mechanisch erzeugtem EFG und elektrisch erzeugtem EFG in der Probe, da die Abweichung nicht sehr groß ist.

Ebenso wie die Quadrupolaufspaltung hängt die Verbreiterung der Satellitenlinie von dem jeweiligen Isotop ab. Eine Verteilung der EFG's auf der Skala des QW würde zu solch einer beobachteten Verbreiterung führen. Nimmt man die Verteilung als Gauss-förmig an, so entspricht das Quadrat der Satellitenlinienbreite der Summe der Quadrate von der Breite dieser Verteilung und der natürlichen Linienbreite. Somit ergeben sich aus den Linienbreiten von der Zentrallinie und den Satellitenlinien die jeweiligen Breiten dieser Verteilung, so wie sie in Tabelle 6.2 aufgelistet sind. Wenn die Linienverbreiterung nur durch einen elektrisch erzeugten EFG verursacht würde, so sollte die Breite der EFG-Verteilung mit dem Produkt aus Q und C_{14} skalieren. Wird sie hingegen durch einen mechanisch verursachten EFG verbreitert, so sollte sie nur mit Q skalieren. Vergleicht man die relativen Änderungen der Linienverbreiterung mit den Änderungen des Produkts aus Q und C_{14} , so sieht man eine recht gute Übereinstimmung der jeweiligen Verhältnisse. Die Linienverbreiterung wird somit wahrscheinlich durch eine Änderung der elektrischen Potentiale auf der Skala des QW erzeugt. Eine zusätzliche mechanische Ursache kann allerdings nicht ausgeschlossen werden, sie ist aber auf jeden Fall wesentlich kleiner.

Für die beiden Gallium Isotope werden wesentlich kleinere Kernfelder durch das optische Pumpen erzeugt. So ist die transversale Komponente des Kernfeldes von ^{69}Ga etwa fünfmal und die Komponenten von ^{71}Ga etwa 16-mal kleiner als die transversale Komponente des Kernfeldes von ^{75}As nach einer jeweils etwa 600 s langen Periode des optischen Pumpens.

	Linienbreite HWHM [kHz]		δ_{EFG} [kHz]	$\frac{\delta_{\text{EFG}}}{\delta_{\text{EFG}, ^{75}\text{As}}}$	Q [10^{-29} m^2]	C_{14} [10^{12} m^{-1}]	$\frac{Q}{Q_{^{75}\text{As}}}$	$\frac{Q \cdot C_{14}}{(QC_{14})_{^{75}\text{As}}}$
	Zentral- linie	Satel- liten						
^{75}As	1,08	2,27	2,00	1	3	1,55	1	1
^{69}Ga	1,07	1,36	0,84	0,42	1,78	1,05	0,59	0,40
^{71}Ga	1,23	1,25	0,22	0,11	1,12	0,9	0,37	0,22

Tabelle 6.2: Auflistung der Linienbreiten der Resonanzlinien aller drei Isotope und deren Gauss-förmige Verbreiterung durch eine Verteilung der EFGs mit der Breite δ_{EFG} . Des weiteren sind die Verhältnisse dieser Breiten und die Verhältnisse der Parameter, welche die Verteilung der EFGs beeinflussen sollten, aufgelistet. Die relative Änderung von $Q \cdot C_{14}$, die die Änderung der elektrisch erzeugten EFGs darstellt, passt deutlich besser auf die relative Änderung der δ_{EFG} als die relative Änderung von Q , welche die Änderung der mechanisch erzeugten EFGs darstellt.

6.5 Rauschen des Detektionsaufbaus

Man sieht an den Spektren aus dem vorherigen Abschnitt, dass das SNR recht gut ist und aussagekräftige Messungen im Einzelschuss aufgenommen werden können. In diesem Abschnitt soll nun untersucht werden, ob unerwartete Rauschquellen in dem Aufbau vorhanden sind. Als unvermeidliche Rauschquelle ist das Schrotrauschen anzusehen, das durch die Verteilung der einzelnen Photonen erzeugt wird. Zudem sollte der Detektor noch durch sein thermisches Rauschen am meisten zu dem Gesamtrauschen beitragen.

Wichtig für die erzeugte Rauschleistung ist die Bandbreite des gesamten Messsystems. Mit dem Bandpass, der direkt nach der APD das Signal filtert, wird die Frequenzbandbreite B auf ca. 4 MHz verringert. Das Dunkelrauschen der APD als äquivalente optische Rauschleistung, das durch thermisches Rauschen der APD und ihres nachfolgenden eingebauten Verstärkers verursacht wird, beträgt somit $\approx 0,2 \frac{\text{pW}}{\sqrt{\text{Hz}}} \cdot \sqrt{4 \cdot 10^6 \text{Hz}} = 400 \text{ pW}$. An dem Ausgang des eingebauten Verstärkers liegt somit eine effektive Rauschspannung von etwa 0,6 mV an. Dieses Dunkelrauschen wird von dem nachfolgenden Vorverstärker um ca. 30 dB (\approx Faktor 30) auf etwa 20 mV verstärkt. In dem Demodulator entstehen 6 dB Verluste (Faktor 1/2). Zudem wird das Signal in dem Demodulator auf zwei Kanäle aufgeteilt. Die mittlere Rauschspannung in jedem Kanal ist somit einen Faktor $\sqrt{2}$ kleiner. Das Dunkelrauschen am Eingang des Oszillographen beträgt somit theoretisch etwa 7 mV. Gemessen wurde ein mittleres Dunkelrauschen von 5,9 mV.

In einem optimalen Aufbau wird das Rauschen hauptsächlich durch das Schrotrauschen des Lichtes bestimmt. Die statistischen Schwankungen des Photonen-

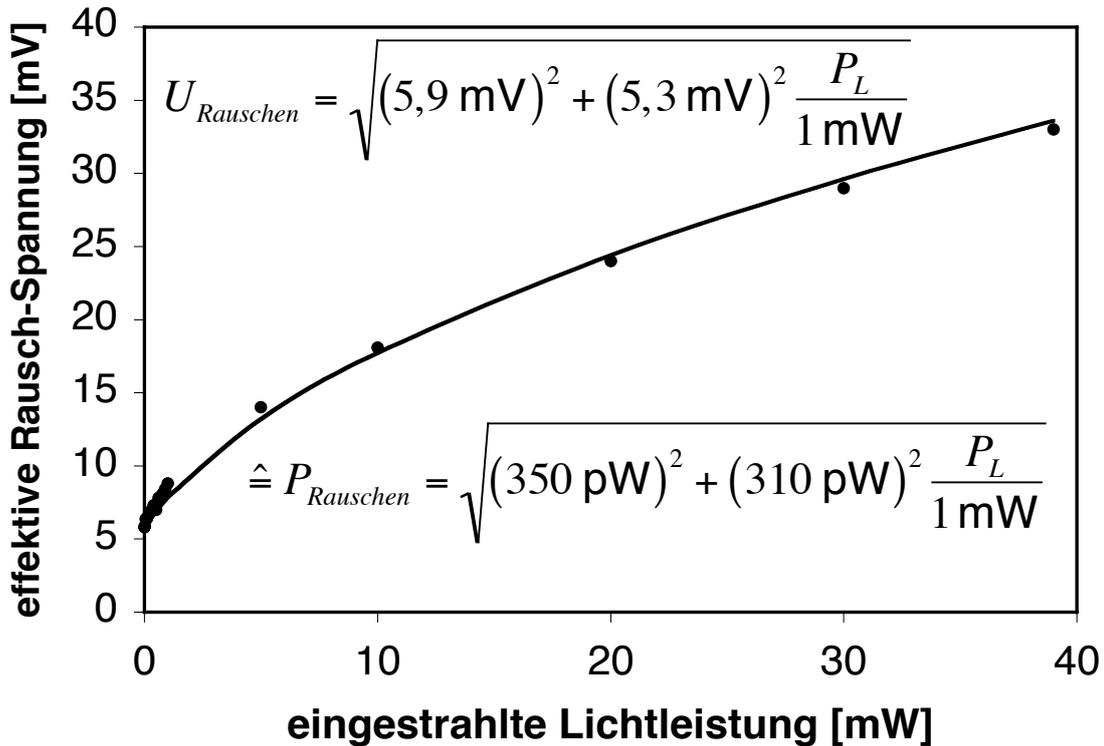


Abbildung 6.19: Verlauf der Rauschspannung in einem Kanal des Oszillographen in Abhängigkeit von der eingestrahnten Lichtleistung. Die gemessenen Werte sind als Punkte dargestellt und die durchgezogene Linie ist der theoretische Verlauf für ein Dunkelrauschen von 5,9 mV und einem Schrotrauschen bei 1 mW Pumpleistung von 5,3 mV.

stroms werden dabei durch die Poisson-Verteilung gegeben. Der Erwartungswert der Photonenzahl der Frequenz ν pro Zeiteinheit bei eingestrahelter Lichtleistung P entspricht der mittleren Photonenzahl $n = \frac{P}{h\nu}$. Die Varianz der Photonenzahl pro Zeitintervall ist somit $\sigma = \sqrt{n}$. So erhält man für die optische Leistung des Schrotrauschens [87]

$$P_{\text{SR}} = \sqrt{2h\nu P B}. \quad (6.7)$$

Das Schrotrauschen des Signalstroms verhält sich ohne Verstärkung bei einer Quanteneffizienz von 100% genauso. Aufgrund des Verstärkungsprozesses durch die Sekundärelektronen-Erzeugung vergrößert sich das Schrotrauschen des Signalstroms relativ zum Signalstrom um die Wurzel der Rauschzahl F . F ist gleich 2, falls eine Verdopplung der Ladungsträgerzahl bei jedem einzelnen Stoßprozess in der intrinsischen Zone der APD vorliegt. In dem Abschnitt 6.3 wurde ein Maximum von 60 nW detektierter Lichtleistung pro Milliwatt Pumpleistung gemessen. Somit wird theoretisch eine effektive Rauschspannung durch das Schrotrauschen

von $240 \mu\text{V}$ am Ausgang der APD erzeugt. In jedem Kanal des Spektrometers wird somit eine effektive Rauschspannung von 4 mV erzeugt. Dieser Wert ist in etwa vergleichbar mit dem Dunkelrauschen. Allerdings liegt mitten in dem Frequenzbereich, der detektiert wird der -3 dB Punkt, so dass die Rauschspannung kleiner als die hier berechneten 4 mV sein sollte.

Für größere Lichtleistungen sollte das SNR wurzelförmig ansteigen. Dieser Verlauf der Rauschleistung ist in Abbildung 6.19 zu erkennen. Für das Signalstromrauschen bei 1 mW Pumplicht ergibt sich hier ein Wert von $5,3 \text{ mV}$. Dieser Wert ist etwas größer als der berechnete Maximalwert, da die Rauschzahl des in das APD-Modul eingebauten Verstärkers nicht bekannt und somit nicht berücksichtigt werden konnte. Trotzdem zeigt diese Abschätzung, dass keine unerwarteten Rauschquellen in dem Aufbau sind, die einen deutlich größeren Beitrag zum Gesamtuschen liefern als das Schrotrauschen.

Das gepulste ODNMR Spektrum von ^{75}As in Abbildung 6.11 zeigte ein SNR von 76 für das größte Signal im Einzelschuss. Dieses Signal kommt aus dem beleuchteten Bereich des QW, in dem sich nur 10^{11} Kerne befinden. Ein ähnliches SNR in einem Einzelschuss-Experiment mit einem konventionellen NMR Spektrometer ist nur mit makroskopischen Proben zu erreichen. Um einen Vergleich anzustellen wurde das ^{75}As NMR Spektrum mit einem kommerziellen 600 MHz Varian Spektrometer aufgezeichnet (siehe Abb. 6.20). Dazu wurde das Signal einer Probe mit 10^{20} ^{75}As Kernen bei Raumtemperatur gemessen. Die Messung ergab ein SNR von 530 bei einer Mittelung über 256 Einzelmessungen. Das SNR einer einzelnen Messung beträgt also 33 und ist somit vergleichbar mit dem SNR der gepulsten ODNMR. Extrapoliert man die Kernspinpolarisation bei Zimmertemperatur zu hohen Kernspinpolarisationen, so würde man immer noch 10^{16} Kerne benötigen, um ein vergleichbares Spektrum zu erhalten.

6.6 Pulslängenabhängigkeit

Optisches Pumpen verändert die Besetzung der Kernspinniveaus. Das Kernspinsystem befindet sich folglich nicht mehr im Gleichgewicht mit dem Gitter und die Besetzung kann nicht mehr durch dessen Temperatur beschrieben werden. Die Besetzungsverteilung entspricht aber immer noch einer thermischen Besetzung mit der Spintemperatur T_S . Eine niedrige Spintemperatur spiegelt sich in den NMR Spektren zum einen in einer erhöhten Signalamplitude und zum anderen in einer Abhängigkeit des Verhältnisses der Satellitenlinien für Kerne mit einem Kernspin größer $\frac{1}{2}$ wieder [57].

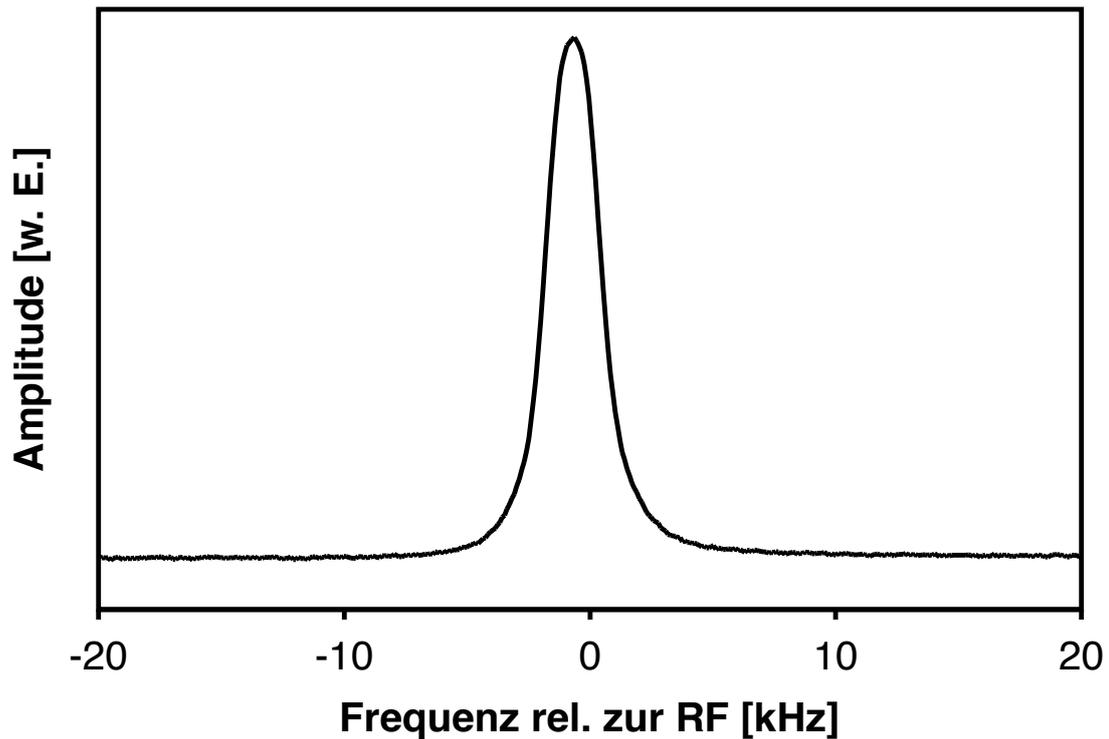


Abbildung 6.20: Konventionell detektiertes ^{75}As Spektrum einer makroskopischen GaAs Probe mit 10^{20} Kernen, gemessen in einem 600 MHz – 14 T – Varian Spektrometer bei Zimmertemperatur. Das Spektrum wurde 256-mal gemittelt und ergibt ein SNR von 530. Das SNR einer einzelnen Messung beträgt somit also 33. Dies ist vergleichbar mit den gepulsten ODNMR Spektren.

6.6.1 Berechnung der Signalamplituden für ein Spin $\frac{3}{2}$ System

Die Einstrahlung eines RF-Pulses, der in dem rotierenden Koordinatensystem ein stationäres magnetisches Feld, B_1 , erzeugt, führt zu einer Rotation der Magnetisierung um B_1 . Diese Rotation kann man als Anwendung einer Rotationsmatrix auf die Dichtematrix des Kernspinsystems betrachten. Für einen Spin I kann die irreduzible Darstellung der Rotationsgruppe benutzt werden, um die Rotationsmatrix zu erhalten. Für einen Spin $I = \frac{3}{2}$ sieht die unitäre Rotationsmatrix $\hat{D}^{\frac{3}{2}}$ für eine Rotation um die y' -Achse – die Eulerwinkel α und γ sind somit Null –

folgendermaßen aus [10]:

$$\left(\begin{array}{c|c|c|c} \cos^3\left(\frac{\beta}{2}\right) & -\sqrt{3}\cos^2\left(\frac{\beta}{2}\right) \times \sin\left(\frac{\beta}{2}\right) & \sqrt{3}\cos\left(\frac{\beta}{2}\right) \times \sin^2\left(\frac{\beta}{2}\right) & -\sin^3\left(\frac{\beta}{2}\right) \\ \hline \sqrt{3}\cos^2\left(\frac{\beta}{2}\right) \times \sin\left(\frac{\beta}{2}\right) & \cos\left(\frac{\beta}{2}\right) \times \left(3\cos^2\left(\frac{\beta}{2}\right) - 2\right) & \sin\left(\frac{\beta}{2}\right) \times \left(3\sin^2\left(\frac{\beta}{2}\right) - 2\right) & \sqrt{3}\cos\left(\frac{\beta}{2}\right) \times \sin^2\left(\frac{\beta}{2}\right) \\ \hline \sqrt{3}\cos\left(\frac{\beta}{2}\right) \times \sin^2\left(\frac{\beta}{2}\right) & -\sin\left(\frac{\beta}{2}\right) \times \left(3\sin^2\left(\frac{\beta}{2}\right) - 2\right) & \cos\left(\frac{\beta}{2}\right) \times \left(3\cos^2\left(\frac{\beta}{2}\right) - 2\right) & -\sqrt{3}\cos^2\left(\frac{\beta}{2}\right) \times \sin\left(\frac{\beta}{2}\right) \\ \hline \sin^3\left(\frac{\beta}{2}\right) & \sqrt{3}\cos\left(\frac{\beta}{2}\right) \times \sin^2\left(\frac{\beta}{2}\right) & \sqrt{3}\cos^2\left(\frac{\beta}{2}\right) \times \sin\left(\frac{\beta}{2}\right) & \cos^3\left(\frac{\beta}{2}\right) \end{array} \right) \quad (6.8)$$

Die Dichtematrix zur Zeit $t = 0$ vor dem Puls ist entsprechend der Spintemperatur Boltzmann-besetzt

$$\hat{\rho}(0-) = \frac{1}{\Sigma} \begin{pmatrix} e^{-\frac{3}{2}\frac{\hbar\omega_I}{k_B T}} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & e^{-\frac{1}{2}\frac{\hbar\omega_I}{k_B T}} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e^{\frac{1}{2}\frac{\hbar\omega_I}{k_B T}} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e^{\frac{3}{2}\frac{\hbar\omega_I}{k_B T}} \end{pmatrix}, \quad (6.9)$$

mit dem Normierungsfaktor

$$\Sigma = \sum_{m_I} e^{-m_I \frac{\hbar\omega_I}{k_B T}}. \quad (6.10)$$

Die Dichtematrix direkt nach dem Puls erhält man durch eine unitäre Transformation der Dichtematrix vor dem Puls mit der unitären Rotationsmatrix (6.8)

$$\hat{\rho}(0+) = \hat{D}^{\frac{3}{2}} \hat{\rho}(0-) \left(\hat{D}^{\frac{3}{2}}\right)^+. \quad (6.11)$$

Da $\hat{D}^{\frac{3}{2}}$ unitär ist, gilt

$$\left(\hat{D}^{\frac{3}{2}}\right)^+(\beta) = \hat{D}^{\frac{3}{2}}(-\beta). \quad (6.12)$$

Für jede Komponente von $\hat{\rho}(0+)$ gilt

$$\rho(0+)_{nm} = \sum_i D_{ni}^{\frac{3}{2}} \sum_j \rho_{ij}(0-) \left(D^{\frac{3}{2}}\right)_{jm}^+. \quad (6.13)$$

Da $\hat{\rho}(0-)$ nur Diagonalelemente besitzt vereinfacht sich 6.13 zu

$$\rho(0+)_{nm} = \sum_i D_{ni}^{\frac{3}{2}} \rho_{ii}(0-) \left(D^{\frac{3}{2}} \right)_{im}^+. \quad (6.14)$$

Durch das Abmischen mit der RF wird ein Signal erzeugt, das proportional zu der x'' Komponente im rotierenden Koordinatensystem ist. Um die Beiträge der einzelnen Übergänge separat zu betrachten, kann man für jeden dieser Übergänge eine spezielle Observable konstruieren. Zum Beispiel ist für den Übergang von $m_I = \frac{3}{2}$ nach $m_I = \frac{1}{2}$ diese Observable

$$\hat{I}_{x''}^{\frac{3}{2}\frac{1}{2}} = \begin{pmatrix} 0 & \frac{\sqrt{3}}{2} & 0 & 0 \\ \frac{\sqrt{3}}{2} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (6.15)$$

Die Signalamplituden der einzelnen Resonanzlinien eines Spin 3/2 Systems sind somit:

$$\begin{aligned} \text{Sp} \left(\hat{\rho}(0+) \hat{I}_{x''}^{\frac{3}{2}\frac{1}{2}} \right) &= \rho(0+, \beta)_{\frac{3}{2}\frac{1}{2}} \frac{\sqrt{3}}{2} + \rho(0+, \beta)_{\frac{1}{2}\frac{3}{2}} \frac{\sqrt{3}}{2} \\ &= \frac{\sqrt{3}}{2} \left[\sum_i \left(D^{\frac{3}{2}}(\beta) \right)_{\frac{3}{2}i} \rho_{ii}(0-) \left(D^{\frac{3}{2}}(-\beta) \right)_{i\frac{1}{2}} \right. \\ &\quad \left. + \sum_i \left(D^{\frac{3}{2}}(\beta) \right)_{\frac{1}{2}i} \rho_{ii}(0-) \left(D^{\frac{3}{2}}(-\beta) \right)_{i\frac{3}{2}} \right] \\ &= \frac{\sqrt{3}}{2} \sum_i \rho_{ii}(0-) \left[\left(D^{\frac{3}{2}}(\beta) \right)_{\frac{3}{2}i} \left(D^{\frac{3}{2}}(-\beta) \right)_{i\frac{1}{2}} \right. \\ &\quad \left. + \left(D^{\frac{3}{2}}(\beta) \right)_{\frac{1}{2}i} \left(D^{\frac{3}{2}}(-\beta) \right)_{i\frac{3}{2}} \right]. \end{aligned} \quad (6.16)$$

Einsetzen und Umformen liefert

$$\begin{aligned} \text{Sp} \left(\hat{\rho}(0+) \hat{I}_{x''}^{\frac{3}{2}\frac{1}{2}} \right) &= \frac{3}{2} \sin \beta \frac{1}{\Sigma} \left[\frac{1}{2} \sinh \left(-\frac{3}{2} \frac{\hbar\omega}{k_B T} \right) (\cos^2 \beta + 1) \right. \\ &\quad \left. + \cosh \left(-\frac{3}{2} \frac{\hbar\omega}{k_B T} \right) \cos \beta \right. \\ &\quad \left. - \frac{1}{2} \sinh \left(-\frac{1}{2} \frac{\hbar\omega}{k_B T} \right) (3 \cos^2 \beta - 1) \right. \\ &\quad \left. - \cosh \left(-\frac{1}{2} \frac{\hbar\omega}{k_B T} \right) \cos \beta \right]. \end{aligned} \quad (6.17)$$

Hierbei wurde ausgenutzt, dass $e^x - e^{-x} = \sinh(x)$ und $e^x + e^{-x} = \cosh(x)$ gilt. Die anderen beiden Signalamplituden ergeben sich entsprechend und lauten:

$$\begin{aligned} \text{Sp} \left(\hat{\rho}(0+) \hat{I}_{x''}^{\frac{1}{2}-\frac{1}{2}} \right) &= \frac{1}{2} \sin \beta \frac{1}{\Sigma} \left[3 \sinh \left(-\frac{3}{2} \frac{\hbar\omega}{k_B T} \right) \sin^2 \beta \right. \\ &\quad \left. + \sinh \left(-\frac{1}{2} \frac{\hbar\omega}{k_B T} \right) (9 \cos^2 \beta - 1) \right] \end{aligned} \quad (6.18)$$

und

$$\begin{aligned} \text{Sp} \left(\hat{\rho}(0+) \hat{I}_{x''}^{-\frac{1}{2}-\frac{3}{2}} \right) &= \frac{3}{2} \sin \beta \frac{1}{\Sigma} \left[\frac{1}{2} \sinh \left(-\frac{3}{2} \frac{\hbar\omega}{k_B T} \right) (\cos^2 \beta + 1) \right. \\ &\quad - \cosh \left(-\frac{3}{2} \frac{\hbar\omega}{k_B T} \right) \cos \beta \\ &\quad - \frac{1}{2} \sinh \left(-\frac{1}{2} \frac{\hbar\omega}{k_B T} \right) (3 \cos^2 \beta - 1) \\ &\quad \left. + \cosh \left(-\frac{1}{2} \frac{\hbar\omega}{k_B T} \right) \cos \beta \right]. \end{aligned} \quad (6.19)$$

Es ist eine deutliche Änderung der Abhängigkeit vom Flipwinkel bei verschiedenen Spintemperaturen zu erkennen, da sich Gleichung 6.16 und 6.19 teilweise in den Vorzeichen unterscheiden. Bei der Abhängigkeit vom Flipwinkel bei 1 K, so wie sie in Abbildung 6.21 dargestellt ist, sieht man noch keinen Einfluss. Allerdings zeigt sich bei einer Spintemperatur von 1 mK ein deutlicher Unterschied in den Signalverläufen von den beiden Satellitenlinien (siehe Abb. 6.22).

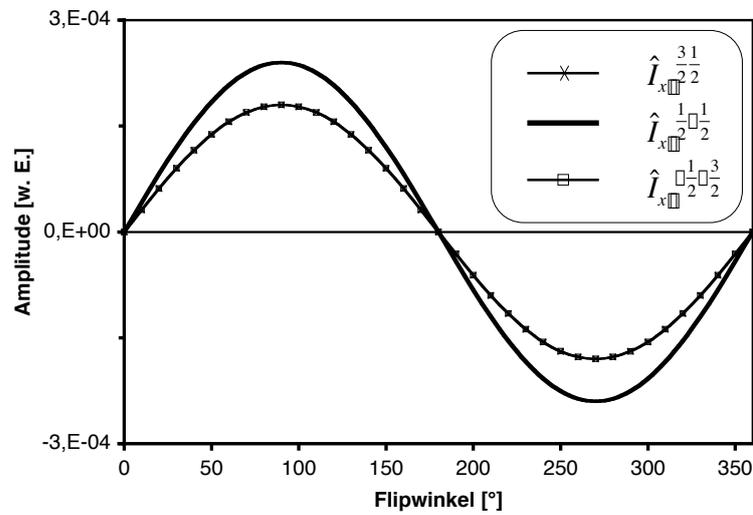


Abbildung 6.21: Gerechnete Flipwinkelabhängigkeit der Signalamplituden bei einer Spintemperatur von 1 K. Die Beiträge aller drei Resonanzlinien verlaufen sinusförmig.

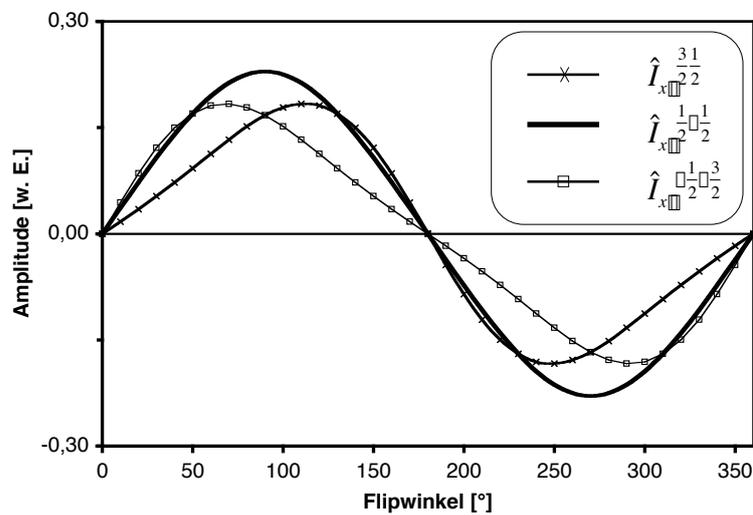


Abbildung 6.22: Gerechnete Flipwinkelabhängigkeit der Signalamplituden bei einer Spintemperatur von 1 mK. Die Beiträge der beiden Satellitenlinien entsprechen nun nicht mehr einem Sinus.

6.6.2 Messung der Spintemperatur

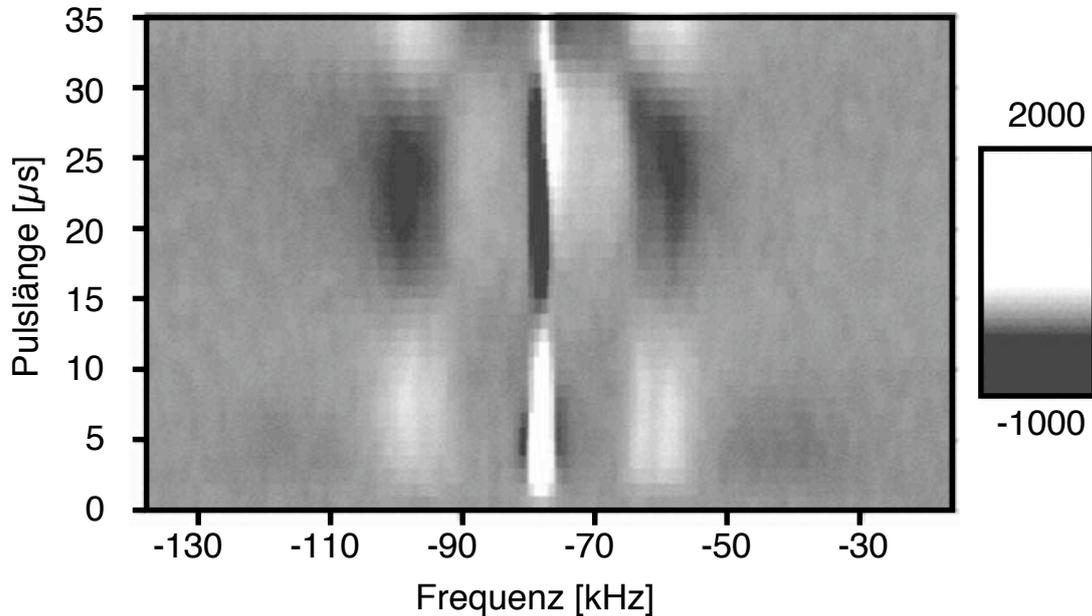


Abbildung 6.23: Pulslängenabhängige Messung der Arsen Resonanz. Vor jeder einzelnen Messung wurde die Kernspinpolarisation mit einer Folge von 10 Pulsen zerstört, die jeweils $6 \mu\text{s}$ lang und 1 ms voneinander entfernt waren, und dann 120 s lang wieder aufgebaut. Die Länge dieses Pulses ist hier gegen die Frequenz der resultierenden Signalkomponente aufgetragen. Die RF-Pulse wurden mit einer Frequenz von $10,075 \text{ MHz}$ resonant mit der mittleren Linien eingestrahlt und bei $10,15 \text{ MHz}$ demoduliert. Größere Signalamplituden sind mit einer helleren Graustufe dargestellt.

In Abbildung 6.23 ist eine Reihe von Messungen zu sehen, bei denen sukzessiv die Dauer des Pulses vergrößert wurde. Für jede einzelne Messung wurde die Polarisation 120 s lang aufgebaut, nachdem sie zuvor mit einer Sättigungspulsfolge (SAT) zerstört wurde. Die Pulsfolge SAT besteht aus einer Folge von 10 Pulsen mit einer Pulslänge von jeweils $6 \mu\text{s}$, die 1 ms voneinander getrennt sind. In der Figur wurde die jeweilige Signalstärke bei den einzelnen Frequenzen durch eine Graustufe dargestellt. Hellere Grautöne entsprechen dabei größeren Amplituden. Man erkennt bei kleinen Pulsdauern drei Linien mit positiver Amplitude, die ca. 20 kHz voneinander getrennt sind. Die mittlere Linie ist schmaler als die Satelliten und hat eine wesentlich größere Amplitude. Die drei Linien durchlaufen etwa bei 5 bis $9 \mu\text{s}$ ihre Maxima. Nach ca. $16 \mu\text{s}$ sind die Amplituden aller drei Linien verschwunden und im Bereich von etwa $24 \mu\text{s}$ sind die Amplituden maximal negativ. Es ist ein vorzeitiges Durchlaufen des Maximums der mittleren Linie im

Verhältnis zu den Satelliten zu beobachten. Da beide Satelliten aber gleichzeitig den Nulldurchgang haben, kann man das Verhältnis der Satelliten unabhängig von der mittleren Linie beurteilen. Es ist eine leichte Verschiebung beim Durchlaufen der Maxima der beiden Satelliten zu beobachten. Diese Verschiebung ist

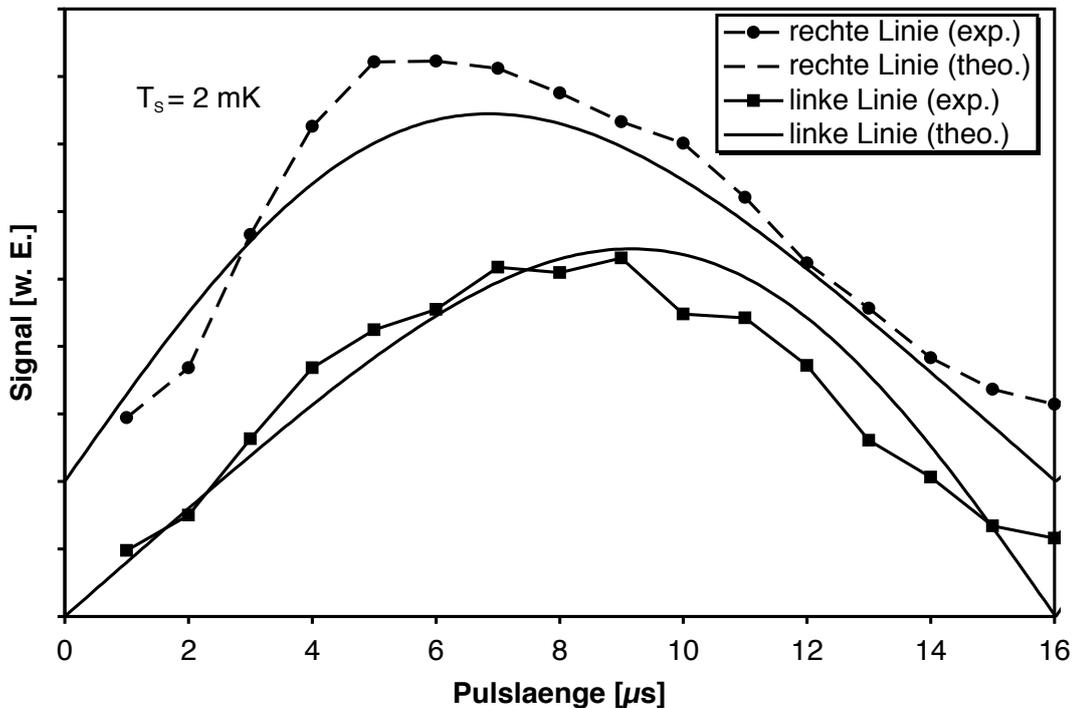


Abbildung 6.24: Die Integrale der Signalamplituden der beiden Satellitenlinien zeigen Maxima bei unterschiedlichen Pulslängen. Der linke Satellit (durchgezogen) hat sein Maximum bei etwa $10 \mu\text{s}$ und der rechte Satellit (gestrichelte Linie) bei etwa $6 \mu\text{s}$. Die Linien mit Punkten sind die experimentellen Daten und die Linien ohne Punkte entsprechen den berechneten Verläufen für eine Spintemperatur von 2 mK . Die Kurven der rechten Linie sind nach oben verschoben, um die Übersichtlichkeit zu erhöhen.

in Abbildung 6.24 in den Integralen der beiden Satellitenlinien noch deutlicher zu sehen. Aus der Verschiebung ergibt sich eine Spintemperatur von etwa 2 mK . Aus der Spintemperatur kann man die Dichtematrix bestimmen und somit den Polarisationsgrad $\frac{\text{Sp}(\hat{\rho}_z)}{1,5}$. Für eine Spintemperatur von 2 mK ergibt sich somit eine Kernspinpolarisation von 20% . Bei dem externen Feld von $1,38 \text{ T}$, das hier anlag, beträgt das gesamte Kernfeld etwa $1,3 \text{ T}$. Dazu trägt ^{75}As zu 52% bei [60, 74]. Der Betrag des Kernfeldes von ^{75}As in dem 15 nm breiten QW beträgt somit bei vollständiger Polarisation $3,38 \text{ T}$. Dieser Wert deckt sich sehr gut mit

dem von Lenzmann [60] berechneten Wert von 3,41 T für einen 15 nm breiten QW. Da die rechte Linie zuerst ihr Maximum durchläuft, kann sie mit dem Übergang zwischen $m_I = -\frac{1}{2}$ und $m_I = -\frac{3}{2}$ identifiziert werden. Falls das Vorzeichen der Quadrupolaufspaltung positiv ist, ist die Spintemperatur ebenfalls positiv. Sie ist negativ, falls das Vorzeichen der Quadrupolaufspaltung negativ ist. Die beiden Fälle können hier allerdings nicht unterschieden werden.

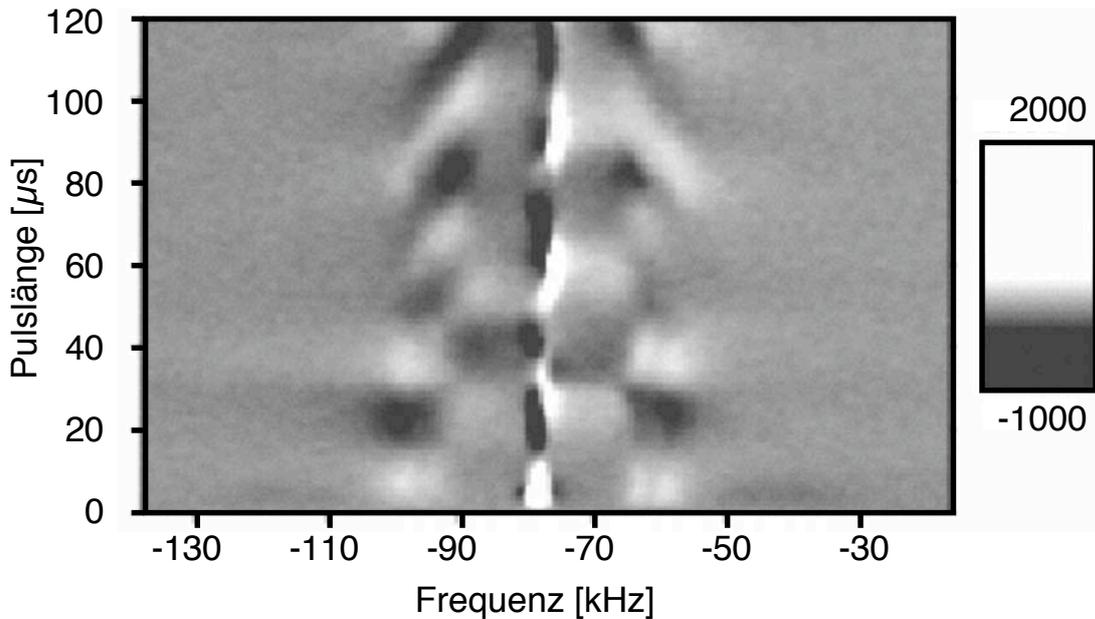


Abbildung 6.25: Bei dieser Pulslängen abhängigen Messung wurde die Dauer des Pulses bis zu $120 \mu\text{s}$ verändert. Alle anderen Parameter sind identisch zu der Messung in Abb. 6.23.

In Abbildung 6.25 ist ein größerer Bereich von Pulsdauern dargestellt. Hierbei zeigt sich eine deutliche Verschmierung der Satellitenlinien nach einer Pulslänge von $50 \mu\text{s}$ und eine starke Störung des Signalverlaufs der zentralen Linie. Diese Verzerrungen werden vermutlich durch Störungen des erzeugten B_1 -Feldes durch die Quadrupolwechselwirkung erzeugt.

6.7 2D-Spektren

Betrachtet man die zeitliche Entwicklung eines Spinsystems, so kann man Aussagen über die Spin Dynamik des Systems treffen. Um die einzelnen Spektren aufzunehmen wird eine RF-Pulsfolge eingestrahlt, wie sie in Abbildung 6.26 dargestellt ist. Mit der Sättigungspulsfolge SAT am Anfang einer jeden Messung wird die Kernspinpolarisation zerstört. Während der Polarisationszeit, die in den hier

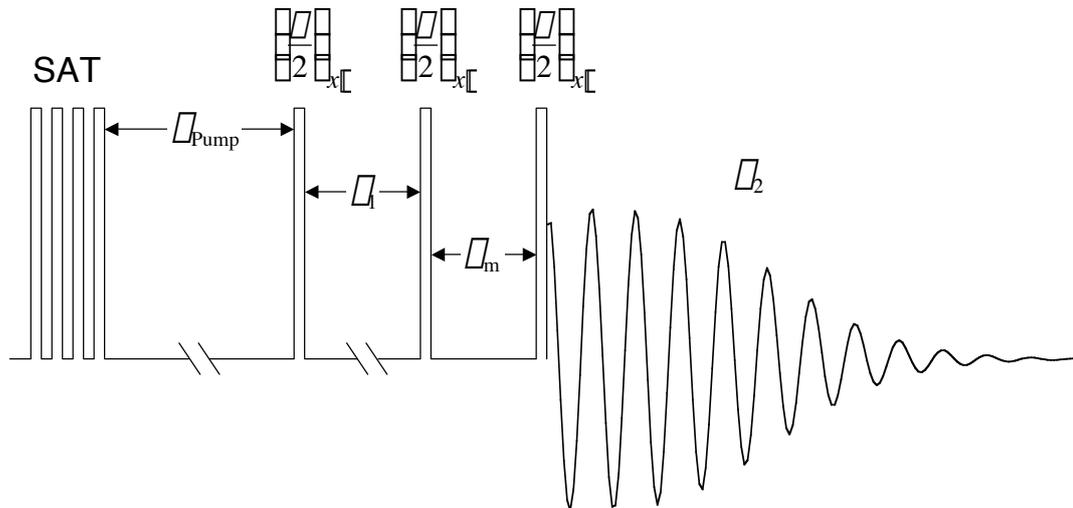


Abbildung 6.26: Die Pulsfolge, um ein 2D Austauschspektrum aufzunehmen, besteht aus einer Sättigungspulsfolge SAT von 10 Pulsen mit jeweils $6 \mu\text{s}$ Länge, die 1 ms voneinander entfernt sind, und drei $\frac{\pi}{2}$ Pulsen, die jeweils nach der Pumpzeit, nach τ_1 und τ_m eingestrahlt werden. τ_1 wird verändert und während τ_2 wird das Signal aufgezeichnet.

gezeigten Beispielmessungen 30 s lang ist, wird eine Kernspinpolarisation durch optisches Pumpen aufgebaut. Nach dieser Zeit wird ein RF-Puls eingestrahlt, um möglichst viele Kernspins in die $x''\text{-}y''$ Ebene zu klappen. Dieser Puls ist hier $6 \mu\text{s}$ lang. Nach der Zeit τ_1 wird der gleiche Puls nochmals eingestrahlt und nach der Mischzeit τ_m ein drittes Mal. Nach dem dritten Puls beginnt die Detektionszeit τ_2 . Für eine 2D-Messung wird nun sukzessive τ_1 vergrößert und jeweils die zeitliche Entwicklung nach dem dritten Puls aufgezeichnet. Eine Fouriertransformation nach τ_2 und anschließend nach τ_1 liefert ein zwei-dimensionales Frequenzspektrum, aus dem man Veränderungen des Spinsystems während τ_m ablesen kann. Behält ein Kernspin seinen Zustand während der ganzen Pulsfolge bei, so erscheint sein Signal auf der Diagonalen. Ändert er seinen Zustand, so erscheint sein Signal außerhalb der Diagonalen auf dem Schnittpunkt seiner Anfangs- und Endfrequenz. Eine ausführliche Diskussion der 2D-Spektroskopie in der NMR ist in Ref. [31] zu finden.

In den Abbildungen 6.27 und 6.28 sind 2D Austausch-Spektren von ^{75}As zu sehen, die mit der gepulsten ODNMR in dem 15 nm breitem QW gemessen wurden. Bei beiden Messungen betrug die Pumpzeit vor jeder einzelnen Aufnahme 30 s und die Mischzeit $50 \mu\text{s}$. τ_1 wurde in $10 \mu\text{s}$ Schritten bis hin zu 1 ms verändert. Bei dem Spektrum in Abb. 6.27 wurden die einzelnen Spektren für vier verschiedene Pulsphasen gemessen, wobei die Phase aller drei Pulse jeweils um 90° verscho-

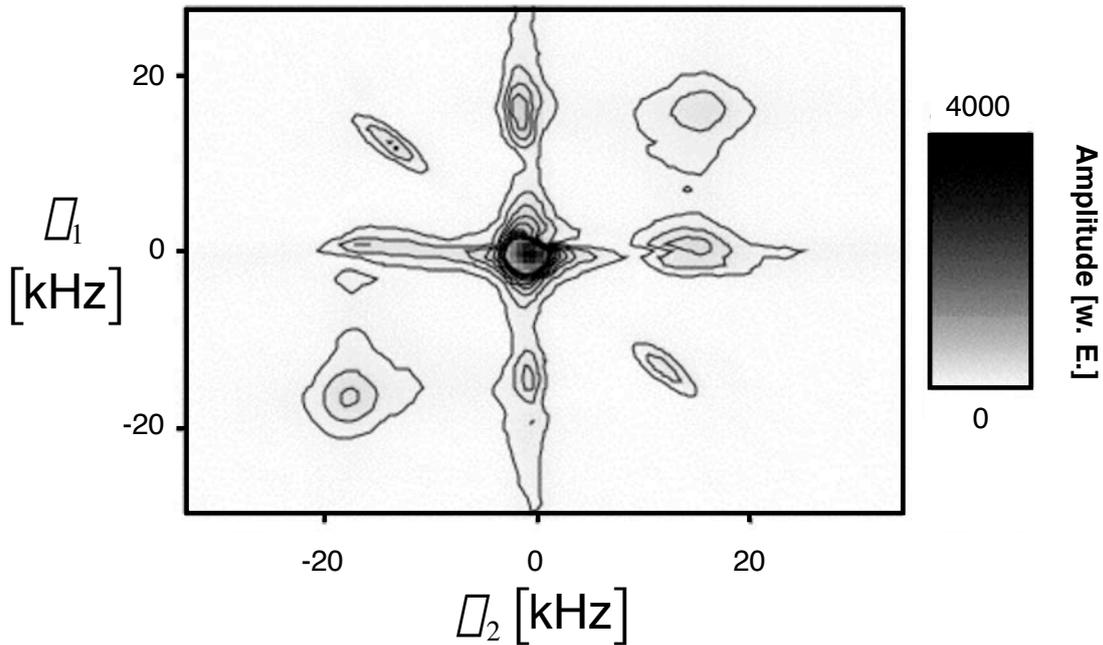


Abbildung 6.27: 2D-Austausch Spektrum von ^{75}As , bei dem die RF resonant mit der zentralen Linie eingestrahlt wurde. Die einzelnen Spektren wurden mit einer Pumpzeit von jeweils 30 s aufgenommen. Für jede Mischzeit wurden vier einzelne Spektren mit jeweils 90° Unterschied in der Pulsphase aufgezeichnet und in der Phase entsprechend korrigiert, bevor die Summe gebildet wurde, um Artefakte durch die Detektion auszuschließen.

ben wurde. Anschließend wurden die Messergebnisse entsprechend in der Phase zurückgeschoben und aufaddiert. Durch diesen Phasenzzyklus können Artefakte durch die Detektion ausgeschlossen werden, da sie im Mittel verschwinden. Die Frequenz der eingestrahlteten RF-Pulse war hierbei resonant mit der zentralen Resonanz des Spin $3/2$ Triplets. Auffällig bei dieser 2D-Messung ist zum einen die Diagonale, die gegen der Erwartung eine negative Steigung in dem Frequenzraum besitzt, und zum anderen die kreisrund ausgedehnten Spitzen außerhalb der Diagonalen, die nicht in das Raster hineinpassen, das durch die Diagonalelemente aufgespannt wird.

Das Spektrum in Abbildung 6.28 ist ähnlich zu dieser Messung, allerdings wurde hierbei nun die Frequenz der RF-Pulse um ca. 7 kHz verstimmt. Das 2D-Spektrum verschiebt sich somit auf beiden Achsen um diese Frequenz auf der Diagonalen. Es ist gut zu beobachten, dass die kreisrund ausgedehnten Spitzen sich von dem Spektrum wegbewegen (oben rechts) oder vollständig verschwunden sind (unten links). In der gefilterten Darstellung in Abbildung 6.28 tauchen diese Spitzen nicht mehr auf. Bei der Filterung wurde die Amplitude jeder Signalkomponente mit der entsprechenden Amplitude an der Position verglichen, die sich

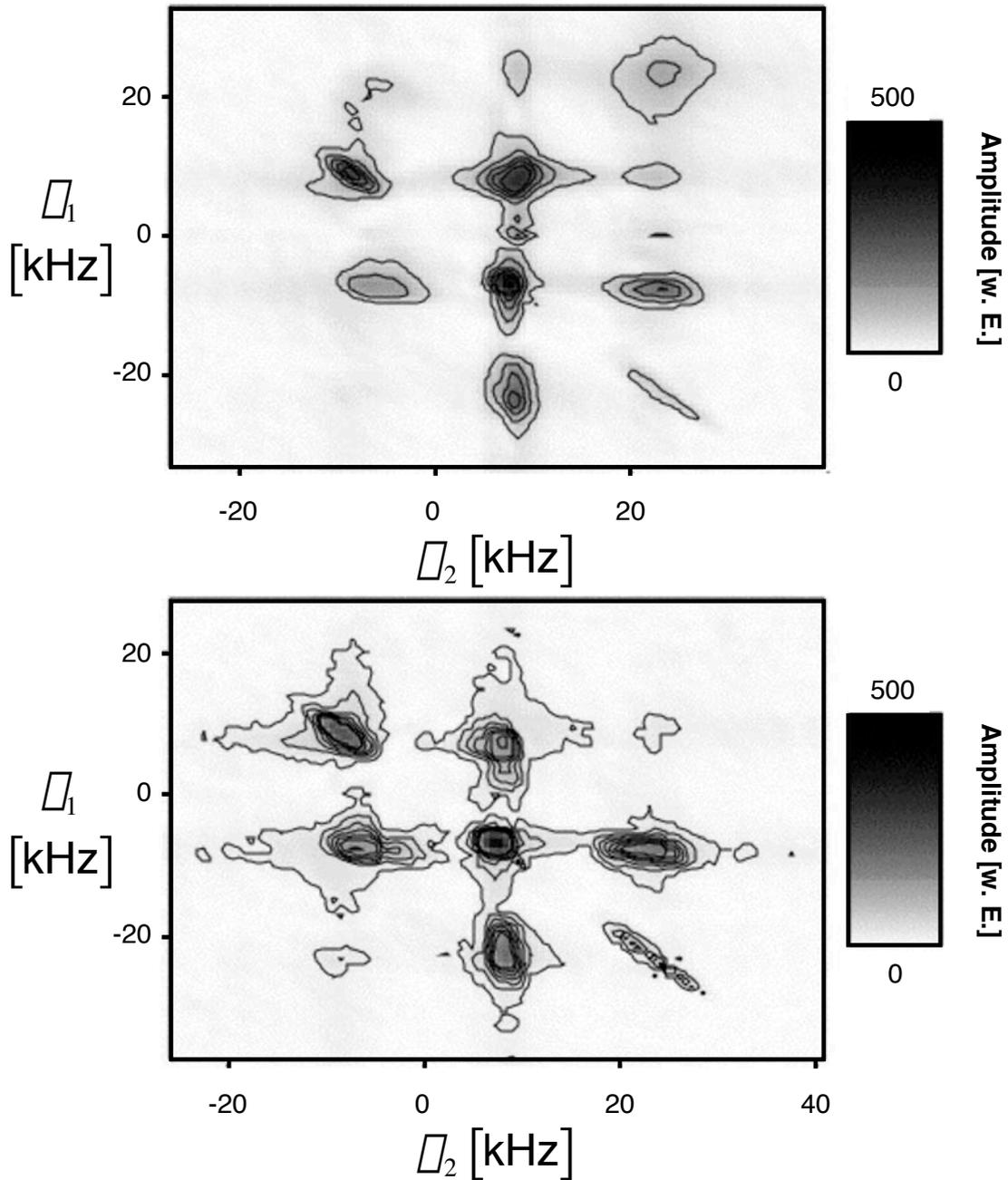


Abbildung 6.28: 2D Spektrum von ^{75}As , bei dem die RF nicht resonant mit der zentralen Linie eingestrahlt wurde, sondern ca. 7 kHz entfernt. Die einzelnen Spektren wurden mit einer Pumpzeit von jeweils 30 s aufgenommen. Für jede Mischzeit wurde zu einem Spektrum mit der Puls-Phase 0° ein Spektrum mit der Puls-Phase 180° invertiert hinzu addiert, um Artefakte durch die Detektion auszuschließen. Der obere Plot ist die unbearbeitete Messung, während in dem unteren Plot die gleiche Messung gefiltert dargestellt ist.

durch Spiegelung an der Diagonalen ergibt. Von beiden Amplituden wird dabei die kleinere genommen [31].

Die 2D-Messungen, die hier beispielhaft durchgeführt wurden, zeigen einen deutlichen Einquanten-Austausch und einen schwachen Zweiquanten-Austausch.

6.8 Verspannungsprofil

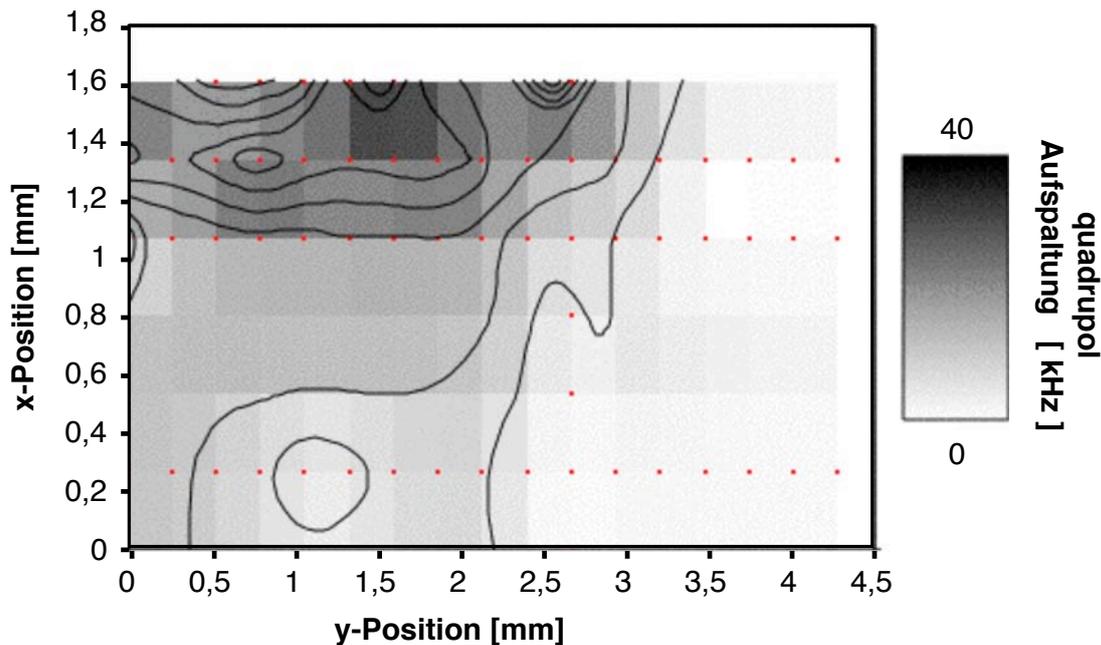


Abbildung 6.29: Profil der Quadrupolaufspaltung im 15 nm breiten QW in der Ebene des QW. An den Positionen, die mit den Punkten gekennzeichnet sind, wurden die Amplituden der Quadrupolaufspaltung als Stützpunkte gemessen. Hellere Flächen geben eine größere Aufspaltung an. Die Höhenlinien verdeutlichen den Verlauf der Aufspaltung.

Da die gepulste Messung nach wesentlich kürzerer Zeit ein brauchbares Spektrum liefert ist es möglich, in zumutbaren Messzeiten ein Profil der Quadrupolaufspaltung und somit der Verspannung der Probe zu erstellen. Hierzu wurde der Pumpstrahl in einem Raster verstellt und die Sammellinse entsprechend nachgeregelt. Das Profil der Quadrupolaufspaltung ist in Abbildung 6.29 dargestellt. Die kleinen Punkte geben die Positionen an, an denen jeweils die Quadrupolaufspaltung gemessen wurde. Die Größe der Quadrupolaufspaltung ist in Graustufen gegen die Position des Pumpstrahls aufgetragen. Zusätzlich sind Höhenlinien eingezeichnet, um das Profil einfacher zu erkennen. Die Werte zwischen den Stützpunkten wurden linear interpoliert.

Für jeden einzelnen Messpunkt wurde das Kernspinsystem zuvor 30 sec lang gepumpt und dann ein Spektrum im Einzelschuss aufgenommen. Die Position des Laserstrahls auf der Probe wurde dann jeweils um 0,27 mm verstellt. Die Position der Sammellinse vor dem Detektor wurde dementsprechend mit verstellt, um ein maximales Signal zu erhalten. Dabei musste diese Linse um etwa 3 mm verstellt werden, wenn die Position des Lasers auf der Probe um 1 mm verschoben wurde. Bei der Messung wurde dann nicht mehr bei jeder Messung die optimale Einstellung kontrolliert, sondern die Linse wurde entsprechend der Positionsänderung verschoben. Diese Messung könnte somit automatisiert werden. Mit der Verschiebung des Pumpstrahls und der Zeit des optischen Pumpens benötigt die Aufnahme eines jeden Messpunktes etwa 1 Minute. Ein vollständiges Raster der Probe in der hier gewählten Schrittweite würde somit mindestens 2 Stunden dauern. Für alle drei Isotope würde es 6 Stunden in Anspruch nehmen. Solch eine Messung könnte Aufschluss über die jeweiligen mechanischen und elektrischen Anteile der Quadrupolaufspaltung liefern.

Mit der cw-ODNMR würde man für jeden Messpunkt die Optik, die das Licht in den Monochromator abbildet, neu justieren müssen, da die Effizienz eines Monochromators wesentlich empfindlicher auf Änderungen reagiert. Eine Automatisierung wäre also wesentlich aufwendiger. Durch die Abtastung der Resonanz kommt noch eine zusätzliche Messzeit hinzu, die bei der cw-ODNMR etwa 30 sec beträgt. Eine vollständige Messung wäre also mindestens 3 Stunden länger.

Kapitel 7

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde eine Messmethode entwickelt mit der es möglich ist, in einer Halbleiter-QW-Probe in einem sehr kleinen Gebiet, das nur etwa 10^{11} Kernspins enthält, zeitlich aufgelöste und gepulst angeregte NMR Signale optisch zu messen. Diese Messmethode liefert Spektren aller Isotope in dem beobachteten Bereich mit einem Signal, das sehr deutlich und bis zu 70-mal größer als das Rauschen ist. Die Messzeit verringert sich dabei deutlich und die Spektren sind einfacher zu interpretieren als bei den bislang bekannten Methoden. Die im Experiment auftretende Signalform konnte detailgetreu durch die in dieser Arbeit geleistete theoretische Beschreibung der Signalerzeugung wiedergegeben werden.

Der immense Vorteil der gepulsten Anregung ist die freie Entwicklung der Kernspins während der Detektionszeit. Zudem wird es ermöglicht, verschiedene Zeitabhängigkeiten in Pulsfolgen zu bestimmen. Dass diese Messmethode es ermöglichen wird, detailreiche mehrdimensionale NMR Messungen durchzuführen, haben erste beispielhafte Messungen in einem einzelnen QW gezeigt.

Die gepulsten Messungen haben zudem über die Abhängigkeit der Signalamplituden von der Pulsdauer gezeigt, dass das optische Pumpen in dem QW eine Spintemperatur von lediglich 2 mK erzeugt. Dies entspricht einer Kernspinpolarisation von 20%. Aus der Größe des erzeugten Kernfeldes konnte auf ein maximales Kernfeld von 3,4 T für ^{75}As in einem 15 nm QW geschlossen werden.

Die hohe Auflösung der gepulsten Messungen hat es zudem auch ermöglicht, die Linienbreiten und Aufspaltungen aller drei Isotope zu messen. Diese Daten haben zum einen gezeigt, dass die Quadrupolaufspaltung in den QW sich aus einem mechanischen und einem elektrischen Beitrag zusammensetzt. Zum anderen zeigte die Verbreiterung der Resonanzlinien in Abhängigkeit vom Isotop, dass diese Linienverbreiterung durch elektrische Felder in dem QW verursacht wird. Messungen an QW verschiedener Dicke haben darüber hinaus auch noch gezeigt, dass die Verbreiterung von der Dicke des QW abhängt.

Messungen mit unterschiedlich langen Perioden des optischen Pumpens lieferten eine charakteristische Zeit von 55 sek, in der die Kernspinpolarisation exponentiell aufgebaut wurde.

Bei der gepulsten ODNMR ist es darüber hinaus nicht mehr notwendig, einen Monochromator zur Selektion des jeweiligen QW zu benutzen, da durch die Modulation des Lichtes mit der Larmorfrequenz das NMR Signal selektiert werden kann und zudem nur der gerade optisch gepumpte QW ein NMR Signal erzeugt.

Zusätzliche Untersuchungen in der Probe haben auch noch einige interessante Details hervorgebracht. So zeigt die Abhängigkeit der Rekombinationszeit und damit der Breite der Hanle-Kurve von der eingestrahlten Lichtintensität und der Temperatur der Probe eine Lokalisierung der Ladungsträger bei geringen Temperaturen. Dies ist durch Rauigkeiten der Grenzflächen der QWs zu erklären.

Die Feld- und Zeitabhängigkeit des optischen Pumpens in den QWs hat zudem gezeigt, dass sich ein Gleichgewichtszustand einstellt, der durch das äußere magnetische Feld bestimmt wird.

Mit Hilfe von ODNMR-Messungen an einer Reihe von QW wurde der Verlauf eines elektrischen Potentials gemessen. Es wurde bewiesen dass dieser Potentialverlauf in dem Bereich der QWs durch eine metallische Kontaktschicht erzeugt wird, die eine Schottky-Barriere in der Nähe der Grenzfläche erzeugt.

Untersuchungen zu der optisch angeregten NMR haben gezeigt, dass für die von anderen Gruppen ebenfalls beobachteten zusätzlichen NMR-Resonanzen die elektrische Quadrupolwechselwirkung verantwortlich ist, die Einquanten-Übergänge mit $\Delta m_I = \pm 2$ bei einer Intensitätsmodulation anregt. Die magnetische Dipolwechselwirkung mit $\Delta m_I = \pm 1$ Übergängen ist hingegen sowohl bei einer Intensitätsmodulation als auch bei einer Polarisationsmodulation aktiv. Für beide Wechselwirkungen konnten die Wechselwirkungsstärken bestimmt werden.

Literaturverzeichnis

- [1] A. Abragam. *Principles of Nuclear Magnetism*. Oxford University Press, 1961.
- [2] M. El Allali, C. B. Sørensen, E. Veje, and P. Tidemand-Petersson. Experimental determination of the GaAs and $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ band-gap energy dependence on temperature and aluminum mole fraction in the direct band-gap region. *Phys. Rev. B*, 48:4398–404, 1993.
- [3] J. Armstrong, N. Bloembergen, and D. Gill. Linear effect of applied electric field on nuclear quadrupole resonance. *Phys. Rev. Lett.*, 7(1):11–14, 1961.
- [4] N. Balasubramanian and A. Subrahmanyam. Schottky barrier at the indium tin oxide-n-gaas interface effect of surface arsenic deficiency. *Thin Solid Films*, 193/194:528–535, 1990.
- [5] S.E. Barrett, G. Dabbagh, L.N. Pfeiffer, K.W. West, and R. Tycko. Optically pumped nmr evidence for finite-size skyrmions in GaAs quantum wells near Landau level filling $\mu = 1$. *Phys. Rev. Lett.*, 74(25):5112–5115, 1995.
- [6] S.E. Barrett, R. Tycko, L.N. Pfeiffer, and K.W. West. Directly detected nuclear magnetic resonance of optically pumped GaAs quantum wells. *Phys. Rev. Lett.*, 72(9):1368–1371, 1994.
- [7] W. E. Bell and A. L. Bloom. Optically driven spin precession. *Phys. Rev. Lett.*, 6(6):280–1, 1961.
- [8] V.L. Berkovits, A.I. Ekimov, and V.I. Safarov. Optical orientation in a system of electrons and lattice nuclei in semiconductors. experiment. *Sov. Phys.-JETP*, 38(1):169–176, 1974.
- [9] V.L. Berkovits and V.I. Safarov. Optical detection of nuclear quadrupole resonance in doped semiconductors. *Sov. Phys. Solid State*, 20(8):1468–1469, 1978.
- [10] David M. Brink and George R. Satchler. *Angular Momentum*. Oxford University Press, 1993.

- [11] S.W. Brown, T.A. Kennedy, and D. Gammon. Optical nmr from single quantum dots. *Solid State Nuclear Magnetic Resonance*, 11:49–58, 1998.
- [12] S.W. Brown, T.A. Kennedy, E.R. Glaser, and D.S. Katzer. Optical NMR from single GaAs/AlGaAs quantum wells. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 30:1411–1415, 1997.
- [13] E. Brun, R. Hann, W. Pierce, and W.H. Tanttilla. Spin transitions induced by external rf electric field in GaAs. *Phys. Rev. Lett.*, 8(9):365–366, 1962.
- [14] E. Brun, R.J. Mahler, H Mahon, and W.L. Pierce. Electrically induced nuclear quadrupole spin transitions in a GaAs single crystal. *Phys. Rev.*, 129(5):1965–1970, 1963.
- [15] K. Brunner, G. Abstreiter, G. Böhm, G. Tränkle, and G. Weimann. Sharp-line photoluminescence of excitons localized at gaas/algaas quantum well inhomogeneities. *Appl. Phys. Lett.*, 64:3320–2, 1994.
- [16] S. K. Buratto, D. N. Shykind, and D. P. Weitekamp. Can nuclear magnetic resonance resolve epitaxial layers? *J. Vac. Sci. Technol. B*, 10(4):1740–3, 1992.
- [17] S.K. Buratto, D.N. Shykind, and D.P. Weitekamp. Time-sequenced optical nuclear magnetic resonance of gallium arsenide. *Phys. Rev. B*, 44(16):9035–9038, 1991.
- [18] W.E. Carlos, S.G. Bishop, and D.J. Treacy. Nuclear-magnetic-resonance studies of strain in isovalently doped gaas. *Phys. Rev. B*, 43(15):12512–12521, 1991.
- [19] M.H. Cohen and F. Reif. Quadrupole effects in nuclear magnetic resonance studies of solids. *Solid State Physics*, 5:321–438, 1957.
- [20] John H. Davies. *The physics of low-dimensional semiconductors*. Cambridge University Press, 1998.
- [21] A. E. Dementyev, P. Khandelwal, N. N. Kuzma, S. E. Barrett, L. N. Pfeiffer, and K. W. West. Opnmr – a local probe of spin physics. *Solid State Commun.*, 119:217–27, 2001.
- [22] K.A. Dumas, J.F. Soest, A. Sher, and E.M. Swiggard. Electrically induced shifts of the gaas nuclear spin levels. *Phys. Rev. B*, 20(11):4406–4415, 1979.
- [23] M.I. D'yakonov and V.I. Perel'. Hyperfine interaction in optical orientation of electrons in semiconductors. *Sov. Phys. JETP*, 36(5):995–1000, 1973.

- [24] M.I. D'yakonov and V.I. Perel'. Optical orientation in a system of electrons and lattice nuclei in semiconductors. theory. *Sov. Phys.-JETP*, 38(1):177–183, 1974.
- [25] M.I. Dyakonov and V.I. Perel. Theory of optical spin orientation of electrons and nuclei in semiconductors. In F. Meier and B.P. Zakhardunya, editors, *Optical Orientation*, volume 8, page 11 ff. North-Holland Physics Publishing, 1984.
- [26] M.I. D'yakonov, V.I. Perel', V.L. Berkovits, and V.I. Safarov. Optical effects due to polarization of nuclei in semiconductors. *Sov. Phys.-JETP*, 40(5):950–955, 1975.
- [27] Alan Robert Edmonds. *Drehimpulse in der Quantenmechanik*. Bibliogr. Inst. Mannheim, 1964.
- [28] M. Eickhoff, B. Lenzmann, D. Suter, S. E. Hayes, and A. D. Wieck. Mapping of strain and electric fields in $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ quantum-well samples by laser-assisted nmr. *Phys. Rev. B*, 67:085308, 2003.
- [29] A.I. Ekimov and V.I. Safarov. Optical electron-nuclear resonance in semiconductors. *ZhETF Pis. Red.[JETP Lett.]*, 15(8):453–455, 1972.
- [30] R. R. Ernst and W. A. Anderson. Application of fourier transform spectroscopy to magnetic resonance. *Rev. Sci. Instrum.*, 37(1):93–102, 1966.
- [31] Richard R. Ernst, Geoffrey Bodenhausen, and Alexander Wokaun. *Principles of Nuclear Magnetic Resonance in One and Two Dimensions*. Oxford Science Publications, 1987.
- [32] W. Farah, M. Dyakonov, D. Scalbert, and W. Knap. Optically induced nuclear magnetic field in InP . *Phys. Rev. B*, 57(8):4713–9, 1998.
- [33] E. Fermi. Uber die magnetischen momente der atomkerne. *Z. Phys.*, 60:320–33, 1930.
- [34] V.G. Fleisher, V.L. Vekua, R.I. Dzhioev, and B.P. Zakharchenya. Instability of polarization in a system of electron and nuclear spins of an n-type semiconductor under optical orientation in weak magnetic fields. *JETP Lett*, 21(9):255–256, 1975.
- [35] G. P. Flinn, R. T. Harley, M. J. Snelling, A. C. Tropper, and T. M. Kerr. Optically detected nuclear magnetic resonance of nuclei within a quantum well. *Semicond. Sci. Technol.*, 5:533–537, 1990.

- [36] G.P. Flinn, R.T. Harley, M.J. Snelling, A.C. Tropper, and T.M. Kerr. Optically detected nuclear magnetic resonance in semiconductor quantum wells. *Journal of Luminescence*, 45:218–220, 1990.
- [37] H. Fu, L.-W. Wang, and A. Zunger. Excitonic exchange splitting in bulk semiconductors. *Phys. Rev. B*, 59:5568–74, 1999.
- [38] Y. Fukuda, J. Hayashi, K. Kondo, and T. Hashi. Synchronized quantum beat spectroscopy using periodic impact excitations with cw mode-locked laser pulses. *Opt. Commun.*, 38(5,6):357–60, 1981.
- [39] D. Gill and N. Bloembergen. Linear stark splitting of nuclear spin levels in gaas. *Phys. Rev.*, 129(6):2398–2403, 1963.
- [40] D.J. Guerrier and R.T. Harley. Calibration of strain vs nuclear quadrupol splitting in III-V quantum wells. *Appl. Phys. Lett.*, 70(13):1739–1741, 1997.
- [41] H. Harde, H. Burggraf, J. Mlynek, and W. Lange. Quantum beats in forward scattering: subnanosecond studies with a mode-locked dye laser. *Opt. Lett.*, 6(6):290–2, 1981.
- [42] M. Horvatic and C. Berthier. High field nmr in strongly correlated low-dimensional fermionic systems. *Int. J. Mod. Phys. B*, 16(20-22):3265–70, 2002.
- [43] T. Ida, M. Ando, and H. Toraya. Extended pseudo-voigt function for approximating the voigt profile. *J. Appl. Cryst.*, 33(6):1311–6, 2000.
- [44] V. K. Kalevich. Optically induced nuclear magnetic resonance in semiconductors. *Sov. Phys. Solid State*, 28(11):1947–9, 1986.
- [45] V. K. Kalevich, V. D. Kul'kov, and V. G. Fleisher. Optical cooling of the spin system of nuclei in a semiconductor lattice in a rotating system of coordinates. *Sov. Phys. Solid State*, 22(4):703–705, 1980.
- [46] V. K. Kalevich, V. D. Kul'kov, and V. G. Fleisher. Manifestation of the sign of the g factor of conduction electrons in resonant cooling of the nuclear spin system of a semiconductor. *Sov. Phys. Solid State*, 23(5):892–893, 1981.
- [47] V.K. Kalevich and V.L. Korenev. Nonlinear properties of an electron-nuclear spin system of AlGaAs crystals in a strong magnetic field. *Sov. Phys. Solid State*, 30(7):1194–1196, 1988.
- [48] V.K. Kalevich, V.L. Korenev, and O.M. Fedorova. Optical polarization of nuclei in GaAs/AlGaAs quantumwell structures. *JETP Lett.*, 52(6):349–354, 1990.

- [49] J.G. Kempf and D.P. Weitekamp. Method for atomic-layer-resolved measurement of polarized fields by nuclear magnetic resonance. *J. Vac. Sci. Technol. B*, 18(4):2255–2262, 2000.
- [50] P. Khandelwal, N. N. Kuzma, S. E. Barrett, L. N. Pfeiffer, and K. W. West. Optically pumped nuclear magnetic resonance measurements of the electron spin polarization in GaAs quantum wells near Landau level filling factor $\nu = \frac{1}{3}$. *Phys. Rev. Lett.*, 81(3):673–6, 1998.
- [51] J.M. Kikkawa and D.D. Awschalom. All-optical magnetic resonance in semiconductors. *Science*, 287:473–476, 2000.
- [52] Charles Kittel. *Einführung in die Festkörperphysik*. Oldenbourg Verlag München Wien, 1996.
- [53] H. Klepel and D. Suter. Transverse optical pumping with polarization-modulated light. *Opt. Commun.*, 90:46–50, 1992.
- [54] M. Krapf, G. Denninger, H. Pascher, G. Weimann, and W. Schlapp. Optically detected conduction electron spin resonance and Overhauser shift in p-GaAlAs/GaAs-heterostructures. *Solid State Communications*, 74(10):1141–1145, 1990.
- [55] M. Krapf, G. Denninger, H. Pascher, G. Weimann, and W. Schlapp. Optically detected conduction electron spin resonance, Overhauser shift and nuclear magnetic resonance in p-GaAlAs/GaAs-heterostructures. *Superlattices and Microstructures*, 8(1):91–96, 1990.
- [56] M. Krapf, G. Denninger, H. Pascher, G. Weimann, and W. Schlapp. Optically detected nuclear magnetic resonance and Knight shift in $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ heterostructures. *Sol. State Comm.*, 78(5):459–464, 1991.
- [57] P. L. Kuhns and J. S. Waugh. Signs of the quadrupole coupling in ${}^7\text{LiNO}_3$ from nuclear magnetic resonance at low temperature. *J. Chem. Phys.*, 97(3):2166–7, 1992.
- [58] T. Kushida and K. Saiki. Shift of nuclear quadrupole resonance frequency by electric field. *Phys. Rev. Lett.*, 7(1):9–10, 1961.
- [59] G. Lampel. Nuclear dynamic polarization by optical electronic saturation and optical pumping in semiconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 20(10):491–493, 1968.
- [60] Björn Lenzmann. *Advancements in Optically Detected Nuclear Magnetic Resonance Applied to Nanoscopic GaAs/AlGaAs Heterostructures*. PhD thesis, Universität Dortmund, September 2001.

- [61] Xi-An Mao and Chao-Hui Ye. Understanding radiation damping in a simple way. *Concepts Magn. Reson.*, 9:173–87, 1997.
- [62] J.A. Marhon, P.J. Carson, J.Y Hwang, M.A. Miller, D.N. Shykind, and D.P. Weitekamp. Optical larmor beat detection of high-resolution nuclear magnetic resonance in a semiconductor heterostructure. *Phys. Rev Lett.*, 75(7):1364–1367, 1995.
- [63] J. W. Matthews and A. E. Blakeslee. Defects in epitaxial multilayers. *J. Cryst. Growth*, 27:118–125, 1974.
- [64] J.A. McNeil and W.G. Clark. Nuclear quadrupolar spin-lattice relaxation in some III-V compounds. *Phys. Rev. B*, 13(11):4705–4713, 1976.
- [65] Michael Mehring. *Principles of High Resolution NMR in Solids*. Springer Berlin, 1983.
- [66] S. Melinte, N. Freytag, M. Horvatic, C. Berthier, L. P. Levy, V. Bayot, and M. Shayegan. Spin polarization of two-dimensional electrons in gaas quantum wells around landau level filling $\nu=1$ from nmr measurements of gallium nuclei. *Phys. Rev. B*, 64:085327, 2001.
- [67] S. Melinte, N. Freytag, M. Horvatic, C. Berthier, L.P. Levy, V. Bayot, and M. Shayegan. Nmr determination of 2d electron spin polarization at $\nu = 1/2$. *Phys. Rev. Lett.*, 84(2):354–357, 2000.
- [68] Li Ming-Fu. *Modern Semiconductor quantum physics*. World Scientific, 1994.
- [69] A.Ñ. Ongstad, D.Ñ. Gallant, and G.Ñ. Dente. Carrier lifetime saturation in ingaas single quantum wells. *Appl. Phys. Lett.*, 66(20):2730, May 1995.
- [70] A. W. Overhauser. Paramagnetic relaxation in metals. *Phys. Rev.*, 89(4):689–700, Feb. 1953.
- [71] A. W. Overhauser. Polarization of nuclei in matels. *Phys. Rev.*, 92(2):411–415, Oct. 1953.
- [72] D. Paget. Optical detection of NMR in high-purity GaAs under optical pumping: Efficient spin-exchange averaging between electronic states. *Phys. Rev. B*, 24(7):3776–3793, 1981.
- [73] D. Paget. Optical detection of NMR in high-purity GaAs: Direct study of the relaxation of nuclei close to shallow donors. *Phys. Rev. B*, 25(7):4444–4451, 1982.
- [74] D. Paget, G. Lampel, B. Sapoval, and V.I. Safarov. Low field electron-nuclear spin coupling in gallium arsenide under optical pumping conditions. *Phys. Rev. B*, 15(12):5780–5796, 1977.

- [75] Daniel Paget. Optical-pumping study of spin-dependent recombination in GaAs. *Phys. Rev. B*, 30(2):931–946, 1984.
- [76] Jacques I. Pankove. Solid state physical electronics series. In Jr. Nick Holonyak, editor, *Optical Processes in Semiconductors*. Prentice-Hall, Inc., 1971.
- [77] K. Ploog. Mikroskopische strukturierung von festkörpern durch molekularstrahl-epitaxie - ortsaufgelöste materialsynthese. *Angew. Chem.*, 100(5):611–639, 1988.
- [78] P. Revva, J. M. Langer, M. Missous, and A. R. Peaker. Temperature dependence of the schottky barrier in ai/aigaas metal-semiconductor junctions. *J. Appl. Phys.*, 74(1):416–425, 1993.
- [79] G. Salis, D. D. Awschalom, Y. Ohno, and H. Ohno. Origin of enhanced dynamic nuclear polarization and all-optical nuclear magnetic resonance in gaas quantum wells. *Phys. Rev. B*, 64:195304, 2001.
- [80] G. Salis, D. T. Fuchs, J. M. Kikkawa, D. D. Awschalom, Y. Ohno, and H. Ohno. Optical manipulation of nuclear spin by a two-dimensional electron gas. *Phys. Rev. Lett.*, 86(12):2677–2680, 2001.
- [81] M. Schreiner, H. Höchstetter, H. Pascher, and S.A. Studenikin. Lineshapes of optically detected nuclear magnetic resonance in GaAs/AlGaAs heterostructures. *Journ. of Magn. Reson.*, 124:80–86, 1997.
- [82] M. Schreiner, H. Pascher, G. Denninger, S.A. Studenikin, G. Weimann, and R. Lösch. Nuclear spin relaxation in AlGaAs/GaAs heterostructures observed via optically detected magnetic resonance (ODMR) experiments. *Solid State Communications*, 102(10):715–720, 1997.
- [83] K. Singer, S. Jochim, M. Mudrich, A. Mosk, and M. Weidemüller. Low-cost mechanical shutter for light beams. *Rev. Sci. Instrum.*, 73(12):4402–04, Dec 2002.
- [84] C. P. Slichter. *Principles of magnetic resonance*. Springer Verlag, 3 edition, 1992.
- [85] M.J. Snelling, E. Blackwood, C.J. McDonagh, R.T. Harley, and C.T.B. Foxon. Exciton, heavy-hole, and electron g factors in type-i gaas/al_xga_{1-x}as quantum wells. *Phys. Rev. B*, 45(7):R3922–R3925, 1992.
- [86] M.J. Snelling, G.P. Flinn, A.S. Plaut, R.T. Harley, A.C. Tropper, R. Eccleston, and C.C. Phillips. Magnetig g factor of electrons in GaAs/Al_xGa_{1-x}As quantum wells. *Phys. Rev. B*, 44(20):11345–11352, 1991.

- [87] Aldert van der Ziel. *Noise: Sources, Characterization, Measurement*. Prentice-Hall Inc., Englewood Cliffs, N.J., 1970.
- [88] Y. P. Varshni. Temperature dependence of the energy gap in semiconductors. *Physica*, 34:149, 1967.
- [89] Woldemar Voigt. *Lehrbuch der Kristallphysik*. Teubner Stuttgart, 1966.
- [90] P. Wang, K.̃. Lee, G. Yao, Y.̃. Chen, and R.̃. Waters. Carrier recombination rate in gaas-algaas single quantum well lasers under high levels of excitation. *Appl. Phys. Lett.*, 56(21):2083, May 1990.
- [91] Peter Y. Yu and Manuel Cardona. *Fundamentals of semiconductors*. Springer-Verlag, 3. edition, 2001.
- [92] B.P. Zakharchenya, V.K. Kalevich, V.D. Kul'kov, and V.G. Fleisher. Optical orientation of the electron-nucleus spin system in a semiconductor in an inclined magnetic field. *Sov. Phys. Solid State*, 23(5):810–813, 1981.
- [93] Richard N. Zare. *Angular Momentum*. Wiley New York, 1988.

Danksagung

Ich möchte all denen Danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Allen voran möchte ich meinem Doktorvater Herrn Prof. Dr. D. Suter für sein reges Interesse an meiner Arbeit und der Bereitstellung der Mittel danken. Anhand von Diskussionen mit ihm und zahlreicher Anregungen und Hilfestellungen hat er sehr dazu beigetragen die Arbeit voranzubringen.

Ich möchte meinem Laborgefährten Dr. Björn Lenzmann sehr herzlich für die harmonische Zusammenarbeit danken, da wir so zusammen sehr viele Details des experimentellen Aufbaus entscheidend verbessern konnten. Zudem hat mir sein Verständnis für die Physik in den zahlreichen Diskussionen sehr oft weitergeholfen.

Prof. Sophia Hayes möchte ich sehr für ihr Engagement und ihre konstruktiven Beiträge zu meiner Arbeit danken. Ihre Zeit in Dortmund hat unser Projekt sehr belebt und vorangetrieben.

Dr. Gregory Patrick Flinn, Dr. Soheyla Eshlaghi und Carsten Pieper möchte ich als meine Vorgänger in dem Projekt danken, welche die Untersuchungen an den Quantentopf-Proben überhaupt erst ermöglicht haben.

Allen Mitarbeitern des Lehrstuhls Experimentelle Physik III gilt mein Dank. Ganz besonders möchte ich dabei Hans-Georg Krojanski, Karsten Husemann und Jörg Gutschank hervorheben, die mir oft bei der Lösung von technischen und physikalischen Problemen zur Seite standen. Auch werde ich unsere langjährige DoKo-Runde vermissen.

Für die hervorragenden Proben möchte ich der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. A. Wieck sehr herzlich danken.

Den Mitarbeitern der mechanischen und elektronischen Werkstätten, der Elektronik Entwicklung, des Konstruktionsbüros, des Präparationslabors und der Tieftemperaturversorgung danke ich für ihre professionellen Arbeiten.

Angelika Sommer, Horst Rombeck und Walerian Goralczyk möchte ich für die Verwaltungsarbeit und die technische Unterstützung, sowie für die gute Atmosphäre im Lehrstuhl danken.

Mein ganz besonderer Dank gilt vor allem Carina, die mich jederzeit unterstützt hat und immer für mich da war.

Meinen Eltern und meiner Familie möchte ich danken, dass sie mir mein Studium ermöglicht haben und mich immer unterstützt haben.