Spindynamik in GaAs und (110)-GaAs-Heterostrukturen

Von der Fakultät für Mathematik und Physik der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover zur Erlangung des Grades

> Doktor der Naturwissenschaften Dr. rer. nat. genehmigte Dissertation

> > von

Dipl.-Phys. Stefan Oertel geboren am 8. Februar 1978 in Duisburg

 $\mathbf{2012}$

Referent:Prof. Dr. Michael OestreichKorreferent:Prof. Dr. Rolf J. HaugTag der Promotion:21.12.2011

Kurzzusammenfassung

Die vorliegende Arbeit untersucht mittels der zeit- und polarisationsaufgelösten Photolumineszenzspektroskopie die Spindynamik sowohl in Volumen-GaAs als auch in (110)-GaAs-Heterostrukturen.

In Volumen-GaAs wird die Spinrelaxationszeit erstmals im Hochtemperaturbereich von 280 K bis 400 K gemessen und mit numerischen Berechnungen verglichen. Die numerischen Berechnungen basieren auf der Spinrelaxationstheorie des Dyakonov-Perel-Mechanismus unter dem Einfluss der Impulsstreuung mit polar optischen Phononen und der Elektron-Elektron-Streuung und sind in guter Übereinstimmung mit den Messergebnissen. Dichteabhängigkeitsmessungen dienen zur Bestimmung des energieabhängigen Proportionalitätsfaktors zwischen der Elektronendichte und der effektiven Elektron-Elektron-Streuzeit.

Ebenfalls in Volumen-GaAs wird die Wechselwirkung des Elektronenspinsystems mit dem Kernspinsystem untersucht. Der gemessene Elektron-Landég-Faktor unter dem Einfluss des Kernmagnetfeldes dient als Indikator für die zeitliche Entwicklung des Kernmagnetfeldes unter andauernder dynamischer Kernspinpolarisation. Die Messungen bei polarisationsmodulierter Anregung ermöglichen die Bestimmung der relevanten Zeitskala der dynamischen Kernspinpolarisation. Ferner zeigt die zeitliche Entwicklung des gemessenen Elektron-Landé-g-Faktors das komplexe Zusammenspiel zwischen der dynamischen Kernspinpolarisation, der Kernspindiffusion und der Kernspinrelaxation auf.

In symmetrischen (110)-GaAs-Quantenfilmen wird die Anisotropie des Elektron-Landé-g-Faktors innerhalb der Quantenfilmebene in Abhängigkeit von der Quantenfilmbreite experimentell bestimmt. Die Messungen stehen in sehr guter Übereinstimmung mit Berechnungen basierend auf der $k \cdot p$ -Theorie und zeigen ein Maximum der Anisotropie bei maximaler Ladungsträgerlokalisierung im Quantenfilm. Der Ursprung der Anisotropie, die in symmetrischen (001)-Quantenfilmen nicht vorliegt, wird anhand eines vereinfachten störungstheoretischen Modells qualitativ beschrieben.

Eine spezielle (110)-GaAs-Heterostruktur, bestehend aus einem 9 nm Quantenfilm, der über 3 nm dünne AlGaAs-Barrieren von zwei umgebenden 4 nm Quantenfilmen getrennt ist, wird charakterisiert: Die Elektronenspinpolarisation des 9 nm Drain-Quantenfilmes wird in Abhängigkeit von der Energie der zirkularen optischen Injektion gemessen. Bei der indirekten optischen Injektion über die Schwerloch-Resonanz der beiden dünnen Quantenfilme wird eine Elektronenspinpolarisation von 75% im Drain-Quantenfilm erreicht. Anhand der Struktur werden zusätzlich die Auswirkungen von wachstumsbedingten Grenzflächenunebenheiten in dem 9 nm Quantenfilm untersucht.

Die (110)-GaAs-Heterostruktur dient zur experimentellen Bestimmung der Spinrelaxationszeit in (110)-GaAs-Quantenfilmen über einen großen Dichteund Temperaturbereich. Die spezielle Wachstumsrichtung der Struktur ermöglicht die Untersuchung von Spinrelaxationsmechanismen, die ansonsten durch den dominierenden Dyakonov-Perel-Mechanismus überdeckt sind. Die gemessenen Elektronenspinrelaxationszeiten werden als Exzitonenindikator innerhalb des erzeugten Elektron-Loch-Plasmas interpretiert und zeigen eine gute Übereinstimmung mit einem einfachen Modell basierend auf dem berechneten Exzitonenanteil innerhalb des Elektron-Loch-Plasmas.

Schlagworte:

Halbleiter, Elektronenspin, Spinrelaxation

Abstract

This thesis investigates the spin dynamics in both bulk GaAs and (110)-GaAs heterostructures using time- and polarization-resolved photolumine-scence spectroscopy.

In bulk GaAs the spin relaxation time is measured for the first time in the high temperature regime from 280 K to 400 K and is compared to numerical calculations. The numerical calculations are based on the spin relaxation theory of the Dyakonov-Perel mechanism effected by momentum scattering with polar optical phonons and electron-electron scattering and are in good agreement with the experimental results. Measurements of the dependence on the electron density serve to determine the energy dependent proportional factor between the electron density and the effective electron-electron scattering time.

Also in bulk GaAs the interaction between the electron spin system and the nuclear spin system is investigated. The measured electron Landé g-factor under the influence of the nuclear magnetic field is used as an indicator to monitor the temporal evolution of the nuclear magnetic field under sustained dynamic nuclear polarization. Measurements with polarization modulated excitation enable the determination of the relevant time scale at which dynamic nuclear polarization takes place. Furthermore, the temporal evolution of the measured electron Landé g-factor shows the complex interplay of the dynamic nuclear polarization, the nuclear spin diffusion and the nuclear spin relaxation.

In symmetric (110)-GaAs quantum wells the dependence of the inplane anisotropy of the electron Landé g-factor on the quantum well thickness is determined experimentally. The measurements are in very good agreement with calculations based upon $k \cdot p$ -theory and reveal a maximum of the anisotropy at maximum carrier localization in the quantum well. The origin of the anisotropy that is not present in symmetric (001) quantum wells is qualitatively described by means of a simplified model based on fourth-order perturbation theory.

A specially designed (110)-GaAs heterostructure consisting of a 9 nm thick quantum well separated by 3 nm thin AlGaAs barriers from two adjacent 4 nm quantum wells is characterized: The electron spin polarization in the 9 nm drain quantum well is measured in dependence on the energy of the circular optical injection. At the indirect optical injection via the heavy hole resonance of the thin quantum wells an electron spin polarization of 75% in the drain quantum well is reached. By means of the structure the impact of interface roughnesses in the 9 nm quantum well on the carrier dynamics is additionally investigated.

The (110)-GaAs heterostructure is used to determine the spin relaxation time in (110)-GaAs quantum wells experimentally over a wide range of densities and temperatures. The special growth direction of the structure provides access to spin relaxation mechanisms that are usually concealed by the dominating Dyakonov-Perel mechanism. The measured electron spin relaxation times are interpreted as an exciton marker within the electron-hole plasma and are in good agreement with a simple model based upon the exciton fraction within the electron-hole plasma.

Keywords:

semiconductor, electron spin, spin relaxation

Inhaltsverzeichnis

Abkürzungs- und Symbolverzeichnis			11	
1.	Einle	eitung		17
2.	Theoretische Grundlagen			21
	2.1.	Bands	truktur von III-V-Halbleitern	21
		2.1.1.	Bandstruktur von GaAs/AlGaAs-Heterostrukturen	24
	2.2.	BIA u	nd SIA induzierte Spinaufspaltung im Leitungsband	25
		2.2.1.	Dresselhaus-Term in Volumen-GaAs	25
		2.2.2.	Dresselhaus-Term in GaAs-Quantenfilmen	27
		2.2.3.	Rashba-Term in GaAs-Quantenfilmen	28
	2.3.	Optisc	che Auswahlregeln	29
	2.4.	Spinqu	uantenschwebungen	31
		2.4.1.	Semiklassisches Bild	32
		2.4.2.	Quantenmechanische Betrachtung $\ldots \ldots \ldots \ldots$	32
	2.5.	Spinre	laxationsmechanismen	33
		2.5.1.	Dyakonov-Perel-Mechanismus	34
		2.5.2.	Bir-Aronov-Pikus-Mechanismus	38
		2.5.3.	Exzitonische Spinrelaxation	39
		2.5.4.	Elliott-Yafet-Mechanismus	41
		2.5.5.	Intersubband-Mechanismus	42
		2.5.6.	Hyperfeinwechselwirkung	42

3. Experimenteller Aufbau

4.	Dyal	yakonov-Perel-Spinrelaxation in Volumen-GaAs im Hochtempera-		
	turb	urbereich		
	4.1.	Numer	rische Berechnung der Dyakonov-Perel-Spinrelaxationszeit	50
		4.1.1.	Impuls streuze iten und verwendete Parameter $\ . \ . \ .$	51
	4.2.	Messu	ng der Elektronenspin relaxationszeit	53
		4.2.1.	Volumen-GaAs-Probe	53
		4.2.2.	Experimentelle Durchführung	53
	4.3.	Dichte	abhängigkeit / Einfluss der Elektron-Elektron-Streuung	55
	4.4.	Tempe	eraturabhängigkeit und Einfluss der POP Streuung	58
	4.5.	Zusam	menfassung	61
5.	Opti	sche Ov	verhauser-Verschiebung des Elektron-g-Faktors in Volumer	n-
	GaA	GaAs 63		63
	5.1.	Hyper	feinwechselwirkung und deren Auswirkungen	64
		5.1.1.	Fermi-Kontakt-Wechselwirkung	64
		5.1.2.	Dynamische Kernspinpolarisation	65
		5.1.3.	Kernspindiffusion, Kernspinrelaxation und dynamisches	
			Gleichgewicht	68
		5.1.4.	Effektives Overhauser-Kernmagnetfeld	69
	5.2.	Messa	ufbau bei polarisationsmodulierter Anregung	71
	5.3.	Polaris	sationsmodulierte Messung des Elektron-g-Faktors	74
		5.3.1.	Messparameter und Datenauswertung	74
		5.3.2.	Dynamische Kernspinpolarisation bei verkippter Pro-	
			bengeometrie	74
		5.3.3.	Einfluss der dynamischen Kernspinpolarisation auf den	
			Elektron-g-Faktor	77
	5.4.	Zusam	menfassung	82

45

6.	Elektron-g-Faktor-Anisotropie in symmetrischen (110)-GaAs-Quan-			
	tenfilmen			83
	6.1.	Einflus	ss der Symmetrie auf den Elektron-g-Faktor-Tensor in	
		III-V-I	Halbleitern	84
	6.2.	Experi	imentelle Durchführung	86
		6.2.1.	$Mehrfachquantenfilmprobe \ \ \ldots $	86
		6.2.2.	Messung der g-Faktor-Anisotropie $\hfill \ldots \ldots \ldots$.	88
		6.2.3.	Bestimmung des Messfehlers	90
	6.3.	Elektr	on-g-Faktor-Anisotropie in Abhängigkeit von der Quan-	
		tenfilm	breite	90
		6.3.1.	Messergebnise	90
		6.3.2.	Berechnungen mit 14-Band-Modell und vereinfachtem	
			2-Band-Modell	94
	6.4.	Isotrop	pe Elektronenspinzerfallszeit in Abhängigkeit von der	
		Quant	enfilmbreite	98
	6.5.	Zusam	menfassung	99
7.	(110)-GaAs	-Spininjektionsheterostruktur	101
	7.1.	Prober	ncharakterisierung	102
		7.1.1.	Probenstruktur	102
		7.1.2.	PL- und PLE-Spektrum der Probenstruktur	104
		7.1.3.	Bestimmung der nichtresonanten Tunnelzeit	108
	7.2.	Spiner	haltendes Tunneln	110
	7.3.	Grenz	flächeneffekte und Ladungsträgerlokalisierung	115
		7.3.1.	Monolagenfluktuationen	115
		7.3.2.	PL-Spektrum des 9 nm Quantenfilmes \hdots	116
		7.3.3.	PL-Anstiegszeit	121
		7.3.4.	Elektron-g-Faktor-Inhomogenitäten	124
		7.3.5.	Einfluss auf die Elektronenspin relaxationszeit $\ .\ .\ .$	127

		7.3.6.	Zusammenfassung	132
	7.4.	Zusam	menfassung	133
8.	Elek	tronens	pinrelaxation in (110)-GaAs-Quantenfilmen	135
	8.1.	Messu	ngen ohne angelegtes Magnetfeld	136
		8.1.1.	Temperaturabhängigkeit	136
		8.1.2.	Dichteabhängigkeit	142
		8.1.3.	Elektronenspin relaxation als Nachweis von Exzitonen	144
	8.2.	Messu	ngen bei angelegtem Magnetfeld	146
		8.2.1.	Temperaturabhängigkeit	147
		8.2.2.	Dichteabhängigkeit	149
	8.3.	Zusam	menfassung	153
Ar	hang			155
	А.	Transf	ormation des Dresselhaus-Feldes	155
	В.	Impuls	sstreuraten	157
	С.	Naturl	konstanten	158
Ve	Veröffentlichungen			181
Da	Danksagung			
Le	bensl	auf		183

Abkürzungs- und Symbolverzeichnis

AP	akustische Phononen
BIA	Volumeninversionsasymmetrie
BIR	Bir-Aronov-Pikus
DP	Dyakonov-Perel
ENDOR	Elektron-Kern-Spin-Doppelresonanz
EY	Elliott-Yafet
GMR	Riesenmagnetowiderstand
HH	Schwerloch
II	ionisierte Störstellen
IIA	Grenzflächeninversionsasymmetrie
ISR	Intersubbandspinrelaxation
LB	Leitungsband
LCR	Flüssigkristallverzögerer
LH	Leichtloch
LP	Linearpolarisator
MBE	Molekularstrahlepitaxie
MRAM	nichtflüchtiger magnetischer Zugriffsspeicher
Nd:YVO ₄	Neodym:Yttrium-Vanadat
NMR	Kernspinresonanz
ODNMR	optisch detektierte Kernspinresonanz
PL	Photolumineszenz
POP	polar optische Phononen

SBK	Soleil-Babinet-Kompensator
SIA	Strukturinversionsasymmetrie
SO	spinabgespalten
Ti:Sa	Titan:Saphir
VB	Valenzband
VCSEL	Oberflächen-emittierender Laser mit vertikaler Kavität
w.E.	willkürliche Einheiten
α, α_0	Rashba-Parameter
α	isotrope Zeeman-Aufspaltung
α_c	Spinaufspaltungsparameter
В	Magnetfeld
$\boldsymbol{B}_{\mathrm{n}},b_{\mathrm{n}}$	effektives Kernmagnetfeld (Overhauser-Feld)
β	anisotrope Zeeman-Aufspaltung
c	Lichtgeschwindigkeit
C	Anpassparameter
$\chi^{\pm}_{x,y,z}$	Spinor
D	Diffusionskonstante
∂au_s	Dichtegradient von τ_s
$\Delta E_{\rm LT}$	longitudinal-transversale Aufspaltung
$\Delta g^*_{\rm pseudo}$	Aufspaltung von g^*_{pseudo}
$\Delta_{\rm SO}$	Spin-Bahn-Aufspaltung
e	Elementarladung
E	Energie
E_0	Exzitonenbindungsenergie
E_F	Fremi-Energie
E_g	Bandlücke zwischen VB und LB
ε	elektrisches Feld
f_X	Exzitonenanteil

$\phi_{1s}(0)$	Elektron-Loch-Überlapp des 1 s Exzitons
g_0	g-Faktor des freien Elektrons
g_a	antisymmetrische Komponente von \hat{g}^*
g_s	symmetrische Komponente von \hat{g}^*
g^*	effektiver Elektron-g-Faktor
\hat{g}^*	effektiver Elektron-g-Faktor-Tensor
$g^*_{ m bulk}$	Elektron-g-Faktor von Volumen-GaAs
$g^*_{ m pseudo}$	scheinbarer Elektron-g-Faktor
γ_l	Effizienzfaktor (DP-Mechanismus)
$\gamma_{ m n}$	gyromagnetisches Verhältnis
γ_p	Impulsstreurate
γ_s	Spinrelaxationsrate
Γ_c	Dresselhaus-Spinaufspaltung
\hbar	reduzierte Planck-Konstante
${\cal H}$	Hamilton-Operator
Ι	Kernspin
$I_{\sigma^{\pm}}$	Intensität des σ^{\pm} -Lichtes
j	Gesamtdrehimpuls
\boldsymbol{k}	Wellenvektor
$oldsymbol{k}_{ }$	Wellenvektor in der Quantenfilmebene
k_B	Boltzmann-Konstante
K	Exzitonen-Wellenvektor
λ	Wellenlänge
$\lambda_{ m D}$	Debye'scher Abschirmradius
$\lambda \mathrm{exc}$	Anregungswellenlänge
m,m^*	effektive Ladungsträgermasse
m_0	freie Elektronenmasse
m_j	magnetische Quantenzahl
μ	reduzierte Masse des Exzitons

μ	magnetisches Moment
μ_B	Bohr'sches Magneton
n	Anregungsdichte, Dichte der Elektron-Loch-Paare
n	Bandindex
n_e	Elektronendichte
n_{trans}	Übergangsdichte
n_{\pm}	Dichte der Spin-up/-down Elektronen
ν	Subbandindex
ω_L	Larmorfrequenz
$\omega_{ m LO}$	LO-Phononfrequenz
Ω	effektives Magnetfeld
p	Impulsvektor
P	Elektronenspinpolarisationsgrad
P	Laserleistung
P_0	${\it Anfangselektronenspinpolarisations grad}$
$P_{\rm opt}$	optischer Polarisationsgrad
ψ	(Elektronen-) Wellenfunktion
Ψ	Einhüllendenfunktion
Q	Effizienzfaktor (DP-Mechanismus)
r	Ortsvektor
$oldsymbol{S}$	Elektronenspin
$oldsymbol{S}_{ m eq}$	${\it Gleichgewichtselektronenspinpolarisation}$
σ	Vektor der Pauli-Matrizen
$\sigma_{x,y,z}$	Pauli-Matrizen
σ^{\pm}	links/rechtszirkular polarisiertes Licht
t	Zeit
$t_{\rm Schalt}$	Umschaltzeit
$t_{\rm Verz}$	Verzögerungszeit
T	Temperatur

T_1	Spin-Gitter-Relaxationszeit
T_1^{II}	Kreuzrelaxationszeit
T_1^{IS}	dynamische Kernspinpolarisationszeit
$ au_{ m cor}$	Korrelationszeit
$ au_p$	Impulsstreuzeit
$ au_s$	Spinrelaxationszeit
$ au_{\mathrm{Tunnel}}$	nichtresonante Tunnelzeit
$u_{n,\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{r})$	gitterperiodischer Bloch-Faktor
V	Potential

1. Einleitung

Kaum eine technologische Erfindung und Entwicklung des letzten Jahrhunderts hat unsere heutige Gesellschaft so weitreichend beeinflusst wie der im Jahr 1947 von Shockley, Bardeen und Brattain erstmals realisierte funktionsfähige Transistor. Schnell löste er seinen damaligen Konkurrenten den Röhrenverstärker ab und fand Anwendungen in beinahe sämtlichen Elektronikgeräten wie etwa Radios, Fernsehern oder später Computern. Der immense kommerzielle Erfolg der Halbleitertechnologiebranche trieb die Miniaturisierung des Transistors voran und zog dabei viele technologische Fortschritte mit sich. Etwa eine Milliarde Transistoren verbunden in integrierten Schaltkreisen bilden das Herz heutiger Prozessoren und verleihen ihnen ihre Leistungsfähigkeit. Der Fortschritt der Halbleiterindustrie beruht dabei im Wesentlichen auf der strukturellen Verkleinerung der Bauteile. Diese Strukturverkleinerung wird allerdings in ein bis zwei Jahrzehnten nicht mehr möglich sein, da dann – dem Moore'schen Gesetz zufolge – die Abmessungen der Bauteile in einen Bereich laufen, der von quantenmechanischen Effekten dominiert wird.

Uhlenbeck und Goudsmit [1] postulierten 1925 aufgrund der Feinstrukturaufspaltung von Linienspektren einen Eigendrehimpuls des Elektrons, den Spin, und ordneten dem Elektron damit neben seiner Masse und Ladung eine weitere (quantenmechanische) Eigenschaft zu. Die darauffolgende sowohl theoretisch als auch experimentell intensive Untersuchung des Elektronenspins und des mit ihm verknüpften magnetischen Moments ergab unter anderem eine hochpräzise Bestimmung des Elektron-Landé-g-Faktors des freien Elektrons von $g_0 = -2,0023193043718(75)$. In Festkörpern verursacht der Elektronenspin eine Vielzahl von Effekten, wie beispielsweise den Ferromagnetismus. Auch der 1988 entdeckte Effekt des Riesenmagnetowiderstandes (GMR) [2, 3] beruht auf spinabhängigen elektrischen Strömen in metallischen Strukturen. Der GMR-Effekt fand innerhalb sehr kurzer Zeit seinen Einsatz in Schreib- und Leseköpfen heutiger Festplatten und legte zusätzlich den Grundstein für das Gebiet der sogenannten Magnetoelektronik. Der nichtflüchtige magnetische Zugriffsspeicher (MRAM) ist beispielsweise eine weitere technische Errungenschaft der Magnetoelektronik.

Die heutige Halbleitertechnologie basiert auf der Ausnutzung der Ladungseigenschaft des Elektrons. Die zusätzliche Ausnutzung der Spineigenschaft des Elektrons für die Planung und Entwicklung neuartiger Bauelemente ist die Idee des Forschungsgebietes der Halbleiter-Spinelektronik oder auch kurz Spintronik [4, 5, 6, 7]. Mögliche Bauelemente wären beispielsweise Spin-Transistoren (Datta-Das-Transistor), Spin-Ventile oder Spin-Leuchtdioden. Ziele und Fragestellungen bei der Grundlagenforschung auf dem Gebiet der Spintronik sind die Injektion, Manipulation und das Auslesen spinorientierter Elektronen in Halbleitern. Wichtig dabei ist die Kenntnis über das Verhalten des Elektronenspins unter bestimmten Rahmenbedingungen. Eine zentrale Aufgabenstellung ist die Untersuchung der Spinlebenszeit, die angibt wie lange ein ausgerichteter Elektronenspin erhalten, das heißt ausgerichtet, bleibt.

In dieser Arbeit wird die Spindynamik in Volumen-GaAs und (110)-GaAs-Heterostrukturen untersucht. Der Halbleiter GaAs ist für die Grundlagenforschung auf dem Gebiet der Spintronik besonders attraktiv, da er als direkter Halbleiter die vergleichsweise einfache optische Spininjektion und -detektion erlaubt. Zusätzlich können zusammen mit dem Halbleitermaterial AlGaAs hochreine, spannungsfreie Potentialstrukturen hergestellt werden.

Die vorliegende Arbeit gliedert sich wie folgt: Zunächst werden einige relevante theoretische Grundlagen zusammengestellt und die experimentelle Untersuchungsmethode kurz beschrieben. Danach wird in Kapitel 4 die Spinrelaxationszeit in Volumen-GaAs im technologisch relevanten Hochtemperaturbereich von 280 K bis 400 K gemessen. Dieser Temperaturbereich eignet sich zudem für einen quantitativen Vergleich mit der Theorie, da die Spinrelaxation hier aufgrund eines einzelnen Spinrelaxationsmechanismus erfolgt. Ebenfalls in Volumen-GaAs wird in Kapitel 5 die Wechselwirkung des Kernspinsystems mit dem Elektronenspin bei tiefen Temperaturen untersucht. Der Elektron-Landé-g-Faktor dient dabei als Indikator für die zeitliche Entwicklung des Kernmagnetfeldes, das aufgrund von dynamischer Kernspinpolarisation entsteht. Kapitel 6 befasst sich mit der Anisotropie des Elektron-Landég-Faktors in symmetrischen (110)-GaAs-Quantenfilmen. Diese Anisotropie wird in Abhängigkeit von der Quantenfilmbreite bestimmt und ihre Ursachen mittels der $k \cdot p$ -Theorie beschrieben. Eine speziell entwickelte (110)-GaAs-Heterostruktur, welche die hocheffiziente optische Spininjektion ermöglicht, wird in Kapitel 7 charakterisiert. Eine mögliche Anwendung solcher Strukturen liegt beispielsweise im Einsatz als optisch gepumpter Spin-VCSEL. Zusätzlich werden in diesem Kapitel Quantenfilmgrenzflächenfluktuationen anhand der gegebenen Struktur detailliert untersucht. Kapitel 8 beschäftigt sich mit der Spinrelaxationszeit in (110)-GaAs-Quantenfilmen. Die spezielle Wachstumsrichtung ermöglicht die Untersuchung ansonsten stark beeinflusster Spinrelaxationsmechanismen. Die gemessenen Spinrelaxationszeiten werden als Nachweis gebundener Elektron-Loch-Paare, den Exzitonen, interpretiert und mit einem Modell, das auf dem Exzitonenanteil innerhalb des Elektron-Loch-Plasmas basiert, verglichen.

2. Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel werden einige für diese Arbeit relevante theoretische Grundlagen zusammengestellt. Eine umfassendere Darstellung der hier behandelten Themen findet sich in den Übersichtsartikeln zu dem Gebiet der Spintronik und Spindynamik in Halbleitern von Žutić *et al.* [7], Fabian *et al.* [8] und Wu *et al.* [9]. Zusätzlich behandelt das Buch von R. Winkler [10] detailliert die Spin-Bahn-Kopplungseffekte in Halbleiterquantenfilmen.

2.1. Bandstruktur von III-V-Halbleitern

Verbindungshalbleiter aus Elementen der Gruppe III und Gruppe V, wie hier GaAs¹, kristallisieren in der Zinkblendestruktur. Diese besteht aus zwei ineinanderliegenden kubisch-flächenzentrierten (fcc²) Gittern, die um ein Viertel der Raumdiagonalen der kubischen Elementarzelle gegeneinander verschoben sind, dabei ist ein fcc-Gitter aus Atomen der Gruppe III und das andere aus Atomen der Gruppe V aufgebaut.

Die Schrödinger-Gleichung für die Wellenfunktion $\psi_n(\mathbf{r})$ der Elektronen in dem Potential des Gitters $V_{\text{Gitter}}(\mathbf{r})$ lautet

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m}\Delta + V_{\text{Gitter}}(\boldsymbol{r})\right)\psi_n(\boldsymbol{r}) = E_n \ \psi_n(\boldsymbol{r}) \ , \tag{2.1}$$

wobei n der Index des Energieniveaus bzw. der Bandindex ist. Die allgemeine

¹Im Folgenden wird exemplarisch GaAs betrachtet. Die Aussagen sind jedoch auf viele andere III-V-Halbleiter übertragbar.

²face-centered cubic

Lösung von Gl. (2.1) sind die Bloch-Funktionen

$$\psi_n(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) . \qquad (2.2)$$

Diese sind ebene Wellen, die mit der gitterperiodischen Funktion $u_{n,k}(r)$ (Bloch-Faktor) moduliert sind [11]. Ein elektronischer Zustand ist dabei durch den Bandindex n und den Wellenvektor k charakterisiert. Es existiert eine Vielzahl von Verfahren, wie beispielsweise das *Tight-Binding*-Verfahren [11], zur Lösung der Schrödinger-Gleichung (2.1), d.h. zur Bestimmung der Bandstruktur, in der gesamten Brillouin-Zone. Die $k \cdot p$ -Methode [12, 13] dagegen ermöglicht die präzise Berechnung der Bandstruktur in der Umgebung eines bekannten Punktes im reziproken Raum, in GaAs typischerweise des Γ -Punktes [14].

Die Symmetrie des Gitters nimmt entscheidenden Einfluss auf seine Bandstruktur. Halbleiter der Zinkblendestruktur gehören der Punktgruppe der Tetraeder T_d an, sodass der Hamilton-Operator in Gl. (2.1) invariant unter den Symmetrieoperationen dieser Punktgruppe ist. Im reziproken Raum besitzt die Zinkblendestruktur in der Briollouin-Zone (s. Abb. 2.1 (a)) Punkte besonders hoher Symmetrie, die als Γ -, X- und L-Punkt bezeichnet werden [15]. In GaAs liegen das Maximum des Valenzbandes (VB) und das Minimum des Leitungsbandes (LB) im Zentrum der Brillouin-Zone bei $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ (Γ -Punkt). Daher handelt es sich bei GaAs um einen direkten Halbleiter, bei dem photonische Bandübergänge zwischen dem VB und dem LB möglich sind. Die Bandstruktur in der Umgebung des Γ -Punktes bestimmt die optischen und elektronischen Eigenschaften von GaAs.

Eine vollständige Beschreibung der Bandstruktur von GaAs erfordert die Einbeziehung des Elektronenspins und seiner Kopplung mit dem Bahndrehimpuls in Gl. (2.1). Der Hamilton-Operator der Spin-Bahn-Kopplung ergibt sich aus der Dirac-Gleichung und lautet [10]

$$\mathcal{H}_{\rm SB} = -\frac{\hbar}{4\,m_0^2\,c^2}\,\boldsymbol{\sigma}\cdot\boldsymbol{p}\,\times(\nabla V)\,. \tag{2.3}$$



Abb. 2.1.: (a) Brillouin-Zone von GaAs. (b) Vereinfachte schematische Darstellung des Leitungsbandes und Valenzbandes von GaAs in der Nähe des Γ -Punktes.

Abbildung 2.1 (b)³ zeigt die Bandstruktur des Leitungsbandes und Valenzbandes von GaAs in der Umgebung des Γ-Punktes. Das Leitungsband ist s-artig und durch die Bandlücke $E_g = 1,52 \text{ eV}^4$ von dem Valenzband getrennt. Die Spin-Bahn-Kopplung führt zu einer Aufspaltung des p-artigen Valenzbandes, sodass das spinabgespaltene (SO) Band um die Spin-Bahn-Aufspaltungsenergie $\Delta_{SO} = 0,34 \text{ eV}$ verschoben unterhalb des Schwerloch (HH) und Leichtloch (LH) Valenzbandes liegt. Der Gesamtdrehimpuls j des SO-Bandes beträgt j = 1/2 und der des HH- und LH-Bandes j = 3/2, wobei für das HH-Band $m_j = \pm 3/2$ und das LH-Band $m_j = \pm 1/2$ gilt (m_j – magnetische Quantenzahl). Das HH- und LH-Band sind bei $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ in Volumen-GaAs entartet. In der Umgebung des Γ-Punktes gelten mit den effektiven

³In dieser Abbildung ist die Aufhebung der Spinentartung innerhalb der Bänder nicht dargestellt (s. Abschnitt 2.2).

⁴Bei $T = 0 \,\mathrm{K}$ [16].

Massen m^* des entsprechenden Bandes die Dispersionsrelationen

$$E_{\rm LB} = E_g + \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e^*} , \qquad (2.4)$$

$$E_{\rm HH} = -\frac{\hbar^2 k^2}{2m_{\rm HH}^*} \quad \text{und} \quad E_{\rm LH} = -\frac{\hbar^2 k^2}{2m_{\rm LH}^*} .$$
(2.5)

2.1.1. Bandstruktur von GaAs/AlGaAs-Heterostrukturen

Der Übergang von Volumen-GaAs zu einem GaAs-Quantenfilm, in dem die Ladungsträger in Wachstumsrichtung eingeschlossen sind, und sich somit nur noch in der Quantenfilmebene frei bewegen können, hat Auswirkungen auf die Bandstruktur. Die Lokalisierung in zwei Dimensionen bedeutet eine Symmetriereduktion, die zu einer energetischen Aufspaltung des HH- und LH-Bandes am Γ -Punkt führt. Auch die Wachstumsrichtung des Quantenfilmes ist für seine Bandstruktur relevant: So ist die effektive Masse des Schwerlochs innerhalb der Quantenfilmebene abhängig von der Wachstumsrichtung, da die HH-Dispersion in der Nähe des Γ -Punktes nicht isotrop ist.

Die Heterostrukturen, die in dieser Arbeit untersucht werden, sind aus Schichtenfolgen von GaAs und $Al_xGa_{1-x}As$ aufgebaut. $Al_xGa_{1-x}As$ ist bis zu einer Al-Konzentration von $x \approx 0, 4$ ein direkter Halbleiter [17] mit einer im Vergleich zu GaAs größeren, von der Al-Konzentration abhängenden Bandlücke und dient als Barrierenmaterial in der Heterostruktur. Die Ladungsträger werden durch die $Al_xGa_{1-x}As$ -Barrieren in der GaAs-Schicht, dem Quantenfilm, in Wachstumsrichtung (z-Richtung) eingeschlossen. Dadurch ergeben sich für die Ladungsträger in Wachstumsrichtung mehrere gebundene diskrete Zustände mit den Energien E_{ν} des eindimensionalen Potentialtopfes mit endlicher Barrierenhöhe. Zusammen mit der freien Beweglichkeit der Ladungsträger innerhalb der Quantenfilmebene resultiert dies in Subbändern, die mit dem Wellenvektor $\mathbf{k}_{||} = (k_x, k_y)$ beschrieben werden durch

$$E_{\nu}(\boldsymbol{k}_{||}) = E_{\nu} + \frac{\hbar^2 \boldsymbol{k}_{||}^2}{2m^*} . \qquad (2.6)$$

Die Energie des ersten Subbandes am Γ -Punkt wird Quantisierungsenergie genannt.

2.2. BIA und SIA induzierte Spinaufspaltung im Leitungsband

In Abb. 2.1 (b) ist der Spinfreiheitsgrad in den Bändern nicht mit berücksichtigt bzw. die Bänder sind spinentartet. Voraussetzung für eine Spinentartung innerhalb der Bänder, d.h. $E_{\uparrow}(\mathbf{k}) = E_{\downarrow}(\mathbf{k})$, ist, dass neben der Zeitumkehrinvarianz (Zeit-IS), aus der die sogenannte Kramers-Entartung folgt, gleichzeitig eine räumliche Inversionssymmetrie (Raum-IS) vorliegt:

$$\underbrace{E_{\uparrow}(\boldsymbol{k}) = E_{\downarrow}(-\boldsymbol{k})}_{\text{(Zeit-IS)}} \land \underbrace{E_{\uparrow}(\boldsymbol{k}) = E_{\uparrow}(-\boldsymbol{k})}_{\text{(Raum-IS)}} \implies \underbrace{E_{\uparrow}(\boldsymbol{k}) = E_{\downarrow}(\boldsymbol{k})}_{\text{Spinentartung}}$$

Der Verlust der räumlichen Inversionssymmetrie in Kombination mit der Spin-Bahn-Kopplung führt zu einer Aufhebung der Spinentartung, also einer Aufspaltung der beiden Spinzustände bei gleichem Wellenvektor \boldsymbol{k} [10].

2.2.1. Dresselhaus-Term in Volumen-GaAs

Bei Kristallen der Zinkblende-Struktur, wie hier GaAs, fehlt aufgrund der zweiatomigen Basis ein Inversionszentrum im Kristall und es liegt eine Raumbzw. Volumeninversionsasymmetrie (BIA⁵) vor, was zusammen mit der Spin-Bahn-Kopplung eine spinabhängige Aufspaltung der Bänder verursacht [10]. Die Spinaufspaltung bei der BIA wird durch den sogenannten Dresselhaus-Term $\mathcal{H}_{\text{Dressel}}$ beschrieben [18]. Für das Γ_6 -Leitungsband von GaAs lautet $\mathcal{H}_{\text{Dressel}}$ in dritter Ordnung in k im Hauptkristallachsensystem, d.h. $x \parallel [100]$, $y \parallel [010]$ und $z \parallel [001]$, mit i = x, y, z zyklisch permutiert

$$\mathcal{H}_{\text{Dressel}} = \Gamma_c \sum_{i} \sigma_i \; k_i \left(k_{i+1}^2 - k_{i+2}^2 \right) \,, \tag{2.7}$$

⁵Bulk Inversion Asymmetry

mit den Pauli-Matrizen σ_i und der Dresselhaus-Spinaufspaltung

$$\Gamma_c = \frac{\alpha_c \,\hbar^3}{(2m_e)^{3/2} E_g^{1/2}} \,. \tag{2.8}$$

Der materialabhängige Spinaufspaltungsparameter α_c beträgt in GaAs 0,063 woraus für Γ_c ein Wert von 21,9 eVÅ³ folgt [19]. Für die Energie-Aufspaltung $\Delta E_{\text{Dressel}}$ zwischen den Spin-up- und Spin-down-Zuständen in Abhängigkeit von \mathbf{k} ergibt sich in Polarkoordinatendarstellung mit $k_x = k \sin \vartheta \cos \varphi$, $k_y = k \sin \vartheta \sin \varphi$ und $k_z = k \cos \vartheta$ der Zusammenhang

$$\Delta E_{\text{Dressel}}(\boldsymbol{k}) \propto k^3 \sin \vartheta \left\{ 1 - \sin^2 \vartheta \left[1 + 2 \sin^2 (2\varphi) \right] + (9/4) \sin^2 (2\varphi) \sin^4 \vartheta \right\}^{1/2}.$$
(2.9)

Aus Gl. (2.9) wird die charakteristische k^3 -Abhängigkeit der Dresselhaus-Aufspaltung ersichtlich. Zusätzlich ist $\Delta E_{\text{Dressel}}(\mathbf{k}) = 0$ für $\mathbf{k} \parallel [100]$ und $\mathbf{k} \parallel [111]$. In Analogie zu der Aufspaltung von Spinzuständen in einem Magnetfeld (Zeeman-Effekt) kann Gl. (2.7) über ein effektives Magnetfeld ausgedrückt werden [20]:

$$\mathcal{H}_{\text{Dressel}} = \frac{\hbar}{2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \boldsymbol{\Omega}_{\text{BIA}}(\boldsymbol{k}) \quad \text{mit} \quad \boldsymbol{\Omega}_{\text{BIA}}(\boldsymbol{k}) = \frac{2\Gamma_c}{\hbar} \begin{pmatrix} k_x (k_y^2 - k_z^2) \\ k_y (k_z^2 - k_x^2) \\ k_z (k_x^2 - k_y^2) \end{pmatrix}$$
(2.10)

Das effektive Magnetfeld $\Omega_{\rm BIA}$ ist abhängig von Betrag und Orientierung von k und steht immer senkrecht auf diesem. Bezüglich der Spindynamik hat $\Omega_{\rm BIA}$ die Bedeutung, dass anschaulich gesehen der Elektronenspin eine Präzessionsbewegung um $\Omega_{\rm BIA}$ ausführt (s. Abschnitt 2.5.1). Für die später folgende Berechnung der BIA-Spinaufspaltung in (110)-Quantenfilmen wird das effektive Magnetfeld $\Omega_{\rm BIA}$ über Gl. (2.7) in das Kristallachsensystem des (110)-Quantenfilmes transformiert.⁶ In diesem Kristallachsensystem, mit

⁶Die dazu notwendige Umrechnung befindet sich Anhang A.

 $x \parallel [001], y \parallel [1\overline{1}0]$ und $z \parallel [110]$, lautet Ω_{BIA} [21]:

$$\boldsymbol{\Omega}_{\text{BIA}}(\boldsymbol{k}) = \frac{\Gamma_c}{\hbar} \begin{pmatrix} 4k_x k_y k_z \\ -k_y^2 k_z - 2k_x^2 k_z + k_z^3 \\ -k_y k_z^2 - 2k_y k_x^2 + k_y^3 \end{pmatrix}$$
(2.11)

2.2.2. Dresselhaus-Term in GaAs-Quantenfilmen

In Quantenfilmen ist die Komponente k_z des Wellenvektors entlang der Wachstumsrichtung quantisiert und k_z , bzw. k_z^n wird durch den entsprechenden Erwartungswert $\langle k_z^n \rangle$ in den Gl. (2.10) und (2.11) ersetzt, wobei $\langle k_z \rangle = \langle k_z^3 \rangle = 0$ ist [22, 23]. Mit dem Wellenvektor $\mathbf{k}_{||} = (k_x, k_y, 0)$ innerhalb der Quantenfilmebene ergibt sich somit das effektive Magnetfeld aufgrund der BIA-Spinaufspaltung für (001)- bzw. (110)-Quantenfilme:

$$\boldsymbol{\Omega}_{\text{BIA}}^{[001]}(\boldsymbol{k}_{||}) = \frac{2\Gamma_{c}}{\hbar} \left(k_{x}(k_{y}^{2} - \langle k_{z}^{2} \rangle), k_{y}(\langle k_{z}^{2} \rangle - k_{x}^{2}), 0 \right)^{T} \\
\approx \frac{2\Gamma_{c}}{\hbar} \left(-k_{x}\langle k_{z}^{2} \rangle, k_{y}\langle k_{z}^{2} \rangle, 0 \right)^{T} \quad (2.12) \\
\boldsymbol{\Omega}_{\text{BIA}}^{[110]}(\boldsymbol{k}_{||}) = \frac{\Gamma_{c}}{\hbar} \left(0, 0, -k_{y}\langle k_{z}^{2} \rangle - 2k_{y}k_{x}^{2} + k_{y}^{3} \right)^{T} \\
\approx \frac{\Gamma_{c}}{\hbar} \left(0, 0, -k_{y}\langle k_{z}^{2} \rangle \right)^{T} \quad (2.13)$$

In den beiden Gleichungen wird rechts jeweils weiter angenommen, dass $k_{||}^2 \ll \langle k_z^2 \rangle$ ist, wobei zu beachten ist, dass $\langle k_z^2 \rangle$ proportional zur Quantisierungsenergie ist. Die Näherung verliert also nur ihre Gültigkeit im Fall von sehr breiten Quantenfilmen bzw. sehr großen Wellenvektoren $k_{||}$. Die Spinaufspaltung aufgrund der BIA ist in Quantenfilmen demnach in guter Näherung linear in $k_{||}$. Die Richtung und Stärke des effektiven Magnetfeldes hängt von der Wachstumsrichtung und Breite des Quantenfilmes ab. In (001)-Quantenfilmen liegt das effektive Magnetfeld innerhalb der Quantenfilmebene, wohingegen es bei (110)-Quantenfilmen senkrecht auf der Quantenfilmebene steht.

2.2.3. Rashba-Term in GaAs-Quantenfilmen

In Quantenfilmen können neben der BIA auch eine Grenzflächeninversionsasymmetrie (IIA⁷) und eine Strukturinversionsasymmetrie (SIA⁸) über die Spin-Bahn-Kopplung zu einer Spinaufspaltung führen. Die IIA basiert auf einer mikroskopischen Asymmetrie verursacht durch die chemischen Bindungen bei dem Übergang von Quantenfilm- zu Barrierenmaterial und ist bei GaAs/AlGaAs-Quantenfilmen vernachlässigbar [24]. Ist das Einschlusspotential eines Quantenfilmes asymmetrisch, liegt eine SIA vor. Dies alleine führt allerdings nicht zwangsläufig zu einer Spinaufspaltung. Über das asymmetrische Einschlusspotential liegt ein elektrisches Feld \mathcal{E}_z entlang der z-Richtung an. Entscheidend für eine Spinaufspaltung ist, ob der Erwartungswert des elektrischen Feldes $\langle \mathcal{E}_z \rangle$ am Ort des Elektrons, d.h. über der Einhüllendenfunktion des Elektrons, ungleich null ist. Da die Wellenfunktion des Elektrons sich im elektrischen Feld des Leitungsbandes \mathcal{E}^c_z gerade so einstellt, dass der Erwartungswert $\langle \mathcal{E}_z^c \rangle$ gleich null ist (Ehrenfest-Theorem), ist die SIA-Spinaufspaltung genauer durch den Erwartungswert des elektrischen Feldes des Valenzbandes $\langle \mathcal{E}_z^v \rangle$ bedingt [25, 10]. In sogenannten isomorphen Strukturen ist $\langle \mathcal{E}_z^v \rangle = 0$, während in nicht-isomorphen Strukturen aus $\langle \mathcal{E}_z^v \rangle \neq 0$ eine Spinaufspaltung folgt [26]. Der Spin-Bahn-Kopplung Hamilton-Operator der SIA wird als Rashba-Term [27] bezeichnet und hat in niedrigster Ordnung die Form [10]:

$$\mathcal{H}_{\text{Rashba}} = \alpha_0 \, \boldsymbol{\sigma} \cdot \boldsymbol{k} \times \boldsymbol{\mathcal{E}} \tag{2.14}$$

Darin ist α_0 ein materialspezifischer Parameter und σ der Vektor der Pauli-Matrizen. Wie der Dresselhaus-Term wird auch der Rashba-Term über ein

⁷Interface Inversion Asymmetry

⁸Structure Inversion Asymmetry

effektives Magnetfeld ausgedrückt:

$$\mathcal{H}_{\text{Rashba}} = \frac{\hbar}{2} \boldsymbol{\sigma} \cdot \boldsymbol{\Omega}_{\text{SIA}}(\boldsymbol{k}_{||}) \quad \text{mit} \quad \boldsymbol{\Omega}_{\text{SIA}}(\boldsymbol{k}_{||}) = \frac{2\alpha}{\hbar} \begin{pmatrix} k_y \\ -k_x \\ 0 \end{pmatrix} \quad (2.15)$$

Das effektive Magnetfeld $\Omega_{\text{SIA}}(\mathbf{k}_{||})$ ist linear im Wellenvektor $\mathbf{k}_{||}$, und das elektrische Feld des Valenzbandes geht über $\alpha = \langle \alpha_0 \mathcal{E}_z^v \rangle$ in den sogenannten Rashba-Parameter α ein.

2.3. Optische Auswahlregeln

Die Spinpolarisation der Leitungsbandelektronen wird bei der in dieser Arbeit angewandten Messmethode der zeit- und polarisationsaufgelösten Photolumineszenzspektroskopie (s. Kapitel 3)) bei der optischen Ladungsträgergeneration erzeugt. GaAs ist ein direkter Halbleiter, d.h. es sind direkte optische Übergänge zwischen dem Valenzband und Leitungsband am Γ -Punkt (s. Abb. 2.1 (b)) möglich. Bei den photonischen Übergängen muss der Gesamtdrehimpuls erhalten bleiben und es gilt

$$m_e + m_h = m_p ,$$
 (2.16)

mit dem Spin des Elektrons m_e , des Lochs m_h und des Photons m_p . Die Übergangswahrscheinlichkeiten der verschiedenen Interband-Übergänge bei der Ladungsträgergeneration und -rekombination sind gegeben durch die jeweiligen Interbandmatrixelemente [28].

Abbildung 2.2 zeigt die optischen Auswahlregeln, über die die möglichen Übergänge und deren relative Wahrscheinlichkeiten beschrieben werden, von Volumen-GaAs am Γ -Punkt. In rot und grün sind die mit σ^- - und σ^+ -Photonen, respektive, verbundenen Übergänge dargestellt. Beispielsweise sind mit σ^- -Photonen aufgrund der Drehimpulserhaltung nur Übergänge möglich zwischen dem +3/2-HH- und dem +1/2-LB-Zustand, dem +1/2-LH- und dem -1/2-LB-Zustand und dem +1/2-SO- und dem -1/2-LB-Zustand. Die eingekreisten Zahlen an den Übergängen geben die relativen Wahrscheinlichkeiten des jeweiligen Überganges an.

Liegt die Anregungsenergie $\hbar \omega$ des σ^- -polarisierten Laserlichtes zwischen E_g und $E_g + \Delta_{SO}$, so finden nur Übergänge aus den HH- und LH-Zuständen statt, wobei der HH-Übergang dreimal wahrscheinlicher ist als der LH-Übergang. Dies resultiert in einer über

$$P = \frac{n_+ - n_-}{n_+ + n_-} \tag{2.17}$$

definierten Spinpolarisation der Leitungsbandelektronen von $P = \frac{1}{2}$, mit den Dichten n^{\pm} der Elektronen mit $m_e = \pm 1/2$. Die Spinpolarisation im Valenzband zerfällt aufgrund der starken Durchmischung des HH- und LH-Bandes im Allgemeinen sehr schnell auf der Zeitskala der Impulsstreuung [29]. Daher kann bei der Rekombination von einer Gleichbesetzung der HH- und LH-Lochzustände ausgegangen werden. Der Polarisationsgrad der emittierten Photolumineszenz ist gegeben durch

$$P_{\rm opt} = \frac{I_{\sigma^+} - I_{\sigma^-}}{I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-}} \,. \tag{2.18}$$



Abb. 2.2.: Optische Auswahlregeln von Volumen-GaAs am Γ -Punkt. Die roten/grünen Pfeile zeigen die erlaubten Übergänge bei $\sigma^{-}-/\sigma^{+}$ -Anregung. Die jeweiligen Zahlen geben die relativen Übergangswahrscheinlichkeiten an.

Darin sind $I_{\sigma^{\pm}}$ die Intensitäten der σ^{\pm} -polarisierten Photolumineszenz. Die optischen Auswahlregeln gelten auch bei der Rekombination und führen in Volumen-GaAs zu einem optischen Polarisationsgrad von $P_{\text{opt}} = -\frac{1}{2}P$. Die Messung von P_{opt} (s. Kapitel 3) liefert also einen direkten Rückschluss auf die Polarisation der Leitungsbandelektronen.

In Quantenfilmen ist die Entartung des HH- und LH-Bandes am Γ -Punkt aufgehoben. Daher kann durch eine resonante Anregung des HH-Überganges, ohne Anregung des LH-Überganges, eine Spinpolarisation P von 100% in Quantenfilmen erzeugt werden [30].

2.4. Spinquantenschwebungen

Die von Heberle *et al.* eingeführte Spinquantenschwebungsspektroskopie ermöglicht eine hochpräzise Bestimmung des Elektron Landé g-Faktors und liefert gleichzeitig Informationen über die Spinzerfallszeit [31]. Spinquantenschwebungen können als zeitaufgelöster Hanle-Effekt [32], der erstmals von Parsons in Halbleitern ausgenutzt wurde [33], betrachtet werden [34, 35]. Neben der Präzisen Bestimmung des Elektron-g-Faktors [36, 37, 38] erlaubt die Spinquantenschwebungsspektroskopie beispielsweise auch die Untersuchung der Elektron-Lochspin-Wechselwirkung [39, 40, 41].

Das magnetische Moment μ und der Spin S des Elektrons sind nach dem Wigner-Eckart-Theorem proportional zueinander [42] und es gilt mit dem effektiven Elektron-g-Faktor g^* und dem Bohr'schen Magneton μ_B der Zusammenhang

$$\boldsymbol{\mu} = -\frac{g^* \boldsymbol{\mu}_B}{\hbar} \, \boldsymbol{S} \,. \tag{2.19}$$

In GaAs ist g^* im Gegensatz zum g-Faktor des freien Elektrons mit $g_0 \approx 2,0023$ negativ und beträgt -0,44 [43]. Die Energieniveaus der beiden Spinzustände $S_z = \pm \hbar/2$ spalten in einem Magnetfeld **B** auf in

$$E_{\pm 1/2} = -\boldsymbol{\mu} \cdot \boldsymbol{B} = \pm \frac{g^* \mu_B}{2} B .$$
 (2.20)

Mit $\Delta E = \hbar \omega_L$ folgt daraus für die Larmorfrequenz

$$\omega_L = \frac{|g^*|\mu_B B}{\hbar} . \tag{2.21}$$

2.4.1. Semiklassisches Bild

Über die optischen Auswahlregeln (s. Abschnitt 2.3) wird mit senkrecht zur Probe eingestrahlten rechtszirkular (σ^{-}) polarisierten Laserpulsen zum Zeitpunkt t = 0 eine makroskopische Elektronenspinpolarisation von $P = \frac{1}{2}$ in z-Richtung im Leitungsband erzeugt. Zusätzlich liegt ein externes Magnetfeld \boldsymbol{B} parallel (in x-Richtung) zur Probe an, das über die Magnetisierung der Elektronen die Elektronenspinpolarisation zu einer Präzessionsbewegung um das Magnetfeld zwingt. Die Präzession bewirkt eine Oszillation des Erwartungswertes der Elektronenspinpolarisation $\langle S_z \rangle$ entlang der z-Richtung, wobei die Frequenz der Präzession durch die Larmorfrequenz ω_L in Gl. (2.21) gegeben ist. Mit den optischen Auswahlregeln für die Rekombination folgt daraus eine ebenfalls mit ω_L oszillierende optische Polarisation (s. Gl. (2.18))

$$P_{\rm opt}(t) = P_{\rm opt}(0) \left(\cos(\omega_L t) \cdot e^{-t/\tau_s} \right) .$$
(2.22)

Darin Berücksichtigt die Exponentialfunktion den Zerfall der Spinpolarisation mit der Spinzerfallszeit τ_s (s. Abschnitt 2.5).

2.4.2. Quantenmechanische Betrachtung

Quantenmechanisch entspricht die Oszillation von $\langle S_z \rangle$ Spinquantenschwebungen zwischen den aufgespaltenen Energieniveaus der beiden Spinzustände in Gl. (2.20), wobei das Magnetfeld **B** in x-Richtung zeigt. Die Anregung eines Elektrons mit $S_z = +\hbar/2$ durch den σ^- -Lichtpuls entspricht der Erzeugung eines Spinzustandes mit der Quantisierungsrichtung entlang der z-Achse, der durch den Spinor χ_z^+ beschrieben wird. Der Spinor χ_z^+ kann als eine kohärente Superposition der Spinoren χ_x^{\pm} ausgedrückt werden, falls der anregende Lichtpuls ausreichend kurz, d.h. spektral ausreichend breit,⁹ ist [31]:

$$\chi_z^+ = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\chi_x^+ + \chi_x^- \right)$$
 (2.23)

Mit der zeitlichen Entwicklung der Spinoren χ_x^{\pm}

$$\chi_x^{\pm}(t) = \chi_x^{\pm} e^{\pm i \frac{\omega_L t}{2}}$$
(2.24)

folgt für die zeitliche Entwicklung von χ_z^+

$$\chi_{z}^{+}(t) = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\chi_{x}^{+}(t) + \chi_{x}^{-}(t) \right)$$

= $\frac{1}{\sqrt{2}} \left(\chi_{x}^{+} e^{-i\frac{\omega_{L}t}{2}} + \chi_{x}^{-} e^{+i\frac{\omega_{L}t}{2}} \right)$
= $\chi_{z}^{+} \cos\left(\frac{\omega_{L}t}{2}\right) + i\chi_{z}^{-} \sin\left(\frac{\omega_{L}t}{2}\right)$. (2.25)

Für die Intensität $I_{\sigma^{\pm}}$ der σ^{\pm} -polarisierten Photolumineszenz ergibt sich mit den optischen Auswahlregeln aus Abschnitt 2.3 der zeitliche Verlauf:

$$I_{\sigma^{-}} \propto \cos^2\left(\frac{\omega_L t}{2}\right) = \frac{1}{2}\left(1 + \cos(\omega_L t)\right)$$
(2.26)

$$I_{\sigma^+} \propto \sin^2\left(\frac{\omega_L t}{2}\right) = \frac{1}{2}\left(1 - \cos(\omega_L t)\right) \tag{2.27}$$

2.5. Spinrelaxationsmechanismen

In diesem Abschnitt werden die relevanten Mechanismen vorgestellt, die zu einer Relaxation des Elektronenspins in Volumen-GaAs bzw. GaAs-Quantenfilmen führen. Diese Mechanismen konvertieren eine beispielsweise optisch erzeugte Nichtgleichgewichtspolarisation der Elektronen in ihre Gleichgewichtspolarisation. In dieser Arbeit wird nicht zwischen der Spinrelaxations- und Spindephasierungszeit der Elektronen unterschieden, sondern beide Zeiten werden mit τ_s bezeichnet.

⁹Die Aufspaltung $\Delta E = \hbar \omega_L$ beträgt selbst bei B = 10 T nur etwa 250 μ eV.

2.5.1. Dyakonov-Perel-Mechanismus

Die Spin-Bahn-Kopplung führt in Systemen mit fehlender Inversionssymmetrie zu einem 1971 von M. I. Dyakonov und V. I. Perel vorgestellten sehr effizienten Spinrelaxationsmechanismus [44]. Wie in Abschnitt 2.2 beschrieben ist in solchen Systemen die Spinentartung im Leitungsband aufgehoben, wobei die Aufspaltung der Spinzustände über die effektiven Magnetfelder Ω_{BIA} bzw. Ω_{SIA} charakterisiert wird. Beide Felder, die des Dresselhaus- und Rashba-Terms, sind abhängig vom Wellenvektor k und stehen senkrecht auf diesem.

Die anschauliche Wirkung des effektiven Magnetfeldes $\Omega(\mathbf{k})$ auf einen einzelnen Elektronenspin ist, dass dieser mit der Frequenz $\Omega(\mathbf{k})$ um das effektive Magnetfeld präzediert. Ein Impulsstreu-Ereignis ändert den Wellenvektor \mathbf{k} des Elektrons und damit auch die Richtung und den Betrag des effektiven Magnetfeldes, d.h. der Elektronenspin präzediert nach einem Impulsstreu-Ereignis um eine andere Achse mit unterschiedlicher Frequenz.

Bei der Betrachtung des Gesamtspins werden zwei Regime unterschieden [7]:

(I) $\langle \Omega \rangle \tau_p > 1$: In diesem Regime präzediert ein individueller Spin eine oder mehrere Perioden um sein individuelles Magnetfeld bevor eine Impulsstreuung stattfindet (Regime der schnellen Spinpräzession). Da das Spinensemble im **k**-Raum verteilt ist und somit auch eine Verteilung der Magnetfelder vorliegt, zerfällt der Gesamtspin zunächst reversibel auf der Zeitskala der Breite der Verteilung des Magnetfeldes $\Delta \Omega$. Nach der mittleren Impulsstreuzeit τ_p ist der Gesamtspin dann auch irreversibel zerfallen.

<u>(II)</u> $\langle \Omega \rangle \tau_p < 1$: In diesem Fall tritt der ursprünglich von Dyakonov und Perel beschriebene Mechanismus in Kraft, der als *motional-narrowing* Regime bezeichnet wird. Ein einzelner Elektronenspin präzediert zwischen zwei Impulsstreu-Ereignissen nur um einen kleinen Winkel $\delta \varphi = \langle \Omega \rangle \tau_p$ und sieht über die Zeit hinweg ein schnell fluktuierendes effektives Magnetfeld Ω . Über den motional-narrowing Effekt [45] ergibt sich für den Erwartungswert des Quadrates des Drehwinkels nach der Zeit t

$$\langle \delta \varphi(t)^2 \rangle \approx (\langle \Omega \rangle \tau_p)^2 \frac{t}{\tau_p}$$

Mit der Definition der Spinrelaxationszeit τ_s über $\delta \varphi(t = \tau_s) \approx 1$ folgt der für den *motional-narrowing* Effekt charakteristische Ausdruck

$$\frac{1}{\tau_s} \approx \langle \,\Omega^2 \rangle \,\tau_p \,\,, \tag{2.28}$$

in dem die Spinrelaxationszeit invers proportional zur Impulsstreuzeit ist. Im Folgenden ist, wenn es nicht anders erwähnt wird, mit dem Dyakonov-Perel-Mechanismus immer das Regime des *motional-narrowing* gemeint.

DP-Spinrelaxationszeit in Volumen-GaAs

Der Dresselhaus-Term führt in III-V-Halbleitern im *motional-narrowing* Regime auf einen Spinrelaxationstensor, dessen Komponenten gegeben sind durch (die Tilde kennzeichnet die entsprechende Größe bei einer gegebenen Energie E_k) [46]¹⁰:

$$\frac{1}{\tilde{\tau}_{s,ii}} = \frac{\tilde{\tau}_p^{\rm sp}}{\gamma_l^{\rm sp}} \left(\sum_m \overline{\Omega_m^2} - \overline{\Omega_i^2} \right) \quad , \quad \frac{1}{\tilde{\tau}_{s,ij}} = -\frac{\tilde{\tau}_p^{\rm sp}}{\gamma_l^{\rm sp}} \left(\overline{\Omega_i \Omega_j} \right) \quad (i \neq j) \quad (2.29)$$

Der Strich über den Komponenten *i* des effektiven Magnetfeldes bedeutet die Mittelung von Ω_i über alle Richtungen von *k*. Gleichung (2.29) ist für einen einzelnen Impulsstreumechanismus gültig¹¹, der durch den oberen Index SP¹² markiert wird. Die Impulsstreuung ist als elastisch und isotrop angenommen und wird mit einem Effizienzfaktor γ_l^{sp} gewichtet, der charakteristisch für den

¹⁰In der hier zitierten englischen Version von Referenz [46] sind einige Druckfehler enthalten, die in der russischen Version nicht vorhanden sind.

¹¹Aus Gründen der Übersichtlichkeit wird hier die Summation über alle Impulsstreumechanismen ausgelassen.

 $^{^{12}}Scattering \ Process$

zugrundeliegenden Impuls
streumechanismus ist und ein Maß für die Durchmischung der Larmorfrequenzen angibt. Der Effizienzfaktor γ_l^{sp} wird über das *l*-te Legendre-Polynom berechnet, wobei die Ordnung *l* der Potenz von *k* in Ω entspricht.

Für Volumen-GaAs führen Symmetrieüberlegungen auf einen isotropen Tensor und Gl. (2.29) vereinfacht sich zu der skalaren Spinrelaxationsrate

$$\frac{1}{\tilde{\tau}_s} = \frac{\tilde{\tau}_p^{\rm sp}}{\gamma_l^{\rm sp}} \left\langle \Omega^2 \right\rangle, \qquad (2.30)$$

aus der weiter der energieabhängige Ausdruck der Spinrelaxationsrate folgt

$$\frac{1}{\tilde{\tau}_s} = \frac{32}{105} \frac{\tilde{\tau}_p^{\rm sp}}{\gamma_3^{\rm sp}} \alpha_c^2 \frac{E_k^3}{\hbar^2 E_g} \,. \tag{2.31}$$

Im Fall eines nicht-entarteten Elektronengases ergibt sich nach einer Mittelung über die Boltzmann-Verteilung nach Pikus und Titkov [46] für die energiegemittelte Spinrelaxationsrate der Ausdruck

$$\frac{1}{\tau_s} = Q^{\rm sp} \tau_p^{\rm sp} \alpha_c^2 \frac{(k_B T)^3}{\hbar^2 E_g} . \qquad (2.32)$$

Der Faktor $Q^{\rm sp}$ beinhaltet die Streueffizienz $\gamma_3^{\rm sp}$, gewichtet also die mittlere Impulsstreurate $\tau_p^{\rm sp}$, und beträgt $Q^{\rm pop} = 3$ für polar optische Phonon (POP)-Streuung, $Q^{\rm ap} = 2,7$ für Streuung an akustische Phononen (AP) (Deformationspotentialstreuung) und $Q^{\rm ii} = 1,5$ für Streuung an ionisierten Störstellen (II¹³).

Neben den hier aufgeführten Impulsstreumechanismen, die die Ladungsträgermobilität beeinflussen und demzufolge aus Transportmessungen abgeleitet werden können, führt auch die sehr effiziente Elektron-Elektron-Streuung, die nicht den Gesamtimpuls des Elektronensystems ändert, zu einer Durchmischung der Larmorfrequenzen, d.h. zu einem *motional-narrowing* [47, 48, 49].

¹³Ionized Impurities
Allgemein gilt für den Dyakonov-Perel (DP)-Mechanismus in Volumen-GaAs aufgrund der k^3 -Abhängigkeit von Ω_{BIA} mit Gl. 2.28 der qualitative Zusammenhang:

Nichtentartetes Elektronengas:
$$\frac{1}{\tau_s} \propto \tau_p \left(k_B T\right)^3$$
 (2.33)

Entartetes Elektronengas:
$$\frac{1}{\tau_s} \propto \tau_p (E_F)^3$$
 (2.34)

DP-Spinrelaxationszeit in GaAs-Quantenfilmen

Bei dem Übergang von Volumen-GaAs zu GaAs-Quantenfilmen ändert sich das effektive Magnetfeld $\Omega_{\text{BIA}}(\mathbf{k})$, das den Dresselhaus-Term beschreibt, wobei $\Omega_{\text{BIA}}(\mathbf{k})$ sowohl von der Wachstumsrichtung als auch von der Breite des Quantenfilms abhängt (s. Abschnitt 2.2.2). In asymmetrischen, nichtisomorphen Strukturen kommt zudem das effektive Magnetfeld $\Omega_{\text{SIA}}(\mathbf{k}_{||})$ des Rashba-Termes hinzu (s. Abschnitt 2.2.3). Der zweidimensionale Ladungsträgereinschluss hat demzufolge auch Auswirkungen auf den Dyakonov-Perel-Mechanismus. Der Spinrelaxationstensor ist nicht mehr isotrop, d.h. die Spinrelaxation innerhalb der Quantenfilmebene unterscheidet sich von der senkrecht zu der Quantenfilmebene. Ein zusätzliches Rashba-Feld $\Omega_{\text{SIA}}(\mathbf{k}_{||})$ führt zudem zu einer Anisotropie der Spinrelaxationszeit innerhalb der Quantenfilmebene [50, 51].

Im Fall der BIA ergeben sich nach Dyakonov und Kachorovskii [22] für ein nicht-entartetes Elektronengas mit

$$\frac{1}{\tau_s} = \frac{\alpha^2 \langle k_z^2 \rangle^2 \hbar^2 \tau_p \, k_B T}{2 \, m^2 E_g} \tag{2.35}$$

folgende Spinrelaxationszeiten abhängig von der Quantenfilmwachstumsrichtung (s. auch Gl. (2.12) und (2.13)):

- $(001)-\text{Quantenfilm:} \qquad \tau_{||} = \tau_s \qquad \tau_{\perp} = \frac{1}{2} \tau_s \qquad (2.36)$
- (110)-Quantenfilm: $\tau_{||} = 4 \tau_s$ $\tau_{\perp} = \infty$ (2.37)

Die Zeiten $\tau_{||}$ und τ_{\perp} sind die Spinrelaxationszeiten bei einer Spinorientierung parallel bzw. senkrecht zur Quantenfilmebene. Auffällig ist, dass für eine Spinorientierung entlang der Wachstumsrichtung eines (110)-Quantenfilmes die Spinrelaxationszeit unendlich ist: Das effektive Magnetfeld $\Omega_{\rm BIA}^{[110]}$ in Gl. (2.13) hat lediglich eine Komponente in Wachstumsrichtung und verursacht somit keine Präzessionsbewegung bei parallel orientierten Spins. Die Unterdrückung des DP-Mechanismus in (110)-Quantenfilmen bei einer zur Wachstumsrichtung parallelen Spinorientierung gilt nach Winkler [52] bis zu allen Ordnungen in $\mathbf{k}_{||}$.

Mit der Quantisierungsenergie $E_{1e} \propto \langle k_z^2 \rangle$ ergibt sich für den DP-Mechanismus in GaAs-Quantenfilmen aufgrund der Dresselhaus-Aufspaltung aus Abschnitt 2.2.2 und Gl. (2.28) der qualitative Zusammenhang [53]:

- Boltzmann-Fall mit $E_{1e} > k_B T$: $\frac{1}{\tau_s} \propto \tau_p E_{1e}^2 (k_B T)$ (2.38)
- Fermi-Fall mit $E_{1e} \gg E_F$: $\frac{1}{\tau_s} \propto \tau_p E_{1e}^2 (E_F)$ (2.39)

2.5.2. Bir-Aronov-Pikus-Mechanismus

Die Elektron-Loch-Austauschwechselwirkung kann in Kombination mit der Elektron-Loch-Impulsstreuung einen simultanen Spin-Flip des Elektronenund Lochspins verursachen. Dieser Prozess führt bezogen auf das Spinsystem der Elektronen zu einer Spinrelaxation, und wird als Bir-Aronov-Pikus (BAP)-Mechanismus [54] bezeichnet. Eine anschauliche Betrachtung des BAP-Mechanismus ist die Präzession des Elektronenspins um ein effektives Magnetfeld, das der Austauschwechselwirkung zwischen Elektron und Loch zugeordnet wird [55, 56].

Die Austauschwechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern steigt mit zunehmendem Ladungsträgerüberlapp an. Daher ist der BAP-Mechanismus aufgrund des stärkeren Überlapps von lokalisierten Ladungsträgern in Quantenfilmen im Allgemeinen effizienter als in Volumenmaterial. Zusätzlich nimmt die Lochkonzentration, neben der Temperatur, entscheidenden Einfluss auf den BAP-Mechanismus. Dieser ist im Vergleich zum DP-Mechanismus nur bei tiefen Temperaturen und hohen Lochkonzentrationen sowohl in Volumen-GaAs [57] als auch in GaAs-Quantenfilmen relevant [58]. Dahingegen spielt in n-dotierten Proben der BAP-Mechanismus nur eine untergeordnete Rolle.

Der BAP-Mechanismus grenzt sich als Vielteilchen-Effekt gegenüber der exzitonischen Spinrelaxation (s. Abschnitt 2.5.3) mit gleichem Ursprung, aber als Ein-Teilchen-Effekt, ab. Die Berechnungen von Zhou und Wu [59] bezüglich der BAP-Spinrelaxationszeiten in intrinsischen und p-dotierten Quantenfilmen auf der Basis von kinetischen Halbleiter-Spin-Bloch-Gleichungen [60] zeigen unter anderem eine abnehmende Spinrelaxationszeit mit ansteigender Lochdichte bei konstanter Elektronendichte. Dieses Ergebnis legt ein Bild des BAP-Mechanismus nahe, bei dem die Elektronen mit dem Gesamtsystem der Löcher wechselwirken.

2.5.3. Exzitonische Spinrelaxation

Die Coulomb-Wechselwirkung bindet die negativ geladenen Elektronen und positiv geladenen Löcher in Halbleitern zu wasserstoffähnlichen Quasiteilchen, den (Wannier-) Exzitonen [61, 62]. Die Bindungsenergie der Exzitonen beträgt dabei in Volumen-GaAs 4,2 meV. In GaAs-Quantenfilmen ist die Bindungsenergie größer, abhängig vom Grad der Lokalisierung des Exzitons.¹⁴ Die exzitonische Spinrelaxation wird in diesem Abschnitt anhand von (GaAs-) Quantenfilmen behandelt. Bei tiefen Temperaturen und niedrigen Dichten sind in Quantenfilmen aufgrund der HH- und LH-Aufspaltung des Valenzbandes nur die HH-Zustände besetzt, weswegen die Leichtloch-Exzitonen im Weiteren vernachlässigt werden.

Der Gesamtspin des Exzitons setzt sich zusammen aus dem Spin des Elektrons m_e und des Loches m_h und kann die Zustände $|\pm 1\rangle = |\mp 1/2, \pm 3/2\rangle$

 $^{^{14}}$ Beispielsweise beträgt die Bindungsenergie in einem $9\,\mathrm{nm}\text{-}\mathrm{Quantenfilm}$ etwa $8\,\mathrm{meV}.$

und $|\pm 2\rangle = |\pm 1/2, \pm 3/2\rangle$ annehmen. Die Zustände $|\pm 1\rangle$ werden optisch aktiv genannt, da sie strahlend rekombinieren können, wohingegen die $|\pm 2\rangle$ -Zustände optisch inaktiv sind (dunkle Exzitonen)¹⁵. Die Spinrelaxation von optisch generierten $|\pm 1\rangle$ -Exzitonen kann zum einen über den Zwischenschritt hin zu einem dunklen Exziton und wieder zurück erfolgen. Hierfür ist die Spinrelaxation der Elektronen oder Löcher im Einzelnen verantwortlich. Zum anderen kann die Elektron-Loch-Austauschwechselwirkung einen direkten Spin-Flip des optisch aktiven Exzitons verursachen. Dieser Fall wird im Folgenden betrachtet.

Die Elektron-Loch-Austauschwechselwirkung wird unterteilt in einen kurzreichweitigen Anteil, bei dem sich Elektron und Loch in der gleichen Wigner-Seitz-Zelle befinden, und einen langreichweitigen Anteil, bei dem sich Elektron und Loch in unterschiedlichen Wigner-Seitz-Zellen befinden [63]. Der dominierende langreichweitige Anteil verursacht eine longitudinal-transversale Aufspaltung der Exzitonenzustände, die sich in der Ausrichtung des Dipolmomentes des Exzitons bezogen auf seinen Wellenvektor \boldsymbol{K} unterscheiden. Der Hamilton-Operator des langreichweitigen Anteils der Austauschwechselwirkung lautet in der Basis der optisch aktiven Exzitonen $(|+1\rangle, |-1\rangle)$ [55]

$$\mathcal{H}_{\rm LR} = \delta_{\boldsymbol{K},\boldsymbol{K}'} \frac{3}{16} \frac{|\phi_{1s}^{(\rm 2D)}(0)|^2}{|\phi_{1s}^{(\rm 3D)}(0)|^2} \Delta E_{\rm LT} \frac{f(K)}{K} \begin{bmatrix} K^2 & K_-^2 \\ K_+^2 & K^2 \end{bmatrix}, \qquad (2.40)$$

wobei $\mathbf{K} = (K_x, K_y)$ und $K_{\pm} = (K_x \pm iK_y)$ die Schwerpunktsbewegung des Exzitons beschreiben. Die longitudinal-transversale Aufspaltung $\Delta E_{\rm LT}$ gilt im entsprechenden Volumenmaterial, in dem der Elektron-Loch-Überlapp des 1s-Exzitons $\phi_{1s}^{(3D)}(0)$ beträgt. Der Elektron-Loch-Überlapp des betrachteten Exzitons geht mit $\phi_{1s}^{(2D)}(0)$ in die longitudinal-transversale Aufspaltung ein,

¹⁵Die dunklen Exzitonen können aufgrund der Drehimpulserhaltung nur über Zwei-Photonen-Prozesse rekombinieren.

wobei über den Formfaktor

$$f(K) = \int dz \int dz' \,\xi_c(z)\zeta_v(z) \,e^{-K|z-z'|} \,\xi_c(z')\zeta_v(z')$$
(2.41)

die Anteile der Wellenfunktion des Elektrons $\xi_c(z)$ und des Loches $\zeta_v(z)$ in Wachstumsrichtung berücksichtigt werden.

Die Nebendiagonlelemente in Gl. (2.40) koppeln die beiden Zustände $|\pm 1\rangle$ aneinander und wirken auf die optisch aktiven Zustände wie ein effektives Magnetfeld, das in der Quantenfilmebene liegt und vom Wellenvektor Kabhängt. Das effektive Magnetfeld bewirkt eine Spinpräzession, wobei eine Änderung des Wellenvektors K zu einer Änderung des effektiven Magnetfeldes führt. Bezogen auf das Gesamtsystem der Exzitonen resultiert dies in einer Spinrelaxation mit einer Exzitonenspinrelaxationszeit, die analog zum DP-Mechanismus (s. Abschnitt 2.5.1) invers proportional zu der Impulsstreuzeit der Exzitonen ist (motional-narrowing).

2.5.4. Elliott-Yafet-Mechanismus

Der Elliott-Yafet-Mechanismus [64, 65] beruht wie der DP-Mechanismus auf der Spin-Bahn-Kopplung, tritt im Gegensatz zu diesem aber auch in inversionssymmetrischen Festkörpern auf. Die Einzelelektronen-Bloch-Zustände sind aufgrund der Spin-Bahn-Kopplung (s. Gl. (2.3)) keine reinen Spin-Eigenzustände von σ_z , sondern eine Mischung aus Spin-up- und Spin-down-Zuständen. Zusätzlich ist einem Leitungsbandzustand über die $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Kopplung ein kleiner Anteil des Valenzbandzustandes mit gleichem Wellenvektor \mathbf{k} beigemischt, der sich jedoch im entgegengesetzten Spin-Zustand befindet. Daher kann ein Impulsstreu-Ereignis zu einem Spin-Flip des Leitungsbandzustandes führen. Für Leitungsbandelektronen in III-V-Halbleitern gilt für die Spinrelaxationszeit τ_s [66, 7]

$$\frac{1}{\tau_s(E_k)} = A \left(\frac{\Delta_{\rm SO}}{E_g + \Delta_{\rm SO}}\right)^2 \left(\frac{E_k}{E_g}\right)^2 \frac{1}{\tau_p(E_k)} , \qquad (2.42)$$

mit der Impulsstreuzeit τ_p und dem vom Impulsstreuprozess abhängenden Parameter $A \approx 1$. Die Spinrelaxation findet im Gegensatz zum DP-Mechanismus während der Impulsstreuung statt. Daher ist $\tau_s \propto \tau_p$. Gleichung (2.42) zeigt den Einfluss der Bandlücke E_g und der Spin-Bahn-Aufspaltung Δ_{SO} auf den Elliott-Yafet-Mechansimus, der lediglich in III-V-Halbleiter mit kleinem E_g und großem Δ_{SO} , wie beispielsweise InSb, effizient ist. GaAs besitzt demgegenüber eine große Bandlücke, und die Valenzbandzumischung zu Leitungsbandzuständen ist dementsprechend gering. Der Elliott-Yafet-Mechanismus ist daher in GaAs vernachlässigbar [67].

2.5.5. Intersubband-Mechanismus

Der Intersubband (ISR)-Mechanismus beschreibt die Spinrelaxation aufgrund der Streuung von Elektronen zwischen den Leitungsbandsubbändern und tritt demzufolge in Quantenfilmen auf [68]. Über die Spin-Bahn-Kopplung sind Streuprozesse zwischen den Subbändern, bei denen der Spin umklappt, schwach erlaubt. Ähnlich wie bei dem Elliott-Yafet-Mechanismus führt dies zu einer Spinrelaxation. Die Effizienz des ISR-Mechanismus hängt von der Durchmischung der Subbandzustände ab. Daher ist er bei hohen Temperaturen in breiten (110)-Quantenfilmen, in denen der DP-Mechanismus unterdrückt ist,¹⁶ relevant.

2.5.6. Hyperfeinwechselwirkung

Die Wechselwirkung der magnetischen Momente der Elektronen und Kerne wird Hyperfeinwechselwirkung genannt. Diese führt im Fall von lokalisierten Elektronen bei tiefen Temperaturen zu einer effizienten Spindephasierung des Elektronenspinensembles. Grund hierfür sind die zeitlich und räumlich fluktuierenden Kernmagnetfelder [69]: Jeder lokalisierte Elektro-

¹⁶Für eine Spinorientierung entlang der Wachstumsrichtung.

nenspin präzediert um sein individuelles Magnetfeld, das von den Kernen in seiner Umgebung erzeugt wird. Die individuellen Kernmagnetfelder variieren über die lokalisierten Elektronenspins, sodass die Gesamtspinpolaristion dephasiert. Die Spindephasierung aufgrund der Hyperfeinwechselwirkung kann für freie Elektronen vernachlässigt werden [70], da sie bei ihrer Bewegung nach dem *motional-narrowing* Effekt über die Fluktuationen der Kernmagnetfelder mitteln.

3. Experimenteller Aufbau

Die in dieser Arbeit vorgestellten Messungen werden mit dem in Abb. 3.1 skizzierten Messaufbau der zeit- und polarisationsaufgelösten Photolumineszenz (PL)-Spektroskopie durchgeführt, der nachfolgend kurz erläutert wird. Die Probe befindet sich in einem Spectromag-Kryostaten von Oxford Instruments und kann auf Temperaturen von 1,5 bis 300 K eingestellt werden. Zusätzlich können Magnetfelder bis zu 9T angelegt werden, die bei sämtlichen durchgeführten Messungen senkrecht zur Probenanregung, d.h. der optischen Achse liegen (Voigt-Geometrie). Als Laserquelle dient ein Ti:Saphir-Kurzpulslaser (Ti:Sa), der von einem frequenzverdoppelten Nd:YVO₄-Laser gepumpt wird. Der Ti:Saphir-Kurzpulslaser hat eine Wiederholrate von 80 MHz, eine Ausgangsleistung von $\approx 1 \text{ W}$, eine kontinuierlich durchstimmbare Emissionswellenlänge von 700 bis 900 nm und kann im ps-Modus bei einer Pulsdauer von ca. 1,5 ps oder im fs-Modus bei einer Pulsdauer von ca. 100 fs betrieben werden. Ein Teil des Laserlichtes wird über einen Strahlteiler auf eine Triggerdiode ausgekoppelt, die die Streakkamera mit dem Ti:Saphir-Laser synchronisiert. Über einen Linearpolarisator (LP) und einen Soleil-Babinet-Kompensator (SBK) wird das linear polarisierte Laserlicht des Ti:Saphir-Lasers in zirkular polarisiertes Laserlicht umgewandelt.¹ Das $\lambda/2$ -Plättchen vor dem Linearpolarisator dient zur Leistungseinstellung des Laserlichtes. Das zirkular polarisierte Laserlicht wird mithilfe einer achromatischen Linse L1 auf der Probe zu einem Spotdurchmesser von $100\,\mu\text{m}$ fokussiert und

 $^{^{1}}$ Allgemein kann hier eine beliebige optische Polarisation eingestellt werden.



Abb. 3.1.: Schematische Darstellung des typischen Messaufbaus der zeit- und polarisationsaufgelösten Photolumineszenz-Spektroskopie.

regt die Probe an. Die Photolumineszenz wird in Rückwärtsrichtung über die Linsen L1 und L2 detektiert, wobei letztere die kollimierte PL auf den Eingangsspalt eines Monochromators fokussiert.

In der Detektion geschieht die Polarisationsauflösung der PL mit einem Füssigkristallverzögerer (LCR^2) gefolgt von einem Linearpolarisator. Die Retardierung des LCR wird elektrisch eingestellt und es kann rechnergesteuert zwischen der Detektion der gleich- und gegenpolarisierten PL-Komponente³, bezogen auf das Laserlicht, geschaltet werden. Der Monochromator zerlegt die PL spektral und eine Streakkamera detektiert den zeitlichen Verlauf der polarisations- und energieaufgelösten PL. Die Streakkamera kann in vier verschiedenen zeitlichen Messbereichen, den sogenannten *Time Ranges* (TR), betrieben werden. Der kürzeste TR hat ein Aufnahmefenster von 160 ps

²Liquid Crystal Retarder

³Die Bezeichnungen gleich- bzw. gegenpolarisierte PL-Komponente bedeuten, dass die PL-Komponente detektiert wird, welche die gleiche (σ^{\pm} -) bzw. entgegengesetzte (σ^{\mp} -) zirkulare Polarisation aufweist, wie das anregende σ^{\pm} -Laserlicht.

(TR1) und ermöglicht die höchste zeitliche Auflösung von ca. 2 ps. Das längste Aufnahmefenster beträgt 2100 ps (TR4). Die Bilder der Streakkamera werden über eine CCD-Kamera digitalisiert an einen Rechner zur weiteren Datenverarbeitung weitergeleitet. Leichte Modifikationen des hier skizzierten Messaufbaus bei einigen Messreihen werden in den jeweiligen Kapiteln behandelt.

Bei dem überwiegenden Teil der polarisationsaufgelösten Messungen werden die gleich- und gegenpolarisierte PL-Komponente sequentiell aufgenommen, d.h. in der Detektion wird beispielsweise minütlich zwischen σ^+ - und σ^- -polarisierter PL-Aufnahme geschaltet. Dies hat vor allem bei Langzeitaufnahmen, die im Stundenbereich liegen können, den Vorteil, dass der Mess-



Abb. 3.2.: (a) Streakkamerabilder der beiden PL-Komponenten einer Quantenfilmprobe bei angelegtem Magnetfeld. Rechts: Zeitliche Verläufe der spektral integrierten PL-Intensitäten (b) und des daraus berechneten Polarisationsgrades (c).

fehler aufgrund von leichten Driften während der Aufnahme verringert wird.

Abbildung 3.2 (a) zeigt exemplarisch die Streakkamera-Aufnahmen der gleich- und gegenpolarisierten PL-Komponente (σ^+ und σ^-) einer Quantenfilmprobe bei angelegtem Magnetfeld. Die Zeit- bzw. Wellenlängenachse verläuft in den Streakkamerabildern von oben nach unten bzw. von rechts nach links. Bei der Aufnahme der σ^+ -PL ist zum Zeitpunkt t = 0 noch ein Teil des anregenden Laserpulses zu sehen, da die Probenanregung quasiresonant erfolgt. Deutlich zu erkennen sind Spinquantenschwebungen. Rechts dargestellt sind die spektral gemittelten zeitlichen Verläufe der beiden PL-Komponenten (Abb. 3.2 (b)) und der daraus berechnete optische Polarisationsgrad (Abb. 3.2 (c)), der für die weitere Datenanalyse, z.B. der Bestimmung der Schwebungsfrequenz, verwendet werden kann.

4. Dyakonov-Perel-Spinrelaxation in Volumen-GaAs im Hochtemperaturbereich

Die Elektronenspinrelaxation in Volumen-GaAs ist Gegenstand zahlreicher experimenteller [71, 72, 73, 74, 75, 76] und theoretischer Untersuchungen (Referenz [9] gibt eine Übersicht). Verschiedene Spinrelaxationsmechanismen, wie die Hyperfeinwechselwirkung, der Bir-Aronov-Pikus- und der Dyakonov-Perel-Mechanismus (s. Abschnitt 2.5), tragen abhängig von den experimentellen Parametern zu der Spinrelaxation bei. Im Bereich niedriger Temperaturen können diese Mechanismen einen vergleichbaren Einfluss auf die Spinrelaxation haben, und die Identifikation eines einzelnen, dominierenden Mechanismus ist dementsprechend schwierig. Dagegen wird im hier untersuchten, auch technologisch relevanten, Hochtemperaturbereich von 280 bis 400 K die Spinrelaxation eindeutig durch den Dyakonov-Perel-Mechanismus dominiert [57]. Zusätzlich wird in diesem Temperaturbereich die Transportstreuzeit bei moderater (Hintergrund-)Dotierung hauptsächlich durch die polar optische Phonon (POP)-Streuung dominiert. Die in diesem Kapitel behandelten Messungen der Elektronenspinrelaxationszeit in Abhängigkeit von der Temperatur und der Elektronendichte sind daher besonders für einen quantitativen Vergleich mit der Theorie der DP-Spinrelaxation unter Einfluss der POP- und Elektron-Elektron-Impulsstreuung geeignet.

Zunächst werden in Abschnitt 4.1 analytische Ausdrücke und Parameter, die für numerische Berechnungen der Elektronenspinrelaxationszeit τ_s verwendet werden, zusammengestellt. Dieser Abschnitt ist im Zusammenhang mit der im Abschnitt 2.5.1 behandelten Theorie des DP-Mechanismus zu sehen. Auf die experimentelle Durchführung und die relevanten Messparameter wird in Abschnitt 4.2 eingegangen. Sowohl die Ergebnisse der Messungen als auch die der numerischen Berechnung werden in den Abschnitten 4.3 und 4.4 vorgestellt. Zunächst wird die Abhängigkeit von τ_s von der Elektronendichte behandelt. Hierbei wird der Einfluss der Elektron-Elektron-Streuung untersucht und die Spinrelaxationszeit zu verschwindender Elektronendichte (τ_s^{zero}) extrapoliert. Im darauffolgenden Abschnitt über die Temperaturabhängigkeit wird sowohl der alleinige Einfluss der POP-Streuung auf die Elektronenspinrelaxation über die Zeiten τ_s^{zero} analysiert, als auch die gemessenen Spinrelaxationszeiten bei endlicher Elektronendichte mit numerischen Berechnungen verglichen, die beide relevanten Impulsstreumechanismen beinhalten. Im abschließenden Abschnitt 4.5 werden dann die Kernpunkte des Kapitels zusammengefasst.

4.1. Numerische Berechnung der Dyakonov-Perel-Spinrelaxationszeit

Für die numerische Berechnung der Dyakonov-Perel-Spinrelaxationszeit ist eine genaue Kenntnis der für den DP-Mechanismus effektiven Gesamtimpulsstreuzeit $\tilde{\tau}_p/\gamma_3$ erforderlich. Zu der Impulsstreuung der Elektronen tragen mehrere Impulsstreumechanismen bei, die unterschiedliche Effizienzfaktoren γ_3 besitzen. Die Gl. (2.31) der energieabhängigen Spinrelaxationsrate aus Abschnitt 2.5.1 ist nur für einen einzelnen Impulsstreumechanismus gültig und wird deswegen mit der energieabhängigen effektiven Gesamtimpulsstreurate $\sum_{sp} \gamma_3^{sp}/\tilde{\tau}_p^{sp}$ umgeschrieben zu:

$$\frac{1}{\tilde{\tau}'_s} = \frac{32}{105} \,\alpha_c^2 \, \frac{E_k^3}{\hbar^2 E_g} \left(\sum_{\rm sp} \frac{\gamma_3^{\rm sp}}{\tilde{\tau}_p^{\rm sp}}\right)^{-1} \tag{4.1}$$

Darin erfolgt die Summation über alle relevanten Impulsstreumechanismen (SP^1) . Zusätzlich ist die Spinrelaxationszeit in Gl. (4.1) mit einem Strich (') versehen, um sie als DP-Spinrelaxationszeit im *motional-narrowing* Regime zu kennzeichnen.

Gleichung (4.1) divergiert für den Fall $E_k, \tilde{\tau}_p \to \infty$. Dies ist gerade der dem *motional-narrowing* Regime entgegengesetzte Fall der schnellen Spinpräzession ($\langle \Omega \rangle \tau_p > 1$). Im Fall der schnellen Spinpräzession ist die mittlere Larmorfrequenz $\langle \Omega \rangle$ eine obere Grenze der Spinrelaxationszeit, da die Spinrelaxation nicht schneller stattfinden kann als die Spinpräzession. Die Mittelung von $\Omega_{\text{BIA}}(\mathbf{k})$ in Gl. (2.10) über alle Richtungen von \mathbf{k} ergibt $\langle \Omega \rangle = (2 \Gamma_c / \hbar) (k^3 / \sqrt{128})$, woraus der energieabhängige Ausdruck der DP-Spinrelaxationsrate folgt, der in guter Näherung beide Regime der Spinrelaxation beinhaltet [77]:

$$\frac{1}{\tilde{\tau}_s} = \left(\tilde{\tau}'_s + \frac{\hbar\sqrt{128\,E_g}}{\alpha_c\,E_k^{3/2}}\right)^{-1} \tag{4.2}$$

Die Integration über den gesamten Energiebereich liefert dann die mittlere Spinrelaxationsrate

$$\frac{1}{\tau_s} = \frac{\int_{0}^{\infty} \frac{1}{\tilde{\tau}_s} f(E_k) D(E_k) dE_k}{\int_{0}^{\infty} f(E_k) D(E_k) dE_k} .$$
(4.3)

Mit der Fermi-Verteilung $f(E_k) = \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{E_k - E_F}{k_B T}\right)}$ und der 3D-Zustandsdichte $D(E_k) = \frac{(2m)^{3/2} E_k^{1/2}}{2\pi^2 \hbar^3} .$

4.1.1. Impulsstreuzeiten und verwendete Parameter

Die numerischen Berechnungen erfolgen mit dem Programm Maple. Die Impulsstreuzeiten werden nach den Formeln² in Gl. (B.1) für die POP-Streuung,

¹Scattering Process

²s. Anhang. B

Gl. (B.3) für die Streuung an ionisierten Störstellen (Brooks-Herring Ansatz) und Gl. (B.5) für die Deformationspotentialstreuung berechnet [78, 77]. Die beiden letztgenannten Streumechanismen spielen im hier untersuchten Temperaturbereich kaum eine Rolle, werden an dieser Stelle aber trotzdem mit angegeben, da auf ihren geringen Einfluss in Abschnitt 4.4 quantitativ eingegangen wird. Abbildung 4.1 veranschaulicht die Energieabhängigkeit der relevanten POP-Streurate und ihren sprunghaften Anstieg bei der LO-Phononenenergie von 35,36 meV. Die Effizienzfaktoren der drei Streumechanismen betragen $\gamma_3^{\text{pop}} = \frac{11}{6}$, $\gamma_3^{\text{ii}} = 6$ und $\gamma_3^{\text{ap}} = 1$. Die verwendeten Formeln und Materialparameter von GaAs befinden sich im Anhang C.



Abb. 4.1.: Polar optische Phonon (POP)-Streurate in Abhängigkeit von der Elektronenenergie. Deutlich zu sehen ist die sprunghafte Zunahme der Streurate bei der LO-Phononenenergie $\hbar \omega_{LO} = 35,36 \text{ meV}$.

4.2. Messung der Elektronenspinrelaxationszeit

4.2.1. Volumen-GaAs-Probe

Die von Stefan Malzer an der Universität Erlangen per MBE gewachsene Volumen-GaAs-Probe (Probennummer: TP906) besteht aus einer 5 μ m dicken GaAs-Schicht, die über eine 2 μ m Al_{0,3}Ga_{0,7}As-Schicht und eine AlAs-Ätzopferschicht vom Substrat getrennt ist. Die GaAs-Schicht ist schwach n-dotiert mit einer Konzentration von 1, 2 · 10¹⁵ cm⁻³ und wird zur Oberfläche hin durch eine dünne hoch n-dotierte GaAs-Deckschicht, die das Fermi-Niveau an der Oberfläche angleicht, abgeschlossen.

4.2.2. Experimentelle Durchführung

Die Elektronenspinrelaxationszeit τ_s wird mithilfe der zeit- und polarisationsaufgelösten PL-Spektroskopie gemessen (s. Kapitel 3). Dabei werden die spinorientierten Elektronen optisch mit zirkular polarisierten 100 fs Laserpulsen injiziert und die Elektronendichte über die Laserleistung eingestellt.³ Die Anregungsenergie beträgt 1,59 eV und gewährleistet damit eine 50%-ige Elektronenspinpolarisation für alle gemessenen Temperaturen, da sie auch im Hochtemperaturbereich von 300 bis 400 K deutlich unterhalb des Übergangs zwischen dem Split-off-Valenzband und dem Leitungsband liegt (s. Abschnitt 2.3). In der Detektion werden die beiden zirkular polarisierten PL-Komponenten ($I_{\sigma\pm}$) minütlich wechselnd aufgenommen. Die Gesamtintegrationszeit liegt im Bereich niedriger Signalstärke bei bis zu 4 h.

Die PL-Lebenszeit beträgt bei sämtlichen Messungen ca. 250 ps und liegt damit deutlich über den hier gemessenen Elektronenspinrelaxationszeiten τ_s , d.h. die Ladungsträgerdichte ändert sich nur unwesentlich auf der Zeitskala von τ_s . Zusätzlich kann eine Diffusion der Ladungsträger aus dem Laserfokus

³Im Vergleich zu der optisch injizierten Elektronendichte ist die Hintergrund-n-Dotierung klein und wird vernachlässigt.

vernachlässigt werden, da die *bipolare* Ladungsträgerdiffusion langsam im Vergleich zu τ_s ist [79].

Die Elektronenspinrelaxationszeit τ_s wird über die Anpassung eines monoexponentiellen Zerfalls an die optische Polarisation P_{opt} bestimmt.⁴ Die Anpassung beginnt 10 ps nach der Anregung, um den Einfluss des Laserstreulichtes zu minimieren. Die Zeitdauer von 10 ps ist zusätzlich bei allen gemessenen Anregungsdichten ausreichend für die Thermalisierung der Ladungsträger mit dem Gitter, da die Fröhlich-Wechselwirkung bei hohen Temperaturen sehr effizient ist [80]. Während der Thermalisierung zerfällt die anfängliche Lochspinpolarisation aufgrund der starken Valenzbanddurchmischung und *k*abhängigen Spinaufspaltung komplett. Alle Messkurven werden gut über den monoexponentiellen Zerfall beschrieben, was eine in guter Näherung gleichbleibende Ladungsträgerdichte und -temperatur bestätigt. Abbildung 4.2 zeigt den zeitlichen Verlauf der beiden zirkularen PL-Komponenten und der Polarisation an einer Beispielmessung.

 $^{^4 \}mathrm{Die}$ optische Polarisation P_{opt} ist ein direktes Maß für die Elektronenspinpolarisation.



Abb. 4.2.: Zeitlicher Verlauf der beiden zirkularen PL-Komponenten und der Polarisation P (Einsatz) bei einer Elektronendichte $n_e = 1, 2 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ und T = 300 K.

4.3. Dichteabhängigkeit / Einfluss der Elektron-Elektron-Streuung

Abbildung 4.3 zeigt die Messungen der Elektronenspinrelaxationszeit τ_s in Abhängigkeit von der Elektronendichte n_e , die weiterführend genutzt werden, um den Einfluss der Elektron-Elektron-Streuung auf die Spinrelaxation näher zu untersuchen. Bei Raumtemperatur (T = 300 K) steigt τ_s im Niedrigdichtebereich ($n_e \leq 4 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$) linear mit n_e an (Abb. 4.3 (b)). Diese lineare Abhängigkeit ist in Übereinstimmung mit analytischen Berechnungen Glazov und Ivchenko, die die Impulsstreurate der Elektron-Elektron-Streuung $1/\tau_p^{\text{ee}}$ im Grenzfall der quasielastischen Streuung berechnet haben [48]. In diesem



Abb. 4.3.: (a) Spinrelaxationszeit τ_s in Abhängigkeit von der Elektronendichte n_e für T = 300 K. (b) Darstellung des Niedrigdichtebereiches für T = 300 K und 350 K (anderer Datensatz als in Teil (a)). Die durchgezogenen Linien sind die linearen Anpassungen und die gestrichelten Linien sind die berechneten Verläufe.

Bereich gilt für die mittlere Impulsstreurate

$$\frac{1}{\tau_p^{\rm ee}} \propto \frac{n_e}{(k_B T)^{3/2}} ,$$
 (4.4)

woraus im *motional-narrowing* Regime der DP-Spinrelaxation über $1/\tau_s \propto \tau_p$ der lineare Zusammenhang zwischen τ_s und n_e folgt (s. Abschnitt 2.5.1).

Oberhalb des Niedrigdichtebereiches weicht der Verlauf der experimentellen Daten allerdings von einem linearen Anstieg ab und die Spinrelaxationszeit nähert sich dem konstanten Wert von 75 ps an (Abb. 4.3 (a)), der in guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen vergleichbarer Messungen ist [74, 75]. Grund für die beobachtete Sättigung von τ_s ist zum einen, dass die mit der Elektronendichte ansteigende Abschirmung der Elektron-Elektron-Wechselwirkung die Streuwahrscheinlichkeit der Elektronen reduziert und der Grenzfall der quasielastischen Streuung, in dem Gl. (4.4) gilt, nicht mehr gültig ist. Zum anderen heizt sich bei erhöhter eingestrahlter Laserleistung das Gitter im Laserfokus lokal auf, was dem Ansteigen von τ_s entgegenwirkt (s. Abschnitt 4.4). Messungen von Ma *et al.* [81] an Volumen-InP bei Raumtemperatur zeigen einen qualitativ gleichen Verlauf der Elektronenspinrelaxationszeit in Abhängigkeit von der Anregungsdichte. Darüberhinaus beobachten Ma *et al.* bei weiterer Erhöhung von n_e ein Abfallen der Spinrelaxationszeit τ_s .

Eine lineare Anpassung an die Messdaten für T = 300 und 350 K im Niedrigdichtebereich (durchgezogene Linien in Abb. 4.3 (b)) liefert sowohl die Spinrelaxationszeiten bei verschwindender Elektronendichte τ_s^{zero} , als auch die Dichtegradienten der Spinrelaxationszeit $\partial \tau_s$ bei der jeweiligen Temperatur:

	$\tau_s^{\rm zero}$	∂au_s
$T = 300 \mathrm{K}$:	$42\mathrm{ps}$	$6,8\cdot 10^{-16}~{\rm ps~cm^3}$
$\underline{T = 350 \mathrm{K}:}$	$27\mathrm{ps}$	$4, 4 \cdot 10^{-16} \text{ ps cm}^3$

Die Abnahme des Dichtegradienten $\partial \tau_s$ mit steigender Temperatur bestätigt den von Glazov und Ivchenko berechneten verminderten Einfluss der Elektron-Elektron-Streuung auf τ_s bei höheren Temperaturen (s. Gl. (4.4)). Die zu null Elektronendichte extrapolierten Spinrelaxationszeiten τ_s^{zero} werden in Abschnitt 4.4 weiter untersucht.

Die lineare Extrapolation von τ_s zu verschwindender Elektronendichte gilt strikt nur im reinen motional-narrowing Regime der DP-Spinrelaxation. Daher wird zusätzlich die Dichteabhängigkeit der Spinrelaxationszeit τ_s über eine numerische Berechnung, die das Regime der schnellen Spinpräzession beinhaltet (s. Abschnitt 4.1), bestimmt. In die Berechnung gehen über Gl. (4.1) sowohl die POP-Impulsstreurate $1/\tilde{\tau}_p^{\text{pop}}$ als auch die nun energieabhängige Elektron-Elektron-Streurate $1/\tilde{\tau}_p^{\rm ee} = C n_e E_k^{-3/2}$ nach Glazov und Ivchenko [48] ein. Die Zeiten $\tau_{\rm s}^{\rm zero}$ sind in sehr guter Näherung durch die alleinige Impulsstreuung mit polar optischen Phononen gegeben (s. Abschnitt 4.4). Der freie Parameter C wird über eine Anpassung an die Messdaten bei $T = 300 \,\mathrm{K}$ bestimmt. Die gestrichelten Linien in Abb. 4.3 (b) zeigen das Ergebnis der Berechnungen und veranschaulichen die Abweichungen gegenüber der linearen Anpassung (reines motional-narrowing Regime). Der gleiche Parameter $C = 1, 5 \cdot 10^5 \text{ eV}^{-3/2} \text{cm}^{-3} \text{s}$ beschreibt auch die Dichteabhängigkeit bei $T = 350 \,\mathrm{K}$ gut. Über den Anpassparameter C lässt sich die mittlere effektive Elektron-Elektron-Streurate $\gamma_3^{ee}/\tau_p^{ee}$ bestimmen. Für $T = 300 \,\mathrm{K}$ und eine Elektronendichte $n_e = 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ergibt sich ein Wert von 7, 2 · 10¹³ s⁻¹, der in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Daten von Portella et al. [82] ist. Auf die Abweichungen zwischen der linear extrapolierten und der berechneten Dichteabhängigkeit wird in Abschnitt 4.4 nochmals eingegangen.

4.4. Temperaturabhängigkeit und Einfluss der POP Streuung

Als nächstes wird die Temperaturabhängigkeit von τ_s untersucht. Abbildung 4.4 (b) zeigt die experimentellen Rohdaten von τ_s bei endlicher Elektronendichte. Zwischen 280 und 350 K beträgt die Elektronendichte $n_e = 2, 7 \cdot 10^{16}$ cm⁻³ und zwischen 340 und 400 K $n_e = 2, 5 \cdot 10^{16}$ cm⁻³. Grund für die Erhöhung der Anregungsdichte ist die mit steigender Temperatur fallende PL-Intensität, die sich in einem geringeren Signal-zu-Rausch-Verhältnis des Polarisationsgrades äußert. Zusätzlich nimmt die Bandlücke E_g von GaAs mit steigender Temperatur ab, wodurch die PL-Wellenlänge ansteigt. Zusammen mit der starken Abnahme der Photokathodensensitivität der Streakkamera im langwelligen Bereich des untersuchten Spektralbereiches resultiert dies ebenfalls in einem stark abfallenden Signal-zu-Rausch-Verhältnis mit ansteigender Temperatur.

Die Messungen der Dichteabhängigkeiten von τ_s aus Abschnitt 4.3 werden nun benutzt, um die experimentellen Rohdaten von τ_s aus Abb. 4.4 (b) bei endlicher Elektronendichte zu null Elektronendichte zu extrapolieren. Über die beiden gemessenen Dichtegradienten $\partial \tau_s$ (lineare Anpassung) bei T = 300und 350 K werden dazu die Dichtegradienten über eine lineare Interpolation für alle Temperaturen bestimmt. Die zu null Elektronendichte extrapolierten Spinrelaxationszeiten τ_s^{zero} sind in Abb. 4.4 (a) dargestellt.

Die experimentellen Daten aus Abb. 4.4 werden im Folgenden mit der in den Abschnitten 2.5.1 und 4.1 vorgestellten Theorie der DP-Spinrelaxation verglichen. Zunächst erfolgt ein Vergleich mit der von Pikus und Tikov abgeleiteten energiegemittelten Spinrelaxationsrate in Gl. (2.32) für den Boltzmann-Fall. Die durchgezogene schwarze Linie in Abb. 4.4 (a) zeigt das Ergebnis der Anpassung einer T^{-3} -Abhängigkeit an die Daten (doppelt logarithmische Darstellung), das in qualitativ sehr guter Übereinstimmung mit dem Experiment steht. Für einen quantitativen Vergleich wird die mittlere Spin-



Abb. 4.4.: (a) Linear zu null Anregungsdichte extrapolierte Spinrelaxationszeit τ^{zero} . Die durchgezogene schwarze Linie ist eine Anpassung an die Daten proportional zu T^{-3} . Die rote Strichlinie gibt das Ergebnis der numerischen Berechnung basierend auf reiner POP-Impulsstreuung wieder. (b) Gemessene Spinrelaxationszeit τ_s (Rohdaten) bei endlicher Elektronendichte. Die Linien sind numerische Berechnungen inklusive der Elektron-Elektron-Streuung.

relaxationszeit τ_s bei 300 K über Gl. (2.32) berechnet. Die von Stillamn *et al.* über Mobilitätsmessungen bestimmte Transportstreuzeit einer vergleichbaren Probe beträgt 280 fs bei 300 K [83], und liefert eine Spinrelaxationszeit von 11 ps. Dieser Wert weicht um einen Faktor 4 von den experimentell bestimmten Daten ab. Hauptgründe für dieses Abweichen sind, dass Gl. (2.32) auf einem vereinfachten Impulsstreumodell basiert [84] und nur im *motionalnarrowing* Regime der DP-Spinrelaxation gültig ist.

Für einen quantitativen Vergleich der Messdaten mit der DP-Spinrelaxationstheorie wird die gemittelte Impulsstreuzeit τ_p durch die energieabhängige Impulsstreuzeit $\tilde{\tau}_p$ ersetzt und die Spinrelaxationszeiten τ_s^{zero} (Abb. 4.4 (a)) mit dem in Abschnitt 4.1 vorgestellten numerischen Modell verglichen. Im hier untersuchten Hochtemperaturbereich wird die Transportstreuzeit durch die POP-Streuung dominiert [83]. Daher wird für die Berechnung von $\tau_s^{
m zero}$ lediglich die POP-Impulsstreuung in Betracht gezogen und der von Callen abgeleitete analytische Ausdruck für die POP-Streurate $1/\tilde{\tau}_p^{\text{pop}}$ aus Gl. (B.1) verwendet [85, 78]. Über Gl. (4.2) lässt sich mit $\tilde{\tau}_p^{\text{pop}}$ und $\gamma_3^{\text{pop}} = \frac{11}{6}$ die energieabhängige Spinrelaxationszeit $\tilde{\tau}'_s$ im motional-narrowing Regime berechnen. Beide Regime, das des motional-narrowing und das der schnellen Spinpräzession, werden mithilfe von Gl. (4.2) kombiniert. Über Gl. (4.3) wird dann die energiegemittelte Spinrelaxationszeit τ_s^{pop} berechnet. Das Ergebnis der numerischen Berechnung, die keine Anpassparameter enthält, ist in Abb. 4.4 (a) als rote Strichlinie dargestellt. Im Vergleich zu der qualitativen $T^{-3}\mathchar`-Abhängigkeit ist die Steigung der numerisch berechneten Spinrelaxati$ onszeit τ_s^{zero} deutlich flacher, was in der verglichen mit Gl. (2.32) deutlich effizienteren POP-Streuung bei höheren Temperaturen begründet ist [84]. Auffallend ist die erstaunlich gute quantitative Übereinstimmung der vergleichsweise einfachen Berechnungen mit den experimentellen Daten. Lediglich unterhalb von 300 K kommt es zu Abweichungen, die nur geringfügig aus dem mit fallender Temperatur zunehmenden Einfluss weiterer Impulsstreumechanismen resultieren. Die Einbeziehung der Streuung an ionisierten Störstellen nach dem Brooks-Herring-Ansatz und der Deformationspotentialstreuung nach Referenz [78] in Gl. (4.1) neben der POP-Streuung erhöht die berechnete Spinrelaxationszeit bei 280K lediglich um 2 ps und zeigt damit den dominierenden Einfluss der POP-Impulsstreuung auf die Spinrelaxationszeit im Hochtemperaturbereich. Hauptursache für die Abweichungen unterhalb von 300 K ist, dass die lineare Extrapolation zu null Anregungsdichte strikt nur im reinen *motional-narrowing* Regime gültig ist, was im Folgenden näher betrachtet wird.

Die Spinrelaxationszeit τ_s wird abschließend numerisch bei endlicher Elektronendichte berechnet. Dazu wird in Gl. (4.1) zusätzlich zum POP-Term der energie
abhängige Elektron-Elektron-Streuratenterm $1/\tilde{\tau}_p^{\rm ee} = C^{-1} n_e E_k^{-3/2}$ miteinbezogen. Für C wird der in Abschnitt 4.3 aus den Dichteabhängigkeitsmessungen bei $T=300\,\mathrm{K}$ bestimmte Wert von $C=1,5\cdot10^5~\mathrm{eV}^{-3/2}\mathrm{cm}^{-3}\mathrm{s}$ verwendet. Das Ergebnis der Berechnungen ist in Abb. 4.4 (b) dargestellt. Die numerischen Berechnungen bei endlicher Elektronendichte sind auch im Bereich unterhalb von 300 K in sehr guter Übereinstimmung mit den experimentellen (Roh-)Daten. Durch Vergleich der Abb. 4.4 (a) und 4.4 (b) werden die Abweichungen zwischen der bereits in Abschnitt 4.3 angesprochenen linearen Extrapolation und der numerischen Berechnung bei endlicher Elektronendichte deutlich (s. auch Abb. 4.3 (b)). Die Berechnungen zeigen weiterhin, dass die Abweichungen bei alleiniger Betrachtung des reinen motional-narrowing Regimes der Elektron-Elektron-Streuung (lineare Extrapolation) bei niedrigen Dichten und abnehmender Temperatur ausgeprägter sind.

4.5. Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden Messungen der Elektronenspin
relaxationszeit in Volumen-GaAs im Hochtemperaturbereich behandelt. Die Messungen der Dichte
abhängigkeiten beiT = 300 und 350 K wurden benutzt, um die temperatur
abhängigen Messungen zwischen 280 und 400 K zu null Anregungsdichte zu extrapolieren. Die intrinsischen Spinrelaxationszeiten $\tau_s^{\rm zero}$ sind in sehr guter quantitativer Übere
instimmung mit numerischen Berechnungen, die auf der Dyakonov-Perel-Spinrelaxations
theorie beruhen und als einzigen Impulsstreumechanismus die POP-Streuung beinhalten. Diese Berechnungen enthalten keinen Anpassparameter.

Desweiteren wurde der Einfluss der Elektron-Elektron-Streuung anhand

der gemessenen Spinrelaxationszeiten bei endlicher Elektronendichte numerisch näher untersucht. Dabei wurde zunächst über die Messungen bei T = 300 K der Parameter C, mit dem sich die energieabhängige effektive Elektron-Elektron-Streurate $\gamma_3^{\text{ee}}/\tau_p^{\text{ee}}$ berechnen lässt, bestimmt. Mithilfe dieses Parameters wurden dann numerische Berechnungen von τ_s bei endlicher Elektronendichte über den gesamten Temperaturbereich durchgeführt, die ebenfalls in hoher Konformität mit den experimentellen Spinrelaxationszeiten τ_s stehen.

5. Optische Overhauser-Verschiebung des Elektron-g-Faktors in Volumen-GaAs

Zusätzlich zu der Dynamik der Elektronenspins ist auch die des Spinsystems der Kerne in GaAs von großer Bedeutung und dementsprechend Gegenstand zahlreicher Untersuchungen. Kernspins werden klassisch mithilfe der Kernspinresonanz (NMR¹) [86, 87] untersucht. Die Kopplung zwischen den Kernund Elektronenspins ermöglicht aber auch kombinierte Messmethoden wie das ENDOR²-Verfahren [88] und die ODNMR³ [89, 90, 91] oder rein optische, zeitaufgelöste Messmethoden[92, 93, 94].

Eine Kernspinpolarisation führt zu einer Frequenzverschiebung der Elektronenspinresonanz in einem externen Magnetfeld und wird als Overhauser-Verschiebung bezeichnet. Bei der Bestimmung des Elektron-g-Faktors über die Spinquantenschwebungsspektroskopie (s. Abschnitt 2.4) führt eine Kernspinpolarisation demzufolge auch zu einer Verschiebung der Schwebungsfrequenz und Verfälschung des ermittelten Elektron-g-Faktors bei unbekannter Kernspinpolarisation. In diesem Kapitel werden Messungen des Elektron-g-Faktors unter dem Einfluss einer sich zeitlich entwickelnden Kernspinpolarisation vorgestellt. Umgekehrt gibt die zeitliche Entwicklung des gemessenen Elektron-g-Faktors dabei Aufschluss über relevante Zeitskalen der dynamischen Kernspinpolarisation.

¹Nuclear Magnetic Resonance

 $^{^{2}} Electron \ Nuclear \ DOuble \ Resonance$

³Optically Detected Nuclear Magnetic Resonance

Der erste Abschnitt 5.1 behandelt die hier maßgeblichen Effekte der Hyperfeinwechselwirkung, welche die Kopplung zwischen den Elektronen- und Kernspins beschreibt. Zum einen ist dies der Effekt der dynamischen Kernspinpolarisation unter optischem Pumpen von polarisierten Leitungsbandelektronen in GaAs und zum anderen der Effekt der Rückwirkung der entstandenen Kernspinpolarisation über ein effektives Kernmagnetfeld auf die Elektronen. In Abschnitt 5.2 wird der für die Messungen mit polarisationsmodulierter Anregung, d.h. bei schnellem Schalten zwischen σ^+ - und σ^- -Lichteinstrahlung, modifizierte Messaufbau vorgestellt. Die Messergebnisse werden in Abschnitt 5.3 diskutiert, wobei zunächst die Orientierung des Kernmagnetfeldes bei der speziellen Versuchsanordnung in Abhängigkeit von der zirkularen Lichtanregung erläutert wird. Abschließend werden die Ergebnisse in Abschnitt 5.4 zusammengefasst.

5.1. Hyperfeinwechselwirkung und deren Auswirkungen

Die Hyperfeinwechselwirkung koppelt in Halbleitern die Spins der Elektronen S mit den Spins der Kerne I. Im Fall der Leitungsbandelektronen, die eine s-artige Wellenfunktion besitzen, liefert die skalare Fermi-Kontakt-Wechselwirkung den dominierenden Anteil zur Hyperfeinwechselwirkung. Bei den p-artigen Löchern des Valenzbandes entfällt dieser skalare Anteil, und die Hyperfeinwechselwirkung erfolgt über die deutlich schwächere Dipol-Dipol-Kopplung zwischen den Kern- und Lochspins [95].

5.1.1. Fermi-Kontakt-Wechselwirkung

Die skalare Hyperfeinwechselwirkung ist spinerhaltend für das Gesamtspinsystem der Elektronen und Kerne und wird durch den Fermi-Kontakt-Hamilton-Operator [96]

$$\mathcal{H}_{\text{Fermi}} = \frac{8\pi}{3} \frac{\mu_0}{4\pi} g_0 \,\mu_B \gamma_n \,\hbar \, \boldsymbol{I} \cdot \boldsymbol{S} \,\delta(\boldsymbol{r}) = \frac{2}{3} \,\mu_0 \,g_0 \,\mu_B \gamma_n \,\hbar \, \boldsymbol{I} \cdot \boldsymbol{S} \,|\psi(0)|^2$$
(5.1)

beschrieben. Darin ist g_0 der g-Faktor des *freien* Elektrons,⁴ μ_B das Bohr'sche Magneton, γ_n das gyromagnetische Verhältnis des betreffenden Kerns und \mathbf{r} die Relativkoordinate zwischen Elektron und Kern. Die Deltafunktion $\delta(\mathbf{r})$ wird in der zweiten Zeile durch das Betragsquadrat der elektronischen Wellenfunktion $\psi(\mathbf{r})$ am Ort des Kernes ersetzt. Die Wellenfunktion $\psi(\mathbf{r})$ wird weiter durch das Produkt einer Einhüllendenfunktion $\Psi(\mathbf{r})$ und der gitterperiodischen Funktion $u(\mathbf{r})$ (Bloch-Faktor) ausgedrückt. Mit den Normierungsbedingungen

$$\int d^{3}\boldsymbol{r} |\Psi(\boldsymbol{r})|^{2} = 1 \quad \text{und} \quad \int_{v_{0}} d^{3}\boldsymbol{r} |u(\boldsymbol{r})|^{2} = v_{0} , \quad (5.2)$$

wobe
i v_0 das Volumen der Elementarzelle ist, wird Gl. (5.1) umgeschrieben zu

$$\mathcal{H}_{\text{Fermi}} = A \boldsymbol{I} \cdot \boldsymbol{S} \left| \Psi(0) \right|^2 v_0 , \qquad \text{mit} \quad A = \frac{2 \,\mu_0 \, g_0 \,\mu_B \gamma_n \,\hbar}{3 \, v_0} \,\eta \,. \tag{5.3}$$

Der Faktor η ist das Betragsquadrat des Bloch-Faktors $u(\mathbf{r})$ am Ort des Kernes $(\eta = |u(0)|^2)$. Aufgrund der sehr hohen Elektronendichte am Ort des Kernes ist η im Vergleich zu einer homogen über die Elementarzelle verteilten Elektronendichte $(\eta = 1)$ sehr viel größer als 1 [95, 69]. In GaAs beträgt η nach Paget *et al.* [96] für Ga-Atome 2, $7 \cdot 10^3$ und für As-Atome 4, $5 \cdot 10^3$.

5.1.2. Dynamische Kernspinpolarisation

Fluktuationen des von den Spins der Elektronen produzierten Magnetfeldes führen über die Fermi-Kontakt-Wechselwirkung zu einer Kernspinrelaxation.

⁴s. Fußnote 15 in Referenz [96], bzw. Referenz [97].

Im Fall einer Nichtgleichgewichtsspinpolarisation der Elektronen führen diese Fluktuationen zu einer dynamischen Kernspinpolarisation [91, 98]. Die charakteristische Zeitkonstante T_1^{IS} dieses Kreuzrelaxationsprozesses ist invers proportional zu der Korrelationszeit τ_{cor} der Magnetfeldfluktuationen, die auf den Kernspin einwirken. Für freie Elektronen ist τ_{cor} gleich der Durchflugzeit des Elektrons durch den Wechselwirkungsbereich mit dem Kern, und T_1^{IS} liegt in der Größenordnung von 10^4 s [95]. Dagegen beträgt die Größenordnung von T_1^{IS} bei donatorgebundenen Elektronen 0,1 bis 1 s [95, 99, 100], wobei die Korrelationszeit τ_{cor} durch die Bindungszeit des Elektrons am Donator bzw. die Elektronenspinrelaxationszeit gegeben ist.⁵ Eine wesentliche Elektronen auf, d.h. dass im Fall einer dynamischen Kernspinpolarisation hauptsächlich die Spinpolarisation der lokalisierten Elektronen auf die donatornahen Kerne, die innerhalb des Bohr-Radius von ca. 100 Å liegen, übertragen wird [96, 101].

In einem externen Magnetfeld B_{ext} sind die Spinzustände der Kerne und Elektronen über die Ankopplung ihrer magnetischen Momente an das Magnetfeld energetisch aufgespalten (Zeeman-Effekt). Die unterschiedliche Besetzung der Energieniveaus im thermischen Gleichgewicht führt zu einer Spinpolarisation der Kerne und Elektronen, wobei die Kernspinpolarisation aufgrund des, verglichen mit dem Bohr'schen Magneton, drei Größenordnungen kleineren Kernmagnetons sehr viel geringer ist als die Elektronenspinpolarisation: In GaAs, in dem alle Isotope einen Kernspin I = 3/2 mit positivem gyromagnetischen Verhältnis γ_n besitzen, beträgt in einem Magnetfeld von 1 T das Verhältnis zwischen energetischer Aufspaltung der Spinzustände zu thermischer Energie selbst bei 1 K nur 1/2000. Dahingegen liegt dieses Verhältnis für Elektronen in GaAs bei etwa 1/3, was in einer wesentlichen Elektronenspinpolarisation resultiert. Dabei beträgt der Erwartungswert des Elektro-

 $^{^5 {\}rm Genauer}$ ist die Korrelationszeit durch die kürzere von den beiden Zeiten gegeben.

nenspins im thermischen Gleichgewicht [102]

$$S_{\rm eq} = -\frac{1}{2} \tanh\left(\frac{g^* \mu_B B}{2 \, k_B T}\right) \,, \tag{5.4}$$

wobei die Spinpolarisation wegen des negativen effektiven g-Faktors in GaAs parallel zu B_{ext} liegt (s. Gl. (2.19)).

Der Elektronenspin strebt bei einer vorliegenden Nichtgleichgewichtspolarisation entlang der Magnetfeldrichtung S_{av} über die Spin-Gitter-Relaxation seine thermische Gleichgewichtspolarisation S_{eq} an. Über die Fermi-Kontakt-Wechselwirkung werden dabei wechselseitige Elektron-Kern Spin-Flip-Prozesse induziert, über die ein Teil der Polarisationsdifferenz $\boldsymbol{S}_{\rm av}-\boldsymbol{S}_{\rm eq}$ auf das Kernspinsystem übertragen wird. Bei einer künstlichen Aufrechterhaltung der Nichtgleichgewichtsspinpolarisation der Elektronen, etwa durch optisches Pumpen, kann hierüber eine erhebliche dynamische Anreicherung der Kernspinpolarisation erzielt werden, wobei die Kernspinpolarisation $\langle I \rangle$ parallel zu $S_{\rm av} - S_{\rm eq}$ liegt [93]. Die Aufrechterhaltung der Nichtgleichgewichtsspinpolarisation der lokalisierten Elektronen, die für die dynamische Kernspinpolarisation verantwortlich sind, ist – etwa im Fall des optischen Pumpens – durch die starke Kopplung der Spinsysteme der freien und lokalisierten Elektronen gegeben: Die Spinpolarisation der freien Elektronen überträgt sich nach Paget *et al.* [101] auf einer Zeitskala von 10^{-11} s auf das Spinsystem der lokalisierten Elektronen.

Als Overhauser-Effekt [103] wird die Anreicherung der Kernspinpolarisation durch Einstrahlung eines Mikrowellenfeldes in Metallen bezeichnet. Dabei hält das eingestrahlte Mikrowellenfeld, das auf die Resonanzfrequenz der Elektronen gesetzt ist, die Elektronenspinpolarisation aus ihrem Gleichgewicht. In Halbleitern kann die Aufrechterhaltung dieses ungeordneten Spinzustandes der Leitungsbandelektronen, und somit eine Anreicherung der Kernspinpolarisation, auch durch optisches Pumpen mit unpolarisiertem Licht erzeugt werden, wie 1967 von G. Lampel [104] gezeigt (optischer OverhauserEffekt). Die Einstrahlung von zirkular polarisiertem Licht führt über die optischen Auswahlregeln zu einer optischen Orientierung des Elektronenspins (s. Abschnitt 2.3), die einem geordneten Nichtgleichgewichtszustand entspricht. Die hierüber erzeugte dynamische Kernspinpolarisation übertrifft die Kernspinpolarisation, die sich aus dem optischen Overhauser-Effekt ergibt, wie ebenfalls von G. Lampel in [104] gezeigt.

5.1.3. Kernspindiffusion, Kernspinrelaxation und dynamisches Gleichgewicht

Über die dynamische Kernspinpolarisation werden lediglich die Kernspins in Donatornähe polarisiert (s. Abschnitt 5.1.2). Das wechselseitige Umklappen benachbarter Kernspins aufgrund der nuklearen Dipol-Dipol-Kopplung verursacht eine Spindiffusion [105, 94], durch die sich die donatornahe Kernspinpolarisation in der gesamten Probe ausbreitet [101]. In GaAs beträgt die Diffusionskonstante D für ⁷⁵Ga ca. $3 \cdot 10^{-13}$ cm²s⁻¹ und der charakteristische Zeitbereich der Spindiffusion liegt zwischen Sekunden und Stunden [93]. Zusätzlich führt die Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen Elektronen und Kernen, die außerhalb des Lokalisierungsbereiches von donatorgebundenen Elektronen liegen, auch zu einer Spinpolarisation. Dieser Prozess ist allerdings verglichen mit dem der Fermi-Kontakt-Wechselwirkung (s. Abschnitt 5.1.1) deutlich schwächer [95].

Die Depolarisation der Kernspins erfolgt aufgrund mehrerer Relaxationsprozesse: Zum einen thermalisiert das Kernspinsystem mit dem Gitter über die Spin-Gitter-Relaxation. Die charakteristische Zeit T_1 dieses Prozesses liegt bei niedrigen Temperaturen für GaAs im Bereich von Minuten bis Stunden [93]. Zum anderen führen auch Kreuzrelaxationsprozesse zu einer Kernspinrelaxation. Neben der Kreuzrelaxation aufgrund der Hyperfeinwechselwirkung findet zusätzlich auch eine Kreuzrelaxation aufgrund der nuklearen Dipol-Dipol-Kopplung statt [106].

Die zeitliche und räumliche Dynamik der mittleren Kernspinpolarisation $\langle I_z \rangle$ bei fortwährendem optischen Pumpen unter Einbezug von Diffusion, Spin-Gitter- und Kreuzrelaxation kann qualitativ durch die Differentialgleichung [107]

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} \langle I_z \rangle = -\frac{1}{T_1^{IS}} \left(\langle S_z \rangle - S_{\mathrm{eq}} \right) + D \nabla^2 \langle I_z \rangle - \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_1^{II}} \right) \left(\langle I_z \rangle - I_{\mathrm{eq}} \right)$$
(5.5)

beschrieben werden. Darin ist $1/T_1^{IS}$ die Pumprate, D die Diffusionskonstante, $1/T_1$ die Spin-Gitter-Relaxationsrate und $1/T_1^{II}$ die Kreuzrelaxationsrate. Nach hinreichend langer Pumpzeit stellt sich ein dynamisches Gleichgewicht ein, in dem die Kernspinpolarisation $\langle I_z \rangle$ zeitlich nicht mehr variiert.

5.1.4. Effektives Overhauser-Kernmagnetfeld

Das über die dynamische Kernspinpolarisation erzeugte Magnetfeld der Kerne wirkt über die Fermi-Kontakt-Wechselwirkung auf die Elektronen zurück. Dabei wechselwirken die Elektronen, frei oder donatorgebunden, mit einer großen Anzahl von Kernen. Für donatorgebundene Elektronen beträgt die Anzahl der Kerne in der Lokalisierungsregion beispielsweise 10^5 Kerne. Aufgrund dieser großen Anzahl kann ein mittleres effektives Kernmagnetfeld eingeführt werden. Dazu wird die mittlere Wechselwirkungsenergie eines Elektrons mit allen Kernen einer Spinspezies, die den mittleren Kernspin $\langle I \rangle$ besitzen, über die Summation von Gl. (5.3) über diese Kernspinspezies berechnet. Der mittleren Wechselwirkungsenergie $A \langle I \rangle \cdot S$ wird in Anlehnung an den Zeeman-Effekt ein effektives Kernmagnetfeld

$$\boldsymbol{B}_{n} = b_{n} \frac{\langle \boldsymbol{I} \rangle}{I}, \quad \text{mit} \qquad b_{n} = \mu_{0} \left(\frac{g_{0}}{g^{*}}\right) \hbar \gamma_{n} \frac{\eta \xi}{v_{0}}, \qquad (5.6)$$

zugeordnet, wobe
i ξ die Anzahl der Atomkerne der betreffenden Spinspezies in der Elementar
zelle ist. Das effektive Feld b_n entspricht dem Kernfeld bei

vollständiger Kernspinpolarisation und beträgt für GaAs unter Berücksichtigung aller Spinspezies (⁶⁹Ga, ⁷¹Ga, ⁷⁵As) und deren natürlicher Häufigkeit $b_n = -5, 3$ T. Das Vorzeichen des Kernmagnetfeldes in Gl. (5.6) hängt für $\gamma_n > 0$ von dem Vorzeichen des effektiven Elektron-g-Faktors g^* ab. B_n zeigt in GaAs in die entgegengesetzte Richtung zu dem realen Kernmagnetfeld, das durch das makroskopische Mittel über alle Kernmagnetmomente gebildet wird. Zusätzlich ist das effektive Kernmagnetfeld, das auch als Overhauser-Feld bezeichnet wird, aufgrund der hohen Elektronendichte in der Kernnähe um ein Vielfaches größer, etwa um den Faktor η in Gl. (5.3), als das reale Kernmagnetfeld [96, 95].

Scheinbare Verschiebung des g-Faktors durch das Kernmagnetfeld

Die Spinquantenschwebungsfrequenz ist proportional zu dem Magnetfeld, das auf die Elektronen einwirkt. Im Fall einer vorhandenen Kernspinpolarisation setzt sich das Magnetfeld B in Gl. (2.21) zusammen aus dem externen Magnetfeld B_{ext} und dem effektiven Kernmagnetfeld B_{n} . Die Larmorfrequenz ist daher gegeben durch

$$\omega_L = \frac{|g^*|\mu_B(B_{\text{ext}} \pm B_{\text{n}})}{\hbar} .$$
(5.7)

Bei der Bestimmung des Elektron-g-Faktors über die gemessene Larmorfrequenz in Gl. (5.7) bei unbekanntem Kernmagnetfeld kommt es zu einer scheinbaren Verschiebung des g-Faktors:

$$|g_{\text{pseudo}}^*| = \frac{\hbar \,\omega_L}{\mu_B B_{\text{ext}}} = |g^*| \frac{B_{\text{ext}} \pm B_{\text{n}}}{B_{\text{ext}}}$$
(5.8)

Umgekehrt kann über den g-Faktor $g^*_{\rm pseudo}$ auch das effektive Kernmagnetfeld $B_{\rm n}$ bestimmt werden.

5.2. Messaufbau bei polarisationsmodulierter Anregung

Für die in diesem Kapitel behandelten Messungen zur Untersuchung der dynamischen Kernspinpolarisation wird der in Kapitel 3 vorgestellte Messaufbau der zeit- und polarisationsaufgelösten PL-Spektroskopie leicht modifiziert. In der Anregung wird der Soleil-Babinet-Kompensator durch einen weiteren Flüssigkristallverzögerer ersetzt, damit elektronisch zwischen der Einstrahlung von σ^+ - und σ^- -polarisiertem Laserlicht geschaltet werden kann. Der Flüssigkristallverzögerer in der Anregung bzw. in der Detektion wird im Folgenden als LCR 1 bzw. LCR 2 bezeichnet. Zusätzlich wird hinter dem LCR 1 eine elektronisch steuerbare Blende (optischer Schalter) eingebaut. Über die Blende kann der Beginn der Lichteinstrahlung auf die Probe mit den Messungen synchronisiert werden.

Im Gegensatz zu den übrigen in dieser Arbeit durchgeführten Messungen wird nur die gegenpolarisierte PL-Komponente detektiert, da die Probenanregung quasiresonant erfolgt und somit das Laserstreulicht nicht über Filter eliminiert werden kann. Die Umschaltzeiten t_{Schalt} des LCR 1, d.h. bei der Einstrahlung von σ^+ - und σ^- -polarisiertem Laserlicht, bei den Messungen liegen zwischen 500 ms und 30 s. Bei den kurzen Umschaltzeiten ist die Zeit $t_{\rm Schalt}$ nicht als Integrationszeit für die Streakkamera geeignet, um ein hinreichend rauscharmes Signal aufzunehmen. Daher wird die Integrationszeit der Streakkamera bei allen Messungen fest auf 60 mal 1001 ms gesetzt und die Streakkamera im externen Gate-Modus betrieben. Im externen Gate-Modus wird die voreingestellte Spannung an der Multi-Channel-Plate (MCP), mit der die Elektronenvervielfachung in der Streakkamera gesteuert wird, über eine Signalspannung von 0 bzw. 5 V aus- bzw. eingeschaltet. Liegt keine Spannung an der MCP an, kommt dies einem geschlossenen Schalter in der Streakkamera gleich, d.h. die einfallende Lichtintensität wird nicht aufgenommen. Über eine Steuerelektronik wird die MCP-Spannung mit dem LCR 1 in der



Abb. 5.1.: Steuerelektronik zur Abstimmung der Detektion auf die polarisationsmodulierte Anregung

Anregung so synchronisiert, dass nur die gegenpolarisierte PL-Komponente detektiert wird. Die Integrationszeit von 60 mal 1001 ms reduziert sich somit auf eine effektive Integrationszeit von ca. 30 s, da die Probe gleich lange mit σ^+ - bzw. σ^- -polarisiertem Laserlicht angeregt wird.

Abbildung 5.1 zeigt die Steuerelektronik mit der die Probenanregung und PL-Detektion aufeinander abgestimmt wird. Ein Funktionsgenerator schaltet über den LCR 1 zwischen σ^+ - und σ^- -polarisiertem Laserlicht in der Probenanregung. Die Schaltzeiten $t_{\rm Schalt}$ liegen je nach Messung zwischen 500 ms und 30 s. Zu Beginn der Messung öffnet der LabJack⁶ rechnergesteuert die Blende (optischer Schalter). Somit ist gewährleistet, dass die Lichteinstrahlung und die damit verbundene dynamische Kernspinpolarisation zeitgleich mit der Messung beginnt. Der LabJack stellt den LCR 2 zunächst auf die Detektion der σ^- -PL-Komponente, d.h. es wird während der σ^+ -Lichteinstrahlung detektiert. Zusätzlich leitet er das auf die Detektion der σ^- -PL abgestimmte *Gating* vom Delay-Generator über den Schalter an den externen *Gating*-Eingang der Streakkamera weiter. Nach der Aufnahmedauer von 60 mal 1001 ms wird das Streakkamera-Bild im Rechner abgespeichert und eine neue Aufnahme, nun der σ^+ -PL-Komponente, begonnen. Da-

 $^{^{6}}$ LabJack U12


Abb. 5.2.: Zeitdiagramm der relevanten Schaltsignale von den in Abb. 5.1 dargestellten Geräten.

zu schaltet der LabJack den LCR 2 jetzt auf die σ^+ -Detektion und leitet das auf diese PL-Komponente abgestimmte *Gating* an die Streakkamera weiter. Diese abwechselnde Aufnahme der σ^{\mp} -PL-Komponenten wird für die Gesamtdauer der Messung weitergeführt.

Das Zeitdiagramm in Abb. 5.2 verdeutlicht den Zusammenhang der relevanten Ein- bzw. Ausgangssignale. Der LCR 1 schaltet abwechselnd für die Dauer $t_{\rm Schalt}$ zwischen σ^+ - und σ^- -Licht. An den Delay-Generator-Ausgängen liegen die beiden möglichen *Gating*-Signale DG 1 und DG 2 an, die über den Funktionsgenerator mit dem LCR 1 synchronisiert sind. Ebenfalls synchronisiert sind der LCR 2 und der Schalter, über den das passende *Gating*-Signal (Gate) eingestellt wird. Die Zeitdauer $t_{\rm Verz}$ von 25 ms zwischen dem Umschaltsignal für den LCR 1 und der Aufnahmefreigabe durch das *Gating*-Signal berücksichtigt die Dauer, die der verwendete Flüssigkristallverzögerer benötigt, um die Retardierung von σ^{\pm} nach σ^{\mp} umzuschalten.⁷

⁷Diese Umschaltzeit ist abhängig von der Richtung der Verzögerungsänderung des LCR. Laut Datenblatt von Meadowlark Optics beträgt die Umschaltzeit bei Verzögerungszunahme bzw. -abnahme um $\lambda/2$ 20 ms bzw. 5 ms.

5.3. Polarisationsmodulierte Messung des Elektron-g-Faktors

5.3.1. Messparameter und Datenauswertung

Die Messungen des effektiven Elektron-g-Faktors $g_{\rm pseudo}$ unter dem Einfluss des Kernmagnetfeldes $B_{\rm n}$ werden anhand der schwach n-dotierten Volumen-GaAs-Probe TP906, die in Abschnitt 4.2.1 beschrieben ist, durchgeführt. Die Probe befindet sich annähernd in Voigt-Geometrie im Kryostaten bei einer Temperatur von T = 2,6 K und ist gegenüber dem externen Magnetfeld $B_{\rm ext} = 1$ T leicht um den Winkel $\vartheta = 5^{\circ}$ verkippt (s. Abb. 5.3). Die Laseranregung erfolgt mit ps-Pulsen bei einer Wellenlänge von 814 nm und einer Leistung von P = 1 mW, die etwa einer Anregungsdichte von $n = 5 \cdot 10^{15}$ cm⁻³ entspricht.

Eine von S. Döhrmann [108] durchgeführte Zeitkalibrierung der Streakkamera und Feldkalibrierung des Kryostatmagneten bei der nominellen Feldstärke von 1 T sind in den in Abb. 5.4 dargestellten g-Faktoren g^*_{pseudo} mit enthalten. Bei den in diesem Kapitel behandelten Messungen wird nur eine, die gegenpolarisierte, PL-Komponente gemessen. Eine Bestimmung des g-Faktors über den nach Gl. (2.18) berechneten zeitlichen Verlauf der optischen Polarisation ist deswegen nicht möglich. Der g-Faktor wird daher nach der DOF⁸-Methode [109] bestimmt, wobei die Datenauswertung mit dem Programm IDL erfolgt.

5.3.2. Dynamische Kernspinpolarisation bei verkippter Probengeometrie

Abbildung 5.3 zeigt die geometrische Lage der Probe im externen Magnetfeld $\boldsymbol{B}_{\text{ext}}$ und in Bezug auf die Einfallsrichtung des zirkular polarisierten Laserlichtes. Teil (A) stellt den Fall der Einstrahlung von σ^- -Licht dar und

⁸Damped Oscillator Filter



Abb. 5.3.: Die um den Winkel ϑ verkippte Probe (grau) im externen Magnetfeld B_{ext} bei σ^- -Anregung (a) und σ^+ -Anregung (b) und die sich aus der dynamischen Kernspinpolarisation ergebenden Kernmagnetfelder. Die Winkel δ und η ergeben sich aus der Brechung des einfallenden Laserlichtes (s. Text).

Teil (B) den der Einstrahlung von σ^+ -Licht. Die Probenebene ist um $\vartheta = 5^{\circ}$ im Magnetfeld verkippt und das Laserlicht fällt senkrecht zu $\boldsymbol{B}_{\text{ext}}$ ein, d.h. die Probe ist in einer "Fast"-Voigt-Geometrie angeordnet. Aufgrund des hohen Brechungsindex von GaAs ($n_{\text{GaAs}} = 3,51$) wird der einfallende Laserstrahl nach dem Snellius'schen Brechungsgesetz an der Probenoberfläche stark zur Probennormalen hin gebrochen. Bei der Probenverkippung von $\vartheta = 5^{\circ}$ betragen die dargestellten Winkel δ und η demnach 1, 4° bzw. 3,6°. Die thermische Gleichgewichtspolarisation $\boldsymbol{S}_{\text{eq}}$ (cyan) eines Elektronenspinensembles, die im Dunklen⁹ vorliegt, zeigt wegen des negativen effektiven g-Faktors von GaAs in Richtung des externen Magnetfeldes $\boldsymbol{B}_{\text{ext}}$ und lässt sich betragsmäßig nach Gl. (5.4) berechnen.

Bei der Einstrahlung von σ^{-} -Licht werden nach den optischen Auswahlregeln überwiegend Spin-up Elektronen im Leitungsband erzeugt, was zu einer im Vergleich zu S_{eq} sehr großen anfänglichen Spinpolarisation S_0 der Elektronen in der dargestellten Richtung führt (s. Abb. 5.3 (a)). Bei $T = 2,6 \,\mathrm{K}$ beträgt das Verhältnis $\boldsymbol{S}_{\rm eq}/\boldsymbol{S}_0$ etwa $^{1\!/_{20}}$. Die zu $\boldsymbol{B}_{\rm ext}$ senkrechte, und damit präzedierende, Komponente von S_0 mittelt sich auf der für die dynamische Kernspinpolarisation relevanten Zeitskala (Sekunden-Bereich) zu null, da die Larmorperiode der Präzession im 100 ps-Bereich liegt. Daher ist das zeitliche Mittel der Elektronenspinpolarisation $\langle S \rangle$ gegeben durch S_{av} , wobei S_{av} direkt nach dem Laserpuls $S_0 \cdot \sin \eta$ beträgt. Über die Spinrelaxation der Nichtgleichgewichtspolarisation $\boldsymbol{S}_{\mathrm{av}}$ in die thermische Gleichgewichtspolarisation $\boldsymbol{S}_{\mathrm{eq}}$ und die Fermi-Kontakt-Wechselwirkung bildet sich eine Kernspinpolarisation aus, wobei drei Fälle unterschieden werden müssen: Ist $S_{\rm av}>S_{\rm eq}$ zeigt die Kernspinpolarisation $\langle I \rangle$ in Richtung von B_{ext} und das effektive Overhauser-Kernfeld \boldsymbol{B}_n in die entgegengesetzte Richtung, wodurch das externe Magnetfeld für die Leitungsbandelektronen abgeschwächt wird. Für $S_{\rm av} > S_{\rm eq}$ kehren sich die Vorzeichen von $\langle I \rangle$ und $B_{\rm n}$ um und das effekti-

⁹D.h. ohne optisches Pumpen.

ve Gesamtmagnetfeld wird stärker. Bei $S_{av} = S_{eq}$ findet keine dynamische Kernspinpolarisation statt.

Im Fall der Einstrahlung von σ^+ -Licht werden überwiegend Spin-down Elektronen erzeugt (s. Abb. 5.3 (b)), weshalb S_0 im Vergleich zu der Einstrahlung von σ^- -Licht in die entgegengesetzte Richtung zeigt. Daher liegen S_{av} und S_{eq} immer antiparallel zueinander. Dementsprechend führt die Einstrahlung von σ^+ -Licht immer zu einer Verstärkung des Magnetfeldes innerhalb der Probe.

Wäre die Probe nicht im externen Magnetfeld verkippt ($\vartheta = 0^{\circ}$), würde ebenfalls eine dynamische Kernspinpolarisation stattfinden. Dies entspräche dem optischen Overhauser-Effekt (s. Abschnitt 5.1.2), da die Probe bezüglich des externen Magnetfeldes mit unpolarisierten Elektronen gepumpt würde, unabhängig von dem Polarisationsgrad des Laserlichtes.

5.3.3. Einfluss der dynamischen Kernspinpolarisation auf den Elektron-g-Faktor

Abbildung 5.4 zeigt den Verlauf von vier Langzeitmessungen des effektiven g-Faktors g^*_{pseudo} (s. Gl. (5.8)), und damit auch die zeitliche Entwicklung des effektiven Overhauser-Magnetfeldes, bei verschiedenartiger Einstrahlung von σ^+ - und σ^- -Licht.

Kontinuierliche zirkulare Anregung

Der unterste und oberste Ast in Abb. 5.4 stellt die Ergebnisse zweier von S. Döhrmann durchgeführter Langzeitmessungen bei kontinuierlicher Anregung¹⁰ mit σ^+ - bzw. σ^- -Licht dar [108]. Die Gesamtdauer der jeweiligen

 $^{^{10}}$ Kontinuierliche Anregung bedeutet in diesem Zusammenhang, dass nicht zwischen σ^+ - und σ^- -Einstrahlung während der Langzeitmessungen geschaltet wird, sondern die Probe 90 min lang mit σ^\pm -ps-Pulsen mit einer Wiederholrate von 80 MHz beleuchtet wird.

Langzeitmessung beträgt 90 min, wobei für die Ermittlung des Verlaufes von $g^*_{\rm pseudo}$ während dieser Gesamtdauer alle 30 s ein über diese Zeit integriertes Streakkamera-Bild herangezogen wird. Deutlich zu sehen ist der unterschiedliche Sättigungswert von g^*_{pseudo} bei der Einstrahlung von σ^+ - und σ^{-} -Licht, der nach etwa 90 min erreicht wird. Dieser Sättigungswert stellt sich im dynamischen Gleichgewichtszustand der Kernspinpolarisation unter fortwährendem optischen Pumpen, dynamischer Kernspinpolarisation, Kernspindiffusion und Kernspinrelaxation ein (s. Abschnitt 5.1.3). Die Änderung von $g^*_{\rm pseudo}$ während der jeweiligen Langzeitmessung ist bei $\sigma^+\text{-}{\rm Anregung}$ deutlich größer als bei $\sigma^-\text{-} An
regung, da die Differenz<math display="inline">{\bm S}_{\rm av}-{\bm S}_{\rm eq}$ und damit auch das effektive Overhauser-Magnetfeld deutlich größer ist (s. Abschnitt 5.3.2). Der Betrag von g^*_{pseudo} nimmt bei σ^- -Anregung ab, woraus folgt, dass $S_{\rm av}>S_{\rm eq}$ ist. Anhand der ersten Messpunkte dieser beiden Langzeitmessungen wird bereits ein großer Unterschied zwischen $g^*_{\rm pseudo}(\sigma^+)$ und $g^*_{\text{pseudo}}(\sigma^-)$ ersichtlich, der den schnellen Aufbau des Kernmagnetfeldes innerhalb der Zeitspanne von 30s aufgrund der dynamischen Kernspinpolarisation verdeutlicht. Die Messung des unverfälschten, d.h. ohne den Einfluss der dynamischen Kernspin
polarisation, Elektron-g-Faktors g^{\ast} gestaltet sich daher als schwierig, da für die Aufnahme einer ausreichend rauscharmen PL-Transiente zur Bestimmung von g^* eine Streakkamera-Integrationszeit von etwa 30 s erforderlich ist.

Polarisationsmodulierte Anregung

Bei den in dieser Arbeit durchgeführten Langzeitmessungen wird während der Langzeitmessungen zwischen der Anregung mit σ^+ - und σ^- -Licht geschaltet (Polarisationsmodulation), d.h. es wird ohne Unterbrechung jeweils für die Zeitdauer von $t_{\text{Schalt}} \sigma^+$ -, σ^- -, σ^+ -, usw. Licht eingestrahlt. Details bezüglich der Anregung und Detektion sind im vorigen Abschnitt 5.2 beschrieben.



unterste und oberste Ast zeigt $g^*_{
m pseudo}(t)$ bei kontinuierlicher Anregung mit σ^+ - bzw. σ^- -Licht. Die Messkurven A (volle Symbole) und B (hohle Symbole) sind $g^*_{
m seudo}(t)$ bei polarisationsmodulierter Anregung, wobei die Schaltzeiten $t_{
m Schalt}$ zwischen σ^+ - und σ^- -Anregung bei der Messkurve A (B) zunehmen (abnehmen). Der Einsatz unten rechts zeigt die Aufspaltung $\Delta g^*_{
m pseudo}$ bei polarisationsmodulierter Anregung in Abhängigkeit von der Schaltzeit $t_{
m Schalt}.$ Die zeitliche Entwicklung von g_{pseudo}^* bei der Langzeitmessung A ist in Abb. 5.4 durch die vollen Symbole dargestellt. Bei der Langzeitmessung A wird zunächst σ^{\pm} -Licht mit der Umschaltzeit $t_{\text{Schalt}} = 0,5$ s für 75 min eingestrahlt. Direkt danach erfolgt für jeweils 20 min in dieser Reihenfolge die σ^{\pm} -Anregung mit $t_{\text{Schalt}} = 1$ s, 2 s, 5 s, 10 s und 15 s. Im Gegensatz zu der Langzeitmessung A wird bei der Langzeitmessung B, dargestellt durch die hohlen Symbole in Abb. 5.4, die Schaltzeit beginnend mit $t_{\text{Schalt}} = 30$ s verkürzt: Zunächst wird 80 min lang σ^{\pm} -Licht mit $t_{\text{Schalt}} = 30$ s eingestrahlt, wobei die ersten 30 s σ^+ -Licht eingestrahlt wird. Danach wird die Probe weitere 5 min mit $t_{\text{Schalt}} = 30$ s beleuchtet (nicht dargestellt), 7 min nicht beleuchtet und darauf für weitere 3 min mit $t_{\text{Schalt}} = 15$ s angeregt (nicht dargestellt).¹¹ Es folgen ohne weitere Unterbrechungen Messungen für jeweils 30 min mit $t_{\text{Schalt}} = 15$ s, 10 s, 5 s und 2 s und abschließend für 45 min mit $t_{\text{Schalt}} = 0, 5$ s.

Die Detektionszeit der PL bei den Messungen mit wechselnder σ^{\pm} -Anregung zur Bestimmung von g^*_{pseudo} liegt fest bei 1 min, unabhängig von t_{Schalt} , wobei die erste Minute nur bei der σ^+ -Lichteinstrahlung, die zweite Minute nur bei der σ^- -Lichteinstrahlung, usw. detektiert wird. Effektiv wird die PL also nur für 30 s aufgenommen (s. Abschnitt 5.2).

Die dynamische Kernspinpolarisation, die auf der Sekunden-Zeitskala verläuft, führt über das sich schnell aufbauende effektive Kernmagnetfeld zu einer Aufspaltung des gemessenen g-Faktors g_{pseudo}^* während der Langzeitmessungen. Die g-Faktoren bei der Detektion während der σ^+ -Einstrahlung $g_{\text{pseudo}}^*(\sigma^+)$ liegen unterhalb von denen bei der Detektion während der σ^- -Einstrahlung $g_{\text{pseudo}}^*(\sigma^-)$. Am deutlichsten ist die Aufspaltung $\Delta g_{\text{pseudo}}^* = |g_{\text{pseudo}}^*(\sigma^+)| - |g_{\text{pseudo}}^*(\sigma^-)|$ an den Messungen mit $t_{\text{Schalt}} = 30$ s (Langzeitmessung B) ersichtlich (s. Pfeil in Abb. 5.4). Der Einsatz unten rechts in Abb. 5.4 zeigt die, über den jeweiligen Messabschnitt mit konstantem t_{Schalt} gemittelte, Aufspaltung $\Delta g_{\text{pseudo}}^*$ in Abhängigkeit von der Schaltzeit der

¹¹Diese Unterbrechung der Datenaufnahme ist unbeabsichtigt.

Langzeitmessungen A als volle Kreise und B als hohle Kreise. Wie zu erwarten wird $\Delta g^*_{\text{pseudo}}$ mit abnehmender Schaltzeit kürzer und ist bei $t_{\text{Schalt}} = 0, 5 \text{ s}$ nicht mehr messbar. Hieraus wird ersichtlich, dass eine wesentliche dynamische Kernspinpolarisation erst für Zeiten größer als 0,5 s stattfindet.

Das Verschwinden von $\Delta g^*_{\text{pseudo}}$ bei $t_{\text{Schalt}} = 0, 5$ s bedeutet *nicht*, dass bei der Einstrahlung von σ^{\pm} -Licht mit $t_{\text{Schalt}} = 0, 5$ s *keine* dynamische Kernspinpolarisation erfolgt. Auf der für die dynamische Kernspinpolarisation relevanten Zeitskala von t > 0, 5s entspricht die Einstrahlung von σ^{\pm} -Licht mit $t_{\text{Schalt}} = 0, 5$ s dem Pumpen von unpolarisierten Elektronen ($S_{\text{av}} = 0$) und kommt somit dem optischen Overhauser-Effekt gleich.

Bei der Langzeitmessung A wird der Sättigungswert von g_{pseudo}^* bei $t_{\text{Schalt}} = 0, 5 \text{ s}$ nach ca. 75 min erreicht, der dem Sättigungswert g_{sat}^* ^{unp} bei der Einstrahlung von unpolarisiertem Licht entspricht. Auffallend am weiteren Verlauf der Langzeitmessung A ist, dass zwar eine Aufspaltung $\Delta g_{\text{pseudo}}^*$ bei Erhöhung von t_{Schalt} stattfindet, aber der über die Detektion bei σ^{\pm} -Einstrahlung gemittelte Wert von g_{pseudo}^* selbst bei einer Schaltzeit von $t_{\text{Schalt}} = 15 \text{ s}$ mit dem Sättigungswert g_{sat}^* ^{unp} bei $t_{\text{Schalt}} = 0, 5 \text{ s}$ übereinstimmt.

Bei der Messung mit der Schaltzeit $t_{\text{Schalt}} = 30 \text{ s}$ (Anfang der Langzeitmessung B) liegt der Sättigungswert deutlich unterhalb des Sättigungswertes $g_{\text{sat}}^{* \text{ unp}}$ der Langzeitmessung A. Bei sukzessiver Verkürzung der Schaltzeit läuft der mittlere g-Faktor g_{pseudo}^{*} wieder gegen den Sättigungswert $g_{\text{sat}}^{* \text{ unp}}$. Zwischen dem polarisationsmodulierten Pumpen mit $t_{\text{Schalt}} = 15 \text{ s}$ und 30 s findet also ein Übergang des dynamischen Gleichgewichtszustandes von $\langle I_z \rangle$ (s. Abschnitt 5.1.3) innerhalb der Probe statt. Grund hierfür ist sehr wahrscheinlich die Dynamik der Kernspindiffusion. Bei $t_{\text{Schalt}} \leq 15 \text{ s}$ diffundiert im Mittel aus dem donatornahen Bereich eine Kernspinpolarisation, die dem Pumpen mit unpolarisiertem Licht entspricht. Liegt die Schaltzeit oberhalb von 15 s diffundieren bereits ausreichend viele Kernspins während t_{Schalt} aus dem donatornahen Bereich in die Umgebung, die bei der darauffolgenden Einstrahlung mit entgegengesetzt zirkular polarisiertem Licht nicht umpolarisiert werden.

5.4. Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde der Elektron-g-Faktor unter dem Einfluss des effektiven Overhauser-Kernmagnetfeldes untersucht. Der in Abschnitt 5.2 behandelte Aufbau bei polarisationsmodulierter Anregung ermöglichte die Messung des Elektron-g-Faktors g_{pseudo}^* in Abhängigkeit von der Umschaltdauer $t_{\rm Schalt}$ der σ^{\pm} -Anregung. Die relevante Zeitskala der dynamischen Kernspinpolarisation konnte durch das Verschwinden der Aufspaltung Δg_{pseudo}^* bei einer Schaltzeit von $t_{\rm Schalt} = 0,5$ s bestimmt werden. Die Messungen mit $t_{\rm Schalt} = 0,5$ s entsprechen daher der Anregung mit unpolarisiertem Licht und unterliegen lediglich einer sich auf der Langzeitskala entwickelnden dynamischen Kernspinpolarisation. Der Gleichgewichtszustand der Kernspinpolarisation $\langle I_z \rangle$ in der Probe wird nach einer Dauer von etwa 75 min erreicht und ist bezogen auf die Schaltzeit bis zu $t_{\rm Schalt} = 15$ s konstant. Erst für $t_{\rm Schalt} \geq 15$ s liegt ein anderer, als der dem Pumpen mit unpolarisiertem Licht wird auf die komplexe Dynamik der Kernspindiffusion zurückgeführt.

6. Elektron-g-Faktor-Anisotropie in symmetrischen (110)-GaAs-Quantenfilmen

In diesem Kapitel wird die Anisotropie des effektiven Elektron-g-Faktors innerhalb der Quantenfilmebene in symmetrischen (110)-GaAs-Quantenfilmen untersucht. Über die Spinquantenschwebungsspektroskopie (s. Abschnitt 2.4) wird diese Anisotropie in Abhängigkeit von der Quantenfilmbreite experimentell bestimmt. Die Messergebnisse sind in sehr guter Übereinstimmung mit Berechnungen, die auf der 14×14 -Band $k \cdot p$ -Theorie beruhen. Ein vereinfachtes theoretisches Modell in vierter Ordnung Störungstheorie bringt den Ursprung der g-Faktor-Anisotropie – trotz der symmetrischen Einhüllendenfunktion der Elektronen im Quantenfilm – näher.

Im ersten Abschnitt des Kapitels werden die g-Faktor-Tensoren einiger GaAs-Quantenfilmtypen vorgestellt und der Zusammenhang mit der Symmetrie in III-V-Halbleitern hergestellt. Zudem wird die hier behandelte g-Faktor-Anisotropie von der in asymmetrischen (001)-Quantenfilmen abgegrenzt. Abschnitt 6.2 behandelt die Durchführung der Messungen: Zunächst wird die verwendete Mehrfachquantenfilmprobe, die zehn unterschiedliche Einzelquantenfilme enthält, vorgestellt und kurz charakterisiert. Dann folgen die Beschreibung der eigentlichen Messung und Bestimmung des g-Faktors in Abhängigkeit von der Magnetfeldorientierung und die Bestimmung des Messfehlers. Kernpunkt des Kapitels ist Abschnitt 6.3, in dem die Messergebnisse zusammen mit den Berechnungen nach der $k \cdot p$ -Theorie präsentiert und das vereinfachte störungstheoretische Modell vorgestellt werden. Neben den g-Faktoren ergeben sich aus den Spinquantenschwebungsmessungen die Spinzerfallszeiten der Elektronen in Abhängigkeit von der Quantenfilmbreite, die in Abschnitt 6.4 dargestellt werden. Am Ende des Kapitels erfolgt eine Zusammenfassung.

6.1. Einfluss der Symmetrie auf den Elektron-g-Faktor-Tensor in III-V-Halbleitern

Symmetrien sind in der Physik eng verbunden mit Erhaltungsgrößen (Noether-Theorem [110]) und der Entartung von quantenmechanischen Zuständen. Eine Symmetriereduktion führt zu dem Verlust von Erhaltungsgrößen bzw. der Aufhebung von Entartung, und somit zu einer Erhöhung der Komplexität. Beispielsweise verursacht der Übergang von Volumen-GaAs (3D-System) zu einem GaAs-Quantenfilm (Quasi-2D-System) die Aufspaltung des HH- und LH-Bandes am Γ -Punkt. Im Folgenden wird der Einfluss der Symmetrie auf den effektiven Elektron-g-Faktor-Tensor \hat{g}^* beschrieben. Ähnlich wie bei dem Trägheitstensor eines starren Körpers führt die Verminderung der Symmetrie in Halbleitersystemen zu einer stärkeren Anisotropie des g-Faktor-Tensors \hat{g}^* .

Die Unterteilung in Symmetrieklassen, die sich darin unterscheiden, ob sie eine höhere oder niedrigere Symmetrie besitzen, erfolgt durch die Einführung einer Symmetriehierarchie mithilfe der Gruppentheorie [10]. In der Gruppentheorie gehören III-V-Halbleiter, wie GaAs, deren g-Faktor isotrop ist, der Punktgruppe T_d an. Der Übergang von Volumen-GaAs zu einem GaAs-Quantenfilm ist von einem Übergang in eine Untergruppe von T_d begleitet. Das Maß der Symmetriereduktion hängt bei diesem Übergang von der Wachstumsrichtung und der Beschaffenheit des Einschlusspotentials des Quantenfilmes ab. Bei (001)-Quantenfilmen erfolgt über den zweidimensionalen Ladungsträgereinschluss, wenn das Einschlusspotential V_z symmetrisch ist, der Übergang in die Punktgruppe D_{2d} . Der g-Faktor dieser Quantenfilme ist anisotrop bezüglich der senkrechten (g_z) und parallelen (g_s) Richtung zum Quantenfilm, wie zahlreiche Untersuchungen zeigen [111, 112, 113, 114, 115], und wird durch den Tensor $\hat{g}_{D_{2d}^{001}}^*$ in Gl. (6.1) beschrieben. Ist das Einschlusspotential des (001)-Quantenfilmes asymmetrisch, entweder durch eine interne wachstumsbedingte Barrierenasymmetrie oder durch das Anlegen eines externen elektrischen Feldes in Wachstumsrichtung, liegt die Punktgruppe C_{2v} vor. Der Verlust der Spiegelsymmetrie des Einschlusspotentials führt nun auch zu einer Anisotropie des g-Faktors innerhalb der (001)-Quantenfilmebene [116, 34, 117, 26] und der g-Faktor-Tensor nimmt die in Gl. (6.2) dargestellte Form an. Demgegenüber gehören Quantenfilme mit der [110]-Wachstumsrichtung der Punktgruppe C_{2v} bereits im Fall eines symmetrischen Einschlusspotentials an. Der entsprechende g-Faktor-Tensor $\hat{g}_{C_{2v}^{110}}^*$ ist in Gl. (6.3) dargestellt und weist eine Anisotropie¹ trotz der Spiegelsymmetrie des Einschlusspotentials auf [118, 119], wie im weiteren Verlauf des Kapitels gezeigt wird.

Die Anisotropien von $\hat{g}^*_{C_{2v}^{001}}$ und $\hat{g}^*_{C_{2v}^{110}}$ haben einen unterschiedlichen Ursprung: Bei asymmetrischen (001)-Quantenfilmen resultiert die Anisotropie des g-Faktors aus der asymmetrischen Einhüllendenfunktion des Elektrons und der Dresselhaus-Spinaufspaltung (s. Abschnitt 2.2.2) im Leitungsband [116]. Bei symmetrischen (110)-Quantenfilmen entfällt dieser Effekt aufgrund der symmetrischen Einhüllendenfunktion des Elektrons und die Anisotropie ist, wie in Abschnitt 6.3.2 gezeigt wird, ein Effekt höherer Ordnung, deren Erklärung die Einbeziehung der Valenzbänder und höheren Leitungsbänder erfordert [120].

¹Im Folgenden ist mit Anisotropie die Anisotropie innerhalb der Quantenfilmebene gemeint.

$$\underbrace{\begin{array}{ccc}
 symmetrisches V_z \\
 in [001]-Richtung: \\
 \hat{g}^*_{D^{001}_{2d}} = \begin{pmatrix} g_s & 0 & 0 \\
 0 & g_s & 0 \\
 0 & 0 & g_z \end{pmatrix} \quad (6.1) \qquad \hat{g}^*_{C^{001}_{2v}} = \begin{pmatrix} g_s & g_a & 0 \\
 g_a & g_s & 0 \\
 0 & 0 & g_z \end{pmatrix} \quad (6.2)$$

symmetrisches V_z in [110]-Richtung:

$$\hat{g}_{C_{2v}^{110}}^{*} = \begin{pmatrix} g_s & 0 & 0 \\ 0 & g_s + 2g_a & 0 \\ 0 & 0 & g_z \end{pmatrix}$$
(6.3)

6.2. Experimentelle Durchführung

6.2.1. Mehrfachquantenfilmprobe

Die (110)-GaAs-Mehrfachquantenfilmprobe besteht aus zehn symmetrischen (110)-GaAs-Quantenfilmen unterschiedlicher Dicke und besitzt nominell keine Dotierung. Auf das GaAs-Substratmaterial ist zunächst eine ca. 40 nm dicke GaAs-Schicht aufgewachsen, auf die ein Übergitter folgt, das als Ätzstoppschicht dienen kann. Das Übergitter besteht aus 53 Folgen von acht Monolagen AlAs und zwei Monolagen GaAs. Die unterste Quantenfilmbarriere bildet eine 190 nm dicke $Al_{0,32}Ga_{0,68}As$ -Schicht. Darauf folgen, in dieser Reihenfolge, die 10 GaAs-Quantenfilme der Breite 19, 15, 12, 10, 8, 7, 6, 5, 4 und 3 nm, die durch 80 nm dicke $Al_{0,32}Ga_{0,68}As$ -Barrieren voneinander getrennt sind. Die letzte Barriere besitzt wieder eine Breite von 190 nm und wird durch eine 5 nm GaAs-Schicht abgeschlossen. Hergestellt wurde die Probe per MBE-Wachstum von Dieter Schuh an der Universität Regensburg (Probennummer: D080929A).

Die Verwendung einer Mehrfachquantenfilmprobe ist eine vorteilhafte Lösung bei der Untersuchung von Abhängigkeiten bezüglich der Quantenfilmbreite. Wachstumsprozessbedingte Schwankungen bei der Herstellung mehrerer Einzelquantenfilmproben werden dabei umgangen. Zudem vermindert sich der zeitliche Aufwand einerseits bei der Herstellung und andererseits bei der experimentellen Untersuchung enorm (in diesem Fall um das zehnfache). Von besonderer Bedeutung ist, dass alle Quantenfilme unter den gleichen experimentellen Bedingungen untersucht werden, wie unter anderem hier der Kristallorientierung im externen Magnetfeld. Wichtig bei dem Design einer Mehrfachquantenfilmprobe für PL-Messungen ist, dass die Quantenfilmemissionsenergien, die mit abnehmender Quantenfilmbreite aufgrund der zuneh-



Abb. 6.1.: Streakkamera-Aufnahme der (110)-GaAs-Mehrfachquantenfilmprobe bei B = 6 T, T = 20 K, P = 5 mW und $\lambda_{\text{exc}} = 710 \text{ nm}$. Die PL der verschiedenen Quantenfilme ist in rot markiert, wobei die Zahlen die jeweilige Quantenfilmbreite in nm angeben. Links in der Aufnahme ist die PL des Substratmaterials (Volumen-GaAs) zu sehen.

menden Quantisierungsenergie ansteigen, spektral aufgelöst werden können. Dies ist vor allem bei breiten Quantenfilmen zu beachten.

Abbildung 6.1 zeigt eine Streakkamera-Aufnahme der Mehrfachquantenfilmprobe bei angelegtem transversalen Magnetfeld. Die ansteigende Quantisierungsenergie mit abnehmender Quantenfilmbreite (von links nach rechts in Abb. 6.1) trennt die PL der Quantenfilme spektral, sodass die PL der einzelnen Quantenfilme diesen eindeutig zugeordnet werden kann. Links im Bild ist die PL des Substratmaterials (Volumen-GaAs) zu sehen, die als Referenz für die Berechnung der in Abbildung 6.6 dargestellten Quantisierungsenergien benutzt wird. Die Streakkamera-Aufnahme veranschaulicht zusätzliche Auswirkungen der abnehmenden Quantenfilmbreite neben der ansteigenden Quantisierungsenergie: (I) Die PL-Lebenszeit nimmt aufgrund des stärkeren Elektron-Loch-Überlapps ab. (II) Die Larmorfrequenz nimmt bis zu der Quantenfilmbreite von 7 nm ab, und steigt dann, was anhand des 5 nm Quantenfilmes zu sehen ist, wieder an. Da der effektive Elektron-g-Faktor von Volumen-GaAs negativ ist $(g_{\text{bulk}}^* = -0, 484(3))$ [38], deutet dies auf eine mit einem Vorzeichenwechsel verbundene monotone Zunahme von q^* hin. (III) Die inhomogene Linienverbreiterung nimmt aufgrund von Monolagenfluktuationen in den Quantenfilmgrenzflächen zu (s. Abschnitt 7.3).

6.2.2. Messung der g-Faktor-Anisotropie

Die g-Faktor-Anisotropie wird über Spinquantenschwebungsmessungen (s. Abschnitt 2.4) in Abhängigkeit von der Kristallorientierung, bezogen auf das externe Magnetfeld von B = 6 T, bestimmt. Dazu ist die Mehrfachquantenfilmprobe an einem Drehprobenstab in Voigt-Geometrie in einem Heliumdampf-Kryostaten befestigt (s. Kapitel 3), wobei die Probentemperatur T = 20 K beträgt. Die Kristallorientierung der Probe im Magnetfeld wird zwischen den einzelnen Messungen von g^* mithilfe eines einfachen Getriebes im Probenstab außerhalb des Kryostaten eingestellt. Das Übersetzungsverhältnis beträgt da-

bei 3:1, sodass eine 45° Drehung am Probenstab einer Probendrehung von 15° entspricht. Die Probe wird mit zirkular polarisierten 100 fs Laserpulsen mit einer Wellenlänge von $\lambda_{\text{exc}} = 710 \text{ nm}$ angeregt. Die Anregungsleistung beträgt P = 5 mW bei einem Fokusdurchmesser von 100 μ m.

Die Identifikation der Kristallachsenlage in der Probe erfolgt mithilfe der Bruchkanten der Probe. Die ca. $3 \times 3 \text{ mm}^2$ große Probe ist aus einem zwei Zoll Wafer gebrochen, der bestimmte Markierungen (Flats) aufweist, die markante Kristallrichtungen anzeigen. Die Flats, zusammen mit einer einfach zu brechenden Richtung der Probe bzw. des Kristalls, erlauben die Bestimmung der Kristallachsenlage. Dabei ist zu beachten, dass (110)-GaAs-Ebenen "leicht" voneinander zu trennen sind, d.h. dass die [110]-Richtung "leicht" bricht. Demgegenüber ist GaAs in der [001]-Richtung "schwer" zu brechen.²

Beide Polarisationskomponenten der PL $(I_{\sigma^{\pm}})$ werden sequentiell über das Schalten der LCR aufgenommen. Aus diesen lässt sich die optische Polarisation P_{opt} , die ein direktes Maß für die Elektronenspinpolarisation ist³, berechnen mit

$$P_{\rm opt}(t) = \frac{I_{\sigma^+}(t) - I_{\sigma^-}(t)}{I_{\sigma^+}(t) + I_{\sigma^-}(t)} \,. \tag{6.4}$$

Der Elektronenspin präzediert mit der Larmorfrequenz ω_L um das externe Magnetfeld und zerfällt währenddessen aufgrund von Elektronenspinrelaxationsmechanismen mit der Zerfallszeit τ_s . Für die Elektronenspinpolarisation ergibt sich somit ein zeitlicher Verlauf von

$$P(t) = P_0 \left(\cos(\omega_L t) \cdot e^{-t/\tau_s} \right) , \qquad (6.5)$$

mit der Larmorfrequenz

$$\omega_L = \frac{|g^*|\mu_B B}{\hbar} , \qquad (6.6)$$

aus der sich der Elektron-g-Faktor g^* bestimmen lässt.

²Eine weitere "leicht" brechbare Richtung ist die [111]-Richtung, die hier allerdings aufgrund der Wachstumsrichtung ausscheidet.

³Der Lochspin zerfällt während des Abkühlprozesses auf der Zeitskala der Impulsstreuung ($\approx 100 \text{ fs}$) vollkommen.

6.2.3. Bestimmung des Messfehlers

Zusammen mit den g-Faktoren g^* werden in Abschnitt 6.3.1 Fehlerbalken angegeben. Diese setzen sich zusammen aus dem Fitfehler, dem statistischen Fehler und dem Fehler aufgrund von Probeninhomogenitäten. Der statistische Fehler wird abgeschätzt über Messergebnisse verschiedener Messungen bei gleichen experimentellen Parametern. Bei der Einstellung der Kristallorientierung im Magnetfeld (des Winkels φ) wandert der Laserfokus ewas auf der Probe, da leichte Abweichngen zwischen Laserfokus und Drehzentrum der Probe vorliegen. Dies führt zusammen mit Probeninhomogenitäten zu einem Fehler. Messungen bei konstantem Winkel φ (konstanter Kristallorientierung), bei denen der Laserfokus absichtlich über die Fokussierlinse um $\pm \Delta x$, $\pm \Delta y$ (jeweils 0,5 mm) auf der Probe verfahren wird, dienen zur Abschätzung dieses Fehlers.

6.3. Elektron-g-Faktor-Anisotropie in Abhängigkeit von der Quantenfilmbreite

6.3.1. Messergebnise

Abbildung 6.2 zeigt den gemessenen Elektron-g-Faktor g_{gem}^* für den 12 nm Quantenfilm in Abhängigkeit vom Winkel φ zwischen der $[1\overline{10}]$ -Kristallachse und dem externen Magnetfeld **B**. Deutlich zu sehen ist eine Variation von g_{gem}^* bei der Drehung von **B** in der Quantenfilmebene, also eine Anisotropie von g^* in der (110)-Quantenfilmebene. Mit dem g-Faktor-Tensor $\hat{g}_{C_{2v}^{110}}^*$ für den symmetrischen (110)-GaAs-Quantenfilm aus Gl. (6.3) und dem Magnetfeld $\mathbf{B} = B_0(\sin \varphi, \cos \varphi, 0)$ erhält man für den gemessenen g-Faktor in Abhängigkeit vom Winkel φ (mit $x' = [001], y' = [1\overline{10}]$ und z' = [110]):

$$g_{\text{gem}}^{*} = \pm |\hat{g}_{C_{2v}^{110}}^{*} \cdot \boldsymbol{B}| / B_{0}$$

= $\pm \sqrt{g_{s}^{2} + 2(g_{s} + g_{a})g_{a}[1 + \cos(2\varphi + \phi_{0})]}$ (6.7)



Abb. 6.2.: Gemessener g-Faktor g_{gem}^* (schwarze Punkte) des 12 nm Quantenfilms in Abhängigkeit vom Winkel φ zwischen der $[1\overline{10}]$ -Kristallachse und dem Magnetfeld **B**. Die rote Kurve ist eine Anpassung an die Messdaten nach Gl. (6.7).

Der freie Parameter ϕ_0 dient bei der Anpassung von Gl. (6.7) an die Messdaten zum Ausgleich des Ausrichtungsfehlers der Probe im externen Magnetfeld. Die rote Kurve in Abb. 6.2 zeigt das Ergebnis der Anpassung, die den symmetrischen (g_s) und antisymmetrischen (g_a) Beitrag zu g^* liefert $(g_s = -0, 212, g_a = 0, 023 \text{ und } \phi_0 = 6, 96 \text{ mrad})$. Die gemessenen Winkelabhängigkeiten $g^*_{\text{gem}}(\varphi)$ aller zehn Quantenfilme sind in Abb. 6.3 (schwarze Symbole) dargestellt. Aus den Winkeabhängigkeiten werden durch Anpassung von Gl. 6.7 an die Messdaten die beiden Werte g_s und g_a für jeden Quantenfilm bestimmt. Abbildung 6.4 zeigt die symmetrische (links) und antisymmetrische (rechts) Komponente von g^* in Abhängigkeit von der Quantenfilmbreite. Der symmetrische Beitrag g_s (links) steigt mit abnehmender Quantenfilmbreite monoton an. Ursache hierfür ist, dass zum einen die Energieabhängigkeit von g^* [121] einen direkten Anstieg von g^* mit



Abb. 6.3.: Gemessener g-Faktor $g_{\text{gem}}^*(\varphi)$ der zehn Quantenfilme (schwarze Symbole). Die blauen Linien sind die Ergebnisse der 14-Band $k \cdot p$ -Theorie basierend auf einem gemeinsamen Parametersatz.

der Quantisierungsenergie bewirkt. Zum anderen dringt die Wellenfunktion der Elektronen mit abnehmender Quantenfilmbreite tiefer in die Barriere ein, da der energetische Abstand zwischen Quantisierungsenergie (Grundzustand im Quantenfilm) und Barrierenhöhe (Einschlusspotential) geringer wird. Das $Al_xGa_{1-x}As$ -Barrierenmaterial hat, im Gegensatz zu Volumen-GaAs mit $g_{bulk}^* = -0, 484(3)$ [38] (als Grenzfall des unendlich breiten Quantenfilms), einen positiven g-Faktor⁴ von ca. 0,6 gegen den der Quantenfilmg-Faktor im Grenzfall des unendlich schmalen Quantenfilms tendiert. Die Wellenfunktion der Elektronen beeinflusst auch den antisymmetrischen Anteil von g^* . Hier ist die Ausdehnung der Wellenfunktion in Wachstumsrichtung, d.h. die Lokalisierung der Elektronen von Bedeutung. Die Exzitonenbindungsenergie (Elektron-Loch-Überlapp), und damit auch die Lokalisierung der Elektronen, zeigt bei der Quantenfilmbreite von ca. 4 nm ein Maximum [122]. Die Nichtmonotonie der Elektronenlokalisierung begründet sich in der endlichen Barrierenhöhe des Quantenfilms, da unterhalb von ca. 4 nm

⁴Der g-Faktor von $Al_x Ga_{1-x} As$ ist stark von der Al-Konzentration abhängig.



Abb. 6.4.: Anpassungsergebnisse der symmetrischen g_s (links) und antisymmetrischen g_a (rechts) Komponente von g^* in Abhängigkeit von der Quantenfilmbreite (Quadrate) und Berechnungen basierend auf der 14-Band $k \cdot p$ -Theorie (durchgezogene Linien) und einem vereinfachten 2-Band-Modell in vierter Ordnung Störungstheorie (gestrichelte Linien).

die 2D-Quantenfilmzustände hin zu 3D-Zuständen der "Volumen"-Barriere delokalisieren. Bereits die Messwerte von g_a in Abb. 6.4 deuten auf ein Maximum der antisymmetrischen Komponente von g^* bei einer Quantenfilmbreite von ca. 4 nm hin.

6.3.2. Berechnungen mit 14-Band-Modell und vereinfachtem 2-Band-Modell

In den Abb. 6.3 (Winkelabhängigkeiten von g_{gem}^*) und 6.4 (g_s und g_a in Abhängigkeit von der Quantenfilmbreite) sind neben den Messwerten die Ergebnisse einer Berechnung⁵ mit der 14-Band $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Störungstheorie im erweiterten Kane-Modell als blaue Linien dargestellt. Die dargestellten Ergebnisse basieren alle auf demselben Parametersatz. Die Abbildungen veranschaulichen eine sehr gute Übereinstimmung zwischen den Messungen und dem $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Modell. Das theoretische Modell zeigt, dass die Anisotropie des g-Faktors bei den gegebenen Al_{0,32}Ga_{0,68}As-Barrieren bei einer Quantenfilmbreite von 4 nm maximal ist, was auf die maximale Lokalisierung der Elektronen zurückgeführt wird. Bezüglich der Details des 14-Band $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Modells und des verwendeten Parametersatzes wird auf Referenz [120] verwiesen.

Die Ursache für die g-Faktor-Anisotropie in symmetrischen (110)-GaAs-Quantenfilmen wird im Folgenden näher veranschaulicht. Hierfür wird der $14 \times 14 \ \boldsymbol{k} \cdot \boldsymbol{p}$ -Hamilton-Operator des erweiterten Kane-Modells nach der Löwdin-Methode über eine näherungsweise Blockdiagonalisierung vereinfacht, und ein reduzierter 2×2 Hamilton-Operator, der die Leitungsbandzustände des Quantenfilms beschreibt, betrachtet [10, 120, 14]. In vierter Ordnung Störungstheorie ergibt sich der Hamilton-Operator:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}^{m^*} + \mathcal{H}^{\text{BIA}} + \mathcal{H}^B \tag{6.8}$$

⁵Die Berechnung, wie auch das folgende störungstheoretische Modell, stammt von M. Pochwała, H. Duc, J. Förstner und T. Meier von der Universität Paderborn.

Darin beschreibt \mathcal{H}^{m^*} die parabolische Dispersion mit der effektiven Masse m^* , \mathcal{H}^{BIA} die Dresselhaus-Aufspaltung aufgrund der Volumeninversionsasymmetrie (BIA) und \mathcal{H}^B die Magnetfeldabhängigkeit in linearer Näherung. Am Γ -Punkt ($k_{||} = 0$) gilt, mit z parallel zur [110]-Wachstumsrichtung,

$$\mathcal{H}^{B} = \left(\frac{g^{*}}{2}\mu_{B} + \alpha \langle \hat{k}_{z}^{2} \rangle\right) \left(\sigma_{x}B_{x} + \sigma_{y}B_{y}\right) + \beta \langle \hat{k}_{z}^{2} \rangle \sigma_{y}B_{y} .$$
(6.9)

Die Parameter α und β stellen die isotrope und anisotrope Zeeman-Aufspaltung dar (s. Gl. (6.12) und (6.13)), μ_B ist das Bohr'sche Magneton und σ_i sind die Pauli-Matrizen. Die Diagonalisierung von \mathcal{H}^B liefert die Aufspaltung der Spinzustände $\Delta E_{k_{||}=0}$ für $k_{||} = 0$ aufgrund der Zeeman-Aufspaltung, und somit den g-Faktor $g^*(\varphi) = \Delta E_{k_{||}=0}/\mu_B B$ [120]. Letzterer reproduziert Gl. (6.7) mit den analytischen Ausdrücken:

$$g_s = g^* + \frac{2}{\mu_B} \alpha \langle \hat{k}_z^2 \rangle \tag{6.10}$$

$$g_a = \frac{1}{\mu_B} \beta \langle \hat{k}_z^2 \rangle \tag{6.11}$$

Die Berechnungen, basierend auf dem vereinfachten 2 × 2 Hamilton-Operator in vierter Ordnung Störungstheorie, sind in Abb. 6.4 als gestrichelte rote Linien dargestellt. Deutliche Abweichungen zu den Messergebnissen und auch zu dem 14 × 14 $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Modell sind ersichtlich, und zeigen, dass die Berücksichtigung höherer Ordnungen in der Störungstheorie erforderlich ist, um die Messdaten mit dem vereinfachten 2 × 2 Hamilton-Operator zu reproduzieren. Allerdings können bereits anhand des vereinfachten Modells und der darauf basierenden Parameter α (Gl. (6.12)) und β (Gl. (6.13)) folgende Aussagen getroffen werden:

 Der isotrope Teil α in Gl. (6.9) ist für (001)- und (110)-Quantenfilme gleich, und der anisotrope Teil β in Gl. (6.9) ist für die [001]-, im Gegensatz zur [110]-Wachstumsrichtung, null.

- Der Parameter β zeigt die Verknüpfung zwischen der Spin-Bahn-Wechselwirkung und der g-Faktor-Anisotropie, da β null ist für eine verschwindende Spin-Bahn-Aufspaltung (Δ = Δ' = 0).
- 3. Der Parameter β zeigt anhand der Interbandmatrixelemente P, P', Q in Gl. (6.13), dass die Anisotropie des Elektron-g-Faktors auf der Kopplung Q der {Γ_{7v}, Γ_{8v}}-Valenzbänder mit den höheren {Γ_{7c}, Γ_{8c}}-Leitungsbändern und der zusätzlichen Kopplung P des Γ_{6c}-Leitungsbandes mit den {Γ_{7v}, Γ_{8v}}-Valenzbändern und/oder der P'-Kopplung mit den höheren {Γ_{7c}, Γ_{8c}}-Leitungsbändern beruht (s. auch Abb. 6.5).



Abb. 6.5.: Schematische Bandstruktur des vereinfachten 2-Band-Modells mit den Valenzbändern Γ_{8v} , Γ_{7v} und Leitungsbändern Γ_{6c} , Γ_{7c} , Γ_{8c} . E_g , E'_g , Δ und Δ' sind die Energien am Γ -Punkt und die Parameter P, P' und Q sind die Übergangsmatrixelemente zwischen den dargestellten Bändern [10].

$\begin{aligned} \overline{\lambda}^{2} &- \frac{2}{(E_{g} + \Delta)E_{g}} - \frac{5}{E_{g}^{2}} \\ \frac{1}{E_{g}^{2}(E_{g} + \Delta)} &- \frac{1}{E_{g}(E_{g} + \Delta)^{2}} \\ \frac{1}{E_{g}^{2}(E_{g} + \Delta)} - \frac{1}{(E_{g} + \Delta)^{2}} \\ \frac{2}{E_{g} - E_{g}^{\prime})(E_{g} - E_{g}^{\prime} - \Delta^{\prime})} &- \frac{5}{(E_{g} - E_{g}^{\prime})} \\ \frac{2}{(E_{g} - E_{g}^{\prime})^{3}} &- \frac{4}{(E_{g} - E_{g}^{\prime} - \Delta^{\prime})^{2}(E_{g} - E_{g}^{\prime})} \\ \frac{2}{(E_{g} - E_{g}^{\prime} - \Delta^{\prime})E_{g}} + \frac{4}{E_{g}^{2}} - \frac{1}{(E_{g} - E_{g}^{\prime})} \\ \frac{2}{E_{g}^{\prime})(E_{g} + \Delta)} + \frac{2}{(E_{g} + \Delta)^{2}} + \frac{1}{(E_{g} - E_{g}^{\prime})} \end{aligned}$

6.4. Isotrope Elektronenspinzerfallszeit in Abhängigkeit von der Quantenfilmbreite

Abschließend werden in diesem Kapitel die Elektronenspinzerfallszeiten, die sich aus den in Abschnitt 6.3.1 vorgestellten Messungen neben den g-Faktoren ergeben, kurz behandelt. Die Spinzerfallszeit τ_s ist unabhängig von der Orientierung des Magnetfeldes in der Quantenfilmebene, d.h. es liegt, wie zu erwarten, keine Anisotropie vor. Abbildung 6.6 zeigt die Spinzerfallszeit der zehn (110)-GaAs-Quantenfilme in Abhängigkeit von der Quantisierungsenergie. Die Quantisierungsenergie berechnet sich aus der Differenz der PL-Energie des betreffenden Quantenfilms und der PL-Energie des Volumen-GaAs. Die Messfehler der Spinzerfallszeiten werden aus den Spinquantenschwebungsmessungen in Abhängigkeit vom Winkel φ (s. Abb. 6.3) bestimmt.

Für die Abnahme der Spinzerfallszeit mit steigender Quantisierungsenergie sind sowohl die Exzitonenspinrelaxation als auch der DP-Mechanismus ver-



Abb. 6.6.: Spinzerfallszeit der zehn Quantenfilme in Abhängigkeit von der gemessenen Quantisierungsenergie bei B = 6 T, T = 20 K.

antwortlich. Mit abnehmender Quantenfilmbreite steigt der Elektron-Loch-Überlapp an, was zu einer Erhöhung der Austauschwechselwirkung und folglich zu einer effizienteren Exzitonenspinrelaxation führt (s. Abschnitt 2.5.3). Auch die Effizienz des DP-Mechanismus steigt mit abnehmender Quantenfilmbreite, da dies den Anstieg der Quantisierungsenergie zur Folge hat (s. Abschnitt 2.5.1). Eine lineare Anpassung an die doppelt logarithmisch dargestellten Messdaten liefert den Zusammenhang $\tau_s \propto E^{-1,164 \pm 0,086}$.

6.5. Zusammenfassung

In diesem Kapitel ist die Anisotropie des Elektron-g-Faktors innerhalb der Quantenfilmebene in symmetrischen (110)-GaAs-Quantenfilmen nachgewiesen worden. Anhand einer Mehrfachquantenfilmprobe, die zehn Quantenfilme unterschiedlicher Breite enthält, wurden dazu Messungen in Abhängigkeit von der Orientierung des Magnetfeldes innerhalb der Quantenfilmebene durchgeführt. Als Messmethode diente dabei die Spinquantenschwebungsspektroskopie. Aus den Messdaten konnten der symmetrische und antisymmetrische Anteil des g-Faktors in Abhängigkeit von der Quantenfilmbreite bestimmt werden. Die Messungen sind in sehr guter Übereinstimmung mit Rechnungen, die auf der 14-Band $\boldsymbol{k} \cdot \boldsymbol{p}$ -Theorie des erweiterten Kane-Modells beruhen und zeigen ein Maximum der Anisotropie bei einer Quantenfilmbreite, bei der die eingeschlossenen Elektronen am stärksten lokalisiert sind. Desweiteren zeigt ein störungstheoretisches Modell vierter Ordnung, dass die Anisotropie auf der Spin-Bahn-Wechselwirkung beruht. Sie hat ihren Ursprung in der Kopplung der Valenzbänder mit den höheren Leitungsbändern in Verbindung mit der Kopplung des Leitungsbandes mit diesen.

7. (110)-GaAs-Spininjektionsheterostruktur

Gegenstand dieses Kapitels, das in engem Zusammenhang mit dem folgenden Kapitel 8 steht, ist eine spezielle (110)-GaAs-Spininjektionsheterostruktur. Die Erzeugung eines hohen Spinpolarisationsgrades von bis zu 75% in einem 9 nm Quantenfilm der Struktur bei optischer Anregung weit außerhalb seiner Resonanz ist die Haupteigenschaft dieser Heterostruktur. Dabei dienen zwei dünne, den 9nm breiten Quantenfilm umgebende 4nm Quantenfilme als Quelle spinpolarisierter Ladungsträger, welche über einen nichtresonanten Tunnelprozess in den 9 nm Quantenfilm injiziert werden. Der hohe Spinpolarisationsgrad in dem 9nm Drain-Quantenfilm zusammen mit der energetischen Trennung zwischen Anregungs- und Emissionsenergie macht diese Heterostruktur attraktiv für einen möglichen Anwendungseinsatz als optisch gepumpter Spin-VCSEL¹. Der Vorteil des experimentellen Einsatzes der Heterostruktur liegt unter anderem in dem hohen optischen Polarisationsgrad, der direkt die Sensitivität des Experimentes steigert. Ersichtlich wird dies hier vor allem in Kapitel 8, in dem die Heterostruktur für die Messung der Spinrelaxationszeit in dem 9nm Quantenfilm genutzt wird. Die nichtresonante, indirekte Injektion der Ladungsträger über die 4nm Quantenfilme ermöglicht die hochpräzise Bestimmung der Spinrelaxationszeit über einen großen Dichte- und Temperaturbereich.

In Abschnitt 7.1 wird eine Charakterisierung der Probe bezüglich ihres Aufbaus, ihres PL-Spektrums und der nichtresonanten Tunnelzeit durch-

¹ Vertical Cavity Surface Emitting Laser

geführt. Die Haupteigenschaft der Heterostruktur wird dann in Abschnitt 7.2 anhand eines Anregungsspektrums der Struktur untersucht. Dazu wird der elektronische Anfangspolarisationsgrad im 9nm Drain-Quantenfilm in Abhängigkeit von der Energie des anregenden zirkularen Laserlichtes gemessen. Im folgenden Kapitel 8 wird mit der hier behandelten Spininjektionsheterostruktur die Elektronenspinrelaxationszeit in dem 9 nm (110)-Quantenfilm gemessen und als Indikator für den Anteil freier Exzitonen innerhalb des Elektron-Loch-Systems interpretiert. Im Bereich niedriger Dichten und Temperaturen führen Monolagenfluktuationen in den Grenzflächen des 9 nm Quantenfilmes zu Lokalisierungseffekten, welche die Spindynamik der Exzitonen beeinflussen. Die Grenzflächeneffekte des 9 nm Quantenfilmes werden in diesem Kapitel in Abschnitt 7.3 behandelt, da die Spindynamik der lokalisierten Exzitonen sich von der der freien Exzitonen unterscheidet und die Beschaffenheit der Grenzflächenfluktuationen eine probencharakteristische Eigenschaft ist. Im abschließenden Abschnitt 7.4 werden die wesentlichen Aussagen dieses Kapitels zusammengefasst.

7.1. Probencharakterisierung

7.1.1. Probenstruktur

Die in diesem Abschnitt untersuchte Probenstruktur wurde von Prof. Dr. W. Wegscheider und Dr. D. Schuh per Molekularstrahlepitaxie (MBE^2) an der Universität Regensburg gewachsen (Probennummer: D070413A). Sie besteht im Wesentlichen aus einem 9 nm GaAs-Quantenfilm, der durch 3 nm $Al_{0,36}Ga_{0,64}As$ -Barrieren von zwei umgebenden 4 nm GaAs-Quantenfilmen getrennt ist (s. Abb. 7.1). Die äußeren Barrieren der Struktur haben eine Breite von 50 nm. Die Struktur wird durch ein Übergitter bestehend aus 133 Folgen von sechs Monolagen AlAs und zwei Monolagen GaAs von dem

²Molecular Beam Epitaxy



Abb. 7.1.: Schematische Darstellung der Tunnelstruktur. Die Linien sind die Elektronen-Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichten der vier Subbänder im Leitungsband. Die Pfeile deuten das nichtresonante Tunneln an.

GaAs-Substrat getrennt. Eine 5 nm GaAs-Schicht schließt die Probe an der Oberfläche ab. Die Probe ist in der [110]-Kristallrichtung gewachsen und nominell undotiert.

Die Probenstruktur zeichnet sich neben der speziellen Wachstumsrichtung durch folgende Eigenschaft aus: Der Grundzustand bzw. das erste Subband in den 4 nm Quantenfilmen liegt wegen der stärkeren Ladungsträgerlokalisierung energetisch oberhalb des Grundzustandes des 9 nm Quantenfilms. Die Ladungsträger können daher aufgrund der schmalen Barrieren zwischen den Quantenfilmen innerhalb kurzer Zeit von den dünnen in den dicken Quantenfilm tunneln. Die nichtresonante Tunnelzeit beträgt dabei nach M. Alexander erwartungsgemäß einige wenige ps [123].

Die drei Quantenfilme der Heterostruktur sind aufgrund der sehr schmalen Barrieren zwischen ihnen aneinander gekoppelt. Eine Berechnung der Energieniveaus der Elektronen- und Lochsubbänder erfordert daher die Berücksichtigung dieser Kopplung. Dazu wird die Schrödinger-Gleichung für die gesamte Struktur aufgestellt [124] und numerisch mit dem Programm Mathe-

Energie-	Е	HH	LH
niveau	(meV)	(meV)	(meV)
1	42.63	5.65	30.06
2	121.7	21.55	75.93
3	125.2	21.56	81.86
4	168.5	22.49	121.8

Tab. 7.1.: Die ersten vier Energieniveaus in der gekoppelten Struktur.

matica gelöst. Das verwendete Rechenmodell von S. Kunz [125] berücksichtigt dabei unter anderem auch die Effektivmassenänderung beim Eindringen der Ladungsträgerwellenfunktion in die Barriere. Abbildung 7.1 zeigt eine schematische Darstellung der Struktur zusammen mit den Energieniveaus und Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichten der Elektronen von den vier gebundenen Leitungsbandzuständen. In Tab. 7.1 sind die ersten vier Energieniveaus des Leitungsbandes (E) und des HH- und LH-Valenzbandes aufgelistet. Die Aufspaltung in die zwei energetisch leicht verschobenen Niveaus 2 und 3, welche Elektronen bzw. Löchern entsprechen, die hauptsächlich in den dünnen Quantenfilmen lokalisiert sind (s. Abb. 7.1), resultiert aus der Kopplung der gesamten Struktur.

7.1.2. PL- und PLE-Spektrum der Probenstruktur

Zunächst wird die Struktur mittels zeitaufgelöster PL-Spektroskopie bei einer Gittertemperatur von 10 K untersucht. Die Anregung erfolgt mit einem Ti:Sa-Laser im ps-Betrieb mit $\lambda_{\text{exc}} = 710 \text{ nm}$ und P = 100 mW. Die PL der beiden 4 nm Quantenfilme ist aufgrund des Ladungsträgertunnelns zeitlich sehr kurz und hat eine schwache Intensität, weshalb die hohe Anregungsleistung von 100 mW gewählt wird. Für die Aufnahme der 4 nm Quantenfilme wird ein Bandpassfilter FB750-40 (Thorlabs) verwendet, um die vergleichs-



Abb. 7.2.: Zusammengesetzte Streakkamera-Aufnahme der (110)-GaAs-Tunnelstruktur (T = 10 K, P = 100 mW und $\lambda_{\text{exc}} = 710 \text{ nm}$).

weise hohen Intensitäten des Laserstreulichtes und der PL des 9 nm Quantenfilmes deutlich abzuschwächen. Trotz der Abschwächung des Laserstreulichtes, muss dessen Einfluss auf die Aufnahme sorgfältig beachtet werden: Die Tunnelzeit der Ladungsträger liegt im Bereich der Zeitauflösung der Streakkamera, sodass die 4 nm Quantenfilm-PL zeitlich nicht vom Laserstreulicht getrennt werden kann. Das durch den Bandpassfilter transmittierte Laserstreulicht kann daher leicht mit der PL der 4 nm Quantenfilme verwechselt werden. Die Linienbreite der Aufnahme zeigt, dass tatsächlich die PL der 4 nm Quantenfilme aufgenommen wurde, da diese deutlich unterhalb der Transmissionsbandbreite des Filters liegt. Bei gleichen experimentellen Bedingungen wird für die Aufnahme des 9 nm Quantenfilmes ein Langpassfilter FEL0750 (Thorlabs) verwendet. Abbildung 7.2 zeigt das zusammengesetzte Streakkamera-Bild der beiden Aufnahmen. Bei der Emissionsenergie von 1,660 eV ist das schwache kurze Aufblitzen der 4 nm Quantenfilme zu sehen. Die PL des 9 nm Quantenfilmes liegt energetisch bei 1,561 eV. Links im Bild ist ein Teil der PL des Substratmaterials (Volumen-GaAs) zu sehen, die aufgrund der hohen Anregungsleistung stark ausgeprägt ist. Die PL-Intensitäten der beiden Quantenfilme können nicht direkt miteinander verglichen werden, da die Streakkamera-Verstärkung bei beiden Aufnahmen unterschiedlich ist.

Die Halbwertsbreite der beiden Emissionslinien wird über das zeitintegrierte Spektrum der Struktur bestimmt. Beide Linien sind inhomogen verbreitert und lassen sich daher gut durch eine Gauß-Kurve beschreiben. Die Halbwertsbreite beträgt für den 4 nm (9 nm) Quantenfilm 20,0 meV (8,9 meV). Die Emissionlinie des 9 nm Quantenfilmes ist im Fall der hier betrachteten Messung bei P = 100 mW zusätzlich wegen der hohen Anregungsleistung verbreitert. Auf das Spektrum des 9 nm Quantenfilmes wird in Abschnitt 7.3.2 näher eingegangen. Grund für die inhomogene Linienverbreiterung sind Monolagenfluktuationen innerhalb der Quantenfilme [126]. Diese sind beim (110)-Wachstum aufgrund der niedrigeren Wachstumstemperatur ausgeprägter als beim (001)-Wachstum. Monolagenfluktuationen und deren Auswirkungen werden in Abschnitt 7.3 eingehend behandelt.

In Abschnitt 7.2 werden zeit- und polarisationsaufgelöste PL-Messungen vorgestellt, die sich teilweise auch für die Auswertung des Photolumineszenzanregungs- (PLE³)-Spektrums der Probe nutzen lassen. Bei der PLE-Spektroskopie wird die PL-Intensität – hier die des 9 nm Quantenfilmes – in Abhängigkeit von der Anregungsenergie aufgenommen. Bei hochreinen Proben und tiefen Temperaturen stimmt das PLE-Spektrum in guter Näherung

³Photoluminescence Excitation

mit dem Absorptionsspektrum einer Probe überein [127]. Die Messungen werden durchgeführt bei $T = 10 \,\mathrm{K}$ und $P = 5 \,\mathrm{mW}$, wobei die Anregungsenergie von 1,575 bis 1,755 eV variiert und die I_{σ^+} und I_{σ^-} -Komponenten der PL zeitaufgelöst gemessen werden. Eine einheitliche Auswertung der Messdaten zur Berechnung des PLE-Spektrums ist nur über einen kleinen Teil des Anregungsspektrums, im Bereich der Absorption der 4 nm Quantenfilme, möglich.⁴ Das PLE-Spektrum ist zusammen mit dem PL-Spektrum und den berechneten Übergangsenergien in Abbildung 7.5 dargestellt. Die Absorption der 4 nm Quantenfilme liegt bei 1,669 eV bei einer Halbwertsbreite von 23 meV und ist aufgrund der Stokes-Verschiebung gegenüber der Emission um 9,1 meV zu höheren Energien hin verschoben. Die Stokes-Verschiebung ist nach Yang et al. [128] proportional zur inhomogenen Linienverbreiterung aufgrund von Monolagenfluktuationen, wobei der Proportionalitätsfaktor theoretisch 0,553 beträgt. Die Stokes-Verschiebung von 9,1 meV und die Emissions-Halbwertsbreite von 20,0 meV ergeben hier einen Wert von 0,46, der in guter Übereinstimmung mit dem Theoriewert ist und einen weiteren Beleg für ein vorhandenes Grenzflächenunordnungspotential im Quantenfilm liefert.

Zusätzlich zu den Messungen bei T = 10 K wird ein Spektrum der Probe bei Raumtemperatur aufgenommen, um das PL-Intensitätsverhältnis des 9 nm und der 4 nm Quantenfilme bei hohen Temperaturen zu verdeutlichen (s. Abschnitt 8.1.1). Die Probenanregung erfolgt dabei mit einem 10 mW-HeNe-Laser ($\lambda_{\text{exc}} = 633 \text{ nm}$). Die schwarze Linie in Abb. 7.3 zeigt das Spektrum der gesamten Struktur. Über ein Anpassung wird der Hochenergieausläufer des 9 nm Quantenfilmes bestimmt und von dem Gesamtspektrum abgezogen. Das Ergebnis, das in guter Näherung das Spektrum der 4 nm

⁴Bei den in Abschnitt 7.2 durchgeführten Messungen zur Bestimmung des optischen Polarisationsgrades der PL wurden unterschiedliche (Interferenz-) Filter in der Detektion zur Unterdrückung des Laserstreulichtes eingesetzt. Diese erschweren den direkten Vergleich der aufgenommenen PL-Intensitäten über den aufgenommenen Spektralbereich erheblich.



Abb. 7.3.: PL-Spektrum der Tunnelstruktur bei Raumtemperatur und berechnete Übergangsenergien (rote Pfeile). Die blaue gepunktete Linie stellt in guter Näherung das Spektrum der dünnen Quantenfilme dar (s. Text). Die Anregung der Probe erfolgt mit einem 10 mW-HeNe-Laser ($\lambda_{\rm exc} = 633 \, {\rm nm}$).

Quantenfilme wiedergibt, ist als blau gepunktete Linie in Abb. 7.3 dargestellt. Die markierten Übergangsenergien ergeben sich aus den Quantisierungsenergien aus Tab. 7.1 und der nach Varshni [129] berechneten Bandlücke bei $T = 300 \,\mathrm{K}.$

7.1.3. Bestimmung der nichtresonanten Tunnelzeit

Als nächstes wird die Zeit des nichtresonanten Tunnelns der Elektronen von den 4 nm Quantenfilmen in den 9 nm Quantenfilm bestimmt. Abbildung 7.4 zeigt die zeitaufgelöste PL-Transiente der 4 nm Quantenfilme (schwarze Linie) bei einer Anregungswellenlänge und -leistung von $\lambda_{\text{exc}} = 716$ nm bzw. P = 100 mW. Die Zeitauflösung der Streakkamera beträgt bei der dargestellten Aufnahme $\delta t = 5,7$ ps (Halbwertsbreite). Die Tunnelzeit kann nicht über eine einfache exponentielle Anpassung an die Daten bestimmt werden,


Abb. 7.4.: Zeitaufgelöste PL der 4nm Quantenfilme (schwarze Linie). Die Zeitauflösung (Halbwertsbreite) der Streakkamera beträgt bei dieser Aufnahme 5,7 ps. Die rote Linie zeigt das Ergebnis der iterativen Annäherung des Faltungsintegrals (7.1) an die Daten.

da die Zeitauflösung der Streakkamera im Bereich der Tunnelzeit liegt. Der Laserpuls, dessen Halbwertsbreite deutlich unterhalb der Zeitauflösung der Streakkamera liegt, führt bei seiner Aufnahme mit der Streakkamera zu einer gaußförmigen Zeittransiente mit einer Halbwertsbreite von 5,7 ps (Systemantwort). Der mit der Streakkamera aufgenommene zeitliche Verlauf der PL ist theoretisch durch die Faltung der tatsächlichen PL-Transiente mit der Systemantwort, d.h. der Gauß-Kurve, gegeben. Daher wird die Tunnelzeit, d.h. die tatsächliche PL-Lebenszeit, und die Halbwertsbreite der Gauß-Antwort über eine iterative Annäherung des Faltungsintegrals

$$\int I \cdot \exp\left(-\frac{4\ln 2 (t-\tau)^2}{\delta t^2}\right) \cdot \exp\left(-\frac{\tau}{\tau_{\text{Tunnel}}}\right) \,\mathrm{d}\,\tau \tag{7.1}$$

an die Daten bestimmt. Die iterative Annäherung ergibt eine Halbwertsbreite δt der Gauß-Antwort von 5,7 ps und eine Tunnelzeit von $\tau_{\text{Tunnel}} = 3,3$ ps. Die rote Kurve in Abb. 7.4 zeigt das Ergebnis der Annäherung an die Daten.

7.2. Spinerhaltendes Tunneln

In diesem Abschnitt wird die Haupteigenschaft der Probenstruktur untersucht, die Erzeugung eines hohen Elektronenspinpolarisationsgrades in dem 9 nm Quantenfilm durch die nichtresonante, indirekte optische Injektion spinpolarisierter Elektronen über die 4 nm Quantenfilme. Dazu wird die Probe mit zirkular polarisierten ps-Laserpulsen angeregt und der Polarisationsgrad der 9 nm Quantenfilm-PL in Abhängigkeit von der Anregungsenergie gemessen. Der Ti:Sa-Laser wird für diese Messungen im ps-Modus betrieben, um eine ausreichende Energieselektivität zu gewährleisten. Die Messungen werden bei einer Temperatur und einer Anregungsleistung von T = 10 K bzw. P = 5 mW durchgeführt. Der zeitliche Verlauf des Polarisationsgrades

$$P(t) = P_0 \cdot e^{-t/\tau_s} \tag{7.2}$$

wird über die beiden gemessenen zirkularen PL-Komponenten $I_{\sigma^{\pm}}(t)$ nach Gl. (2.18) berechnet. Die Anregungsdichte liegt unter der Annahme einer zweiprozentigen Absorption⁵ der gesamten Struktur bei $n = 8 \cdot 10^{10}$ cm⁻². Bei dieser Dichte und der Temperatur von 10 K sind in dem 9 nm Quantenfilm nur die HH-Zustände im Valenzband besetzt, weshalb in Gl. (7.2) die optische Polarisation der Elektronenspinpolarisation im Leitungsband gleichgesetzt werden kann (s. Abschnitt 2.3). Der Anfangspolarisationsgrad P_0 wird über eine Anpassung von Gl. (7.2) an die Messdaten bestimmt, wobei die Anpassung 15 ps nach dem Zeitnullpunkt beginnt, um den Einfluss des Laserstreulichtes zu eliminieren.

Abbildung 7.5 zeigt das Ergebnis der Messungen (schwarze Punkte, rechte Achse) zusammen mit dem PL- und PLE-Spektrum der Probe (s. Abschnitt 7.1.2) und den berechneten Übergangsenergien. Bei quasiresonanter

⁵Die zweiprozentige Absorption der gesamten Struktur wird hier und im Folgenden bei der Anregung in der HH-Resonanz der dünnen Quantenfilme angenommen. Zusammen mit dem Laserfokusdurchmesser von 100 μ m resultiert dies in einem Umrechnungsfaktor von der Anregungsleistung in die Anregungsdichte von $n = 1, 7 \cdot 10^{10} \frac{p}{rrW}$ cm⁻².



Abb. 7.5.: (Anregungs-) Spektrum der Spininjektionsheterostruktur: Die verbundenen schwarzen Punkte zeigen den Anfangspolarisationsgrad P_0 im 9 nm Quantenfilm (rechte Achse). Die PL des 9 nm und der 4 nm Quantenfilme sind links bzw. mittig als blaue Linien dargestellt, die unabhängig skalieren (linke Achse). Einen Ausschnitt des PLE-Spektrums zeigen mittig die verbundenen cyanfarbigen Kreise (ebenfalls linke Achse, unabhängig von der PL-Intensität). Zusätzlich sind in rot die Übergangsenergien und als rot unterlegte Bereiche die Verbreiterungen aufgrund von Monolagenfluktuationen dargestellt.

Anregung des dicken Quantenfilmes (E₁-HH₁) beträgt der Anfangspolarisationsgrad P_0 fast 100%, wohingegen P_0 unterhalb von null bei der Anregung in der Leichtlochresonanz des dicken Quantenfilmes (E_1-LH_1) liegt. Bei der nichtresonanten Anregung des dicken Quantenfilmes werden unterhalb von 1,640 eV 30% Anfangspolarisationsgrad erreicht. Bei weiterer Erhöhung der Anregungsenergie findet neben der Anregung des dicken Quantenfilmes auch immer eine Anregung der dünnen Quantenfilme statt. In der Schwerlochresonanz der dünnen Quantenfilme $(E_{2/3}-HH_{2/3})$ beträgt die Elektronenspinpolarisation in den dünnen Quantenfilmen direkt nach der Anregung mit zirkular polarisiertem Licht 100%. Die Elektronen tunneln aus den dünnen Quantenfilmen nach ca. 3 ps (s. Abschnitt 7.1.3) in den dicken Quantenfilm und durchmischen sich dort mit den bei der gleichzeitigen Anregung des dicken Quantenfilmes generierten spinpolarisierten Elektronen mit $P_0 \geq 30\%$. In Abb. 7.5 ist deutlich der Anstieg des Polarisationsgrades auf 75% in der Schwerlochresonanz der dünnen Quantenfilme zu sehen, wobei das Maximum von P_0 mit dem Absorptionsmaximum (PLE-Spektrum) zusammenfällt. Während des Tunnelprozesses bleibt also die Elektronenspinpolarisation erhalten. Oberhalb des Überganges $E_{2/3}$ -HH_{2/3} nimmt P_0 wieder ab. Zusätzlich weist das Anregungsspektrum des Anfangspolarisationsgrades ein Minimum in der Leichtlochresonanz der dünnen Quantenfilme $(E_{2/3}-LH_{2/3})$ auf. Die in Abb. 7.5 rot markierten Übergangsenergien ergeben sich aus den berechneten Quantisierungsenergien der gekoppelten Struktur aus Tab. 7.1 und der Bandlücke $E_g = 1,517\,\mathrm{eV}$ von Volumen-GaAs bei T = 10 K. Die rot unterlegten Bereiche stellen die berechneten Verbreiterung der Übergangsenergien aufgrund von Monolagenfluktuationen in den dünnen Quantenfilmen dar, wobei eine Schwankung um eine Monolage angenommen wird.

Als nächstes wird die Temperaturabhängigkeit des Anfangspolarisationsgrades P_0 bei der Anregung in der Schwerlochresonanz der dünnen Quantenfilme untersucht. Die Anregungsleistung beträgt konstant P = 3 mW und resultiert unter der Annahme einer zweiprozentigen Absorption der Struktur in einer Anregungsdichte von $5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. Die Anregungsenergie wird dem temperaturabhängigen Schwerlochübergang der 4 nm Quantenfilme bei den Messungen gemäß Varshni [129] angepasst. Abbildung 7.6 zeigt die Temperaturabhängigkeit des Anfangspolarisationsgrades im 9 nm Quantenfilm. Die Anfangspolarisation bleibt bei steigender Temperatur konstant bei 75% bis zu einer Temperatur von etwa 70 K und fällt dann exponentiell bis auf 22% bei T = 200 K ab ($P_0 \propto e^{-0,0094 T/\text{K}}$). Der Rückgang von P_0 wird einer Veränderung des Absorptionsverhältnisses des Schwerloch- ($E_{2/3}$ -HH_{2/3}) zu Leichtlochüberganges (E_1 -LH₁) aufgrund der mit steigender Temperatur sinkenden exzitonischen Überhöhung des Schwerlochüberganges zugeordnet.

Der Anfangspolarisationsgrad bei der Anregung in der Schwerlochresonanz der dünnen Quantenfilme von $P_0 = 75\%$ ist bei T = 10 K über einen weiten



Abb. 7.6.: Temperaturabhängigkeit des Anfangspolarisationsgrades P_0 im 9 nm Quantenfilm bei resonanter Anregung der 4 nm Quantenfilme und einer Anregungsleistung von P = 3 mW.

Dichtebereich von $n = 1, 7 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-2}$ bis $n = 1, 7 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ unabhängig von der Anregungsdichte. Selbst bei den niedrigsten gemessenen Anregungsdichten von $n = 1, 7 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-2}$ zeigt P_0 keinen Rückgang. Daher kann eine Durchmischung mit unpolarisierten Elektronen, die von einer eventuellen, unbeabsichtigten Hintergrund-n-Dotierung abstammen, im Niedrigdichtebereich ausgeschlossen werden (s. Abschnit 7.3.2 und 7.3.5).

Die hier charakterisierte hocheffiziente optische Spininjektionsheterostruktur steigert über ihren hohen optischen Polarisationsgrad der PL die Sensitivität von Experimenten. Durch die Trennung von Anregungs- und Emissionsenergie werden Messungen mit hohem Polarisationsgrad möglich, die ansonsten stark von störendem Anregungslaserstreulicht beeinflusst werden. Zusätzlich kann der Grad der Elektronenspinpolarisation auch starken Einfluss auf die Elektronenspindynamik nehmen, wobei die Struktur die Untersuchung solcher Effekte über einen großen Bereich der Spinpolarisation ermöglicht. Beispielsweise steigt die Elektronenspinrelaxationszeit in Hochmobilitätselektronensystemen mit dem Polarisationsgrad an [130, 131, 132]. Die Trennung der Anregungs- und Emissionsenergie macht die Struktur auch attraktiv für anwendungsorientierte Experimente bezüglich optisch gepumpter Spin-VCSEL. Oberflächen-emittierende Halbleiterlaserstrukturen mit vertikaler Kavität (VCSEL) bieten gegenüber kantenemittierenden Halbleiterlasern viele Vorteile [133, 134, 135, 136, 137, 138]. Mithilfe eines Spintronik-Bauelementes, des Spin-VCSELs, kann die Pumpleistung der Laserschwelle gegenüber herkömmlichen VCSELn halbiert werden [139, 140]. Über das Design einer Kavität bestehend aus Bragg-Spiegeln, die transparent für die Anregungswellenlänge und reflektiv für die Emissionswellenlänge sind, kann mit der gegebenen Struktur ein optischer Spin-VCSEL konstruiert werden. Zusätzlich kann durch den Austausch der zwei 4nm Injektionsquantenfilme gegen zwei passende Injektionsübergitter der Polarisationsgrad von 75%noch weiter erhöht werden.

7.3. Grenzflächeneffekte und Ladungsträgerlokalisierung

In diesem Abschnitt werden die Auswirkungen von Monolagenfluktuationen auf die PL-Eigenschaften und die Ladungsträgerdynamik des 9 nm Quantenfilmes näher untersucht. Zunächst wird auf Monolagenfluktuationen und deren Auswirkungen im Allgemeinen eingegangen (Unterabschnitt 7.3.1). Im Speziellen wird in Unterabschnitt 7.3.2 der Einfluss auf das PL-Spektrum behandelt. Die Anstiegszeiten der PL bzw. das Abkühlen der Ladungsträger (Unterabschnitt 7.3.3) zeigen, dass die Ladungsträger im Bereich niedriger Dichten in den Grenzflächenpotentialen lokalisieren. Die Untersuchung des Elektron-g-Faktors in Unterabschnitt 7.3.4 bestätigt die Lokalisierung und zeigt, dass im Fall der Elektronen eine schwache Lokalisierung vorliegt. Der Einfluss der Lokalisierung auf die Elektronenspinrelaxationszeit wird in Unterabschnitt 7.3.5 behandelt. Die wesentlichen Ergebnisse werden am Ende des Abschnitts (Unterabschnitt 7.3.6) zusammengefasst.

7.3.1. Monolagenfluktuationen

Die Molekularstrahlepitaxie (MBE) ermöglicht die Herstellung hochreiner, monokristalliner Halbleiter-Heterostrukturen⁶ mit einer über die Kristallorientierung des Substrats vorgegebenen Wachstumsrichtung. Die makroskopische Schichtdickengenauigkeit der Halbleiterfilme innerhalb der Heterostruktur liegt im Bereich einer einzelnen Monolage des betreffenden Halbleitermaterials. Im mikroskopischen Bereich liegen jedoch sogenannte Monolagenfluktuationen vor. Dies sind Grenzflächenfluktuationen zwischen den GaAs und $Al_xGa_{1-x}As$ Schichten mit einer Höhe in Wachstumsrichtung von ein bis mehreren Monolagen und lateralen Ausdehnungen im Submikrometerbis Mikrometerbereich. Die Ausprägung der Monolagenfluktuationen ist unter anderem abhängig vom Wachstumsmaterial, seiner Orientierung und den

⁶Im Folgenden werden GaAs/Al_xGa_{1-x}As-Heterostrukturen betrachtet.

Prozessbedingungen, insbesondere der Wachstumstemperatur. Die komplexere Wachstumsdynamik von (110)-GaAs-Quantenfilmen im Vergleich zu (001)-GaAs-Quantenfilmen verursacht stärker ausgeprägte Monolagenfluktuationen, die sich beispielsweise in einer gesteigerten inhomogenen Linienverbreiterung äußern [141]. Für die [001]-Richtung liefern Modelle, die Grenzflächenfluktuationen mit einer Monolagenhöhe und lateralen Ausdehnungen von 10 - 100 nm voraussetzen, gute Übereinstimmungen mit experimentellen Ergebnissen (siehe z.B. [126]). Bei (110)-GaAs-Quantenfilmen werden Grenzflächenfluktuationen mit einer Höhe von bis zu drei Monolagen beobachtet, wobei die laterale Ausdehnung bis in den Mikrometerbereich läuft [142]. In dünnen Quantenfilmen können die Grenzflächenfluktuationen zu einem zusätzlichen lateralen Ladungsträgereinschluss und damit zur Ausbildung von sogenannten natürlichen Quantenpunkten führen [143, 144]. Für ungebundene Ladungsträger stellt das unebene Grenzflächenpotential einen zusätzlichen Impulsstreumechanismus zur Verfügung. Eine zusätzliche Auswirkung der Monolagenfluktuationen in Quantenfilmen ist die Erhöhung der Bindungsenergie von Exzitonen und Exzitonkomplexen aufgrund der stärkeren Überlappung der Ladungsträgerwellenfunktionen. Diese ist demzufolge abhängig von der Quantenfilmbreite und der Ausprägung der Monolagenfluktuationen [145].

7.3.2. PL-Spektrum des 9 nm Quantenfilmes

Das PL-Spektrum des 9 nm Quantenfilmes ist bei einer Temperatur von 10 K, niedriger Anregungsdichte und einem Fokusdurchmesser von 100 μ m inhomogen verbreitert, wobei die Halbwertsbreite 7,5 meV beträgt. Die Halbwertsbreite bleibt konstant bis zu einer Anregungsdichte von ca. $1 \cdot 10^{11}$ cm⁻². Oberhalb dieser Anregungsdichte führt das Auffüllen des Leitungsbandes, d.h. die Besetzung höherer Wellenvektoren \mathbf{k} , zu einem Ansteigen der Halbwertsbreite. Grund für die inhomogene Linienverbreiterung sind Grenzflächen-



Abb. 7.7.: PL-Energie in Abhängigkeit von der Anregungsdichte für $T = 10 \,\mathrm{K}$ und 50 K.

unebenheiten des Quantenfilmes, die in Potentialfluktuationen (über dem Fokusdurchmesser) resultieren [126]. Die im Vergleich zu (001)-Quantenfilmen große Halbwertsbreite ist durch die komplexere Wachstumsdynamik von (110)-Quantenfilmen bedingt. Aus ihr lässt sich direkt das laterale Einschlusspotential innerhalb der Quantenfilmebene ablesen.

Die Untersuchung des PL-Maximums in Abhängigkeit von der Anregungsdichte zeigt bei T = 10 K eine abrupte Verschiebung des Maximums um ca. 2 meV bei einer Anregungsdichte von $n = 5 \cdot 10^9$ cm⁻² (s. Abb. 7.7). Unterund oberhalb dieser Dichte liegt das PL-Maximum bei konstanter Energie. Bei T = 50 K wird eine derart abrupte Verschiebung der PL-Position mit der Anregungsdichte nicht beobachtet. Die Übergangstemperatur, bei der keine Verschiebung der PL-Position mit der Anregungsdichte mehr stattfindet, beträgt ca. 20 K (s. Einsatz von Abb. 7.8). Die PL-Position wird also dichteunabhängig (für $n \leq 2 \cdot 10^{11}$ cm⁻²), sobald die thermische Energie die Energie, um welche sich die PL-Position verschiebt (ca. 2 meV), überschreitet.



Abb. 7.8.: Temperaturabhängigkeit der PL-Energie für niedrige ($n = 1, 7 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$, rote Punkte) und moderate ($n = 5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, schwarze Punkte) Anregungsdichten.

Abbildung 7.8 zeigt zusätzlich die PL-Position bis zu T = 150 K (T = 120 K) für $n = 5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ ($n = 1, 7 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$). Die blaue Linie ist die berechnete Bandlücke nach Viña [146]

$$E_g(T) = E_B - a_B \left[1 + \frac{2}{e^{\Theta/T} - 1} \right] + E_1 , \qquad (7.3)$$

die Bose-Einstein-Statistik-Faktoren der Phononenemission und -absorption beinhaltet, mit den Materialparametern $E_B = 1,571 \text{ eV}, a_B = 57 \text{ meV}$ und $\Theta = 240 \text{ K}$ für Volumen-GaAs [147] und dem freien Parameter E_1 , der die Quantisierungsenergie der Elektronen und Löcher im Quantenfilm berücksichtigt. Eine Anpassung an die Messdaten mit $T \ge 100 \text{ K}$ ergibt eine Quantisierungsenergie von $E_1 = 51, 1 \text{ eV}$ die sehr gut mit den berechneten Quantisierungsenergien aus Tab. 7.1 übereinstimmt. Das physikalisch inhaltlichere Viña-Modell liefert im Bereich niedriger Temperaturen gegenüber dem empirischen Modell von Varshni die korrekten, im Vergleich zu Varshni etwas niedrigeren Übergangsenergien.⁷ Das fluktuierende Grenzflächenpotential des Quantenfilmes führt zu der Rotverschiebung der gemessenen PL-Position um 3,2 meV (Stokes-Verschiebung) gegenüber den berechneten Übergangsenergien [148, 149]. Das Verhältnis zwischen der Stokes-Verschiebung und der inhomogenen Linienverbreiterung von 0,43 stimmt gut mit dem Theoriewert 0,553 von Yang *et al.* [128] überein (s. auch Abschnitt 7.1.2).

Im weiteren Verlauf werden mögliche Ursachen für die Verschiebung der PL-Energie mit ansteigender Ladungsträgerdichte im Bereich niedriger Temperaturen vorgestellt und diskutiert. Die Diskussion dieser möglichen Ursachen wird in den folgenden Abschnitten 7.3.3-7.3.5 fortgesetzt, da auch andere physikalische Eigenschaften Änderungen bei der Dichte $5 \cdot 10^9$ cm⁻², die als Übergangsdichte $n_{\rm trans}$ bezeichnet wird, aufweisen.

Eine Möglichkeit für die Verschiebung der PL-Energie ist die Ausbildung trionischer Exzitonenkomplexe im Bereich niedriger Dichten. Hierfür sind allerdings neben den optisch injizierten Ladungsträgern zusätzliche Ladungsträger erforderlich, die bereits in der Probe vorhanden sein müssen. Zwar besitzt die Probe nominell keine Dotierung, doch findet während des MBE-Wachstums eine unvermeidbare, leichte Verunreinigung der Probe statt. Eine relevante Verunreinigung mit Donatoren kann ausgeschlossen werden, da der Anfangspolarisationsgrad der PL bis zu den niedrigsten gemessenen Dichten konstant bleibt (s. Abschnitt 7.2). Beim MBE-Wachstum wird die Probe leicht mit Kohlenstoffatomen verunreinigt, die im Allgemeinen als Akzeptoren einbauen und deren Konzentration typischerweise $\leq 1 \cdot 10^{14}$ cm⁻³ beträgt. Unter der Annahme eines Einfangbereiches von 100 μ m links- und rechtsseitig des 9 nm Quantenfilmes liegt eine Lochdichte von $\leq 2 \cdot 10^9$ cm⁻² innerhalb des 9 nm Quantenfilmes vor, die gut mit der Übergangsdichte $n_{\rm trans}$ übereinstimmt. Bracker *et al.* haben die Eigenschaften von Exzitonen und

 $^{^7\}mathrm{Mitteilung}$ von L. Viña.

Exzitonkomplexen in Quantenfilmen und natürlichen Quantenpunkten, d.h. Grenzflächen-Quantenpunkten, intensiv studiert und messen Bindungsenergien von 1,5 meV in einem grenzflächenunebenen 8,5 nm GaAs-Quantenfilm für positiv geladene Trionen [150, 151]. Die Bindung von positiven Trionen kann also sehr gut die Verschiebung der PL-Energie bei der Übergangsdichte $n_{\rm trans}$ (s. Abb. 7.7) erklären. Auch das Verschwinden der Verschiebung bei höheren Temperaturen kann über die Dissoziation der positiven Trionen erklärt werden (s. Einsatz von Abb. 7.8). Ein zusätzlicher Effekt der hier beschriebenen Erklärung ist, dass die ionisierten Akzeptoren die Tendenz der positiven Trionen verstärken, in den Grenzflächenunebenheiten zu lokalisieren [152].

Die Bindungsenergie von Exzitonen und Exzitonkomplexen in Quantenfilmen hängt neben der Quantenfilmbreite auch von der Beschaffenheit der Grenzflächen des Quantenfilmes ab. Schwankungen im Grenzflächenpotential können einen zusätzlichen lateralen Ladungsträgereinschluss bewirken und somit über den stärkeren Elektron-Loch-Überlapp die Bindungsenergie der Exzitonen erhöhen [145]. Bei einer Halbwertsbreite bzw. einem Lokalisierungspotential von 7,5 meV kann die Bindungsenergie der neutralen Exzitonen um bis zu 2 meV ansteigen. Diese zusätzliche Bindungsenergie ergibt sich theoretisch nach Filinov et al. [145] für einen 6 nm (001)-Quantenfilm mit Breitenfluktuationen um eine Monolage. Zwar ist der hier betrachtete (110)-Quantenfilm breiter als 6 nm, doch sind auch die Grenzflächenunebenheiten aufgrund der Wachstumsrichtung ausgeprägter, sodass bezugnehmend auf die Halbwertsbreite ähnliche Bedingungen vorliegen. Als zweite Möglichkeit kommt daher in Betracht, dass ein Lokalisierungspotential (7,5 meV) mit einer begrenzten Zustandsdichte, die gleich der Übergangsdichte n_{trans} ist, vorliegt, in dem die Exzitonen eine zusätzliche Bindungsenergie von ca. 2 meV besitzen (s. Abb. 7.7). Diese Möglichkeit kann allerdings nicht das Verschwinden der PL-Verschiebung bei einer Temperatur von ca. 20 K erklären (s. Einsatz von Abb. 7.8). Die Verschiebung sollte bei einer Temperatur verschwinden, die dem Einschlusspotential von 7,5 meV entspricht, also deutlich oberhalb von 20 K, und nicht bei der Temperatur, die der zusätzlichen Bindungsenergie von 2 meV entspricht.

Eine weitere, dritte Möglichkeit besteht darin, dass insgesamt ein sehr komplexes Grenzflächenpotential in der Quantenfilmebene vorliegt, das eine Lokalisierung bzw. Quasilokalisierung der Ladungsträger auf verschiedenen Längenskalen bewirkt. Ein Einschlusspotential bindet die Ladungsträger dabei mit einer Energie von ca. 2 meV, wobei die Zustandsdichte innerhalb dieses Potentials $n_{\rm trans}$ beträgt. Zusätzlich findet eine Lokalisierung der Ladungsträger auf einer anderen Längenskala statt, die zu der Halbwertsbreite von 7,5 meV führt.

7.3.3. PL-Anstiegszeit

In diesem Abschnitt wird das Abkühlen der Ladungsträger bzw. die PL-Anstiegszeit untersucht. Die Ladungsträgerinjektion erfolgt mit einer Überschussenergie von ca. 90 meV (1000 K) hoch in das Leitungsband, von wo aus die Ladungsträger schnell über LO-Phononenemission auf ca. 60 K abkühlen. Das weitere Abkühlen erfolgt über akustische Phononen (Deformationspotentialstreuung) auf einer längeren Zeitskala [153]. Für 9 nm Quantenfilme ohne Monolagenfluktuationen, d.h. ohne Lokalisierungspotentiale an den Grenzflächen, beträgt die PL-Anstiegszeit nach Damen *et al.* [154] und Roussignol *et al.* [155] bei T = 10 K und Anregung nahe der Schwerlochresonanz 20 ps. Bei Anregung oberhalb der Leichtlochresonanz und bis zu Überschussenergien von 100 meV liegt die PL-Anstiegszeit bei 200 bis 400 ps. Oberhalb der Gittertemperatur von T = 60 K steigt die PL auch bei hohen Überschussenergien innerhalb von 20 ps an.

Abbildung 7.9 zeigt den zeitlichen Verlauf der PL für drei verschiedene Dichten bei T = 10 K. Die PL hat bei niedrigen Dichten (bis ca. 1, 7 ·



Abb. 7.9.: Zeitlicher Verlauf der PL bei verschiedenen Anregungsdichten (ansteigend von links nach rechts).

 10^9 cm^{-2}) eine Anstiegszeit von $\leq 20 \text{ ps}$ und zerfällt monoexponentiell. Die kurze Anstiegszeit belegt eindeutig eine Ladungsträgerlokalisierung, die ein Einschlusspotential von $\geq 5 \text{ meV}$ (60 K) erfordert. Bei höheren Dichten kommt zu dem ersten schnellen Anstieg ein zweiter langsamer hinzu, der mit zunehmender Dichte ausgeprägter und länger wird. Bei $5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ hat die zweite Komponente des PL-Anstieges eine Dauer von 130 ps. Der zweite langsam ansteigende Anteil der PL verschwindet für $T \geq 70 \text{ K}$ (s. Abb. 7.9 für T = 70 K), wodurch belegt wird, dass es sich hierbei um einen Abkühleffekt handelt.

Die Ladungsträger kühlen innerhalb der ersten 10 bis 20 ps über die LO-Phonon-Wechselwirkung bis auf eine Temperatur von 60 K herunter, sodass das schnelle Ansteigen der PL bei T = 10 K nur durch das ausreichend hohe Einschlusspotential von 7,5 meV (s. Abschnitt 7.3.2) erklärt werden kann. Da die Anzahl der Zustände in diesem Einschlusspotential begrenzt ist, erfolgt ein Übergang von lokalisierten (schneller PL-Anstieg) zu freien (langsamer



Abb. 7.10.: Verhältnis der Anfangs-PL-Intensität zur Gesamt-PL-Intensität in Abhängigkeit von der Anregungsdichte bei T = 10 K.

PL-Anstieg) Ladungsträgern mit zunehmender Dichte. Um diesen Übergang quantitativer zu erfassen, wird der zeitliche Verlauf der PL näher untersucht. Dazu wird die PL einmal über die ersten 20 ps und einmal über den gesamten dargestellten Zeitbereich integriert und beide Werte ins Verhältnis gesetzt (s. Abb. 7.10). Das Intensitätsverhältnis weist einen Knick bei der Dichte $n \approx n_{\text{trans}} (5 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2})$ auf, was die Interpretation der Übergangsdichte n_{trans} mit der Zustandsdichte im Lokalisierungspotential nahelegt.

Im Fall von positiven Trionen als Erklärung der in diesem Abschnitt behandelten Effekte gilt, dass die Dichte der lokalisierten Zustände gleich der Hintergrunddichte der Löcher und der ionisierten Akzeptoren ist. Dies kann den Übergang von lokalisierten zu freien Ladungsträgern gerade bei der Übergangsdichte $n_{\rm trans}$ erklären, da die positiv geladenen Trionen über die Wechselwirkung mit den ionisierten Akzeptoren stärker in den Monolagenfluktuationen lokalisieren können als die neutralen Exzitonen.

7.3.4. Elektron-g-Faktor-Inhomogenitäten

Die Lokalisierung der Ladungsträger⁸ wird weiter mithilfe der Spinquantenschwebungsspektroskopie (s. Abschnitt 2.4) bei einem Magnetfeld von B = 8 T untersucht. Dazu wird die gemessene PL spektral in mehrere zusammenhängende Bereiche zerlegt, die eine Breite von 1,4 meV haben. Aus den zeitlichen Verläufen der PL in Abhängigkeit von der Energie wird über die Spinquantenschwebungsfrequenz die Energieabhängigkeit des Elektrong-Faktors g^* bestimmt. Die Spinquantenschwebungsfrequenz ist hier alleine durch den g-Faktor der Elektronen bestimmt, da der Lochspin während des Tunnelns und Abkühlens auf der Zeitskala der Impulsstreuzeit ($\approx 100 \, \text{fs}$) komplett dephasiert. Abbildung 7.11 zeigt die Energieabhängigkeit des Elektron-g-Faktors zusammen mit dem Spektrum der PL bei einer Anregungsdichte von 1, $7 \cdot 10^8$ cm⁻². Deutlich zu sehen ist ein linearer Anstieg von g^* mit ansteigender Energie über das PL-Spektrum. Die Abhängigkeit des g-Faktors von der (PL-) Energie ist ein typischer Lokalisierungseffekt, wie er beispielsweise auch in Quantenpunktsystemen beobachtet wird [156, 157]. Pfeffer und Zawadzki [121] haben über die 5-Band $\boldsymbol{k} \cdot \boldsymbol{p}$ -Methode den g-Faktor in Abhängigkeit von der Quantenfilmbreite berechnet, aus der sich eine g-Faktor-Änderung Δg^* mit der Quantisierungsenergie von $\Delta g^* = 6, 7 \frac{1}{eV}$ ableiten lässt. Der gemessene Wert $\Delta g^* = 0.5 \frac{1}{eV}$ für $n = 1, 7 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2}$ (s. Abb. 7.11) weicht um eine Größenordnung von diesem theoretischen Wert ab. Als Ursache für diese starke Diskrepanz wird angenommen, dass eine Quasilokalisierung, d.h. eine schwache Lokalisierung der Elektronen vorliegt. Bei dieser Quasilokalisierung können die Elektronen zwischen Grenzflächenzuständen innerhalb einer gewissen Energiebreite streuen, wobei eine Mittelung des g-Faktors stattfindet.

⁸Genauer wird hier die Lokalisierung der Elektronen untersucht. Die Streuzeiten von Elektronen und Exzitonen sind unterschiedlich.



Abb. 7.11.: Elektron-g-Faktor (rote Punkte, rechte Achse) in Abhängigkeit von der Energie. Der g-Faktor steigt linear mit Δg^* über das PL-Spektrum (schwarze Linie, linke Achse) an.

Mit steigender Ladungsträgerdichte werden die Grenzflächenzustände aufgefüllt und es treten die Eigenschaften der freien Elektronen in den Vordergrund (s. Abb. 7.12 (links)). Die g-Faktor-Änderung Δg^* nimmt mit zunehmender Dichte bis $2 \cdot 10^{11}$ cm⁻² ab, da die freien Ladungsträger über eine schnellere Streuung effizienter mitteln und so ein über das Spektrum der PL konstanter g-Faktor entsteht. Oberhalb von $2 \cdot 10^{11}$ cm⁻² steigt Δg^* wieder an, da hier der Übergang zum Fermi-Gas geschieht. In diesem Bereich der hohen Ladungsträgerdichte ist der g-Faktor im Niederenergiebereich der PL konstant, steigt aber im Hochenergiebereich der PL an. Zwar findet die Ladungsträgerstreuung gerade um das Fermi-Niveau statt, doch reicht diese offensichtlich nicht aus, um die Energie- bzw. Wellenvektorabhängigkeit des g-Faktors herauszumitteln. Der Übergang zu einem Fermi-Gas ober-



Abb. 7.12.: Elektron-g-Faktor-Änderung Δg^* bei T = 10 K in Abhängigkeit von der Dichte (links) und Temperaturabhängigkeit von Δg^* im Niedrigdichtebereich (rechts).

halb von $2 \cdot 10^{11}$ cm⁻² ist belegt durch einen relativ geringen Polarisationsgrad im Niederenergiebereich, der im Hochenergiebereich stark ansteigt. Das Pauli-Verbot blockiert im Niederenergiebereich die Ausbildung eines hohen Polarisationsgrades der PL. Abbildung 7.12 (rechts) zeigt die Temperaturabhängigkeit von Δg^* für niedrige Ladungsträgerdichten. Die zunehmende thermische Energie vermindert den Grad der Lokalisierung und erhöht somit die Mittelung des g-Faktors, sodass oberhalb von 30 K der g-Faktor konstant über das Spektrum der PL ist.

Die g-Faktor-Inhomogenität führt zu einer Spindephasierung des Gesamtspins, da die Larmorfrequenzen der einzelnen Elektronenspins unterschiedlich sind. Nach Merkulov *et al.* [69] gilt für die Spindephasierungsrate des Ensembles der Zusammenhang

$$\gamma_{\rm deph} = \frac{1}{T_{\Delta}} = \frac{\mu_B \,\Delta_g B}{\hbar} \,, \tag{7.4}$$

mit $\Delta_g = \Delta g^* \cdot 7,5 \text{ meV}$. Der Umrechnungsfaktor der in Abb. 7.12 dargestellten g-Faktor-Änderung Δg^* in die Spindephasierungsrate γ_{deph} beträgt bei der Halbwertsbreite von 7,5 meV und dem Magnetfeld B = 8 T (s. Abschnitt 8.2.2):

$$\gamma_{\rm deph} = 5.3 \cdot 10^{-3} \,\mathrm{eV} \times \Delta g^* \,\mathrm{ps}^{-1} \tag{7.5}$$

7.3.5. Einfluss auf die Elektronenspinrelaxationszeit

Abschließend wird die Elektronenspinrelaxation⁹ in Abhängigkeit von der Dichte bei T = 10 K und B = 0 T untersucht. Der Zerfall der Spinpolarisation ist im Niedrigdichtebereich monoexponentiell und geht mit steigender Dichte über in einen biexponentiellen Zerfall. Abbildung 7.13 veranschaulicht diesen Übergang anhand von drei exemplarischen Dichten. Bei T = 50 K (rot) ist der

 $^{^9\}mathrm{Die}$ Lochspin polarisation ist nach dem Tunneln und Abkühlen komplett dephasiert.



Abb. 7.13.: Zeitlicher Verlauf des Polarisationszerfalls. Mit steigender Dichte (von links nach rechts) weicht der Zerfall für T = 10 K zunehmend vom monoexponentiellen Zerfall ab. Für T = 50 K ist der Zerfall selbst bei $n = 5 \cdot 10^{10}$ cm⁻² monoexponentiell (rechts).



Abb. 7.14.: Dichteabhängigkeit der Spinrelaxationszeit bei T = 10 K (schwarze Punkte). Die roten und blauen Punkte sind die Relaxationszeiten einer biexponentiellen Anpassung.

Zerfall selbst bei einer Dichte von $n = 5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ monoexponentiell, wobei die Zerfallszeit gut mit der schnellen Zerfallszeit bei T = 10 K übereinstimmt. Die Änderung im Zerfallsverhalten wird dem Übergang von lokalisierten zu überwiegend freien Ladungsträgern zugeordnet.

Mit Abb. 7.14 wird die Elektronenspinrelaxation bei T = 10 K weiter charakterisiert. Dargestellt sind sowohl die Ergebnisse einer monoexponentiellen (schwarze Punkte) als auch einer biexponentiellen (rote und blaue Punkte) Anpassung an die Polarisationszerfälle. Die monoexponentielle Anpassung enthält einen konstanten Polarisationsoffset als freien Anpassparameter, um den Einfluss der lokalisierten Ladungsträger im Bereich moderater Dichten auf die Anpassung zu minimieren. Die schwarz dargestellten Relaxationszeiten geben dadurch in guter Näherung die jeweils gewichtete schnelle Zerfallskomponente wieder, und vereinfachen zusätzlich den Vergleich mit



Abb. 7.15.: Relative Amplituden der biexponentiellen Anpassung aus Abb. 7.14 mit der entsprechenden farblichen Darstellung.

den "monoexponentiellen" Spinrelaxationszeiten bei höheren Temperaturen (s. Abschnitt 8.1.2). Abbildung 7.14 zeigt die Abnahme der monoexponentiellen Spinrelaxationszeit zwischen $1 \cdot 10^9$ und $1 \cdot 10^{10}$ cm⁻² aufgrund der zunehmenden Delokalisierung.

Die biexponentielle Anpassung wird bis zu $n = 2 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ durchgeführt, da oberhalb dieser Dichte der Übergang zum Fermi-Gas stattfindet, in dem eine andersartige Spindynamik vorliegt (s. Abschnitt 8.1.2). Auffallend ist, dass die beiden Zerfallszeiten der biexponentiellen Anpassung konstant über den gesamten Dichtebereich von vier Größenordnungen sind. Die rot dargestellten Zeiten entsprechen der Elektronenspinelaxationszeit der lokalisierten Ladungsträger, dominierend im Niedrigdichtebereich (< 5 · 10⁹ cm⁻²,), die blau dargestellten Zeiten der Elektronenspinrelaxationszeit der freien Ladungsträger, dominierend im Bereich moderater Dichten $(n = 1 \cdot 10^{10} - 1 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2})$. Die farblichen Linien sind die Mittelwerte der beiden Zeiten unter Einbeziehung der Fehlerbalken und einer Gewichtung des relativen Beitrages (Amplituden) zum Polarisationszerfall (s. Abb. 7.15). Die Elektronenspinrelaxation ist bei T = 10 K also lediglich vom Grad der Lokalisierung und einer eventuellen Trionenbildung (s. Abschnitt 7.3.2) geprägt.

Die Elektronenspinrelaxation wird im Bereich der moderaten Dichten, in dem überwiegend delokalisierte Ladungsträger vorliegen und in dem damit die eigentlichen Quantenfilmeigenschaften im Vordergrund stehen, dominiert durch die Exzitonenspinrelaxation (s. Abschnitt 8.1.1). An dieser Stelle wird der Niedrigdichtebereich betrachtet und die Ursachen für das Ansteigen der Elektronenspinrelaxationszeit aufgrund der Lokalisierung der Ladungsträger und einer eventuellen Trionenbildung diskutiert. Die Lokalisierung der Ladungsträger nimmt sowohl Einfluss auf die exzitonische Spinrelaxation als auch auf die Spinrelaxation der beiden Konstituenten des Exzitons, d.h. die Elektronenspinrelaxation und die Lochspinrelaxation im Einzelnen. Letztere wird dominiert durch die Impulsstreuung der Löcher, die sich im Allgemeinen in einem HH-LH-Mischzustand befinden. Mit steigender Lokalisierung nimmt der Entartungsgrad der HH- und LH-Zustände ab, wodurch die Lochspinlebenszeit ansteigt [158]. Beispielsweise liegt die Lochspindephasierungszeit in selbstorganisierten InAs-Quantenpunkten bei bis zu 14 ns [159]. Diese sehr hohe Lochspinlebenszeit wird hier jedoch nicht erwartet, da die Lokalisierung der Löcher in der gegebenen Struktur sehr viel schwächer ist als in selbstorganisierten Quantenpunkten, die eine laterale Ausdehnung von ca. 10 nm besitzen. Die Lokalisierung von Elektronen führt bei niedrigen Temperaturen zu einer effizienten Hyperfeinwechselwirkung des Elektronenspins mit den Kernspins und demzufolge zu einem weiteren effizienten Spinrelaxationsmechanismus [160]. Hier wird jedoch erwartet, dass die schwache Lokalisierung der Elektronen (s. Abschnitt 7.3.4) nicht ausreicht, um zu einer effizienten Hyperfeinwechselwirkung zu führen. Die exzitonische Spinrelaxation wird durch

den langreichweitigen Anteil der Austauschwechselwirkung dominiert, der in Quantenfilmen linear mit dem Exzitonenimpuls K gegen null geht [55]. Für stark lokalisierte Exzitonen existiert eine longitudinal-transversale Aufspaltung der Exzitonen, d.h. ein effektives Magnetfeld Ω nur, wenn das Einschlusspotential innerhalb der Quantenfilmebene asymmetrisch ist [161]. Für schwach lokalisierte Exzitonen ist die Impulsstreuung ineffizient in der Umverteilung der Richtung des effektiven Austauschfeldes Ω [162]. Die Lokalisierung der Exzitonen nimmt also großen Einfluss auf die exzitonische Spinrelaxation, wobei die Beschaffenheit des Lokalisierungspotentials und der Grad der Lokalisierung die tendenzielle Veränderung der exzitonischen Spinrelaxationszeit bestimmen. Die Monolganfluktuationen in dem gegebenen 9 nm Quantenfilm führen zu einer schwachen Lokalisierung der Exzitonen im Niedrigdichtebereich und zu dem Anstieg der Elektronenspinrelaxationszeit um das ca. dreifache gegenüber der der freien Exzitonen.

Abschließend wird nochmals auf die Möglichkeit der Trionenbildung im Bereich niedriger Dichten eingegangen. Positive Trionen bestehen im Grundzustand aus zwei gepaarten Löchern in Singlett-Konfiguration und einem ungepaarten Elektron [150]. Bei gleicher Ortswellenfunktion der Löcher mittelt sich der Lochspinanteil räumlich zu null [63] und es findet keine Austauschwechselwirkung statt. Demzufolge entfällt die exzitonische Spinrelaxation für Trionen mit gleicher Lochortswellenfunktion. Die gemessenen Elektronenspinrelaxationszeiten im Niedrigdichtebereich sind sehr viel kürzer als die Zeiten, die aufgrund der verbleibenden Spinrelaxationsmechanismen, d.h. des BAP-Mechanismus und des Hyperfeinwechselwirkungsmechanismus, erwartet werden. Daher lassen die gemessenen kurzen Spinrelaxationszeiten die Möglichkeit der Trionenbildung im Niedrigdichtebereich als sehr unplausibel erscheinen.

7.3.6. Zusammenfassung

In diesem Abschnitt wurden die Auswirkungen von Grenzflächenfluktuationen des 9nm Quantenfilmes, die besonders im Bereich niedriger Temperaturen und Dichten ersichtlich werden, untersucht. Das Grenzflächenunordnungspotential führt zu einer inhomogenen Linienverbreiterung von 7,5 meV und einer entsprechenden Stokes-Verschiebung der PL. Zudem weist die Dichteabhängigkeit der PL-Position eine abrupte Verschiebung bei der Übergangsdichte $n_{\rm trans} = 5 \cdot 10^9 \, {\rm cm}^{-2}$ um ca. 2 meV auf. Das Abkühlverhalten der Ladungsträger zeigt eine Lokalisierung der Ladungsträger in dem Einschlusspotential von 7,5 meV, wobei die Zustandsdichte im Lokalisierungspotential gut mit der Übergangsdichte n_{trans} übereinstimmt. Die Lokalisierung der Ladungsträger führt zu einem von der PL-Energie abhängenden Elektrong-Faktor. Dabei zeigt die Energieabhängigkeit eine schwache Lokalisierung der Elektronen. Im Bereich der Lokalisierung sind die Elektronenspinrelaxationszeiten um das ca. dreifache länger als im Bereich freier Ladungsträger. Dieser Anstieg wird einer veränderten Exzitonendynamik zugeordnet, die sich auf die Effizienz der exzitonischen Spinrelaxation auswirkt.

Die Ursache für die abrupte PL-Verschiebung bei der Übergangsdichte $n_{\rm trans}$ um ca. 2 meV kann nicht eindeutig geklärt werden. Zwar kann diese Verschiebung und auch andere hier genannte Effekte sehr gut über die Bildung von positiv geladenen Exzitonenkomplexen im Bereich niedriger Dichten und Temperaturen erklärt werden, doch stimmen die gemessenen kurzen Elektronenspinrelaxationszeiten nicht mit denen überein, die für den Fall der Bildung von positiv geladenen Trionenen erwartet werden. Es wird daher angenommen, dass ein komplexes Grenzflächenpotential aufgrund von Monolagenfluktuationen mit unterschiedlicher lateraler Ausdehnung und Tiefe vorliegt, das neben dem Einschlusspotential von 7,5 meV ein weiteres 2 meV-Potential aufweist.

7.4. Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde eine (110)-GaAs-Spininjektionsheterostruktur charakterisiert. Bei nichtresonanter Anregung des 9 nm Quantenfilmes der Struktur konnte ein hoher Elektronenspinpolarisationsgrad von 75% in dem 9 nm Quantenfilm realisiert werden. Ermöglicht wird dies durch die Injektion spinpolarisierter Elektronen aus den 4 nm Quell-Quantenfilmen in den 9 nm Drain-Quantenfilm über einen nichtresonanten Tunnelprozess. Der hohe Spinpolarisationsgrad von 75% kann bis zu einer Temperatur von etwa 70 K erzielt werden. Oberhalb von dieser Temperatur nimmt der Spinpolarisationsgrad allerdings aufgrund des Rückganges der 4nm Quantenfilm-Absorption exponentiell mit der Temperatur ab. Eine Optimierung der Tunnelinjektionsquellen durch den Austausch der 4 nm Quantenfilme gegen passende Übergitter kann die optische Absorption der Quellen erhöhen, den Spinpolarisationsgrad im Drain-Quantenfilm damit weiter steigern und auch den Rückgang des Spinpolarisationsgrades mit steigender Temperatur abfangen. Die hocheffiziente Spininjektionsstruktur ist aufgrund ihrer Eigenschaft des hohen Spinpolarisationsgrades bei gleichzeitiger Trennung zwischen Anregungs- und Emissionsenergie für eine Vielzahl von experimentellen Untersuchungen nützlich. Zudem wurden in diesem Kapitel die Auswirkungen von Monolagenfluktuationen in den Grenzflächen des 9nm Quantenfilmes detailliert analysiert.

8. Elektronenspinrelaxation in (110)-GaAs-Quantenfilmen

In diesem Kapitel wird die Elektronenspinrelaxationszeit in einem 9 nm (110)-GaAs-Quantenfilm in Abhängigkeit von der Anregungsdichte und der Temperatur bei einem Magnetfeld von B = 0 und 8 T experimentell bestimmt. In der speziellen [110]-Wachstumsrichtung ist der ansonsten sehr effiziente Dyakonov-Perel-Mechanismus für eine Spinausrichtung parallel zur Wachstumsrichtung unterdrückt [22, 163, 68]. Die Messungen bei $B = 0 \mathrm{T}$ zeigen daher die Eigenschaften von Spinrelaxationsmechanismen, die ansonsten von dem Dyakonov-Perel-Mechanismus überdeckt sind. Diese sind der BAP-Mechanismus und die Spinrelaxation aufgrund der exzitonischen Austauschwechselwirkung. Berechnungen von Zhou und Wu [59] zeigen, dass der BAP-Mechanismus im Bereich moderater Dichten ineffizient in zweidimensionalen Systemen ist. Die hier gemessenen kurzen Elektronenspinrelaxationszeiten können daher über einen weiten Temperatur- und Dichtebereich nur über die exzitonische Austauschwechselwirkung erklärt werden, welche die Existenz von Exzitonen voraussetzt. Diese Aussage gewinnt an Bedeutung aufgrund der Tatsache, dass Emissionslinien von Interbandübergängen nicht für den eindeutigen Nachweis von Exzitonen verwendet werden können. Auch ein Coulomb-korreliertes Elektron-Loch-Plasma, das keine Exzitonen enthält, besitzt quasi-exzitonische Emissionslinien [164]. Den einzigen eindeutigen, direkten Nachweis von Exzitonen liefert bisher die THz-Spektroskopie [165], mit der intraexzitonische Übergänge sichtbar werden. Kernpunkt dieses Kapitels ist ein alternativer experimenteller Ansatz des Nachweises von Exzitonen über die Elektronenspinrelaxationszeit, die genauer als Indikator des Exzitonenanteils innerhalb des Plasmas der ungebundenen Elektronen-Loch-Paare interpretiert wird.

Sämtliche im Folgenden behandelten Messungen werden mit der in Kapitel 7 charakterisierten (110)-GaAs-Spininjektionsheterostruktur durchgeführt. Die Probe wird in der Schwerlochresonanz der dünnen Quantenfilme optisch angeregt. Nach dem nichtresonanten Tunneln der Ladungsträger (s. Abschnitt 7.2) erfolgt die wesentliche Spindynamik in dem 9 nm Quantenfilm, der daher hier von zentralem Interesse ist. Abschnitt 8.1 bildet den Hauptbestandteil des Kapitels. In ihm werden die Messungen der Elektronenspinrelaxationszeit in Abhängigkeit von der Temperatur und der Anregungsdichte bei B = 0 T untersucht. Die experimentellen Daten werden mit einem einfachen Modell basierend auf dem Exzitonenanteil innerhalb des Elektron-Loch-Plasmas verglichen. Zusätzlich wird das Modell und die Nutzung der Elektronenspinrelaxationszeit als Exzitonenindikator diskutiert. In Abschnitt 8.2 werden die Messungen bei B = 8 T behandelt. Die Ergebnisse des Kapitels werden in Abschnitt 8.3 zusammengefasst.

8.1. Messungen ohne angelegtes Magnetfeld

8.1.1. Temperaturabhängigkeit

Abbildung 8.1 zeigt die Elektronenspinrelaxationszeit in Abhängigkeit von der Temperatur für niedrige Dichten $n = 1, 7 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ (links) und moderate Dichten $n = 5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ (rechts). Die Lokalisierung der Ladungsträger beeinflusst die Spinrelaxationszeit im Niedrigdichtebereich bis zu $T \approx 90 \text{ K}$ (7,5 meV), wobei die mit der Temperatur steigende Delokalisierung zu einer Abnahme der Spinrelaxationszeit von 500 ps bei 5 K auf 200 ps bei 60 K führt. Der Einfluss der Lokalisierung auf die Elektronenspinrelaxationszeit ist in Ab-



Abb. 8.1.: Spinrelaxationszeit bei niedriger (links) und moderater Anregungsdichte (rechts) in Abhängigkeit von der Temperatur bei B = 0 T. Grau unterlegt ist jeweils der Bereich der freien Ladungsträger.

schnitt 7.3.5 beschrieben. Im Folgenden wird nur noch der Temperatur- und Dichtebereich der freien Ladungsträger betrachtet, in dem die eigentlichen Quantenfilmeigenschaften im Vordergrund stehen (Abb. 8.1: Grau unterlegter Bereich).

Im Bereich moderater Dichten $(n = 5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2})$ ist die Elektronenspinrelaxationszeit von 5 bis 60 K nahezu konstant und steigt dann bis zur Raumtemperatur um 600% an. Die Spinrelaxation der Elektronen wird in dem Plasma von Elektronen, Löchern und Exzitonen für $T \leq 200 \text{ K}$ bestimmt durch die Spinrelaxation der *Exzitonen*. Grund für das starke Ansteigen der Elektronenspinrelaxationszeit oberhalb von 60 K ist die Abnahme des Exzitonenanteils innerhalb des Elektron-Loch-Plasmas bei nahezu gleichbleibender Exzitonenspinrelaxationszeit. Neben der Abnahme des Exzitonenanteils mit der Temperatur fällt der Exzitonenanteil auch mit der Ladungsträgerdichte, was zu der sehr viel längeren Elektronenspin
relaxationszeit bei $T=120\,{\rm K}$ im Niedrigdichtebereich führt.

Bevor die Elektronenspinrelaxationszeit berechnet wird, soll noch auf den Bereich $T \ge 200 \,\mathrm{K}$ eingegangen werden (eingekreiste Zeiten in Abb. 8.1): Die Lebenszeit der PL nimmt für $T > 200 \,\mathrm{K}$ unerwartet ab, was durch einen nichtstrahlenden Ladungsträgerverlust in dem 9 nm Quantenfilm verursacht wird. Bei hohen Temperaturen hat ein Teil der Ladungsträger genügend Energie, um den Quantenfilm zu verlassen und anschließend in der Barriere oder den dünnen Quantenfilmen (s. Abb. 7.3) zu rekombinieren. Auch die Spinrelaxation der Ladungsträger in der Barriere und den dünnen Quantenfilmen nimmt Einfluss auf die gemessene Spinrelaxationszeit des 9 nm Quantenfilmes, da einige Ladungsträger nach ihrem Aufenthalt in diesen beiden Bereichen wieder zurück in den 9nm Probenquantenfilm gelangen. In der Barriere verlieren die Elektronen ihre Polarisation sehr schnell aufgrund des sehr effizienten DP-Mechanismus. In den dünnen Quantenfilmen ist dieser inaktiv, allerdings ist hier die Exzitonenspinrelaxation effizienter als im 9 nm Quantenfilm. Ein zweiter Effekt der bei erhöhten Temperaturen auftritt ist, dass höhere Subbänder im 9 nm Quantenfilm besetzt werden, wodurch der ISR-Mechanismus (s. Abschnitt 2.5.5) aktiviert wird. Der Einfluss des ISR-Mechanismus ist allerdings nach Lombez et al. bei der hier vorliegenden geringen Quantenfilmbreite von 9 nm als gering einzustufen [166].

Im Folgenden wird die Elektronenspin
relaxationszeit ausschließlich aufgrund der Spinrelaxation der Exzitonen innerhalb des Elektron-Loch-Plasmas berechnet. Nach Maialle *et al.* gilt für die Exzitonenspinrelaxationszeit τ_s^X der optisch aktiven HH-Exzitonen [55]:

$$\tau_s^X = (\Omega^2 \tau_p^X)^{-1} \tag{8.1}$$

Darin entspricht Ω der Aufspaltung zwischen den beiden optisch aktiven Exzitonen mit den Spinzuständen $|\pm 1\rangle$ aufgrund der Austauschwechselwirkung und τ_p^X ist die Impulsstreuzeit des Massenzentrums der Exzitonen. Die Aufspaltung Ω beträgt nach Maialle *et al.* 69,85 GHz für einen 9 nm GaAs-Quantenfilm und wird durch den langreichweitigen Anteil der Austauschwechselwirkung dominiert. Die Exzitonenspinrelaxation ist vom *motional-narrowing* Typ [45], sodass im Bereich schneller Impulsstreuung die Exzitonenspinrelaxationszeit τ_s^X proportional zur Exzitonenstreurate $\gamma_p^X = 1/\tau_p^X$ ist. Relevante Impulsstreumechanismen sind die Streuung an Grenzflächenunebenheiten, die Exziton-Exziton-Streuung und die Streuung mit LO-Phononen. Letzterer liefert erst ab einer Temperatur von ca. 60 K einen signifikanten Beitrag, und ist in Abb. 8.2 (links) dargestellt, wobei die LO-Phononstreurate nach Referenz [78] berechnet ist.

Die Elektronenspinrelaxationszeit τ_s^e wird aus der Exzitonenspinrelaxationszeit τ_s^X berechnet über den Exzitonenanteil $f_X = n_X/n$ innerhalb des Elektron-Loch-Plasmas:

$$\tau_s^e = \frac{\tau_s^X}{f_X} \tag{8.2}$$

Die sogenannte Saha-Gleichung (hier für den 2D-Fall) beschreibt den Exzitonenanteil f_X innerhalb des Elektron-Loch-Plasmas [167]:

$$\frac{(n_{e-h})^2}{n_X} = \frac{k_B T}{2\pi\hbar^2} \mu e^{-E_0/k_B T}$$
(8.3)

Darin ist n_X die Dichte der Exzitonen, n_{e-h} die Dichte der ungebundenen Elektron-Loch-Paare (es gilt: $n = n_X + n_{e-h}$), $\mu = 0,0061 m_0$ die reduzierte Masse und $E_0 = 8 \text{ meV}$ die Bindungsenergie der Exzitonen. Die Saha-Gleichung gilt im thermischen Gleichgewicht zwischen den verschiedenen Ladungsträgertypen für ein Boltzmann-Gas. Abbildung 8.2 (rechts) zeigt den Exzitonenanteil in Abhängigkeit von der Temperatur für verschiedene Dichten n. Bei der Temperatur von 120 K beträgt der Exzitonenanteil beispielsweise bei $n = 2 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2} 3,5 \%$ und bei $n = 5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2} 37 \%$, was den oben genannten starken Unterschied von τ_s^e für die niedrige und moderate Dichte in Abb. 8.1 erklärt. Die Linien in Abb. 8.1 sind die nach den Gl. (8.1), (8.2) und (8.3) berechneten Elektronenspinrelaxationszeiten für die niedrige (rot) und die moderate (blau) Ladungsrägerdichte n. Die Impulsstreurate der Exzitonen setzt sich dabei zusammen aus der LO-Phononstreurate (s. Abb. 8.2 (links)) und einer konstanten phänomenologischen Streurate von 0,77 ps⁻¹, welche die Streuung an Grenzflächenunebenheiten und übrige Streumechanismen berücksichtigt. Für $n = 5 \cdot 10^{10}$ cm⁻² (blau) stimmen die Messungen bis T = 150 K mit dem Modell angesichts der einfachen Berechnung sehr gut überein. Lediglich im Bereich tiefer Temperaturen kommt es zu Abweichungen. Diese Abweichungen werden auf eine komplexe Temperaturabhängigkeit der Impulsstreuung an den Grenzflächenpotentialen zurückgeführt. Für die niedrige Dichte (rot) führt das Lokalisierungspotential von 7,5 meV zu einer starken Diskrepanz zwischen Modell und Messung. Diese starke Diskrepanz verschwindet oberhalb von 90 K und die gemessenen Zeiten nähern sich dem Modell an.

An dieser Stelle werden kurz die stark vereinfachten Näherungen genannt, die bei der hier durchgeführten Berechnung gemacht werden. Für die Berechnung der Exzitonenspinrelaxationszeit τ_s^X (s. Gl.(8.1)) ist eine genaue Kenntnis der Impulsstreurate von hoher Bedeutung. Die Impulsstreurate der Exzitonen wird hier lediglich durch die Streuung mit LO-Phononen und eine konstante phänomenologische Streurate approximiert. Beispielsweise wird die Exziton-Exziton-Streuung dabei komplett vernachlässigt. Zusätzlich wird die Aufspaltung Ω als konstant über den gesamten Dichte- und Temperaturbereich angenommen, obwohl der dominierende langreichweitige Anteil der Austauschwechselwirkung vom Exzitonenimpuls K abhängt [55]. Der Exzitonenanteil im Elektron-Loch-Plasma wird über die Saha-Gleichung (8.3) berechnet, die nur für den Boltzmann-Fall gültig ist und keine Abschirmeffekte im Elektron-Loch-Plasma berücksichtigt, die allerdings mit steigender Dichte von Bedeutung werden (s. Abschnitt 8.1.2).

In Abschnitt 8.2 wird die Elektronenspinrelaxation bei angelegtem trans-



Abb. 8.2.: Links: Streurate der Exzitonen mit LO-Phononen. Rechts: Exzitonenanteil in Abhängigkeit von der Temperatur für verschiedene Elektron-Loch-Dichten n nach der Saha-Gleichung.

versalen Magnetfeld untersucht. Aus den gemessenen Elektronenspinrelaxationszeiten lässt sich der Beitrag des Dyakonov-Perel-Mechanismus, der innerhalb der Quantenfilmebene aktiv ist, ableiten. Der Dyakonov-Perel-Beitrag zeigt Elektronenimpulsstreuzeiten τ_p^e auf, die deutlich unterhalb der Impulsstreuzeiten liegen, die hier für die Berechnung der Exzitonenspinrelaxationszeit verwendet werden (s. Gl. (8.1)). Die gute Übereinstimmung zwischen Berechnung und Experiment im Bereich der freien Ladungsträger (s. Abb. 8.1) bestätigt, dass die Elektronenstreuung τ_p^e kein motional-narrowing im Fall der Exzitonenspinrelaxation verursacht. Nur die Impulsstreuung des Massenzentrums der Exzitonen τ_p^X führt zu einem motional-narrowing-Effekt bei der Exzitonenspinrelaxation.

8.1.2. Dichteabhängigkeit

Im Folgenden wird die Dichteabhängigkeit der Elektronenspinrelaxationszeit im Temperaturbereich von 10 bis 300 K anhand von Abb. 8.3 untersucht. Der Einfluss der Lokalisierung der Ladungsträger auf die Elektronenspinrelaxationszeit bei $T = 10 \,\mathrm{K}$ ist bereits in Abschnitt 7.3.5 behandelt worden. Für $T \geq 50\,\mathrm{K}$ liegen für alle dargestellten Dichten freie Ladungsträger vor und die Spinpolarisation zerfällt dementsprechend überwiegend monoexponentiell (s. Abb. 7.13 für $T = 50 \,\mathrm{K}$ und $n = 5 \cdot 10^{10} \,\mathrm{cm}^{-2}$). Lediglich im Bereich hoher Temperaturen $(T \ge 150 \text{ K})$ und Dichten $(n \ge 4 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2})$ werden leichte Abweichungen vom monoexponentiellen Zerfall beobachtet. Für $T < 150\,\mathrm{K}$ und $n \ll 10^{12}~\mathrm{cm}^{-2}$ sind die gemessenen Zeiten der Elektronenspinrelaxation nicht konsistent mit den Zeiten, die aufgrund des BAP-Mechanismus erwartet werden. Bei T = 50 K und $n < 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ ist der BAP-Mechanismus beispielsweise um eine Größenordnung weniger effizient [59]. Messungen von Müller et al. an einem n-dotierten (110)-GaAs-Quantenfilm mit $n = 1, 1 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ bei Abwesenheit von Löchern ergeben Elektronenspinrelaxationszeiten, die um zwei Größenordnungen über den hier gezeigten liegen [168]. Über einen weiten Temperatur- und Dichtebereich können die gemessenen Zeiten nur über die Existenz von Exzitonen und der damit verbundenen Spinrelaxation aufgrund der exzitonischen Austauschwechselwirkung beschrieben werden.

Für T = 10 und 50 K steigt die Spinrelaxationszeit im Hochdichtebereich $(n > 10^{11} \text{ cm}^{-2})$ an. Verantwortlich hierfür ist zum einen, dass die mit der hohen Anregungsdichte verbundene hohe Laserleistung zu einem lokalen Aufheizen der Probe im Laserfokus führt. Dieser Aufheizeffekt ist bei tieferen Temperaturen, also hier bei T = 10 K, stärker ausgeprägt. Zum anderen bewirkt die ansteigende Dichte eine Zunahme der Abschirmung der Ladungsträger und den Übergang zu einem entarteten Elektron-Loch-



Abb. 8.3.: Spinrelaxationszeit in Abhängigkeit von der Anregungsdichte n für verschiedene Temperaturen bei B = 0 T.

Plasma (s. Abschnitt 7.3.4), wodurch der Exzitonenanteil im Elektron-Loch-Plasma sinkt. Der Anstieg der Elektronenspinrelaxationszeit erfolgt bei T = 50 K bei einer etwa zehnmal niedrigeren Dichte als bei T = 10 K, obwohl der Debye'sche Abschirmradius λ_D mit der Temperatur ansteigt ($\lambda_D \propto \sqrt{T/n}$) [127]. Ermöglicht wird dies durch die geringere Überschussenergie, die bei T = 50 K nötig ist, um die Exzitonen zu ionisieren.

Oberhalb von etwa 100 K ändert sich die Dichteabhängigkeit der Elektronenspinrelaxationszeit und τ_s^e nimmt monoton mit der Dichte ab. Die Abnahme der Exzitonendichte im Elektron-Loch-Plasma mit steigender Temperatur vermindert den Einfluss der Exzitonenspinrelaxation auf die Elektronenspinrelaxationszeit (s. Abschnitt 8.1.1). Dieser Effekt ist im Bereich niedriger und moderater Dichten ($n \leq 10^{11}$ cm⁻²) stärker ausgeprägt (s. Abb. 8.2 (rechts)).¹

 $^{^1\}mathrm{Hierbei}$ ist allerdings zu beachten, dass in Abb. 8.2 (rechts) keine Abschirmeffekte

Für hohe Temperaturen ($T \ge 150 \,\mathrm{K}$) gewinnt der BAP-Mechanismus mit ansteigender Dichte an Einfluss. Neben der exzitonischen Spinrelaxation wird also auch die Spinrelaxation aufgrund der Austauschwechselwirkung der ungebundenen Elektronen mit dem gesamten Loch-Plasma relevant. Die Spinrelaxationszeiten aufgrund des BAP-Mechanismus werden nach Zhou und Wu bei einer Dichte von $n \approx 10^{12} \,\mathrm{cm}^{-2}$ mit den hier gemessenen Zeiten vergleichbar. Zusätzlich weisen die von Zhou und Wu berechneten Spinrelaxationszeiten oberhalb von $T = 150 \,\mathrm{K}$ nur eine schwache Temperaturabhängigkeit auf, was mit den bei $n \approx 10^{12} \,\mathrm{cm}^{-2}$ gemessenen Zeiten übereinstimmt.

Abschließend wird auf die bereits in Abschnitt 8.1.1 genannten Einschränkungen der Messergebnisse für $T \ge 200$ K aufmerksam gemacht. Die Eigenschaften der Probenstruktur beeinflussen mit ansteigender Temperatur die Elektronenspinrelaxation im 9 nm Quantenfilm, was bei den gemessenen Zeiten bei T = 300 K zu beachten ist (Abb. 8.3).

8.1.3. Elektronenspinrelaxation als Nachweis von Exzitonen

Exzitonen und deren Eigenschaften sind in den vergangenen Jahrzehnten sowohl theoretisch als auch durch eine Vielzahl von Experimenten intensiv untersucht worden. Interband Pump-Probe Absorptions- [169, 170] und Reflektionsexperimente [171], Vierwellenmisch-Experimente [172] und spektral hochauflösende zeitaufgelöste PL-Experimente [173] haben zu der Untersuchung der Exzitonen beigetragen. Als Indikator für die Existenz von Exzitonen dient dabei die Emissionslinie bei der Exzitonenübergangsenergie, die um die Exzitonenbindungsenergie gegenüber dem direkten Bandübergang verschoben ist [174, 175]. Koch *et al.* zeigen jedoch, dass exzitonenähnliche PL-Spektren auch dann vorliegen können, wenn keine Exzitonenpopulation in einem Elektron-Loch-Plasma vorhanden ist [164]. Die Berechnungen von Koch *et al.* erfolgen dabei mithilfe von Vielteilchen-Halbleiter-Bloch-Gleichungen,

berücksichtigt sind, die den Exzitonenanteil im Hochdichtebereich vermindern.
wobei das Elektron-Loch-System als Coulomb-korreliertes Elektron-Loch-Plasma betrachtet wird. Die berechneten PL-Spektren zeigen nur schwache Unterschiede bei dem Vergleich der Spektren wenn eine zehnprozentige bzw. wenn keine Exzitonenpopulation vorhanden ist. Dies bedeutet, dass sowohl gebundene Exzitonen als auch ein Plasma von ungebundenen Elektronen und Löchern als Ganzes bei der Exzitonenresonanz emittieren können. Dieses Ergebnis schränkt die Aussagekraft von Interband-Experimenten bezüglich der Exzitonenuntersuchung stark ein. Als Einzige experimentelle Technik für den direkten Nachweis von Exzitonen innerhalb eines Elektron-Loch-Plasmas dient die Pump-Probe THz-Spektroskopie [165, 176]. Dabei werden die Exzitonen während ihrer Lebenszeit im Spektroskopiebereich ihrer Bindungsenergie untersucht, sodass intraexzitonische Übergänge sichtbar werden. Die THz-Spektroskopie stellt daher eine experimentell sehr vielversprechende und bedeutungsvolle aber experimentell aufwendige Messmethode dar.

In dieser Arbeit wird die Möglichkeit vorgestellt die Elektronenspinrelaxationszeit als Nachweis von Exzitonen zu nutzen. Voraussetzung hierfür ist, dass die Elektronenspinrelaxation maßgeblich durch die Exzitonenspinrelaxation erfolgt und nicht durch einen gleich effizienten Spinrelaxationsmechanismus, wie beispielsweise den DP-Mechanismus, beeinflusst wird. Letzterer ist in der hier verwendeten (110)-GaAs-Probenstruktur für Elektronenspins, die entlang der Wachstumsrichtung orientiert sind, unterdrückt. Die einzigen verbleibenden Spinrelaxationsmechanismen sind die exzitonische Spinrelaxation und der damit eng verbundene BAP-Mechanismus. Beide beruhen auf der Austauschwechselwirkung, wobei die exzitonische Spinrelaxation bei gebundenen Elektron-Loch-Paaren auftritt und der BAP-Mechanismus als Vielteilchen-Effekt zu betrachten ist. Die nach Zhou und Wu mithilfe von Vielteilchen-Halbleiter-Spin-Bloch-Gleichungen berechneten Spinrelaxationszeiten aufgrund des BAP-Mechanismus [59] liegen deutlich über den Exzitonenspinrelaxationszeiten nach Maialle *et al.* [55]. Die gemessenen kurzen Elektronenspinrelaxationszeiten für $T \leq 60 \,\mathrm{K}$ und $n = 5 \cdot 10^{10} \,\mathrm{cm}^{-2}$ in Abb. 8.1 (rechts) können daher nur über die Existenz von Exzitonen erklärt werden und dienen hier als deren Nachweis. Weiterhin liefert das in Abschnitt 8.1.1 vorgestellte einfache Modell, das auf der Exzitonenspinrelaxation beruht und somit die Existenz von Exzitonen voraussetzt, eine gute Übereinstimmung mit den gemessenen Elektronenspinrelaxationszeiten. Die drei wesentlichen Größen in diesem Modell sind die Aufspaltung Ω aufgrund der Austauschwechselwirkung, die Exzitonenimpulsstreuzeit τ_p^X und der Exzitonenanteil f_X im Elektron-Loch-Plasma. Eine detailliertere Berechnung der Elektronenspinrelaxationszeit erfordert eine genauere Kenntnis dieser drei Größen und kann im Rahmen dieser Arbeit nicht durchgeführt werden. Umgekehrt können die gemessenen Elektronenspinrelaxationszeiten bei einer genauen Kenntnis von beispielsweise Ω und τ_p^X zur Bestimmung des Exzitonenanteils f_X benutzt werden.

8.2. Messungen bei angelegtem Magnetfeld

Sowohl die Exzitonenbindungsenergie als auch der kurz- und langreichweitige Anteil der Austauschwechselwirkung sind für den 9 nm Quantenfilm unabhängig von den hier angelegten Magnetfeldern [177]. Die Messungen bei B = 0 T (s. Abschnitt 8.1) können daher benutzt werden, um die zusätzlichen Spinrelaxationsmechanismen zu untersuchen, die bei angelegtem Magnetfeld neben der exzitonischen bzw. der BAP-Spinrelaxation wirksam sind. Dies ist vor allem der DP-Mechanismus, der innerhalb der Quantenfilmebene aktiv ist. Wenn die Spinpolarisation viele Oszillationen ausführt bevor sie zerfallen ist, gilt in guter Näherung, dass der DP-Mechanismus die Hälfte der Zerfallszeit wirksam ist. Abbildung 3.2 (c) zeigt beispielsweise den Polarisationsverlauf bei B = 8 T und bei einer Spinzerfallszeit von 250 ps für den 9 nm Quantenfilm. Für die Differenz der Elektronenspinzerfallsraten bei B = 0 T $(\gamma_s^{0 \mathrm{T}})$ und $B = 8 \mathrm{T} (\gamma_s^{8 \mathrm{T}})$ gilt:

$$\frac{1}{2}\gamma_{s}^{\rm DP} + \gamma_{s}^{\rm rest} = \gamma_{s}^{8\,\rm T} - \gamma_{s}^{0\,\rm T} , \qquad (8.4)$$

wobei γ_s^{DP} die Zerfallsrate aufgrund des DP-Mechanismus und γ_s^{rest} die Zerfallsrate der restlichen Mechanismen ist.

8.2.1. Temperaturabhängigkeit

Die Temperaturabhängigkeit der Spinzerfallszeit im Bereich niedriger $(1, 7 \cdot$ 10^9cm^{-2}) und moderater $(5 \cdot 10^{10} \text{cm}^{-2})$ Dichten bei B = 8 T ist in Abb. 8.4 (oben) dargestellt. Im Niedrigdichtebereich ist die Spinzerfallszeit relativ konstant. Lediglich für $T \leq 20 \,\mathrm{K}$ wird eine leicht höhere Spinzerfallszeit aufgrund der Lokalisierung der Ladungsträger gemessen (s. Abschnitt 7.3.5). Auch bei moderaten Dichten bleibt die Spinzerfallszeit zunächst bis etwa 50 K konstant, steigt dann aber mit der Temperatur linear an. Grund für diesen Anstieg ist die Abnahme der exzitonischen Spinrelaxation, was anhand von Abb. 8.4 (unten links) näher erläutert wird. Darin sind die Spinzerfallsraten für $B = 8 \text{ T} (\gamma_s^{8 \text{ T}})$ in schwarz und $0 \text{ T} (\gamma_s^{0 \text{ T}})$ in rot und die Differenz aus beiden in grün dargestellt. Im Fall der moderaten Dichten liefert nur der DP-Mechanismus einen Beitrag zur zusätzlichen Zerfallsrate und $\gamma_s^{\rm DP}$ ist die zweifache der in grün dargestellten Zerfallsraten. Deutlich zu sehen ist die Abnahme der exzitonischen Spinzerfallsrate (rot) oberhalb von $T = 50 \,\mathrm{K}$, wohingegen die Spinzerfallsrate aufgrund des DP-Mechanismus für die moderate Dichte in guter Näherung konstant bei $0,0042 \text{ ps}^{-1}$ ist. Malinowski et al. messen an einem 10 nm (001)-GaAs-Quantenfilm ebenfalls eine im Temperaturbereich von 80 bis 300 K konstante Spinrelaxationsrate von 0.02 ps^{-1} bei einer Anregungsdichte von $n = 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. Die Spinrelaxation erfolgt in ihrem Fall hauptsächlich über den DP-Mechanismus [171]. Unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Quantenfilmwachstumsrichtungen [22] (s. Gl. (2.36) und (2.37)) und Quantenfilmbreiten [171] stimmen



Abb. 8.4.: Oben: Spinzerfallszeit bei B = 8 T für moderate (Quadrate) und niedrige Dichten (Kreise). Beide Messreihen sind unten links (moderate Dichte) bzw. rechts (niedrige Dichten) in schwarz als Spinzerfallsrate dargestellt. Zusätzlich sind jeweils die Spinzerfallsraten bei B = 0 T in rot (Vergl. Abb. 8.1) und die Differenz der Spinzerfallsraten mit und ohne Magnetfeld in grün dargestellt.

die hier gemessenen DP-Zerfallsraten $\gamma_s^{\rm DP}$ gut mit den Messungen von Malinowski *et al.* überein. Die über die Temperatur konstante Rate $\gamma_s^{\rm DP}$ kann mit Gl. (2.35), in der $\gamma_s^{\rm DP}$ und T direkt linear voneinander abhängen, nur über eine mit der Temperatur abfallende Impulsstreuzeit der Elektronen τ_p^e erklärt werden. Abbildung 8.4 zeigt zusätzlich die drei Raten $\gamma_s^{\rm 8\,T}$ (schwarz),

 $\gamma_s^{0 \text{ T}}$ (rot) und $\frac{1}{2} \gamma_s^{\text{DP}} + \gamma_s^{\text{rest}}$ (grün) für die niedrige Dichte (unten links). Im Fall der niedrigen Dichte hängt die Differenz von $\gamma_s^{8 \text{ T}}$ und $\gamma_s^{0 \text{ T}}$ nicht alleine vom DP-Mechanismus ab. Auf diesen Sachverhalt wird im Zusammenhang mit den Dichteabhängigkeitsmessungen in Abschnitt 8.2.2 eingegangen, in dem auch die Impulsstreuung der Elektronen näher betrachtet wird.

8.2.2. Dichteabhängigkeit

Abbildung 8.5 zeigt die Dichteabhängigkeit der Spinzerfallszeit für T = 10, 50und 100 K bei B = 8 T und Anregung in der Schwerlochresonanz der dünnen Quantenfilme. Die längeren Spinzerfallszeiten unterhalb von $n = 10^{10}$ cm⁻² bei T = 10 K sind in der Lokalisierung der Ladungsträger begründet (s. Abschnitt 7.3.5). Abgesehen von dem Bereich der Lokalisierung bei 10 K steigt die Spinzerfallszeit für alle Temperaturen zunächst mit der Dichte bis zu $n \approx 10^{11}$ cm⁻² an und fällt danach ab. Verantwortlich für diesen Wech-



Abb. 8.5.: Spinzerfallszeit in Abhängigkeit von der Anregungsdichte n für verschiedene Temperaturen bei B = 8 T.

sel ist der Übergang von einem nicht-entarteten zu einem entarteten Elektronengas, der unter anderem die Effizienz des DP-Mechanismus und der Elektron-Elektron-Streuung verändert. Auffallend hierbei ist, dass der Wechsel von steigenden zu fallenden Spinzerfallszeiten für alle Temperaturen bei der Dichte von ca. 10^{11} cm⁻² stattfindet, obwohl der Übergang zum entarteten Elektronengas mit steigender Temperatur bei höheren Dichten erfolgt.

Der DP-Mechanismus wird näher anhand von Abb. 8.6 untersucht, in der die Spinzerfallsraten bei B = 8 T (schwarz), B = 0 T (rot) und deren berechnete Differenz (grün) dargestellt sind für T = 10 K (oben), T = 50 K (mitte) und T = 100 K (unten). Im Hochdichtebereich ($n \ge 10^{11} \text{ cm}^{-2}$), in dem ein entartetes Elektronengas vorliegt, steigt die Spinzerfallsrate mit der Dichte aufgrund des DP-Mechanismus für alle Temperaturen an. Grund hierfür ist die mit der Dichte ansteigende Fermienergie, um die die Spindynamik erfolgt. Die Spinrelaxationsrate des DP-Mechanismus γ_s^{DP} hängt linear von der Fermienergie ab (s. Gl. (2.35)) und resultiert zusammen mit der Impulsstreuung der Elektronen in den gemessenen Zeiten des DP-Mechanismus im Hochdichtebereich (grün dargestellte Raten sind gleich $1/2 \gamma_s^{\text{DP}}$).

Für T = 10 K kann im Bereich der niedrigen und moderaten Dichten nicht von der Differenz der Messungen bei B = 8 T und B = 0 T, d.h. den grün dargestellten Zerfallsraten auf den DP-Mechanismus zurückgeschlossen werden. Grund hierfür ist die Lokalisierung der Ladungsträger im Niedrigdichtebereich, in dem der DP-Mechanismus daher nicht effizient ist [178]. Der Spinzerfall findet hier aufgrund der g-Faktor-Inhomogenität statt, die zu einer Spindephasierung des Spinensembles führt (s. Abschnitt 7.3.4). Mit steigender Dichte treten im Bereich der moderaten Dichten die Eigenschaften der freien Ladungsträger immer weiter in den Vordergrund. Einerseits führt die zunehmende Impulsstreuung zu einer stärkeren Mittelung über den g-Faktor (*motional-narrowing*), was einen Rückgang der Spindephasierungsrate zur Folge hat (s. Abb. 7.12). Andererseits gewinnt der DP-Mechanismus mit der



Abb. 8.6.: Spinzerfallsraten für T = 10 (oben), 50 (mitte) und 100 K (unten). Jeweils in schwarz bei B = 8 T, in rot bei B = 0 T und in grün die Differenz der Spinzerfallsraten mit und ohne Magnetfeld.

Delokalisierung zunehmend an Einfluss. Die in Abb. 8.6 (oben) grün dargestellten Raten entsprechen also $1/2 \gamma_s^{\text{DP}} + \gamma_s^{\text{rest}}$ (s. Gl.(8.4)), wobei γ_s^{rest} der Spindephasierungsrate zugeordnet wird.

Für $T \geq 50\,\mathrm{K}$ und $n \leq 10^{11}~\mathrm{cm}^{-2}$ sind die Ladungsträger delokalisiert und die grün dargestellte Differenz der Zerfallsraten (= $1/2 \gamma_s^{\text{DP}}$) wird alleine durch den DP-Mechanismus für ein nicht-entartetes Elektronengas bestimmt. Nach Dyakonov und Kachorovskii [22] gilt für die DP-Zerfallsrate der Zusammenhang $\gamma_s^{\rm DP} \propto \tau_p^e T$. Eine linear mit der Temperatur ansteigende Zerfallsrate aufgrund des DP-Mechanismus wird im Bereich moderater und niedriger Dichten nicht beobachtet (s. Abb. 8.2.1). Zusätzlich ist $\gamma_s^{\rm DP}$ für $T = 50 \,\mathrm{K}$ dichteunabhängig und fällt bei $T = 100 \,\mathrm{K}$ mit zunehmender Dichte ab. Dieses Verhalten wird auf das komplexe Zusammenspiel verschiedener Impulsstreumechanismen zurückgeführt. Im Bereich niedriger Temperaturen dominiert die Impulsstreuung an Grenzflächenunebenheiten, die wie auch die Streuung an ionisierten Störstellen – mit steigender Temperatur an Bedeutung verliert und stark von der Quantenfilmbreite und der Beschaffenheit der Grenzflächenfluktuationen abhängt [179]. Demgegenüber nimmt die Impulsstreuung mit LO-Phononen mit steigender Temperatur zu (s. Abb. 8.2 links). Zusätzlich gilt nach Glazov und Ivchenko für die Elektron-Elektron-Streurate $\gamma_p^{\rm ee} \propto n/T$ [48]. Die gemessenen Raten $\gamma_s^{\rm DP}$ beiT = 50 und 100 K deuten darauf hin, dass bei $T = 50 \,\mathrm{K}$ die Streuung an Grenzflächenunfluktuationen den dominierenden Beitrag zur Impulsstreuung liefert. Die leichte Abnahme der Impulsstreuung an Grenzflächenunebenheiten mit der Dichte [180] kann über die zunehmende Elektron-Elektron-Streuung kompensiert werden. Bei $T = 100 \,\mathrm{K}$ wird angenommen, dass der Einfluss der Impulsstreuung an Grenzflächenunebenheiten stark abgefallen ist und somit die Impulsstreuung durch die Elektron-Elektron-Streuung dominiert wird, die mit zunehmender Dichte über ein stärkeres motional-narrowing zur Abnahme von $\gamma_s^{\rm DP}$ führt.

8.3. Zusammenfassung

In diesem Kapitel ist die Elektronenspin
relaxationszeit τ^e_s in einem 9 nm (110)-GaAs-Quantenfilm als Nachweis von Exzitonen innerhalb des Elektron-Loch-Plasmas genutzt worden. Dazu wurden temperatur- und dichteabhängige Messungen bei B = 0 T anhand einer effizienten (110)-GaAs-Spininjektionsheterostruktur durchgeführt. Die spezielle Wachstumsrichtung der Struktur ermöglichte die Bestimmung der vom Dyakonov-Perel-Mechanismus unbeeinflussten Elektronenspinrelaxationszeit, die maßgeblich durch die exzitonische Spinrelaxation begrenzt wird. Ein einfaches Modell basierend auf dem Exzitonenanteil innerhalb des Elektron-Loch-Plasmas zeigt gute Übereinstimmung mit den gemessenen Elektronenspinrelaxationszeiten. Damit wird gezeigt, dass die Bestimmung des Exzitonenanteils innerhalb des Elektron-Loch-Plasmas über die Messung von τ_s^e bei einer genauen Kenntnis der Exzitonen
spinrelaxationszeit τ^X_s und Exzitonen
impuls
streuzeit τ^X_p prinzipiell möglich ist. Zusätzlich sind die Messungen im Hochdichtebereich, in dem der Übergang zu einem entarteten Elektronensystem erfolgt, in guter Übereinstimmung mit den theoretischen Vorhersagen von Zhou und Wu basierend auf dem BAP-Mechanismus.

Ferner wurden die Ergebnisse von temperatur- und dichteabhängigen Messungen bei B = 8 T gezeigt, die zusammen mit den Ergebnissen der Messungen bei B = 0 T zur Bestimmung der Dyakonov-Perel-Spinrelaxationsraten genutzt wurden.

Anhang

A. Transformation des Dresselhaus-Feldes

In Abschnitt 2.2.1 wird das effektive Magnetfeld Ω_{BIA} in dem für (110)-Quantenfilme üblichen Kristallachsensystem angegeben. Die Umrechnung von dem in Gl. (2.10) verwendeten Kristallachsensystem Ξ in das Kristallachsensystem Ξ' aus Gl. (2.11)) wird dabei folgendermaßen durchgeführt (Die $\mathbf{e}_{x,y,z}$ bzw. $\mathbf{e}'_{x,y,z}$ sind die Basisvektoren des entsprechenden Koordinatensystems):

$$\underline{\Xi}: \quad \mathbf{e}_{x} \mid\mid [100] \ , \ \mathbf{e}_{y} \mid\mid [010] \ \text{und} \ \mathbf{e}_{z} \mid\mid [001]$$
$$\underline{\Xi}': \quad \mathbf{e}_{x}' \mid\mid [001] \ , \ \mathbf{e}_{y}' \mid\mid [1\overline{1}0] \ \text{und} \ \mathbf{e}_{z}' \mid\mid [110]$$

Wellenvektor in Ξ : $\boldsymbol{k} = k_x \mathbf{e}_x + k_y \mathbf{e}_y + k_z \mathbf{e}_z$ Wellenvektor in Ξ' : $\boldsymbol{k}' = k'_x \mathbf{e}'_x + k'_y \mathbf{e}'_y + k'_z \mathbf{e}'_z$

Transformation der Basisvektoren zwischen Ξ und Ξ' :

$$\mathbf{e}'_{x} = \mathbf{e}_{z} \qquad \mathbf{e}_{x} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\mathbf{e}'_{y} + \mathbf{e}'_{z} \right)$$
$$\mathbf{e}'_{y} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\mathbf{e}_{x} - \mathbf{e}_{y} \right) \qquad \mathbf{e}_{y} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(-\mathbf{e}'_{y} + \mathbf{e}'_{z} \right)$$
$$\mathbf{e}'_{z} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\mathbf{e}_{x} + \mathbf{e}_{y} \right) \qquad \mathbf{e}_{z} = \mathbf{e}'_{x}$$

Umrechnung der Komponenten des Wellenvektors k:

$$k = k'$$

$$= k'_{x}\mathbf{e}'_{x} + k'_{y}\mathbf{e}'_{y} + k'_{z}\mathbf{e}'_{z}$$

$$= k'_{x}\mathbf{e}_{z} + k'_{y}\left(\frac{1}{\sqrt{2}}\left(\mathbf{e}_{x} - \mathbf{e}_{y}\right)\right) + k'_{z}\left(\frac{1}{\sqrt{2}}\left(\mathbf{e}_{x} + \mathbf{e}_{y}\right)\right)$$

$$= \underbrace{\frac{1}{\sqrt{2}}\left(k'_{y} + k'_{z}\right)}_{k_{x}}\mathbf{e}_{x} + \underbrace{\frac{1}{\sqrt{2}}\left(-k'_{y} + k'_{z}\right)}_{k_{y}}\mathbf{e}_{y} + \underbrace{k'_{x}}_{k_{z}}\mathbf{e}_{z}$$

Umrechnung von $\Omega_{x,y,z} = (2 \Gamma_c / \hbar) \kappa_{x,y,z}$:

$$\begin{split} \kappa_{x,y,z} &= k_x (k_y^2 - k_z^2) \, \mathbf{e}_x + k_y (k_z^2 - k_x^2) \, \mathbf{e}_y + k_z (k_x^2 - k_y^2) \, \mathbf{e}_z \\ &= \kappa'_x \, \mathbf{e}_x + \kappa'_y \, \mathbf{e}_y + \kappa'_z \, \mathbf{e}_z \\ &= \kappa'_x \left(\frac{1}{\sqrt{2}} \left(\mathbf{e}'_y + \mathbf{e}'_z \right) \right) + \kappa'_y \left(\frac{1}{\sqrt{2}} \left(-\mathbf{e}'_y + \mathbf{e}'_z \right) \right) + \kappa'_z \, \mathbf{e}'_x \\ &= \kappa'_z \, \mathbf{e}'_x + \frac{1}{\sqrt{2}} (\kappa'_x - \kappa'_y) \, \mathbf{e}'_y + \frac{1}{\sqrt{2}} (\kappa'_x + \kappa'_y) \, \mathbf{e}'_z \\ &= \kappa'_{x'} \, \mathbf{e}'_x + \kappa'_{y'} \, \mathbf{e}'_y + \kappa'_{z'} \, \mathbf{e}'_z \\ &= \kappa'_{x',y',z'} \end{split}$$

mit:

$$\begin{split} \kappa'_{x} &= \frac{1}{\sqrt{2}} (k'_{y} + k'_{z}) \left(\frac{1}{2} (-k'_{y} + k'_{z})^{2} - k'^{2}_{x} \right) \\ \kappa'_{y} &= \frac{1}{\sqrt{2}} (-k'_{y} + k'_{z}) \left(k'^{2}_{x} - \frac{1}{2} (k'_{y} + k'_{z})^{2} \right) \\ \kappa'_{z} &= 2 \, k'_{x} k'_{y} k'_{z} \\ \kappa'_{x',y',z'} &= \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 4 \, k'_{x} k'_{y} k'_{z} \\ -k'_{z} \left(k''_{y} - k'^{2}_{z} + 2 \, k''_{x} \right) \\ k'_{y} \left(k''_{y} - k''_{z} - 2 \, k''_{x} \right) \end{pmatrix} \end{split}$$

B. Impulsstreuraten	
Polar optische Phonon (POP)-Streurate [78]:	
$\frac{1}{\tilde{\tau}_p^{\text{pop}}} \;=\; \frac{e^2 \omega_{\text{LO}} m^{1/2}}{2^{5/2} \pi \hbar (\epsilon_\infty^{-1} - \epsilon^{-1})^{-1} \epsilon_0 E_k^{1/2}} \; \times \; \left(n(\omega_{\text{LO}}) \left[\sqrt{1 + \frac{\hbar \omega_{\text{LO}}}{E_k}} - \frac{\hbar \omega_{\text{LO}}}{E_k} \sinh^{-1} \sqrt{\frac{E_k}{\hbar \omega_{\text{LO}}}} \right] \; + \right.$	
$\{n(\omega_{\mathrm{LO}})+1\}\left[\sqrt{1-rac{\hbar\omega_{\mathrm{LO}}}{E_k}}+rac{\hbar\omega_{\mathrm{LO}}}{E_k}\sinh^{-1}\sqrt{rac{E_k}{\hbar\omega_{\mathrm{LO}}}}-1 ight]_{E_k>\hbar\omega_{\mathrm{LO}}} ight)$	(B.1)
mit der Besetzung der LO-Phononen: $n(\omega_{\rm LO}) = \frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar\omega_{\rm LO}}{k_BT} - 1\right)}$	(B.2)
Streuung an ionisierten Störstellen (Brooks-Herring Ansatz) [78]:	
$\frac{1}{\tilde{\tau}_p^{\rm ii}} \; = \; \frac{e^4 n_{\rm D}}{2^{9/2} \pi \epsilon^2 \epsilon_0^2 m^{1/2} E_k^{3/2}} \; \times \; \left(\ln \left[1 + \frac{8 m \lambda_{\rm D}^2 E_k}{\hbar^2} \right] - \frac{1}{1 + \frac{\hbar^2}{8 m \lambda_{\rm D}^2 E_k}} \right)$	(B.3)
mit dem Debye'schen Abschirmradius: $\lambda_{\rm D}^2 = \frac{\epsilon_0 \epsilon k_B T}{n e^2}$	(B.4)
Deformationspotentialstreuung [181]:	
$rac{1}{ ilde{ au}_{p}} \;=\; rac{C_{1}^{2}k_{B}T(2E_{k}m^{3})^{1/2}}{\pi\hbar^{4}c_{s}^{2} ho}$	(B.5)

157

C. Naturkonstanten

Vakuumlichtgeschwindigkeit	c	=	$299792458 \ {\rm m/s}$
Dielektrizitätskonstante	ϵ_0	=	$8,85419\cdot 10^{-12}{\rm As}\!/{\rm Vm}$
Elementarladung	e	=	$1,60218\cdot 10^{-19}{\rm As}$
freie Elektronenmasse	m_0	=	$9,10938\cdot 10^{-31}\rm kg$
reduzierte Planck-Konstante	ħ	=	$1,05457\cdot 10^{-34}{\rm Js}$
Boltzmann-Konstante	k_B	=	$1,38065\cdot 10^{-23}~{\rm J/k}$
Bohr'sches Magneton	μ_B	=	$9,27401\cdot 10^{-24} \mathrm{J/T}$

Tab. C.1.: Die in dieser	Arbeit verwendeten	Naturkonstanten nach	[182]
	And the verwendeten	Nutur Konstanten nuen	1-021

Schallgeschwingigkeit	$c_{\rm s}$	=	5240 m/s
Dichte	ρ	=	$5,36 \cdot 10^3 \mathrm{kg/m^3}$
Gitterkonstante	a_0	=	$5,642\mathrm{\AA}$
stat. Dielektrizitätskonstante	ε	=	$13,18(1+1,2\cdot 10^{-4} T/K)$
HF-Dielektrizitätskonstante	ϵ_{∞}	=	$10,89(1+9\cdot 10^{-4} T/K)$
Bandlücke	E_g	=	$1,517\mathrm{eV} - rac{5,5\cdot10^{-4}T^2}{T+225\mathrm{K}}\mathrm{eV/K}$
SO-Aufspaltung	$\Delta_{\rm SO}$	=	$0,\!34\mathrm{eV}$
SO-Aufspaltungsparameter	α_c	=	0,063
effektive Masse	m^*	=	$0,067m_0$
LO-Phononenenergie	$\hbar \omega_{\rm LO}$	=	$35,36\mathrm{meV}$
akust. Def.potential LB	C_1	=	$7\mathrm{eV}$

Tab. C.2.: Materialparameter GaAs, entnommen aus [17, 181].

Literaturverzeichnis

- G. E. Uhlenbeck and S. Goudsmit. Ersetzung der Hypothese vom unmechanischen Zwang durch eine Forderung bezüglich des inneren Verhaltens jedes einzelnen Elektrons. *Die Naturwissenschaften*, 13:953, 1925.
- [2] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas. Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices. *Phys. Rev. Lett.*, 61:2472, 1988.
- [3] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, and W. Zinn. Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange. *Phys. Rev. B*, 39:4828, 1989.
- [4] S. A. Wolf, D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. von Molnár, M. L. Roukes, A. Y. Chtchelkanova, and D. M. Treger. Spintronics: A spin-based electronics vision for the future. *Science*, 294:1488, 2001.
- [5] D. D. Awschalom, D. Loss, and N. Samarth, editors. Semiconductor Spintronics and Quantum Computation. Nanoscience and Technology, Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 2002.
- [6] R. Winkler and M. Oestreich. Spinelektronik. *Physik Journal*, 3:39, 2004.

- [7] I. Žutić, J. Fabian, and S. Das Sarma. Spintronics: Fundamentals and applications. *Rev. Mod. Phys.*, 76:323, 2004.
- [8] J. Fabian, A. Matos-Abiague, C. Ertler, P. Stano, and I. Žutić. Semiconductor spintronics. Acta Physica Slovaka, 57:565, 2007.
- [9] M.W. Wu, J.H. Jiang, and M.Q. Weng. Spin dynamics in semiconductors. *Physics Reports*, 493:61, 2010.
- [10] R. Winkler. Spin-Orbit Coupling Effects in Two-Dimensional Electron and Hole Systems. Springer, Berlin, 2003.
- [11] G. Czycholl. Theoretische Festkörperphysik. Vieweg Verlag, Braunschweig, 2000.
- [12] E. O. Kane. Energy band structure in p-type germanium and silicon. J. Phys. Chem. Solids, 1:82, 1956.
- [13] E. O. Kane. Band structure of indium antimonide. J. Phys. Chem. Solids, 1:249, 1957.
- [14] J. Kainz. Theorie der Spinrelaxation und Intersubband-Absorption in Halbleiter-Quantenstrukturen. Dissertation, Universität Regensburg, 2004.
- [15] L. P. Bouckaert, R. Smoluchowski, and E. Wigner. Theory of Brillouin zones and symmetry properties of wave functions in crystals. *Phys. Rev.*, 50:58, 1936.
- [16] S. Adachi. Handbook on Physical Properties of Semiconductors, Volume 2: III-V Compound Semiconductors. Kluwer Academic Publishers, 2004.
- [17] S. Adachi. GaAs and Related Materials. World Scientific, Singapore, 1994.

- [18] G. Dresselhaus. Spin-orbit coupling effects in zinc blende structures. *Phys. Rev.*, 100:580, 1955.
- [19] D. Richards and B. Jusserand. Spin energetics in a GaAs quantum well: Asymmetric spin-flip Raman scattering. *Phys. Rev. B*, 59:R2506, 1999.
- [20] J. Kainz, U. Rössler, and R. Winkler. Anisotropic spin-splitting and spin-relaxation in asymmetric zinc blende semiconductor quantum structures. *Phys. Rev. B*, 68:075322, 2003.
- [21] D. Hägele, S. Döhrmann, J. Rudolph, and M. Oestreich. Electron spin relaxation in semiconductors. Adv. in Solid State Phys., 45:253, 2005.
- [22] M. I. Dyakonov and V. Yu. Kachorovskii. Spin relaxation of twodimensional electrons in noncentrosymmetric semiconductors. Sov. Phys. Semicond., 20:110, 1986.
- [23] J. Kainz, U. Rössler, and R. Winkler. Temperature dependence of Dyakonov-Perel spin relaxation in zinc-blende semiconductor quantum structures. *Phys. Rev. B*, 70:195322, 2004.
- [24] M. E. Flatté, J. M. Byers, and W. H. Lau. Semiconductor Spintronics and Quantum Computation. Springer, Berlin, 2002.
- [25] R. Lassnig. k·p theory, effective-mass approach, and spin splitting for two-dimensional electrons in GaAs-GaAlAs heterostructures. Phys. Rev. B, 31:8076, 1985.
- [26] P. S. Eldridge, J. Hübner, S. Oertel, R. T. Harley, M. Henini, and M. Oestreich. Spin-orbit fields in asymmetric (001)-oriented GaAs/Al_xGa_{1-x}As quantum wells. *Phys. Rev. B*, 83:041301, 2011.

- [27] Y. A. Bychkov and E. I. Rashba. Properties of a 2D electron gas with lifted spectral degeneracy. *JETP Lett.*, 39:78, 1984.
- [28] D. T. Pierce and F. Meier. Photoemission of spin-polarized electrons from GaAs. *Phys. Rev. B*, 13:5484, 1976.
- [29] M. Oestreich, M. Bender, J. Hübner, D. Hägele, W. W. Rühle, T. Hartmann, P. J. Klar, W. Heimbrodt, M. Lampalzer, K. Volz, and W. Stolz. Spin injection, spin transport and spin coherence. *Semicond. Sci. Technol.*, 17:285, 2002.
- [30] S. Pfalz, R. Winkler, T. Nowitzki, D. Reuter, A. D. Wieck, D. Hägele, and M. Oestreich. Optical orientation of electron spins in GaAs quantum wells. *Phys. Rev. B*, 71:165305, 2005.
- [31] A. P. Heberle, W. W. Rühle, and K. Ploog. Quantum beats of electron larmor precession in GaAs wells. *Phys. Rev. Lett.*, 72:3887, 1994.
- [32] W. Hanle. Über magnetische Beeinflussung der Polarisation der Resonanzfluoreszenz. Zeitschrift für Physik, 30:93, 1924.
- [33] R. R. Parsons. Band-to-band optical pumping in solids and polarized photoluminescence. *Phys. Rev. Lett.*, 23:1152, 1969.
- [34] M. Oestreich, S. Hallstein, and W.W. Rühle. Spin quantum beats in semiconductors. *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, 2:747, 1996.
- [35] M. Oestreich and W. W. Rühle. Spinquantenschwebungen in Halbleitern – der Hanle-Effekt zeitaufgelöst. *Physikalische Blätter*, 54:49, 1998.
- [36] M. Oestreich and W. W. Rühle. Temperature dependence of the electron Landé g factor in GaAs. *Phys. Rev. Lett.*, 74:2315, 1995.

- [37] M. Oestreich, S. Hallstein, A. P. Heberle, K. Eberl, E. Bauser, and W. W. Rühle. Temperature and density dependence of the electron Landé g factor in semiconductors. *Phys. Rev. B*, 53:7911, 1996.
- [38] J. Hübner, S. Döhrmann, D. Hägele, and M. Oestreich. Temperaturedependent electron Landé g factor and the interband matrix element of GaAs. *Phys. Rev. B*, 79:193307, 2009.
- [39] T. Amand, X. Marie, P. Le Jeune, M. Brousseau, D. Robart, J. Barrau, and R. Planel. Spin quantum beats of 2D excitons. *Phys. Rev. Lett.*, 78:1355, 1997.
- [40] D. Hägele, J. Hübner, W. W. Rühle, and M. Oestreich. When do excitons really exist? *Physica B: Condensed Matter*, 272:328, 1999.
- [41] D. Hägele, J. Hübner, W. W. Rühle, and M. Oestreich. Coherent dynamics of coupled electron and hole spins in semiconductors. *Solid State Communications*, 120:73, 2001.
- [42] M. H. Levitt. Spin Dynamics. John Wiley & Sons Ltd., Chichester, West Sussex, 2003.
- [43] C. Weisbuch and C. Hermann. Optical detection of conduction-electron spin resonance in GaAs, Ga_{1-x}In_xAs, and Ga_{1-x}Al_xAs. *Phys. Rev. B*, 15:816, 1977.
- [44] M. I. Dyakonov and V. I. Perel. Spin relaxation of conduction electrons in noncentrosymmetric semiconductors. *Sov. Phys. Solid State*, 13:3023, 1972.
- [45] C. P. Slichter. Principles of Magnetic Resonance. Springer, Berlin, 1989.

- [46] G. E. Pikus and A. N. Titkov. Optical Orientation. North-Holland, Amsterdam, 1984.
- [47] M. M. Glazov and E. L. Ivchenko. Precession spin relaxation mechanism caused by frequent electron-electron collisions. *JETP Lett.*, 75:403, 2002.
- [48] M. M. Glazov and E. L. Ivchenko. Effect of electron-electron interaction on spin relaxation of charge carriers in semiconductors. *JETP*, 99:1279, 2004.
- [49] W. J. H. Leyland, G. H. John, R. T. Harley, M. M. Glazov, E. L. Ivchenko, D. A. Ritchie, I. Farrer, A. J. Shields, and M. Henini. Enhanced spin-relaxation time due to electron-electron scattering in semiconductor quantum wells. *Phys. Rev. B*, 75:165309, 2007.
- [50] D. Stich, J. H. Jiang, T. Korn, R. Schulz, D. Schuh, W. Wegscheider, M. W. Wu, and C. Schüller. Detection of large magnetoanisotropy of electron spin dephasing in a high-mobility two-dimensional electron system in a [001] GaAs/Al_xGa_{1-x}As quantum well. *Phys. Rev. B*, 76:073309, 2007.
- [51] P. S. Eldridge, W. J. H. Leyland, P. G. Lagoudakis, O. Z. Karimov, M. Henini, D. Taylor, R. T. Phillips, and R. T. Harley. All-optical measurement of Rashba coefficient in quantum wells. *Phys. Rev. B*, 77:125344, 2008.
- [52] R. Winkler. Spin orientation and spin precession in inversionasymmetric quasi-two-dimensional electron systems. *Phys. Rev. B*, 69:045317, 2004.
- [53] R. T. Harley. Spin Physics in Semiconductors. Springeer, Berlin, 2008.

- [54] G. L. Bir, A. G. Aronov, and G. E. Pikus. Spin relaxation of electrons due to scattering by holes. *JETP*, 42:705, 1976.
- [55] M. Z. Maialle, E. A. de Andrada e Silva, and L. J. Sham. Exciton spin dynamics in quantum wells. *Phys. Rev. B*, 47:15776, 1993.
- [56] J. Fabian and S. Das Sarma. Spin relaxation of conduction electrons. J. Vac. Sci. Technol. B, 17:1708, 1999.
- [57] P. H. Song and K. W. Kim. Spin relaxation of conduction electrons in bulk III-V semiconductors. *Phys. Rev. B*, 66:035207, 2002.
- [58] K. Zerrouati, F. Fabre, G. Bacquet, J. Bandet, J. Frandon, G. Lampel, and D. Paget. Spin-lattice relaxation in p-type gallium arsenide single crystals. *Phys. Rev. B*, 37:1334, 1988.
- [59] J. Zhou and M. W. Wu. Spin relaxation due to the Bir-Aronov-Pikus mechanism in intrinsic and p-type GaAs quantum wells from a fully microscopic approach. *Phys. Rev. B*, 77:075318, 2008.
- [60] M. W. Wu, M. Q. Weng, and J. L. Cheng. Physics, Chemistry and Application of Nanostructures: Reviews and Short Notes to Nanomeeting 2007. World Scientific, Singapore, 2007.
- [61] G. H. Wannier. The structure of electronic excitation levels in insulating crystals. *Phys. Rev.*, 52:191, 1937.
- [62] R. J. Elliott. Intensity of optical absorption by excitons. *Phys. Rev.*, 108:1384, 1957.
- [63] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. A. Gorbunov, A. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. L. Reinecke, S. N. Walck, J. P. Reithmaier, F. Klopf, and F. Schäfer. Fine structure of neutral and

charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots. *Phys. Rev. B*, 65:195315, 2002.

- [64] R. J. Elliott. Theory of the effect of spin-orbit coupling on magnetic resonance in some semiconductors. *Phys. Rev.*, 96:266, 1954.
- [65] Y. Yafet. g Factors and Spin-Lattice Relaxation of Conduction Electrons. Solid State Physics, Advances in Research and Applications, Vol. 14, Academic Press, New York, 1963.
- [66] J. N. Chazalviel. Spin relaxation of conduction electrons in n-type indium antimonide at low temperature. *Phys. Rev. B*, 11:1555, 1975.
- [67] N. S. Averkiev, L. E. Golub, and M. Willander. Spin relaxation anisotropy in two-dimensional semiconductor systems. J. Phys.: Condens. Matter, 14:R271, 2002.
- [68] S. Döhrmann, D. Hägele, J. Rudolph, M. Bichler, D. Schuh, and M. Oestreich. Anomalous spin dephasing in (110) GaAs quantum wells: Anisotropy and intersubband effects. *Phys. Rev. Lett.*, 93:147405, 2004.
- [69] I. A. Merkulov, A. L. Efros, and M. Rosen. Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. B*, 65:205309, 2002.
- [70] A. W. Overhauser. Paramagnetic relaxation in metals. Phys. Rev., 89:689, 1953.
- [71] J. M. Kikkawa and D. D. Awschalom. Resonant spin amplification in n-type GaAs. *Phys. Rev. Lett.*, 80:4313, 1998.
- [72] A. V. Kimel, F. Bentivegna, V. N. Gridnev, V. V. Pavlov, R. V. Pisarev, and T. Rasing. Room-temperature ultrafast carrier and spin dynamics in GaAs probed by the photoinduced magneto-optical Kerr effect. *Phys. Rev. B*, 63:235201, 2001.

- [73] R. I. Dzhioev, K. V. Kavokin, V. L. Korenev, M. V. Lazarev, N. K. Poletaev, B. P. Zakharchenya, E. A. Stinaff, D. Gammon, A. S. Bracker, and M. E. Ware. Suppression of Dyakonov-Perel spin relaxation in high-mobility n-GaAs. *Phys. Rev. Lett.*, 93:216402, 2004.
- [74] R. S. Britton, T. Grevatt, A. Malinowski, R. T. Harley, P. Perozzo, A. R. Cameron, and A. Miller. Room temperature spin relaxation in GaAs/AlGaAs multiple quantum wells. *Appl. Phys. Lett.*, 73:2140, 1998.
- [75] P. E. Hohage, G. Bacher, D. Reuter, and A. D. Wieck. Coherent spin oscillations in bulk GaAs at room temperature. *Appl. Phys. Lett.*, 89:231101, 2006.
- [76] M. Römer, H. Bernien, G. Müller, D. Schuh, J. Hübner, and M. Oestreich. Electron-spin relaxation in bulk GaAs for doping densities close to the metal-to-insulator transition. *Phys. Rev. B*, 81:075216, 2010.
- [77] M. Beck. Electron Spin Relaxation, Transport and Strain-Induced Precession in n-GaAs. Friedrich-Alexander-Universität Erlangen Nürnberg, 2005.
- [78] B. K. Ridley. Quantum Processes in Semiconductors. Oxford University Press, New York, 1988.
- [79] A. Miller, R. J. Manning, P. K. Milsom, D. C. Hutchings, D. W. Crust, and K. Woodbridge. Transient grating studies of excitonic optical nonlinearities in GaAs/AlGaAs multiple-quantum-well structures. J. Opt. Soc. Am. B, 6:567, 1989.
- [80] K. Leo, W. W. Rühle, H. J. Queisser, and K. Ploog. Reduced dimensionality of hot-carrier relaxation in GaAs quantum wells. *Phys. Rev.* B, 37:7121, 1988.

- [81] H. Ma, Z. Jin, L. Wang, and G. Ma. Electron spin relaxation in intrinsic bulk InP semiconductor. J. Appl. Phys., 109:023105, 2011.
- [82] M. T. Portella, J.-Y. Bigot, R. W. Schoenlein, J. E. Cunningham, and C. V. Shank. k-space carrier dynamics in GaAs. *Appl. Phys. Lett.*, 60:2123, 1992.
- [83] G. E. Stillman, C. M. Wolfe, and J. O. Dimmock. Hall coefficient factor for polar mode scattering in n-type GaAs. J. Phys. Chem. Solids, 31:1199, 1970.
- [84] A. Dyson and B. K. Ridley. Spin relaxation in cubic III-V semiconductors via interaction with polar optical phonons. *Phys. Rev. B*, 69:125211, 2004.
- [85] H. B. Callen. Electric breakdown in ionic crystals. Phys. Rev., 76:1394, 1949.
- [86] E. M. Purcell, H. C. Torrey, and R. V. Pound. Resonance absorption by nuclear magnetic moments in a solid. *Phys. Rev.*, 69:37, 1946.
- [87] F. Bloch, W. W. Hansen, and M. Packard. Nuclear induction. Phys. Rev., 69:127, 1946.
- [88] G. Feher. Electron spin resonance experiments on donors in silicon. I. Electronic structure of donors by the electron nuclear double resonance technique. *Phys. Rev.*, 114:1219, 1959.
- [89] A. I. Ekimov and V. I. Safarov. Optical electron-nuclear resonance in semiconductors. *JETP Lett.*, 15:319, 1972.
- [90] V. L. Berkovits, A. I. Ekimov, and V. I. Safarov. Optical orientation in a system of electrons and lattice nuclei in semiconductors. Experiment. *JETP*, 38:169, 1974.

- [91] M. I. Dyakonov and V. I. Perel. Optical orientation in a system of electrons and lattice nuclei in semiconductors. Theory. *JETP*, 38:177, 1974.
- [92] J. M. Kikkawa and D. D. Awschalom. All-optical magnetic resonance in semiconductors. *Science*, 287:473, 2000.
- [93] A. Malinowski and R.T. Harley. Dynamic nuclear Overhauser shifts in Larmor beats from a quantum well. *Solid State Communications*, 114:419, 2000.
- [94] A. Malinowski, M. A. Brand, and R. T. Harley. Nuclear effects in ultrafast quantum-well spin-dynamics. *Physica E*, 10:13, 2001.
- [95] M. I. Dyakonov and V. I. Perel. Optical Orientation. North-Holland, Amsterdam, 1984.
- [96] D. Paget, G. Lampel, B. Sapoval, and V. I. Safarov. Low field electronnuclear spin coupling in gallium arsenide under optical pumping conditions. *Phys. Rev. B*, 15:5780, 1977.
- [97] Y. Yafet. Hyperfine interaction due to orbital magnetic moment of electrons with large g factors. J. Phys. Chem. Solids, 21:99, 1961.
- [98] P. L. Kuhns, A. Kleinhammes, T. Schmiedel, W. G. Moulton, P. Chabrier, S. Sloan, E. Hughes, and C. R. Bowers. Magnetic-field dependence of the optical Overhauser effect in GaAs. *Phys. Rev. B*, 55:7824, 1997.
- [99] M. Seck, M. Potemski, and P. Wyder. High-field spin resonance of weakly bound electrons in GaAs. *Phys. Rev. B*, 56:7422, 1997.

- [100] J. S. Colton, T. A. Kennedy, A. S. Bracker, D. Gammon, and J. B. Miller. Optically oriented and detected electron spin resonance in a lightly doped n-GaAs layer. *Phys. Rev. B*, 67:165315, 2003.
- [101] D. Paget. Optical detection of NMR in high-purity GaAs: Direct study of the relaxation of nuclei close to shallow donors. *Phys. Rev. B*, 25:4444, 1982.
- [102] A. Goto, K. Hashi, T. Shimizu, R. Miyabe, X. Wen, S. Ohki, S. Machida, T. Iijima, and G. Kido. Optical pumping NMR in the compensated semiconductor InP:Fe. *Phys. Rev. B*, 69:075215, 2004.
- [103] A. W. Overhauser. Polarization of nuclei in metals. *Phys. Rev.*, 92:411, 1953.
- [104] G. Lampel. Nuclear dynamic polarization by optical electronic saturation and optical pumping in semiconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 20:491, 1968.
- [105] D. Suter and R. R. Ernst. Spin diffusion in resolved solid-state NMR spectra. Phys. Rev. B, 32:5608, 1985.
- [106] J. Strand, X. Lou, C. Adelmann, B. D. Schultz, A. F. Isakovic, C. J. Palmstrøm, and P. A. Crowell. Electron spin dynamics and hyperfine interactions in Fe/Al_{0.1}Ga_{0.9}As/GaAs spin injection heterostructures. *Phys. Rev. B*, 72:155308, 2005.
- [107] A. Patel, O. Pasquet, J. Bharatam, E. Hughes, and C. Russell Bowers. Optical dynamic nuclear polarization in InP single crystal: Wavelength and field dependence of NMR enhancement. *Phys. Rev. B*, 60:R5105, 1999.
- [108] S. Döhrmann. Spintronik in GaAs und (110)-GaAs-Quantenfilmen. Dissertation, Leibniz Universität Hannover, 2007.

- [109] D. Hägele. Spindynamik in Halbleitern. Verlag Görich & Weiershäuser GmbH, Marburg, 2000.
- [110] F. Kuypers. Klassische Mechanik. Wiley-VCH, Weinheim, 1997.
- [111] E. L. Ivchenko and A. A. Kiselev. Electron g factor of quantum wells and superlattices. Sov. Phys. Semicond., 26:827, 1992.
- [112] V. K. Kalevich and V. L. Korenev. Anisotropy of the electron g-factor in GaAs/AlGaAs quantum wells. JETP Lett., 56:253, 1992.
- [113] P. Le Jeune, D. Robart, X. Marie, T. Amand, M. Brousseau, J. Barrau, V. Kalevich, and D. Rodichev. Anisotropy of the electron Landé g factor in quantum wells. *Semicond. Sci. Technol.*, 12:380, 1997.
- [114] A. Malinowski and R. T. Harley. Anisotropy of the electron g factor in lattice-matched and strained-layer III-V quantum wells. *Phys. Rev. B*, 62:2051, 2000.
- [115] P. Pfeffer and W. Zawadzki. Anisotropy of spin g factor in GaAs/Ga_{1-x}Al_xAs symmetric quantum wells. *Phys. Rev. B*, 74:233303, 2006.
- [116] V. K. Kalevich and V. L. Korenev. Electron g-factor anisotropy in asymmetric GaAs/AlGaAs quantum well. JETP Lett., 57:571, 1993.
- [117] Yu. A. Nefyodov, A. V. Shchepetilnikov, I. V. Kukushkin, W. Dietsche, and S. Schmult. g-factor anisotropy in a $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$ quantum well probed by electron spin resonance. *Phys. Rev. B*, 83:041307, 2011.
- [118] 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.*, 86:2677, 2001.

- [119] 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.
- [120] J. Hübner, S. Kunz, S. Oertel, D. Schuh, M. Pochwała, H. T. Duc, J. Förstner, T. Meier, and M. Oestreich. Electron g-factor anisotropy in symmetric (110)-oriented GaAs quantum wells. *Phys. Rev. B*, 84:041301, 2011.
- [121] P. Pfeffer and W. Zawadzki. Spin and cyclotron energies of electrons in GaAs/Ga_{1-x}Al_xAs quantum wells. *Phys. Rev. B*, 74:115309, 2006.
- [122] R. L. Greene and K.K. Bajaj. Binding energies of wannier excitons in GaAs-Ga_{1-x}Al_xAs quantum well structures. *Solid State Communications*, 45:831, 1983.
- [123] M. G. W. Alexander. Dynamische Untersuchungen zum Tunneleffekt in Halbleiterheterostrukturen. Max-Planck-Institut für Festkörperforschung, Stuttgart, 1991.
- [124] W. Nolting. Grundkurs: Theoretische Physik 5. Quantenmechanik, Teil
 1: Grundlagen. Verlag Zimmermann-Neufang 56766 Ulmen, 1992.
- [125] S. Kunz. Komplexe Spindynamik in (110)-GaAs-Quantenfilmen. Fakultät für Mathematik und Physik, Leibniz Universität Hannover, 2009.
- [126] C. Weisbuch, R. Dingle, A.C. Gossard, and W. Wiegmann. Optical characterization of interface disorder in multi-quantum well structures. *Solid State Communications*, 38:709, 1981.
- [127] P. Y. Yu and M. Cardona. Fundamentals of Semiconductors. Springer, Berlin, 2003.

- [128] F. Yang, M. Wilkinson, E. J. Austin, and K. P. O'Donnell. Origin of the stokes shift: A geometrical model of exciton spectra in 2d semiconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 70:323, 1993.
- [129] Y. P. Varshni. Temperature dependence of the energy gap in semiconductors. *Physica*, 34:149, 1967.
- [130] M. W. Wu and C. Z. Ning. A novel mechanism for spin dephasing due to spin-conserving scatterings. *The European Physical Journal B - Condensed Matter and Complex Systems*, 18:373, 2000.
- [131] M. W. Wu and M. Kuwata-Gonokami. Can D'yakonov-Perel' effect cause spin dephasing in GaAs(110) quantum wells? *Solid State Communications*, 121:509, 2002.
- [132] D. Stich, J. Zhou, T. Korn, R. Schulz, D. Schuh, W. Wegscheider, M. W. Wu, and C. Schüller. Effect of initial spin polarization on spin dephasing and the electron g factor in a high-mobility two-dimensional electron system. *Phys. Rev. Lett.*, 98:176401, 2007.
- [133] H. Soda, K. Iga, C. Kitahara, and Y. Suematsu. GaInAsP/InP surface emitting injection lasers. *Japanese Journal of Applied Physics*, 18:2329, 1979.
- [134] K. Iga, F. Koyama, and S. Kinoshita. Surface emitting semiconductor lasers. *IEEE J. Quantum Electron.*, 24:1845, 1988.
- [135] B. Tell, K. F. Brown-Goebeler, R. E. Leibenguth, F. M. Baez, and Y. H. Lee. Temperature dependence of GaAs-AlGaAs vertical cavity surface emitting lasers. *Appl. Phys. Lett.*, 60:683, 1992.
- [136] K. Iga. Surfaces-emitting lasers its birth and generation of new optoelectronics field. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 6:1201, 2000.

- [137] K. M. Geib, K. D. Choquette, D. K. Serkland, A. A. Allerman, and T. W. Hargett. Fabrication and performance of two-dimensional matrix addressable arrays of integrated vertical-cavity lasers and resonant cavity photodetectors. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 8:943, 2002.
- [138] H. E. Li and K. Iga, editors. Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser Devices. Springer, Berlin, 2003.
- [139] J. Rudolph, D. Hägele, H. M. Gibbs, G. Khitrova, and M. Oestreich. Laser threshold reduction in a spintronic device. *Appl. Phys. Lett.*, 82:4516, 2003.
- [140] J. Rudolph, S. Döhrmann, D. Hägele, M. Oestreich, and W. Stolz. Room-temperature threshold reduction in vertical-cavity surfaceemitting lasers by injection of spin-polarized electrons. *Appl. Phys. Lett.*, 87:241117, 2005.
- [141] H. Gislason, C. B. Sorensen, and J. M. Hvam. (110) oriented GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As quantum wells for optimized T-shaped quantum wires. *Appl. Phys. Lett.*, 69:800, 1996.
- [142] M. Yoshita, N. Kondo, H. Sakaki, M. Baba, and H. Akiyama. Large terrace formation and modulated electronic states in (110) GaAs quantum wells. *Phys. Rev. B*, 63:075305, 2001.
- [143] A. Zrenner, L. V. Butov, M. Hagn, G. Abstreiter, G. Böhm, and G. Weimann. Quantum dots formed by interface fluctuations in AlAs/GaAs coupled quantum well structures. *Phys. Rev. Lett.*, 72:3382, 1994.
- [144] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer, and D. Park. Fine structure splitting in the optical spectra of single GaAs quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 76:3005, 1996.

- [145] A. V. Filinov, C. Riva, F. M. Peeters, Yu. E. Lozovik, and M. Bonitz. Influence of well-width fluctuations on the binding energy of excitons, charged excitons, and biexcitons in GaAs -based quantum wells. *Phys. Rev. B*, 70:035323, 2004.
- [146] L. Viña, S. Logothetidis, and M. Cardona. Temperature dependence of the dielectric function of germanium. *Phys. Rev. B*, 30:1979, 1984.
- [147] P. Lautenschlager, M. Garriga, S. Logothetidis, and M. Cardona. Interband critical points of GaAs and their temperature dependence. *Phys. Rev. B*, 35:9174, 1987.
- [148] G. Bastard, C. Delalande, M. H. Meynadier, P. M. Frijlink, and M. Voos. Low-temperature exciton trapping on interface defects in semiconductor quantum wells. *Phys. Rev. B*, 29:7042, 1984.
- [149] E. Runge and R. Zimmermann. Optical properties of localized excitons in nanostructures: Theoretical aspects. In Advances in Solid State Physics, volume 38, page 251.
- [150] A. S. Bracker, E. A. Stinaff, D. Gammon, M. E. Ware, J. G. Tischler, A. Shabaev, Al. L. Efros, D. Park, D. Gershoni, V. L. Korenev, and I. A. Merkulov. Optical pumping of the electronic and nuclear spin of single charge-tunable quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 94:047402, 2005.
- [151] A. S. Bracker, E. A. Stinaff, D. Gammon, M. E. Ware, J. G. Tischler, D. Park, D. Gershoni, A. V. Filinov, M. Bonitz, F. Peeters, and C. Riva. Binding energies of positive and negative trions: From quantum wells to quantum dots. *Phys. Rev. B*, 72:035332, 2005.
- [152] G. Eytan, Y. Yayon, M. Rappaport, H. Shtrikman, and I. Bar-Joseph. Near-field spectroscopy of a gated electron gas: A direct evidence for electron localization. *Phys. Rev. Lett.*, 81:1666, 1998.

- [153] J. Shah. Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures. Springer-Verlag Berlin, 1999.
- [154] T. C. Damen, J. Shah, D. Y. Oberli, D. S. Chemla, J. E. Cunningham, and J. M. Kuo. Dynamics of exciton formation and relaxation in GaAs quantum wells. *Phys. Rev. B*, 42:7434, 1990.
- [155] Ph. Roussignol, C. Delalande, A. Vinattieri, L. Carraresi, and M. Colocci. Dynamics of exciton relaxation in GaAs/Al_xGa_{1-x}As quantum wells. *Phys. Rev. B*, 45:6965, 1992.
- [156] J. A. Gupta, D. D. Awschalom, X. Peng, and A. P. Alivisatos. Spin coherence in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. B*, 59:R10421, 1999.
- [157] A. Greilich, D. R. Yakovlev, A. Shabaev, Al. L. Efros, I. A. Yugova, R. Oulton, V. Stavarache, D. Reuter, A. Wieck, and M. Bayer. Mode locking of electron spin coherences in singly charged quantum dots. *Science*, 313:341, 2006.
- [158] M. Trif, P. Simon, and D. Loss. Relaxation of hole spins in quantum dots via two-phonon processes. *Phys. Rev. Lett.*, 103:106601, 2009.
- [159] B. Eble, C. Testelin, P. Desfonds, F. Bernardot, A. Balocchi, T. Amand, A. Miard, A. Lemaître, X. Marie, and M. Chamarro. Hole-nuclear spin interaction in quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 102:146601, 2009.
- [160] P.-F. Braun, X. Marie, L. Lombez, B. Urbaszek, T. Amand, P. Renucci, V. K. Kalevich, K. V. Kavokin, O. Krebs, P. Voisin, and Y. Masumoto. Direct observation of the electron spin relaxation induced by nuclei in quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 94:116601, 2005.
- [161] S. V. Gupalov, E. L. Ivchenko, and A. V. Kavokin. Fine structure of localized exciton levels in quantum wells. *JETP*, 86:388, 1998.

- [162] M. Z. Maialle. Spin dynamics of localized excitons in semiconductor quantum wells in an applied magnetic field. *Phys. Rev. B*, 61:10877, 2000.
- [163] Y. Ohno, R. Terauchi, T. Adachi, F. Matsukura, and H. Ohno. Spin relaxation in GaAs(110) quantum wells. *Phys. Rev. Lett.*, 83:4196, 1999.
- [164] S. W. Koch, M. Kira, G. Khitrova, and H. M. Gibbs. Semiconductor excitons in new light. *Nature Materials*, 5:523, 2006.
- [165] R. A. Kaindl, M. A. Carnahan, D. Hägele, R. Lövenich, and D. S. Chemla. Ultrafast terahertz probes of transient conducting and insulating phases in an electron-hole gas. *Nature*, 423:734, 2003.
- [166] L. Lombez, D. Lagarde, P. Renucci, T. Amand, X. Marie, B. L. Liu, W. X. Wang, Q. K. Xue, and D. M. Chen. Optical spin orientation in (110) GaAs quantum wells at room temperature. *Physica Status Solidi* (C), 4:475, 2007.
- [167] H. W. Yoon, D. R. Wake, and J. P. Wolfe. Effect of exciton-carrier thermodynamics on the GaAs quantum well photoluminescence. *Phys. Rev. B*, 54:2763, 1996.
- [168] G. M. Müller, M. Römer, D. Schuh, W. Wegscheider, J. Hübner, and M. Oestreich. Spin noise spectroscopy in GaAs (110) quantum wells: Access to intrinsic spin lifetimes and equilibrium electron dynamics. *Phys. Rev. Lett.*, 101:206601, 2008.
- [169] W. H. Knox, R. L. Fork, M. C. Downer, D. A. B. Miller, D. S. Chemla, C. V. Shank, A. C. Gossard, and W. Wiegmann. Femtosecond dynamics of resonantly excited excitons in room-temperature GaAs quantum wells. *Phys. Rev. Lett.*, 54:1306, 1985.

- [170] S. Bar-Ad and I. Bar-Joseph. Exciton spin dynamics in GaAs heterostructures. *Phys. Rev. Lett.*, 68:349, 1992.
- [171] A. Malinowski, R. S. Britton, T. Grevatt, R. T. Harley, D. A. Ritchie, and M. Y. Simmons. Spin relaxation in GaAs/Al_xGa_{1-x}As quantum wells. *Phys. Rev. B*, 62:13034, 2000.
- [172] G. Noll, U. Siegner, S. G. Shevel, and E. O. Göbel. Picosecond stimulated photon echo due to intrinsic excitations in semiconductor mixed crystals. *Phys. Rev. Lett.*, 64:792, 1990.
- [173] J. Szczytko, L. Kappei, J. Berney, F. Morier-Genoud, M. T. Portella-Oberli, and B. Deveaud. Determination of the exciton formation in quantum wells from time-resolved interband luminescence. *Phys. Rev. Lett.*, 93:137401, 2004.
- [174] J. Feldmann, G. Peter, E. O. Göbel, P. Dawson, K. Moore, C. Foxon, and R. J. Elliott. Linewidth dependence of radiative exciton lifetimes in quantum wells. *Phys. Rev. Lett.*, 59:2337, 1987.
- [175] T. C. Damen, L. Via, J. E. Cunningham, J. Shah, and L. J. Sham. Subpicosecond spin relaxation dynamics of excitons and free carriers in GaAs quantum wells. *Phys. Rev. Lett.*, 67:3432, 1991.
- [176] R. A. Kaindl, D. Hägele, M. A. Carnahan, and D. S. Chemla. Transient terahertz spectroscopy of excitons and unbound carriers in quasi-twodimensional electron-hole gases. *Phys. Rev. B*, 79:045320, 2009.
- [177] M. Z. Maialle and M. H. Degani. Transverse magnetic field effects upon the exciton exchange interaction in quantum wells. *Semicond. Sci. Technol.*, 16:982, 2001.
- [178] A. V. Khaetskii and Y. V. Nazarov. Spin relaxation in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. B*, 61:12639, 2000.

- [179] H. Sakaki, T. Noda, K. Hirakawa, M. Tanaka, and T. Matsusue. Interface roughness scattering in GaAs/AlAs quantum wells. *Appl. Phys. Lett.*, 51:1934, 1987.
- [180] U. Bockelmann, G. Abstreiter, G. Weimann, and W. Schlapp. Singleparticle and transport scattering times in narrow GaAs/Al_xGa_{1-x}As quantum wells. *Phys. Rev. B*, 41:7864, 1990.
- [181] M. Lundstrom. Modular series on solid state devices. Fundamentals of carrier transport, Addison-Wesley, 1990.
- [182] P. J. Mohr and B. N. Taylor. CODATA recommended values of the fundamental physical constants: 2002. *Rev. Mod. Phys.*, 77:1, 2005.
Veröffentlichungen

- S. OERTEL, J. HÜBNER, and M. OESTREICH.: High temperature electron spin relaxation in bulk GaAs, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 132112 (2008).
- P. S. ELDRIDGE, J. HÜBNER, S. OERTEL, R. T. HARLEY, M. HENI-NI, and M. OESTREICH.: Spin-orbit fields in asymmetric (001)-oriented GaAs/Al_xGa_{1-x}As quantum wells, *Phys. Rev. B* 83, 041301(R) (2011).
- J. HÜBNER, S. KUNZ, S. OERTEL, D. SCHUH, M. POCHWAŁA, H. T. DUC, J. FÖRSTNER, T. MEIER, and M. OESTREICH.: Electron g-factor anisotropy in symmetric (110)-oriented GaAs quantum wells, *Phys. Rev. B* 84, 041301(R) (2011).
- S. OERTEL, S. KUNZ, D. SCHUH, W. WEGSCHEIDER, J. HÜBNER, and M. OESTREICH.: Electron spin relaxation as tracer of excitons in a twodimensional electron-hole plasma inside a (110)-GaAs quantum well, *Europhys. Lett.* 96, 67010 (2011).
- S. DÖHRMANN, S. OERTEL, D. HÄGELE, J. HÜBNER, and M. OE-STREICH.: Detailed time resolved optical studies on the electron Landé g factor and nuclear spin dynamics in GaAs, *in preparation*.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei all denjenigen bedanken, die mich während der letzten Jahre unterstützt haben und zu dieser Arbeit beigetragen haben. Mein Dank gilt insbesondere:

Prof. Dr. Michael Oestreich für die Möglichkeit, in seiner Arbeitsgruppe und unter seiner Betreuung diese Arbeit anfertigen zu können, für die freundliche Unterstützung und die vielen guten Ideen und Anregungen.

Prof. Dr. Rolf J. Haug für die freundliche Übernahme des Korreferats und die gute Zusammenarbeit mit seiner Arbeitsgruppe.

Dr. Jens Hübner für die gute Zusammenarbeit und die vielen guten Ideen, insbesondere für die Unterstützung im Labor.

Allen jetzigen und früheren Nanos und Femtos für die angenehme und freundschaftliche Atmosphäre. Besonderer Dank an meine ehemaligen und jetzigen Mitdoktoranden Dr. Stefan Pfalz, Dr. Stefanie Döhrmann, Dr. Michael Römer, Dr. Georg Müller, Hauke Horn, Fabian Berski und Hendrik Kuhn. Auch an die früheren und zukünftigen Post-Docs Dr. Peter Eldridge und Dave English.

Yvonne Griep und Klara Wernecke für die freundliche Unterstützung rund um Verwaltung und Infrastruktur. Ronny Hüther für die kompetente Hilfe bei technischen Angelegenheiten. Der Werkstatt, das heißt vor allem Hartmut Lehmann und Manfred Marquardt für die Mitgestaltung und Umsetzung technischer Konstruktionen.

Meiner Familie, die mich während des Studiums in jeglicher hinsicht unterstützt hat.

Lebenslauf

Name	Oertel
Vorname	Stefan
Geburtsdatum	8. Februar 1978
Geburtsort	Duisburg
Juni 1997	Abitur am Max-Planck-Gymnasium Duisburg
Sept. 1997 - Sept. 1998	Zivildienst
Okt. 1998 - Sept. 2001	Studium der Elektrotechnik an der
	Universität Dortmund
Sept. 2000	Vordiplom Elektrotechnik
Okt. 2000 - April 2006	Physikstudium an der Universität Dortmund
Sept. 2002	Vordiplom Physik
April 2005 - April 2006	Diplomarbeit bei Prof. Dr. D. Suter:
	Quanten Computing mit einem
	dipolar gekoppelten 2-Spin-System
April 2006	Diplom Physik
seit Sept. 2006	Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für
	Festkörperphysik, Abteilung Nanostrukturen,
	Universität Hannover