

Elektronen- und Kernspinrauschen in n -Galliumarsenid

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. Fabian Berski

geboren am 29. Dezember 1982, in Hannover

2016

Referent: Prof. Dr. Michael Oestreich
Korreferent: Prof. Dr. Rolf J. Haug
Tag der Promotion: 18.12.2015

Kurzzusammenfassung

In dieser Arbeit wird sowohl die Elektronen- als auch die Kernspindynamik in n -Galliumarsenid untersucht. Dazu wird die Halbleiterspinrauschspektroskopie eingesetzt, welche die inhärent vorhandenen, statistischen Eigenschaften des Systems zur Informationsgewinnung nutzt und die Faraday-Rotationsfluktuation misst.

Die Elektronenspindynamik eines Ensembles aus Donatorelektronen in hochqualitativem Galliumarsenid wird präsentiert. Die durchgeführten Messungen decken einen Zeitbereich der Spindynamik von sechs Größenordnungen ab, welcher sich von einigen Millisekunden bis hinunter zu wenigen Nanosekunden erstreckt. Die am Übergang des donatorgebundenen Exzitons gemessenen Spinrauschspektren zeigen eindeutig die facettenreiche gegenseitige Beeinflussung des Elektronen- und Kernspinsystems, welche in allen III-V Halbleitermaterialien erwartet werden kann. Die durchgeführten Experimente enthüllen die endliche Overhauser-Verschiebung der Elektronenspinpräzession, wenn kein externes Magnetfeld angelegt ist. Auch die Dynamik des Elektronenspinanteils parallel zur Kernspinfluktuation wird beobachtet. Zusätzlich zeigen die Messungen den Einfluss optischer und thermischer Anregung auf die Spindynamik des verdünnten Elektronenspin-Systems. Ein Modell, welches auf einer endlichen Korrelationszeit beruht, wird angewandt, um diesen Einfluss auf die Form des Spinrauschspektrums, auf die Spinrauschleistungen und auf die Spinkohärenzzeiten zu quantifizieren.

Weiterhin wird im Bereich geringer Frequenzen $\nu < 65$ kHz des Faraday-Rotationsspektrums Kernspinrauschen beobachtet. Diese unerwartete Beobachtung kann durch ein Modell mitunter quantitativ erklärt werden. Kernspininduzierte Fluktuationen der donatorgebundenen Exzitonresonanz übertragen sich auf die Polarisation des resonanten Laserlichts. Eine komplexe Magnetfeldabhängigkeit der Kernspinresonanzen wird präsentiert. Die Kernspinrauschspektroskopie bietet einen einzigartigen Zugang zur Spindynamik im thermischen Gleichgewicht bei externen Magnetfeldern, welche im Bereich lokaler Felder liegen. Sie verspricht eine Reihe von Anwendungsmöglichkeiten, wie zum Beispiel hochsensitive, räumlich aufgelöste Kernspinresonanz-Spektroskopie.

Überdies wird die magneto-optische Antwort von stark n -dotiertem Vo-

lumen-Galliumarsenid im Bereich der Bandkante untersucht. Durch Analyse der Polarisation des transmittierten Laserlichts wird gezeigt, dass der Halbleiter bei $B \neq 0$ linear doppelbrechend ist. Dies führt auch bei senkrechtem Einfall und linearer Eingangspolarisation zu zirkularen Komponenten in der Probe. Dieser zirkulare Anteil regt nach den üblichen Auswahlregeln eine Spinpolarisation im Leitungsband an. Dieser Mechanismus weist auf die Ursache der in Referenz K. Schmalbruch, S. Göbbels, et al., Phys. Rev. Lett. **105**, 246603 (2010) beobachteten, ungeklärten Spinpolarisation hin. Im Bereich $B \gtrsim 4,5$ T werden Oszillationen aufgrund von Landau-Quantisierung der Elektronen-Orbits gefunden. Die Oszillationen werden genutzt, um wichtige halbleiterphysikalische Grundgrößen von Galliumarsenid optisch zu bestimmen.

Die ultraschnelle Spinrauschspektroskopie wird entwickelt und auf hoch n -dotiertes Volumen-Galliumarsenid angewandt. Zur Erhöhung der experimentellen Bandbreite wird bei dieser neuen Messmethode die Kurzzeit-Laserspektroskopie mit der Spinrauschspektroskopie kombiniert. In einem Demonstrationsexperiment werden Larmor-Frequenzen von $\nu_l = 25$ GHz und Spinkohärenz-Zeiten von $\tau_s = 225$ ps im Spinrauschen gemessen. Diese Werte liegen deutlich außerhalb des bisher zugänglichen Messbereichs. Bei der Untersuchung der Spindynamik werden Hinweise auf einen bislang unberücksichtigten Spindephasierungsmechanismus gefunden, welcher auf der unausweichlichen Fluktuation der Dotierung im Gitter beruht.

Schlagworte:

Laser-Spektroskopie, Halbleiter, Spindynamik

Abstract

In this thesis, the electron and nuclear spin-system in *n*-Gallium Arsenide is investigated by semiconductor spin-noise spectroscopy. This method utilizes the ever-present statistical properties to gain unobstructed information about the underlying spin-dynamics via Faraday-rotation measurements.

The electron spin-dynamics of an ensemble of donor-bound electrons in ultrapure GaAs:Si are presented. The measurements cover the temporal dynamics over six orders of magnitude from milliseconds to nanoseconds. The spin noise spectra detected at the donor-bound exciton transition show the multifaceted dynamical regime of the ubiquitous mutual electron and nuclear spin interaction typical for III-V based semiconductor systems. The experiment distinctly reveals the finite Overhauser-shift of an electron spin precession at zero external magnetic field and a second contribution around zero frequency stemming from the electron spin components parallel to the nuclear spin fluctuations. The measurements demonstrate the influence of optical and thermal excitation on the fragile spin dynamics of the diluted donor electron system. A model based on a finite correlation time is applied to describe the effect on spin noise spectrum, on detected spin noise powers and on measured spin coherence times. In the limit of low probing power and low temperatures, the interplay of the electron and nuclear spin system is demonstrated experimentally.

Moreover, at low frequencies $\nu < 65$ kHz well-resolved nuclear spin noise is observed in the Faraday-rotation noise spectrum. These observations are in agreement with a model of nuclear spin noise. The nuclear dynamics are mapped on the polarization of the resonantly tuned laser-light by fluctuations of the donor bound exciton resonance. An intricate magnetic field dependence of the nuclear resonances is presented. The nuclear spin noise technique gives an inimitable access to the spin dynamics at thermal equilibrium and very low external magnetic fields and promises a variety of applications, i.e., for highly sensitive spatially resolved nuclear magnetic resonance.

The magneto-optical properties of highly *n*-doped, bulk Gallium Arsenide is studied in the spectral region of the band-gap. A linear birefringence at $B \neq 0$ is found by analyzing the transmitted laser-light polarizati-

on. This birefringence leads for linearly polarized input light at normal incidence to circular components in the material, which excite a spin polarization due to well-known optical selection rules. This mechanism suggests a possible explanation of the observed spin polarization in reference: K. Schmalbruch, S. Göbbels, et al., Phys. Rev. Lett. **105**, 246603 (2010). Additionally, distinct oscillations in the ellipticity of the transmitted light-polarization are observed and explained by Landau-quantization of electron orbits.

Ultrafast spin noise spectroscopy is developed and applied on well-studied, highly n -doped, bulk Gallium Arsenide. This new technique combines ultrafast laser-spectroscopy and spin noise spectroscopy to increase the state-of-the-art detection bandwidth. In a proof-of-principle experiment, Larmor-frequencies up to 25 GHz and spin coherence times down to 225 ps are demonstrated. These values have been unaccessed so far by all optical spin noise spectroscopy. The application on the metallic electron system suggests the presence of a formerly disregarded spin dephasing mechanism, which is based on the inevitable present fluctuations of the doping density.

Keywords:

laser-spectroscopy, semiconductor, spin-dynamics

| | | |
|----------|--|-----------|
| 1 | Einleitung | 15 |
| 2 | Elektron- und Kernspinrauschen in <i>n</i>-Galliumarsenid | 21 |
| 2.1 | Donatorgebundene Elektronenspins und Exzitonen | 21 |
| 2.2 | Elektronenspin-Dephasierung im Merkulov-Efros-Rosen Modell | 25 |
| 2.3 | Endliche Korrelationszeit | 29 |
| 2.4 | Lokalisierungsgrad | 33 |
| 2.5 | Spinrauschen donatorgebundener Elektronen | 38 |
| 2.5.1 | Experimenteller Aufbau | 38 |
| 2.5.2 | Datenaufnahme und Auswertung | 41 |
| 2.5.3 | Probe und Prozessierung | 44 |
| 2.5.4 | Elektronenspindynamik | 47 |
| 2.5.5 | Einfluss der Temperatur | 54 |
| 2.6 | Kernspinrauschen | 59 |
| 2.6.1 | Beobachtung einer stochastischen Kernspinpolarisation | 59 |
| 2.6.2 | Faraday-Fluktuation durch Kernspinrauschen | 70 |

| | | |
|----------|---|------------|
| 2.7 | Zusammenfassung | 74 |
| 3 | Magneto-Optik in GaAs | 77 |
| 3.1 | Magnetfeldinduzierte lineare Doppelbrechung | 78 |
| 3.2 | Landau-Quantisierung | 80 |
| 3.3 | Experimenteller Aufbau | 82 |
| 3.4 | Magneto-optische Antwort von GaAs | 86 |
| 3.5 | Zusammenfassung | 91 |
| 4 | Ultraschnelle Spinrauschspektroskopie: Stochastische g-Faktor-Fluktuationen in GaAs | 93 |
| 4.1 | Ultraschnelle Spinrauschspektroskopie | 94 |
| 4.2 | Experimentelle Umsetzung | 96 |
| 4.2.1 | Pulsparquelle | 96 |
| 4.2.2 | Kryostat und Strahlengang | 98 |
| 4.2.3 | Detektion | 98 |
| 4.2.4 | Mess-Sequenz und Untergrundkorrektur | 100 |
| 4.2.5 | Pulsabstandskalibrierung | 102 |
| 4.3 | Spindynamik in stark n -dotiertem Galliumarsenid | 104 |
| 4.4 | Zusammenfassung | 112 |
| 5 | Zusammenfassung | 115 |
| | Literaturverzeichnis | 131 |
| | Abbildungsverzeichnis | 133 |
| | Tabellenverzeichnis | 135 |
| | Betreute Arbeiten | 137 |
| A | Anhang | 139 |
| A.1 | Donatorgebundene Elektronen | 139 |
| A.1.1 | Probenprozessierung | 139 |
| A.1.2 | Probendatenblatt | 141 |
| A.2 | Stokes Polarimeter | 143 |

| | |
|--|-----|
| A.3 Spinrauschspektroskopie in paramagnetischem Gallium-Mangan-Arsenid | 144 |
| A.3.1 Experiment | 144 |

| | |
|--------------------------|------------|
| Publikationsliste | 149 |
|--------------------------|------------|

Symbol- und Abkürzungsverzeichnis

Konstanten:

| | |
|--------------|--------------------------------|
| \hbar | Reduzierte Planck-Konstante |
| g_0 | Freier Elektronen- g -Faktor |
| k_b | Boltzmann-Konstante |
| m_0 | Freie Elektronenmasse |
| q | Elementarladung |
| ϵ_0 | Elektrische Feldkonstante |
| μ_0 | Magnetische Feldkonstante |
| μ_b | Bohrsches Magneton |
| μ_n | Kernmagneton |

Symbole:

| | |
|----------|--|
| A | Spinrauschleistung |
| $A(\nu)$ | Spektrale Charakteristik der Detektion |
| a^* | Effektiver Bohr-Radius |
| B_a | Signalmagnetfeld |
| B_b | Untergrundmagnetfeld |

| | |
|------------------|---|
| B_k | Knight-Feld |
| B_n | Overhauser-Feld |
| E | Energie |
| e | Elliptizität |
| E_f | Fermi-Energie |
| E_g | Bandlücke |
| $E_z(B)$ | Magnetfeldabhängige Zeeman-Aufspaltung |
| g_e | Effektiver Elektronen- g -Faktor |
| \mathbf{H} | Hamilton-Operator |
| \mathbf{I} | Kernspin |
| \mathbf{J} | Drehimpuls |
| k | Lichtwellenvektor |
| k_f | Fermi-Wellenvektor |
| M | Magnetisierung |
| m_e | Effektive Elektronenmasse |
| n_{ex} | Effektive Anregungsdichte |
| N_d | Dotierungsdichte |
| N_c | Effektive Leitungsbandzustandsdichte |
| P_{in} | In die Probe eintretende, optische Leistung |
| Q | Voigt-Parameter |
| \mathbf{S} | Elektronenspin |
| S_i | Stokes-Parameter |
| $S_\lambda(\nu)$ | Laser-Rauschspektrum |
| T | Temperatur |
| T_d | Dingle-Temperatur |
| V | Volumen |
| \tilde{V} | Verdet-Konstante |
| w_0 | Strahl-Taille |
| α | Absorptionskoeffizient |
| Γ | Optische Dämpfung des Donatorübergangs |
| γ_e | Korrelationsrate |
| γ_n | Gyromagnetisches Verhältnis |
| δB_n | Fluktuation des Overhauser-Felds |
| Δ | Verbreiterung der donatorgebundenen Exzitonresonanz |
| $\Delta_{n,1}$ | Kernspininduzierte Aufspaltung der |

| | |
|------------------------|---|
| | exzitonischen Donator-Resonanz |
| $\bar{\epsilon}$ | Dielektrischer Tensor |
| ϵ_{bg} | Statische Dielektrizität des Halbleiterhintergrunds |
| η | Quadratischer Koeffizient |
| ϑ_f | Faraday-Rotation |
| κ | Verhältnis zwischen Kernspin- und Elektronenspinrauschleistung |
| λ | Wellenlänge |
| ν | Frequenz im Spinrauschspektrum |
| σ | Standardabweichung |
| τ_c | Korrelationszeit |
| τ_n | Overhauser-Zeit |
| τ_k | Knight-Zeit |
| τ_p | Impuls-Streuzeit |
| τ_s | Spinkohärenz-Zeit |
| ψ | Winkel zwischen Eingangspolarisation und Magnetfeld |
| ω | Lichtkreisfrequenz |
| $\bar{\omega}_0$ | Exzitonresonanz des donatorgebundenen Elektronenensembles |

Kapitel 1

Einleitung

Der Spin als rein quantenmechanischer Drehimpuls ist eine fundamentale Eigenschaft, ohne klassisches Pendant. Seine Existenz wurde als erstes für das Elektron postuliert[1] und ist heutzutage selbstverständlich. Der Vorschlag, Spinzustände für eine zukünftige Quanteninformationsverarbeitung zu nutzen[2, 3], erscheint zum jetzigen Zeitpunkt sogar realistischer, denn je.[4] Neben der Kohärenz-Zeit eines Spinzustands ist hierfür auch ein tiefgreifendes Verständnis der Wechselwirkungsmechanismen von zentraler Bedeutung.

In Halbleitern sind verschiedenste Wechselwirkungen bekannt, welche die Kohärenz-Zeit eines Spinzustands beeinflussen.[5] Zum Beispiel führt für Leitungsbandelektronen in Galliumarsenid die fehlende Inversionssymmetrie des Gitters zu einem internen, impulsabhängigen Magnetfeld, welches die Spindephasierung durch den Dyakonov-Perel Mechanismus verursacht. Dieser Zusammenhang zwischen räumlicher Symmetrie und Spindephasierung kann in speziell gewachsenen Quantenfilmen ausgenutzt werden, sodass die Spinkomponente in Wachstumsrichtung deutlich längere Spinkohärenz-Zeiten zeigt.[6, 7] Die Spinkohärenz hängt somit sensibel vom räumlichen Freiheitsgrad des Elektronenzustands ab.

Die Dotierung von Halbleitern ist für den Siegeszug der Halbleitertechnologie ein Schlüsselprozess, da die elektronischen, optischen und magnetischen Eigenschaften über einen weiten Bereich gesteuert werden können. Bei der Herstellung ist bereits ein Reinheitsgrad erreicht, der es ermöglicht, den nahezu idealen Kristall mit einzelnen Atomen zu dotieren, welche lokalisierte Elektronen bereitstellen.[8] Diese Donatorelektronen haben für die Quanteninformationsverarbeitung großes Potenzial: Ihr Spin stellt ein Zweizustandssystem dar, mit dem ein Quantum-Bit realisiert wird.

Lokalisierte Elektronenspins in der Klasse der III-V Halbleitermaterialien dephasieren hauptsächlich durch die Hyperfeinwechselwirkung mit den Kernspins, da die Kernspinfluktuation des Gitters nur unvollständig vom Elektron gemittelt wird. Ein effektives magnetisches Feld entsteht im Lokalisierungsvolumen und führt zur ersten Komponente der Elektronenspindephasierung. Die zweite Komponente wird durch die lokale Kopplung zwischen Kernspin und Elektronenspin verursacht, wodurch die Kernbad-Dynamik auf die des Elektronenspins rückwirkt. Beide Prozesse sind eng verflochten und im sogenannten „Central Spin Problem“ [9–11] zusammengefasst. Auch in Festkörpern mit geringerer Kernspindichte spielt die Hyperfeinwechselwirkung die Hauptrolle für die Kohärenz eines Quantenzustands.[12–14]

Im ersten Teil dieser Arbeit wird ein Ensemble aus Donatorelektronen in schwach dotiertem n -Galliumarsenid untersucht. Bei der vorliegenden Dotierung kommen auf ein Dotieratom etwa 10^9 Atome des Gitters. Diese geringste Dotierung des nahezu idealen Kristalls erzeugt diskrete Zustände, welche durch lokalisierte, nicht wechselwirkende Elektronen bei kryogenen Temperaturen besetzt sind. Der Kristall gilt als hochrein und bietet im Gegensatz zum Beispiel zu Silizium [15] den Vorteil der direkten Bandlücke. Die Kopplung der Elektronenzustände an Licht ist folglich groß, sodass die Spinzustände der Donatorelektronen mit optischen Methoden vergleichsweise einfach untersucht werden können. Diese optische Adressierbarkeit ist auch von Bedeutung für eine potentielle Licht-Materie-Schnittstelle, welche zur Quantenkommunikation genutzt werden kann.[16, 17] Weiterhin bietet das untersuchte System aufgrund des fast perfekten Gitters den Vorteil, nur wenig durch lokale Verspannungen modifiziert zu sein. Hierdurch kann eine isotrope, wohldefinierte Hyperfeinwechselwir-

kung erwartet werden. Die Untersuchung von donatorgebundenen Elektronenspins in n -Galliumarsenid erlaubt daher Rückschlüsse mit einem großen Gültigkeitsbereich, welcher auch zum Verständnis der Spindynamik in anderen Systemen beitragen kann.

Die optische Messung der Donatorelektronenspindynamik ist äußerst anspruchsvoll. Pumpabfragemethoden oder der Hanle-Effekt benötigen notwendigerweise eine optische Anregung von freien Ladungsträgern und führen zu einer komplexen Vermischung der Spindynamik gebundener und freier Ladungsträger. Durch die in dieser Arbeit zur Untersuchung eingesetzte Spinrauschspektroskopie wird diese Komplikation vermieden, da sie die Spindynamik aus den statistischen Fluktuationen des Systems bestimmt. Die Spinrauschspektroskopie nutzt hierzu die grundlegenden Zusammenhänge des Fluktuations-Dissipationstheorems [18] und ist das ideale Werkzeug, um präzise Rückschlüsse auf die intrinsische Spindynamik im thermodynamischen Gleichgewicht des stark verdünnten Elektronen-Ensembles zu gewinnen.

Auf langen Zeitskalen führen auch die internen Wechselwirkungen im Kernspinbad zur Dekohärenz des Zentralspins. Insbesondere im Bereich lokaler Magnetfelder ist dieser Einfluss nicht vollständig verstanden.[9] Die Bestimmung der Kernspindynamik ist folglich auch eine Facette zur Lösung des Zentralspinproblems. In dieser Arbeit wird erstmalig die direkte optische Messung der Kernspindynamik im thermodynamischen Gleichgewicht mittels Spinrauschspektroskopie im Bereich lokaler Magnetfelder präsentiert. Die Kernspinrauschspektroskopie benötigt dazu keine Anwendung von Mikrowellen oder starken Magnetfeldern, wie zum Beispiel bei der optisch detektierten Kernspinresonanz-Spektroskopie.[19] Das durchgeführte Experiment dient als Grundlage für die simultane Untersuchung der Dynamik des Zentralspins und des Kernspinbads. Dadurch kann ein quantitativer Vergleich zwischen Theorie und Experiment im Rahmen des „Central Spin Problem“ erreicht werden.

Neben dem Verständnis der Spindynamik setzt die optische Kontrolle und Manipulation einer Spinpolarisation auch das Verständnis der Mechanismen voraus, welche zur Erzeugung einer Spinpolarisation führen. Hierbei vermitteln die optischen Auswahlregeln den Zusammenhang zwischen der Lichtpolarisation und der induzierten Spinpolarisation.[20] Darüber

hinaus wird in dieser Arbeit die magneto-optische Antwort von hoch n -dotiertem Galliumarsenid auf linearpolarisiertes Licht im Magnetfeld untersucht. Die Messungen stehen im Zusammenhang mit bisher ungeklärten Beobachtungen aus Referenz [21], wo eine Spinpolarisation bei Anregung mit linearpolarisiertem Licht gemessen wurde. Entgegen der dortigen Aussage wird in dieser Arbeit gezeigt, dass der Voigt-Effekt zu zirkularen Komponenten in der Probe führt und einen Hinweis auf den bisher ungeklärten Anregungsmechanismus darstellt. Zusätzlich werden in der Polarisation des transmittierten Laserlichts magnetfeldabhängige Oszillationen beobachtet, welche auf Landau-Quantisierung zurückgeführt werden und die Bestimmung wichtiger halbleiterphysikalischer Größen erlauben.

Im zweiten Teil dieser Arbeit wird erstmalig die Spinrauschspektroskopie in den Zeitbereich einiger Hundert Pikosekunden erweitert. Dabei werden unter anderem Larmor-Frequenzen einiger Dutzend Gigahertz gemessen. Dieser Bereich war bisher nicht zugänglich, da die detektierbare Rauschbandbreite durch die opto-elektronische Geschwindigkeit der hochsensitiven Detektionselektronik gegeben ist. Diese ist auf etwa ≈ 1 GHz limitiert. Die naheliegende Kombination aus Ultrakurzzeit-Laserspektroskopie und Spinrauschspektroskopie vereint die Vorteile beider Messmethoden zur ultraschnellen Spinrauschspektroskopie.[22] Im aufgebauten Experiment wird gepulstes Licht zweier synchronisierter Laser-Resonatoren eingesetzt und die Spinkorrelation als Funktion des zeitlichen Pulsabstands gemessen.[23] Zur experimentellen Demonstration wird die neue Messmethode auf hochdotiertes n -Galliumarsenid angewandt. Dabei werden Hinweise auf einen bisher unberücksichtigten Spindephasierungsmechanismus gefunden, welcher auf der unvermeidbaren Fluktuation einer idealen Dotierung zusammen mit einer unvollständigen lokalen Mittelung der Leitungsbandelektronen beruht. Die allgemeinen Grundannahmen des einfachen Modells lassen eine Gültigkeit in allen hochdotierten Elektronensystemen für die Spindephasierung im Magnetfeld erwarten.

Diese Arbeit ist wie folgt gegliedert: In **Kapitel 2** werden die Untersuchungen an einem stark verdünnten Donatorelektronenspin-Ensemble in n -Galliumarsenid dargestellt. Sie zeigen die mannigfaltigen Dekohärenzprozesse, die durch die gegenseitige Wechselwirkung zwischen Donatorspin und Kernspinbad verursacht sind und demonstrieren erstmalig die endli-

che Overhauser-Verschiebung ohne externes Magnetfeld, die Rückwirkung der Kernspindynamik auf die Dynamik der Elektronenspins und den Einfluß einer endlichen Korrelationszeit auf das Spinrauschspektrum. Weiterhin wird in diesem Kapitel die erstmalige direkte optische Messung der Dynamik einer stochastischen Kernspinpolarisation in Halbleitern mittels Spinrauschspektroskopie präsentiert. In **Kapitel 3** wird die magneto-optische Antwort von n -GaAs im Magnetfeld untersucht. Schon für eine moderat große, optische Anregung kann gezeigt werden, dass der Voigt-Effekt einen Beitrag zur magneto-optischen Antwort von GaAs ist und daher im Gegensatz zur Aussage in Referenz [21] nicht a priori ausgeschlossen werden kann. Zusätzlich werden in diesem Kapitel wichtige halbleiterphysikalische Grundgrößen aus dem Polarisationszustand des transmittierten Laserlichts bestimmt. In **Kapitel 4** werden aktuelle spektroskopische Methoden mit grundlegender Halbleiterphysik kombiniert und die erste experimentelle Realisierung der ultraschnellen Spinrauschspektroskopie präsentiert. Die Methode wird auf hochdotiertes n -GaAs angewandt, wo eine unerwartete g -Faktor Fluktuation beobachtet wird. Diese Fluktuation kann mit einem neuen Spindephasierungsmechanismus in Zusammenhang stehen, welche eine intrinsische Halbleitereigenschaft im metallischen Regime ist.

In diesem Kapitel werden die Untersuchungen an einem Ensemble aus donatorgebundenen Elektronen in hochreinem GaAs vorgestellt. Dabei wird die zeitliche Dynamik der lokalisierten Elektronenspins mittels Spinrauschspektroskopie auf der Skala mehrerer Millisekunden bis hinunter zu wenigen Nanosekunden experimentell bestimmt. Die am Übergang des donatorgebundenen Exzitons durchgeführten optischen Messungen zeigen die facettenreiche Dynamik der beiderseitigen Wechselwirkung des Elektronen- und Kernspinsystems, welche für lokalisierte Zustände in der gesamten Klasse der III-V Halbleitermaterialien erwartet werden kann.

2.1 Donatorgebundene Elektronenspins und Exzitonen

Silizium wirkt in GaAs als einfacher Donator, wenn das Silizium-Atom beim Kristallwachstum einen Gallium-Gitterplatz besetzt.[24] Durch die Dotierung werden zusätzliche Zustände in der Bandlücke von GaAs nahe der Leitungsbandkante erzeugt.[25] Die Zustände des Donatorelektrons sind zwar aus den Bloch-Zuständen des Leitungsbands aufgebaut, die ge-

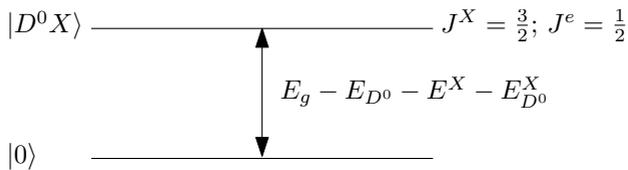


Abbildung 2.1: Energiediagramm des Übergangs zwischen Grundzustand $|0\rangle$ des Halbleiters und donatorgebundenem Exziton $|D^0 X\rangle$, welcher zur optischen Abfrage des Elektronenspinzustands genutzt wird. Hier kennzeichnet E_g die Bandlücke, E_{D^0} die Donatorelektron-Bindungsenergie, E^X die Bindungsenergie zwischen Loch und Elektron im freien Exziton und $E_{D^0}^X$ dessen Bindungsenergie an den neutralen Donator. Zusätzlich ist der Gesamtdrehimpuls des Exzitons J^X und des Donatorelektrons J^e angegeben.

nauen elektronischen Eigenschaften werden jedoch durch das Potenzial festgelegt, welches vom Atomrumpf der Störstelle erzeugt wird. Dieses kann außerhalb der Elementarzelle, in der der Störstellenrumpf lokalisiert ist, durch das langreichweitige Coulomb-Potenzial

$$U(r) \sim \frac{1}{\epsilon \cdot r} \quad (2.1)$$

approximiert werden. Darin ist $\epsilon = 13,44 \times \epsilon_0$ die statische Dielektrizitätskonstante von GaAs.[26] Gleichung 2.1 macht deutlich, dass eine Wirkung des Halbleiters auf die elektronische Umgebung der Störstelle als Renormierung des Abstandes r zwischen Kern und Elektron interpretiert werden kann.

Die zugehörige Schrödinger-Gleichung besitzt die gleiche Form wie die eines Wasserstoffatoms, welche für $E < E_{D^0}$ ein diskretes Lösungsspektrum aufweist. Die Bindungsenergie E_{D^0} eines Elektrons an die Störstelle beträgt $E_{D^0} = 5,8 \text{ meV}$ [25] und definiert die Energieskala des Problems. Aufgrund dieser vergleichsweise geringen Bindungsenergie kann das diskrete Energiespektrum nur bei kryogenen Temperaturen im Bereich des flüssigen Heliums beobachtet werden.

Bei Absorption eines Photons werden im Halbleiter freie Exzitonen erzeugt, in denen Elektron und Loch mit einer Energie $E^X = 4,2 \text{ meV}$ [27] gebunden sind. Für solch ein Exziton ist auch ein neutraler Si-Donator ein attraktives Zentrum, sodass ein Komplex aus Donator-Elektron, Exziton-Elektron, Exziton-Loch und positiver Hintergrundladung der Störstelle erzeugt wird. Dieser Komplex ist dem H_2 -Molekül analog.[28] Es existieren folglich bindende und antibindende Zustände, wobei im bindenden Zustand die Abstoßung zwischen Loch und Atomrumpf verringert ist, da die Elektronendichte dazwischen erhöht ist.[29] Demgemäß ist der Grundzustand des Komplexes bindend und die Elektronenspins sind antiparallel ausgerichtet. Der Drehimpulszustand des donatorgebundenen Exzitons wird daher durch den Lochspin definiert. Der vorliegende Donatorspin bestimmt demnach den Drehimpulszustand des bindenden Exzitons. Der Übergang des donatorgebundenen Exzitons kann somit genutzt werden, um den Spinzustand des donatorgebundenen Elektrons optisch abzufragen und ist schematisch in Abbildung 2.1 skizziert.

Abbildung 2.2 zeigt das gemessene Absorptionsspektrum der untersuchten, hochreinen GaAs-Probe im Bereich der direkten Bandkante bei einer Temperatur von $T = 4,2 \text{ K}$. Bei einer Energie von $E = 1,5142 \text{ eV}$ ist deutlich der mit $150 \mu\text{eV}$ inhomogen verbreiterte Übergang des donatorgebundenen Exzitons zu erkennen, welcher zur Abfrage des Spinzustands des donatorgebundenen Elektrons genutzt wird. Abbildung 2.2 zeigt außerdem weitere optische Übergänge, welche in Referenz [30] diskutiert werden.

Der Grundzustand des donatorgebundenen Elektrons besitzt einen Bahndrehimpuls $L = 0$. Daher ist der Gesamtdrehimpuls $J = 1/2$ und der zugehörige Zustandsraum des Elektronenspins zweidimensional. Weiterhin ist das Elektron eingebettet in das kubisch flächenzentrierte Gitter aus den Isotopen ^{69}Ga , ^{71}Ga und ^{65}As , welche einen Kernspin von $I = 3/2$ tragen. Tabelle 2.1 fasst die zugehörigen Größen zusammen.

Der Elektronenspin koppelt durch Hyperfeinwechselwirkung an die magnetischen Momente des umgebenden Gitters. Diese Kopplung hat weitreichende Konsequenzen sowohl für die Spindynamik des Kernbads als auch für die des Elektronenspins selbst. Das System ist stark asymmetrisch: Der Elektronenspin ist in einem Volumen V_{1s} lokalisiert, welches durch

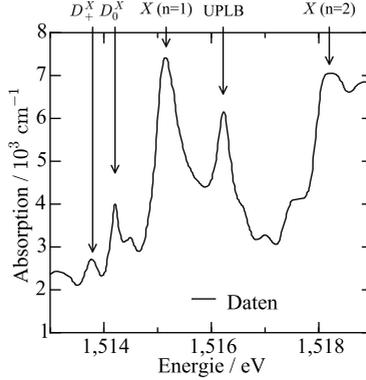


Abbildung 2.2: Gemessenes Absorptionsspektrum bei $T = 4,2\text{K}$ und $P_{\text{in}} \approx 650\text{ nW}$. Bei $E = \hbar\omega_0 = 1,5142\text{ eV}$ ist der Übergang des donator-gebundenen Exzitons zu erkennen, welcher zur Abfrage der Donatorspindynamik genutzt wird. Zusätzlich ist der Übergang des Exzitons gebunden am ionisierten Donator (D_+^X), des freien Exzitons im Grundzustand ($X(n = 1)$), sowie des angeregten Exzitons ($X(n = 2)$) markiert. UPLB kennzeichnet den oberen Polaritonenzweig.

den effektiven Bohr-Radius a^* gegeben ist:

$$\sqrt[3]{V_{1s}} \approx a^* = \frac{4\pi\epsilon\hbar^2}{m_e q^2} = 10,6\text{ nm}. \quad (2.2)$$

Darin ist $m_e = 0,067 \times m_0$ [33] die effektive Masse am Γ Punkt eines Leitungsbandelektrons. Der Bohr-Radius ist insbesondere deutlich größer als die Gitterkonstante von GaAs, die $a = 0,56\text{ nm}$ [34] beträgt. Innerhalb eines Donatorvolumens befindet sich folglich ein paramagnetisches Spinensemble aus etwa 10^5 bis 10^6 Kernen unterschiedlicher magnetischer Momente. Insofern wechselwirkt ein einzelner Elektronenspin mit einer großen Anzahl an Kernen, ein einzelner Kernspin jedoch nur mit einem einzelnen Elektronenspin. Dieses viel diskutierte Problem ist in der Literatur

| Isotop | $g\mu_n / \text{kHz mT}^{-1}$ | rel. Häufigkeit |
|------------------|-------------------------------|-----------------|
| ^{69}Ga | 10,24776 | 30,05 % |
| ^{71}Ga | 13,02076 | 19,95 % |
| ^{75}As | 7,315047 | 50 % |

Tabelle 2.1: Zusammenfassung der drei stabilen Isotope im GaAs-Kristall, zugehörige magnetische Momente [31] und deren relative Häufigkeit.[32].

als „Central Spin Problem“ bekannt.[9–11] Es ist sowohl für grundlegende als auch für angewandte Fragestellungen von herausragender theoretischer und experimenteller Bedeutung, da dessen Lösung tief an der Wurzel von Statistik und Quantenmechanik zu finden ist.

2.2 Elektronenspin-Dephasierung im Merkulov-Efros-Rosen Modell

Das Donatorelektron besitzt aufgrund des s -Charakters der Grundzustandswellenfunktion eine am Kern nicht verschwindende Aufenthaltswahrscheinlichkeit. Wie im vorangegangenen Abschnitt abgeschätzt, ist die Wellenfunktion über etwa 10^5 Kerne ausgedehnt und das gekoppelte System aus Elektronenspin-Ensemble und Kernspinensemble derart groß, dass eine mikroskopische Beschreibung der individuellen Zustände des Kernspinsystems einschließlich der Wechselwirkung untereinander und mit dem Elektronenspin nicht realisierbar ist. Folglich ist zur Beschreibung der Spindynamik beider Systeme der Rückgriff auf ein vereinfachendes Modell notwendig.

Die Kopplung zwischen Elektronenspin \mathbf{S} und Kernspin \mathbf{I} wird allgemein durch den Hamilton-Operator

$$\mathbf{H} = 2\mu_b\gamma_n\hbar\mathbf{I} \left[-\frac{\mathbf{S}}{r^3} + \frac{3\mathbf{r}(\mathbf{S}\cdot\mathbf{r})}{r^5} + \frac{8\pi\mathbf{S}}{3}\delta(\mathbf{r}) \right] \quad (2.3)$$

beschrieben. Darin ist μ_b das Bohrsche Magneton und $\gamma_n = I_n/\mu_n$ das gyromagnetische Verhältnis. Dieser Operator kann aus klassischen Überlegungen abgeleitet werden [35] und besteht aus drei Beiträgen, von denen

die ersten zwei die übliche Dipol-Dipol Wechselwirkung darstellen und hier gegen den dritten Term vernachlässigt werden.¹ Der dritte Term ist die Fermi-Kontakt Wechselwirkung. Wird der Erwartungswert von \mathbf{H} über den Bahnanteil im Elektronenzustand $\Psi(\mathbf{r})$ gebildet, bleibt [37]

$$\mathbf{H} = \frac{2}{3} \mu_0 g_0 \mu_b \gamma_n \hbar \mathbf{I} \cdot \mathbf{S} |\Psi(0)|^2. \quad (2.4)$$

Darin ist g_0 der freie Elektronen g -Faktor. Sind mehrere Kerne vorhanden, welche mit dem gleichen Elektron wechselwirken, so kann die Wechselwirkung des Elektronenspins mit diesem Kernspinbad durch [38]

$$B_n = \frac{v_0}{g_e \mu_b} \left\langle \sum_j A_j |\Psi(\mathbf{r}_j)|^2 \mathbf{I}_j \right\rangle \quad (2.5a)$$

$$A_j = \frac{16\pi}{3} \mu_b \gamma_j |u_c(\mathbf{r}_j)|^2 \quad (2.5b)$$

beschrieben werden. Darin ist v_0 das Volumen der primitiven Einheitszelle und $u_c(\mathbf{r}_j)$ der Wert der gitterperiodischen Leitungsband Bloch-Funktion am Ort des Kerns j im Zustand $k = 0$. Das Feld B_n wird als Overhauser-Feld bezeichnet.[39] Die Präzession des Elektronenspins in diesem Hyperfeinfeld der Kerne wird umso schneller, je größer die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Elektrons am Kern ist und je größer das nukleare magnetische Moment ist.

Die Summe in Gl. 2.5 läuft über alle Kerne der primitiven Einheitszelle. Der Erwartungswert wird über das Ensemble aus Kernspins gebildet und ist nicht trivial. Für den vereinfachten Fall einer gleichmäßigen Polarisation aller Kerne lässt sich Gleichung 2.5 unter Berücksichtigung der relativen Häufigkeit der verschiedenen Isotope im Gitter sowie der unterschiedlichen elektronischen Dichten abschätzen[25]:

$$g_e \mu_b B_n^{\max} = 132 \mu\text{eV}. \quad (2.6)$$

Für lokalisierte Elektronen in GaAs mit $g_e = 0,46$ entspricht diese Overhauser-Verschiebung einem maximalen, internen Magnetfeld von $B_n^{\max} \approx 5,3 \text{ T}$.

¹Diese Beträge sind beispielsweise für p-artige Löcher dominant, wie in Referenz [36] beobachtet.

Andererseits ist die Wechselwirkung 2.4 reziprok, d. h. auch der Elektronenspin erzeugt ein effektives Magnetfeld, in welchem die Kerne präzidieren. Dieses Feld wird Knight-Feld genannt und wird durch

$$B_k(\mathbf{r}) = -\frac{2\mu_0}{3}g_0\mu_b \sum_q \mathbf{S}_q |\Psi_q(\mathbf{r})|^2 \quad (2.7)$$

beschrieben. Hier wird über alle mit Elektronen besetzten Zustände q summiert. Gleichung 2.7 beschreibt den Wert des effektiven Elektronenfeldes, in welchem ein Kernmoment am Ort \mathbf{r} präzidiert und verdeutlicht, dass alle Kerne im Gebiet des Donatorelektrons mit dem gleichen Elektron wechselwirken, wobei aufgrund dessen ortsabhängiger Aufenthaltswahrscheinlichkeit die Stärke dieser Wechselwirkung jedoch von Gitterplatz zu Gitterplatz variiert. Bei maximaler Kopplung, d. h. im Zentrum des Elektrons ist $B_k^{\max} = B_k(0)$ [31]:

$$B_k^{\max}({}^{69}\text{Ga}) = 13 \text{ mT} = 55 \text{ neV}/\mu_{69}, \quad (2.8a)$$

$$B_k^{\max}({}^{71}\text{Ga}) = 13 \text{ mT} = 70 \text{ neV}/\mu_{71}, \quad (2.8b)$$

$$B_k^{\max}({}^{75}\text{As}) = 22 \text{ mT} = 66 \text{ neV}/\mu_{75}. \quad (2.8c)$$

Die Abschätzung 2.8 demonstriert, dass die elektronenspin-induzierte maximale Aufspaltung der Kernzustände um mehr als drei Größenordnungen kleiner ist als die kernbadinduzierte Elektronenspin-Aufspaltung.

Neben dem Mittel der Felder ist auch die Fluktuation

$$\delta B_{n,k} = \sqrt{\langle B_{n,k}^2 \rangle - \langle B_{n,k} \rangle^2} \quad (2.9)$$

eine wichtige Größe und Ursache für den Spinrelaxationsmechanismus durch Hyperfeinwechselwirkung, welcher für lokalisierte Zustände in schwach n -dotiertem GaAs dominiert.[38, 40] Für ein lokalisiertes Elektron, welches mit $N_l = 1 \times 10^6$ Kernen wechselwirkt, beträgt

$$\delta B_n = B_n^{\max} / \sqrt{N_l} \approx 130 \text{ neV}/\mu_e \quad (2.10)$$

und entspricht einer Overhauser-Feldfluktuation von etwa 5 mT. Für Zeiten kleiner als die Präzessionsperioden der Kerne im Knight-Feld des Elektrons ist das Overhauser-Feld quasistatisch (vgl. frozen fluctuations

[38]). Der Elektronenspin an einem Donator wechselwirkt folglich mit einer festen Kernspinkonfiguration. Auf dieser Zeitskala lässt sich das vorliegende Problem auf die Präzession des Elektronenspins im instantanen Overhauser-Feld der Kerne reduzieren. Jede transversale Komponente eines stochastisch orientierten Elektronenspins präzidiert demnach mit einer endlichen Larmor-Frequenz, welche mit der Overhauser-Feldvariation von Donator zu Donator inhomogen im Ensemble verteilt ist. Dadurch zerfällt der Spin des Elektronensembles.

Für ein Ensemble aus unabhängigen Elektronenspins, welche an unterschiedliche, lokale Kernbäder koppeln, wird diesem Prozess die charakterisierende Zeit

$$\tau_n = \frac{\hbar}{g_e \mu_b \delta B_n} \quad (2.11)$$

zugeordnet und im Folgenden als Overhauser-Zeit bezeichnet.

Auf der anderen Seite ist die longitudinale Komponente des Elektronenspins auf dieser kurzen Zeitskala erhalten. Aufgrund der aus Sicht des Kernspinsystems schnellen Präzession des Elektronenspins, wirkt auf das Kernspinsystem nur das zeitliche Mittel des Elektronen-Knight-Feldes, in welchem ein einzelner Kernspin präzidiert. Durch diese Präzession ändert sich die Konfiguration des Kernspinensembles im Gebiet des Elektrons, da das Knight-Feld nach Gleichung 2.7 ortsabhängig ist. Dies bewirkt eine Richtungsänderung von B_n , welcher der Elektronenspin folgt. Folglich wird die Zeitskala der Reorientierung der Kernspinkonfiguration durch die Verteilung der Kopplungskonstanten im Aufenthaltsvolumen des Elektrons definiert. Die zugeordnete Zeit wird hier als Knight-Zeit bezeichnet

und ist durch

$$\tau_k^{-1} = \mu_b g_e \hbar^{-1} \cdot \sqrt{\langle a^2 \rangle - \langle a \rangle^2}, \quad (2.12a)$$

$$\langle a \rangle = 1/N_l \sum_j^{N_l} a_j = A/\mu_b g_e N_l, \quad (2.12b)$$

$$A = \sum_j A_j, \quad (2.12c)$$

$$\langle a^2 \rangle = \frac{\delta B_n^2}{\Delta_I^2}, \quad (2.12d)$$

$$\Delta_I^2 = 2 N_l I(I+1)/3 \quad (2.12e)$$

gegeben. Merkulov et al. geben für lokalisierte Elektronen in GaAs einen Wert von $\tau_k = 300$ ns [38] an.

2.3 Endliche Korrelationszeit

Die zwei diskutierten Zeitskalen der Elektronenspindephasierung können nur beobachtet werden, wenn die durch die Umgebung verursachte Korrelationszeit τ_c groß ist, d. h. wenn gilt

$$\tau_c \gg \tau_k, \tau_n. \quad (2.13)$$

Die Wirkung einer endlichen Korrelationszeit wird im Folgenden auf Basis der Arbeit von Pines und Schlichter näher ausgeführt.[41] Die Überlegungen der Autoren behandeln die beobachtete Linienbreite T_2^{-1} in Magnetresonanz-Experimenten, wenn das zu untersuchende System unter dem Einfluss einer sich ändernden Umgebung steht. Das charakteristische Zeitintervall, auf welchem die Umgebung konstant ist, ist dabei die Korrelationszeit τ_c . Folglich ist nicht nur die Zeitskala der Spindephasierung $1/\delta\omega = T_2$ im isolierten System relevant, sondern auch τ_c .

Die Wechselwirkung des Systems mit seiner Umgebung wird als ein „Random Walk“ der Phase ϕ der Spinpräzession mit Schrittweite $\pm\delta\omega \cdot \tau_c$

aufgefasst. Nach \hat{n} solcher Schritte ist die Varianz dieses Prozesses im Zeitintervall $t = \hat{n}\tau_c$ durch

$$\langle \Delta\phi^2 \rangle = \hat{n}\delta\phi^2 = \frac{t}{\tau_c}\delta\phi^2 = t\tau_c\delta\omega^2 \quad (2.14)$$

gegeben. Die Zeit t , für welche $\langle \Delta\phi^2 \rangle = 1$ gilt, wird als T_2 [41] definiert:

$$\frac{1}{T_2} = \langle \delta\omega^2 \rangle \tau_c. \quad (2.15)$$

Demnach führt eine häufige umgebungsinduzierte Änderung am System (τ_c klein) zur Beobachtung einer *verringerten* Linienbreite. Für den entgegengesetzten Fall, dass keine Änderung durch die Umgebung am System stattfindet, ist $\tau_c = T_2$, sodass als Linienbreite

$$1/T_2 = \langle \delta\omega \rangle \quad (2.16)$$

beobachtet wird. Man erkennt, dass in diesem Fall $1/T_2$ unabhängig von τ_c ist und allein durch die Wechselwirkung im isolierten System bestimmt ist.

Die Korrelationszeit kann durch verschiedene Prozesse verursacht werden und wird hier beispielhaft durch eine endliche Aufenthaltsdauer des Donatorelektrons am Lokalisierungszentrum modelliert, welche z. B. durch Hopping verursacht sein kann.² Dabei wird auf Referenz [43] aufgebaut. In Folge eines Platzwechsels wird die Spinorientierung eines Elektrons reinitialisiert, da die effektiven Overhauser-Felder Ω_i verschiedener Lokalisierungszentren i unkorreliert sind. Hierbei sind zwei Grenzfälle möglich: Zum einen kann die Präzessionsperiode des Elektrons $\tau_n = \delta_e^{-1}$ im stochastischen Overhauser-Feld B_n größer als τ_c sein, sodass beide Zeitskalen unabhängig voneinander beobachtet werden können. Zum anderen kann der Fall eintreten, dass der Elektronenspin keine Umdrehung vollendet, sodass dynamisches Mitteln beide Zeitskalen vermischt.

²Auch die Spinaustauschstreuung mit freien Elektronen (siehe Abschnitt 2.4) oder mit freien Exzitonen [42] hat eine zufällige Reorientierung des Donatorspins zur Folge.

Die stochastische Bewegung des quasiklassischen Elektronenspins S_i folgt den Bloch-Gleichungen

$$\frac{dS_i}{dt} = \Omega_i \times S_i + \sum_j [W_{ij}S_j - W_{ji}S_i] - \nu_s S_i. \quad (2.17)$$

Hierin ist Ω_i das quasistatische Kernfeld am Gitterplatz i und W_{ij} die Hopping-Rate von i nach j . Der Term $\nu_s S_i$ wird eingeführt, um weitere Prozesse zu modellieren, welche nicht durch Hyperfeinwechselwirkung und Hopping verursacht sind. Zur Vereinfachung wird $W_{ij} = W = \tau_c^{-1}$ angenommen, d. h. alle Korrelationszeiten sind für jeden Gitterplatz gleich. Die Anwendbarkeit von Gleichung 2.17 setzt voraus, dass das Ensemble stark verdünnt ist und jedem Elektron ein freier Platz als Ziel zur Verfügung steht. Weiterhin wird die quasistatische Änderung von Ω_i auf der Zeitskala τ_k vernachlässigt, sodass das Modell gültig ist für $\tau_c > \tau_k$.³ Zusätzlich werden mögliche Effekte durch Spin-Orbit- und Austauschwechselwirkung vernachlässigt.[43]

Die Lösung von Gleichung 2.17 liefert das Spinrauschspektrum

$$(S_z^2)_\omega = \frac{\tau_\omega}{4} \frac{A(\tau_\omega)}{1 - W_0 \tau_\omega A(\tau_\omega)} + c.c. \quad (2.18a)$$

$$\tau_\omega^{-1} = \nu_s + W + i \omega \quad (2.18b)$$

$$A(\tau_\omega) = \frac{1}{3} + \frac{4}{3(\delta_e \tau_\omega)^2} - \frac{4\sqrt{\pi} e^{1/\delta_e^2 \tau_\omega^2}}{3(\delta_e \tau_\omega)^3} \operatorname{erfc}(1/\delta_e \tau_\omega). \quad (2.18c)$$

Hierin ist $\operatorname{erfc}(y) = 1 - 2/\sqrt{\pi} \int_0^y dx \exp(-x^2)$ die komplementäre Fehlerfunktion und $c.c.$ bezeichnet das komplex Konjugierte. Zur Ableitung von Gleichung 2.18c wurde der Limes $N \rightarrow \infty$ ausgeführt und eine isotrope, gaußförmige Verteilung der Kernfelder Ω_i vorausgesetzt. Man erkennt, dass das Mitteln über stochastisch verteilte, quasistatische Magnetfelder zu einem Spinrauschspektrum führt, welches weder Gauß- noch Lorentzförmig ist, sondern eine deutlich komplexere Gestalt aufweist.

Gleichung 2.18 beschreibt das Spinrauschspektrum für beliebige Werte von $\delta_e \tau_c$ und hängt von der speziellen Form der Verteilung der Kernfelder

³Der Term $\nu_s S_i$ führt jedoch zu einen $\nu = 0$ -Beitrag im Spektrum.

Ω_i ab. Die nach Gleichung 2.18a berechneten Spektren sind in Abbildung 2.3 dargestellt. Für lange Korrelationszeiten sind die beiden in Abschnitt 2.2 beschriebenen Zeitskalen der longitudinalen und transversalen Komponente deutlich zu erkennen. Für kleiner werdende Korrelationszeiten verlässt das Elektron einen gegebenen Gitterplatz i und die zu Ω_i parallele Komponente beginnt am neuen Platz im Feld der Kernspinfuktuation Ω_j zu präzidieren und trägt damit nicht mehr zur longitudinalen Komponente bei. Dadurch werden beide Beiträge vermischt und ein gemeinsamer Beitrag wird beobachtet.

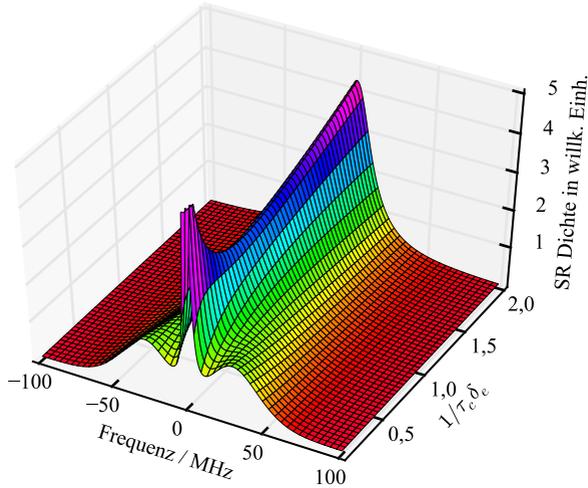


Abbildung 2.3: Nach Gleichung 2.18 berechnete Spinrauschspektren für $\delta_e = 30$ MHz und $\nu_s = 1 \times 10^{-4}$ MHz. Für lange Korrelationszeiten $\tau_c \delta_e \gg 1$, d. h. wenig Umgebungseinfluss, ist deutlich die Doppelpeakstruktur durch Hyperfeinwechselwirkung zu erkennen. Für $\delta_e \tau_c \ll 1$ führt dynamisches Mitteln über verschiedene Lokalisierungszentren zur Mischung beider Beiträge.

2.4 Lokalisierungsgrad

Die Grundzustandsenergie eines donatorgebundenen Elektrons beträgt nach Abschnitt 2.1 $E_{D^0} = 5,8 \text{ meV}$. Dies entspricht einer Temperatur von $T_{D^0} = E_{D^0}/k_b \approx 60 \text{ K}$. Die Temperatur, bei der ein Großteil aller Donatorelektronen ins Leitungsband ionisiert, ist aufgrund der Ladungsträgerstatistik des Halbleiters allerdings deutlich geringer.[44]

In diesem Abschnitt wird der Lokalisierungsgrad auf Basis der Halbleiterneutralität im thermodynamischen Gleichgewicht als Funktion der Temperatur diskutiert. Dabei wird auch der Effekt einer Kompensationsdotierung berücksichtigt, welche während des Kristallwachstums unvermeidbar im Gitter eingebaut wird. Diese Kompensationsdotierung wird hauptsächlich durch Kohlenstoff verursacht, welcher in GaAs als Akzeptor wirkt.[45]



Abbildung 2.4: Modell eines teilweise kompensierten Halbleiters. Donatordichte N_d und ungewollte Akzeptordichte P_a befinden sich jeweils in der Bandlücke mit Energie E_g bei $E_g - E_{D^0}$ und E_a und bestimmen die Lage der Fermi-Energie E_f .

In Abbildung 2.4 ist die entsprechende Situation schematisch skizziert, wobei die Valenzbandkante als Energienullpunkt gewählt wurde. Das Leitungsband beginnt bei der Energie der Bandlücke E_g und wird durch die Zustandsdichte $\rho_c(E)$ beschrieben. Die Elektronendichte im Leitungsband

ist nach den Grundlagen der Festkörperphysik [46] durch

$$n(T) = \int_{E_g}^{\infty} \rho_c(E) f_c(E) dE \approx 2 \left\{ \frac{m_e k_b T}{2\pi \hbar^2} \right\}^{3/2} \cdot \exp \left\{ -\frac{E_g - E_f}{k_b T} \right\} \quad (2.19)$$

gegeben, wobei $f_c(E)$ die Fermi-Funktion im Leitungsband kennzeichnet.[47] Diese wurde im zweiten Schritt durch die Boltzmann-Funktion ersetzt, da der Halbleiter im experimentell relevanten Temperatur- und Dotierungsbereich in guter Näherung nicht entartet ist.

Unterhalb der Leitungsbandkante befinden sich bei $E_g - E_{D^0}$ die Donatorzustände, welche mit einer Dichte N_d im Kristall vorhanden sind. Aufgrund der Spinentartung des Leitungsbands besitzen sie ein statistisches Gewicht von zwei. Bei Anregung wird ein Donator ionisiert, sodass der zuvor neutrale Donator danach positiv geladen ist. Die Donatordichte wird dazu in $N_d = n_d^0 + n_d^+$ zerlegt, worin n_d^0 den neutralen und n_d^+ den positiv geladenen Anteil bezeichnet. Der Anteil der besetzten Donatoren ist durch

$$n_d^0 = N_d \frac{1}{1 + \frac{1}{2} \exp[(E_g - E_d - E_f)/k_b T]} \quad (2.20)$$

gegeben, sodass der Anteil der ionisierten Donatoren durch

$$n_d^+ = N_d \frac{1}{1 + \frac{1}{2} \exp[(-E_g + E_d + E_f)/k_b T]} \quad (2.21)$$

beschrieben wird.

Bei der Ionisationsenergie E_a befinden sich die Akzeptorzustände, welche während des Wachstums mit einer Dichte N_a parasitär in das Kristallgitter eingebaut wurden. Sie besitzen als Zustände des Valenzbands eine Multiplizität von vier. Auch diese Dichte wird in einen neutralen und negativen Anteil zerlegt: $P_a = p_a^0 + p_a^-$. Die Dichte der negativ geladenen Akzeptoren ist analog:

$$p_a^- = P_a \frac{1}{1 + \frac{1}{4} \exp[(-E_f - E_a)/k_b T]}. \quad (2.22)$$

Die Lochdichte im Valenzband ist analog zu Gleichung 2.19 durch

$$p(T) = \int_{-\infty}^0 \rho_v(E) f_v(E) dE \approx 2 \left\{ \frac{m_v k_b T}{2\pi \hbar^2} \right\}^{3/2} \cdot \exp \left\{ -\frac{E_f}{k_b T} \right\} \quad (2.23)$$

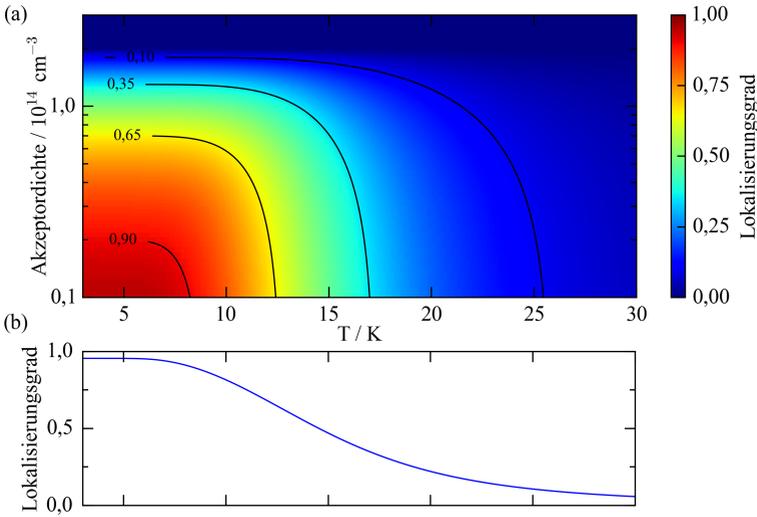


Abbildung 2.5: In (a) ist der berechnete Donator-Lokalisierungsgrad als Funktion von Temperatur und Akzeptordichte für $N_d = 1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$, $E_{D^0} = 5,8 \text{ meV}$ und $E_a = 25 \text{ meV}$ dargestellt. Für hohe Temperaturen sind alle Donatoren ionisiert. Gleiches gilt für hohe Akzeptordichten. Im Bereich geringer Temperaturen wird deutlich, dass eine Akzeptordichte den Temperatur-Verlauf der Lokalisierung nicht beeinflusst und für hohe Akzeptordichten die Elektronendichte einfängt. In (b): Erwarteter Verlauf auf Basis des Wachstums der Probe ($P_a = 1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$).

festgelegt. Darin ist $\rho_v(E)$ die Zustandsdichte des Valenzbands und $f_v(E) = 1 - f_c(E)$ die zugehörige Besetzungswahrscheinlichkeit. Die mittlere effektive Masse des Valenzbands ist durch $m_v = \left(m_{\text{hh}}^{3/2} + m_{\text{lh}}^{3/2}\right)^{2/3}$ gegeben, wobei $m_{\text{hh}} = 0,51 \times m_0$ die Schwerloch- und $m_{\text{lh}} = 0,082 \times m_0$ die Leichtlochmasse ist.[48] Insgesamt ist der Halbleiter im thermodynamischen

schen Gleichgewicht ungeladen, sodass Ladungsneutralität

$$n + p_a^- = p + n_d^+ \quad (2.24)$$

gilt. Gleichung 2.24 ist zusammen mit den Ausdrücken 2.19, 2.21, 2.22 und 2.23 die Bestimmungsgleichung für die Fermi-Energie als Funktion von Temperatur und Akzeptordichte. Die Lösung $E_f(T, P_a)$ ist nicht vollständig analytisch durchführbar und wird numerisch bestimmt. Mit Hilfe von Gleichung 2.20 ist dann die besetzte Donatordichte im thermodynamischen Gleichgewicht gefunden.

Abbildung 2.5a zeigt den Lokalisierungsgrad $\eta = n_d^0/N_d$ als Funktion der Temperatur von 3K bis 30K bei einer Akzeptordotierung von $1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ bis $3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$. Die Donatordichte wurde dabei zu $N_d = 1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ angenommen. Für geringe Temperaturen und geringe Kompensation sind nahezu alle Donatorzustände mit Elektronen besetzt. Für steigende Temperaturen nimmt die Lokalisierung rasch ab und beträgt bereits für $T > 20 \text{ K}$ weniger als 30%. Auch eine Kompensationsdotierung hat ähnliche Auswirkungen. Insbesondere verschiebt sie nicht die Temperatur des Übergangsbereichs zwischen starker und schwacher Lokalisation. In 2.5b ist der auf Basis der Probenkenndaten berechnete Verlauf für $P_a = 1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ dargestellt.

Eine Temperaturerhöhung hat nicht nur die Verringerung der Lokalisierung zur Folge, sondern auch eine Erhöhung der Konzentration freier Ladungsträger im Leitungsband, da dies der Zielzustand des thermisch aktivierten Übergangs ist. Diese wechselwirken mit den gebundenen Elektronen. Entsprechend der Theorie der Elektronenstreuung an atomarem Wasserstoff [49] werden auch freie Elektronen des Leitungsbands an den neutralen Donator-Störstellen gestreut. Dabei wird der Spin beider Stoßpartner ausgetauscht, sodass beide Systeme durch eine einheitliche Spinrelaxation gekennzeichnet sind. Die Rate, mit welcher der Spin eines gebundenen Elektrons durch Streuung mit dem eines freien umklappt, kann nach der Arbeit von K. V. Kavokin [50] abgeschätzt werden durch

$$\gamma_f = \langle \sigma_{sf}(k) \hbar k n / m_e \rangle = \frac{n}{N_c} \frac{\hbar}{\pi m_e a^*} Q(b). \quad (2.25)$$

Darin ist σ_{sf} der Streuquerschnitt für einen Spinumklapp-Prozess, welcher vom Impuls $\hbar k$ des freien Elektrons abhängt. Im zweiten Schritt wurde

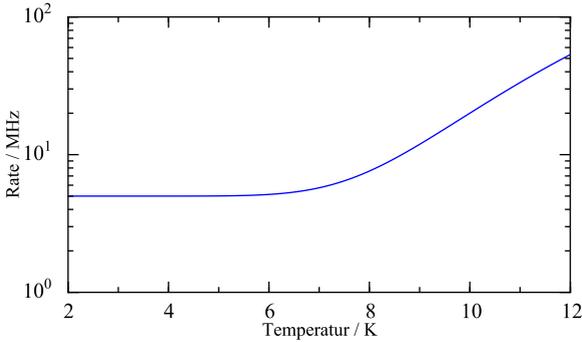


Abbildung 2.6: Temperaturabhängigkeit der Spinaustauschstreueung zwischen freien und gebundenen Elektronen. Der in blau eingezeichnete Verlauf wurde nach Gleichung 2.25 für $E_{D^0} = 5,8$ meV und $\Gamma_0 = 5$ MHz berechnet.

das durch die Klammern angedeutete Mittel über die besetzten Impulszustände der freien Ladungsträger ausgeführt. Der numerische Faktor

$$Q(b) = \int_0^\infty dx \frac{20.6x^3}{1 + (3.9x)^3} \exp(-x^2/b) \quad (2.26)$$

hängt dabei via $b = \frac{k_b T}{E_{D^0}}$ von der Temperatur ab und wurde von Kavokin et al. auf Basis von Referenz [49] phänomenologisch abgeschätzt. Weiterhin ist n die Konzentration freier Ladungsträger und N_c die effektive Leitungsbandzustandsdichte. Abbildung 2.6 zeigt den berechneten Verlauf von γ_f für $E_{D^0} = 5,8$ meV. Zudem wurde ein zusätzlicher Spinrelaxationsmechanismus mit $\Gamma_0 = 5$ MHz angenommen. Es ist deutlich erkennbar, dass die Spinaustauschstreueung mit freien Elektronen bei höheren Temperaturen deutlichen Einfluss auf die Spinrelaxation donatorgebundener Elektronen besitzt.

2.5 Spinrauschen donatorgebundener Elektronen

Der folgende Abschnitt stellt die gemessene Spindynamik donatorgebundener Elektronenspins im und nahe dem thermodynamischen Gleichgewicht in Galliumarsenid dar. Die durchgeführten Experimente demonstrieren dabei die Signifikanz der Hyperfein-Wechselwirkung für die Dynamik lokalisierter Elektronenspins, welche an das umgebene Kernspinbad gekoppelt sind. Weiterhin wird der Einfluss einer endlichen Korrelationszeit auf die Elektronenspindynamik beobachtet. Dabei wurde im Spinrauschen erstmalig die endliche Overhauser-Verschiebung lokalisierter Elektronenspin im stochastisch orientierten Kernspin-Bad bei $B = 0$ mT beobachtet. Auch der zweite, erwartete Beitrag τ_k kann im Grenzfall geringer Abfrageleistungen der Präzessionsperiode der nuklearen Momente im Elektronenfeld zugeordnet werden.

2.5.1 Experimenteller Aufbau

In diesem Abschnitt wird der experimentelle Aufbau geschildert, welcher zur Untersuchung der Spindynamik sorgfältig erstellt wurde.⁴

Als Laserquelle wird ein kommerzieller Diodenlaser⁵ in Littmann-Geometrie verwendet. Der Laser-Resonator besteht dabei aus einer eigens eingebauten, antireflexbeschichteten Laserdiode⁶, einem optischen Gitter und einem Spiegel. Der Laser ist mit einer Linienbreite im sub-MHz-Bereich für das durchzuführende Experiment ausreichend spezifiziert. Der Laserkopf wird mittels einer herstellereigenen Temperatursteuerung stabilisiert. Das entwickelte Messprogramm protokolliert die Temperatur, um gegebenenfalls Störungen im Laserbetrieb anhand des aufgezeichneten Temperaturverlaufs zu erkennen. Nach optimaler Wahl der Regelparameter ist die Temperatur des Laserkopfes ausreichend stabil, sodass die Emissionenergie keine nennenswerte Variation⁷ zeigt.

⁴Zu Beginn dieser Arbeit wird das Labor mit einer Stabilisierung ausgestattet, welche die Temperatur der Laborraumluft über dutzende Stunden besser als 1 K stabilisiert. Zusätzlich wird der Temperaturkontroller in zwei weiteren Laboratorien erfolgreich eingesetzt.

⁵Toptica DL 100 Pro

⁶eagleyard EYP-RWE-0840-06010-1500-SOT02-0000

⁷Die Laserenergie variiert typischerweise über mehr als 12 h mit $\sigma_E/E \leq 4 \times 10^{-8}$

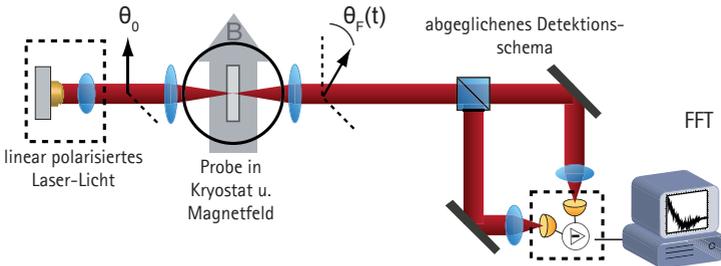


Abbildung 2.7: Schematischer Aufbau zur Spinrauschspektroskopie an Donatorelektronen. Linearpolarisiertes Laserlicht wird auf die mit flüssigem Helium gekühlte Probe fokussiert. Die stochastische Polarisation des untersuchten Spin-Ensembles führt durch den Faraday-Effekt zur Zeitabhängigkeit der linearen Ausgangspolarisation, welche mittels eines abgeglichenes Detektionsschema und eines Echtzeit-Spektrumanalysators im Frequenzraum untersucht wird. Ein transversales Magnetfeld an der Probe ermöglicht die gezielte Manipulation der stochastischen Spindynamik.[51, 52]

In der verwendeten Lasergeometrie wird von einem Spiegel die erste Beugungsordnung eines optischen Gitters auf die rückseitige Facette der Laserdiode reflektiert. Die emittierte Laserenergie wird dabei durch Rotieren des Gitters um die Resonatorachse eingestellt. Diese Geometrie vermeidet eine Strahlungsveränderung des Ausgangslaserstrahls bei Änderung der Laserenergie, welche von $\approx 1,53067 \text{ eV}$ bis $1,50284 \text{ eV}$ gewählt werden kann. Die aus dem Resonator emittierte optische Leistung wird in einen Einmodenlichtwellenleiter eingekoppelt, durch diesen transmittiert und am Ausgang mittels einer auf das Experiment angepassten Auskoppeloptik⁸ dem Experiment zur Verfügung gestellt.

Der Aufbau ist in Abbildung 2.7 dargestellt. Ein Dünnschicht-Linearpolarisator definiert zunächst den Winkel θ_0 der Polarisationsebene des Laserlichtes, sodass der Laserstrahl rein p-polarisiert an den Grenzflächen der

⁸ und ist durch die Auflösung des Interferometers limitiert.

⁸Thorlabs TC12ABC-CUSTOM

nachfolgenden Optiken reflektiert bzw. transmittiert wird. Ein unpolarisierender Strahlteilerwürfel transmittiert 70 % der einkommenden Leistung weiter in Richtung zur untersuchenden Probe. Der restliche Anteil wird im Kontrollarm des Experiments mittels eines 50:50 Strahlteilerwürfels zur Überprüfung der Laserleistung, -energie sowie -mode verwendet. Die Laserenergie und -mode werden dabei mittels eines kommerziellen Fizeau-Interferometers⁹ gemessen und zur Energiestabilisierung des Lasers auf einen fest gewählten Sollwert genutzt. Die Regelgröße des Regelkreises ist dabei der Diodenstrom. Alle Größen werden vom Messprogramm zur späteren Überprüfung protokolliert.

Die Probenfokussierlinse¹⁰ bildet das Laserlicht auf die Probe ab, die sich in einem mit Helium gekühlten Durchflussskryostaten¹¹ befindet. Er ist auf einem Linearverstärker befestigt, um das Messvolumen in der Probe gezielt positionieren zu können. Die Temperatur des Kryostaten wird vom Messprogramm gesteuert und protokolliert. Der minimale Strahlradius des Laserlichtes beträgt $w_0 \approx 4,5 \mu\text{m}$ und befindet sich am Ort der Probe. Nach Transmission durch die Probe wird das Licht rekollimiert, bezüglich seiner Polarisationsrichtung durch ein $\lambda/2$ Plättchen ausgerichtet und von einem Wollaston-Prisma oder einem Strahlteilerwürfel in seine beiden linear polarisierten Komponenten zerlegt sowie räumlich getrennt. Ein abgeglicher Photodetektor¹² wandelt intern die Differenz beider Photodiodenströme in eine Spannung, welche anschließend rauscharm verstärkt wird. Das elektronische Ausgangssignal wird über mehrere Hoch- und Tiefpässe gefiltert und anschließend mittels einem weiteren rauscharmen Verstärker an den Eingangspegel eines Analog-Digital Wandlers¹³ angeglichen. Per Computer werden die mit bis zu 2,5 Gbyte/s anfallenden Daten $U(t)$ mit einer Zeitabdeckung von $> 95\%$ verarbeitet.¹⁴

Transversal zur Ausbreitungsrichtung des Lichts kann am Ort der Probe ein Magnetfeld angelegt werden, welches über eine Konstantstromquelle

⁹HighFinesse WSU20

¹⁰Thorlabs C260TME-B

¹¹CryoVac MikroKryo

¹²Entweder Newfocus 1607-AC-FS, Femto OE-200-Si oder Femto DHPA-S

¹³Alazartech 9360

¹⁴Der Spektrumanalysator wurde von P. Sterin in Zusammenarbeit mit dem Autor dieser Arbeit entwickelt.

computergestützt gesteuert wird. Der Elektromagnet besteht dabei aus einer Spule und einem Eisenkern. Die Remanenz liegt im Bereich von $B_{\text{rest}} \approx 100 \mu\text{T}$. Die Abhängigkeit des erzeugten Magnetfeldes vom Spulenstrom sowie weiteren Parametern kann Referenz [53] entnommen werden.

2.5.2 Datenaufnahme und Auswertung

Wie im vorangegangenen Abschnitt geschildert, besteht der experimentelle Aufbau aus verschiedenen Komponenten, welche unterschiedliche Rauschbeiträge zum Gesamtrauschen des Experiments liefern und als untereinander unkorreliert angenommen werden. Insbesondere das elektrische Rauschen des verwendeten Detektors ist bei den notwendigen, geringen optischen Leistungen dominant. Zudem ist die Charakteristik, d. h. die spektrale Verstärkung $A(\nu)$ der eingesetzten elektro-optischen Detektoren, bei niedrigen optischen Leistungen nahe der minimalen äquivalenten Rauschleistung (NEP) leistungsabhängig. Dadurch wird eine zuverlässige Untergrundkorrektur notwendig, welche im Folgenden geschildert wird.

Die Untergrundkorrektur nutzt dabei die Abhängigkeit der Spindynamik vom externen Magnetfeld, wobei ein g -Faktor ungleich Null vorausgesetzt wird. Ein transversales Magnetfeld B_b führt zur rein stochastischen Spindynamik bei $B_a = 0 \text{ mT}$ zu Larmor-Präzession mit Larmor-Frequenz ν_l . Dadurch wird periodisch die Projektion der Spinpolarisation auf die Laserrichtung moduliert. Folglich wird die Spindynamik proportional zu B_b zu höheren Frequenzen verschoben und besitzt keinen spektralen Überlapp mit der Spindynamik bei B_a , wenn $\nu_l(B_b) \gg 1/\tau$ ist. Darin ist τ die Spinkohärenz-Zeit, welche die spektrale Breite der Spindynamik bestimmt. Demnach kann durch Subtraktion zweier Spektren, die bei verschiedenem Magnetfeld B_a und B_b gemessen wurden, der magnetfeldunabhängige Rauschuntergrund entfernt werden.¹⁵

Die darauf aufbauende Messsequenz und Datenauswertung wird nachfolgend am Beispiel der in Abschnitt 2.6.1 diskutierten Daten detailliert ausgeführt. Es werden diese Daten ausgewählt, da bereits in den Rohdaten die Spindynamik deutlich zu erkennen ist. Zusätzlich wird dabei die Signifikanz des Experimentes für $\nu \rightarrow 0$ eingegrenzt.

¹⁵Diese Prozedur ist auch für $B_a, B_b \neq 0$ möglich, sofern $\Delta B = B_a - B_b$ genügend

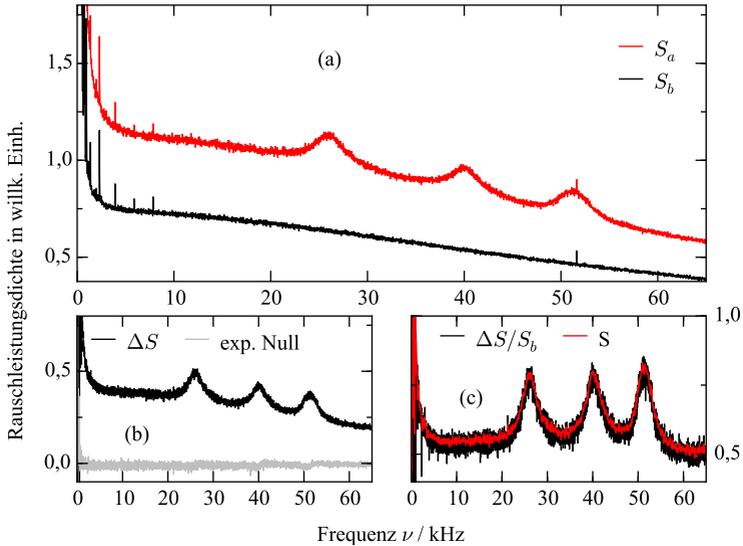


Abbildung 2.8: Exemplarische Darstellung der Untergrundkorrektur bei Spinrauschmessungen. In (a) sind gemittelte Rohdaten dargestellt (aus Abschnitt 2.6.1). Dabei enthält S_a bereits deutliches Spinrauschen, welches in S_b durch ein externes Magnetfeld unterdrückt ist. In (b) ist die Differenz $S_a - S_b$ gezeigt. Sie enthält nahezu keine Radiofrequenzartefakte. Weiterhin ist hier die aus den Daten berechnete Null eingezeichnet. In (c) ist die finale Spinrauschleistungsdichte abgebildet.

Der Datenerfassungsprozess besteht aus der Digitalisierung der Eingangsdaten $U(t)$, wobei die Abtastung mit einer Rate S_r bei einer Bit-Tiefe von 12 Bits durchgeführt wird. Die Abtastrate ist mindestens zweimal so groß zu wählen wie die zu erwartende Bandbreite des analogen Eingangssignals und wird hier für die digitale Nachfilterung deutlich größer

groß gewählt wird.

gewählt. Die digitalisierten Eingangsdaten werden kontinuierlich zur Erfassung in Vektoren der Länge $N_s = t_s \cdot S_r$ zerlegt und deren Fourier-Spektren in Echtzeit berechnet. Hier ist t_s die Zeitdauer zur Aufnahme eines einzelnen Fourier-Spektrums, welche die spektrale Auflösung $\Delta\nu = 1/t_s$ definiert.

Gleichzeitig zum Datenerfassungsprozess findet der Datenverarbeitungsprozess statt. Dieser besteht aus zwei Mittelungsprozessen, die sich in ihrer Integrationsdauer unterscheiden. Der erste Mittelungsprozess wird über die in Echtzeit berechneten Fourier-Spektren der Eingangsdaten $U(t)$ bei einem Magnetfeld B_a durchgeführt. Die erprobte Integrationsdauer beträgt typischerweise etwa 2 min. Innerhalb dieser Zeit kann die detektierte Rauschleistung des Experiments als konstant angenommen werden. Dann wird die Datenerfassung abgeschaltet, das aufgenommene Spektrum abgespeichert, das Magnetfeld auf $B = B_b$ geändert und die Mittelung erneut gestartet. Nach dessen Ende ist ein Paar, bestehend aus zwei Spektren, S_a^i und S_b^i , zur späteren Verarbeitung vorhanden. Weiterhin wird in diesem Prozess der Polarisationswinkel des Laserlichts auf den Abgleich des Detektors mit einem Proportionalregler stabilisiert. Die Regelgröße hierbei ist der Winkel der $\lambda/2$ -Wellenplatte. Zur eventuell notwendigen Fehleranalyse werden die experimentellen Parameter Kryostat-Temperatur, $\lambda/2$ -Wellenplattentemperatur und Magnettemperatur, sowie Laserenergie und -leistung und Wellenplattenstellung im Messprotokoll erfasst. Damit ist der erste Mittelungsprozess abgeschlossen.

Der zweite Mittelungsprozess besteht aus der N -fachen Iteration des ersten Prozesses. Die Mittelung über diese Spektren $S_a = \langle S_a^i \rangle_N$ und $S_b = \langle S_b^i \rangle_N$ ist in Abbildung 2.8 dargestellt, welche bei $B_a = 3,75$ mT und $B_b = 22$ mT erfasst wurden. Das Spektrum S_a enthält dabei Spinrauschen und parasitäres Rauschen, das Spektrum S_b dagegen nur parasitäres Rauschen, da wegen der Stärke von B_b die experimentelle Bandbreite nicht zur Detektion von Spinrauschen ausreicht. Das parasitäre Rauschen kann zum einen an dem großen Offset der Daten erkannt werden und zum anderen an den scharfen Radiofrequenzartefakten. Die Subtraktion $\Delta S = S_a - S_b$ beider Spektren ist jedoch nahezu frei von parasitären Rauschbeiträgen und in Abbildung 2.8b als schwarze Linie dargestellt. Aus den gemessenen Daten lässt sich durch Bildung von $\langle S_a^i - S_a^{i+1} \rangle_{2N}$ auch die experimentelle

Null berechnen. Diese ist in Abbildung 2.8 zusätzlich als graue Linie eingezeichnet und veranschaulicht die Genauigkeit der Untergrundkorrektur.

Zusätzlich zum Rauschuntergrund, welcher von der geschilderten Prozedur zuverlässig entfernt werden kann, ist dem Rauschspektrum ΔS die Charakteristik $A(\nu)$ der Detektion überlagert und kann wie folgt bestimmt werden:

Das verwendete Laserlicht besitzt ein weißes Radiofrequenzspektrum, d. h. das Spektrum hängt nicht von der Frequenz ν ¹⁶ ab. Damit ist das gemessene Laser-Rauschspektrum $S_\lambda(\nu)$ bei hoher optischer Leistung am Detektor idealerweise konstant. Das Spektrum S_b in Abbildung 2.8a enthält Daten, die nahe der Sättigungsleistung des Detektors erfasst wurden und daher schrotrauschlimitiert sind. Offenbar ist S_b nicht konstant und durch $A(\nu)$ modifiziert. Der Quotient $\Delta S/S_b$ eliminiert infolgedessen $A(\nu)$. Die durch Division mit S_b beitragenden scharfen Radiofrequenzartefakte werden anschließend durch Anwendung eines Medianfilters aus den Daten entfernt. Das Ergebnis ist das Spinrauschdifferenzspektrum $S(\nu)$ (kurz SN-Spektrum), welches die Spinrauschleistungsdichte in Einheiten des Schrotrauschens enthält. Bei geringen optischen Leistungen, d. h. wenn das Schrotrauschen des Laserlichtes kleiner wird als das elektrische Rauschen der Detektionselektronik kann weiterhin diese Prozedur angewandt werden, indem das Schrotrauschspektrum als Differenz jener Spektren berechnet wird, welche bei beleuchtetem und unbeleuchtetem Detektor gemessen wurden.

2.5.3 Probe und Prozessierung

Die Probe (13648b) besteht aus einer hochreinen, mit Silizium dotierten Galliumarsenid-Schicht, welche per Molekularstrahlepitaxie (MBE) an der Ruhr Universität Bochum in der Arbeitsgruppe von Herrn Prof. Dr. A. D. Wieck gewachsen wurde. Die nominelle Dotierung beträgt $N_d = 1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$, die Schichtdicke ist $d = 10 \text{ }\mu\text{m}$. Die in Bochum gemessene Hall-Beweglichkeit beträgt $\mu_h = 8260 \text{ cm}^2/\text{Vs}$, welches für Volumenmaterial ein sehr guter Wert bei Raumtemperatur ist.[54]. Dieser Schicht folgt eine 100 nm AlAs-Schicht als Ätzstoppschicht und ein Übergitter aus 10

¹⁶Nicht zu verwechseln mit der Lichtfrequenz.

2.5 Spinrauschen donatorgebundener Elektronen

Wiederholungen von GaAs/AlAs Paaren mit jeweils $d_i = 5$ nm Schichtdicke. Als Träger dient ein halbisolierendes GaAs Substrat, dessen Dicke $d = 630 \mu\text{m}$ beträgt. Der Aufbau der Probe ist schematisch in Abbildung 2.9 (a) zusammengefasst. Das Wachstumsprotokoll der Probe ist dem Anhang A.1 beigelegt.

Zur Untersuchung der Probenschicht in Transmissionsgeometrie ist das Substrat durch dessen vergleichsweise starke Absorption störend. Dies ist durch den spektralen Überlapp zwischen D^0X -Absorption in der Probenschicht und Substrat-Absorption verursacht. Weiterhin wurde in Referenz [53] nachgewiesen, dass auch das vermeintlich undotierte Substrat einen Anteil zur Spinrauschleistungsdichte beiträgt. Dadurch wird die eindeutige Zuordnung der verschiedenen Beiträge aus dem Substrat und der MBE-Schicht erschwert.¹⁷ Das Substrat und die weiteren parasitären Schichten werden aufgrund dieser Erkenntnisse lokal entfernt. Dazu wird ein Zugangsloch [55] zur Probenschicht von der Rückseite der Probe durch das Substrat nass-chemisch prozessiert.¹⁸ Idealerweise ermöglicht dabei das Zugangsloch sowohl eine ungestörte Transmission des Laserlichts durch die MBE-Schicht als auch eine gute thermische Ankopplung der verbleibenden Membran an die Wärmesenke des Kryostaten.

Die durchgeführte Prozessierungsschritte können Abschnitt A.1.1 entnommen werden. Die finale Probenoberfläche ist in Abbildung 2.9 (b) in isometrischer Sicht dargestellt. Eine glatte Oberfläche ist zu erkennen. Sie stellt die Lasereintrittsfacette in die MBE-Schicht dar. Der Bereich ist mit etwa $30 \mu\text{m} \times 20 \mu\text{m}$ gut geeignet, den Abfragelaser mit Strahlradius $w_0 = 4,5 \mu\text{m}$ durch die MBE-Schicht zu transmittieren. Weiterhin deutet die rote Linie den Höhenschnitt entlang der Oberfläche an und ist in (c) dargestellt. Die gemessene Oberflächenrauigkeit beträgt etwa 20 nm und ermöglicht eine nahezu optimale Einkopplung des Laserlichts in die MBE-Schicht.

¹⁷Durch Rücksprache mit A. Ludwig aus der Arbeitsgruppe Wieck wurden die Ergebnisse in Referenz [53] unabhängig bestätigt. Hinweise auf eine fehlerhafte Kompensationsdotierung im Substrat wurden auch in anderen Arbeitsgruppen beobachtet.

¹⁸Vom üblichen Lift-off der Probenschicht wird abgesehen, da in anderen Experimenten [56] gezeigt wurde, dass die Deposition der Probenschicht auf Saphir nach Abkühlung auf kryogene Temperaturen verspannt ist.

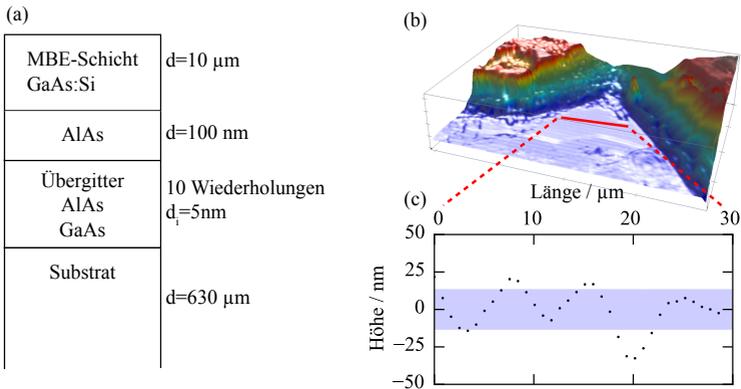


Abbildung 2.9: In (a) ist der Aufbau der untersuchten Probe 13648b schematisch skizziert und die zugehörigen Schichtdicken angegeben. In (b) ist in isometrischer Darstellung der Boden des nass-chemisch prozessierten Zugangslochs dargestellt. Die rote Linie veranschaulicht einen Schnitt, dessen Höhenprofil in (c) dargestellt ist, wobei der blau eingezeichnete Bereich das 1σ -Intervall andeutet. Die Rauigkeit beträgt $\sigma = 13,5\ \text{nm}$.

2.5.4 Elektronenspindynamik

Nachdem in den vorangegangenen Abschnitten die experimentellen sowie theoretischen Grundlagen behandelt wurden, werden in diesem Abschnitt die Ergebnisse der durchgeführten experimentellen Untersuchungen zur Elektronenspindynamik dargestellt. Dabei wird deutlich, dass das System im Bereich langer, ungestörter Lokalisierung untersucht wird und es auf zwei eindeutig separierbaren Zeitskalen dephasiert. Dies bedeutet gleichzeitig, dass die Dynamik des Systems bei $B = 0$ aufgrund der stochastischen Natur des Kernspins nicht exponentiell ist und der Ensemble-spin nicht monoton seine Orientierung mit der Zeit verliert.

Abbildung 2.10 zeigt das gemessene Spinrauschspektrum im Frequenzintervall 0 MHz bis 250 MHz. Die in die Probe eingekoppelte Laserleistung beträgt $P_{\text{in}} = 1 \mu\text{W}$ und entspricht der Detektionsgrenze des in diesem Experiment genutzten hochbandbreitigen Detektors¹⁹. Die Laserenergie ist resonant zum Übergang des Absorptionsmaximums des Elektronen-Ensembles, welches nach Abbildung 2.2 bei $\hbar\omega_0 = 1,51421 \text{ eV}$ liegt. Das Spektrum zeigt die Differenz der Daten, welche bei einem externen Magnetfeld von $B_a = 0 \text{ mT}$ und $B_b = 22 \text{ mT}$ erfasst wurden. Die abgebildete Spinrauschleistungsdichte zeigt deutlich drei Beiträge, von denen die zwei mit Rauschleistungsdichte größer eins im Bereich $\nu < 75 \text{ MHz}$ zu jenen Daten gehören, welche bei $B_a = 0 \text{ mT}$ erfasst wurden. Die klare Sichtbarkeit von zwei Beiträgen bei verschwindendem, externen Magnetfeld demonstriert eindeutig, dass das System aus donatorgebundenen Elektronenspins im Bereich langer Korrelationszeiten $\tau_c > \tau_n$ abgefragt wird. Durch diese Beobachtung werden die durchgeführten Untersuchungen deutlich gegen die Arbeiten in Referenzen [53, 56, 58, 59] abgegrenzt. Im Experiment von Braun et al. [60] oder Dou et al. [61] wird zwar der longitudinale Beitrag zur Spinrelaxation beobachtet, jedoch dessen Spinkohärenz-Zeit nicht eingegrenzt.

Der Beitrag bei der Frequenz $\nu_o \approx 30 \text{ MHz}$ repräsentiert den Teil der Elektronenspindynamik, welcher im quasistatischen Kernfeld präzidiert und zeigt die endliche Overhauser-Verschiebung, welche durch das stochastisch orientierte Hyperfeinfeld B_n der Kerne hervorgerufen wird. Obwohl

¹⁹New Focus 1607-AC-FS

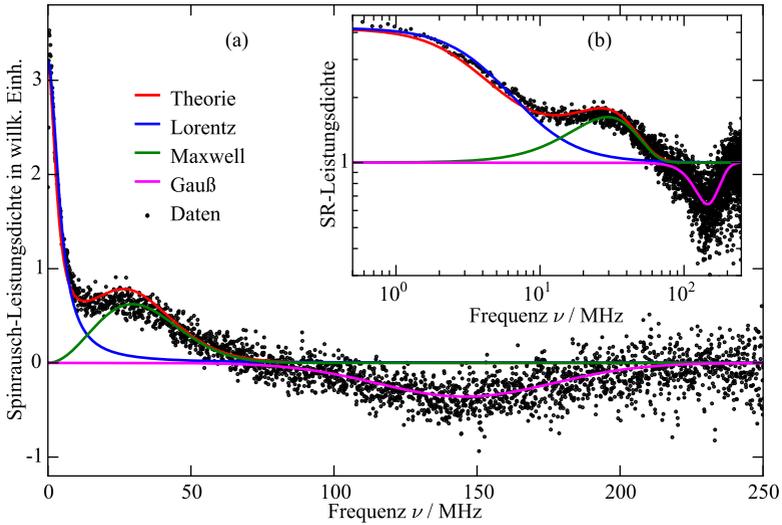


Abbildung 2.10: In (a): Spinrauschen donatorgebundener Elektronenspins (schwarze Punkte) bei $T = 4,2\text{ K}$, $P_{\text{in}} = 1\text{ }\mu\text{W}$ und resonanter Abfrage sowie bei einem externen Magnetfeld von $B_a = 0\text{ mT}$ und $B_b = 22\text{ mT}$. Im Bereich $\nu < 75\text{ MHz}$ ist deutlich der durch Hyperfeinwechselwirkung verursachte Doppelbeitrag zu erkennen, welcher die transversale (grün) und longitudinale (blau) Elektronenspin-Präzession im stochastisch orientierten Kernfeld darstellt. Die rote Linie zeigt das Modell aus Referenz [57], welches auf einer endlichen Korrelationszeit beruht. In magenta ist die Elektronenspin-Präzession im externen Feld von B_b zu erkennen. Abbildung (b) zeigt die gleichen Daten in logarithmischer Darstellung.

das System bei $B_a = 0\text{ mT}$ untersucht wurde, ist dieser Beitrag nicht um $\nu = 0$ zentriert. Dieses Phänomen ist analog zur Geschwindigkeitsverteilung eines klassischen idealen Gases und kann näherungsweise durch die

Maxwell-Boltzmann-Verteilungsfunktion der Gestalt

$$S_m(\nu) = 8A_m\pi^{-1/2}\delta_e^{-3}\nu^2 \exp(-\nu^2/\delta_e^2) \quad (2.27)$$

beschrieben werden.[38] Hierin ist A_m die Spinrauschleistung des Beitrags. Die Varianz sowie der Erwartungswert der Verteilung wird durch δ_e bestimmt. Nach Gleichung 2.11 hängt diese Größe mit der schnellen Komponente der Elektronenspindephasierung zusammen. Die numerische Anpassung bezüglich A_m und δ_e von Gleichung 2.27 ist als grüne Linie in Abbildung 2.10 eingezeichnet und steht für die bezüglich des Kernfelds transversale Komponente des Elektronenspins.

Das bei $\nu = 0$ zentrierte Maximum der Spinrauschleistungsdichte wird von der zum Kernfeld B_n parallelen Elektronenspin-Komponente hervorgerufen. Diese Komponente ist im Laufe der schnellen Elektronenspinpräzession erhalten und folgt im Bereich sehr langer Korrelationszeiten $\tau_c\tau_k^{-1} \gg 1$ quasistatisch der Präzession der Kerne im Hyperfeinfeld des Elektrons. Dieser Anteil kann approximativ durch eine lorentzförmige Verteilungsfunktion

$$S_1(\nu) = 2A_1 \frac{\gamma_e}{\pi(\nu^2 + \gamma_e^2)} \quad (2.28)$$

charakterisiert werden. In Gleichung 2.28 kennzeichnet $\gamma_e = (2\pi\tau_c)^{-1}$ die Dämpfung und ist im Grenzfall sehr langer Korrelationszeiten durch $(2\pi\tau_k)^{-1}$ gegeben.

Die Daten im Bereich um $\nu_e = 140$ MHz in Abbildung 2.10 wurden bei $B_b = 22$ mT erfasst. Dieser Beitrag wird durch die Präzessionsbewegung des Elektronenspin-Ensembles im Gesamtmagnetfeld aus internem Hyperfeinfeld und angelegtem, transversalem Magnetfeld verursacht. Er ist um die Larmor-Frequenz $\nu_l = \frac{g_e\mu_b B}{2\pi\hbar}$ zentriert, da das starke transversale Feld eine periodische Projektionsänderung des stochastisch orientierten Ensemblespins auf die Beobachtungsrichtung hervorruft. Dieser Beitrag kann näherungsweise durch die gauß-förmige Verteilungsfunktion

$$S_g(\nu) = \frac{A_g}{\sqrt{2\pi\delta_e^{*2}}} \times \exp\{-1/2(\nu - \nu_l)^2/\delta_e^{*2}\} \quad (2.29)$$

beschrieben werden und ist als magentafarbene Linie in Abbildung 2.10 eingezeichnet. In Gleichung 2.29 ist A_g die zugehörige Spinrauschleistung

| Form | rel. Rauschleistung | Rate (MHz) |
|---------|-----------------------|-----------------------------------|
| Lorentz | $A_l = 2.16 \pm 0.03$ | $2\pi\gamma_e = 27.1 \pm 1.8$ |
| Maxwell | $A_m = 1.04 \pm 0.02$ | $2\pi\delta_e = 182.8 \pm 4.7$ |
| Gauß | $A_g = 3.22 \pm 0.08$ | $2\pi\delta_e^* = 213.6 \pm 11.3$ |

Tabelle 2.2: Zusammenfassung der Anpassungsparameter nach numerischer Anpassung mit der Summe aus Gleichung 2.27, 2.28 und 2.29 an die Daten in Abbildung 2.10. Die Breite des longitudinalen Elektronenspin-Beitrags γ_e wird für $n_{\text{ex}} \rightarrow 0$ deutlich schmaler und beträgt in diesem Limit $2\pi\gamma_e = 3,14$ MHz.

und δ_e^* charakterisiert die Standardabweichung der Verteilung. Mit Hilfe der numerischen Anpassung von Gleichung 2.29 an die gemessenen Daten bezüglich A_g , δ_e^* und ν_l wird ein g -Faktor von $g_e = 0.46 \pm 0.064$ bestimmt. Dieser Wert stimmt gut mit dem aus der Literatur erwarteten Bereich für donatorgebundene Elektronen in GaAs überein.[62, 63]

Die weiteren Parameter der numerisch angepassten Summe von Gleichung 2.27, 2.28 und 2.29 sind in Tabelle 2.2 zusammengefasst. Die Breite δ_e^* der Gauß-Verteilung bei $B \neq 0$ ist um etwa 15 % gegenüber der Breite δ_e der Maxwell-Verteilung bei $B = 0$ erhöht. Dies kann nicht durch Hyperfein-Wechselwirkung hervorgerufen sein, da in diesem Magnetfeldbereich die Fluktuation des Kernspinbads in guter Näherung magnetfeldunabhängig ist.

Vielmehr kann die beobachtete Verbreiterung im Magnetfeld durch inhomogen verteilte g -Faktorwerte hervorgerufen sein, wobei die Verteilung durch die Abhängigkeit des g -Faktors der Donatorelektronen vom elektrischen Feld verursacht ist. Dieses Feld entsteht durch Bandkantenverbiegung an der Probenoberfläche und wird im nächsten Absatz abgeschätzt.²⁰

Das Fermi-Niveau ist aufgrund der großen Zustandsdichte an der Probenoberfläche in der Mitte der Bandlücke verankert. Das Potenzial dort ist folglich $\phi = E_g/2 \approx 0,755$ eV/ q . Die Ladungsträgerdichte ρ im Kristall ist näherungsweise durch die Dotierungsdichte gegeben und beträgt

²⁰Das Magnetfeld kann als Ursache ausgeschlossen werden, da es im Messvolumen nur über 1×10^{-5} variiert.

$\rho = q \cdot 1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$. Mit Hilfe der Poisson-Gleichung kann die Tiefe der Verarmungszone unter der Oberfläche mittels $l_d = \sqrt{2\epsilon\phi/\rho}$ abgeschätzt werden und ist über $l_d = 6 \mu\text{m}$ ausgedehnt. In diesem Bereich variiert das Potenzial quadratisch und führt zu einer Feldstärke von etwa $E_v = 5 \text{ kV cm}^{-1}$. Nach Abbildung 2a von Referenz [64] führt dieser abgeschätzte Wert zu einer quantitativ vergleichbaren g -Faktor-Modifikation und ist durch die Verdrängung der Störstellenwellenfunktion in einen Bereich niedrigeren Gesamtpotenzials quantitativ erklärbar.

Aus der allgemeinen Erhaltung der Spinrauschleistung $A_g = A_1 + A_m$ folgt aus Tabelle 2.2, dass bei Anlegen eines starken Magnetfeldes $B \gg \delta B_n$ die Spinrauschleistung bei $B = 0$ vollständig in die transversale Komponente umverteilt wird und bei ν_1 vollständig detektiert wird. Aus dieser Beobachtung folgt weiter, dass die Eliminierung der parasitären Rauschbeiträge des Experiments zuverlässig durchgeführt werden kann und dass das Magnetfeld nur eine Umorientierung des Elektronenspins verursacht.

Interessanterweise ist das Verhältnis der Rauschleistungen des $\nu = 0$ Doppelbeitrages $A_1/A_m \approx 2$ und nicht $A_1/A_m = 1/2$ wie es bei einem vollständigen und isotropen Mittelungsprozess über die quasistatischen Kernfeldkonfigurationen zu erwarten ist.[38] Diese Abweichung wird durch die endliche Korrelationszeit der Wechselwirkung des Elektronenspins mit dem Kernspinbad verursacht.

Der Doppelbeitrag kann vollständig durch das in Gleichung 2.18 beschriebene Modell numerisch angepasst werden und bedarf nicht der Trennung der einzelnen Beiträge in Lorentz- und Maxwell-Verteilung. Dabei dienen als Anpassungsparameter alleinig die Kernfeldfluktuation in Form von δ_e , die Korrelationszeit τ_c und die Spinrauschleistung des Doppelbeitrags als Ganzes. Die Anpassung ist als rote Linie in Abbildung 2.10 eingezeichnet und zeigt sehr gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Die Anpassung extrahiert $\delta_e = 29,0(3) \text{ MHz}$, welches nach Gleichung 2.11 zusammen mit dem gemessenen g -Faktor $g_e = 0,46$ einer Kernfeldverteilung von $\delta B_n = 4,6 \text{ mT}$ entspricht. Dieser Wert stimmt hervorragend mit den aus der Literatur bekannten Werten überein.[63, 65]

Die aus den Daten extrahierte Korrelationszeit ist $\tau_c = 32,0(6) \text{ ns}$ und in guter Übereinstimmung mit zuvor veröffentlichten Daten in Referenz [66]. Desweiteren liefert auch die Lorentz-Anpassung $\tau_c = 1/(2\pi\gamma_e) \approx 37 \text{ ns}$

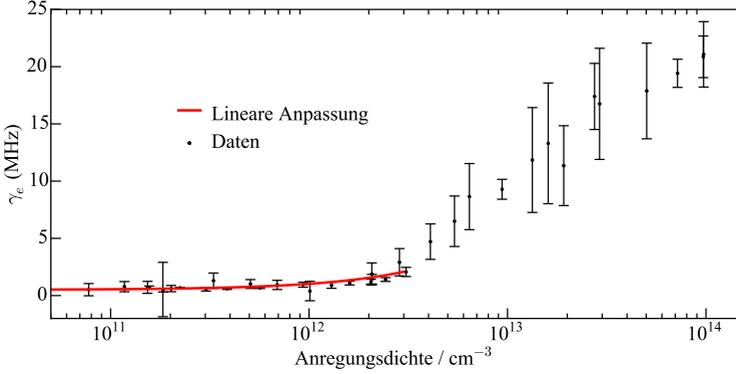


Abbildung 2.11: Abhängigkeit der Korrelationszeit $\tau_c = (2\pi\gamma_e)^{-1}$ von der Anregungsdichte n_{ex} . Für hohe Anregungsdichten ist ein deutlicher Einfluss zu erkennen, der auf Spinaustauschstreuung mit freien Ladungsträgern oder Exzitonen zurückgeführt wird. Für $n_{\text{ex}} \ll 5 \times 10^{12}$ ist dieser Mechanismus zu vernachlässigen. Die Extrapolation zu $n_{\text{ex}} = 0$ ergibt $\tau_c = 320$ ns und ist vergleichbar mit der Präzessionsbewegung der Kerne im Hyperfein-Feld des Elektrons.

einen mit der Literatur konsistenten Wert. Dennoch sind alle diese Werte durch optische Anregung limitiert und nicht durch die adiabatische Änderung des Elektronenspins im langsam variierenden Kernfeld verursacht, was durch die im nächsten Absatz präsentierten Messungen gezeigt wird.

In Abbildung 2.11 ist die Abhängigkeit der Breite γ_e des $\nu = 0$ Beitrages von der optisch generierten Anregungsdichte n_{ex} über vier Größenordnungen dargestellt. Sie wird berechnet aus der Abfrageenergie des Lasers $\hbar\omega$, aus der Resonanzenergie des Ensembles sowie aus der in die Probe eingekoppelten Leistung P_{in} mittels

$$n_{\text{ex}} = \frac{P_{\text{in}}\tau}{\hbar\omega} \times (1 - \exp\{-\alpha(\hbar\omega)d\}). \quad (2.30)$$

Darin ist d die Schichtdicke, $\tau = 1$ ns die strahlende Lebenszeit der an-

geregten Ladungsträger [67] und $\alpha(\hbar\omega)$ der energieabhängige Absorptionskoeffizient von GaAs, dessen Spitzenwert in der Resonanz als $\alpha_0 = 4000 \text{ cm}^{-1}$ [68] angenommen wird. Diese Messung wurde durchgeführt mit einem Detektor geringerer Bandbreite, aber höherer und anpassbarer elektro-optischer Verstärkung.²¹ Dadurch ist es zwar nicht möglich den gesamten $B = 0$ -Doppelbeitrag zu detektieren, dafür aber den $\nu = 0$ -Beitrag bei geringer Anregungsdichte. Die aufgenommenen Daten können daher durch das Lorentz-Profil (Gleichung 2.28) numerisch angepasst.

Die ausgewertete Messung zeigt einen deutlichen Einfluss von n_{ex} auf γ_e . Bei einer Anregungsdichte in der Größenordnung der Dotierungsdichte wird $\gamma_e \approx 20 \text{ MHz}$ gemessen. Dies entspricht einer Korrelationszeit von $\tau_c = (2\pi\gamma_e)^{-1} = 8 \text{ ns}$. In diesem hohen Anregungsbereich wird die Dynamik der donatorgebundenen Elektronen z. B. durch Streuung an optisch erzeugten, freien Exzitonen dominiert (siehe Abbildung 2.2 und Referenz [42]).

Im Bereich $n_{\text{ex}} \lesssim 2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ zeigen die ausgewerteten Daten eine lineare Abhängigkeit von γ_e von der Anregungsdichte. Die Steigung beträgt $5,2 \times 10^{-13} \text{ MHz cm}^3$, sodass γ_e hier in guter Näherung unabhängig von n_{ex} ist. Die Extrapolation zu $n_{\text{ex}} = 0$ beträgt $2\pi\gamma_e = 3,14(110) \text{ MHz}$ und entspricht einer Korrelationszeit von $\tau_c = 320 \text{ ns}$. Dieser Wert ist vergleichbar mit der nach Abschnitt 2.2 erwarteten Verbreiterung aufgrund der quasistatischen Änderung der mesoskopischen Kerspinnkonfiguration und ist durch Hyperfeinwechselwirkung limitiert. In diesem niedrigen Dichtebereich demonstrieren die durchgeführten Messungen, dass mittels Spinrauschspektroskopie die intrinsische Spindynamik donatorgebundener Elektronen in schwach n -dotierten GaAs experimentell bestimmt werden kann.

Neben der Anregungsdichte besitzt auch das transversal angelegte Magnetfeld einen Einfluss. Dazu ist in Abbildung 2.12 die Abhängigkeit der Spinrauschleistung des $\nu = 0$ Beitrages A_1 von der angelegten transversalen Magnetfeldstärke B dargestellt. Die gemessenen Daten sind als schwarze Punkte eingezeichnet und wurden bei $T = 4,2 \text{ K}$ sowie $P_{\text{in}} = 270 \text{ nW}$ erfasst. Sie wurden auf den Wert bei $B = 0 \text{ mT}$ normiert. Der Verlauf zeigt, dass die Spinrauschleistung monoton mit der angelegten Magnetfeldstärke

²¹Femto OE-200-Si

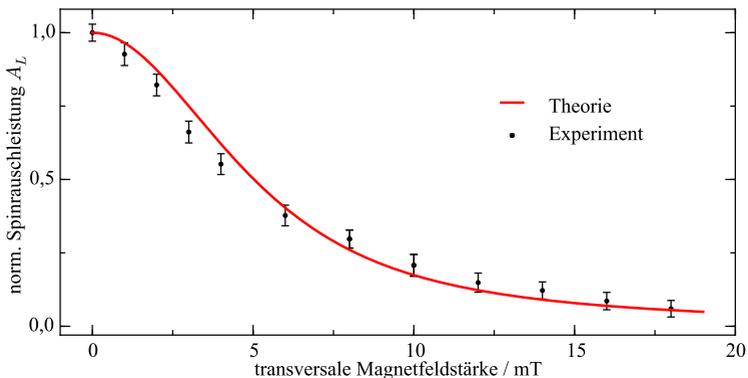


Abbildung 2.12: Abhängigkeit der Spinrauschleistung A_L vom transversalen Magnetfeld B . Die rote Linie ist aus Referenz [57] übernommen und wurde mit Hilfe der Theorie in Referenz [43] berechnet. Theorie und Experiment zeigen sehr gute Übereinstimmung. Die beobachtete Abnahme wird folglich durch die Umorientierung des Gesamtmagnetfeldes verursacht.

fällt. Die rote Linie ist aus den Kenngrößen der numerischen Anpassung mit Gleichung 2.18 an die experimentellen Daten in Abbildung 2.10 aus Gleichung 13 und 14 in Referenz [43] berechnet. Theorie und Experiment zeigen eine sehr gute Übereinstimmung. Die Reduktion des $\nu = 0$ Beitrages bei Anlegen eines transversalen Magnetfeldes ist demzufolge durch die zunehmende Umorientierung des Gesamtmagnetfeldes in Richtung des externen Magnetfeldes verursacht.

2.5.5 Einfluss der Temperatur

Im Folgendem wird der Einfluss der Temperatur T am Kryostaten auf die Spinrauschleistung sowie auf die Rate γ_e des $\nu = 0$ Beitrages diskutiert. Die dazu aufgenommenen Spektren wurden bei $P_{\text{in}} = 2 \mu\text{W}$ und einer Verstimmung zwischen Laserenergie und Ensembleresonanz von $\Delta_\nu \approx$

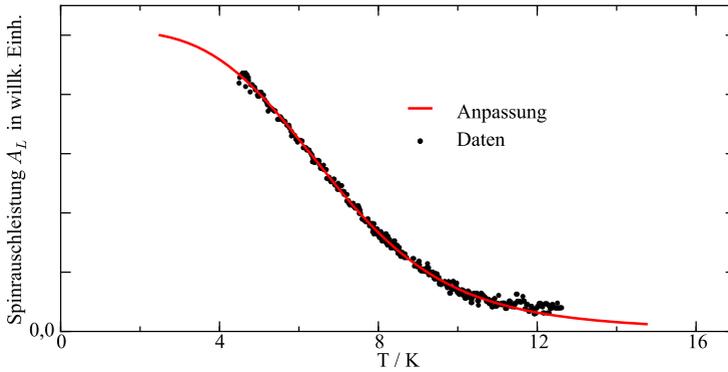


Abbildung 2.13: Temperaturabhängigkeit der Spinrauschleistung A_L normiert auf den Maximalwert. Für niedrige Temperaturen ist ein Großteil aller Donatorpotenziale mit Elektronen besetzt, wodurch A_L maximal ist. Mit steigender Temperatur steigt die Ionisationswahrscheinlichkeit rasch an. Die rote Linie ist die numerisch angepasste Berechnung auf Basis von Abschnitt 2.4 und zeigt sehr gute Übereinstimmung. Die extrahierte Dotierung von $N_d = 8 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ weicht jedoch deutlich vom Wert der Hall-Messungen bei Raumtemperatur ab. Verschiedene Ursachen werden auf Seite 56 diskutiert.

200 μeV gemessen. Das Magnetfeld wird zwischen $B_a = 0 \text{ mT}$ und $B_b = 22 \text{ mT}$ alterniert.

Zunächst wird mit steigender Proben­temperatur nicht nur die Besetzung der D^0X -Zustände nach Abschnitt 2.4 kleiner, sondern gleichzeitig steigt auch die Absorption durch freie Exzitonen, wodurch weniger optische Leistung am Detektor gemessen wird. Diese Änderung der detektierten Spinrauschleistung ist bereits durch die Division des Differenzspektrums durch das Schrottrauschspektrum nach Abschnitt 2.5.2 berücksichtigt. Zur Auswertung der Abhängigkeit der Spinrauschleistung A_L und Breite γ_e von der Proben­temperatur werden die gemessenen Daten mittels Gleichung 2.28 numerisch angepasst.

Der Verlauf der Spinrauschleistung A_1 ist in Abbildung 2.13 dargestellt. Sie nimmt monoton für steigende Temperaturen ab und kann bereits für $T > 12\text{ K}$ nicht mehr zuverlässig detektiert werden. Der gemessene Verlauf ist dabei durch die thermisch bedingte Zunahme der Anregungswahrscheinlichkeit verursacht, sodass die Anzahl besetzter $|D^0\rangle$ -Zustände mit steigender Temperatur fällt. Folglich ist die Spinrauschleistung ein Maß für den Lokalisierungsgrad des Elektronenspinensembles und kann durch das in Abschnitt 2.4 erläuterte Modell beschrieben werden. Die Anpassung mit Gleichung 2.20 bezüglich der Dotierungsdichte N_d und evtl. vorhandener Temperaturabweichung T_0 zwischen Temperaturfühler im Kryostaten und Elektronentemperatur ist als rote Linie eingezeichnet und zeigt hervorragende qualitative Übereinstimmung. Die extrahierte Temperaturabweichung beträgt $T_0 = 2\text{ K}$ und ist durch konstruktionsbedingte Kontaktwiderstände zwischen Kryostatwärmetauscher und untersuchtem Probensystem bedingt.

Die aus den Messdaten extrahierte Dotierungsdichte beträgt $N_d \approx 8 \times 10^{12}\text{ cm}^{-3}$. Dieser Wert weicht deutlich von demjenigen ab, der bei Raumtemperatur auf Basis einer Hall-Widerstandsmessung bestimmt wurde und im Bereich von $1 \times 10^{14}\text{ cm}^{-3}$ bis $3 \times 10^{14}\text{ cm}^{-3}$ liegt. Verschiedene Erklärungsmöglichkeiten werden im Folgendem diskutiert:

Wie Abbildung 2.5 und Abbildung 2.13 zu entnehmen ist, ist der theoretisch berechnete Temperaturbereich, in dem die Änderung der Lokalisierung am größten ist, im Vergleich zu den gemessenen Daten zu höheren Temperaturen verschoben. Dieser Übergangsbereich von starker zu schwacher Lokalisierung wird hauptsächlich durch die Ionisationsenergie der Donatorelektronen und deren Dichte im Kristall bestimmt. Eine Abweichung der Ionisationsenergie von $E_{D^0} = 5,8\text{ meV}$ um 20% bis 30% zu geringeren Werten kann den experimentell beobachteten Lokalisierungsgrad quantitativ erklären. Diese Abweichung ist jedoch unwahrscheinlich, da dieser Wert durch die große Anzahl an unabhängig durchgeführten Experimenten aus der Literatur genau bekannt ist.[69, 70] Desweiteren wird mit Hilfe der gemessenen Bindungsenergie des freien Exzitons an einen neutralen Donator zusammen mit dem Gesetz von Haynes [71, 72] eine Bindungsenergie des Elektrons an den Donator von $E_d \approx 7\text{ meV}$ abgeschätzt, sodass auch die experimentellen Daten aus Abbildung 2.2 dieser

Diskussion widersprechen.

Auch die Kompensation der Elektronendotierung durch Akzeptorstörstellen ist nicht in der Lage, die experimentelle Beobachtung zu erklären, da diese nach Abbildung 2.4 hauptsächlich den maximalen Lokalisierungsgrad für $T \rightarrow 0\text{K}$ beeinflusst. Dies ist verständlich, da bei Raumtemperatur alle Donatoren ionisiert sind. Demnach werden bei Abkühlung des Halbleiters die Akzeptorzustände entsprechend ihrer energetischen Lage in der Bandlücke als erstes mit Elektronen besetzt. Zusätzlich zu dieser qualitativen Überlegung kann das durchgeführte Experiment nicht den Absolutwert des Lokalisierungsgrads bestimmen, sodass keine quantitative Aussage zur Kompensationsdotierung getroffen werden kann. Die in Abschnitt 2.4 durchgeführten Berechnungen, basierend auf einem typischen Wert von $P_a = 1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$, belegen diese Aussage.

Eine mögliche Ursache für die gemessene frühe Abnahme der Spinrauschleistung bei Erhöhung der Temperatur kann durch Anregung in höhere Donatorzustände verursacht sein. Elektronen in diesen Zuständen tragen aufgrund der größeren Verstimmung zum Abfragelaser sowie wegen modifizierter Auswahlregeln schwächer zur Faraday-Rotation bei. Weitere systematische Untersuchungen bei veränderter Abfrageenergie sind notwendig, um diese Hypothese experimentell zu verifizieren.

Abbildung 2.14a zeigt die Rate γ_e des longitudinalen Anteils am Zerfall der stochastischen Spinpolarisation als Funktion der Temperatur am Sensor des Wärmetauschers im Kryostaten. Die gemessene Rate ist monoton steigend und kann in zwei Bereiche unterteilt werden: Bis etwa 8 K ist γ_e linear in T , oberhalb steigt γ_e schneller als linear. Der gesamte Verlauf kann phänomenologisch durch

$$\gamma_e = \gamma_0 + \alpha T + \beta \cdot \exp\{T/\Delta T\} \quad (2.31)$$

beschrieben werden. Die numerische Anpassung bezüglich $\{\gamma_0, \alpha, \beta, \Delta T\}$ ist in rot eingezeichnet und zeigt eine gute Abbildung des gemessenen Verlaufs, wenngleich im Bereich hoher Temperaturen die experimentelle Genauigkeit deutlich abnimmt. Für $T < 7\text{K}$ kann der beobachtete Verlauf qualitativ durch die zunehmende Elektronenpopulation im Leitungsband erklärt werden, da diese nach Abschnitt 2.4 zu einem effizienten Spinrelaxationsmechanismus durch Austauschstreuung führt.

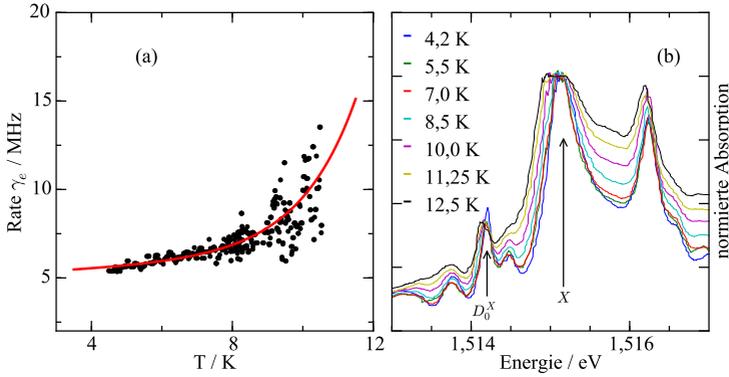


Abbildung 2.14: In (a) ist die Temperaturabhängigkeit der longitudinalen Spinrelaxationsrate γ_e dargestellt. Die rote Linie repräsentiert die numerische Anpassung auf Basis eines phänomenologischen Modells. In (b) ist die zugehörige Absorption als Funktion der Laser-Energie für verschiedene Temperaturen dargestellt. Sie wurde auf den Wert des freien Exzitons normiert. Diese Messung zeigt, dass die Absorption des freien Exzitons am Übergang des donatorgebundenen Exzitons deutlich zunimmt. Dadurch wird die Spinaustauschstreueung mit freien Exzitonen dominant und erklärt den Verlauf in (a).

Zur Erklärung des Bereichs $T > 7\text{ K}$ ist in Abbildung 2.14b der Absorptionskoeffizienten der GaAs-Schicht als Funktion der Laserenergie für verschiedene Temperaturen aus dem gleichen Temperaturbereich wie in (a) dargestellt. Zur Vergleichbarkeit wurde der Absorptionskoeffizient auf den Übergang des freien Exzitons bei $E = 1,515\,25\text{ eV}$ normiert, da dieser nur schwach temperaturabhängig ist. Weiterhin ist das Experiment hier durch die Detektionssensitivität limitiert.

Die Absorptionsdaten zeigen, dass ab etwa 7 K die Breite des freien Exzitons deutlich zunimmt. Folglich steigt die Wahrscheinlichkeit freie Exzitonen anzuregen, welches nach Ref. [42] zu effizienter Spinrelaxation führt. Dies erklärt qualitativ den gemessenen Verlauf in (a).

2.6 Kernspinrauschen

Bereits Felix Bloch erkannte 1946, dass auch ohne Vorgabe einer Orientierung durch ein externes Magnetfeld in einem Ensemble aus N paramagnetischen Momenten zu einer festen Zeit eine Magnetisierung der Größe proportional zu \sqrt{N} vorliegt.[73] Diese ist alleinig durch das statistisch bedingte Ungleichgewicht des diskreten Ensembles verursacht.

Fast vierzig Jahre später haben Sleator et al. [74] die Sensitivität der Kernspinresonanz-Spektroskopie (NMR) derart erhöht, dass die spektrale Leistungsdichte einer solchen stochastischen Magnetisierung in Natriumchlorat experimentell nachgewiesen wurde und dessen zeitliche Variation Kernspinrauschen genannt.

Typischerweise kommen in hochauflösenden NMR-Messungen hohe statische Magnetfelder und intensive Mikrowellenpulse zum Einsatz, wobei zur Erweiterung des Anwendungsbereichs auch die Wechselwirkung mit einem optischen Lichtfeld ausgenutzt werden kann.[75–77] Allen gemeinsam ist jedoch, dass keine stochastische Kernspinpolarisation beobachtet wird.

Im Gegensatz hierzu zeigen die im Folgenden präsentierten Messungen, dass auch eine optische Beobachtung der stochastischen Kernspinpolarisation möglich ist. Dabei wird die Spinrauschspektroskopie genutzt, welche die Eleganz besitzt, dass weder Mikrowellen noch hohe Magnetfelder zur Beobachtung notwendig sind. Hierdurch ist eine Untersuchung im Bereich kleiner, externer Magnetfelder möglich, welche auf der Skala lokaler Felder im Kernbad liegen, sodass dessen Dynamik im unpolarisierten Zustand untersucht wird. Die präsentierten Messungen legen das Fundament für eine gleichzeitige Untersuchung der Elektronen- und Kernspindynamik im Rahmen des „Central Spin Problem“, wodurch der Effekt *interner* Kernbad-Wechselwirkungen auf die zeitliche Entwicklung eines einzelnen Zentralspins systematisch untersucht werden kann.

2.6.1 Beobachtung einer stochastischen Kernspinpolarisation

Im Folgenden werden die experimentellen Untersuchungen zur Kernspindynamik dargestellt und diskutiert.

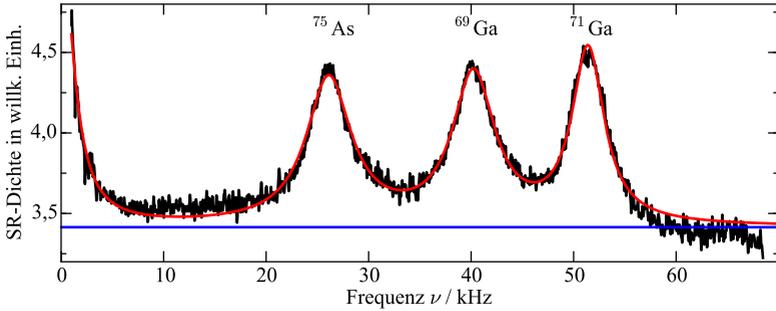


Abbildung 2.15: Gemessene Spinrauschleistungsdichte (schwarze Linie) bei $T=4,2$ K, Probenleistung $P_{\text{in}} = 1 \mu\text{W}$, $B_a = 3,75$ mT und quasiresonanter Laserenergie im Bereich kleiner Frequenzen $\nu \lesssim 65$ kHz. In rot ist die numerische Anpassung der Summe aus vier Lorentz-Verteilungen eingezeichnet. In blau ist der Beitrag durch die longitudinale Elektronenspindynamik gezeigt. Die experimentellen Daten werden durch die Anpassung sehr gut beschrieben. Die drei Resonanzen zeigen die Larmor-Präzession der drei stabilen GaAs-Gitterisotope. (Für den Beitrag bei $\nu = 0$ siehe Text.)

Die schwarze Linie in Abbildung 2.15 zeigt die Differenz der Rauschleistungsdichte bei einem transversalen Magnetfeld von $B_a = 3,75$ mT und $B_b = 22$ mT im spektralen Bereich von 1 kHz bis 65 kHz. Die Kryostat-Temperatur beträgt $T = 4,2$ K. Weiterhin ist der Laser quasiresonant zum Übergang des donatorgebundenen Exzitons. Die in die Probe eintretende Laserleistung beträgt $P_{\text{in}} = 1 \mu\text{W}$.

Das Spektrum zeigt eine deutlich aufgelöste Feinstruktur, die aus drei eindeutigen Beiträgen bei $\nu \neq 0$ kHz besteht. Des Weiteren ist bei $\nu = 0$ kHz ein vierter Beitrag zu erkennen, welcher nach Abschnitt 2.5.2 nicht auf $1/f$ -Rauschen oder Ähnliches zurückgeführt werden kann, sondern signifikant ist. Diese vier Beiträge sind mit Breiten im Bereich von einigen kHz um Größenordnungen schmalere als die in Abschnitt 2.5.4 beobachtete Elektronenspindynamik, sodass bereits hier ein Zusammenhang zur

Kernspindynamik vermutet werden kann.

Die einzelnen Beiträge i zum Spektrum lassen sich durch eine Summe aus vier Lorentz-Funktionen

$$L_i(\nu) = \frac{A_i}{1 + (2\pi(\nu - \nu_1^i)\tau_i)^2}, \quad i = 1 \dots 4 \quad (2.32)$$

und einem Offset s_0 beschreiben, wobei ν_1^i die Mittenfrequenz, A_i die Stärke und τ_i^{-1} die zugehörige Breite des jeweiligen Beitrages ist. Die numerische Anpassung ist als rote Linie in Abbildung 2.15 eingezeichnet und zeigt hervorragende Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Die blaue Linie veranschaulicht den Offset s_0 , welcher den Beitrag des elektronischen Spinrauschens beschreibt. Dieses ist nach Abbildung 2.12 bei dem anliegenden Magnetfeld von $B_a = 3,75$ mT nicht vollständig unterdrückt und erscheint hier innerhalb der kleinen Bandbreite als konstant.

Zur Identifikation des Ursprungs dieser Signaturen zeigt Abbildung 2.16 die gemessenen Spinrauschleistungsdichten bei systematischer Magnetfeldvariation zwischen $B_a = 0$ mT und 4 mT bei einer Schrittweite $\Delta B_a = 250$ μ T. Eine feinaufgelöste, komplexe Struktur mit mannigfaltigen Details ist sichtbar. Für hohe Felder $B_a > 2,5$ mT kann deutlich eine lineare Verschiebung der Mittenfrequenzen ν_1^i entlang der Frequenzachse erkannt werden.

²²Die Messung bei $B = 3,25$ mT ist aufgrund kryostatbedingter Störungen bei Durchführung des Experimentes stärker verrauscht.

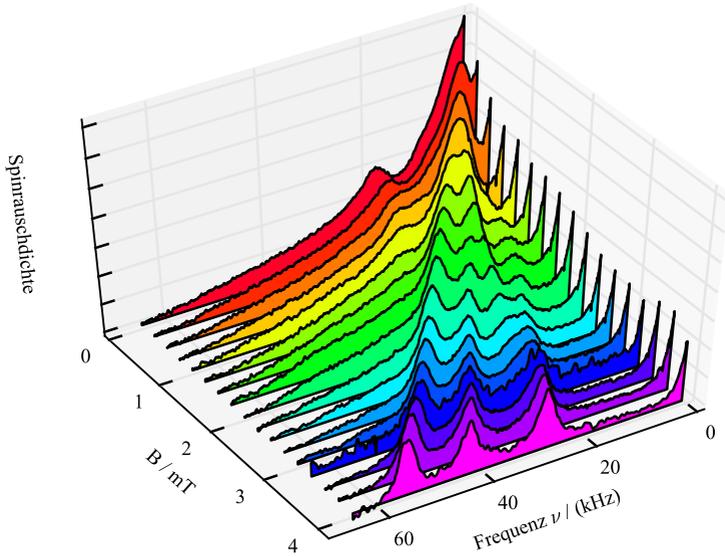


Abbildung 2.16: Kernspinrauschen für verschiedene Magnetfelder gemessen bei resonanter Abfrage, $P_{\text{in}} = 1 \mu\text{W}$, $T=4,2\text{K}$ und $B_b = 22\text{mT}$. Für $B_a \gtrsim 2,5\text{mT}$ ist deutlich eine lineare Verschiebung der Kernspin-Resonanzen zu erkennen, welche auf Larmor-Präzession der drei Gitterisotope ^{69}Ga , ^{71}Ga und ^{75}As im transversalen Magnetfeld zurückzuführen ist.²²Für kleine Felder sind nichtlineare Abweichungen zu erkennen, welche im Text diskutiert werden und die Zuordnung zwischen Rauschleistung und jeweiligem Isotop erschwert. Weiterhin nimmt für $B_a \rightarrow 0$ die Gesamtrauschleistung zu. Der Beitrag bei $\nu = 0$ zeigt auf dem untersuchten Magnetfeldbereich keine Abhängigkeit.

Zur Extraktion der ν_1^i wird Gleichung 2.32 an die Daten in Abbildung 2.16 für $B \geq 2,5$ mT angepasst. Das Ergebnis ist für jedes Isotop in Abbildung 2.17a dargestellt. Dabei sind die eingezeichneten Fehlerintervalle die 150σ -Unsicherheit der numerischen Anpassung und verdeutlichen die hohe Genauigkeit. Der Wert des absoluten Magnetfeldes B besitzt einen Fehler von etwa $\sigma_B = 2\%$, welcher im Wesentlichen durch die Ungenauigkeit in der Position des Messvolumens bezüglich des Magnetmittelpunkts bestimmt ist.[53] Die extrahierten Mittenfrequenzen ν_1^i können numerisch mit Graden

$$\nu_1^i(B) = \nu_0^i + \mu_n^i \cdot B \quad (2.33)$$

angepasst werden. Hier ist ν_0^i die Präzessionsfrequenz bei $B = 0$ und μ_n^i die zugehörige Steigung. Die Daten $\nu_1^i(B)$ lassen sich sehr gut mit Gleichung 2.33 beschreiben. Das Ergebnis der Anpassung ist in Tabelle 2.3 zusammengefasst. Aus den extrahierten Steigungen μ_n folgt durch Vergleich mit Tabelle 2.1, dass die beobachteten Signaturen auf die magnetischen Momente der drei stabilen GaAs-Gitterisotope ^{69}Ga , ^{71}Ga und ^{75}As zurückzuführen sind und durch deren im externen Magnetfeld präzidierende Polarisation verursacht sind.

Daneben sind in Tabelle 2.3 die aus der Anpassung mit Gleichung 2.33 extrahierten Offset-Frequenzen zusammengefasst. Diese beschreiben die Präzessionsfrequenz der nuklearen Gittermomente, wenn kein externes Magnetfeld angelegt ist. Die extrapolierten Werte entsprechen Magnetfeldern von etwa $20\ \mu\text{T}$ bis $80\ \mu\text{T}$ und liegen innerhalb des Bereichs des Remanenz-Feldes des genutzten Elektromagneten von $B_r \approx 100\ \mu\text{T}$. Des Weiteren kann durch Unsicherheit im Absolutwert des Magnetfeldes keine Aussage auf Basis der experimentellen Daten zu einer durch das effektive Elektronenmagnetfeld verursachten Knight-Verschiebung nach Abschnitt 2.8 getroffen werden.

Abbildung 2.17b zeigt die nach Anpassung mit Gleichung 2.32 extrahierten Spinrelaxationsraten $\Gamma_i = \tau_i^{-1}$ als Funktion des Magnetfeldes. Während $\Gamma_{^{69}\text{Ga}}$ in guter Näherung konstant ist, nehmen $\Gamma_{^{71}\text{Ga}}$ und $\Gamma_{^{75}\text{As}}$ mit steigendem Magnetfeld schwach ab. Die Raten der drei Isotope sind vergleichbar mit denen, welche über konventionelle NMR-Spektroskopie gemessen wurden. Hier sind die Linienbreiten durch Dipol-Dipol-Wechsel-

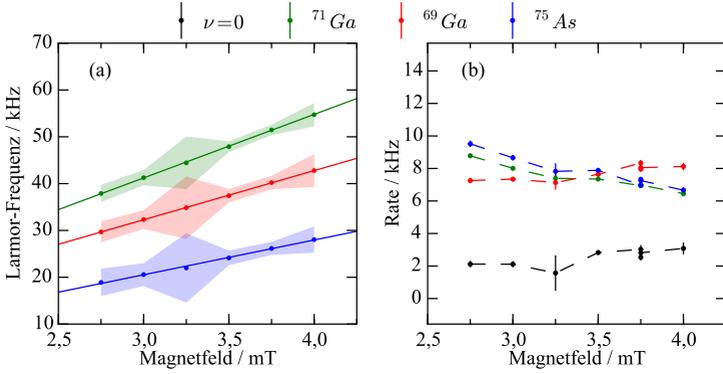


Abbildung 2.17: (a): Magnetfeldabhängigkeit der Mittenfrequenz ν_1 im Bereich hoher Felder. Die eingezeichneten Vertrauensintervalle entsprechen 150σ und geben die Zuverlässigkeit der numerischen Anpassung an. Aus den Steigungen der numerisch angepassten Geraden können die Signaturen in Abbildung 2.15 den magnetischen Momenten der drei stabilen GaAs-Gitterisotope eindeutig zugeordnet werden. (b): Entsprechende Änderung der Rate Γ_i .

wirkung zwischen nächsten Nachbarn gegeben. [78, 79] Der $\nu = 0$ Beitrag besitzt eine deutlich schmalere Breite von nur $\Gamma_4 = 2$ kHz.

Als Ursache der beobachteten Kernspinpolarisation sind verschiedene Möglichkeiten denkbar, welche im Folgenden diskutiert werden. Im Allgemeinen wird die thermische Magnetisierung eines idealen Paramagneten im Magnetfeld beschrieben durch:

$$M = N\mu JB_J(x) \quad (2.34a)$$

$$x = \frac{E_z(B)}{k_b T}. \quad (2.34b)$$

Darin ist N die Anzahl der untersuchten magnetischen Momente μ und J deren Drehimpulsbetrag. Die vom externen Magnetfeld verursachte Zeeman-Aufspaltung der m_J -Niveaus wird durch $E_z(B)$ gekennzeichnet. Wei-

| Isotop | $\mu_n / \text{kHz mT}^{-1}$ | ν_0 / kHz |
|------------------|------------------------------|----------------------|
| ^{69}Ga | 10,49 | 0,8 |
| ^{71}Ga | 13,5 | 0,5 |
| ^{75}As | 7,4 | -1,7 |

Tabelle 2.3: Zusammenfassung des Ergebnisses der linearen numerischen Anpassung an die extrahierten Mittenfrequenzen der gemessenen Spektren aus Abbildung 2.16. Die magnetischen Momente stimmen hervorragend mit den Werten aus Tabelle 2.1 überein, wobei die Genauigkeit durch den absoluten Wert des externen Magnetfeldes am Ort des Messvolumens limitiert ist.

terhin ist $B_J(x)$ die Brioullin-Funktion, welche aufgrund von $P_{ij} = \frac{N_i - N_j}{N} = \frac{M}{N\mu_J}$ die vorliegende Polarisation angibt.

Im Kristall sind zum einen die magnetischen Momente der Kerne und zum anderen die der Elektronen vorhanden. Beide zugehörigen Spinsysteme sind nach Gleichung 2.34 im Magnetfeld magnetisiert. Bei $T = 4,2 \text{ K}$ und $B = 3 \text{ mT}$ beträgt die Polarisation des Kernsystems $P_n \approx 2 \times 10^{-7}$ und die des Elektronensystems $P_e \approx 1,2 \times 10^{-4}$. Dementsprechend ist P_n zu vernachlässigen. Beide Systeme sind jedoch über die Kontaktwechselwirkung (Gleichung 2.4) gekoppelt.

Insbesondere thermalisiert eine optisch angeregte Elektronenspinpolarisation mit Abgabe von Drehimpuls via Gleichung 2.4 an das Kernspinsystem. Dabei kann auch die Kombination aus linearpolarisiertem Laserlicht und externem Magnetfeld zum Transfer von Drehimpuls in das Kernspinsystem führen, obwohl das angeregte Elektronenspinensemble zunächst unpolarisiert ist. In diesem Fall wird der Drehimpuls bei Rückkehr zur thermischen Gleichgewichtspolarisation auf das Kernspinsystem übertragen. Die Größe der optisch erzeugten Kernspinpolarisation ist dabei von der thermischen Elektronenspinpolarisation abhängig. Als Folge wird eine Magnetfeldabhängigkeit gemäß Gleichung 2.34 für *Elektronen* erwartet.

Als weitere Möglichkeit für die Ursache der beobachteten Kernspinsignaturen kommt auch eine rein stochastische Polarisation in Frage, da a) die Anregungsleistung des Abfragelasers unterhalb der Donatordich-

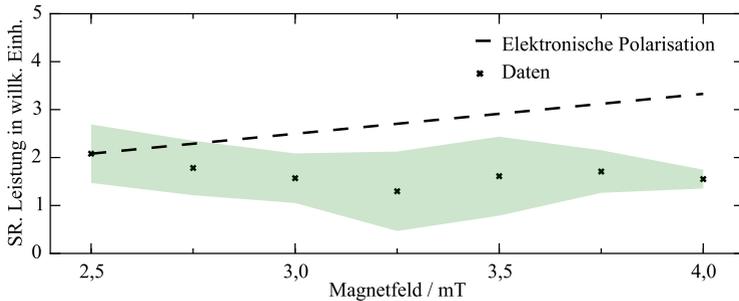


Abbildung 2.18: Magnetfeldabhängigkeit der Spinrauschleistung (SR.) von ^{75}Ga . Die schwarzen Punkte markieren die gemessenen Daten. In Grün ist das 3σ Vertrauensintervall angegeben, welches aus der experimentellen Streuung bei wiederholter Messung berechnet wurde. Dazu zeigt die gestrichelte Linie die erwartete Zunahme einer optisch angeregten Kernspinpolarisation. Diese wurde auf den Wert der Kernspinrauschleistung bei $B_a = 2,5\text{ mT}$ skaliert. Demzufolge wird eine rein stochastische Kernspinpolarisation beobachtet.

te liegt, da b) das Laserlicht linearpolarisiert ist und da c) die Zeeman-Kernaufspaltungen klein gegen die zur Verfügung stehende thermische Energie sind. Insbesondere ist für eine rein stochastische Kernspinpolarisation keine Magnetfeldabhängigkeit zu erwarten.

Durch Analyse der Spinrauschleistung bei Variation des Magnetfelds kann folglich die Ursache der beobachteten Kernspinpolarisation experimentell festgestellt werden. Dazu zeigen die schwarzen Punkte in Abbildung 2.18 die Rauschleistung von ^{71}Ga als Funktion des Magnetfelds im Bereich von 2,5 mT bis 4 mT. In Grün ist das 3σ Vertrauensintervall eingezeichnet, welches aus der experimentellen Streuung der wiederholten Messung extrahiert wurde. Es ist deutlich erkennbar, dass die Spinrauschleistung konstant ist. Zudem ist die gestrichelte schwarze Linie $B_J(x)$ und stellt die erwartete Magnetfeldabhängigkeit einer optisch angeregten Kernspinpolarisation dar. Dabei wurde $B_J(x)$ auf die Spinrauschleistung bei $B = 2,5\text{ mT}$ normiert. Die gemessenen Daten zeigen keine Magnet-

feldabhängigkeit und demonstrieren, dass eine stochastische Kernspinpolarisation vorliegt.

Interessanterweise ist in Abbildung 2.15 zu erkennen, dass die Rauschleistungen der einzelnen Kristallgitter-Isotope vergleichbar sind. Da alle Beiträge optisch gemessen werden, hängt die detektierte Rauschleistung vom Wert der Hyperfein-Kopplungskonstanten des jeweiligen Isotops ab, welche für ^{75}As am größten ist.[37] Des Weiteren sind nach Tabelle 2.3 die Isotope ungleich häufig im Kristall vorhanden, sodass die jeweiligen Beiträge mit ihrer Häufigkeit gewichtet sind. Die Ursache dieser Diskrepanz ist ungeklärt und kann durch Umverteilung der Rauschleistung von $\nu = \nu_1$ zum $\nu = 0$ Beitrag hervorgerufen sein. Hierfür finden sich Hinweise, die im Folgenden erläutert werden.

Im Bereich geringer Magnetfeldstärken $B < 2,5 \text{ mT}$ zeigt Abbildung 2.16 eine komplexe Feinstruktur, welche durch die bisherigen Überlegungen nicht geklärt wurde. Insbesondere hängen die Mittenfrequenzen der einzelnen Beiträge nichtlinear von der angelegten Magnetfeldstärke ab. Des Weiteren nimmt der Rauschuntergrund für $B \rightarrow 0$ zu. Dies kann verschiedene Ursachen haben:

- Quadrupol-Aufspaltung der Kernspin-Niveaus: Alle Kerne mit $I > 1/2$ besitzen ein elektrisches Quadrupolmoment, welches in einem elektrischen Feldgradienten (EFG) zu einer Aufspaltung der m_J -Spinzustände führt. In III-V Halbleitern ist aufgrund der Inversionsasymmetrie des Gitters allerdings kein intrinsischer EFG erlaubt. Jedoch kann durch das Feld der Oberflächen oder lokal im Bereich des Si-Donators ein EFG vorhanden sein. Derzeit wird dieser Zusammenhang intensiv im Rahmen von Halbleiter-Quantenpunkten diskutiert. Dabei verursachen wachstumsbedingte Gitterverspannungen piezoelektrische Felder, welche einen EFG verursachen. [57, 80, 81]
- Hetero- oder homonukleare Dipol-Wechselwirkung zwischen benachbarten Kernspins: Diese können zu einer magnetfeldunabhängigen Komponente bei $\nu = 0$ sowie zu kombinierten Kernspinresonanzen führen.[77, 82]
- Abbildung 2.11 demonstriert, dass die Korrelationszeit τ_c im Be-

reich geringer optischer Abfrageleistungen von der Größenordnung der Zeitskala der Kernspinpräzession im Knight-Feld des Elektrons ist. Auf dieser langen Zeitskala und im Bereich lokaler Magnetfelder ist die unabhängige Betrachtung von Elektronen- und Kernspindynamik unzulässig.[83–85] Des Weiteren führt die Ersetzung der Kernbad-Observablen durch deren klassische Felder zu Abweichungen, sodass hier die Anwendung einer quantenmechanischen Theorie zur vollständigen Beschreibung notwendig ist.[9]

Zur weiteren Demonstration von Reproduzierbarkeit und Signifikanz der Daten und insbesondere des Beitrags bei $\nu = 0$ sowie der Zuverlässigkeit des experimentellen Aufbaus zeigt Abbildung 2.19a die Spinrauschleistungsdichte als Funktion der Zeit bei einer Zeitauflösung 90 s, $P_m = 1 \mu\text{W}$ und $T = 4,2\text{K}$. Das angelegte Magnetfeld wird zwischen $B_a = 2,5\text{mT}$ und $B_b = 22\text{mT}$ alterniert.

Nach bereits 90 s Mittelungszeit sind die Kernspinsignaturen der GaAs-Kristallgitterisotope deutlich in den gemessenen Spinrauschleistungsdichten erkennbar. Weiterhin ist keine Verschiebung der Kernspinresonanzen mit der Zeit zu erkennen, was den langsamen Aufbau interner Felder ausschließt. In Abbildung 2.19b ist die mit der Anpassung von Gleichung 2.32 extrahierte Spinrauschleistung des Beitrags bei $\nu = 0$ als Funktion der Zeit aufgetragen. Es ist keine systematische Variation erkennbar. Dazu ist in (c) die zugehörige Wahrscheinlichkeitsdichte dargestellt, die sich durch eine Normalverteilung abbilden lässt (rote Linie). Abbildung 2.19d zeigt das Mittel aller Spinrauschleistungsdichten und die zugehörige Anpassung als rote Linie. Die Übereinstimmung ist hervorragend.²³

Neben den geschilderten Beobachtungen kann das experimentelle Verhältnis κ der Rauschleistung zwischen Kernspinbeitrag und longitudinalem Elektronenspinbeitrag genutzt werden, um es mit einer Theorie auf Basis der Wirkung einer stochastischen Kernspinpolarisation zu vergleichen. In Abbildung 2.15 ist die Rauschleistungsdichte des Elektronenspinbeitrags als konstanter Offset s_0 zu erkennen und besitzt insbesondere die gleiche Einheit wie die Rauschleistung der drei Gitterisotope. Hierdurch

²³Der Beitrag von ^{75}As zum Kernspinrauschen erscheint gegenüber den Daten aus Abbildung 2.15 verbreitert, da das angelegte Magnetfeld im Bereich lokaler Felder des Kernspinsystems liegt.

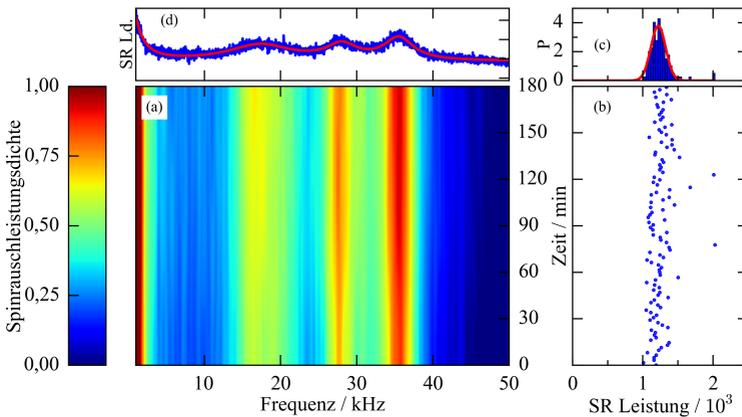


Abbildung 2.19: Kernspinrauschen bei konstanten experimentellen Bedingungen als Funktion der Zeit. In (a) ist in farbkodierter Darstellung die Kernspin-Rauschleistungsdichte als Funktion der Zeit mit einer Auflösung von $\Delta t = 90$ s dargestellt. Die Lage der beobachteten Resonanzen zeigt keine Variation und schließt die Erzeugung interner Felder ähnlich zu Referenz [77] aus. In (b) ist die aus (a) extrahierte Rauschleistung des Beitrags bei $\nu = 0$ dargestellt, welcher keine systematische Variation zeigt. In (c) ist die zugehörige Rauschleistungsverteilung P abgebildet, welche in guter Näherung normalverteilt ist. In (d) ist das Mittel der Messungen in (a) und die numerische Anpassung mit Gleichung 2.32 eingezeichnet. Eine sehr gute Übereinstimmung ist erkennbar.

wird ein direkter Vergleich ermöglicht. Die eingezeichnete numerische Anpassung liefert für die Rauschleistung der drei Isotope in den Einheiten der Abbildung $\xi = \xi(^{69}\text{Ga}) + \xi(^{71}\text{Ga}) + \xi(^{75}\text{As}) \approx 2,3 \times 10^4$.

Die Amplitude des Lorentz-förmigen Beitrags des Elektronenspinensembles, welche in Abbildung 2.15 als blaue Linie eingezeichnet ist, wird durch

$$a_1 = 2\eta A_1 / \gamma_e \quad (2.35)$$

bestimmt. Hier wurde der Faktor η eingeführt, um die durch das anliegen-

de Magnetfeld von $B_a = 3,75$ mT verursachte Umverteilung der longitudinalen Elektronenspinrauschleistung weg von $\nu = 0$ zu berücksichtigen. Aus Abbildung 2.12 wird $\eta = 0,7$ abgelesen, sodass in den Einheiten von Abbildung 2.15 $A_1 = 2 \times 10^7$ ist. Die Breite γ_e wird entsprechend den vorliegenden experimentellen Bedingungen der Messung aus Abbildung 2.11 entnommen. Damit ist das experimentell ermittelte Verhältnis $\kappa = \xi/a_1 \approx 1 \times 10^{-3}$. Dieser Wert wird in Abschnitt 2.6.2 durch ein Modell der kernspininduzierten Faraday-Rotation theoretisch erklärt.

2.6.2 Faraday-Fluktuation durch Kernspinrauschen

Im vorherigen Abschnitt wurde anhand eines externen Magnetfelds gezeigt, dass die optische Antwort des untersuchten Halbleiters im Frequenzbereich $\nu < 65$ kHz die Wirkung der stochastischen Kernspinpolarisation der einzelnen Gitterisotope enthält. Diese Beobachtung auf der zugehörigen Zeitskala ist unerwartet, da sowohl die transversale als auch longitudinale Elektronenspindynamik nach Abschnitt 2.5 deutlich schneller sind. Folglich kann dieser Beitrag nicht über das Overhauser-Feld (Gleichung 2.5) vermittelt sein. Weiterhin wurde anhand der Datenanalyse bei $B_a = 3,75$ mT das Verhältnis zwischen Gesamtkernspinrauschen und Elektronenspinrauschen des longitudinalen Beitrages zu $\kappa = 1 \times 10^{-3}$ bestimmt. Im folgenden Abschnitt wird dieses experimentell beobachtete Verhältnis mittels eines theoretischen Modells beschrieben. Dabei stellt sich heraus, dass das Verhältnis von Elektronenspinrauschen zu Kernspinrauschen in einem Ensemble bei quasiresonanter Abfrage mit einem Laserfeld der Frequenz ω durch das Quadrat des Verhältnisses von Zeeman-Fluktuation eines einzelnen Donators und dessen homogener Linienbreite gegeben ist.

Zunächst existieren zwei Möglichkeiten wie sich die Dynamik einer Kernspinpolarisation in der Faraday-Rotationsfluktuation manifestiert:

- Die nukleare Spinpolarisation spaltet die untersuchte optische Resonanz $\hbar\omega_0$ auf, d. h.

$$\hbar\omega_0 \rightarrow \hbar(\omega_0^- - \omega_0^+) = \Delta_{n,1}. \quad (2.36)$$

- Es wird die longitudinal/transversale Aufspaltung der links-/rechts-zirkular polarisierten polaritonischen Übergänge modifiziert, d. h.

$$\hbar\omega_{\text{lt}} \rightarrow \hbar(\omega_{\text{lt}}^+ - \omega_{\text{lt}}^-) = \frac{C}{V} (N_{1/2} - N_{-1/2}) = -\frac{C'}{V} \Delta_{n,1}, \quad (2.37)$$

wobei V das Messvolumen ist und C, C' Konstanten.

Beide Möglichkeiten werden im Rahmen der linearen Antwort $\Delta_{n,1} \propto \delta \mathbf{I}$ untersucht und mit der Rauschleistung der Elektronenspindynamik verglichen.

Der Tensor der dielektrischen Suszeptibilität ϵ ist in seiner Basis aus zirkularen Eigenzuständen diagonal und besitzt die Einträge ϵ_{\pm} . Zudem wird angenommen, dass die Ausbreitung des Lichtfeldes im Medium entlang der z -Achse erfolgt und durch einen Lorentz-Oszillator beschrieben werden kann. Nach Durchlaufen des Mediums ist die lineare Polarisation der Lichtwelle um den Faraday-Rotationswinkel

$$\vartheta_{\text{f}} = \beta(\epsilon_+ - \epsilon_-) = \beta\delta_{\epsilon}, \quad (2.38a)$$

$$\epsilon_{\pm} = \epsilon_{\text{bg}} \left(1 + \frac{\omega_{\text{lt}}^{\pm}}{\omega_0^{\pm} - \omega - i\Gamma} \right) \quad (2.38b)$$

rotiert. Hierin ist β eine Konstante und Γ die Dämpfung. Da die dielektrische Funktion durch die Wirkung der Kernspinpolarisation nur wenig modifiziert wird, ist δ_{ϵ} klein und kann entwickelt werden:

$$\delta_{\epsilon} \approx \epsilon_{\text{bg}}\omega_{\text{lt}} \frac{\omega_0^- - \omega_0^+}{(\omega_0 - \omega - i\Gamma)^2} + \epsilon_{\text{bg}} \frac{\omega_{\text{lt}}^+ - \omega_{\text{lt}}^-}{\omega_0 - \omega - i\Gamma} = \quad (2.39a)$$

$$\frac{\epsilon_{\text{bg}}}{\hbar} \Delta_{n,1} \left(\frac{\omega_{\text{lt}}}{(\omega_0 - \omega - i\Gamma)^2} - \frac{C'/V}{\omega_0 - \omega - i\Gamma} \right). \quad (2.39b)$$

Gleichung 2.39 beschreibt die durch eine Kernspinpolarisation erzeugte Modifikation der donatorgebundenen Exzitonen-Resonanz, welche in Abbildung 2.20 schematisch skizziert ist. Der erste Term in Gleichung 2.39 repräsentiert dabei die Aufspaltung der Elektronenresonanz $\hbar\omega_0$ (Fall (a) in Abbildung 2.20), während der zweite Term die verursachten Besetzungsunterschiede beschreibt (Fall (b) in Abbildung 2.20).

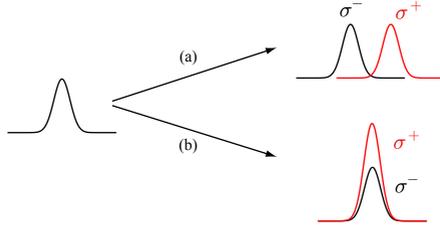


Abbildung 2.20: Schematische Darstellung der Wirkung einer Kernspinpolarisation auf die exzitonische Resonanz des Donatorelektrons. Die Wirkung besteht prinzipiell aus zwei Möglichkeiten: Entweder (a) spaltet die stochastische Kernspinpolarisation die optische Resonanz auf oder (b) modifiziert ihre Oszillatorstärke. Welcher Einfluss dominiert, hängt nach Gleichung 2.41 von der Verstimmung des Abfragelasers und der Temperatur ab.

Mit Anwendung der Boltzmann-Statistik auf die Spinzustände des Elektrons und $\Delta_{n,1}/k_b T \ll 1$ ist die normierte Differenz der Teilchenzahlen durch

$$\frac{N_{1/2} - N_{-1/2}}{N_{1/2} + N_{-1/2}} \approx \frac{\Delta_{n,1}}{2k_b T} \quad (2.40)$$

gegeben. Folglich ist $C' = CN/2k_b T$ und Gleichung 2.39 wird zu

$$\delta_\epsilon \approx \epsilon_{bg} \Delta_{n,1} \omega_{lt} \left(\frac{1}{\hbar(\omega_0 - \omega - i\Gamma)^2} - \frac{1}{2k_b T(\omega_0 - \omega - i\Gamma)} \right). \quad (2.41)$$

An Gleichung 2.41 ist erkennbar, dass für $\hbar(\omega_0 - \omega) < k_b T$, d. h. für eine Verstimmung kleiner als die thermische Energie, die kernspininduzierte Faraday-Rotation durch die Aufspaltung der optischen Elektronenresonanz $\Delta_{n,1}$ dominiert wird. In diesem Fall ist die Phasendifferenz zwischen σ^+ und σ^- -Komponente der sich im Medium ausbreitenden Welle gegeben durch:

$$\Re(\delta_\epsilon) \sim -\Delta_{n,1} \frac{\epsilon_{bg} \omega_{lt}}{(\omega_0 - \omega)^2}. \quad (2.42)$$

Zum Vergleich obiger Überlegungen mit dem Experiment wird Gleichung 2.42 für die untersuchte Probe ausgewertet: Das Messvolumen V besteht aus einem Ensemble aus N Donatorelektronen mit einer Dotierdichte $N_d = N/V$. Jedes Elektron wechselwirkt seinerseits mit N_1 Kernen im Lokalisierungsvolumen. Die magnetischen Momente dieser Kerne erzeugen eine Kernfeldfluktuation, welche am Lokalisierungszentrum zu einer Zeeman-Aufspaltung nach Gleichung 2.10 führt. Diese *fluktuiert* wiederum im Ensemble mit

$$\Delta_n = \frac{\Delta_{n,1}}{\sqrt{N}} = \frac{\mu_b \delta B_n}{\sqrt{N_d V}} \quad (2.43)$$

und beträgt für $N_1 = 1 \times 10^5$ bis 1×10^6 etwa $100 \mu\text{eV}$ bis $500 \mu\text{eV}$.

Gleichung 2.42 enthält auch die Verstimmung zwischen Donator und Abfragelaser. Nach Abbildung 2.2 ist der Übergang des donatorgebundenen Elektronen-Ensembles inhomogen verbreitert, sodass die Rauschleistung der kernspininduzierten Faraday-Rotation durch das Mittel von Gleichung 2.42 über die Resonanzen des Ensembles gegeben ist. Deren Verteilung wird mit

$$g(\omega_0) = \frac{1}{\sqrt{\pi \Delta^2}} \exp\{-\hbar^2(\omega_0 - \bar{\omega}_0)^2 / \Delta^2\} \quad (2.44)$$

beschrieben, worin Δ die inhomogene Verbreiterung charakterisiert. Folglich wird die kernspininduzierte Faraday-Rotationsfluktuation beschrieben durch

$$\langle \delta \vartheta_F^2 \rangle_{\text{nf}} = \frac{\beta \epsilon_{\text{bg}} \omega_{\text{lt}}}{N_d V} \int d\omega_0 g(\omega_0) \frac{\Delta_{n,1}^2}{[(\omega - \omega_0)^2 + \Gamma^2]^2}. \quad (2.45)$$

Die Faraday-Rotationsfluktuation des elektronischen Spinrauschens wird ausschließlich durch die Besetzungszahlfluktuationen in den Teilchenzahlen $N_{1/2}$ und $N_{-1/2}$ verursacht. In diesem Fall skaliert die Phasendifferenz mit

$$\Re(\delta \epsilon)_{\text{ef}} \sim \frac{1}{\sqrt{N_d V}} \frac{\epsilon_{\text{bg}} \omega_{\text{lt}}}{(\omega_0 - \omega)^2}, \quad (2.46)$$

sodass hier die Rauschleistung durch

$$\langle \delta \vartheta_F^2 \rangle_{\text{ef}} = \frac{(\beta \epsilon_{\text{bg}} \omega_{\text{lt}})^2}{N_d V} \int d\omega_0 g(\omega_0) \frac{(\omega - \omega_0)^2}{[(\omega - \omega_0)^2 + \Gamma^2]^2} \quad (2.47)$$

gegeben ist. Die Entwicklung der Integrale 2.45 und 2.47 für $\hbar(\omega - \bar{\omega}_0) \ll \Delta$ sowie $\Gamma \ll \Delta$ führt schließlich auf das Verhältnis von Kernspin- zu Elektronenspinrauschen

$$\kappa = \frac{\langle \delta\vartheta_F^2 \rangle_{\text{nF}}}{\langle \delta\vartheta_F^2 \rangle_{\text{eF}}} = \frac{\Delta_{n,1}^2}{(\hbar\Gamma)^2}. \quad (2.48)$$

Mit der Breite eines einzelnen Donators $\hbar\Gamma = 8 \mu\text{eV}$ [86] und dessen Resonanzfluktuation von $0,1 \mu\text{eV}$ bis $0,3 \mu\text{eV}$ folgt $\kappa = 1 \times 10^{-4}$ bis 1×10^{-3} und liegt im Bereich des experimentell bestimmten Werts. Demnach führt die Dynamik der stochastischen Kernspinpolarisation zu einer zeitlich modulierten Aufspaltung der donatorgebundenen Exzitonen-Resonanz, so dass die nukleare Spindynamik optisch beobachtet werden kann.

2.7 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden detaillierte Spinrauschmessungen am Übergang des donatorgebundenen Exzitons präsentiert. Sie zeigen ein umfassendes Bild der Spindynamik von nahezu isolierten und lokalisierten Elektronen in *n*-GaAs. In Abschnitt 2.1 und 2.2 wurde zunächst in die Grundlagen der Donatorspindynamik eingeführt. Im darauf folgenden Abschnitt 2.3 wurde die erwartete Wirkung einer endlichen Korrelationszeit auf das Spinrauschspektrum diskutiert und das entsprechende Modell erläutert. Der erwartete Lokalisierungsgrad des stark verdünnten Donatorelektronensystems als Funktion der Temperatur unter Berücksichtigung einer Kompensationsdotierung schließt mit Abschnitt 2.4 die theoretischen Grundlagen ab.

Die folgenden Abschnitte schildern ausführlich den experimentellen Aufbau (2.5.1), die Datenaufnahme und Auswertung (2.5.2) sowie die untersuchte Probe und deren Prozessierung (2.5.3).

Die zentralen Ergebnisse zur Elektronenspindynamik wurden in Abschnitt 2.5.4 diskutiert. Für moderat niedrige Abfrageleistungen wurde die durch Hyperfeinwechselwirkung erwartete Doppelpeak-Struktur beobachtet. Durch Anwendung des in Abschnitt 2.4 erläuterten Modells konnte der Einfluss der endlichen Korrelationszeit erstmalig experimentell bestimmt werden. Zudem wurde die Overhauser-Verschiebung bei $B =$

0 erstmalig im Elektronenspinrauschen beobachtet. Sie beträgt $2\pi\delta_e = \tau_n^{-1} = 183$ MHz, sodass die Fluktuation des Overhauser-Felds in GaAs $\delta B_n = 4,6$ mT ist. Im Grenzfall geringer Abfrageleistungen wurde die Absättigung der longitudinalen Rate γ_e für geringe Abfrageleistungen auf $\gamma_e(P = 0) = 3,1$ MHz beobachtet. Dieser Wert kann der Rückwirkung des Kernspinsystems auf das Elektronenspinsystem zugeordnet werden und ist intrinsisch limitiert. Weiterhin wurde in Abschnitt 2.5.5 die Temperaturabhängigkeit der Spinrauschleistung detailliert diskutiert. Das Modell aus Abschnitt 2.4 bildet den Verlauf der gemessenen Spinrauschleistung mit hoher Genauigkeit ab. Eine Diskrepanz zwischen erwarteter und gemessener Dotierung wurde gefunden und macht die Erweiterung des Lokalisierungsmodells bezüglich angeregter Zustände notwendig.

Die Ergebnisse zur Kernspindynamik wurden in Abschnitt 2.6 diskutiert. Diese bestehen aus der erstmaligen Beobachtung der stochastischen Kernspinpolarisation durch die Spinrauschspektroskopie in Halbleitern. Diese rein optische Messmethode ermöglicht die Untersuchung der Kernspindynamik ohne Anwendung starker externer Magnetfelder oder intensiver Mikrowellenpulse. Dadurch ist diese Methode deutlich von anderen wie z. B. optisch detektierten Kernspinresonanz-Spektroskopie abzugrenzen. Weiterhin wurde in diesem Abschnitt die komplexe Magnetfeldabhängigkeit der drei Isotope des GaAs-Kristallgitters präsentiert. Die Daten zeigen eine scharf aufgelöste Feinstruktur mit mannigfaltigen Details, welche im Bereich lokaler Magnetfelder Hinweise auf kleine Quadrupol-Aufspaltungen des Gitters darstellen. Zusätzlich wurde ein bisher ungeklärter Beitrag bei $\nu = 0$ beobachtet, welcher durch Quanteneffekte im „Central Spin Problem“ verursacht sein kann. Am Ende dieses experimentellen Abschnitts wird das Verhältnis κ von Kernspin- zu Elektronenspinrauschen aus den Daten bestimmt, um es mit einer Theorie zu vergleichen. Dazu stellt Abschnitt 2.6.2 den notwendigen theoretischen Hintergrund zum Verständnis der optischen Beobachtung von Kernspinrauschen zur Verfügung. Dort wurde gezeigt, dass im Bereich quasisresonanter Abfrage die gemessene Faraday-Fluktuation durch die kernspininduzierte Fluktuation der donatorgebundenen Exzitonenresonanz dominiert wird. Das erwartete Verhältnis κ ist durch das Quadrat des Quotienten aus Zeeman-Fluktuation eines einzelnen Donators und dessen homogener Linienbreite

gegeben. Der berechnete Wert stimmt gut mit der experimentellen Beobachtung überein.

Die kontrollierte Erzeugung und eindeutige Detektion einer Spinpolarisation in Halbleitern ist von grundsätzlichem Interesse der Forschung auf dem Gebiet der Halbleiterspintronik. Es sind verschiedene optische Verfahren vorhanden, welche alle auf optischen Auswahlregeln basieren und die Verbindung zwischen dem Drehimpulszustand der adressierten Ladungsträger und der Lichtpolarisation herstellen. In Kombination mit einem extern angelegten Magnetfeld wird das Gebiet der Halbleiter-Magneto-Optik gebildet.

In diesem Kapitel werden polarisationsaufgelöste Untersuchungen in n -GaAs dargestellt. Sie geben einen Hinweis darauf, dass die resonante Anregung mit linearpolarisiertem Laserlicht in Kombination mit einem transversalen Magnetfeld zur Erzeugung einer Spinpolarisation im Leitungsband des Halbleiters führt. Die Ursache wird auf eine vom Magnetfeld induzierte lineare Doppelbrechung zurückgeführt. Die Untersuchungen stehen im Zusammenhang zu den Beobachtungen aus Veröffentlichung: K. Schmalbuch, S. Göbbels, P. Schäfers, C. Rodenbücher, P. Schlammes, T. Schäpers, M. Lepsa, G. Güntherodt und B. Beschoten, „Two-Dimensional Optical Control of Electron Spin Orientation by Linearly

Polarized Light in InGaAs“, *Physical Review Letters* **105**, 246603 (2010).

Weiterhin werden Shubnikov-de Haas ähnliche Oszillationen in der optischen Antwort des Halbleiters beobachtet. Durch deren Analyse werden wichtige halbleiterphysikalische Informationen gewonnen.

3.1 Magnetfeldinduzierte lineare Doppelbrechung

Durch ein Magnetfeld wird GaAs doppelbrechend. Dieser Effekt ist als Voigt-Effekt bekannt.[87] Zur Beschreibung werden nachfolgend einige Grundlagen aus der Elektrodynamik zusammengestellt.

Die Ausbreitung einer linearpolarisierten, elektromagnetischen Welle $\vec{E} = \vec{E}_0 \exp \{i(\vec{k}\vec{r} - \omega t)\}$ im Medium mit dielektrischem Tensor $\vec{\epsilon}$ wird mit Hilfe der Wellengleichung beschrieben und führt auf die charakteristische Gleichung [88]:

$$(\vec{k} \cdot \vec{E}_0) \vec{k} - (\vec{k} \otimes \vec{k}) \vec{E}_0 + \omega^2 \vec{\epsilon} \vec{E}_0 = 0. \quad (3.1)$$

Bei $B = 0$ ist GaAs ein optisch isotropes Material und nicht doppelbrechend, sodass der dielektrische Tensor nur die unabhängige Komponente ϵ_r besitzt. Bei $B \neq 0$ verursacht das Magnetfeld jedoch eine Doppelbrechung, sodass zur Beschreibung eine weitere unabhängige Komponente notwendig ist. Für den in Abbildung 3.1 skizzierten Fall besitzt der dielektrische Tensor die Form [89]

$$\vec{\epsilon} = \begin{pmatrix} \epsilon_r & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_r & -iQ \\ 0 & iQ & \epsilon_r \end{pmatrix}, \quad (3.2)$$

sodass Gleichung 3.1 zwei linearpolarisierte Eigenmoden als Lösung besitzt. Diese breiten sich mit Brechungsindizes

$$n_{\parallel} = \sqrt{\epsilon_r} = n_{\text{bg}} \quad (3.3a)$$

$$n_{\perp} = \sqrt{\epsilon_r} \sqrt{1 - Q^2} \approx n_{\text{bg}} \left(1 - \frac{1}{2} Q^2\right) \quad (3.3b)$$

im Medium aus. Die auftretende Größe Q wird Voigt-Parameter genannt und ist über [89]

$$Q = (\pi n_{\text{bg}})^{-1} \tilde{V} \lambda B \quad (3.4)$$

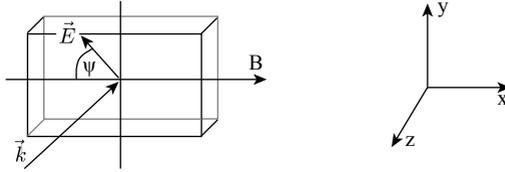


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der betrachteten Geometrie zur Untersuchung von GaAs im Magnetfeld. Ein zu x paralleles Magnetfeld liegt in der Probenebene. Die elektromagnetische Welle fällt senkrecht auf die Probe ein. Die linearpolarisierte Lichtwelle schwingt unter einem Winkel ψ zum Magnetfeld.

mit dem Magnetfeld verbunden. Hier ist \tilde{V} die materialspezifische Verdet-Konstante¹. Sie beschreibt die Stärke der magnetfeldinduzierten linearen Doppelbrechung. Weiterhin ist n_{bg} der Brechungsindex des dielektrischen Hintergrunds von GaAs und λ die Wellenlänge außerhalb des Mediums. Gleichung 3.3 macht deutlich, dass nur die senkrechte Komponente durch das Magnetfeld modifiziert wird und dass die Phasendifferenz $\Delta\phi$ zwischen beiden Eigenmoden quadratisch von der Stärke des Magnetfelds abhängt.

Die Wirkung dieser magnetfeldinduzierten linearen Doppelbrechung auf den Polarisationszustand der transmittierten Welle kann auf einfache Weise im Müller-Matrix Formalismus beschrieben werden:

$$S_{\text{aus}} = \mathcal{M}_{\text{GaAs}}(\Delta\phi) S_{\text{ein}}. \quad (3.5)$$

Dabei ist $\vec{S}_{\text{ein,aus}}$ der Stokes-Vektor der Eingangs- bzw. Ausgangspolarisation, mit dessen Hilfe die Polarisation der Lichtwelle vollständig charakterisiert ist. Die Müller-Matrix $\mathcal{M}_{\text{GaAs}}(\Delta\phi)$ besitzt die Form eines einachsigen Retarders und beschreibt die hier diskutierte lineare Doppelbrechung vollständig. Sie ist abhängig von der Phase $\Delta\phi$, welche durch

$$\Delta\phi = \frac{2\pi}{\lambda} d(n_{\perp} - n_{\parallel}) \quad (3.6)$$

¹Die Verdet-Konstante wird in der Literatur üblicherweise bezüglich der Faraday-Rotation definiert.

gegeben ist. Darin bezeichnet d die optische Pfadlänge des Lichts in der Probe. Nach Transmission durch die Probe ist das Licht aufgrund der aufgesammelten Phasendifferenz elliptisch polarisiert. Die zugehörige Elliptizität e_v hängt via

$$e_v(B) = \eta \cdot B^2 \quad (3.7)$$

quadratisch vom angelegten Magnetfeld ab. Bei $\psi = 45^\circ$ ist der auftretende Koeffizient mittels

$$\eta = (\pi n_{\text{bg}})^{-1} d \lambda \tilde{V}^2 \quad (3.8)$$

mit der Verdet-Konstante verbunden. Folglich kann durch Messen des Zusammenhangs 3.7 bei $\psi = 45^\circ$ die Verdet-Konstante bestimmt werden, sodass die Müller-Matrix von GaAs bei $B \neq 0$ bestimmt ist.

3.2 Landau-Quantisierung

Ein angelegtes Magnetfeld führt nicht nur zum Voigt-Effekt, sondern auch zur Quantisierung der Elektronenzustände im Leitungsband des Halbleiters in sogenannte Landau-Niveaus. Dies hat auch Konsequenzen für die optische Antwort im Bereich der Bandkante von n -GaAs. Zur Beschreibung werden hier zunächst die wichtigsten Grundlagen dargestellt.

Die Wechselwirkung der Ladung eines bewegten Elektrons mit einem Magnetfeld führt entsprechend der Prinzipien der Elektrodynamik zur Lorentz-Kraft. Quantenmechanisch wird die Bewegung des Elektrons auf diskrete Bahnen eingeschränkt. Die zugehörigen Energie-Niveaus sind durch [90]

$$E_{N,k_x} = \left(N + \frac{1}{2}\right) \hbar\omega_c + \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m_e}. \quad (3.9)$$

gegeben. Im ersten Term ist $N \geq 0$ die Landau-Quantenzahl und $\hbar\omega_c$ die Zyklotron-Energie, welche durch

$$\hbar\omega_c = \frac{e}{2m_e} B \quad (3.10)$$

gegeben ist und den Abstand zweier benachbarter Landau-Niveaus angibt. Der zweite Term beschreibt die kinetische Energie des Elektrons parallel zu B , wobei k_x der Wellenvektor ist.

In drei Dimensionen führt das Magnetfeld nicht nur zur Quantisierung der Bewegung senkrecht zur Feldrichtung, sondern auch zu charakteristischen $E^{-1/2}$ - Singularitäten in der Zustandsdichte des Elektronengases. Diese führen zu Oszillationen in der dielektrischen Funktion des Halbleiters, welche sich auf die Elliptizität des transmittierten Laserlichts auswirken und durch

$$e_{tq} \sim \sqrt{\frac{P}{2B}} \beta T \cdot \frac{\exp\left(\frac{-\beta T_d m}{B}\right)}{\sinh\left(\frac{\beta T m}{B}\right)} \cdot \cos\left(2\pi\left(\frac{1}{PB} - \frac{1}{8} - \gamma\right)\right) \quad (3.11)$$

beschrieben werden können. Hier ist $m = m_e/m_0$ das Verhältnis von effektiver und freier Elektronenmasse. Dieser Ausdruck wurde Referenz [91] entnommen. Er beschreibt dort die Oszillationen des transversalen Magneto-Widerstands eines Halbleiters.²

In Gleichung 3.11 bestimmt P die Periode der Oszillationen in B^{-1} . Für einen Halbleiter mit isotroper, quadratischer Elektronendispersion ist

$$P = \frac{\hbar e}{E_f m_e} \quad (3.12)$$

und durch das Produkt von Fermi-Energie E_f und effektiver Elektronenmasse m_e festgelegt. Die Größe T_d wird als Dingle-Temperatur bezeichnet. Sie ist durch

$$T_d = \frac{\hbar}{2\pi k_b \tau} \quad (3.13)$$

mit der Streuzzeit τ verbunden.³ Die Phase γ ist der Onsager-Phasenfaktor, welcher in GaAs für $k = 0$ einen Wert von $\gamma = 0,5$ besitzt und für höhere k -Werte nur wenig hiervon abweicht. Weiterhin ist $\beta = \frac{2\pi^2 k_b m_0}{\hbar e} = 14,707 \text{ T K}^{-1}$ eine Sammlung von Konstanten.

In Abbildung 3.2a ist das Energiediagramm des Leitungsbands schematisch dargestellt. Das zur Abfrage genutzte Laserlicht mit Energie E_{Laser} ist nahezu resonant zur Absorptionskante, welche bei E_f beginnt. Der Abstand zweier Landau-Niveaus beträgt $\hbar\omega_c$. Jedes Niveau ist mit einer Breite $\hbar(2\pi\tau)^{-1}$ durch Stoßprozesse verbreitert. In (b) sind schematisch

²Der Zusammenhang zwischen Leitfähigkeit und dielektrischer Funktion wird zum Beispiel in Referenz [92] näher erläutert.

³Effekte durch strukturelle Unordnung werden hier vernachlässigt.

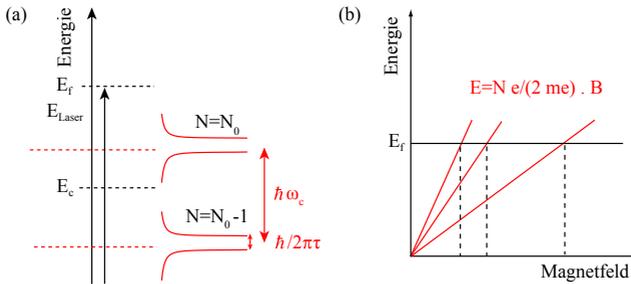


Abbildung 3.2: Landau-Niveaus des Leitungsbands. (a): Das zur Untersuchung genutzte Laserlicht mit Energie E_{Laser} ist resonant zur Absorptionskante, welche bei der Fermi-Energie E_f liegt. Die Landau-Niveaus mit Quantenzahl N unterhalb der Fermi-Energie sind um $\hbar\omega_c$ getrennt. Jedes Landau-Niveau ist mit $\hbar/(2\pi\tau)$ verbreitert. (b): Resonanzen zwischen Landau-Niveaus und der Fermi-Energie führen zu charakteristischen Oszillationen nach Gleichung 3.11.

die Energien dreier benachbarter Landau-Niveaus darstellt, welche für bestimmte Werte von B resonant zur Fermi-Energie sind und die charakteristischen Oszillationen nach Gleichung 3.11 verursachen.

3.3 Experimenteller Aufbau

Nachdem in den beiden vorangegangenen Abschnitten die wichtigsten Grundlagen zum Verständnis des Voigt-Effekts und der Landau-Quantisierung zusammengefasst wurden, wird nachfolgend der Aufbau des Experiments geschildert. Weiterhin wird hier auf den Einfluss des Kryostaten, welcher sich im Strahlengang befindet, eingegangen.

In Abbildung 3.3 ist der Aufbau des Experiments schematisch dargestellt. Als Laserquelle dient ein Ti:Saphir-Laser, welcher Licht im Bereich der optischen Absorption von stark dotiertem GaAs bei $E_0 \approx 1,53 \text{ eV}$ zur Verfügung stellt. Das durch eine polarisationserhaltene Faser transmittierte Laserlicht wird von einem Linearpolarisator in seinem Polarisations-

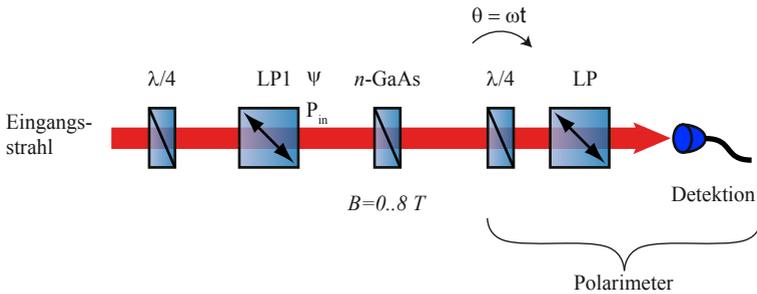


Abbildung 3.3: Schematisch skizzierter Aufbau zur Untersuchung der magneto-optischen Antwort von n -GaAs. Mit Hilfe des Linearpolarisators LP1 kann die lineare Polarisation auf einen Winkel ψ eingestellt werden. Die n -GaAs Probe befindet sich in einem Kryostaten, wo transversale Magnetfelder von 0 T bis 8 T angelegt werden. Mit Hilfe eines aufgebauten Polarimeters wird der Polarisationszustand des transmittierten Laserlichts analysiert.

tionszustand definiert. Eine $\lambda/4$ -Wellenplatte wandelt das lineare Licht in zirkulares, sodass mit Hilfe eines darauf folgenden Linearpolarisators nahezu artefaktfrei⁴ die Linearpolarisation gedreht werden kann. Eine Linse mit $f = 25$ cm fokussiert den Eingangsstrahl auf einen minimalen Strahldurchmesser $w_0 \approx 80 \mu\text{m}$ am Ort der Probe, wonach das Licht mit einer weiteren Linse rekollimiert wird.

Die Probe ist im Chzochralski-Verfahren kommerziell gewachsen und $d = 300 \mu\text{m}$ dick. Vordere und rückseitige Oberfläche sind mit einer Rauigkeit von $\leq \lambda/10$ über eine Fläche von $0,01 \text{ mm}^2$ ausreichend mechanisch poliert. Die Probe ist mit einer nominellen Tellurium-Konzentration von $N_d = 8,2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ stark n -dotiert.⁵

Für die magneto-optischen Untersuchungen ist die Probe in einem Helium-Badkryostaten eingebaut. Mit Hilfe eines eingebauten Magneten kön-

⁴Eine nicht perfekte $\lambda/2$ -Wellenplatte fügt winkelabhängig zirkulare Komponenten hinzu.

⁵Die Probe ist aus dem gleichen Wafer wie Probe 1 aus Kapitel 4.1.

nen Feldstärken im Bereich von bis zu $B = \pm 8$ T angelegt werden. Dabei ist das Magnetfeld parallel zur Horizontalen sowie transversal zur Laserlichtausbreitungsrichtung gerichtet und dient im Folgenden als Bezugsrichtung (siehe Abbildung 3.1). Alle Messungen werden in einem Temperaturbereich von 1,8 K bis 35 K durchgeführt.

Das durch die Probe transmittierte Laserlicht wird mit einem selbstentwickelten Polarimeter analysiert. Dieses ist aus einer rotierendem $\lambda/4$ -Wellenplatte, einem Linearpolarisator und einem Photodetektor aufgebaut. Der zeitliche Verlauf der optischen Leistung am Detektor bei Rotation des $\lambda/4$ -Wellenplatte ist durch

$$\frac{d}{dt}S_0 = -S_1 \sin(4\omega t) + S_2 \cos(4\omega t) + S_3 \cos(2\omega t) \quad (3.14)$$

gegeben (siehe A.2). Hier wurde die Ableitung nach der Zeit durchgeführt, um den Einfluss eines eventuell vorhandenen Offsets auf die Datenauswertung zu minimieren. Durch numerische Anpassung von Gleichung 3.14 an den gemessenen optischen Leistungsverlauf am Detektor können die Stokes-Parameter S_i extrahiert werden. Mit Hilfe von [93]

$$e = \frac{S_3}{S_0 + \sqrt{S_1^2 + S_2^2}} \quad \text{und} \quad (3.15a)$$

$$\psi = \frac{1}{2} \arctan\left(\frac{S_2}{S_1}\right) \quad (3.15b)$$

sowie $S_0 = \sqrt{S_1^2 + S_2^2}$ kann daraus die Elliptizität e und Orientierung θ der Polarisationsellipse berechnet werden.

Der Polarisationszustand vor dem Polarimeter wird nicht nur durch die magneto-optischen Effekte der zu untersuchenden GaAs-Probe modifiziert, sondern auch durch die inneren Fenster des variablen Temperatureinsatzes des Badkryostaten. Durch mechanische Verspannungen beim Abkühlen des Probenraums werden die Fenster doppelbrechend. Diese Beobachtung ist in Abbildung 3.4 anhand der Elliptizität als Funktion der Kryostat-Temperatur bei $\psi = 45^\circ$ dargestellt.⁶ Es ist erkennbar, dass sich

⁶Es befindet sich keine Probe im Strahlengang.

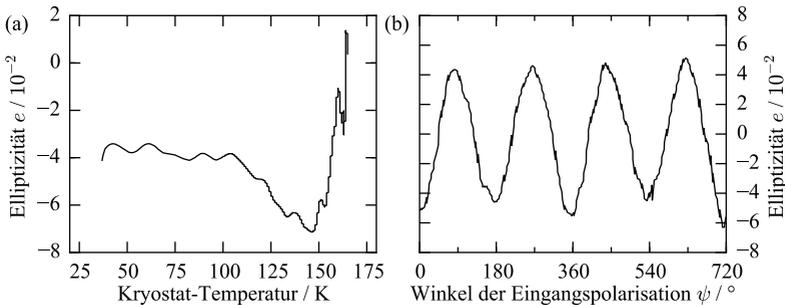


Abbildung 3.4: Doppelbrechender Hintergrund, welcher anhand der Elliptizität e des Laserlichts quantifiziert wird. Links: Einfluss der Einsatztemperatur bei fester Eingangspolarisation ohne Probe im Strahlengang. Rechts: Elliptizität bei $T = 4,2$ K und $B = 0$ T mit Probe im Strahlengang.

e nicht monoton in einem Bereich von einigen Prozent mit der Temperatur ändert. Des Weiteren ist ein derartiges Verhalten nicht reproduzierbar und auf der Zeitskala des durchzuführenden Experiments zeitabhängig. Dies wird mechanischen Entspannungsprozessen nach Erreichen der Betriebstemperatur zugeordnet. Auch eine Abhängigkeit vom Füllstand des Stickstoffschildes wird beobachtet.

In Abbildung 3.4b ist e als Funktion von ψ nach Erreichen von $T = 4,5$ K dargestellt.⁷ Die Elliptizität zeigt Oszillationen, welche charakteristisch für eine einachsige Doppelbrechung sind. Die genannten Beobachtungen erschweren Rückschlüsse auf magneto-optische Effekte in der Probe anhand des Polarisationszustands des transmittierten Laserlichts. Folglich kann $e(\psi)$ experimentell nicht zuverlässig gemessen werden.⁸

⁷Es ist kein Magnetfeld angelegt.

⁸Eine Anpassung des experimentellen Aufbaus, sowie eine erhebliche Weiterentwicklung des in dieser Arbeit entwickelten Polarimeters kann Referenz [94] entnommen werden.

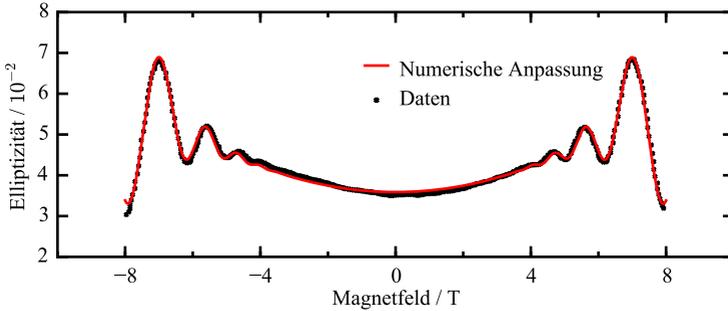


Abbildung 3.5: Gemessene Elliptizität e des transmittierten Laserlichts als Funktion des Magnetfelds bei $T=1,8\text{ K}$, $\psi = 45^\circ$ und $E_0 = 1,529\text{ eV}$. Die Elliptizität kann in zwei Beiträge zerlegt werden: Bei $B \lesssim 4\text{ T}$ ist $e(B)$ durch den Voigt-Effekt bestimmt. Bei $B \gtrsim 4\text{ T}$ werden Oszillationen durch Landau-Quantisierung sichtbar. Als rote Linie ist ein Modell auf Basis beider Effekte eingezeichnet und zeigt sehr gute Übereinstimmung.

3.4 Magneto-optische Antwort von GaAs

In diesem Abschnitt werden die experimentellen Ergebnisse der durchgeführten Untersuchungen an stark n -dotiertem GaAs dargestellt. Dabei zeigt sich, dass das optisch isotrope Material durch den Voigt-Effekt bei $B \neq 0$ doppelbrechend wird und die durch Gleichung 3.7 bestimmte Magnetfeldabhängigkeit besitzt. Weiterhin wird anhand der Elliptizität des transmittierten Lichts die Quantisierung der Elektronenzustände im Magnetfeld beobachtet. Aus den gemessenen Daten werden charakteristische Größen des Leitungsbands rein optisch bestimmt. Beide Effekte zusammen bestimmen die magneto-optischen Eigenschaften von n -GaAs im Bereich der Bandkante.

Abbildung 3.5 zeigt als schwarze Linie die gemessene Elliptizität e als Funktion des transversal angelegten Magnetfelds B bei einer Eingangspolarisationsrichtung von $\psi = 45^\circ$ und einer Temperatur von $T = 1,8\text{ K}$. Die

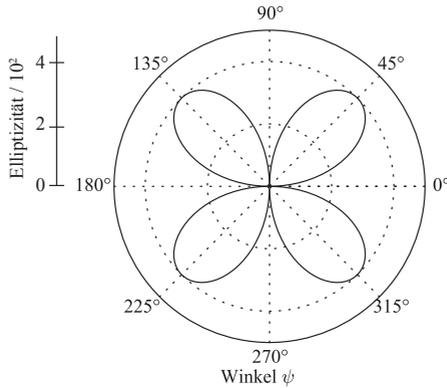


Abbildung 3.6: Berechnete Abhängigkeit der Elliptizität e vom Winkel ψ zwischen linearer Eingangspolarisation und Magnetfeld bei $B = 4,5$ T. Die Abhängigkeit wurde aus der gemessenen Verdet-Konstante berechnet. Der Voigt-Effekt führt zu einer einachsigen linearen Doppelbrechung mit zweizähliger Symmetrie.

Laserenergie beträgt $E = 1,529$ eV. Die Daten zeigen eine ausgeprägte Magnetfeldabhängigkeit. Für kleine Magnetfelder $|B| \lesssim 4$ T nimmt e quadratisch zu und zeigt für große B deutliche Oszillationen. Die Elliptizität kann durch die Funktion

$$e(B, T) = e_0 + e_v(B - B_0) + \alpha e_{1q}(B, T) \quad (3.16)$$

beschrieben werden. Dabei sind $e_v(B)$ und $e_{1q}(B, T)$ in den Gleichungen 3.8 und 3.11 definiert und beschreiben den Voigt-Effekt und den Effekt durch Landau-Quantisierung. Die numerische Anpassung ist als rote Linie eingezeichnet und zeigt sehr gute Übereinstimmung. Die hier eingefügten Größen e_0 und B_0 berücksichtigen die in Abschnitt 3.3 gezeigten Untergrundbeiträge. Diese sind hauptsächlich durch die inneren Fenster des genutzten Kryostaten verursacht. Zudem beschreibt α die Stärke der Oszillationen.

Aus der numerischen Anpassung wird $\eta = 3,8 \times 10^{-4} \text{ T}^{-2}$ erhalten. Unter Benutzung von Gleichung 3.8 resultiert dies in einem Verdet-Konstante von $\tilde{V} \approx 4,2 \times 10^3 \text{ rad T}^{-1} \text{ m}^{-1}$ und stimmt gut mit den Werten für ähnliche Proben und vergleichbare experimentelle Bedingungen überein.[92, 95, 96]

Mit Hilfe von \tilde{V} kann zusammen mit Gleichung 3.5 auch die erwartete Abhängigkeit der Elliptizität als Funktion des Winkels der linearen Eingangspolarisation ψ bei festem Magnetfeld berechnet werden. Das Ergebnis ist in Abbildung 3.6 dargestellt. Es ist eine zweizählige Symmetrie zu erkennen, wobei die Elliptizität bei Vielfachen von 45° maximal ist. Dies hat verblüffende Ähnlichkeit mit Abbildung 4a in Referenz [21] und stellt ein Hinweis auf die Ursache des dort bisher ungeklärten extrinsischen Anregungsmechanismus dar: Während der Propagation durch das Medium wird das eingestrahelte, zunächst linearpolarisierte Licht durch den Voigt-Effekt elliptisch. Folglich existiert eine zirkulare Komponente im Medium, die nach den bekannten Auswahlregeln in GaAs eine Spinpolarisation erzeugt.[20] Die nach Transmission durch die Probe akkumulierte zirkulare Komponente ist daher entscheidend davon abhängig, wie viel Absorption und Dispersion durch das Medium verursacht werden. Ein quantitativer Vergleich mit den Daten aus Referenz [21] wird erschwert, da das dortige Experiment zusätzlich bei schrägem Einfall durchgeführt wurde. Darüber hinaus wird dort keine Abhängigkeit der gemessenen Spinpolarisation von der kristallografischen Orientierung beobachtet. Auch für den hier gemessenen Voigt-Effekt wird keine derartige Abhängigkeit erwartet.⁹

Der oszillatorische Anteil wird durch die wichtigen Parameter Fermi-Energie E_f , Elektronen-Masse m_e und Streuzzeit τ festgelegt. Zur Bestimmung wird die Elliptizität als Funktion der transversalen Magnetfeldstärke für verschiedene Temperaturen im Bereich von 1,8 K bis 25 K gemessen. Anschließend wird der gesamte Datensatz als ganzes numerisch angepasst. Dazu werden Größen

$$\{e_0^i, B_0^i, \eta^i, T_d^i\} \quad (3.17)$$

für jedes $e(B)$ verschieden gewählt. Hingegen sind die Parameter α, m_e, P für alle $e(B)$ gleich. Die auf diese Weise durchgeführte numerische Anpassung ist in Abbildung 3.7 dargestellt. Die schwarzen Linien repräsentieren

⁹Es wird nur eine Abhängigkeit von der Orientierung des Magnetfelds erwartet.

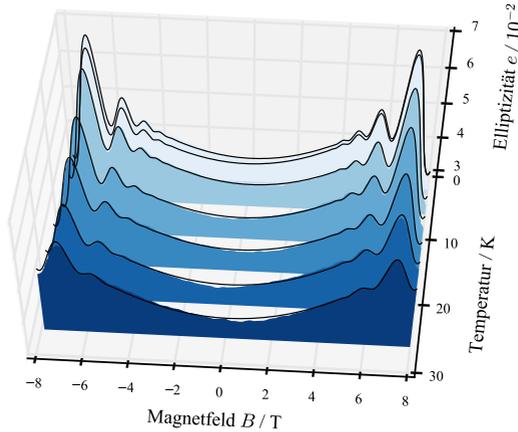


Abbildung 3.7: Gemessene Elliptizität e des transmittierten Laserlichts als Funktion des Magnetfelds bei $\psi = 45^\circ$ und $E_0 = 1,529 \text{ eV}$ für verschiedene Temperaturen. Die schwarzen Linien repräsentieren die numerische Anpassung auf Basis von Gleichung 3.11 und zeigen eine gute Übereinstimmung. Die quadratische Zunahme ist durch den Voigt-Effekt verursacht. Die Oszillationen sind Konsequenz der Landau-Quantisierung im Leitungsband des Halbleiters und ermöglichen die Extraktion der effektiven Masse, der Fermi-Energie und der Streuzeit.

die globale Anpassung nach der beschriebenen Prozedur. Eine sehr gute Übereinstimmung ist erkennbar. Die extrahierten Parameter werden nachfolgend diskutiert.

Für hochdotiertes n -GaAs liegt die Fermi-Energie bei dem Fermi-Wellenvektor $k_f = \sqrt{2m_e E_f}/\hbar$. Hier ist die Elektronendispersion $E(k)$ nicht rein quadratisch, sodass die effektive Masse $m_e = \frac{\partial^2 E}{\partial k_i \partial k_j}$ von ihrem Wert bei $k = 0$ abweicht. Dieses qualitative Bild wird von den durchgeführten Messungen bestätigt. Der extrahierte Wert beträgt $m_e = 0.065 \pm 0,018 \times$

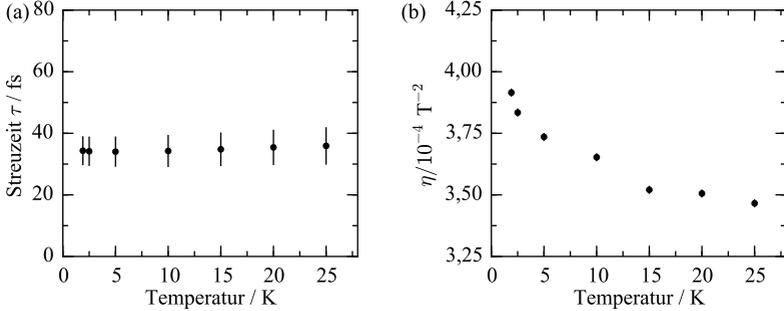


Abbildung 3.8: Temperaturabhängigkeit von Streuzeit τ und quadratischem Koeffizient η . (a): Die Streuzeit ist durch ionisierte Störstellenstreuung dominiert und zeigt keine Temperaturabhängigkeit. (b): Der quadratische Koeffizient nimmt durch die zunehmende Verbreiterung der optischen Resonanz ab. Die eingezeichneten Fehlerintervalle sind 1 σ -Fehler aus der numerischen Anpassung.

m_0 und stimmt gut mit zuvor gemessenen Werten [97] überein. Die Genauigkeit in m_e kann erhöht werden, indem e über einen größeren Magnetfeldstärke-Bereich gemessen wird.

Aus der Anpassung wird die inverse Periode $P = 0,0358 \text{ T}^{-1}$ extrahiert. Für eine sphärische Fermi-Oberfläche und ein parabolisches Band korrespondiert P via $P = 2e/(\hbar 3\pi^2 N_d)$ zu einer Dotierung von $N_d = 8,3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Dieser Wert weicht um 0,7% vom erwarteten Wert des Probendatenblattes ab. Unter gleichen Voraussetzungen korrespondiert P nach Gleichung 3.12 zu einer Fermi-Energie $E_F = 46 \text{ meV}$. Nach Gleichung 3.11 beschreibt der Parameter T_d die Dämpfung der Oszillationen. Dabei bedeutet eine größere Dingle-Temperatur eine kleinere Amplitude bei gleichem Magnetfeld. Nach Gleichung 3.13 hängt T_d mit der Zyklotron-Streuzeit τ_c zusammen und ist in Abbildung 3.8a als Funktion der Temperatur dargestellt. Die Streuzeit ist nahezu temperaturunabhängig und beträgt $\tau_c = 40 \text{ fsec}$. Dies ist konsistent mit Erwartungen die auf der Streuung von Elektronen um die Fermi-Kante mit ionisierten

Störstellen basieren.

Abbildung 3.8b zeigt die Abhängigkeit des quadratischen Koeffizienten η als Funktion der Temperatur. Für steigende Temperatur wird η monoton kleiner. Der Koeffizient ist durch die Verdet-Konstante nach Gleichung 3.8 bestimmt. Diese ist im Bereich der Bandkante durch den Interbandübergang dominiert und von der Verstimung zwischen Interbandresonanz und Laserenergie abhängig.[98] Die Breite der Resonanz nimmt aufgrund thermisch induzierter Verbreiterung der Fermi-Energie zu, so dass die Verdet-Konstante abnimmt.

3.5 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden zu Beginn die wichtigsten Grundlagen zusammengefasst, welche zum Verständnis der in Abschnitt 3.4 durchgeführten Untersuchungen notwendig sind. Die Ergebnisse bestehen aus der Beobachtung des Voigt-Effekts, welcher zu einer quadratischen Magnetfeldabhängigkeit der Elliptizität des transmittierten Laserlichts führt. In diesem Zusammenhang wurde ein Ansatz zur Bestimmung des bisher ungeklärten Anregungsmechanismus einer Spinpolarisation in Referenz [21] diskutiert. Bei der Propagation durch das Medium der eingestrahnten linearpolarisierten Welle führen Voigt-Effekt-induzierte zirkulare Komponenten zur Anregung einer Spinpolarisation nach den Auswahlregeln in GaAs. Zur experimentellen Verifikation dieser Hypothese kann z. B. die Elliptizität laserenergieabhängig in einer dünneren Probe gemessen werden. Auf diese Weise wird der absorptive und dispersive Anteil zur Elliptizität des transmittierten Laserlichts verändert. Durch Vergleich mit einer quantitativen Theorie können schließlich Rückschlüsse auf die zugrunde liegenden Vorgänge gewonnen werden.

Weiterhin wurden im Bereich großer Magnetfelder Oszillationen der Elliptizität gefunden. Diese konnten dem Effekt durch Landau-Quantisierung zugeordnet werden. Durch Bestimmung der Temperatur- und Magnetfeldabhängigkeit konnten wichtige halbleiterphysikalische Größen bestimmt werden.

Kapitel 4

Ultraschnelle Spinrauschspektroskopie: Stochastische g -Faktor-Fluktuationen in GaAs

Die bisherige, kontinuierliche Spinrauschspektroskopie hat sich erfolgreich bei der Untersuchung von Spinsystemen bewährt, deren Spindynamik auf Zeitskalen von wenigen Millisekunden bis hinunter zu einigen Nanosekunden stattfindet [36, 99, 100]. Schnellere Prozesse hingegen können nicht ohne weiteres mit den bisherigen Methoden untersucht werden. Einen Ausweg bietet die Kombination aus Spinrauschspektroskopie und Ultrakurzzeit-Laserspektroskopie. [22]

Das folgende Kapitel stellt die Entwicklung der ultraschnellen Spinrauschspektroskopie dar. Bei dieser Methode werden Laserpulse zur Untersuchung der Spindynamik eingesetzt, wobei die prinzipiell erreichbare Zeitauflösung nur durch die zeitliche Länge der verwendeten Laserpulse begrenzt ist. Trotzdem ist keine Initialisierung einer Spinpolarisation notwendig. [23, 101]

In einem Demonstrationsexperiment wird diese neue Messmethode auf stark dotiertes Volumen-Galliumarsenid angewandt, da dieses Material bekannte Spinkohärenzzeiten im Bereich einiger hundert Pikosekunden

aufweist.[66] Die Messung der Spindynamik im transparenten Spektralbereich des Halbleiters deutet auf einen bisher unberücksichtigten Spindephasierungsmechanismus hin. Dieser tritt im Magnetfeld auf und lässt sich alleinig auf die unausweichliche Fluktuation der Dotierung zurückführen.

4.1 Ultraschnelle Spinrauschspektroskopie

Die ultraschnelle Spinrauschspektroskopie [22] basiert im Wesentlichen auf der wiederholten Messung des korrelierten Faraday-Rotationssignals $\theta(t_i)\theta(t_i + \Delta t)$ zweier linear polarisierter, ultrakurzer, optischer Messpulse. Diese werden im Folgenden als ein Pulspaar betrachtet. Der zeitliche Abstand Δt zwischen den beiden Pulsen innerhalb eines Pulspaares wird während des Experiments variiert und ermöglicht die zeitliche sowie optische Abtastung der zugrundeliegenden Prozesse im Spinsystem. Die Rate, mit der diese Pulspare erzeugt werden, ist während des Experiments zeitlich konstant und durch die Laserpuls-Repetitionsrate gegeben.

Das durchschnittliche Faraday-Rotationssignal $\langle \theta \rangle$ verschwindet, sofern ein nicht magnetisches Spinsystem im thermodynamischen Gleichgewicht untersucht wird. Die als quadratische Abweichung definierte Varianz der korrelierten Faraday-Rotation σ_θ^2 verschwindet aufgrund intrinsischer Fluktuationen im untersuchten Spinsystem jedoch nicht. Die Varianz besitzt eine Abhängigkeit vom Pulsabstand mit:

$$\sigma_\theta^2(\Delta t) \equiv \langle (\theta(t_i) + \theta(t_i + \Delta t))^2 \rangle = \langle \theta(t_i)^2 \rangle + \langle \theta(t_i + \Delta t)^2 \rangle + 2 \cdot \langle \theta(t_i)\theta(t_i + \Delta t) \rangle. \quad (4.1)$$

Die einzelnen Beiträge lassen sich folgendermaßen interpretieren: $\langle \theta(t_i)^2 \rangle$ bezeichnet das gemittelte Quadrat der Faraday-Rotation eines einzelnen Pulses, welcher zum Zeitpunkt t_i den Spinzustand des Systems abfragt. Aufgrund der stochastischen Dynamik ist die Faraday-Rotation zeitlich invariant, sodass $\langle \theta(t_i)^2 \rangle = \langle \theta(0)^2 \rangle$ ist. Gleiches gilt auch für $\langle \theta(t_i + \Delta t)^2 \rangle$. Die ersten beiden Beiträge in Gleichung 4.1 stellen folglich einen pulsabstandsunabhängigen Offset dar.¹ Der für die ultraschnelle Abfrage der

¹Im Falle des Experiments sind weitere Rauschquellen vorhanden, welche jedoch unkorreliert zur gemessenen Faraday-Rotation sind und nicht vom Pulsabstand

Spinkorrelation entscheidende Beitrag zur Faraday-Varianz ist der dritte Term, der das Produkt $\theta(t_i) \cdot \theta(t_i + \Delta t)$ zweier Faraday-Rotationen zu verschiedenen Zeitpunkten t_i und $t_i + \Delta t$ enthält. Zusammen mit dem Mittelungsprozess besitzt er die Struktur einer Autokorrelationsfunktion und enthält die zugrundeliegende Dynamik des untersuchten Spinsystems.[22] Anhand von Gleichung 4.1 wird deutlich, dass die Mittelung über das *Quadrat der Summe* der Faraday-Rotation zweier Messpulse die Detektion der Autokorrelationsfunktion zur Folge hat. Dabei ist die Abfrage der Spindynamik insbesondere nicht vom Zeitpunkt abhängig, wann ein Messpuls das System abfragt, sondern nur vom zeitlichen Abstand beider Messpulse zueinander. Demnach ist keine Initialisierung der Spinpolarisation wie bei Pumpabfrage-Experimenten oder der zeitaufgelösten Photolumineszenz notwendig. Ein weiterer Vorteil der ultraschnellen Spinrauschspektroskopie besteht darin, dass elektro-optische Detektionssysteme eingesetzt werden können, die die Pulse innerhalb eines Pulspaars nicht individuell auflösen brauchen.

Das zeitliche Verhalten der Faraday-Fluktuation lässt sich wie folgt verstehen: Messen beide Pulse den gleichen Zustand des Spinsystems, dann sind die Faraday-Rotationen beider Pulse vollständig korreliert und σ_θ^2 ist maximal. Dies ist immer der Fall, wenn $\Delta t = 0$ ist, unabhängig von t_i . Wird der Zeitabstand beider Pulse vergrößert, messen beide Pulse das System zum Zeitpunkt t_i und $t_i + \Delta t$. Während Δt entwickelt sich das Spinsystem aufgrund seiner Dynamik vom Spinzustand bei $t = t_i$ zum Spinzustand bei $t = t_i + \Delta t$. Durch Spinphasierungsprozesse sind beide Zustände verschieden und beide Messpulse werden unterschiedlich rotiert. Damit verringert sich deren Korrelation und σ_θ^2 nimmt ab. Dies ist schematisch in Abbildung 4.1 dargestellt. Mit steigendem Pulsabstand nimmt die Breite des Intervalls, in dem die möglichen Werte der korrelierten Faraday-Rotationen $\theta(t_i)\theta(t_i + \Delta t)$ verteilt sind, ab. Zudem kann der stochastischen Dynamik eine Modulation, z. B. durch Anlegen eines geeigneten Magnetfelds überlagert sein. In Folge der Wechselwirkung oszilliert dann die Korrelation mit der Larmor-Frequenz der magnetischen Momente des untersuchten Spinsystems zwischen korreliert und antikorreliert.

abhängen. Diese Quellen führen in Gleichung 4.1 zu weiteren, konstanten Beiträgen, welche durch geeignete Filtermethoden entfernt werden können.

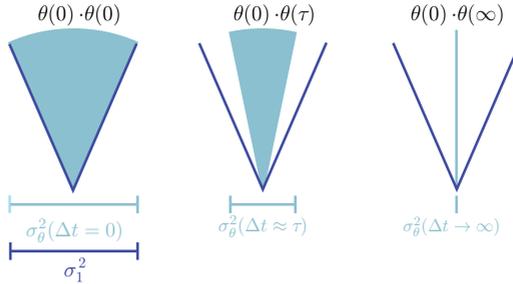


Abbildung 4.1: Schematisches Faraday Rotationsrauschen: $\theta(0)$ bezeichnet die Faraday-Rotation eines einzelnen Laserpulses, welche bei wiederholter Messung in σ_1^2 verteilt ist. Die korrelierte Faraday-Rotation zweier Laserpulse $\theta(0)\theta(\Delta t)$ ist in einem Intervall der Breite $\sigma_\theta^2(\Delta t)$ verteilt. Durch Spindephasierungsprozesse mit charakteristischer Zeit τ_s fällt die Rotationskorrelation mit steigendem Pulsabstand ab, sodass für $\Delta t \rightarrow \infty$ beide Pulsrotationen unkorreliert sind.

4.2 Experimentelle Umsetzung

Nachdem der vorangegangene Abschnitt in die theoretischen Grundlagen eingeführt hat, wird in diesem Kapitel die experimentelle Umsetzung dargestellt. Da ein wesentlicher Anteil dieser Arbeit aus dem Aufbau des entsprechenden Experiments besteht, werden hierbei auch die experimentellen Herausforderungen erläutert. Dazu ist in Abbildung 4.2 der Aufbau schematisch skizziert und wird in den folgenden Abschnitten diskutiert.

4.2.1 Pulsparquelle

Zwei Ti:Saphir Festkörperlaser² emittieren optische Pulse mit einer zeitlichen Länge von 3 ps. Beide Lasersysteme werden mittels eines Phasensynchronisationssystems³ zu einem Gesamtlasersystem bezüglich ihrer Phase

²SpectraPhysics Tsunami und Coherent Mira 900

³Coherent Synchrolock AP

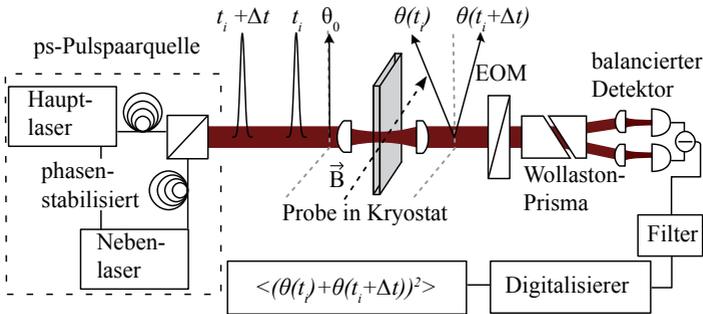


Abbildung 4.2: Schematischer Aufbau zur ultraschnellen Spinrauschspektroskopie: Die wiederholte Messung der korrelierten Faraday-Rotation als Funktion des zeitlichen Abstandes zweier Messpulse führt zur optischen Heruntertaktung der untersuchten Spindynamik des Systems auf die bandbreitenbegrenzte, hochsensitive Detektionselektronik. Für Details siehe Text.

der Pulswiederholrate gekoppelt und in Haupt- und Folgelaser hierarchisch unterteilt. Dazu wird ein geringer Teil der optischen Leistung beider Laser per Lichtwellenleiter dem Synchronisationssystem zur Verfügung gestellt. Dieses generiert als Fehlersignal der Stabilisierung die neunte Harmonische der Schwebungsoszillation beider Pulszüge. Die Regelgröße besteht dabei aus mehreren piezoelektrischen Aktuatoren im Resonator des Folgelasers. Die Parameter des Regelkreises können über eine proprietäre Softwareschnittstelle⁴ den experimentellen Bedingungen angepasst werden. Das Phasensynchronisationssystem ist mit einem Phasenrauschen von 250 fs für das durchzuführende Experiment ausreichend spezifiziert. Des Weiteren kann die Phase durch Anlegen einer Spannung an den entsprechenden Eingang des Synchronisationssystems kontrolliert werden, sodass auf diese Weise die notwendigen Pulspaare mit einstellbarem zeitlichen Abstand bereitgestellt werden.

⁴National Instruments LabView

4.2.2 Kryostat und Strahlengang

Zwei polarisationserhaltene Einmodenlichtwellenleiter dienen zum einen der Bereitstellung des Laserlichts und zum anderen dem räumlichen Strahlüberlapp. Beide Laseremissionen werden dazu in den jeweiligen Lichtwellenleiter eingekoppelt und an einem unpolarisierenden, faserbasierten, 50:50 Strahlteilerwürfel kombiniert. Dabei wird ein Teil der Leistung für den Signalpfad des Experiments benutzt. Der übrige Anteil dient der Messung der Laserenergie, der Überwachung des gepulsten Laserbetriebs und der Phasenstabilisierung. Zusätzlich wird dieser Anteil auch zur Kalibrierung des Zusammenhangs zwischen Eingangsspannung am Synchronisationssystem und Pulsabstand genutzt. Beide Laser werden auf gleiche Emissionsenergie einjustiert und mittels geeigneter optischer Filter auf gleiche gemittelte Leistung eingestellt. Die Polarisationsrichtung des Lichts beider Laser wird zusätzlich durch $\lambda/2$ -Plättchen vor den jeweiligen Einkoppelungen parallel zueinander und auf die langsame Achse der Lichtwellenleiter ausgerichtet. Am Ausgang des Lichtwellenleiters befindet sich eine Auskoppeloptik und ein Linearpolarisator mit Unterdrückung besser als 10^{-5} , welcher auf p-Polarisation eingestellt ist. Die kombinierte Laseremission wird mittels einer antireflexbeschichteten, achromatischen Linse mit Brennweite $f = 25$ cm auf die Probe fokussiert.

Die Probe befindet sich in einem mit heliumgekühlten Kryostaten⁵, welcher eine minimal Temperatur von $T = 1,2$ K erreicht. Zusätzlich besitzt der Kryostat ein Paar supraleitender Spulen. Hiermit können Magnetfelder von $B = \pm 8$ T senkrecht zur Laserausbreitungsrichtung angelegt werden.

4.2.3 Detektion

Das rekollimierte Laserlicht wird über mehrere Silberspiegel in den Detektionsaufbau transmittiert. Dieser besteht aus einem Soleil-Babinet Kompensator, einem elektro-optischen Modulator (EOM), einem Wollaston-Prisma und einem balancierten, rauscharmen Fotodetektor. Der Kompensator wird zum Ausgleichen aller parasitären, zirkularen Komponenten der

⁵Oxford Instruments, Spectromag

Spiegel und Fenster im Strahlengang genutzt. Der elektro-optische Modulator⁶ dient zur Aufnahme des experimentellen Rauschuntergrunds. Dabei wird die lineare Polarisierung des Eingangslaserlichts im Mittel parallel zu einer der Hauptachsen eingestrahlt.

Der EOM fungiert als spannungsabhängiger Retarder, welcher zwischen null λ - und $\lambda/4$ -Retardierung umgeschaltet wird. Hierdurch wird die Detektionssensitivität zwischen zirkularer (Signal) und linearer (Untergrund) Doppelbrechung geschaltet.[59] Der Modulator ist aus zwei MgO-Kristallen aufgebaut, welche entlang der optischen Achse um 90° rotiert sind. Diese Konstruktion unterdrückt die starke Temperaturabhängigkeit der Retardierung eines einzelnen Kristalls. Ein erheblicher Nachteil ist, dass herstellerseitig die Hauptachsen des ersten Kristalls nicht hinreichend genau auf diejenigen des zweiten Kristalls ausgerichtet sind. Dies führt zu einer spannungsabhängigen Restmodulation des Polarisationszustands am Ausgang des Retarders. Detaillierte Untersuchungen finden sich in anderem Zusammenhang in Referenz [53].

Auf den EOM folgt ein $\lambda/2$ -Plättchen, welches die Polarisierungsebene auf das nachfolgende Wollaston-Prisma ausrichtet. Dieses zerlegt die Eingangspolarisation in ihre zwei orthogonalen Komponenten und emittiert sie in unterschiedliche Richtungen. Dadurch können beide Leistungen räumlich getrennt detektiert werden, wobei die Leistungsdifferenz das Maß für den Winkel der Eingangspolarisation ist. Als Detektor wird ein abgeglicherer Fotodetektor⁷ mit einer Bandbreite von 85 MHz benutzt. Der Detektor mittelt über die Pulse innerhalb eines Pulspaars, sodass die integrierte optische Leistung des Pulspaars in eine elektrische Spannung konvertiert wird. Folglich wird die Addition beider Pulsrotationen analog am Detektor durchgeführt. Ein speziell angepasster elektrischer Bandpass filtert zum einen die Wirkung der Laserpulsrepetition und zum anderen die der Schaltvorgänge des EOM. Schließlich wird das elektrische Signal im Messrechner digitalisiert und in Echtzeit verarbeitet.

⁶Thorlabs EO-AM-NR-C1

⁷Femto OE-200-Si

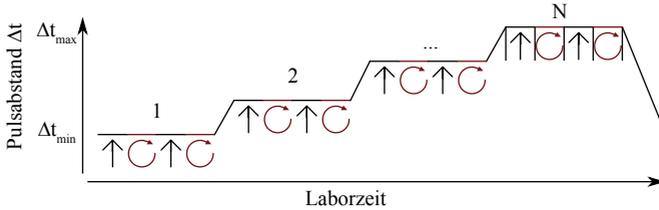


Abbildung 4.3: Schematische Darstellung der Verstimmungssequenz des zeitlichen Pulsabstands zwischen Haupt- und Folgelaser zur Messung ultraschneller Spinkorrelationen. Zur Erhaltung der Phasenstabilität beider Laser wird der Pulsabstand stufenförmig erhöht. Die eingezeichneten Pfeile deuten die synchrone Schaltung des zur Untergrundkorrektur genutzten elektro-optischen Modulators an.

4.2.4 Mess-Sequenz und Untergrundkorrektur

Zur Durchführung des Experiments werden die verschiedenen Komponenten zu einer Verstimmungssequenz zusammengefasst und synchronisiert. Diese ist schematisch in Abbildung 4.3 dargestellt. Der zeitliche Abstand beider Pulse innerhalb eines Pulspaars wird schrittweise zwischen $\Delta t = \Delta t_{\min}$ und $\Delta t = \Delta t_{\max}$ in N_s Schritten erhöht. Dabei wird zwischen zwei Schritten die am Synchronisationssystem anliegende Spannung in Form einer Rampe erhöht, sodass die Phasensynchronisation von Haupt- und Folgelaser stabil bleibt. Am Ende der Pulsabstandssequenz wird der Pulsabstand stetig auf $\Delta t = \Delta t_{\min}$ zurück reduziert. Dieser Bereich ist zur Datenerfassung nicht verfügbar.⁸ Diese Modulationsform wird gewählt, da das Phasensynchronisationssystem diese Spannungssequenz nahezu linear in eine Pulsverstimmungssequenz umsetzt. Im Experiment wird diese Sequenz typischerweise in $N_s = 96$ Schritten mit einer Zeitdauer von 100 ms durchgeführt.

Zusätzlich deuten die in Abbildung 4.3 eingezeichneten Pfeile die Retardierungsstellung des Modulators an. Dieser wird während einer Puls-

⁸Der Pulsabstand wird nicht invertiert verstimmt, da das Synchronisationssystem eine interne Hysterese besitzt.

abstandsstufe zwischen seinen beiden Retardierungsstellungen geschaltet. Beim Schaltvorgang ist zu beachten, dass alle dazwischen liegenden Retardierungen durchlaufen werden. Dadurch ist der Fotodetektor für diesen Zeitraum nicht mehr abgeglichen und reagiert mit elektrischen Überschwängern. Durch eine an diesen Effekt angepasste Spannungsrampe kann dieses Artefakt weitgehend minimiert werden. Typischerweise wird der EOM viermal pro Verstimmungsschritt geschaltet.

Mit Hilfe eines entsprechend programmierten Funktionsgenerators⁹ wird die beschriebene Verstimmungssequenz sowie die Datenerfassung durch den Digitalisierer¹⁰ gestartet. Dieser erfasst für jede Sequenz einen Datenpuffer und mittelt über diese Puffer im Verlauf des Experiments. Das Ergebnis wird zur Datenauswertung abgespeichert. Zur Veranschaulichung sind in Abbildung 4.4 die einzelnen Schritte dargestellt. Hier wurde über diejenigen Datenpunkte gemittelt, welche bei gleichem Pulsabstand und gleicher EOM-Stellung gemessen wurden. Das jeweilige Mittel ist als Funktion des Verstimmungsschritts aufgetragen. Dieser gibt den zeitlichen Pulsabstand an. In rot sind die Daten der $\lambda/4$ -Fenster und in schwarz diejenigen der null λ -Fenster dargestellt. Abbildung 4.4a zeigt das Ergebnis der Messung, wenn die Datenpunkte während der Datenerfassung nicht quadriert werden. Dann wird das symmetrisch zu $\langle \theta \rangle$ verteilte Spinrauschen herausgemittelt, sodass keine Spinkorrelation gemessen wird. Im Vergleich dazu ist in Abbildung 4.4b das Ergebnis der Messung dargestellt, wenn während der Messung jeder Eingangsdatenpunkt quadriert wird. In schwarz ist die Signatur der ultraschnellen Spinkorrelation sichtbar, während in den Untergrund-Fenstern das Signal unterdrückt ist. In (c) ist die finale Spinkorrelation dieser Messung dargestellt. Hierbei wurde die Ableitung der Daten nach dem Pulsabstand genommen, um einen verbleibenden, langsam variierenden Untergrund zu entfernen. Dieser ist auf eine pulsabstandsabhängige Antwort des verwendeten Detektors zurückzuführen.

⁹Agilent 33522A

¹⁰Alazartech ATS9462, 120 MS/s

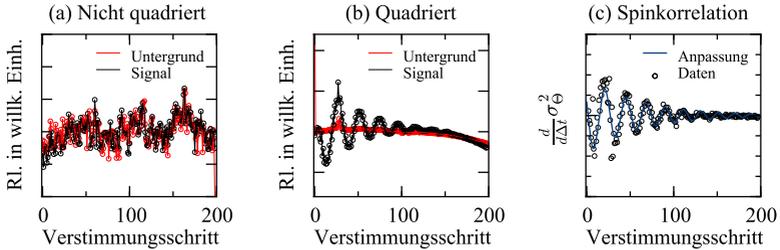


Abbildung 4.4: Qualitativer Vergleich zwischen der Mittelung über quadrierte und nicht quadrierte Eingangsdatenpunkte. In (a) und (b) sind in rot die Rauschleistung (RL) der Untergrundfenster sowie in schwarz die Rauschleistung der Signalfenster als Funktion des Verstimmungsschritts dargestellt, welcher den Pulsabstand angibt. In (a) wurde jeder Eingangsdatenpunkt nicht quadriert, sodass Spinkorrelationen effektiv gemittelt werden. In (b) wurde quadriert, sodass Spinkorrelationen detektiert werden. Zusätzlich ist keine Spinkorrelation im Untergrund (rot) zu erkennen. Weiterhin wurde ein Offset zwecks Darstellung subtrahiert. In (c) ist die extrahierte Spinkorrelation gezeigt.

4.2.5 Pulsabstandskalibrierung

Das Synchronisationssystem besitzt keine exakte Funktion zum Kalibrieren des Zusammenhangs zwischen angelegter Spannung und zeitlichem Pulsabstand.[102] Daher wird dazu ein Schmierbildkamera-System verwendet. Der Startpunkt und die Dauer der Belichtung wird hierfür mit der Pulsverstimmungssequenz synchronisiert. Der Intensitätsverlauf ist in Abbildung 4.5a farbkodiert dargestellt. Der Hauptpuls ist bei $t = t_0$ zu erkennen. Der zeitliche Abstand des Folgepulses wird innerhalb der Belichtungszeit schrittweise erhöht, wodurch weitere Intensitätsmaxima bei $t > t_0$ entstehen. Mittels numerischer Anpassung an die Daten werden die Zeitpunkte der Maxima extrahiert, sodass der Pulsabstand berechnet werden kann. Die auf diese Weise bestimmte Charakteristik ist in Abbildung 4.5b dargestellt. Es ist ein schwach nichtlinearer Zusammenhang zu erkennen, welcher bei großen Larmor-Frequenzen zu deutlichen Fehlern führt.

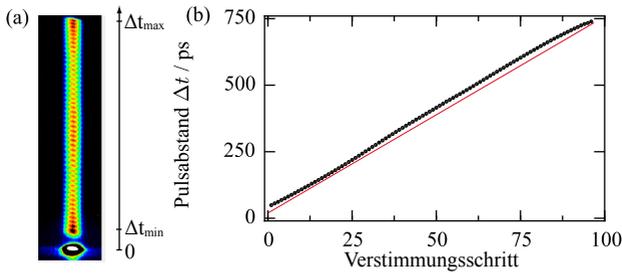


Abbildung 4.5: Nichtlineare Charakteristik des Phasensynchronisationssystems. In (a) ist der zeitliche Verlauf der Intensität während einer Pulsverstimmungssequenz dargestellt. Bei $t = 0$ ist als weißer Punkt der Hauptlaser zu erkennen. Für steigende t sind die Folgepulse sichtbar. In (b) ist die daraus extrahierte Charakteristik dargestellt. Eine leichte Krümmung des Verlaufs ist erkennbar, welche bei Nichtbeachtung zur fehlerhaften Interpretation der gemessenen Spinkorrelation führt. Die rote Linie dient der Veranschaulichung.

Des Weiteren wird beobachtet, dass diese Charakteristik von den eingestellten Regelparametern des Phasensynchronisationssystems abhängt.

4.3 Spindynamik in stark n -dotiertem Galliumarsenid

Nach ausführlicher Darstellung des experimentellen Aufbaus in Abschnitt 4.2, werden in diesem Abschnitt die Ergebnisse diskutiert. Diese weisen auf die experimentelle Beobachtung eines bisher unberücksichtigten Spindephasierungsmechanismus hin. Der Mechanismus basiert auf der räumlichen Fluktuation der Dotierungsdichte eines Volumenhalbleiters. Bemerkenswerterweise kann diese Inhomogenität durch ein einfaches Modell qualitativ beschrieben werden und besitzt im Magnetfeld eine ausgeprägte Dominanz gegenüber der Spindephasierung durch die thermisch verbreiterte Fermi-Kante.[103] Damit bilden sich die intrinsischen Schwankungen einer idealen Dotierung auf die elektronische Spindynamik ab.

Die hier dargestellten Untersuchungen stellen die Ergebnisse zweier Proben dar, welche nach dem Czochralski-Verfahren gewachsen sind. Beide Proben sind etwa $4\text{ mm} \times 4\text{ mm}$ groß und $d \approx 300\text{ }\mu\text{m}$ dick. Probe 1 ist mit einer Tellurium-Dichte von $n_d = 8,2 \times 10^{17}\text{ cm}^{-3}$ dotiert, welche bei $T = 0$ via

$$E_f = \frac{\hbar^2}{2m_e}(3\pi^2 N_d)^{2/3} \quad (4.2)$$

in einer Fermi-Energie von $E_f = 47,7\text{ meV}$ oberhalb der Leistungsbandkante resultiert. Probe 1 ist stark metallisch, vermeidet aber parasitäre Effekte durch eine erhöhte Störstellendichte, die in noch stärker dotiertem GaAs erwartet werden kann.

Probe 2 ist mit einer Silizium-Dichte von $N_d = 2,1 \times 10^{17}\text{ cm}^{-3}$ dotiert. Dies entspricht einer Fermi-Energie des entarteten Elektronengases von $19,2\text{ meV}$. Effekte durch zunehmende Elektronen-Lokalisierung oder Störstellenleitung sind in dieser Probe nicht zu erwarten. Des Weiteren ist Probe 2 beidseitig mit einer Antireflexschicht versehen, wodurch eine optimale Lichtankopplung gewährleistet ist.

Aufgrund der starken Dotierung beider Proben wird für beide Elektronensysteme eine Spindephasierung durch den Dyakonov-Perel-Mechanismus erwartet. Die Fermi-Kante liegt bei $k = k_f \neq 0$, sodass die Entartung der elektronischen Zustände gemäß der Spinaufspaltung $\hbar\Omega(\vec{k})$ im Leitungsband aufgehoben ist.[104] Weiterhin sind die Elektronenwellenfunktionen über eine große Anzahl an Einheitszellen delokalisiert.

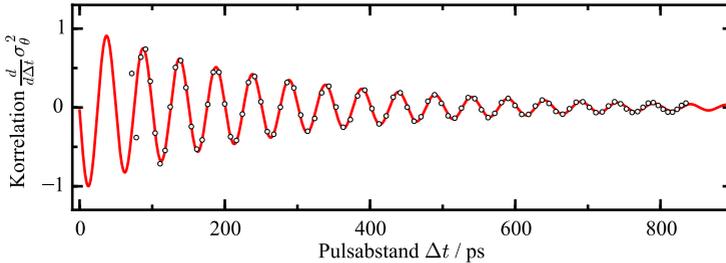


Abbildung 4.6: Die schwarzen Kreise zeigen die Ableitung der Spinkorrelation freier Leitungsbandelektronen, welche in einem transversalen Magnetfeld von $B = 6$ T bei einer Temperatur von $T = 20$ K mit ihrer Larmor-Frequenz präzidieren. Die Laserenergie beträgt $E = 1,514$ eV. Die Wirkung von Spindephasierungsprozessen ist deutlich an der Abnahme der Amplitude für $\Delta t \rightarrow \infty$ zu erkennen. In rot ist die nach Gleichung 4.3 durchgeführte numerische Anpassung abgebildet und zeigt eine sehr gute Übereinstimmung. Die Bandbreite bei dieser Messung beträgt 60 GHz und ist durch die Zahl der Schritte in einer Pulssequenz gegeben.

Abbildung 4.6 stellt die Ableitung der Spinkorrelation von Probe 1 bei einem Magnetfeld von $B = 6$ T und einer Temperatur von $T = 20$ K im Bereich zwischen 75 ps bis 820 ps dar.¹¹ Die als schwarze Kreise eingezeichneten Daten wurden dabei nach dem Pulsabstand differenziert, um ein langsam variierenden Untergrund zu entfernen (siehe Abschnitt 4.2.4). Die präsentierten Daten stellen die erstmalige Messung ultraschneller Spinkorrelationen in Halbleitern da.

Die Daten können für einen der Spinkorrelation zugrunde liegenden freien Induktionszerfall $\propto \cos(\omega_1 t) \exp(-t/\tau_s)$ durch

$$\frac{d}{d\Delta t} \sigma_\theta^2 \propto \{\omega_1 \tau_s \sin(\omega_1 \Delta t) + \cos(\omega_1 \Delta t)\} e^{-\Delta t/\tau_s} \quad (4.3)$$

¹¹Der minimale Pulsabstand von $\Delta t = 75$ ps ist durch die nichtlineare Antwort des Detektors begrenzt. Diese wird durch die vergleichsweise langsamen Photodioden verursacht.

beschrieben werden¹² und besitzen die Form einer gedämpften harmonischen Schwingung. Hier ist $\omega_1 = \hbar^{-1} g_e \mu_b B$ die Larmor-Frequenz, τ_s die Spindephasierungszeit und g_e der effektive Elektronen g -Faktor. Die numerische Optimierung von Gleichung 4.3 bzgl. ω_1 , τ_s sowie einer Konstanten, welche die Oszillationsamplitude beschreibt, bildet die gemessenen Daten über den gesamten abgetasteten Zeitbereich mit sehr hoher Genauigkeit ab.

Die Extrapolation der Optimierung nach $\Delta t = 0$ liefert eine Nullstelle und zeigt an, dass die Spinkorrelation hier wie erwartet maximal ist. In Folge der Wechselwirkung der Elektronenspins mit dem externen Magnetfeld wird eine oszillierende Spinkorrelation detektiert. Hierbei ist die Frequenz dieser periodischen Projektionsänderung auf die Beobachtungsrichtung durch die Larmor-Frequenz gegeben. Durch Spindephasierung nimmt die Spinkorrelation mit größerem Pulsabstand ab. Für $\Delta t \rightarrow \infty$ ist die Spinkorrelation des Elektronensystems zerfallen, sodass beide Laserpulsrotationen unkorreliert sind.

Abbildung 4.7 stellt die Larmor-Frequenz ν_1 als Funktion der angelegten Magnetfeldstärke im Bereich zwischen 0,5 T und 8 T dar. Die aus den Messungen extrahierten Datenpunkte sind als schwarze Kreise eingezeichnet. Die rote Linie ist die numerische Anpassung mittels

$$\nu_1 = \mu_b h^{-1} g_e \cdot B, \quad (4.4)$$

wodurch ein Elektronen g -Faktor von $g_e = -0,236$ extrahiert wird. Dieser Wert liegt im Bereich der Literaturwerte.[105] Das Vorzeichen wurde aus der Relation

$$g_e = -0,48 + \beta \cdot E \quad (4.5)$$

ergänzt, welche die Energieabhängigkeit des g -Faktors beschreibt. Weiterhin wird der gemessene Wert des g -Faktors zur Bestimmung von $\beta = 5,3 \text{ eV}^{-1}$ in Gleichung 4.5 benutzt. Dieser Wert weicht von dem aus den Referenzen [62, 106] ab und kann durch die starke Dotierung und der damit verursachten Bandkantenrenormierung [107] bedingt sein.

In Abbildung 4.8 ist die Abhängigkeit der Spindephasierungszeit τ_s von der angelegten transversalen Magnetfeldstärke auf einem Intervall von 0 T

¹²Gleichung 4.3 stellt eine Näherung für den inhomogenen Anteil zur Spindephasierung dar.

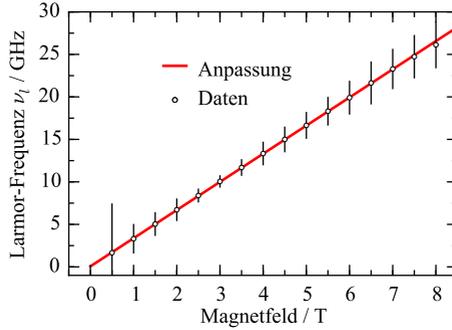


Abbildung 4.7: Larmor-Frequenz als Funktion des Magnetfelds. In rot ist die numerische Anpassung auf Basis von Gleichung 4.4 eingezeichnet. Die Fehlerbalken sind die jeweiligen 150σ -Vertrauensintervalle der numerischen Optimierung und verdeutlichen dessen Zuverlässigkeit. Für $B = 8\text{ T}$ wird eine Larmor-Frequenz von $\nu_l \approx 25\text{ GHz}$ detektiert. Der aus der Steigung extrahierte Elektronen g -Faktor beträgt $|g_e| = 0,236$.

bis 8 T dargestellt. Die Spindephasierungszeit ist eine monoton fallende Funktion der angelegten Magnetfeldstärke. Für $B \rightarrow 0$ sättigt τ_s auf einen gemessenen Wert von $\tau_s(B = 0) = 360\text{ ps}$ ab,¹³ wobei der relative Fehler der numerischen Anpassung auf 20 % steigt. Dieser gemessene Wert liegt im Bereich der bereits zuvor in n -GaAs gemessenen Spindephasierungszeiten [108], wodurch als Spindephasierung der Dyakanov-Perel-Mechanismus bestätigt wird. Dieser ist durch

$$\tau_s^{-1} = \frac{32}{105} \gamma_3^{-1} \alpha^2 \frac{E_f^3}{\hbar^2 E_g} \cdot \tau_p \quad (4.6)$$

mit der Impulsstreuzeit τ_p der Ladungsträger an der Fermi-Kante verbunden. Bei tiefen Temperaturen ist als Impulsstreumechanismus die Streuung an ionisierten Störstellen dominant, sodass in Gleichung 4.6 $\gamma_3 = 6$

¹³Durch die Untergrundkorrektur mittels elektro-optischen Modulator kann auch im Bereich verschwindender Larmor-Präzession gemessen werden.

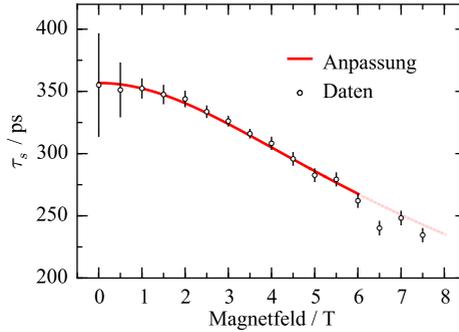


Abbildung 4.8: Abhängigkeit der Spindephasierungszeit τ_s vom angelegten Magnetfeld. Der gemessene Wert $\tau_s(B = 0)$ ist durch den Dyakonov-Perel-Mechanismus bestimmt. Für steigendes Magnetfeld wird dieser durch die Wirkung einer g -Faktor-Fluktuation überlagert. Der Bereich $B > 6$ T wird nicht zur Anpassung genutzt, da hier die in Abschnitt 3.4 beschriebenen Effekte durch Landau-Quantisierung einsetzen.

und $\alpha = 0.07$ ist.[109] Weiterhin bezeichnet E_g die Bandlücke. Mit Hilfe von Gleichung 4.6 wird $\tau_p = 70$ fs berechnet. Ein Literaturvergleich zeigt gute Übereinstimmung.[110]

Zudem ist in 4.8 abgebildet, dass bei Vergrößerung des Magnetfelds die Spindephasierungszeit abnimmt. Qualitativ ist der Verlauf von $\tau_s(B)$ unerwartet: Klassisch werden die Elektronen durch das Magnetfeld aufgrund der wirkenden Lorentz-Kraft auf Kreisbahnen abgelenkt. Dadurch finden ständige Impulsänderungen auf der Zeitskala der Zyklotron-Frequenz statt, sodass eine effektive Mittelung der Impulszustände des Elektronengases stattfindet. Das System gelangt folglich mit steigendem Magnetfeld in den Bereich des „motional narrowing“, sodass eine Zunahme der Spindephasierungszeit erwartet werden kann. Kikkawa et al. [111] haben dieses „Quenchen“ des Dyakonov-Perel-Mechanismus in noch stärker dotiertem GaAs mittels resonanter Spinverstärkung beobachtet. Eine umfangreiche theoretische Arbeit zur Spindephasierung im Magnetfeld eines dreidimen-

sionalen Elektronengases haben Bronold et al. [103] verfasst, in der insbesondere der Effekt der unterschiedlichen Elektronenbesetzung der Quantenzustände um die Fermi-Kante berücksichtigt ist. Dieser inhomogene Effekt wird erst bei Feldstärken $B > 15 \text{ T}$ dominant.

Die beobachtete Abnahme kann durch eine inhomogene Verteilung der Elektronen- g -Faktoren im untersuchten Spinensemble erklärt werden. Dadurch präzidieren die magnetischen Momente mit unterschiedlichen Larmor-Frequenzen, wodurch der Ensemble-Spin zerfällt. Demnach findet ein Übergang von homogener zu inhomogener Spindephasierung mit steigendem Magnetfeld statt. Die eingezeichnete, rote Linie ist die Anpassung, welche auf der inversen Breite eines approximierten Voigt-Profiles beruht:

$$\tau_s(B) = (\pi w_v)^{-1} \approx \frac{1}{\pi} \left(c_0 \gamma_h + \sqrt{c_1 \gamma_h^2 + (\gamma_i/\pi)^2} \right)^{-1}. \quad (4.7)$$

Darin ist $\gamma_h = 1/\tau_s(0)$ die homogene Spindephasierungsrate, welche bei $B = 0$ gemessen wird. Die Größen c_0 und c_1 sind Konstanten.[112] Der inhomogene Anteil der Spindephasierung wird durch die Standardabweichung der g -Faktor-Verteilung σ_g charakterisiert und ist direkt mit der inhomogenen Spindephasierungsrate via $\gamma_i = \sigma_g \mu_b B/\hbar$ verbunden. Die Anpassung mit Gleichung 4.7 bezüglich γ_h und γ_i liefert $\sigma_g^{(1)} = 3,4 \times 10^{-3}$.

Bemerkenswerterweise lässt sich der inhomogene Anteil der Spindephasierung durch ein einfaches Modell der Wirkung einer im Gitter fluktuierenden Dotierungsdichte auf den Elektronen- g -Faktor beschreiben: Das Fermi-Niveau der Leitungsbandelektronen ist im gesamten System konstant. Die thermodynamisch bedingten stochastischen Abweichungen der Dotierung vom Mittelwert erzeugen lokale Raumladungszonen $\delta\rho(r)$, welche die Bandstruktur relativ zur Fermi-Energie durch ein zusätzliches Potential verschiebt. In erster Näherung jedoch propagiert ein Leitungsbandelektron ungestört durch diese Umgebung über eine Distanz von $\bar{r} = v_f \cdot \tau_p/2$. Darin ist $v_f = \sqrt{2E_f/m_e}$ die Fermi-Geschwindigkeit. Innerhalb der Spindephasierungszeit wird vom Elektron diese Umgebung über ein Volumen

$$\bar{V} = \frac{4}{3} \pi \bar{r}^3 \cdot \tau_s/\tau_p \quad (4.8)$$

gemittelt, wobei unter den angegebenen Bedingungen $\bar{V} \approx 0,1 \mu\text{m}^3$ ist. Bei

rein stochastischer Verteilung der Dotieratome fluktuiert deren Anzahl in einem solchen Volumen mit $\delta N = \sqrt{\bar{V} \cdot n_d}$ und resultiert aufgrund der Energieabhängigkeit des g -Faktors in einer Fluktuation δg . Mit

$$\delta g = \frac{\partial g}{\partial E} \frac{\partial E}{\partial n_d} \delta n_d \quad (4.9a)$$

$$\delta n_d = \delta N / \bar{V} \quad (4.9b)$$

liefert dieses Modell zusammen mit Gleichung 4.5 eine quantitative Abschätzung von $\sigma_g^{(1)} = 5,4 \cdot 10^{-4}$. Dieser Wert ist ein Faktor sechs kleiner als der experimentell beobachtete Wert, jedoch deutlich größer als der übliche inhomogene Effekt durch Elektronen in unterschiedlichen k -Zuständen um die Fermi-Kante.[103]

Auch andere Inhomogenitäten können zum gemessenen Wert von $\sigma_g^{(1)}$ beitragen. Die Variation des Messvolumens durch Verschiebung des Strahlfokus auf der Probe ergibt eine Standardabweichung von $\sigma_g = 9,6 \cdot 10^{-4}$. Dieser Wert entspricht der oberen Grenze der Messgenauigkeit und kann die gemessene Inhomogenität nicht vollständig erklären.

Mit Hilfe des entwickelten Modells lässt sich die Abhängigkeit der g -Faktor-Verteilung von der Dotierungsdichte ableiten und mit dem Experiment vergleichen. Aus der Kombination der Zusammenhänge in Gleichung 4.2, 4.8 und 4.9 folgt:

$$\sigma_g \propto \left. \frac{\partial E_F}{\partial n_d} \right|_{n_d} \delta n \propto n_d^{2/3} \sqrt{\tau_s(0)} \quad (4.10)$$

und wird im Folgenden mit den experimentellen Daten von Probe 2 verglichen.

Abbildung 4.9 zeigt die an Probe 2 gemessene Spindephasierungszeit in Abhängigkeit der angelegten Magnetfeldstärke. Für $B \rightarrow 0$ wird eine Spindephasierungszeit von $\tau_s = 980$ ps gemessen. Dies entspricht qualitativ der Erwartung durch den Dyakonov-Perel-Mechanismus: Aufgrund der geringeren Dotierung liegt die Fermi-Kante näher am Leistungsbandminimum, sodass die Spinaufspaltung $\hbar\Omega(k)$ kleiner ist. In Folge dessen wird eine im Vergleich zu Probe 1 längere Spindephasierungszeit beobachtet. Weiterhin wird aus diesem Wert eine Impulsstreuzeit von $\tau_p = 380$ fs. Auch dieser Wert ist durch ionisierte Störstellenstreuung limitiert.

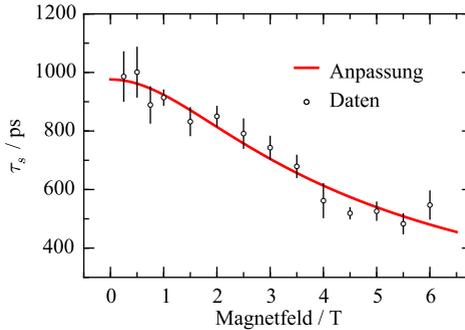


Abbildung 4.9: Abhängigkeit der Spindephasierungszeit τ_s vom angelegten Magnetfeld in Probe 2. Die kleinere Spinaufspaltung an der Fermi-Kante führt zu einer längeren Spindephasierungszeit $\tau_s(B = 0)$ im Vergleich zu Probe 1. Für steigendes Magnetfeld nimmt τ_s entsprechend der inversen Breite eines Voigt-Profiles ab und bestätigt qualitativ die Erwartung für σ_g nach Gleichung 4.9.

Interessanterweise nimmt auch in dieser Probe die Spindephasierungszeit mit steigendem Magnetfeld ab. Zur Quantifizierung wird eine numerische Anpassung gemäß Gleichung 4.6 durchgeführt, welche als rote Linie in Abbildung 4.9 eingezeichnet ist. Die extrahierte Breite der g -Faktor-Verteilung in Probe 2 beträgt $\sigma_g^{(2)} = 2,8 \cdot 10^{-4}$ und ist um 18% geringer als die von Probe 1. Diese beobachtete Abnahme bestätigt qualitativ die Prognose des Modells basierend auf Gleichung 4.10 zusammen mit den Spindephasierungszeiten bei $B = 0$ in Probe 1 und 2.

Das Verhältnis der g -Faktor-Fluktuation beider Proben beträgt

$$\sigma_g^{(2)}/\sigma_g^{(1)} \approx 0,82, \quad (4.11)$$

wobei nach Gleichung 4.10 als theoretischer Wert ein Verhältnis von 0,63 erwartet wird. Diese quantitative Abweichung kann durch den Wert des lokalen Mittelungsvolumen verursacht sein (siehe Gleichung 4.8). Weiterhin sind Effekte z.B. durch Elektron-Elektron-Wechselwirkung oder Abschir-

mung nicht in diesem einfachen Modell berücksichtigt. Dennoch ist die abgeschätzte Wirkung einer fluktuierenden Dotierstoffkonzentration auf die Spindephasierung von n -GaAs im Magnetfeld um Größenordnungen stärker als der übliche Mechanismus durch Elektronen in unterschiedlichen Quantenzuständen an der Fermi-Kante.

4.4 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde zunächst die experimentelle Umsetzung der ultraschnellen Spinrauschspektroskopie demonstriert. Besonderer Wert wurde auf die ausführliche Beschreibung des Aufbaus dieser neuen Messmethode gelegt. Dabei wurde die bisher zur Verfügung stehende Bandbreite um mehr als zwei Größenordnungen erhöht. Untersuchungen von Magnonen in Yttrium-Eisen-Granat werden dadurch ermöglicht.[113, 114]

Ein Demonstrationsexperiment in hochdotiertem GaAs wurde durchgeführt. Die gemessene Spindephasierungszeit bei $B = 0$ stimmt mit zuvor bestimmten Werten aus der Literatur überein und zeigt die Verlässlichkeit der neuen Messmethode. Die Bedeutung des Dyakonov-Perel-Mechanismus für die Spindynamik in n -GaAs wurde bestätigt. Weiterhin wurden Hinweise auf einen bisher unberücksichtigten Spindephasierungsmechanismus stark delokalisierten Elektronen im Magnetfeld gefunden. Diese Beobachtung ist im Wesentlichen durch die effiziente Mittelung über das vergleichsweise große Messvolumen ermöglicht.

Eine einfache Erklärung der beobachteten Abnahme der Spindephasierungszeit mit steigendem Magnetfeld wurde entwickelt. Das Modell basiert auf der unausweichlichen, statistischen Fluktuation der Dotierung. Dadurch werden lokale Raumladungszonen erzeugt und der g -Faktor modifiziert. Die Modifikation wird durch die Standardabweichung σ_g quantifiziert. Diese beträgt in Probe 1 $\sigma_g^{(1)} = 3,4 \times 10^{-3}$. Mit Hilfe des Modells wird eine Abnahme der Standardabweichung mit geringer Dotierung prognostiziert.

Ein zweites Experiment in geringer dotiertem n -GaAs wurde durchgeführt. Die beobachtete Spindephasierungszeit ist ebenfalls konsistent mit dem Dyakonov-Perel-Mechanismus. Auch hier wird eine deutliche Abnahme mit steigendem Magnetfeld beobachtet. Die extrahierte Stan-

Abweichung beträgt $\sigma_g^{(2)} = 2,8 \cdot 10^{-4}$. Hierdurch wird die Prognose des Modells qualitativ bestätigt. Die quantitative Abweichung beträgt 25%. Diese Abweichung kann durch das lokale Mittelungsvolumen Gleichung 4.8 verursacht sein. Dennoch ist der vorgeschlagene Mechanismus gegenüber dem bisher üblichem inhomogenen Mechanismus durch die kontinuierliche Elektronenbesetzung um die Fermi-Kante im Magnetfeld dominant.

In dieser Arbeit wurde ein umfassendes Bild der Spindynamik in n -dotiertem GaAs mittels Spinrauschspektroskopie präsentiert. Dabei wurde sowohl das Elektronengas des Leitungsbands in stark n -dotiertem GaAs als auch das nicht-wechselwirkende System aus Donatorelektronen in schwach dotiertem GaAs einheitlich mittels Spinrauschspektroskopie untersucht. Der gesamte Zeitbereich der in dieser Arbeit untersuchten Spindynamik erstreckt sich von wenigen Hundert Pikosekunden des delokalisierten Elektronensystems im Magnetfeld mehrerer Tesla bis hinauf zu mehreren Hundert Mikrosekunden des Kernspinsystems im Bereich lokaler Magnetfelder des Gitters.

Im Bereich der Donatorelektronen wurde erstmalig durch Spinrauschspektroskopie die endliche Overhauser-Verschiebung der Präzessionsdynamik eines Elektronenspin-Ensembles beobachtet. Die gemessenen Daten zeigen eindeutig die maxwell-artige Kernfeldverteilung, welche als transversale Komponente im Modell der Spindephasierung durch Hyperfeinwechselwirkung erwartet wird. Ein Wert von $\delta B_n = 4,6 \text{ mT}$ wurde aus den Daten extrahiert. Zur Untersuchung des Grenzfalls geringer Abfrageleistungen konnte die experimentelle Sensitivität derart gesteigert wer-

den, dass im stark verdünnten Ensemble nur noch eine äußerst schwache Abhängigkeit der longitudinalen Spindephasierungszeit von der Anregungsdichte beobachtet wurde. Hier wurde erstmalig ein Wert von $\tau_k = 310$ ns für eine effektive Restanregungsdichte von drei Größenordnungen unterhalb der Donatordichte gemessen. Der gemessene Wert ist intrinsisch limitiert und konnte der Rückwirkung des Kernspinbads auf die Elektronenspindynamik zugeordnet werden.

Weiterhin wurde der Einfluss einer endlichen Korrelationszeit erstmalig auf die spektrale Form des Spinrauschspektrums durch ein quantitatives Modell beschrieben. Die Verteilung der Rauschleistung bei moderater Anregung zwischen longitudinaler und transversaler Komponente konnte in dieser Arbeit erstmalig erklärt werden und macht die außerordentliche Bedeutung der Anregung auf die Spindynamik eines stark verdünnten Elektronenensembles klar. Die durchgeführten Messungen zeigen das facettenreiche Zusammenspiel des Kern- und Elektronenspinsystems in schwach dotiertem GaAs, wie es in der gesamten Klasse der III-V Halbleitermaterialien erwartet werden kann.

Ferner wurde im Rahmen dieser Arbeit erstmalig das Kernspinrauschen in Halbleitern mittels optischer Spinrauschspektroskopie gemessen. Das Kernspinrauschen wurde im Frequenzbereich $\nu < 65$ kHz gefunden, wobei die detektierten, scharfen Signaturen eindeutig der stochastischen Spinpolarisation der drei GaAs Gitterisotope zugeordnet werden konnten. Das Kernspinrauschen überträgt sich durch Fluktuationen an der donatorgebundenen Exzitonresonanz auf die optische Faraday-Rotationsfluktuation. Die präsentierte Theorie erklärt mitunter quantitativ die beobachtete Kernspinrauschleistung. Ebenfalls wurde das Kernspinrauschen bei Feldern im Bereich lokaler Magnetfelder untersucht, welches eine signifikante, komplexe Dynamik aufweist. Die Kernspinresonanzen zeigen eine deutliche, nicht lineare Abhängigkeit der Mittenfrequenz mit dem angelegten Magnetfeld. Auch die Anzahl der beobachteten Resonanzen ist magnetfeldabhängig. Die gemessene Dynamik deutet die Präsenz von Wechselwirkungen innerhalb des Kernbads des nahezu perfekten Halbleiters an. Diese Beobachtungen ermöglichen die Untersuchung der Kernspindynamik ohne Anwendung starker Magnetfelder oder intensiver Mikrowellenpulse. Dieser Vorteil grenzt die Kernspinrauschspektroskopie deutlich von anderen Me-

thoden wie der optisch detektierten Kernspinresonanzspektroskopie ab. Somit können die in dieser Arbeit durchgeführten Beobachtungen den Grundstein für weitere Untersuchung im Rahmen des „Central Spin Problem“ legen. Insbesondere der Effekt *interner* Kernbad-Wechselwirkungen auf die zeitliche Entwicklung eines einzelnen Zentralspins kann mit den hier geschaffenen Grundlagen systematisch untersucht werden.

Daneben wurde die optische Antwort von GaAs im Magnetfeld im Bereich der Bandkante im Rahmen des klassischen Voigt-Effekts untersucht. Zusammen mit der Interbandabsorption wird ein Hinweis auf die Ursache der in Referenz [21] beobachteten Spinpolarisation geliefert. Auch Effekte durch die magnetfeldinduzierte Quantisierung der Elektronenorbits im Leitungsband konnten anhand der Polarisation des transmittierten Laserlichts gemessen werden und wurden zur Bestimmung wichtiger halbleiterphysikalischer Größen genutzt.

Darüber hinaus wurde in dieser Arbeit erstmalig die ultraschnelle Spinrauschspektroskopie experimentell umgesetzt. Es wurden Spindephasierungszeiten im Bereich weniger Hundert Pikosekunden mittels Spinrauschspektroskopie gemessen. Dies erweitert das Anwendungsfeld der Spinrauschspektroskopie erheblich und ermöglicht zukünftig z. B. die Untersuchungen von Magnonen in Yttrium-Eisen-Granat im Rahmen der festkörperbasierten Bose-Einstein-Kondensation von Quasiteilchen. [113, 114]

Die Messmethode der ultraschnellen Spinrauschspektroskopie wurde auf stark n -dotiertes GaAs angewandt. Durch die Detektion der Spindynamik im transparenten Spektralbereich des Halbleiters konnte ein bisher unberücksichtigter Spindephasierungsmechanismus im Magnetfeld aufgedeckt werden. Er beruht auf der unausweichlichen, statistischen Schwankung der Dotierung im Gitter. Der vorgeschlagenen Mechanismus ist dabei deutlich stärker als der üblich angenommene Mechanismus durch die kontinuierliche energetische Verteilung der Elektronen um die Fermi-Energie. Die allgemeinen Grundannahmen des entwickelten Modells lassen eine Bedeutung für die Spindephasierung aller hochdotierter Elektronensysteme im Magnetfeld erwarten.

Zusammenfassend stellt diese Arbeit das komplexe Zusammenspiel *aller* magnetischer Momente in n -GaAs im thermodynamischen Gleichgewicht bei kryogenen Temperaturen dar.

- [1] G. E. Uhlenbeck und S. Goudsmit, „Ersetzung der Hypothese vom unmechanischen Zwang durch eine Forderung bezüglich des inneren Verhaltens jedes einzelnen Elektrons“, *Die Naturwissenschaften* **13**, 953–954 (1925).
- [2] B. E. Kane, „A silicon-based nuclear spin quantum computer“, *Nature* **393**, 133–137 (1998).
- [3] J. Stajic, „The Future of Quantum Information Processing“, *Science* **339**, 1163–1163 (2013).
- [4] D. P. DiVincenzo, „The Physical Implementation of Quantum Computation“, *Fortschritte der Physik* **48**, 771–783 (2000).
- [5] M. W. Wu, J. H. Jiang und M. Q. Weng, „Spin dynamics in semiconductors“, *Physics Reports* **493**, 61–236 (2010).
- [6] G. M. Müller, M. Römer, D. Schuh, W. Wegscheider, J. Hübner und M. Oestreich, „Spin Noise Spectroscopy in GaAs (110) Quantum Wells: Access to Intrinsic Spin Lifetimes and Equilibrium Electron Dynamics“, *Physical Review Letters* **101**, 206601 (2008).

- [7] D. J. English, J. Hübner, P. S. Eldridge, D. Taylor, M. Henini, R. T. Harley und M. Oestreich, „Effect of symmetry reduction on the spin dynamics of (001)-oriented GaAs quantum wells“, *Physical Review B* **87**, 075304 (2013).
- [8] P. M. Koenraad und M. E. Flatte, „Single dopants in semiconductors“, *Nature Materials* **10**, 91–100 (2011).
- [9] A. Bechtold, D. Rauch, F. Li, T. Simmet, P.-L. Ardel, A. Regler, K. Müller, N. A. Sinitsyn und J. J. Finley, „Three-stage decoherence dynamics of an electron spin qubit in an optically active quantum dot“, *Nature Physics* (2015) 10.1038/nphys3470.
- [10] J. Hackmann und F. B. Anders, „Spin noise in the anisotropic central spin model“, *Physical Review B* **89**, 045317 (2014).
- [11] K. A. Al-Hassanieh, V. V. Dobrovitski, E. Dagotto und B. N. Harmon, „Numerical Modeling of the Central Spin Problem Using the Spin-Coherent-State P Representation“, *Physical Review Letters* **97**, 037204 (2006).
- [12] W. K. Liu, K. M. Whitaker, A. L. Smith, K. R. Kittilstved, B. H. Robinson und D. R. Gamelin, „Room-Temperature Electron Spin Dynamics in Free-Standing ZnO Quantum Dots“, *Physical Review Letters* **98**, 186804 (2007).
- [13] L. Childress, M. V. G. Dutt, J. M. Taylor, A. S. Zibrov, F. Jelezko, J. Wrachtrup, P. R. Hemmer und M. D. Lukin, „Coherent Dynamics of Coupled Electron and Nuclear Spin Qubits in Diamond“, *Science* **314**, 281–285 (2006).
- [14] D. H. Feng, I. A. Akimov und F. Henneberger, „Nonequilibrium Nuclear-Electron Spin Dynamics in Semiconductor Quantum Dots“, *Physical Review Letters* **99**, 036604 (2007).
- [15] L. R. Schreiber und H. Bluhm, „Quantum computation: Silicon comes back“, *Nature Nanotechnology* **9**, 966–968 (2014).
- [16] L.-M. Duan, M. D. Lukin, J. I. Cirac und P. Zoller, „Long-distance quantum communication with atomic ensembles and linear optics“, *Nature* **414**, 413–418 (2001).

-
- [17] K.-M. C. Fu, W. Yeo, S. Clark, C. Santori, C. Stanley, M. C. Holland und Y. Yamamoto, „Millisecond spin-flip times of donor-bound electrons in GaAs“, *Physical Review B* **74**, 121304 (2006).
- [18] R. Kubo, „The fluctuation-dissipation theorem“, *Reports on Progress in Physics* **29**, 255 (1966).
- [19] D. Gammon, A. L. Efros, T. A. Kennedy, M. Rosen, D. S. Katzer, D. Park, V. L. Korenev und I. A. Merkulov, „Electron and Nuclear Spin Interactions in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots“, *Physical Review Letters* **86**, 5176–5179 (2001).
- [20] V. I. PEREL' und B. P. ZAKHARCHENYA, „CHAPTER 1 - Major Physical Phenomena in the Optical Orientation and Alignment in Semiconductors“, in *Modern Problems in Condensed Matter Sciences*, Bd. 8, hrsg. von F. M. P. ZAKHARCHENYA, Optical Orientation (Elsevier, 1984), S. 1–10.
- [21] K. Schmalbuch, S. Göbbels, P. Schäfers, C. Rodenbücher, P. Schlammes, T. Schäpers, M. Lepsa, G. Güntherodt und B. Beschoten, „Two-Dimensional Optical Control of Electron Spin Orientation by Linearly Polarized Light in InGaAs“, *Physical Review Letters* **105**, 246603 (2010).
- [22] S. Starosielec und D. Hägele, „Ultrafast spin noise spectroscopy“, *Applied Physics Letters* **93**, 051116 (2008).
- [23] F. Berski, H. Kuhn, J. G. Lonnemann, J. Hübner und M. Oestreich, „Ultrahigh Bandwidth Spin Noise Spectroscopy: Detection of Large g-Factor Fluctuations in Highly-n-Doped GaAs“, *Physical Review Letters* **111**, 186602 (2013).
- [24] Y. G. Chai, „The effect of growth conditions on Si incorporation in molecular beam epitaxial GaAs“, *Applied Physics Letters* **39**, 800 (1981).
- [25] D. Paget und P. B. Klein, „Shallow donors in semi-insulating GaAs and their role in the excitation of the 0.64-eV photoluminescence“, *Physical Review B* **34**, 971–978 (1986).

- [26] D. E. Aspnes und A. A. Studna, „Dielectric functions and optical parameters of Si, Ge, GaP, GaAs, GaSb, InP, InAs, and InSb from 1.5 to 6.0 eV“, *Physical Review B* **27**, 985–1009 (1983).
- [27] S. B. Nam, D. C. Reynolds, C. W. Litton, R. J. Almassy, T. C. Collins und C. M. Wolfe, „Free-exciton energy spectrum in GaAs“, *Physical Review B* **13**, 761–767 (1976).
- [28] M. A. Lampert, „Mobile and Immobile Effective-Mass-Particle Complexes in Nonmetallic Solids“, *Physical Review Letters* **1**, 450–453 (1958).
- [29] H. Haken und H. C. Wolf, *Molekülphysik und Quantenchemie*, Springer”=Lehrbuch (Springer-Verlag, Berlin/Heidelberg, 2006).
- [30] M. Neumann, *Optische Analyse von schwach dotiertem GaAs* (Leibniz Universität Hannover, Hannover, 2014).
- [31] N. J. Stone, „Table of nuclear magnetic dipole and electric quadrupole moments“, *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **90**, 75–176 (2005).
- [32] K. J. R. Rosman und P. D. P. Taylor, „Isotopic compositions of the elements 1997 (Technical Report)“, *Pure and Applied Chemistry* **70** (1998) 10.1351/pac199870010217.
- [33] I. Vurgaftman, J. R. Meyer und L. R. Ram-Mohan, „Band parameters for III–V compound semiconductors and their alloys“, *Journal of Applied Physics* **89**, 5815–5875 (2001).
- [34] S. Adachi, „GaAs, AlAs, and Al_xGa_{1-x}As: Material parameters for use in research and device applications“, *Journal of Applied Physics* **58**, R1–R29 (1985).
- [35] A. Abragam, *The principles of nuclear magnetism*, Reprinted., The international series of monographs on physics ; 32Oxford science publications (Oxford Univ. Press, Oxford [u.a.], 2006), xvi+599.
- [36] R. Dahbashi, J. Hübner, F. Berski, K. Pierz und M. Oestreich, „Optical Spin Noise of a Single Hole Spin Localized in an (InGa)As Quantum Dot“, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 156601 (2014).

-
- [37] D. Paget, G. Lampel, B. Sapoval und V. I. Safarov, „Low field electron-nuclear spin coupling in gallium arsenide under optical pumping conditions“, *Physical Review B* **15**, 5780–5796 (1977).
- [38] I. A. Merkulov, A. L. Efros und M. Rosen, „Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots“, *Physical Review B* **65**, 205309 (2002).
- [39] A. W. Overhauser, „Polarization of Nuclei in Metals“, *Physical Review* **92**, 411–415 (1953).
- [40] A. V. Khaetskii, D. Loss und L. Glazman, „Electron Spin Decoherence in Quantum Dots due to Interaction with Nuclei“, *Physical Review Letters* **88**, 186802 (2002).
- [41] D. Pines und C. P. Slichter, „Relaxation Times in Magnetic Resonance“, *Physical Review* **100**, 1014–1020 (1955).
- [42] G. D. Mahan und R. Woodworth, „Spin-exchange scattering in semiconductors“, *Physical Review B* **78**, 075205 (2008).
- [43] M. M. Glazov, „Spin noise of localized electrons: Interplay of hopping and hyperfine interaction“, *Physical Review B* **91**, 195301 (2015).
- [44] J. S. Blakemore, *Semiconductor statistics*, Reprint., Dover books on physics and chemistry (Dover Publ., New York, 1987), xviii+381.
- [45] E. C. Larkins und J. S. Harris, „Molecular Beam Epitaxy of High-Quality GaAs and AlGaAs“, in *Molecular Beam Epitaxy* (Elsevier, 1995), S. 114–274.
- [46] G. Czycholl, *Theoretische Festkörperphysik*, Springer-Lehrbuch (Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2008).
- [47] N. W. Ashcroft und N. D. Mermin, *Festkörperphysik*, 4., verb. Aufl. (Oldenbourg, München, 2013), xxx+1050.
- [48] P. D. P. Yu, P. Dr und D. h. c. M. Cardona, „Electronic Band Structures“, in *Fundamentals of Semiconductors*, Graduate Texts in Physics (Springer Berlin Heidelberg, 1996), S. 17–105.
- [49] H. S. W. Massey, „Theory of the Scattering of Slow Electrons“, *Reviews of Modern Physics* **28**, 199–213 (1956).

- [50] K. V. Kavokin, „Spin relaxation of localized electrons in n-type semiconductors“, *Semiconductor Science and Technology* **23**, 114009 (2008).
- [51] G. M. Müller, M. Oestreich, M. Römer und J. Hübner, „Semiconductor spin noise spectroscopy: Fundamentals, accomplishments, and challenges“, *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures* **43**, 569–587 (2010).
- [52] M. Oestreich, M. Römer, R. J. Haug und D. Hägele, „Spin Noise Spectroscopy in GaAs“, *Physical Review Letters* **95**, 216603 (2005).
- [53] A. Beichert, *Intrinsische Spindynamik homogener Elektronenensembles in GaAs* (Institut für Festkörperphysik, Hannover, 2014).
- [54] S. Adachi, *Gaas and Related Materials: Bulk Semiconducting and Superlattice Properties* (World Scientific Publishing Company, Singapore, 1994), 694 S.
- [55] V. R. Agarwal, D. S. Rawal und H. P. Vyas, „Review: Back-Side via Hole Etching Process for Grounding GaAs Based Monolithic Microwave Integrated Circuits“, *Journal of The Electrochemical Society* **152**, G567–G576 (2005).
- [56] H. Bernien, *Spinrauschspektroskopie an Donatoren in GaAs*, 2009.
- [57] F. Berski, J. Hübner, M. Oestreich, A. Ludwig, A. D. Wieck und M. Glazov, „Interplay of Electron and Nuclear Spin Noise in *n*-Type GaAs“, *Physical Review Letters* **115**, 176601 (2015).
- [58] M. Römer, *Spinrauschspektroskopie in Halbleitern* (Technische Informationsbibliothek und Universitätsbibliothek, Hannover, 2010), 185 S.
- [59] C. H. Schulte, *Spinrauschspektroskopie an Ensembles lokalisierter Donator-Elektronen* (Leibniz Universität Hannover, Hannover, 2011).
- [60] P.-F. Braun, X. Marie, L. Lombez, B. Urbaszek, T. Amand, P. Renucci, V. K. Kalevich, K. V. Kavokin, O. Krebs, P. Voisin und Y. Masumoto, „Direct Observation of the Electron Spin Relaxation Induced by Nuclei in Quantum Dots“, *Physical Review Letters* **94**, 116601 (März 23, 2005).

- [61] X. M. Dou, B. Q. Sun, D. S. Jiang, H. Q. Ni und Z. C. Niu, „Electron spin relaxation in a single InAs quantum dot measured by tunable nuclear spins“, *Phys. Rev. B* **84**, 033302 (2011).
- [62] J. Hübner, S. Döhrmann, D. Hägele und M. Oestreich, „Temperature-Dependent Electron Landé g Factor and the Interband Matrix Element of GaAs“, *Physical Review B* **79**, 193307 (2009).
- [63] J. S. Colton, T. A. Kennedy, A. S. Bracker, J. B. Miller und D. Gammon, „Dependence of optically oriented and detected electron spin resonance on donor concentration in n-GaAs“, *Solid State Communications* **132**, 613–616 (2004).
- [64] A. De, C. E. Pryor und M. E. Flatté, „Electric-Field Control of a Hydrogenic Donor’s Spin in a Semiconductor“, *Physical Review Letters* **102**, 017603 (2009).
- [65] M. Seck, M. Potemski und P. Wyder, „High-field spin resonance of weakly bound electrons in GaAs“, *Physical Review B* **56**, 7422–7427 (1997).
- [66] R. I. Dzhioev, K. V. Kavokin, V. L. Korenev, M. V. Lazarev, B. Y. Meltser, M. N. Stepanova, B. P. Zakharchenya, D. Gammon und D. S. Katzer, „Low-temperature spin relaxation in n-type GaAs“, *Physical Review B* **66**, 245204 (2002).
- [67] E. Finkman, M. D. Sturge und R. Bhat, „Oscillator strength, lifetime and degeneracy of resonantly excited bound excitons in GaAs“, *Journal of Luminescence* **35**, 235–238 (1986).
- [68] D. E. Hill, „Near band-edge optical absorption in pure GaAs“, *Solid State Communications* **11**, 1187–1191 (1972).
- [69] E. H. Bogardus und H. B. Bebb, „Bound-exciton, Free-exciton, Band-acceptor, Donor-acceptor, and Auger Recombination in GaAs“, *Physical Review* **176**, 993–1002 (1968).
- [70] V. A. Karasyuk, D. G. S. Beckett, M. K. Nissen, A. Villemaire, T. W. Steiner und M. L. W. Thewalt, „Fourier-transform magnetophotoluminescence spectroscopy of donor-bound excitons in GaAs“, *Physical Review B* **49**, 16381–16397 (1994).

- [71] I. Pelant, *Luminescence Spectroscopy of Semiconductors*, hrsg. von J. Valenta (OUP, Oxford, 2012), 557 S.
- [72] J. R. Haynes, „Experimental Proof of the Existence of a New Electronic Complex in Silicon“, *Physical Review Letters* **4**, 361–363 (1960).
- [73] F. Bloch, „Nuclear Induction“, *Physical Review* **70**, 460–474 (1946).
- [74] T. Sleator, E. L. Hahn, C. Hilbert und J. Clarke, „Nuclear-spin noise“, *Physical Review Letters* **55**, 1742–1745 (1985).
- [75] D. Paget, „Optical detection of NMR in high-purity GaAs: Direct study of the relaxation of nuclei close to shallow donors“, *Physical Review B* **25**, 4444–4451 (1982).
- [76] J. M. Kikkawa und D. D. Awschalom, „All-Optical Magnetic Resonance in Semiconductors“, *Science* **287**, 473–476 (2000).
- [77] Y. S. Chen, D. Reuter, A. D. Wieck und G. Bacher, „Dynamic Nuclear Spin Resonance in *n*-GaAs“, *Physical Review Letters* **107**, 167601 (2011).
- [78] N. Kushibiki, M. Tsukamoto und T. Erata, „Solid-state high-resolution NMR studies on gallium arsenide and indium gallium arsenide semiconductors“, *Chemical Physics Letters* **129**, 303–305 (1986).
- [79] D. A. Alexson und D. D. Smith, „NMR spectroscopy with force-gradient detection on a GaAs epitaxial layer“, *Journal of Magnetic Resonance* **235**, 66–70 (2013).
- [80] M. S. Kuznetsova, K. Flisinski, I. Y. Gerlovin, M. Y. Petrov, I. V. Ignatiev, S. Y. Verbin, D. R. Yakovlev, D. Reuter, A. D. Wieck und M. Bayer, „Nuclear magnetic resonances in (In,Ga)As/GaAs quantum dots studied by resonant optical pumping“, *Physical Review B* **89**, 125304 (März 17, 2014).
- [81] P. S. Sokolov, M. Y. Petrov, T. Mehrstens, K. Müller-Caspary, A. Rosenauer, D. Reuter und A. D. Wieck, „Reconstruction of nuclear quadrupole interaction in (In,Ga)As/GaAs quantum dots observed by transmission electron microscopy“, (2015).

-
- [82] „Chapter 2 Physical background“, in *Pergamon Materials Series*, Bd. 6, hrsg. von K. J. D. M. E. Smith, *Multinuclear Solid-State NMR of Inorganic Materials* (Pergamon, 2002), S. 23–108.
- [83] I. A. Merkulov, „Formation of a nuclear spin polaron under optical orientation in GaAs-type semiconductors“, *Physics of the Solid State* **40**, 930–933 (1998).
- [84] I. A. Merkulov, G. Alvarez, D. R. Yakovlev und T. C. Schulthess, „Long-term dynamics of the electron-nuclear spin system of a semiconductor quantum dot“, *Physical Review B* **81**, 115107 (März 3, 2010).
- [85] R. Oulton, A. Greulich, S. Y. Verbin, R. V. Cherbunin, T. Auer, D. R. Yakovlev, M. Bayer, I. A. Merkulov, V. Stavarache, D. Reuter und A. D. Wieck, „Subsecond Spin Relaxation Times in Quantum Dots at Zero Applied Magnetic Field Due to a Strong Electron-Nuclear Interaction“, *Physical Review Letters* **98**, 107401 (März 7, 2007).
- [86] H. Oohashi, H. Ando und H. Kanbe, „Homogeneous linewidth of bound excitons in high-purity GaAs measured by spectral hole burning“, *Physical Review B* **54**, 4702–4706 (1996).
- [87] S. Teitler und E. D. Palik, „Voigt Effect in Semiconductors“, *Physical Review Letters* **5**, 546–548 (1960).
- [88] W. Kuch, R. Schäfer, P. Fischer und F. U. Hillebrecht, „Magneto-Optical Effects“, in *Magnetic Microscopy of Layered Structures*, Springer Series in Surface Sciences 57 (Springer Berlin Heidelberg, 2015), S. 19–95.
- [89] A. K. Zvezdin und V. A. Kotov, *Modern Magneto-optics and Magneto-optical Materials* (CRC, 1. Jan. 1997), 414 S.
- [90] A. PETROU und B. D. McCOMBE, „CHAPTER 12 - Magneto-spectroscopy of Confined Semiconductor Systems“, in *Modern Problems in Condensed Matter Sciences*, Bd. 27, hrsg. von G. L. I. RASHBA, *Landau Level Spectroscopy* (Elsevier, 1991), S. 679–775.

- [91] D. G. SEILER und A. E. STEPHENS, „CHAPTER 18 - The Shubnikov–de Haas Effect in Semiconductors: A Comprehensive Review of Experimental Aspects“, in *Modern Problems in Condensed Matter Sciences*, Bd. 27, hrsg. von G. L. I. RASHBA, Landau Level Spectroscopy (Elsevier, 1991), S. 1031–1133.
- [92] M. Zvára und V. Prosser, „Influence of Free Carriers on the Faraday Rotation and Faraday Ellipticity in the Exciton Absorption Region of GaAs“, *physica status solidi (b)* **57**, 773–782 (1973).
- [93] M. Bass, *Design, fabrication, and testing; sources and detectors; radiometry and photometry*, 3. Aufl. (McGraw, New York [u.a.], 2010), 1272 S.
- [94] P. Sterin, *Effekte zweiter Ordnung* (Institut für Festkörperphysik, Hannover, 2015).
- [95] C. J. Gabriel und H. Piller, „Determination of the optical Verdet coefficient in semiconductors and insulators“, *Applied Optics* **6**, 661 (1967).
- [96] M. Balkanski und E. Amzallag, „Band Parameters Determination from Faraday Rotation Measurements“, *physica status solidi (b)* **30**, 407–439 (1968).
- [97] A. Raymond, J. L. Robert und C. Bernard, „The electron effective mass in heavily doped GaAs“, *Journal of Physics C: Solid State Physics* **12**, 2289–2293 (1979).
- [98] R. R. Alfano und D. H. Baird, „Use of the Faraday Effect to Determine Electron Concentrations and Concentration Profiles in n-GaAs“, *Journal of Applied Physics* **39**, 2931–2936 (1968).
- [99] L. Yang, P. Glasenapp, A. Greilich, D. Reuter, A. D. Wieck, D. R. Yakovlev, M. Bayer und S. A. Crooker, „Two-colour spin noise spectroscopy and fluctuation correlations reveal homogeneous linewidths within quantum-dot ensembles“, *Nature Communications* **5** (2014) 10.1038/ncomms5949.
- [100] J. Hübner, F. Berski, R. Dahbashi und M. Oestreich, „The rise of spin noise spectroscopy in semiconductors: From acoustic to GHz frequencies“, *physica status solidi (b)* **251**, 1824–1838 (2014).

-
- [101] J. Hübner, J. G. Lonnemann, P. Zell, H. Kuhn, F. Berski und M. Oestreich, „Rapid scanning of spin noise with two free running ultrafast oscillators“, *Optics Express* **21**, 5872 (2013).
- [102] J. G. Lonnemann, *Ultraschnelle Spin-Rausch-Spektroskopie* (Leibniz Universität Hannover, Hannover, 2011).
- [103] F. X. Bronold, I. Martin, A. Saxena und D. L. Smith, „Magnetic-field dependence of electron spin relaxation in *n*-type semiconductors“, *Physical Review B* **66**, 233206 (2002).
- [104] G. Dresselhaus, „Spin-Orbit Coupling Effects in Zinc Blende Structures“, *Physical Review* **100**, 580–586 (1955).
- [105] P. Pfeffer und W. Zawadzki, „Conduction electrons in GaAs: Five-level kp-theory and polaron effects“, *Physical Review B* **41**, 1561–1576 (1990).
- [106] M. A. Hopkins, R. J. Nicholas, P. Pfeffer, W. Zawadzki, D. Gauthier, J. C. Portal und M. A. DiForte-Poisson, „A study of the conduction band non-parabolicity, anisotropy and spin splitting in GaAs and InP“, *Semiconductor Science and Technology* **2**, 568 (1987).
- [107] G. Borghs, K. Bhattacharyya, K. Deneffe, P. V. Miegheem und R. Mertens, „Band-gap narrowing in highly doped *n*- and *p*-type GaAs studied by photoluminescence spectroscopy“, *Journal of Applied Physics* **66**, 4381–4386 (1989).
- [108] M. Beck, *Electron spin relaxation, transport and strain-induced precession in *n*-GaAs*, Physik mikrostrukturierter Halbleiter 40 (Lehrstuhl für Mikrocharakterisierung, Friedrich-Alexander-Univ., Erlangen, 2005), iv+196.
- [109] V. Marushchak, M. Stepanova und A. Titkov, „Electron-Spin Relaxation in Moderately Doped GaAs Crystals“, *Fizika Tverdogo Tela* **25**, WOS:A1983RY35300004, 3537–3542 (1983).
- [110] I. Žutić, J. Fabian und S. Das Sarma, „Spintronics: Fundamentals and applications“, *Reviews of Modern Physics* **76**, 323–410 (2004).
- [111] J. M. Kikkawa und D. D. Awschalom, „Resonant spin amplification in *n*-type GaAs“, *Physical Review Letters* **80**, 4313 (1998).

- [112] J. J. Olivero und R. L. Longbothum, „Empirical fits to the Voigt line width: A brief review“, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* **17**, 233–236 (1977).
- [113] G. M. Müller, *Spin dynamics of equilibrium electrons in gallium arsenide* (Technische Informationsbibliothek u. Universitätsbibliothek, Hannover, 2010), 143 S.
- [114] S. O. Demokritov, V. E. Demidov, O. Dzyapko, G. A. Melkov, A. A. Serga, B. Hillebrands und A. N. Slavin, „Bose–Einstein condensation of quasi-equilibrium magnons at room temperature under pumping“, *Nature* **443**, 430–433 (2006).
- [115] I. Barycka und I. Zobel, „Chemical etching of (100) GaAs in a sulphuric acid-hydrogen peroxide-water system“, *Journal of materials science* **22**, 1299–1304 (1987).
- [116] J.-H. Kim, D. H. Lim und G. M. Yang, „Selective etching of Al-GaAs/GaAs structures using the solutions of citric acid/H₂O₂ and de-ionized H₂O/buffered oxide etch“, *Journal of Vacuum Science Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures* **16**, 558–560 (März 1998).
- [117] E. Yablonovitch, T. Gmitter, J. P. Harbison und R. Bhat, „Extreme selectivity in the lift-off of epitaxial GaAs films“, *Applied Physics Letters* **51**, 2222–2224 (1987).
- [118] E. Collett, *Polarized light in fiber optics*, [SPIE PM ; 147] (The PolaWave Group, Lincroft, NJ, 2003), ix+540.
- [119] M. Bass, *Design, fabrication, and testing; sources and detectors; radiometry and photometry*, 3. Aufl. (McGraw, New York [u.a.], 2010), 1272 S.
- [120] T. Dietl und H. Ohno, „Dilute ferromagnetic semiconductors: Physics and spintronic structures“, *Reviews of Modern Physics* **86**, 187–251 (März 24, 2014).
- [121] A. Winter, H. Pascher, H. Krenn, X. Liu und J. K. Furdyna, „Interpretation of hysteresis loops of GaMnAs in the framework of the Stoner–Wohlfarth model“, *Journal of Applied Physics* **108**, 043921 (2010).

| | | |
|------|---|----|
| 2.1 | Energiediagramm des donatorgebundenen Exzitons | 22 |
| 2.2 | Absorptionsspektrum der untersuchten hochreinen GaAs-Probe im Bereich der Bandkante | 24 |
| 2.3 | Spinrauschspektren für verschiedene Korrelationszeiten . . . | 32 |
| 2.4 | Modell eines teilweise kompensierten Halbleiters | 33 |
| 2.5 | Berechneter Lokalisierungsgrad des Ensembles aus Donatorelektronen als Funktion von Temperatur und Akzeptordichte | 35 |
| 2.6 | Temperaturabhängigkeit der Spinaustauschstreuung mit freien Elektronen | 37 |
| 2.7 | Experimenteller Aufbau zur Spinrauschspektroskopie an Donatorelektronen | 39 |
| 2.8 | Exemplarische Darstellung der Untergrundkorrektur bei Spinrauschmessungen | 42 |
| 2.9 | Schematischer Aufbau der untersuchten Donatorprobe . . . | 46 |
| 2.10 | Spinrauschen donatorgebundener Elektronen in Galliumarsenid | 48 |

| | | |
|------|--|-----|
| 2.11 | Abhängigkeit der Rate γ_e von der Anregungsdichte | 52 |
| 2.12 | Abhängigkeit der Spinrauschleistung A_1 vom transversalen Magnetfeld | 54 |
| 2.13 | Temperaturabhängigkeit der Spinrauschleistung donatorge- bundener Elektronen | 55 |
| 2.14 | Temperaturabhängigkeit der Rate γ_e sowie der optischen Absorption | 58 |
| 2.15 | Gemessene Spinrauschleistungsdichte der magnetischen Kern- momente | 60 |
| 2.16 | Magnetfeldabhängigkeit des Kernspinrauschens | 62 |
| 2.17 | Magnetfeldabhängigkeit der GaAs-Gitterisotope | 64 |
| 2.18 | Magnetfeldabhängigkeit der Spinrauschleistung von ^{75}Ga | 66 |
| 2.19 | Zeitliche Entwicklung des Kernspinrauschens | 69 |
| 2.20 | Schematische Darstellung der Wirkung einer Kernspinpola- risation auf die exzitonische Donator-Resonanz | 72 |
| 3.1 | Schematische Darstellung der betrachteten Geometrie zur Untersuchung von GaAs im Magnetfeld. | 79 |
| 3.2 | Schematische Skizze der Landau-Niveaus im Leitungsbands | 82 |
| 3.3 | Aufbau zur Untersuchung der magneto-optischen Antwort von n -GaAs | 83 |
| 3.4 | Doppelbrechender Kryostat-Hintergrund anhand der Ellip- tizität des transmittierten Laserlichts | 85 |
| 3.5 | Elliptizität von hochdotiertem GaAs als Funktion des Ma- gnetfelds | 86 |
| 3.6 | Winkelabhängigkeit der berechneten Elliptizität | 87 |
| 3.7 | Elliptizität von hochdotiertem GaAs als Funktion des Ma- gnetfelds für verschiedene Temperaturen | 89 |
| 3.8 | Temperaturabhängigkeit von Streuzeit τ und quadratischem Koeffizient η | 90 |
| 4.1 | Faraday-Rotationsrauschen, schematisch | 96 |
| 4.2 | Aufbauskitze zur ultraschnellen Spinrauschspektroskopie. | 97 |
| 4.3 | Schematische Darstellung der Pulsverstimmssequenz der ultraschnellen Spinrauschspektroskopie | 100 |

| | | |
|-----|---|-----|
| 4.4 | Qualitativer Vergleich zwischen der Mittelung über quadrierte und nicht quadrierte Eingangsdatenpunkte. | 102 |
| 4.5 | Nichtlineare Charakteristik des Phasensynchronisations-Systems | 103 |
| 4.6 | Ultraschnelle Spinkorrelation in n -GaAs | 105 |
| 4.7 | Larmor-Frequenz als Funktion des Magnetfelds in metallischem GaAs | 107 |
| 4.8 | Abhängigkeit der Spindephasierungszeit vom angelegten Magnetfeld in stark n -dotiertem GaAs | 108 |
| 4.9 | Abhängigkeit der Spindephasierungszeit vom angelegten Magnetfeld in Probe 2 | 111 |
| A.1 | Datenblatt der untersuchten Donatorprobe. | 142 |
| A.2 | Hysterese der Magnetisierung in GaMnAs. | 145 |
| A.3 | Faraday-Rotation in GaMnAs. | 146 |
| A.4 | Gemessenes Rauschleistungsspektrum in GaMnAs. | 147 |

| | | |
|-----|--|-----|
| 2.1 | Isotope, magnetische Momente und relative Häufigkeit in GaAs | 25 |
| 2.2 | Anpassungsparameter der nuklearen Larmor-Präzession . . . | 50 |
| 2.3 | Zusammenfassung der gemessenen magnetischen Momente der GaAs Gitterisotope | 65 |
| A.1 | Überblick der Prozess-Schritte zum nass-chemischen Ätzen des Zugangslochs | 141 |

Betreute Arbeiten

- P. Sterin „*N. N.*“, Masterarbeit, Leibniz Universität Hannover
- M. Neumann „*Optische Analyse von schwach dotiertem GaAs*“, Bachelorarbeit, Leibniz Universität Hannover, 2014
- A. Beichert „*Intrinsische Spindynamik homogener Elektronensembles in GaAs*“, Masterarbeit, Leibniz Universität Hannover, 2014
- C. H. H. Schulte „*Spinrauschspektroskopie an Ensembles lokalisierter Donator-Elektronen*“, Masterarbeit, Leibniz Universität Hannover, 2011
- J. G. Lonnemann „*Ultraschnelle Spin-Rausch-Spektroskopie*“, Diplomarbeit, Leibniz Universität Hannover, 2011

A.1 Donatorgebundene Elektronen

A.1.1 Probenprozessierung

Entsprechend den experimentellen Anforderungen ist ein senkrechter Kreiszyylinder durch das Substrat an die MBE-Schicht heran zu prozessieren. Die Höhe des Zylinders entspricht dabei idealerweise der Substratdicke $h \approx 630 \mu\text{m}$. Der Durchmesser des Zugangslochs ist bestenfalls nur geringfügig größer als die Strahltaile des verwendeten Laserlichts:

$d \approx 15 \mu\text{m} > w_0$. Weiterhin darf die Oberflächenrauigkeit nicht schlechter als

$\lambda/10 \approx 80 \text{nm}$ sein, da ansonsten die Rekollimierung des stark fokussierten Laserlichts zur anschließenden Detektion nicht gewährleistet ist. Das genannte Aspektverhältnis ist mit den zur Verfügung stehenden nass-chemischen Verfahren im Reinraum des LNQE nicht zu erwarten. Dennoch wird die Probe nass-chemisch prozessiert.¹

¹Eine weitere Möglichkeit wurde mit Herrn J. Koch vom Laser Zentrum Hannover besprochen. Diese Alternative auf mikro-mechanischer Laserbearbeitung ist durch-

Zur Vorbereitung des Zugangslochs wird aus dem Probenmaterial ein $4\text{ mm} \times 4\text{ mm}$ großes Probenstück gebrochen. Dabei wird die Substratseite entlang zweier zueinander senkrechter Kristallrichtungen vorgeritzt, gespalten und mit der MBE-Schichtseite auf einen Präzessionsobjektträger fixiert. Dabei werden die Kanten der Probe durch ein Wachs² vor dem Kontakt mit der Säure geschützt. Dies erleichtert die Handhabung der Probe und vereinfacht die spätere Kontrolle des Ätzfortschritts.

Die zunächst verwendete Ätze besteht aus eine Lösung aus H_2SO_4 , H_2O_2 und H_2O (vgl. Piranha-solution) im Verhältnis $29\text{ mL} : 24,7\text{ mL} : 24,7\text{ mL}$. Dieses Verhältnis wird gewählt, damit der Ätzprozess diffusionslimitiert stattfindet und die Oberfläche gleichmäßig geätzt wird.[115] Beim Mischen von Wasserstoffperoxid mit der verdünnten Säure darf die Temperatur nicht über 40°C steigen, da ansonsten durch die stark exotherme Reaktion Wasserstoffperoxid in Wasser und Wasserstoff zerfällt. Die an einem GaAs Referenzmaterial bestimmte Ätzrate beträgt etwa 110 nm s^{-1} , variiert zum Teil stark und hängt auch vom Alter der Lösung ab. Daher wird die Ätzrate bei jeder neu erstellten Ätze an einem Referenzstück bestimmt.

Zu Beginn des ersten Prozessierungsschritts wird die Probe in einem Ultraschallbad aus Aceton, Isopropanol, und Methanol gesäubert. Danach wird durch Auftragen eines säurebeständigen Abdeckmittels ein zu Anfang 64 mm^2 großer Bereich definiert, auf dem das Zugangsloch präpariert wird. Die Positionierung des Zugangslochs wird dabei manuell unter einem optischen Mikroskop etwa in der Mitte der Probe durchgeführt.³ Anschließend wird die präparierte Probe ein weiteres Mal gereinigt und für einige Zeit geätzt. Mit Hilfe eines konfokalen Mikroskops⁴ wird anhand der entstandenen Ätzstufe der Fortschritt kontrolliert. Dieser Vorgang wird bis zu einer Membrandicke von $17\text{ }\mu\text{m}$ wiederholt, wobei der unbedeckte Bereich stetig verkleinert wird, sodass ein trichterförmiges Loch entsteht. Die Wiederholungen sind in Tabelle A.1 zusammengefasst und zeigen, dass eine gute Kontrolle über die Ätzrate erreicht wurde. Nach Ende von Prozessschritt

aus vielversprechend, wurde aber nicht notwendig.

²Apiezon W

³Nach Kontakt mit Allresist wurde von einem lithografischen Prozess abgesehen, da kein Lack den Anforderungen aufgrund des langen Ätzprozesses genügte.

⁴Leica DCM 3D

Tabelle A.1: Überblick der Prozess-Schritte zum nass-chemischen Ätzen des Zugangslochs

| Schritt | Dicke/(μm) | Ätzrate/($\mu\text{m}/\text{s}$) |
|---------|-------------------------|------------------------------------|
| 1 | 640 | |
| 2 | 290 | 0.1 |
| 3 | 188 | 0.07 |
| 4 | 128 | 0.08 |
| 5 | 84 | 0.1 |
| 6 | 31 | kein Wert |
| 7 | 27 | 0.12 |
| 8 | 22 | 0.12 |
| 9 | 17 | 0.12 |

9 ist der Boden des Zugangslochs etwa $160 \mu\text{m} \times 260 \mu\text{m}$ groß.

Der nächste Schritt besteht aus dem Ätzen mit einem Zitronensäure / Wasserstoffperoxid-Gemisch im Volumenverhältnis 2:1, welches GaAs selektiv gegen AlAs ätzt.[116] Die Probe wird für 20 min in das Gemisch bei Raumtemperatur getaucht. Das Ergebnis wird wiederum mittels konfokalem Mikroskop überprüft. Die AlAs Schicht ist durch die vergleichsweise glatte Oberfläche unter dem Mikroskop deutlich zu erkennen (nicht abgebildet). Auf diesen Schritt folgend wird die Probe in HF für 15 s getaucht, wodurch die 100 nm-AlAs Schicht entfernt wird.[117] Das verbleibende Übergitter wird durch zehnmaliges Tauchen der Probe abwechselnd in Zitronensäure / H_2O_2 und HF entfernt. Zwischen dem Eintauchen wird die Probe mit Reinwasser gespült.

A.1.2 Probendatenblatt

A Anhang

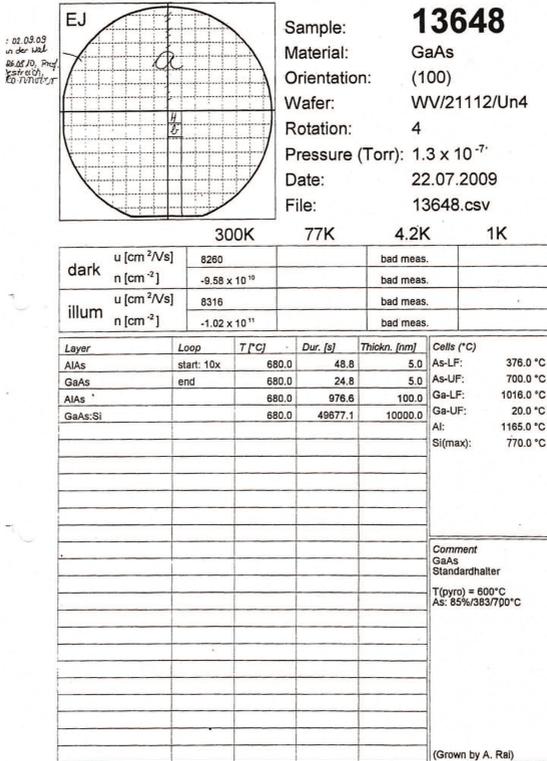


Abbildung A.1: Datenblatt der untersuchten Donatorprobe

A.2 Stokes Polarimeter

Das durch die Probe transmittierte Laserlicht wird mit einem selbstentwickelten Polarimeter analysiert. Dieses ist aus einem rotierendem $\lambda/4$ -Plättchen, einem Linearpolarisator und einem Photodetektor aufgebaut. Dabei enthält der zeitliche Verlauf der optischen Leistung am Detektor bei Rotation des $\lambda/4$ -Plättchens die Information über den Polarisationszustand des Lichts am Eingang des Polarimeters, welcher im Müller-Matrix Formalismus beschrieben wird. Dabei werden die vier Stokes-Parameter S_0, S_1, S_2, S_3 zu einem Stokes-Vektor

$$\mathbf{S} = \begin{pmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{pmatrix}. \quad (\text{A.1})$$

zusammengefasst. Diese sind bezüglich der Leistung des Lichts P bzw. dessen elektrischen Felds E auf folgende Weise definiert:

$$S_0 = P_{0^\circ} + P_{90^\circ} = \langle E_x^2 + E_y^2 \rangle \quad (\text{A.2a})$$

$$S_1 = P_{0^\circ} - P_{90^\circ} = \langle E_x^2 - E_y^2 \rangle \quad (\text{A.2b})$$

$$S_2 = P_{45^\circ} - P_{135^\circ} = \langle 2E_x E_y \cos(\delta) \rangle \quad (\text{A.2c})$$

$$S_3 = P_{\sigma^+} - P_{\sigma^-} = \langle 2E_x E_y \sin(\delta) \rangle. \quad (\text{A.2d})$$

Dabei bezeichnet z. B. P_{0° diejenige Leistungskomponente des einfallenden Lichts, die durch ein um 0° gedrehter idealer Linearpolarisator transmittiert wird. Anhand der Definition wird deutlich, dass z. B. S_0 für vollständig polarisiertes Licht die Gesamtleistung des Lichtes beschreibt. Die Wirkung optischer Komponenten auf den Polarisationszustand kann in diesem Formalismus durch Multiplikation einer der Optik entsprechenden 4×4 Matrix \mathcal{M} von links an den Eingang-Stokes-Vektor erhalten werden:

$$\mathbf{S}_{\text{out}} = \mathcal{M} \mathbf{S}_{\text{in}}. \quad (\text{A.3})$$

Folglich wird die mathematische Beschreibung der Wirkung einer Polarisationsoptik auf die Matrix-Vektor Multiplikation zurückgeführt. Eine Auflistung der wichtigsten Polarisationsmatrizen findet sich in Referenz [118, 119].

A.3 Spinrauschspektroskopie in paramagnetischem Gallium-Mangan-Arsenid

Die Dotierung mit Mangan-Atomen von GaAs führt zu einem Material, welches halbleitende und ferromagnetische Eigenschaften kombiniert und eine eigene Materialklasse bildet. Diese wird als verdünnter magnetischer Halbleiter bezeichnet.[120]

A.3.1 Experiment

Die Probe ist ein $d \approx 70$ nm $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ Dünnschicht mit einem Mangan Anteil von $x = 0,045$. Die Probe wurde an der Universität Würzburg von Fanny Greullet in der Gruppe von Prof. Dr. Molenkamp mittels Molekularstrahlepitaxie gewachsen. Für optische Transmissionsmessungen wurde der Dünnschicht auf ein Saphirsubstrat transferiert.

Zur Vorbereitung der späteren Spinrauschmessungen werden Faraday-Rotationsmessungen am Dünnschicht als Funktion der Proben temperatur und Laserenergie durchgeführt. Dazu wird die Probe in einem Badkryostat⁵ auf Temperaturen zwischen $T = 1,2$ K bis 65 K abgekühlt. Zusätzlich stellt der Kryostat die für die Durchführung des Experiments notwendigen Magnetfeldstärken von $B \approx \pm 200$ mT zur Verfügung wobei das Magnetfeld parallel zur Probenoberfläche zeigt. Das zur Untersuchung genutzte linear polarisierte Laserlicht wird durch eine $f = 25$ cm Linse auf die Probe mit einer Strahlweite von $w_0 \approx 80$ μm fokussiert. Das Experiment wird in Faraday-Geometrie durchgeführt.

Abbildung A.2 zeigt die bei $T = 1,2$ K, einer einkommenden optischen Leistung von $P = 2,1$ mW und einer Laserenergie von $E = 1,53807$ eV gemessene Faraday-Rotation als Funktion des Magnetfelds. Der Winkel der Faraday-Rotation wurde dabei auf den Wert der Sättigung bei $B = -190$ mT normiert und dort die Messung begonnen. Weiterhin wurde ein paramagnetischer Anteil zur Faraday-Rotation aus den Daten durch eine numerisch angepasste Gerade im Bereich $B < 140$ mT entfernt. Die Daten zeigen klare Signaturen ferromagnetischer Ordnung, welche in Form der Hysterese bei $B = \pm 100$ mT erkennbar sind. Referenz [121] kann die

⁵Oxford Spektromag

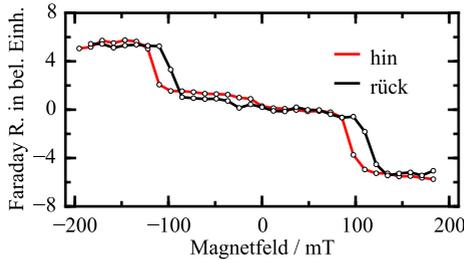


Abbildung A.2: Hysterese der Magnetisierung in GaMnAs. Die physikalische Interpretation der Daten kann Referenz [121] entnommen werden.

Interpretation der Daten entnommen werden.

Abbildung A.3 (a) zeigt Faraday-Rotationsmessungen als Funktion des Magnetfelds für verschiedene Probestemperaturen. Mit steigender Temperatur nimmt erwartungsgemäß die Sättigungsmagnetisierung ab, wodurch die Curie Temperatur des Systems T_c experimentell bestimmt werden kann. Abbildung A.3 (b) zeigt die aus (a) extrahierte Abhängigkeit der Sättigungsrotation ϕ als Funktion der Temperatur. Für $T = T_c = 60$ K ist keine signifikante Sättigungsrotation mehr messbar.

Abbildung A.3 (c) zeigt die bei $T = 4,2$ K und $P \approx 2$ mW gemessene Sättigungsrotation als Funktion der Abfrageenergie. Keine experimentell signifikante Abhängigkeit ist erkennbar. Aufgrund der freien Ladungsträgerdichte und der damit verbundenen hohen Abschirmung sowie interner elektrischer Felder ist in GaMnAs die optische Resonanz des untersuchten Valenzband-Leitungsbandübergangs stark verbreitert. Folglich ist auf dem untersuchten Energiebereich keine deutliche Abhängigkeit zu beobachten.

Abbildung A.4 zeigt das Ergebnis der Messungen mittels Spinrauschspektroskopie in paramagnetischen GaMnAs für drei Magnetfelder. Der genutzte Elektromagnet wurde dabei nicht bezüglich des Probevolumens kalibriert, sodass der durch diesen fließende Strom als Maß des erzeugten Magnetfelds angegeben ist. Dabei wurde die Probe in einen Durch-

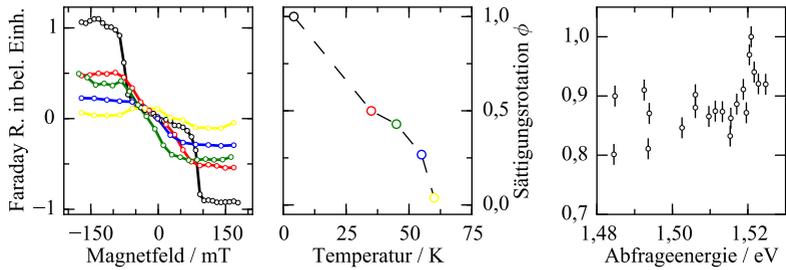


Abbildung A.3: Links: Faraday-Rotation in GaMnAs als Funktion des Magnetfelds. Mitte: Sättigungsrotation in Abhängigkeit der Temperatur. Rechts: Einfluss der Abfrage-Energie auf die Sättigungsrotation.

flußkryostaten eingebaut und ein transversales Magnetfeld angelegt. Die Laserenergie beträgt etwa $E = 1,4938$ eV.

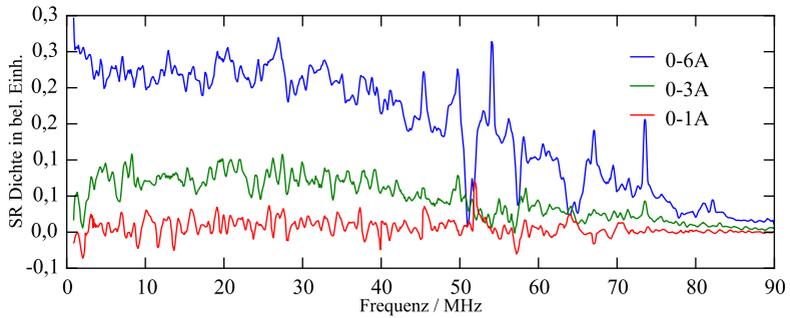


Abbildung A.4: Gemessenes Rauschleistungsspektrum in paramagnetischem GaMnAs berechnet aus der Differenz der Spektren bei $B_1 = 0$ mT und $B_2 \propto 6$ A, $\propto 3$ A und $\propto 1$ A.

Teile dieser Arbeit sind in folgenden Veröffentlichungen erschienen.

In Fachzeitschriften:

- **F. Berski**, J. Hübner, M. Oestreich, A. Ludwig, A. D. Wieck und M. Glazov, „*Interplay of Electron and Nuclear Spin Noise in n-Type GaAs*“, Phys. Rev. Lett. **115**, 176601 (2015).
- **F. Berski**, H. Kuhn, J.G. Lonnemann, J. Hübner und M. Oestreich, „*Ultrahigh Bandwidth Spin Noise Spectroscopy: Detection of Large g-Factor Fluctuations in Highly-n-Doped GaAs*“, Phys. Rev. Lett. **111**, 186002 (2013).
- J. Hübner, J.G. Lonnemann, P. Zell, H. Kuhn, **F. Berski** und M. Oestreich, „*Rapid scanning of spin noise with two free running ultrafast oscillators*“, Optics Express **21**, 5872 (2013).
- R. Dahbashi, J. Hübner, **F. Berski**, K. Pierz und M. Oestreich, „*Optical Spin Noise of a Single Hole Spin Localized in an (InGa)As Quantum Dot*“, Phys. Rev. Lett. **112**, 156601(2014).

- J. Hübner, **F.Berski**, R. Dahbashi, und M. Oestreich, „*The rise of spin noise spectroscopy in semiconductors: From acoustic to GHz frequencies*“, physica status solidi (b) **251**, 1824-1838 (2014).
- J. Hübner, R. Dahbashi, **F.Berski**, J. Wiegand, H. Kuhn, J. G. Lonnemann und M. Oestreich, „*Spin noise spectroscopy in semiconductors: from billion down to single spins*“, Proc. SPIE, Spintronics VII **9167**, 91672R (2014)
- R. Dahbashi, J. Hübner, **F.Berski**, J. Wiegand, X. Marie, K. Pierz, H.W. Schumacher und M. Oestreich, „*Measurement of heavy-hole spin dephasing in (InGa)As quantum dots*“, Applied Physics Letters **100**, 031906 (2012).
- M. Oestreich, R. Dahbashi, **F.Berski** und J. Hübner, „*Spin noise spectroscopy: hole spin dynamics in semiconductor quantum dots*“, Proc. SPIE, Spintronics V **8461**, 946105 (2012)

Als Beiträge auf Konferenzen

- F. Berski, P. Sterin, J. Hübner, A. D. Wieck und M. Oestreich, „*Distinct Nuclear Spin Signatures in the Spin Noise of Donor Bound Electrons*“, Vortrag, DPG-Frühjahrstagung, Dresden (2015)
- F. Berski, M. Neumann, J. Hübner und M. Oestreich, „*Verschänkung und Manipulation von Halbleiterspinsystemen*“, Kurzvortrag, Q.com Schwerpunktreffen, Bad Honnef (2014)
- F. Berski, H. Kuhn, J. G. Lonnemann, J. Hübner und M. Oestreich, „*Ultrahigh Bandwidth Spin Noise Spectroscopy*“, Vortrag, DPG-Frühjahrstagung, Dresden (2014)
- F. Berski, A. Beichert, J. Hübner, A.D. Wieck und M. Oestreich, „*Spin Noise Spectroscopy: Towards Solid-State Entanglement*“, Vortrag, DPG-Frühjahrstagung, Regensburg (2013)
- F. Berski, H. Kuhn, J. G. Lonnemann, P. Zell, J. Hübner und M. Oestreich, „*Ultrafast Spin Noise Spectroscopy*“, Poster, Physics and

Applications of Spin-related Phenomena in Semiconductors, Eindhoven (Niederlande)(2012)

- F. Berski, C. Schulte, J. Hübner und M. Oestreich, „*Spin Noise Spectroscopy*“, Poster, DPG-Frühjahrstagung, Berlin (2012)
- F. Berski, J. Hübner, F. Greullet, G. Astakov und M. Oestreich, „*Spin Noise Spectroscopy*“, Poster, DPG-Frühjahrstagung, Dresden (2011)

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die mich während der letzten Jahre unterstützt haben.

Ich danke Herrn Prof. Dr. Michael Oestreich, dass er mir die Durchführung von Experimenten an Halbleitern mit Optik ermöglicht hat. Ich danke auch für die vielen wertvollen Ratschläge, Denkansätze, Perspektiven und Inputs. Ebenso möchte ich mich für die Gelegenheit bedanken, dass ich ein spannendes und aktuelles Forschungsthema zum Spin bearbeiten sowie die Implementierung selbständig umsetzen durfte.

Des Weiteren möchte ich mich bei Herrn Prof. Dr. Rolf J. Haug für die Übernahme des Korreferats bedanken sowie bei Herrn Prof. Dr. Holger Frahm für die Übernahme des Promotionsvorsitzes.

Besonders möchte ich mich auch bei Dr. Jens Hübner bedanken, der durch seine Diskussionsbereitschaft erheblich zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen hat. Für seine vielen wertvollen Ratschläge, Denkansätze, Perspektiven und Inputs danke ich ebenso.

I want to thank Dr. Mikhail Glazov for his valuable theoretical support.

Ein großer Dank geht auch an:

- Dr. Michael Römer, dem ich mein erstes Spinrauschen gezeigt habe,
- Ramin Dahbashi für die kollegiale Zusammenarbeit, auch bei seinen Projekten und die Verbreitung positiver Atmosphäre,
- Hendrik Kuhn für die Zusammenarbeit beim Ultrafast und den Snow-Board Kurs in Bad Hofgastein,
- Pavel Sterin für das Korrekturlesen und die Zusammenarbeit, insbesondere auch beim 1,8 GS/s Digitalisierer,
- Agnes Beichert für die Zusammenarbeit bei den Donatoren und für die Bürogesellschaft,
- Magnus Neumann für die Zusammenarbeit bei den Absorptionsmessungen,
- Dr. Carsten Schulte für die Zusammenarbeit und die Untersuchungen zum Spinrauschen,
- Jan Gerrit Lonnemann für die Zusammenarbeit beim Ultrafast, das Korrekturlesen und die Anwesenheit beim ersten und zum Glück einzigen Magnet-Quench,
- Michael Beck für das Korrekturlesen und die vielen Pausenunterstützungen,
- Johannes Rode für die unzähligen gemeinsamen Besuche beim Olli, das Korrekturlesen dieser Arbeit und die Anwesenheit beim ersten Kernspinrauschen,
- alle ehemaligen (insbesondere Dr. Hauke Horn und Dr. Georg Müller) sowie aktuellen Femtos & Nanos für die gute Zeit,
- Ronny Hüther für den technischen Support und an die weiteren Mitarbeiter des Instituts für Festkörperphysik.

Weiterhin möchte ich meinen Eltern, meiner Schwester und ganz besonders Anja danken, die mir nicht nur nach frustrationsintensiven Labortagen Rückhalt, Ruhe und Unterstützung gibt.

Lebenslauf von Fabian Berski, geboren am 29.12.1982 in Hannover.

August 1995 - Juni 2002: **Abitur**, Schulausbildung, *Wilhelm-Raabe-Schule*, Hannover

August 2002 - Mai 2003: **Zivildienst**, *Arbeiter Samariter-Bund*, Hannover

Oktober 2003 - Mai 2010: **Diplom Physiker**, Studium der allgemeinen Physik, *Leibniz Universität*, Hannover

Juni 2010 - Dezember 2015 **Dr. rer. nat.**, Promotionsstudium, *Institut für Festkörperphysik, Leibniz Universität*, Hannover